



universität
wien

DIPLOMARBEIT

Titel der Diplomarbeit

Historische Trends urbaner Rußpartikelkonzentrationen

angestrebter akademischer Grad

Magister der Naturwissenschaften (Mag. rer.nat.)

Verfasserin / Verfasser:	Hannes Subera
Matrikel-Nummer:	0204917
Studienrichtung (lt. Studienblatt):	A 411
Betreuerin / Betreuer:	Ao. Univ.-Prof. Dr. Regina Hitzemberger

Wien, im Juli 2009

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Personen bedanken, ohne deren Mitwirken diese Diplomarbeit nicht zustande gekommen wäre:

Ao. Univ.-Prof. Dr. Regina Hitzenberger für die hervorragende Betreuung, ihre scheinbar endlose Geduld, guten Ratschläge, ihre Hilfsbereitschaft und dass sie mich auf die vielen Kleinigkeiten aufmerksam gemacht hat, die im wissenschaftlichen Alltag, gar keine Kleinigkeiten mehr sind,

den Mitgliedern der COST 633-Aktion, allen voran Janja Tursic und die Slovenian Environmental Agency, Kaare Kemp und Mathias Ketzler, Anu Kousa und Juha Pekkanen, sowie Flemming Cassee für die zugesandten und äußerst hilfreichen Daten. Ebenso H.M. ten Brink und Alan Jones, die mich auf die öffentlich zugänglichen Datenbanken der European Environment Agency und des UK Air Quality Archives verwiesen haben,

meiner Familie für den finanziellen Rückhalt und das Verständnis,

sowie meinen Freunden, die so manchen wissenschaftlichen Monolog über sich ergehen lassen mussten.

Abstract

The influence of atmospheric aerosols on climate and health is an often discussed and politically topical issue. One possibility to determine the influence of urban aerosols and specific fractions of the aerosol on human health is to compare trend analyses of aerosol concentrations with mortality rate or annual mortality due to cardiovascular and respiratory diseases. To get such comparisons it is necessary to have such trend analyses available.

In this thesis publicly available mass concentrations of Total Suspended Particulates (TSP), PM₁₀, PM_{2.5} and Black Smoke (BS), a method referring to the optical absorbance of an aerosol, were analysed. Some of the data were provided by individual members of COST Action 633. The BS-measurements were converted to elemental carbon concentrations (EC) using conversion relations given by Schaap und Denier van der Gon (2007).

The longest data sets are from the United Kingdom. Starting in 1961 they show a clear continuous reduction of the EC-concentrations by a factor of 45 till 2005. This reduction can be found, though in different magnitude, in nearly all of the observed countries, if time-series longer than 20 years are available. The EC mass concentrations show a stronger reduction than concentrations of TSP. This shows that different fractions of the aerosol changed in different ways during the four decades, probably caused by new or changing aerosol sources, fuels, combustion techniques and changes in the emission rates.

Short time series should be treated carefully. As it is seen, a rise over a few years of any of the analysed mass concentration could be a local maximum in a certain area and without information on the overall time series could lead to a false interpretation. For epidemiological studies, however, such irregularities could give a clue to the importance of specific aerosol fractions.

Atmospheric aerosol concentrations could have similar trends in an area, but very local changes, like road works or changes in the infrastructure, could lead to different trends of the mass concentrations at nearby measurement sites.

Different weather conditions might be seen in seasonal averages of the mass concentration.

It has also been shown, that the gravimetrically derived measurements at the same station often show very dissimilar trends.

Kurzfassung

Der Einfluss atmosphärischer Aerosole auf das Klima und die menschliche Gesundheit ist ein viel diskutiertes und politisch sehr präsent Thema. Eine Möglichkeit um die Wirkung von urbanem Aerosol und einzelner Fraktionen des Aerosols auf die Gesundheit zu untersuchen ist der Vergleich der Trends von Aerosolkonzentrationen mit der Sterblichkeitsrate bzw. den jährlichen Todesfällen aufgrund von Herz-Kreislauf- und/oder Atemwegserkrankungen. Um solche Vergleiche durch zu führen ist es jedoch vorher notwendig, entsprechende Langzeittrends zur Verfügung zu haben.

In dieser Arbeit wurden zu diesem Zweck öffentlich zugängliche Massenkonzentrationen und Massenkonzentrationen, die von Mitgliedern der COST 633 bereitgestellt wurden, von TSP, PM₁₀, PM_{2.5} und Black Smoke (BS), eine Messmethode zur Bestimmung des Absorptionsvermögens eines Aerosols, analysiert. Die BS – Daten wurden mittels einer Umrechnung von Schaap und Denier van der Gon (2007) in EC – Konzentrationen umgerechnet.

Die längsten Zeitreihen stammen aus Großbritannien. Beginnend im Jahr 1961 bis zum Jahr 2005 zeigen sie einen klaren, kontinuierlichen Rückgang der EC-Massenkonzentrationen um bis zu einen Faktor 45. Diese Reduktion lässt sich in so gut wie allen Ländern in unterschiedlicher, aber dennoch deutlicher Ausprägung finden, wenn Zeitreihen länger als 20 Jahre zu Verfügung stehen. Die EC – Massenkonzentrationen zeigen einen stärkeren Rückgang als die TSP - Konzentrationen. Dies weist darauf hin, dass unterschiedliche Fraktionen des atmosphärischen Aerosols sich auf unterschiedliche Arten in den 40 Jahren der Aufzeichnung entwickelt haben, wahrscheinlich bedingt durch neue oder geänderte Aerosolquellen, Treibstoffe, Verbrennungstechniken und Änderungen der Quellstärken.

Kurze Zeitreihen müssen mit Vorsicht betrachtet werden. Es hat sich gezeigt, dass ein Anstieg über mehrere Jahre bei einer der beobachteten Massenkonzentrationen ein lokales Maximum in einem bestimmten Gebiet sein kann, was ohne Kenntnis des Langzeittrends zu einer falschen Interpretation führen kann. Für epidemiologische Studien jedoch, könnten genau solche Unregelmäßigkeiten Hinweise auf die Wichtigkeit unterschiedlicher Aerosolfraktionen liefern.

Konzentrationen des atmosphärischen Aerosols können ähnliche Verläufe in einem Gebiet zeigen. Sehr lokal begrenzte Änderungen, vermutlich Infrastrukturänderungen und Baustellen, können jedoch zu sehr unterschiedlichen Trends der Massenkonzentrationen an nahe gelegenen Stationen führen.

Verschiedene Wetterbedingungen könnten anhand von saisonalen Mitteln der Massenkonzentrationen erkannt werden.

Es hat sich ebenfalls gezeigt, dass die gravimetrisch ermittelten Massenkonzentrationen an denselben Stellen sehr unterschiedliche Trends zeigen können.

Inhaltsverzeichnis

Danksagung.....	i
Abstract.....	ii
Kurzfassung.....	iii
Inhaltsverzeichnis.....	v
1 Einleitung.....	1
2 Aerosole – Hintergrund und Theorie.....	3
2.1 Begriffserklärung.....	3
2.2 Eigenschaften von Aerosolen.....	6
2.2.1 Größenverteilung, Form und Dichte von Aerosolpartikeln.....	6
2.2.1.1 Partikelgröße und Größenverteilung.....	6
2.2.1.2 Form.....	7
2.2.1.3 Partikeldichte.....	7
2.2.2 Optische Eigenschaften von Aerosolen.....	8
2.2.2.1 Extinktion.....	8
2.2.2.2 Streuung.....	10
2.2.2.3 Rayleigh-Theorie.....	10
2.2.2.4 Mie-Theorie.....	12
2.2.3 Absorption.....	14
2.2.3.1 Komplexer Brechungsindex und Absorptionskoeffizient.....	14
2.3 Das atmosphärische Aerosol.....	15
2.3.1 Primäre und sekundäre Aerosolpartikel.....	15
2.3.2 Abscheidemechanismen.....	16
2.3.3 Geografische Unterscheidungsmöglichkeiten.....	16
2.3.3.1 Natürliches Hintergrundaerosol.....	16
2.3.3.2 Anthropogenes Aerosol.....	17
2.3.3.3 Die Moden der Größenverteilungen.....	18
2.3.4 Rußpartikel im atmosphärischem Aerosol.....	21
2.3.4.1 Quellen und Senken atmosphärischer Rußpartikel.....	21
2.3.4.2 Eigenschaften von Rußpartikeln im atmosphärischen Aerosol.....	22
2.3.5 Einfluss atmosphärischer Rußpartikel auf das Klima.....	24
2.3.6 Einfluss der Aerosole auf die Gesundheit.....	26

3	Messmethoden.....	29
3.1	Inlets.....	29
3.1.1	Unterscheidung der Inlets nach dem Volumsfluss:	30
3.1.2	Unterscheidung der Inlets nach der Selektionsart:.....	30
3.1.2.1	Direkt Impaktor – Inlets	30
3.1.2.2	Dichotomous Sampler	32
3.1.2.3	Cyclonic flow – Inlets	33
3.1.2.4	Selective filtration – Inlets	33
3.1.2.5	Elutriation – Inlets.....	33
3.2	Reflektometrie.....	34
3.3	Gravimetrie	35
3.4	Beta-gauge, Beta - Monitor.....	36
3.5	Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM).....	37
3.6	Aethalometrie.....	38
3.7	Thermische Messmethoden.....	38
4	Die Umrechnung von Black Smoke in Black Carbon	39
4.1	Theoretischer Ansatz für die Umrechnung	39
4.1.1	Eine theoretische Betrachtung der BS - Messung (Quincey, 2007):.....	39
4.1.2	Eine theoretischere Betrachtung der BC-Messung:.....	41
4.2	Empirische Umrechnungen.....	42
4.2.1	Umrechnung nach Schaap und Denier van der Gon (2007):	42
4.2.2	Umrechnung laut Ruellan und Cachier (2000):	43
4.2.3	Umrechnung nach Penner et al. (1993):.....	44
4.2.4	Umrechnungen zitiert nach ten Brink und Keuken (2000), sowie Penner et al. (1993): 44	
4.3	Vergleich der Umrechnungen:.....	45
5	Ergebnisse und Diskussion.....	47
5.1	Geographische und zeitliche Abdeckung der Messstationen.....	47
5.1.1	Entwicklung an den BS-Messstationen.....	48
5.1.2	Entwicklung an den TSP – Messstationen	50
5.1.3	Entwicklung an den PM10 – Messstationen	50
5.1.4	Entwicklung an den PM 2.5-Messstationen.....	51

5.2	Jährliche und saisonale Massenkonzentrationen.....	53
5.2.1	Massenkonzentrationen von Black Smoke / Elemental Carbon	53
5.2.1.1	Jahresmittel	53
5.2.1.2	Vergleich von Sommer- und Winterkonzentrationen	60
5.2.2	TSP.....	62
5.2.2.1	Jahresmittel	62
5.2.2.2	Vergleich Sommer – Winter – Konzentrationen	65
5.2.3	PM10.....	68
5.2.3.1	Jahresmittel	68
5.2.3.2	Vergleich: Sommer – Winter – Konzentrationen	72
5.2.4	PM2.5	74
5.2.4.1	Jahresmittel von PM2.5.....	74
5.2.4.2	Vergleich: Sommer-Winter-Konzentrationen von PM2.5.....	76
5.3	Mögliche Vergleiche der Massenkonzentrationen von EC mit PM10 und TSP mit PM10 und PM2.5.....	77
5.3.1	EC vs. PM10	77
5.3.2	TSP vs. PM10 vs. PM2.5	79
6	Zusammenfassung.....	83
7	Anhang.....	85
	Literaturverzeichnis.....	215
	Internetreferenzen	223
	Lebenslauf.....	225

1 Einleitung

Die Gesundheits- und Klimarelevanz anthropogener Aerosole ist ein seit Jahrzehnten diskutiertes und auch heute noch nicht ganz geklärtes Problem. Während im 18. und 19. Jahrhundert städtische Luftverschmutzungen ein Zeichen für technologischen Fortschritt und Reichtum waren (Fenger, 2009), änderte sich diese Ansicht Ende des 20. Jahrhunderts drastisch. Ein Schlüsselereignis dieses Wandels im Denken war der so genannte Great Smog oder Big Smoke in London 1952 (Brimblecombe, 1987).

Am 5. Dezember 1952 begann eine 4 Tage andauernde Periode extremer Luftverschmutzung. Vorangegangen war eine Inversionswetterlage, bei der, unter einer wärmeren Luftschicht, kalte Luft in Bodennähe nach London strömte. Die entsprechende Reaktion der Bevölkerung war, mehr zu heizen. Da damals fast ausschließlich Kohle für die Heizungen verwendet wurde, bewirkte dies einen starken Anstieg an Aerosol in der Luft welches wegen der Inversionswetterlage nicht weg transportiert werden konnte. Der Wasserdampf in der Londoner Luft kondensierte durch die einströmende Kaltluft, wodurch sich am 5. Dezember 1952 Nebelschwaden bildeten, die sich am Abend verdichteten. Daraufhin fiel die Sichtweite auf teilweise unter einen Meter. Viele Menschen klagten über Atembeschwerden und versuchten, sich an Hauswänden zu den Krankenhäusern zu tasten. Die extremen Bedingungen, mit $\text{BS-Konzentrationen}$ von ca. 4mg/m^3 (Anderson, 2009) (zum Vergleich: heute in London ca. $10\mu\text{g/m}^3$) fanden erst am 9. Dezember ein Ende als aufkommender Wind den Smog lichtete. Es stellte sich heraus, dass durch den Nebel 4.000 Menschen ums Leben kamen (manche Schätzungen reichen bis 12.000; Bell et al., 2001).

Neben den zu beklagenden Toten hatte dieses Ereignis die Folge, dass die Luftverschmutzung wieder verstärkt ins Bewusstsein der Bevölkerung, und damit auch der Politiker, trat. In Großbritannien ließen ein massiver Ausbau der Messstationen und der Erlass von gesetzlichen Vorschriften, allen voran der Clean Air Act von 1956, nicht lange auf sich warten (Fenger, 2008).

1 Einleitung

Seither wurden in Europa verstärkt Messstationen für unterschiedliche Luftschadstoffe errichtet und es wurden epidemiologische Studien betrieben, um von bestimmten Komponenten des atmosphärischen Aerosols auf unterschiedliche Gesundheitseffekte zu schließen (Kampa und Castanas, 2008). Diese waren jedoch fast ausschließlich lokal begrenzt, erstreckten sich meist nur über einige wenige Jahre und wurden zum Teil nur in Bezug auf bestimmte Bevölkerungsgruppen durchgeführt (z.B.: Janssen et al., 2001; Goldberg et al., 2006).

Andere Studien wiederum betrachteten die Massenkonzentrationen und setzten sie in Korrelation mit z.B. Luftmassen unterschiedlicher Herkunft um die Auswirkungen des überregionalen Lufttransportes zu untersuchen (Pakkanen et al., 1999, Kleefeld et al., 2002) oder die Aerosolcharakteristik in einem speziellen Gebiet zu erfassen, um Rückschlüsse auf z.B. die Quellen, Quellstärken und saisonalen Unterschiede zu erhalten.

So zeigten Puxbaum et al. (2004), dass für die PM_{2.5}-Fraktion in Wien kaum saisonale Unterschiede zu finden sind, was auf die Verwendung sauberer Energieträger schließen lässt. Es zeigte sich allerdings auch bei vielen Stationen eine große Abhängigkeit der Aerosolcharakteristik von der vorherrschenden Wetterlage (Heal et al., 2005) und auch vom Wochenrhythmus (Kirchstetter et al., 2008). Durch die vielen unterschiedlichen Einflüsse auf das atmosphärische Aerosol können meist stark variierende Verläufe in relativ kurzen Zeiträumen (nur wenigen Jahren) bei Stationen über ganz Europa gefunden werden (Querol et al., 2004). Langfristige Zeitreihen zeigen allerdings sehr gut allgemeine, rückläufige Trends der Konzentrationen, wurden allerdings nur in Großbritannien (Novakov und Hansen, 2004) oder an vereinzelt Stationen in Großbritannien (Harrison, 2006) erfasst.

Um einen gesamteuropäischen Überblick über die Trendentwicklung des atmosphärischen Aerosols zu erhalten, wurden in dieser Arbeit Trendanalysen von 4 verschiedenen Fraktionen des atmosphärischen Aerosols (Black Smoke (BS), Total Suspended Particulates (TSP), Particulate Matter <10 μ m (PM₁₀) und Particulate Matter <2.5 μ m (PM_{2.5})) durchgeführt, damit diese eine Grundlage für zukünftige retrospektive, epidemiologische Studien bilden können. Es wurden dabei hauptsächlich Jahresmittel analysiert. Um einen besseren Einblick zu erhalten, welche Quellen möglicherweise für die Entwicklung dieser Fraktionen verantwortlich sind, wurden ebenfalls bei ausgewählten Stationen Sommer- und Wintermittelwerte berechnet, sowie ein Vergleich der verschiedenen Messgrößen untereinander vollzogen.

2 Aerosole – Hintergrund und Theorie

Im folgenden Kapitel wird versucht auf jene Aspekte der Aerosolphysik einzugehen, die für das Verständnis der Arbeit erforderlich sind. Es ist im Rahmen dieser Arbeit weder erforderlich noch möglich, alle Teile der Aerosolphysik zu behandeln.

Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt auf Daten, die mit einer optischen Messmethode für atmosphärisches Aerosol gewonnen wurden (siehe Kap. 3.2). Dementsprechend werden vor allem die optischen Eigenschaften von Aerosolen betrachtet. Da bei dieser Messmethode die Extinktion des, an einem mit Aerosolpartikeln beladenen Filter, reflektierten Lichtes verwendet wird, um auf die Massenkonzentration des Aerosols zurück zu schließen, und der absorbierende Anteil des Aerosols fast ausschließlich von Rußpartikeln herrührt, wird nach der Beschreibung des atmosphärischen Aerosols im speziellen auf die Eigenschaften, Entstehung und Auswirkungen von Rußteilchen in der Atmosphäre eingegangen.

2.1 Begriffserklärung

In der Literatur werden oftmals unterschiedliche Definitionen, vor allem für kohlenstoffhaltige Aerosole, verwendet, weswegen zu Beginn die für diese Arbeit notwendigen Begriffe definiert werden:

- Aerosol

Als Aerosol bezeichnet man eine Suspension aus festen und/oder flüssigen Teilchen in einem Trägergas. Dabei sind beide zusammen, das Gas (meist Luft) und die Partikel, mit der Bezeichnung Aerosol gemeint. Die Partikelgröße kann dabei zwischen $\sim 0,002 \mu\text{m}$ und mehr als $100 \mu\text{m}$ variieren.

● Ruß

Unter Ruß versteht man ein größtenteils aus Kohlenstoff bestehendes Material, das bei unvollständigen Verbrennungsprozessen entsteht. Je nach Quelle variiert die Zusammensetzung des Rußes von rein kohlenstoffhaltigem Ruß bis zu stark mit organischem Kohlenstoff durchsetzten Ruß. Mit der Bezeichnung Ruß wird somit keine genauere Aussage über die Substanz getroffen.

● Massenkonzentration

Als Massenkonzentration wird die Masse der Aerosolpartikel pro Volumen Aerosol bezeichnet. Häufig verwendete Einheiten sind mg/m^3 und $\mu\text{g/m}^3$.

Massenkonzentrationen atmosphärischer Aerosole liegen üblicherweise im Bereich zwischen $1\text{-}1000 \mu\text{g/m}^3$, es können jedoch bei extremen Bedingungen (Sandstürme, Staubexplosionen, etc.) Massenkonzentrationen von 10g/m^3 und mehr erreicht werden (Hinds, 1999, S.11).

● Total Suspended Particulates (TSP)

Mit Total Suspended Particulates wird die gravimetrisch gemessene Massenkonzentration eines Aerosols bezeichnet. Dabei wird keine Selektion, weder nach physikalischen noch nach chemischen Gesichtspunkten, vorgenommen.

● Particulate Matter 10/2.5 (PM10, PM2.5)

Unter PM10 versteht man all jene Partikel, die einen gröbenselektierenden Lufteinlass durchströmen. Der Lufteinlass weist bei einem aerodynamischen Äquivalentdurchmesser von $10\mu\text{m}$ eine Abscheidewahrscheinlichkeit von 50% auf.

PM2.5 bezeichnet entsprechend all jene Teilchen, die einen Lufteinlass mit einer 50%-igen Abscheidewahrscheinlichkeit bei $2.5\mu\text{m}$ Äquivalentdurchmesser passieren.

- Black Smoke (BS)

Unter Black Smoke versteht man die Massenkonzentration jener Fraktion des Aerosols, welche mittels Reflektometrie aus der Schwärzung von TSP-Filtern ermittelt werden kann (siehe Kap.3.2).

- Black Carbon (BC)

Black Carbon (also schwarzer Kohlenstoff, oder oftmals auch “Ruß” genannt) bezeichnet ebenfalls die Massenkonzentration der lichtabsorbierenden Fraktion des Aerosols. Diese wird mittels optischer Messmethoden, wie zum Beispiel der Aethalometrie (siehe Kapitel 3.6) bestimmt.

- Elemental Carbon (EC)

Als Elementaren Kohlenstoff bezeichnet man jene Fraktion des Aerosols, die durch thermische oder thermo-optische Messmethoden (siehe Kapitel 3.7) bestimmt werden kann. Man versteht darunter vor allem den Anteil an kohlenstoffhaltigen Substanzen im Aerosol, die eine sehr hohe Temperaturstabilität besitzen und erst ab einer Temperatur von 340 °C (abhängig von der verwendeten Methode und dem spezifischen Versuchsaufbau) in den gasförmigen Zustand übergehen.

Für BC und EC sind in dieser Arbeit keine Daten bearbeitet worden. Allerdings sind die Definitionen notwendig, um die Umrechnungen (siehe Kapitel 4) zu verstehen. Es gibt auch eine Vielzahl an Methoden, die hier unerwähnt bleiben, um BC und EC zu messen. Die Ergebnisse sind dabei sowohl von der angewendeten Methode als auch von der Kalibrierung abhängig.

2.2 Eigenschaften von Aerosolen

Aerosole besitzen ein riesiges Spektrum an unterschiedlichsten Eigenschaften, die je nach Aerosol variieren. Es wird daher in diesem Kapitel in Anlehnung an Hinds (1999) gar nicht erst versucht, alle Eigenschaften von Aerosolen zu erklären. Vielmehr soll nur ein Gefühl für den Begriff „Aerosol“ vermittelt werden. Zusätzlich wird im speziellen auf die optischen Eigenschaften eingegangen, da diese teilweise zum Verständnis der verwendeten Messmethoden notwendig sind.

2.2.1 Größenverteilung, Form und Dichte von Aerosolpartikeln

2.2.1.1 Partikelgröße und Größenverteilung

Da fast alle Eigenschaften von Aerosolen von der Partikelgröße abhängen, ist diese der wichtigste Parameter, nach dem das Verhalten von Aerosolen charakterisieren werden kann. Die Partikelgröße kann entweder als Partikelradius oder Partikeldurchmesser angegeben werden. Da der Partikeldurchmesser gebräuchlicher und auch anschaulicher ist, wird in dieser Arbeit der Partikeldurchmesser ($=d$) zur Beschreibung der Partikelgröße verwendet. Der Größenbereich der Aerosolpartikel reicht von einigen Nanometern bis zu einigen 100 Mikrometern, erstreckt sich also über ~ 6 Größenordnungen.

Zusätzlich zu der Abhängigkeit der Eigenschaften der Aerosolpartikel von der Partikelgröße, ändern sich auch die zugrunde liegenden Gesetzmäßigkeiten in den unterschiedlichen Größenbereichen. So werden die größten Partikel ($d > 100 \mu\text{m}$) mittels der Newtonschen Gesetze beschrieben, während so genannte Nanopartikel ($d < 50 \text{nm}$) viele Eigenschaften mit Gasmolekülen teilen und daher mit den entsprechenden Gesetzen (Brown'sche Bewegung, Gaskinetik,...) beschrieben werden müssen.

2 Aerosole – Hintergrund und Theorie

In atmosphärischen Aerosolen ist die Anzahlkonzentration, also die Anzahl der Partikel pro Kubikmeter [$1/m^3$] oder Kubikzentimeter [$1/cm^3$], gering. Weimer et al. (2008) geben für die Haupttransitroute der Schweiz (die Autobahn A2) Anzahlkonzentrationen zwischen 150.000 und 500.000 cm^{-3} an, Wehner et al. (2002) haben zu Hauptverkehrszeiten in Leipzig (Deutschland) Anzahlkonzentration bei $\sim 150.000\ cm^{-3}$ gemessen. Die Partikel können durch die geringe Dichte (100.000 Teilchen mit $1\mu m$ Durchmesser haben ein Volumen von $\sim 50.000\mu m^3 = 0,00000005cm^3$, also sind ca. 0,000005% des Volumens in einem Aerosol mit Partikeln “gefüllt”) getrennt voneinander betrachtet werden. Durch Integration über die Größenverteilung können dann die Eigenschaften des Gesamtaerosols festgestellt werden.

2.2.1.2 Form

Während flüssige Aerosolpartikel fast immer eine sphärische Form haben, können feste Aerosolpartikel durchaus komplexe Formen annehmen. Für die theoretischen Berechnungen ist es üblicherweise notwendig anzunehmen, dass alle Partikel kugelförmig sind. Zu diesem Zweck wurden verschiedene Korrekturfaktoren und der so genannte „Äquivalentdurchmesser“ eingeführt. Dieser ist der Durchmesser einer Kugel, die dieselben Werte der physikalischen Eigenschaften aufweist wie das komplex geformte Partikel.

Die Annahme des Äquivalentdurchmessers reicht für die meisten Anwendungen als Näherung aus.

2.2.1.3 Partikeldichte

Als Partikeldichte oder “bulk density” bezeichnet man die Masse pro Volumen (in kg/m^3 oder g/cm^3) der einzelnen Partikel, nicht des Aerosols. Darunter ist nicht die Anzahl der Partikel im Aerosol (in $Anzahl/m^3$ oder $Anzahl/m^3$) zu verstehen, die als Anzahlkonzentration bezeichnet wird.

Die Partikeldichte bezieht sich auf das Material, aus dem die Partikel bestehen. Die Dichte von flüssigen und festen Partikeln liegt ungefähr bei der des Materials, aus dem sie bestehen. Teilchen, die bei Verbrennungsprozessen entstehen weisen meist eine geringere Dichte auf, als ihrer chemischen Zusammensetzung entspricht. Der Grund dafür ist in der agglomerierten Struktur dieser Teilchen zu finden, wodurch viel Raum im Partikel von Luft ausgefüllt wird (dadurch ergibt sich auch eine extrem hohe spezifische Oberfläche der Partikel).

2.2.2 Optische Eigenschaften von Aerosolen

Die optischen Eigenschaften von Aerosolen sind nicht nur für eine Vielzahl faszinierender Ereignisse in der Natur verantwortlich (wie das Blau des Himmel, das Rot der Abenddämmerung, oder das Farbenkaleidoskop eines Regenbogens), sie können auch für eine große Anzahl unterschiedlicher Messmethoden genutzt werden.

Die Beliebtheit optischer Messmethoden zur Bestimmung der Partikelgrößen und -konzentrationen liegt zu einem großen Teil in ihrer hohen Empfindlichkeit, der Schnelligkeit und des meistens nicht benötigten physischen Kontaktes mit den Aerosolteilchen. Der bevorzugte Wellenlängenbereich der optischen Messmethoden ist der des sichtbaren Lichtes, mit Wellenlängen zwischen 0,4 (violett) und 0,7 μm (rot).

2.2.2.1 Extinktion

Unter Extinktion versteht man die Abschwächung einer Strahlung beim Durchdringen eines Mediums entlang einer Achse. In unserem Fall ist die Strahlung sichtbares Licht und das Medium das Aerosol. Mittels des Lambert – Beer – Gesetzes:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\sigma_E L} \quad (2.1)$$

kann diese Abschwächung berechnet werden. Dabei versteht man unter I_0 die Intensität des einfallenden Lichtstrahls, I die Intensität des transmittierten Lichtstrahls, σ_E den Extinktionskoeffizient [m^{-1}] und L die Weglänge des Lichtes [m] durch das Aerosol.

Bei der Wechselwirkung von Licht mit den Partikeln können Absorption und Streuung auftreten. Bei der Absorption wird die Energie des Lichtes von den Teilchen aufgenommen und in Wärme umgewandelt, wodurch diese Energie beim Detektor fehlt. Bei der Streuung wird das Licht aus der ursprünglichen Richtung abgelenkt.

Um nun die Extinktion von Licht durch ein Aerosol zu bestimmen, betrachtet man zunächst die Extinktion, die ein einziges Aerosolpartikel erzeugt. Die Extinktionseffizienz Q_E eines Partikels ist definiert als das Verhältnis der absorbierten und gestreuten Strahlung zu der auf die Querschnittsfläche des Partikels einfallenden Strahlung. Q_E ist eine dimensionslose, von der Partikelgröße, der Wellenlänge des einfallenden Lichts und dem komplexem Brechungsindex des Partikels abhängige Größe. Durch Multiplikation der Extinktionseffizienz mit der geometrischen Querschnittsfläche des Teilchens A_p ($A_p=d^2\pi/4$) erhält man den Extinktionsquerschnitt des Teilchens. In einem monodispersen Aerosol (also ein Aerosol mit Teilchen gleicher Größe) wird der Extinktionsquerschnitt mit der Teilchenzahl N multipliziert, was schließlich den Extinktionskoeffizienten σ_E liefert:

$$\sigma_E = \frac{N \cdot d^2 \cdot \pi \cdot Q_E}{4} \quad (2.3)$$

Die Extinktionseffizienz Q_E kann als Summe der Streueffizienz Q_S und der Absorptionseffizienz Q_A betrachtet werden.

$$Q_E = Q_S + Q_A \quad (2.4)$$

Demnach berechnet sich der Extinktionskoeffizient ebenfalls als Summe des Streukoeffizienten und des Absorptionskoeffizienten, wobei der Streukoeffizient und der Absorptionskoeffizient analog zu Gleichung 2.3 definiert sind, mit den jeweils entsprechenden Effizienzen, die wiederum analog der Extinktionseffizienz definiert werden.

Während der Extinktionskoeffizient für ein monodisperses Aerosol mit Gleichung 2.3 berechnet werden kann, muss bei einem polydispersen Aerosol, d.h. einem Aerosol mit unterschiedlichen Partikelgrößen, eine Aufsummierung der Extinktionseffizienzen der verschiedenen Teilchengrößen vorgenommen werden. Weiters muss die Abhängigkeit der Extinktionseffizienz vom Verhältnis der Partikelgröße zur Lichtwellenlänge und von den unterschiedlichen Brechungsindizes der verschiedenen Partikel mit einbezogen werden.

2.2.2.2 Streuung

Als Streuung bezeichnet man die Änderung der Ausbreitungsrichtung des Lichtes durch die Wechselwirkung mit einem Teilchen. Diese Wechselwirkung ist sehr stark vom Verhältnis der Wellenlänge λ des einfallenden Lichtes zum Teilchendurchmesser d abhängig. Dieses Verhältnis wird mit dem Größenparameter α bezeichnet und folgendermaßen definiert:

$$\alpha = \frac{\pi \cdot d}{\lambda} \quad (2.5)$$

In Abhängigkeit vom Größenparameter α haben sich zur Beschreibung der Streuung 3 unterschiedliche Theorien als nützlich erwiesen. Für $\alpha \gg 1$, also wenn die Teilchen viel größer als die Lichtwellenlänge sind (bei sichtbarem Licht ist das für Partikel mit einem Durchmesser von $>100\mu\text{m}$ der Fall), werden die Theorien der geometrischen Optik und der Beugung angewendet. Für $\alpha \approx 1$, also wenn Wellenlänge und Teilchendurchmesser ungefähr im gleichen Größenbereich liegen, wird die Mie-Theorie verwendet. Für sehr kleine α , was bei sichtbarem Licht einem Partikeldurchmesser von $<0,05\mu\text{m}$ entspricht, kann die Rayleigh-Theorie benutzt werden.

Für die Aerosolphysik sind die Mie-Theorie und die Rayleigh-Theorie von Interesse, da im atmosphärischen Aerosol so gut wie alle luftgetragenen Teilchen einen Durchmesser von $<100\mu\text{m}$ besitzen, wodurch bei sichtbarem Licht nur diese beiden Theorien für eine korrekte Beschreibung verwendet werden können.

2.2.2.3 Rayleigh-Theorie

Für die kleinsten Teilchen ($d < 0,05\mu\text{m}$) des atmosphärischen Aerosols kommt, bei sichtbarem Licht, die Rayleigh-Theorie zur Beschreibung zum Einsatz. Diese kleinen Partikel verhalten sich wie Dipole und werden durch das einfallende Licht zu Schwingungen, synchron zum elektromagnetischen Feld des Lichtes, angeregt. Diese oszillierenden Dipole senden ihrerseits wieder in fast alle Richtungen, einzige Ausnahme ist die eigene Schwingungsrichtung, elektromagnetische Wellen aus.

Die Intensität für unpolarisiertes Licht der Wellenlänge λ im Abstand R vom Teilchen kann folgendermaßen angegeben werden:

$$I(\Theta) = \frac{I_0 \cdot \pi^4 \cdot d^6}{8 \cdot R^2 \cdot \lambda^4} \cdot \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)^2 \cdot (1 + \cos^2 \Theta) \quad (2.6)$$

Dabei ist $I(\Theta)$ die Gesamtintensität, Θ der Streuwinkel, I_0 die Intensität des einfallenden Lichtes und m der komplexe Brechungsindex.

In Gleichung 2.6 sieht man, dass die Lichtintensität des gestreuten Lichtes von λ^{-4} abhängt. Durch diese Abhängigkeit kann das Himmelsblau erklärt werden, da blaues Licht eine halb so große Wellenlänge hat wie rotes Licht und daher ~16-mal so stark gestreut wird. Dadurch wird der blaue Teil des Sonnenlichtes an der Atmosphäre stärker aus der Ausbreitungsrichtung des Sonnenlichtes weggestreut. Dieses Streulicht nehmen wir als das Blau des Himmels wahr.

Die Winkelabhängigkeit der Intensitätsverteilung, siehe Abbildung 2.1, liegt in Gleichung 2.6 im $(1 + \cos^2 \Theta)$ Term. Die beiden Komponenten dieses Terms zeigen die beiden unabhängigen Polarisationsrichtungen, aus denen sich das Streulicht zusammensetzt. Der streuwinkelunabhängige Teil dieses Terms (als I_1 in Abbildung 2.1 dargestellt) beschreibt jene Komponente, die normal auf die Streuebene polarisiert ist. Die Streuebene ist jene Ebene, die vom einfallenden und vom gestreuten Licht aufgespannt wird. Der zweite Teil (als I_2 in Abbildung 2.1 dargestellt) zeigt die Streulichtkomponente, die parallel zur Streuebene polarisiert ist. Diese zeigt eine \cos^2 -Abhängigkeit vom Streuwinkel. Daher ist bei $\Theta = 90^\circ$ und $\Theta = 270^\circ$ kein Anteil dieser Streulichtkomponente zu finden, während das in Richtung $\Theta = 0^\circ$ und $\Theta = 180^\circ$ gestreute Licht die gleiche Intensität aufweist wie von der ersten Komponente. Wie man anhand Abbildung 2.1 anschaulich erkennen kann, wird bei der Rayleigh-Streuung in die Vorwärtsrichtung gleich viel gestreut wie in die Rückwärtsrichtung.

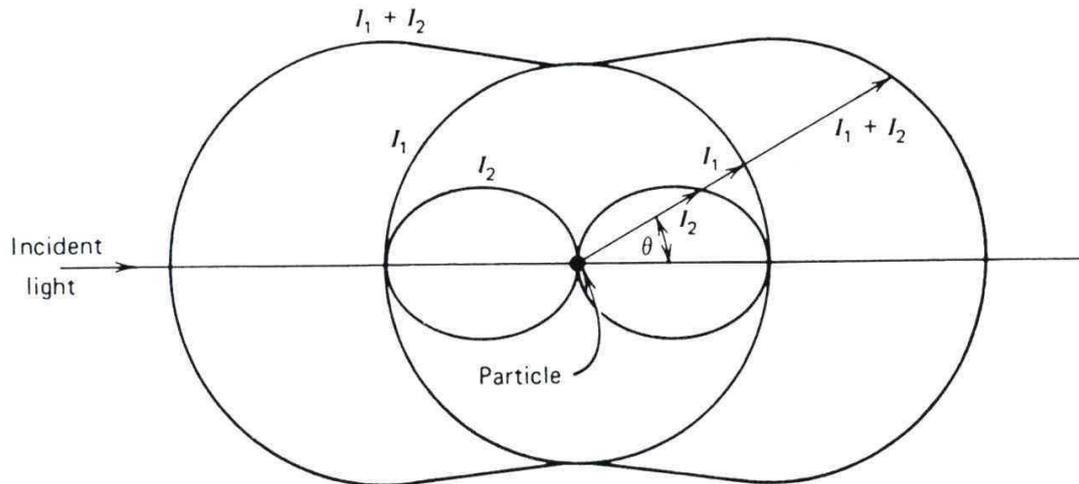


Abbildung 2.1: Polardiagramm der Rayleigh-Streuung. Streuebene parallel zum Papier. (Quelle: Hinds, 1999: Figure 16.7)

2.2.2.4 Mie-Theorie

Unter Mie-Theorie versteht man die allgemein gültige Theorie der Lichtstreuung in Aerosolen. Die geometrische Optik und die Rayleigh-Streuung liefern in ihren jeweiligen Bereichen äquivalente Ergebnisse zur Mie-Theorie, bei einfacherem Formalismus. Die von Gustav Mie 1908 entwickelte Theorie beschreibt vollständig die Intensitätsverteilung des an absorbierenden und nicht absorbierenden, sphärischen Teilchen gestreuten Lichtes in alle Raumwinkel. Voraussetzung dafür sind bekannte Werte für den Größenparameter α , den komplexen Brechungsindex m und die Intensität des einfallenden Lichtes I_0 .

Grundannahme der Mie-Theorie ist die Wechselwirkung der Teilchen mit der einfallenden elektromagnetischen Welle, wodurch die Partikel zu Oszillationen angeregt werden. Da es sich im Allgemeinen jedoch um größere Partikel handelt, als jene, für die die Rayleigh-Theorie angewendet wird, kann nicht die Vereinfachung eines Dipols angenommen werden. Stattdessen betrachtet man das Teilchen als oszillierenden Multipol. Die sich daraus ergebende Streulichtintensität von unpolarisiertem Licht kann wie folgt angegeben werden:

$$I(\Theta) = \frac{I_0 \cdot \lambda^2 \cdot (i_1 + i_2)}{8 \cdot \pi^2 \cdot R^2} \quad (2.7)$$

2 Aerosole – Hintergrund und Theorie

wobei λ die Wellenlänge des Lichtes, I_0 die Intensität des einfallenden Lichtstrahls und R der Abstand vom Partikel ist. Mit i_1 und i_2 bezeichnet man die Mie-Intensitätsparameter.

Mit i_1 wird jener Anteil des Streulichtes beschrieben, der normal zur Streuebene polarisiert ist und mit i_2 der Anteil parallel zur Streuebene. Die Mie-Intensitätsparameter sind komplizierte, von m , α und dem Streuwinkel Θ abhängige Funktionen, deren Berechnung erst mit der Computertechnologie in annehmbaren Zeitspannen möglich wurde.

In Abbildung 2.2 ist die starke Winkelabhängigkeit der Mie-Streuung eines $2\mu\text{m}$ großen sphärischen Partikels bei Licht der Wellenlänge $\lambda=633\text{nm}$ dargestellt. Im Gegensatz zur Rayleigh-Streuung ist eine deutliche Vorwärtsstreuung zu beobachten.

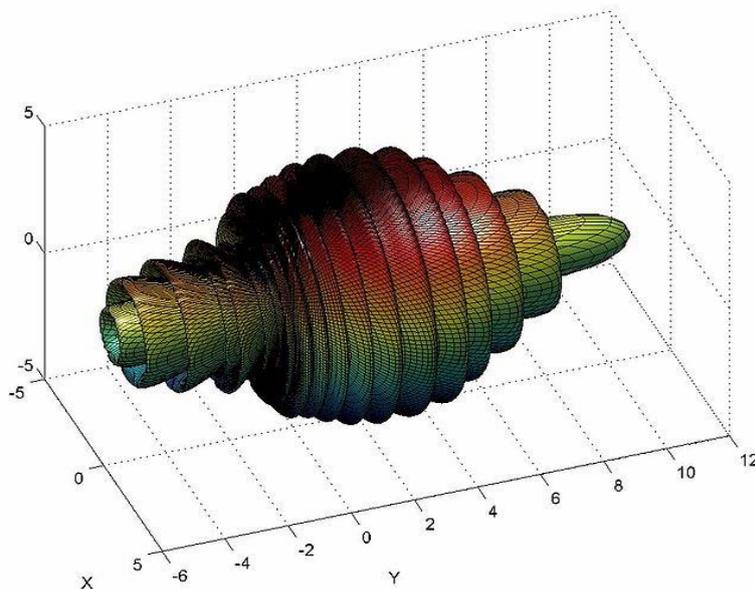


Abbildung 2.2: Mie-Streuung von Licht ($\lambda=633\text{nm}$) an einem kugelförmigen Teilchen ($d=2\mu\text{m}$). Die Ausdehnungen stellen die entsprechenden Intensitäten der jeweiligen Streuwinkel dar (zu beachten: logarithmische Auftragung). (Quelle: Wikipedia, Internetref.1)

Aus der so erhaltenen Streuintensität kann die Streueffizienz Q_S durch Berechnung des Streuquerschnitts ermittelt werden (siehe McCartney (1976), Bohren und Huffman (1983) oder online über z.B die Homepage des Oregon Medical Laser Center, Internetref. 2).

2.2.3 Absorption

Neben der Streuung trägt die Absorption zur Strahlabschwächung von Licht beim Durchgang durch ein Medium bei. Bei der Absorption wird die Energie des Lichtes in innere Energie des Partikels, also Wärme, umgewandelt. Der Großteil des absorbierten Lichtes in der Atmosphäre wird von Rußteilchen aufgenommen. Dies wird bei optischen Messmethoden benutzt, um Rußkonzentrationen zu ermitteln.

Die physikalische Größe, die angibt, wie stark eine Substanz Licht absorbiert ist der Imaginärteil des komplexen Brechungsindex.

2.2.3.1 Komplexer Brechungsindex und Absorptionskoeffizient

Der komplexe Brechungsindex $m(\lambda)$ setzt sich aus dem Realteil $n(\lambda)$ und dem Imaginärteil $k(\lambda)$, auch Absorptionsindex genannt, zusammen:

$$m(\lambda) = n(\lambda) - ik(\lambda) \quad (2.8)$$

Der Realteil des Brechungsindex gibt das Verhältnis der Phasengeschwindigkeit von Licht im Vakuum c , also $3 \cdot 10^8$ m/s, zu der Geschwindigkeit im Medium v_{ph} an, also:

$$n(\lambda) = \frac{c}{v_{ph}(\lambda)} \quad (2.8)$$

Die Phasengeschwindigkeit des Lichtes im Medium ist zusätzlich zu den spezifischen Eigenschaften des Mediums abhängig von der Wellenlänge des Lichtes (Dispersion). Definitionsgemäß ist damit der Brechungsindex von Vakuum $n(\lambda)$ gleich 1 und von allen anderen Materialien größer als 1. So hat zum Beispiel Wasser einen Brechungsindex von $n(\lambda) = 1,333$ bei $\lambda = 589$ nm.

Der Absorptionsindex $k(\lambda)$ beschreibt die Abnahme der Amplitude der elektromagnetischen Welle, während sie das Material durchdringt. Er steht in direktem Zusammenhang mit dem Absorptionskoeffizienten σ_A :

$$\sigma_A = \frac{4 \cdot \pi \cdot k(\lambda)}{n(\lambda) \cdot \lambda} \quad (2.9)$$

Für nicht absorbierende Materialien ist der Absorptionsindex gleich Null, während für Ruß, je nach Beschaffenheit, der Absorptionsindex zwischen 0,66 und 1 variieren kann (Bussemer, 1998).

2.3 Das atmosphärische Aerosol

Bisher haben wir die Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols unabhängig von der Entstehung und von der geografischen Lage betrachtet. Aber gerade die Frage nach den von der Menschheit hervorgerufenen Veränderungen im Aerosol wird in dieser Arbeit bearbeitet. Im folgenden Kapitel werden daher die Eigenschaften von natürlichem Hintergrundaerosol und von urbanem, hauptsächlich von anthropogenen Quellen beeinflusstem, Aerosol nach Hinds (1999) und Willeke und Baron (1993) beschrieben. Anschließend werden noch die Größenverteilungen (Massen- und Anzahlkonzentration) im atmosphärischen Aerosol betrachtet. Zum Abschluss des Kapitels wird auf die Auswirkungen von atmosphärischem Aerosol auf das Klima und auf die Gesundheit kurz eingegangen.

2.3.1 Primäre und sekundäre Aerosolpartikel

Aerosolpartikel lassen sich nach ihrer Erzeugung in zwei verschiedene Klassen einteilen: primäre und sekundäre Partikel. Unter primären Partikeln versteht man jene Partikel, die direkt in die Atmosphäre emittiert werden, wie zum Beispiel durch Verbrennungsprozesse, von den Ozeanen freigesetztes Meeressalz oder vulkanische Eruptionen.

Als sekundäre Partikel bezeichnet man Teilchen, die durch chemische Reaktionen, wie Gas-Partikel-Umwandlung oder photochemische Prozesse und Koagulation, in der Atmosphäre gebildet werden.

Teilchen beider Arten können anwachsen, verdunsten oder weitere chemische Reaktionen eingehen. Unterschiedliche Abscheidemechanismen sorgen für weitere Änderungen in der Größenverteilung.

2.3.2 Abscheidemechanismen

Die Abscheidemechanismen der Teilchen sind von großer Bedeutung. Sie legen die Dauer im luftgetragenen Zustand fest und sind daher mitentscheidend für die Größenverteilung der Aerosolpartikel. Große Partikel ($d > 2\mu\text{m}$) werden durch Sedimentation oder Impaktion an Oberflächen (trockene Deposition), oder auch durch Regen und Schnee (nasse Deposition) verstärkt aus dem Aerosol entfernt. Kleine Teilchen ($d < 0,1\mu\text{m}$) wiederum können an Oberflächen diffundieren, koagulieren oder auch als Wolkenkondensationskerne dienen. Dadurch halten sich große und kleine Partikel meist nur wenige Stunden, mittlere Partikel ($0,1\mu\text{m} < d < 2\mu\text{m}$), die keine bevorzugten Abscheidemechanismen aufweisen, teilweise mehrere Tage in der Atmosphäre auf.

2.3.3 Geografische Unterscheidungsmöglichkeiten

2.3.3.1 Natürliches Hintergrundaerosol

Die Beschreibung von natürlichem Aerosol, also jenem Aerosol, das ohne anthropogener Einflussnahme vorhanden wäre, muss eine Vielzahl an Faktoren mit einbeziehen. Sehr unterschiedliche Quellen, wie Staubaufwirbelungen, Meere, botanische Ablagerungen, vulkanischer Staub und Waldbrände sorgen für lokal stark variierende Aerosolzusammensetzungen. Auch der Beitrag zum globalen Emissionshaushalt ist sehr unterschiedlich. Meeressalz, das von den Ozeanen und an den Küsten freigesetzt wird, trägt 1.000 – 10.000 Tg/Jahr zu der natürlichen Quellstärke bei, während vulkanischer Staub zwischen 4 – 10.000 Tg/Jahr und botanische Ablagerungen nur 26 – 80 Tg/Jahr beitragen (Hinds, 1999). Zu den bedeutendsten sekundären Partikelquellen zählen photochemische Prozesse und die Gas-Partikel-Umwandlung.

In der Troposphäre (unter 8-15km Seehöhe) sind die größten Quellen für Aerosolteilchen Wüsten, Ozeane und Vegetation. 80% der direkten Emissionen, natürlichen und anthropogenen Ursprungs, findet man in der unteren Schicht der Troposphäre (der Peplosphäre oder planetaren Grenzschicht), wodurch eine starke Höhen-Abhängigkeit sichtbar wird. Schon wenige Kilometer über dem Boden wird die Teilchengrößenverteilung kaum von den Primärpartikeln beeinflusst, mit Ausnahme vulkanischer Eruptionen, die Teilchen bis in die Stratosphäre (von der Tropopause bis ca. 50km über dem Erdboden) schleudern können. Die wichtigste natürliche sekundäre Aerosolquelle in der Troposphäre ist die Gas-Partikel-Umwandlung. Neben dieser spielen unter anderem photochemische Prozesse und Koagulation eine Rolle. Über der planetaren Grenzschicht (diese ist meist in einer Höhe bis 1,5 – 2km über dem Boden zu finden) oder in abgelegenen Gebieten, kann man meist von „sauberer Luft“ ausgehen. Darunter versteht man Luft mit weniger als 700 Partikeln/cm³ (Hinds, 1999).

Die Hauptquellen für Aerosolteilchen in der Stratosphäre stellen die Gas-Partikel-Umwandlung (Hinds, 1999) und, unter Umständen, vulkanische Eruptionen (Püschel, 1996) dar. Der anthropogene Einfluss auf stratosphärisches Aerosol durch Flugzeuge macht 1% der Gesamtmasse aus (Püschel, 1996). Durch die Absorption des Sonnenlichts am stratosphärischen Aerosol erwärmt sich die Stratosphäre. Simultan dazu kühlt sich die Troposphäre durch Streuung und Absorption in der Stratosphäre ab. Die Eruption des Pinatubo von 1991 beförderte 14-20 Tg SO₂ in die Stratosphäre, wodurch laut Püschel (1996) eine Abkühlung von -2,7 W/m² im September 1991 auf der Erdoberfläche zu verzeichnen war.

2.3.3.2 Anthropogenes Aerosol

Während sich das natürliche Hintergrundaerosol gleichmäßig über größere Zonen der Erde verteilt und die Gesamtmasse der durch natürliche Quellen erzeugten Partikel über der Masse der anthropogenen Quellen liegt (diese liefern ca. 10 – 50% der globalen Partikelmasse), konzentrieren sich die anthropogenen Quellen auf die industrialisierten Gebiete und dort im speziellen auf Städte und urban beeinflusste Gebiete.

Typische primäre anthropogene Quellen von Aerosolpartikeln sind die Verbrennung fossiler Brennstoffe, wie Öl und Kohle, und das Abbrennen von Feldern. Viele Teilchen des primären anthropogenen Aerosols sind sehr klein (<0,1µm), dafür jedoch sehr zahlreich, wodurch sie sehr koagulieren und zu größeren Teilchen, anwachsen.

Das Aerosol in urbanem Gebiet ist eine Mischung, die aus vielen verschiedenen Aerosolquellen stammt. Die Größenverteilung dieser Mischung primären Aerosols wird auch noch sehr stark durch größenändernde Vorgänge wie Koagulation, Deposition, Kondensation und Verdunstung beeinflusst. Dominierend bei den Quellen des urbanen Aerosols sind die unterschiedlichen anthropogenen, aber auch die natürlichen haben je nach Lage und Wetter unterschiedlich starke Einflüsse. Niemi et al. (2004) haben erhöhte PM_{2.5}-Konzentrationen in Helsinki auf Biomasseverbrennungen, im speziellen auf das großflächige Abbrennen von Feldern, in Osteuropa zurückgeführt, was verdeutlicht, dass nicht nur lokale Quellen die Luftqualität beeinflussen.

2.3.3.3 Die Moden der Größenverteilungen

Durch die Komplexität des atmosphärischen Aerosols und die unterschiedlichen Quellen und Abscheidemechanismen ist es schwierig, allgemein gültige Aussagen über das uns umgebende Aerosol zu treffen. Whitby (1978) hat die Größenverteilung des atmosphärischen Aerosols in drei unterschiedlichen Häufungsbereichen (Moden) dargestellt, die als Log-Normal-Verteilungen, wie in Abbildung 2.3, angegeben werden können. Die mittleren Volumsdurchmesser liegen laut Whitby für den Nukleations-Mode zwischen 0,015µm und 0,04µm, für den Akkumulations-Mode zwischen 0,15µm und 0,5µm und für den Grobstaub-Mode (Coarse) zwischen 5µm und 30µm.

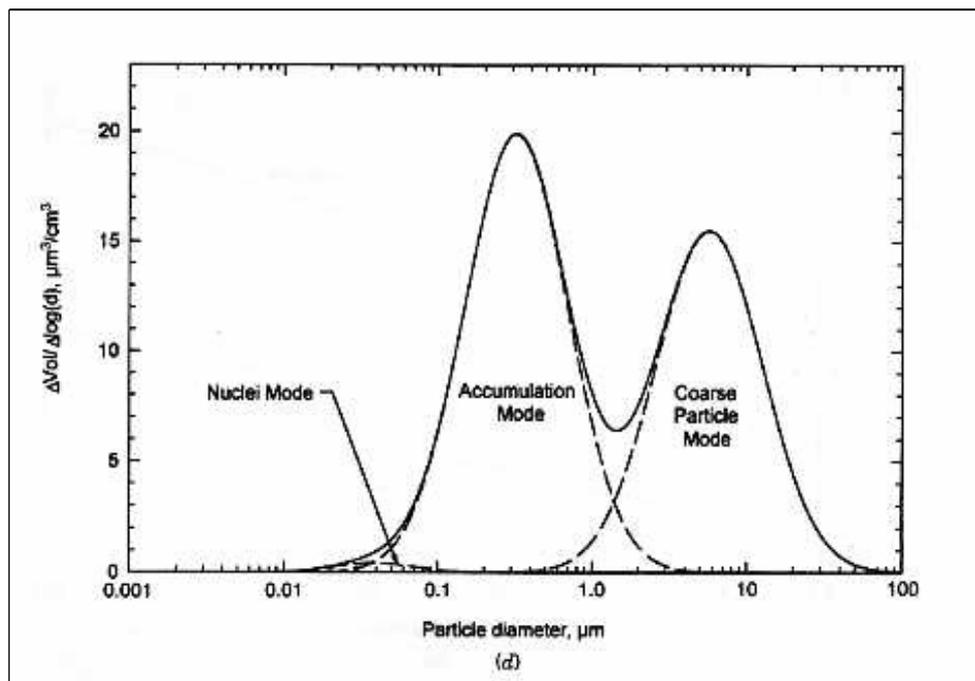


Abbildung 2.3: Log-Normal-Massengrößenverteilung (Quelle: Hinds, 1999: Figure: 14.2d)

2 Aerosole – Hintergrund und Theorie

Der Nukleations-Mode ($<0,1\mu\text{m}$) besteht hauptsächlich aus Teilchen, die durch Verbrennungsprozesse direkt in die Atmosphäre emittiert wurden und Teilchen, welche durch die Gas-Partikel-Umwandlung in der Atmosphäre entstanden sind. Daher ist vor allem in der Nähe dicht befahrener Straßen eine stärkere Ausprägung dieses Häufungsbereiches zu beobachten. Der Nukleations-Mode zeichnet sich vor allem durch eine hohe Anzahlkonzentration aus, siehe Abbildung 2.4. Durch die geringe Größe der Partikel ist dieser Mode allerdings nur von geringer Bedeutung bei der Massenkonzentration (ein $0,01\mu\text{m}$ großes Teilchen hat $1/1.000.000$ der Masse eines $1\mu\text{m}$ großen Teilchens derselben Dichte). Die hohe Anzahlkonzentration führt dazu, dass diese kleinen Partikel sehr schnell mit Partikeln des Nukleations- und Akkumulations-Mode koagulieren. Dadurch „wachsen“ die meisten Partikel dieses Häufungsbereiches schnell in den Akkumulations-Mode hinein, was zu einer geringen Lebensdauer der Partikel im Nukleations-Mode führt. Weiters können diese kleinen Partikel auch als Kondensationskerne dienen.

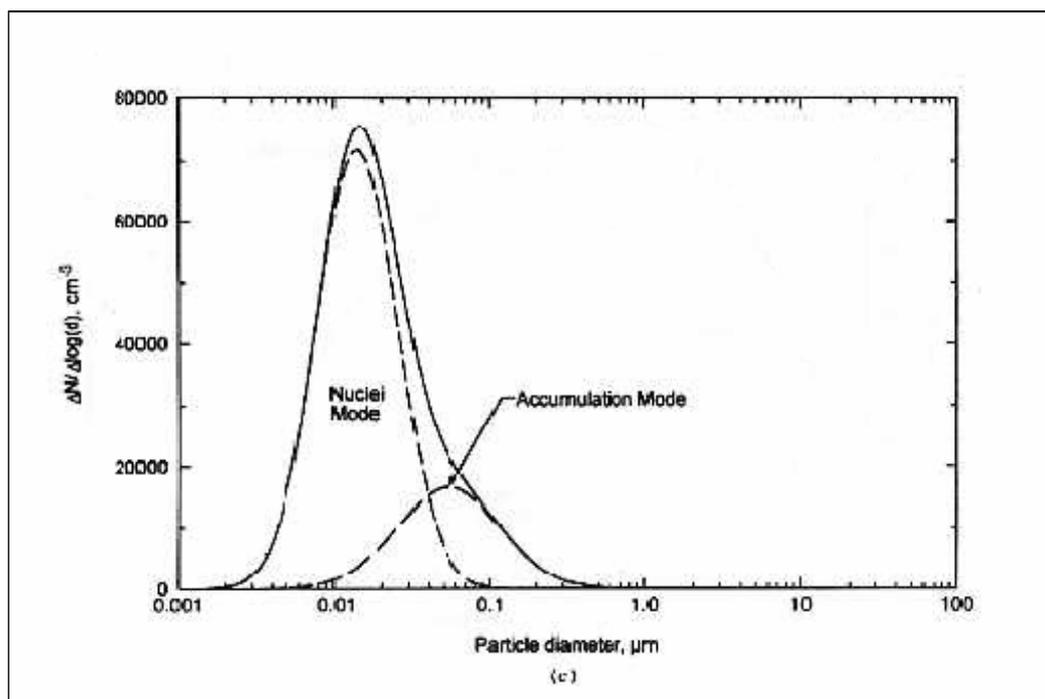


Abbildung 2.4: Log-Normal-Anzahlgrößenverteilung (Quelle: Hinds, 1999: Figure 14.2c)

Der Akkumulations-Mode beinhaltet Teilchen aus Verbrennungs- und photochemischen Prozessen in der Atmosphäre. Eine weitere Quelle für diesen Mode ist die Koagulation von Partikeln aus dem Nukleations-Mode mit Teilchen des Akkumulation-Modus. Für Partikel des Akkumulation-Modus sind die Abscheidemechanismen zu wenig effizient. Die Teilchen können zwar durch nasse Deposition entfernt werden, koagulieren aber zu langsam, um weiter, in den Grobpartikel-Mode, anzuwachsen und durch trockene Deposition abgeschieden zu werden und sind andererseits zu groß und damit träge, um durch Diffusion effizient entfernt zu werden. Die Partikel des Akkumulations-Modus tragen maßgeblich zu den optischen Effekten von Aerosolen bei, da die Wellenlänge des Lichtes im Größenbereich der Akkumulations-Mode-Teilchen liegt und die Partikel daher sehr effektiv Licht streuen.

Der Grobstaub-Mode besteht aus Sand, großen Salzpartikeln und mechanisch erzeugten anthropogenen Teilchen (wie z.B. Reifenabrieb, Staub aus Bergwerken oder der Agrarindustrie). Da Partikel dieses Häufungsbereiches recht groß sind, setzen sie sich schnell am Boden oder anderen Oberflächen ab, wodurch sie eine atmosphärische Lebensdauer von meist nur einigen Stunden haben.

In Abbildung 2.3 ist gut zu erkennen, dass zwischen Akkumulations-Mode und Grobstaub-Mode ein mehr oder weniger, von der spezifischen Aerosolzusammensetzung abhängiges, stark ausgeprägtes Tal ist. Die beiden kleineren Moden werden durch Messungen von PM_{2.5} erfasst und können zusammenfassend auch als Feinstaub bezeichnet werden (Hinds, 1999). Die in PM_{2.5} enthaltene Masse stammt jedoch fast ausschließlich aus dem Akkumulations-Mode. Der Grobstaub-Mode wird durch PM₁₀- und TSP-Messungen erfasst, wobei bei diesen Messungen ebenfalls, da ein Teil davon, die PM_{2.5}-Fraktion mitgemessen wird. Da die Partikel des Grobstaub-Modus eine größere Masse aufweisen als jene der beiden anderen Moden, verschiebt sich der Anteil des Grobstaub-Modus an PM₁₀ bzw. TSP je nach Aerosolzusammensetzung. Um aus den Messungen von PM₁₀ und PM_{2.5} auf den Anteil des Grobstaub-Modus zu schließen, wurde die Fraktion PM_{Coarse} oder PM(10-2.5) eingeführt. Darunter versteht man jene Fraktion des Aerosols, die man erhält, wenn man von der PM₁₀-Fraktion die PM_{2.5}-Fraktion abzieht.

PM_{2.5} und PM_{Coarse} haben stark unterschiedliche chemische Zusammensetzungen, Lebensdauern und Quellen. Zwischen 1/3 und 2/3 der Gesamtmasse entfallen auf die PM(10-2.5)-Fraktion, wobei der genaue Anteil von der geografischen Lage, der Höhe der Messstelle über dem Erdboden und auch von den Wetterverhältnissen abhängt. So finden bei stabilen Hochdrucklagen vermehrt photochemische Prozesse statt, als bei hohen Windgeschwindigkeiten. Andererseits wird die Konzentration von windgetragenen

Staubpartikeln bei niedrigen Windgeschwindigkeiten geringer sein, als bei hohen Windgeschwindigkeiten.

Wie man sieht, spielen viele verschiedene Faktoren in der Größenverteilung der Aerosole eine Rolle. Größenverteilungen wie Abbildung 2.3 zeigen das Gesamtergebnis aller dieser unterschiedlichen Einflüsse.

2.3.4 Rußpartikel im atmosphärischem Aerosol

Ein wesentlicher Bestandteil des atmosphärischen Aerosols sind durch Verbrennungsprozesse entstandene Rußpartikel. Je nach Zeit, Ort und Wetterverhältnissen stammen 10 - 30% der Gesamtmasse des atmosphärischen Aerosols von kohlenstoffhaltigen Teilchen (Pöschl, 2005). Dazu zählen sowohl organische und anorganische Kohlenstoffverbindungen, als auch Ruß. Ruß stellt daher nur einen sehr geringen Teil (~5%) der Gesamtmasse des atmosphärischen Aerosols dar. Dennoch behandeln Klimamodelle Ruß als wichtigste lichtabsorbierende Komponente des Aerosols. Zur Beschreibung von Rußkonzentrationen im atmosphärischen Aerosol werden unterschiedliche physikalische Eigenschaften von Ruß benutzt. Anhand dieser wurden und werden verschiedene Messmethoden entwickelt deren Ergebnisse unterschiedliche Bezeichnungen (wie BC, EC und OC) tragen.

2.3.4.1 Quellen und Senken atmosphärischer Rußpartikel

Rußpartikel entstehen bei unvollständiger Verbrennung von organischem Material, z.B. bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe, wie Öl und Gas, und auch bei Biomasseverbrennungen, wie Wald- und Buschbrände. Biomasseverbrennungen stellen vor allem in tropischen Gebieten den Hauptanteil der atmosphärischen Rußpartikel. Im Gegensatz dazu ist auf der Nordhalbkugel die Verbrennung fossiler Brennstoffe durch Verkehr, Heizungen und Industrie die Hauptquelle.

Bond et al. (2004) schätzen, dass global jährlich 8Tg BC emittiert werden. Ältere Studien gehen von 13,94 Tg/Jahr (Cooke und Wilson, 1996) beziehungsweise 12-24 Tg/Jahr (Penner et al., 1993) aus.

Rußpartikel haben eine vergleichsweise geringe Lebensdauer von 6 bis 10 Tagen in der Atmosphäre (Cooke und Wilson, 1996). Sie werden hauptsächlich durch nasse Deposition, also durch Niederschlag aus der Luft entfernt, können sich aber auch an Oberflächen durch Diffusion oder Sedimentation absetzen.

Eine weitere Möglichkeit ist die Aufnahme von Rußpartikeln in Wolkentröpfchen. Hitzberger et al. (2001) haben festgestellt, dass sich im Wolkenwasser der Rax (Berg in den östlichen Ausläufern der österreichischen Alpen, 1680m Seehöhe) BC-Konzentrationen zwischen 1,09 µg/ml und 1,4 µg/ml befinden.

2.3.4.2 Eigenschaften von Rußpartikeln im atmosphärischen Aerosol

Die Eigenschaften von Rußpartikeln sind sehr unterschiedlich. Sie sind unter anderem vom Entstehungsprozess, vom Ausgangsmaterial, von der Windgeschwindigkeit, der Luftfeuchtigkeit und der in der Atmosphäre verbrachten Zeit abhängig.

Rußpartikel koagulieren direkt nach der Verbrennungszone zu kettenförmigen Agglomeraten mit einigen hundert Nanometern Durchmesser (Burtscher, 1992). Diese Rußagglomerate liegen im Bereich der Wellenlänge des sichtbaren Lichtes und streuen daher Licht sehr effizient. Der von Hinds (1999) angegebene Brechungsindex $m = 1,96 - 0,66i$ für Rußpartikel bei einer Lichtwellenlänge von 589nm zeigt einen sehr hohen Imaginärteil. Bond und Bergstrom (2006) schlagen vor, bei 550nm Lichtwellenlänge für kohlenstoffreiche Partikel einen Brechungsindex von $m = 1,97 - 0,79i$ zu verwenden. Die hohen Imaginärteile zeigen, dass Ruß ein sehr hohes Absorptionsvermögen besitzt. Die Lichtabsorption im atmosphärischen Aerosol kann fast vollständig auf die enthaltenen Rußpartikel zurückgeführt werden, wodurch sich optische Methoden (BC, siehe Kap. 3.6) zur Ermittlung der Rußkonzentrationen anbieten.

Atmosphärische Rußkonzentrationen sind auch von der geografischen Lage abhängig. In Rio de Janeiro wurden BC-Konzentrationen von bis zu 45,4 µg/m³ (Tanner und Miguel, 1989, zitiert nach Hitzberger und Tohno, 2001) und in Wien (Hitzberger und Tohno, 2001) bis zu 14,53 µg/m³ gemessen. Da die Hauptquelle für Ruß Verbrennungsprozesse sind, finden sich in ländlichen Gebieten bei weitem geringere BC-Konzentrationen. Kleefeld et al. (2002) geben für Mace Head (Irland) eine durchschnittliche BC-Konzentration von 0,114 µg/m³ an. Dabei stellten sie bei der Messung in sauberer Meeresluft eine Konzentration von 0,027 µg/m³ fest, während bei der Messung in kontinentalen Luftmassen Konzentrationen von durchschnittlich 0,216

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurden. Es wurde ebenfalls festgestellt, dass in Mace Head im Winter geringere BC-Konzentrationen gemessen werden konnten, als im Sommer. Sie vermuteten, dass der Grund dafür die meteorologischen Bedingungen sind und im Winter die Rußpartikel stärker durch nasse Deposition abgeschieden werden.

Neben der meteorologischen Abhängigkeit können auch Korrelationen der BC-Konzentration mit den Wochentagen und den Tageszeiten gefunden werden. So steigen die Konzentrationen während des Stoßverkehrs (Jeong et al., 2004, Madhavi Latha und Badarinath, 2003) und sinken an Wochenenden (Hitzenberger, 1993, Madhavi Latha und Badarinath, 2003).

Ebenso wie die Massenkonzentrationen sind die Größenverteilungen von Rußpartikeln von der Lage der Messstation und den dort vorherrschenden Rußquellen, den meteorologischen Bedingungen und dem Alter der Rußpartikel abhängig. Venkataraman et al. (1994) stellten bei Verkehrsmessungen in einem Tunnel fest, dass 85% der Masse von Rußteilchen einen Durchmesser unter $0,12\mu\text{m}$ hatten. Dagegen wurden in Wien und Ljubljana BC-Größenverteilungen mit einem mittleren Massendurchmesser von $0,38\mu\text{m}$ und $0,42\mu\text{m}$ gemessen (Hitzenberger et al., 2006).

Für die optischen Eigenschaften von Rußpartikeln ist auch die Art der Mischung des Aerosols von Bedeutung. In einem Aerosol, das üblicherweise aus mehreren unterschiedlichen Substanzen besteht, kann jede Komponente allein für sich vorliegen. Dies bezeichnet man als externe Mischung. Vermischen sich die einzelnen Komponenten und bilden Teilchen, die verschiedene Substanzen beinhalten so spricht man von einer internen Mischung. Intern gemischte Aerosolpartikel können aus einem absorbierenden, rußhaltigen Kern und einer nichtabsorbierenden Hülle bestehen oder auch mehr oder weniger homogen gemischt sein. Bilden nichtabsorbierende Substanzen eine Hülle fokussiert diese das eintreffende Licht auf den absorbierenden Kern. Daher können intern gemischte Rußpartikel eine größere Absorption pro Masse besitzen als extern gemischte Rußpartikel (Martins et al., 1998 und Hitzenberger et al., 1996).

In den meisten Aerosolen finden sich keine reinen externen oder internen Mischungen. Man nimmt an, dass in der Nähe von BC-Quellen externe Mischungen vorliegen. Durch Koagulation und Kondensation können sich extern gemischte Partikel in intern gemischte umwandeln (Hitzenberger und Puxbaum, 1993).

2.3.5 Einfluss atmosphärischer Rußpartikel auf das Klima

Atmosphärische Aerosole haben einen starken, aber nicht gut verstandenen Einfluss auf das Klima. Sie beeinflussen die globale Strahlungsbilanz sowohl positiv (in Richtung Erwärmung) als auch negativ (in Richtung Kühlung).

Um ein Maß für die Einflussnahme verschiedener Faktoren auf die globale Erderwärmung zu haben, wurde der Strahlungsantrieb (W/m^2) eingeführt. Er beschreibt, wie sich die Strahlungsbilanz der Erde im Mittel seit 1750 geändert hat. Ist der Strahlungsantrieb positiv rechnet man mit einer Erderwärmung, ist er negativ, mit einer Abkühlung (IPCC, 2007). In Abbildung 2.5 sind verschiedene Faktoren des globalen Strahlungsantriebes dargestellt. Die einzelnen Faktoren sind von einer Vielzahl unterschiedlichster Einflüsse abhängig. Die großen Unsicherheiten verdeutlichen, wie komplex und vielschichtig die einzelnen Faktoren und Prozesse sind.

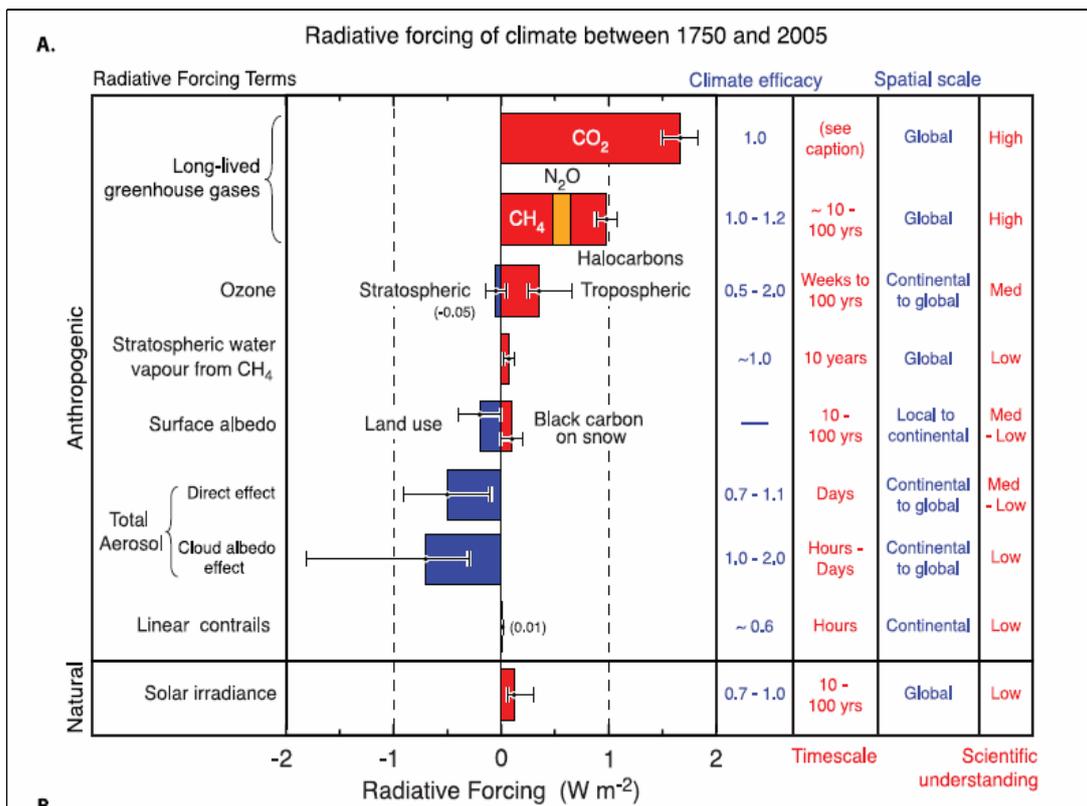


Abbildung 2.5.: Globaler durchschnittlicher Strahlungsantrieb anthropogenen Ursprungs. (Quelle.: IPCC, 2007: Figure 2.20, Internetref.3)

Im Folgenden wird versucht, den Einfluss von Rußpartikeln nach Highwood und Kinnersley (2006) auf das globale Klima zu erläutern. Es gibt vier wichtige Effekte, wie BC das Klima beeinflusst:

- direkter Effekt: Schwarzer Kohlenstoff streut und absorbiert das eintreffende Sonnenlicht. Das Intergovernmental Panel of Climate Change (2007, Internetref. 3) schreibt dem direkten Effekt von BC aus fossilen Brennstoffen einen Strahlungsantrieb von $[0,2 \pm 0,15]$ W/m² zu. Für Österreich finden sich für BC Werte zwischen 0,34 und 2,14 W/m² (Iorga et al., 2007).
- indirekter Effekt: BC beeinflusst die Eigenschaften von Wolken. Dies kann einerseits eine verstärkte Wolkenbildung bedeuten, da BC-Partikel als Kondensationskerne fungieren. Andererseits werden auch die physikalischen Eigenschaften, wie Wolkenalbedo, Lebensdauer oder Tröpfchengröße, vom vorhandenen schwarzen Kohlenstoff beeinflusst. IPCC (2007) schreibt dem indirekten Effekt einen kühlenden Beitrag von $-0,7$ W/m² $[-1,1, 0,4]$ zu. Liu et al. (2001) stellten allerdings fest, dass die BC-Massenkonzentrationen in der Atmosphäre zu gering sind, als dass die Wolkenalbedo signifikant davon beeinflusst werden könnte.
- Semi-direkter Effekt: Darunter versteht man den Einfluss der, durch die Lichtabsorption erwärmten, rußhaltigen Partikel sowohl auf die Stabilität der atmosphärischen Schichtung, als auch auf die Wolkenbildung. Studien haben gezeigt, dass eine BC-Schicht in der Atmosphäre die Erde um 1-3 K pro Tag erwärmt (Ackerman et al., 2000; Koren et al., 2004; Johnson et al., 2004; zitiert nach Highwood und Kinnersley, 2006), wodurch sich die relative Luftfeuchtigkeit und damit wieder die Wolkenbildung ändert.
- Indirekter Oberflächen-Albedo Effekt: Lagert sich schwarzer Kohlenstoff auf Eis und Schnee ab, so wird das Rückstrahlvermögen (= Albedo) der Oberfläche verringert. Dadurch kommt es zum Schmelzen des Eises und einer Erwärmung. IPCC (2007) schätzt den so erzeugten Strahlungsantrieb auf $[0,1 \pm 0,1]$ W/m².

Es bestehen große Unsicherheiten bei der Menge, geografischen Verteilung, Größe und Form des atmosphärischen schwarzen Kohlenstoffs. Alle diese Eigenschaften haben Einfluss auf die verschiedenen Effekte, die sich wiederum auch wieder gegenseitig beeinflussen. Dies führt zu sehr großen Unsicherheiten bei dem Versuch eine Gesamtbilanz über die Auswirkungen von BC zu ziehen. Penner et al. (2003) geben für alle Effekte von BC zusammen einen Strahlungsantrieb von fast 0 W/m² an, während Hansen et al. (2005) $+0,8$ W/m² anführen (beide zitiert nach Highwood und Kinnersley, 2006).

2.3.6 Einfluss der Aerosole auf die Gesundheit

Welche Wirkung Aerosole auf unseren Organismus haben wird schon seit Jahrzehnten erforscht. Verstärkt auftretende Lungen- und Atemwegserkrankungen bei Arbeitern in Bergwerken und spätestens der Große Smog im Jahr 1952 in London führten zu einer verstärkten Auseinandersetzung mit diesem Thema. Studien der World Health Organisation (WHO, 2003, zitiert nach Highwood und Kinnersley, 2006) schätzen, dass in Europa jährlich ca. 100.000 Menschen durch die Exposition mit Feinstaub verfrüht sterben. Dabei spielen unter anderem Asthma, Lungenkrankheiten, Krebs und Herz-Kreislauf Erkrankungen eine wichtige Rolle.

Eine entscheidende Rolle beim Einfluss der Aerosole auf unsere Gesundheit spielen Größe und Konzentration der Partikel, aber auch persönliche Variablen, wie Mund- oder Nasenatmung, Atemvolumen und die körperliche Aktivität (Hinds, 1999).

Die Abscheidung der Partikel unterschiedlicher Größe in der Lunge ist sehr bedeutend für die Gesundheitsrelevanz. In Abbildung 2.6 ist die Depositionswahrscheinlichkeit von Teilchen in der Lunge dargestellt. Im Allgemeinen werden große Partikel ($>10\mu\text{m}$) in den Mund- und Nasenschleimhäuten abgelagert. Aber auch kleine Partikel ($<0,01\mu\text{m}$) werden noch im Kopfbereich durch Diffusionsvorgänge abgeschieden. In der tracheobronchialen Region (TB in Abbildung 2.6), also Bronchien und Luftröhre, lagern sich Teilchen $>3\mu\text{m}$ gut ab. Wie man gut erkennen kann, sind Teilchen zwischen $0,1$ und $1\mu\text{m}$ sehr lungengängig. Sie dringen bis in den Alveolarbereich (Alv in Abbildung 2.6) vor und können dort unter anderem Entzündungen hervorrufen oder sogar in den Blutkreislauf bzw. in den interstitiellen Raum zwischen den Zellen gelangen.

Die lungengängigen Partikel werden sehr gut durch Messungen von $\text{PM}_{2.5}$ erfasst. Aber auch BC bzw. BS können, durch die hohe optische Aktivität von Teilchen dieses Größenbereichs, für Messungen dieser Fraktion verwendet werden.

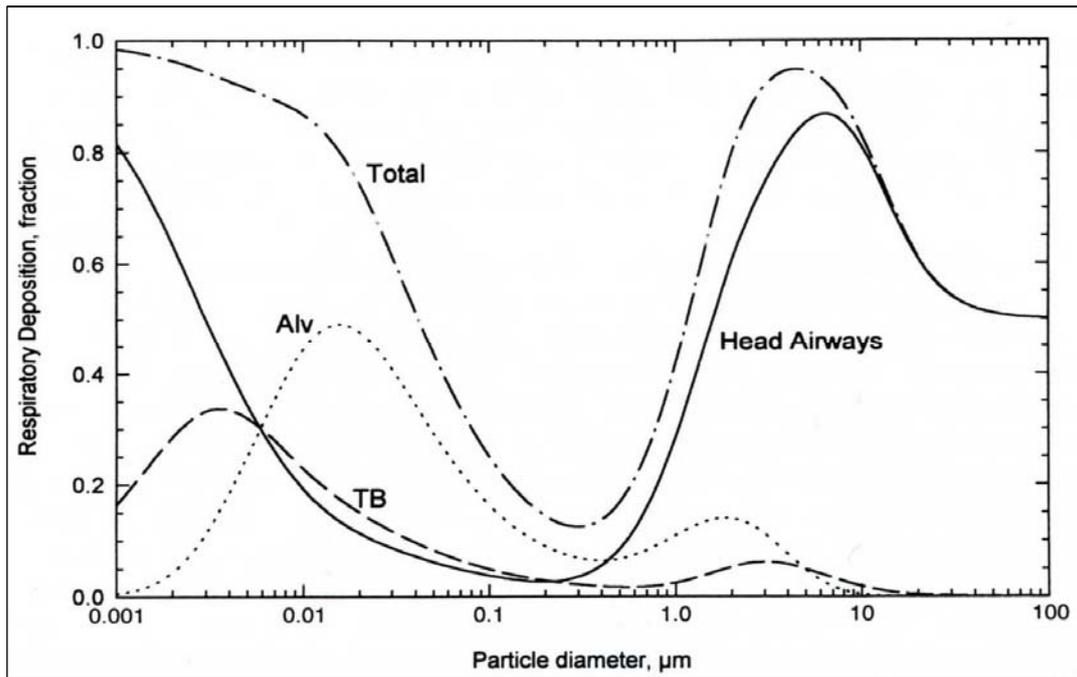


Abbildung 2.6: Depositionswahrscheinlichkeit der Lunge. Durch die geringe Abscheidung zwischen 0,1 und 1,0 μm haben Partikel dieses Größenbereiches großen Einfluss auf das Atmungssystem. (Quelle: Hinds, 1999: Figure 11.3)

Trotz der geringen Depositionswahrscheinlichkeit von Partikeln zwischen 0,1 und 1 μm können Partikel dieser Größe in den Blutkreislauf gelangen. Im Blutkreislauf können diese Teilchen wiederum den ganzen Körper beeinflussen (Cohen et al., 2005) und im speziellen zu Herzproblemen führen. Da Menschen schon vor Zeiten extremer Luftverschmutzung eher an Herzproblemen als an Lungenbeschwerden leiden, sind die meisten Todesfälle in solchen Zeiten eher auf kardiovaskuläre Ursachen zurück zu führen als auf Lungenkrankheiten (Pope und Dockery, 1999).

Viele verschiedene Einflüsse und Auswirkungen von PM und unterschiedlichen chemischen Bestandteilen des atmosphärischen Aerosols wurden unter anderem von Kampa und Castanas (2008) zusammengefasst.

Eine Studie von Fischer et al. (2009) vergleicht BS-Messungen mit der täglichen Gesamtsterblichkeitsrate. Sie fanden ein durchschnittliches relatives Risiko für Sterblichkeit zwischen 0,997 und 1,010 pro 10 μg/m³ BS. Bei der APHEA-Studie (Air Pollution and Health - A European Approach, Internetreferenz 4) wurde eine Erhöhung der täglichen Sterblichkeit um 0,6% pro 10 μg/m³ PM10 festgestellt.

3 Messmethoden

Im folgenden Kapitel werden jene Messmethoden beschrieben, die benutzt wurden, um die in dieser Arbeit verwendeten Daten zu erhalten. Zusätzlich wird auf die Aethalometrie und auf thermische bzw. thermo-optische Messmethoden eingegangen, da die Kenntnis dieser Messmethoden bei der Umrechnung von BS auf BC bzw. EC (siehe Kapitel 4) hilfreich ist. Bei allen Messmethoden wird ein bekanntes Luftvolumen durch einen Filter gesaugt, auf dem sich die Partikel ablagern. Es gibt viele unterschiedliche Faktoren die, zum Beispiel, eine gravimetrische Messung beeinflussen. Die Messergebnisse sind dabei unter anderem von den Luftdurchsätzen, Filterarten und Inlets abhängig (Brown et al., 2006). Die meisten der in dieser Arbeit benutzten Daten wurden nach spezifischen Richtlinien der EU (Richtlinie: EN 12341, zitiert nach NILU, Internetref.5) und/oder der OECD (WHO, 1976, Internetref.6) aufgenommen. Es kann allerdings nicht ausgeschlossen werden, dass einige Messungen nicht exakt nach diesen Vorgaben durchgeführt wurden, da bei historischen Daten nicht immer bekannt ist, welcher Messaufbau verwendet wurde. Um einen Einblick in die Vielfalt der verschiedenen Messmethoden zu gewähren, werden im Folgenden einige der gebräuchlichsten Inlet-Arten, durch deren Gebrauch zwischen TSP, PM10 und PM2.5 unterschieden wird, beschrieben.

3.1 Inlets

Als Inlet bezeichnet man einen Lufteinlass, der vor einem Filter in einem Abscheidekopf angebracht wird. Durch den Inlet wird eine Größenselektion der durchströmenden Teilchen vorgenommen. Charakterisiert werden die Inlets durch so genannte Effektivitätskurven, die angeben, mit welcher Wahrscheinlichkeit Partikel welcher Größe vom Inlet durchgelassen werden und somit zum Filter gelangen. Der 50% cut-off, also jene Partikelgröße, die mit 50%iger Wahrscheinlichkeit abgeschieden bzw. durch gelassen wird, definiert den Inlet. Dementsprechend besitzen jene Inlets, die bei der PM10-Messung verwendet werden einen 50% cut-off von 10 μ m. Dies bedeutet, dass bei PM10-Messungen sehr wohl Partikel vorkommen können, die größer sind als 10 μ m. Diese Wahrscheinlichkeit ist jedoch für 20 μ m Partikel schon annähernd gleich Null.

Neben der Unterscheidung der Inlets nach ihrem cut-off Durchmesser, werden Inlets auch noch nach dem Luftvolumen, das durch sie gesaugt wird, und nach der Art der Selektion klassifiziert, von denen im Folgenden die gebräuchlichsten beschrieben werden.

3.1.1 Unterscheidung der Inlets nach dem Volumsfluss:

Im Allgemeinen werden nach dem durch den Inlet fließendem Luftvolumen 3 unterschiedliche Inlet-Gruppen definiert:

- High-Volume-Inlets, die ~ 1.100 L/min. Luft durchsaugen. Durch die hohen Durchflussraten eignen sich diese Inlets vor allem für kurze Messdauern oder Messungen unter extrem sauberen Bedingungen, bei denen ansonsten keine nennenswerten Massenzunahmen auf den Filtern zu beobachten wären
- Medium-Volume-Inlets, deren Luftvolumsfluss ~ 100 L/min. beträgt.
- Low-Volume-Inlets, die bei ~ 35 L/min. arbeiten.

Sowohl die Medium-Volume, als auch die High-Volume-Inlets können wegen der hohen Durchflussraten und der damit einhergehenden hohen Ablagerung der Partikel am Filter, für die parallele Beladung mehrerer Filter benutzt werden.

Es ist wichtig, den Luftfluss kontrolliert und konstant durch den Inlet zu saugen, da sich ansonsten die Cut-Off Kurven verschieben und der Inlet nicht mehr korrekt arbeitet.

Jede der folgenden Inlet-Arten kann sowohl als High, Medium oder Low-Volume-Inlet gebaut werden.

3.1.2 Unterscheidung der Inlets nach der Selektionsart:

3.1.2.1 Direkt Impaktor – Inlets

Direkt Impaktor – Inlets nutzen die Trägheit von Partikeln unterschiedlicher Größe, um eine Größenselektion vorzunehmen. Um das Funktionsprinzip eines Direkt Impaktor – Inlets zu erklären, wird im Folgenden eine schematische Darstellung eines gebräuchlichen Direkt Impaktor – Inlets, Abbildung 3.1, vom Typ Sierra-Andersen 12000, verwendet.

3 Messmethoden

Eine Pumpe (High-Vol Blower) saugt die Außenluft durch den Einlass in den Abscheidekopf. Durch die Größe der Einlassöffnung werden nur Partikel, die kleiner als 50-100 μm sind angesaugt. Durch mehrere Düsen (Acceleration jets) wird das Aerosol beschleunigt und anschließend an den Stauplatten (in der Fraction Zone) umgelenkt. Während die kleineren Partikel dem Luftstrom bei der Umlenkung folgen können, werden größere Partikel an der Umlenkplatte abgeschieden. Das restliche Aerosol wird durch einen Filter gesaugt, wo sich die Partikel ablagern.

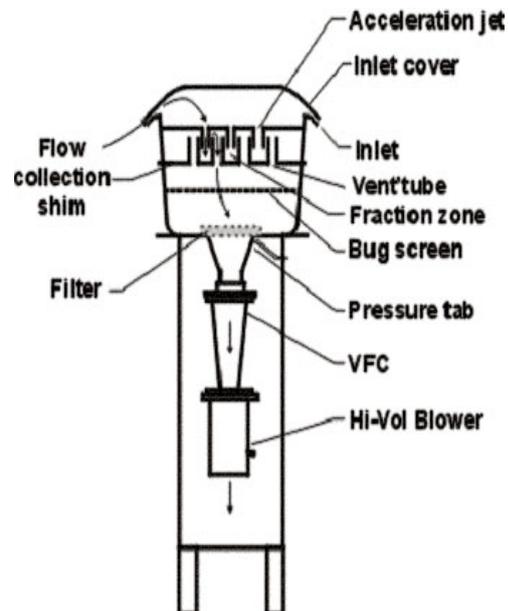


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau eines Sierra-Andersen 12000 – Inlets (Quelle: NILU, Internetref.5)

Um den vom Hersteller angegebenen Cut-Off-Durchmesser zu erreichen müssen die vorgegebenen Flussraten genau eingehalten werden, da ansonsten bei zu hohen Flussraten auch kleinere Partikel als der Cut-Off-Durchmesser abgeschieden werden und bei zu niedrigen Flussraten die größeren Teilchen ebenfalls die Richtungsänderung vollführen können.

Es kann vor allem bei High-Volume-Blowern, da diese höhere Flussraten haben und somit höhere Geschwindigkeiten in den Düsen erzeugen, vorkommen, dass größere Partikel an den Stauplatten abprallen (“bouncen”) und dadurch die Richtungsänderung schaffen, wodurch sie nicht abgeschieden werden. Um dies zu verhindern können entweder Gele und Öle an den Oberflächen der Stauplatten aufgetragen werden, die diese Partikel binden, oder ein so genannter Virtual-Impaktor-Inlet verwendet werden.

3.1.2.2 Dichotomous Sampler

Dichotomous Sampler verwenden die erwähnten Virtual Impaktor-Inlets, die ein ähnliches Prinzip wie die Direkt Impaktor-Inlets nutzen.

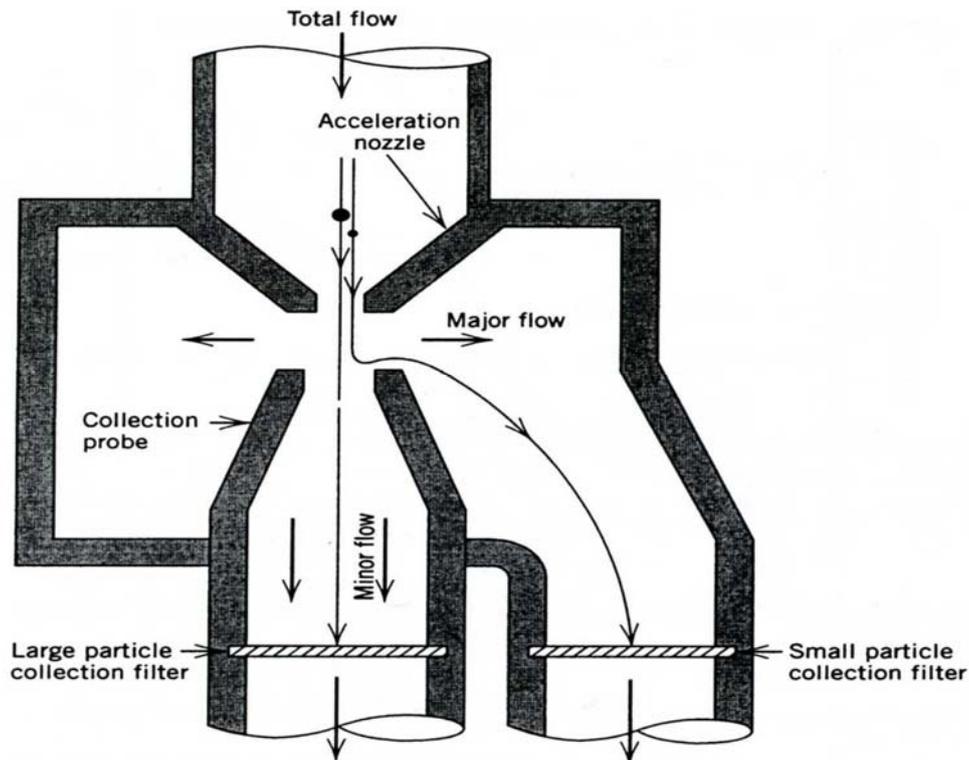


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau eines Virtual-Impaktors (Quelle: Hinds, 1999: Figure 5.11)

Wie man in Abbildung 3.2 erkennen kann, wird anstatt einer Impaktionsfläche eine Öffnung direkt unter dem Einlass verwendet, durch den ein kleiner Teil des gesamten Luftflusses (minor flow) gesaugt wird. Der größere Teil (major flow) des Aerosolflusses wird umgelenkt. Wie beim Direkt Impaktor - Inlet können die kleineren Teilchen wiederum dieser Richtungsänderung folgen, während die trägeren Partikel geradeaus weiter fliegen und auf einem Filter abgeschieden werden. Der Virtual-Impaktor-Inlet wird häufig benutzt, um die PM10 Fraktion des Aerosols in die PM2.5- und PM_{coarse}-, das ist jenes Aerosol, in dem Teilchen mit einem Durchmesser zwischen 2,5µm und 10µm vorkommen, Fraktionen aufzuteilen.

3.1.2.3 Cyclonic flow – Inlets

Durch einen Einlass wird das Aerosol radial in ein zylindrisches, konisch zusammenlaufendes Rohr geleitet. Dadurch wird das Trägergas in eine kreisförmige Bahn gezwungen und die mitgeführten Partikel werden durch die Zentripetalkraft nach außen an die Wand des Rohres gedrückt (die trägeren und daher meist auch größeren Partikel zuerst), wo sich die Teilchen, in manchen Geräten unterstützt durch Öle oder Gele, ablagern. Nachdem das Aerosol das Rohr kreisförmig nach unten durchströmt hat wird es in der Mitte des Rohres nach oben in den Auslass gesaugt. Dort kann ein Filter angebracht werden, auf dem sich die noch im Trägergas verbliebenen Teilchen ablagern können.

3.1.2.4 Selective filtration – Inlets

Selective filtration – Inlets nutzen die Eigenschaften, im speziellen die einheitliche Porengröße und die bekannte Sammeleffektivität, von Polycarbonatfiltern um Partikel oberhalb einer bestimmten Größe zu sammeln. So kann zum Beispiel ein Filter mit $8\mu\text{m}$ Porendurchmesser, welcher bei einer Flussrate von $10\text{L}/\text{min}$ einen 50% Cut-Off zwischen 2 und $3\mu\text{m}$ aufweist, vor einem Filter mit $0,4\mu\text{m}$ Porendurchmesser angebracht werden. Diese Methode ist allerdings sehr ungenau, dafür einfach und kostengünstig.

3.1.2.5 Elutriation – Inlets

Bei dieser Methode wird die Luft durch eine Kammer entgegen der Schwerkraft gesaugt. Jene Teilchen, deren Sinkgeschwindigkeit größer als die Strömungsgeschwindigkeit des Trägergases ist sinken nach unten, während jene, deren Sinkgeschwindigkeit kleiner als die Strömungsgeschwindigkeit ist, nach oben driften. Die Sinkgeschwindigkeit ist dabei vor allem von der Strömungsgeschwindigkeit der Luft und der entgegengesetzten auf die Teilchen wirkende Erdanziehungskraft, also von der Masse der Partikel, abhängig.

Bei Tests in Windtunnels wurde allerdings festgestellt, dass eine starke Windabhängigkeit bei dieser Methode besteht (Wedding et al., 1980; zitiert nach Willeke und Baron, 1993)

3.2 Reflektometrie

Bei der Reflektometrie (auch Black-Smoke-monitoring genannt) färben die lichtabsorbierenden Partikel den Filter dunkel ein. Diese Schwärzung wird anschließend mittels eines Reflektometers, wie dem „EEL 43“ von Evans Electroselenium Limited (Hoek et al., 1997) oder einem Gerät von Photovolt Instruments Inc. (WHO, 1976), gemessen. Dabei betrachtet man das Verhältnis der Reflexion von weißem Licht am beladenen Filter mit der an einem unbeladenen Filter. Die absorbierenden Teilchen auf dem beladenen Filter werden dabei zweimal vom weißen Licht durchdrungen, da der dahinter liegende Filter das Licht reflektiert. Aus dem Verhältnis der ermittelten Reflektivitäten, dem Volumen der durchgesaugten Luft und der Filterfläche kann der Black Smoke Index berechnet werden. Es muss dabei beachtet werden, welches Reflektometer und welches Filterpapier verwendet wird. Um von der Reflektivität des Filters auf Oberflächenkonzentration an Partikeln zu schließen gibt die OECD für die von ihnen vorgegebenen Reflektometer und Filter verschiedenen Kalibrationskurven (so z.B.: Abbildung 3.3) an, was die starken Auswirkungen auf die Messergebnisse bei einer falsch gewählten Kalibrationskurve verdeutlicht. Die so ermittelte Oberflächenkonzentration S [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$] kann dann laut OECD-Konvention mittels folgender Formel in eine Massenkonzentration C [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] umgewandelt werden:

$$C = k \frac{SA}{V} \quad (3.1)$$

wobei A die Fläche des Filters [cm^2], V das Volumen der durchgesaugten Luft [m^3] und k eine vom verwendeten Filter abhängige Konstante zwischen 1 und 0,8 (WHO, 1976, Internetref.6) ist.

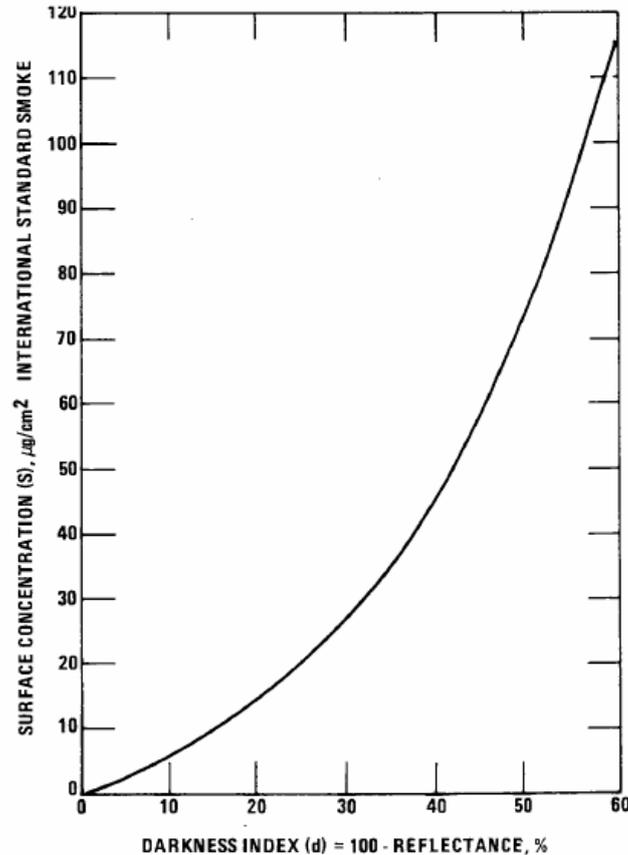


Abbildung 3.3: Von der OECD vorgeschlagene Kalibrationskurve für ein EEL-Reflektometer und ein Whatman Nr.1 Filterpapier mit 25mm Durchmesser. (WHO, 1976, Figure 1-11, Internetref.6)

3.3 Gravimetrie

Bei gravimetrischen Messmethoden wird ein Filter vor und nach der Beladung bei kontrollierter Temperatur und Luftfeuchtigkeit mit einer Mikrowaage gewogen. Aus der Massendifferenz und dem durchgesaugten Luftvolumen kann die Massenkonzentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] bestimmt werden.

Laut NILU (Norsk institut of luftforskning, Internetref.5) ist es für die Einhaltung der EU-Norm EN 12341 erforderlich, dass bei PM10-Messungen darauf zu achten ist, die Filter vor den beiden Wägungen bei einer Temperatur von $20^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$ und einer relativen Luftfeuchtigkeit von $50\% \pm 5\%$ jeweils 48 Stunden zu lagern. Jedes Prozent Abweichung bei der Luftfeuchtigkeit kann zu einem Fehler der Masse von $0,5\text{-}1 \mu\text{g}$ (abhängig vom verwendeten Filter) führen. Um elektrostatische Effekte zu vermeiden, sollten die Filter vor der Wägung mit Hilfe einer Alpha-Quelle (üblicherweise Polonium 210) einige Minuten neutralisiert werden.

3.4 Beta-gauge, Beta - Monitor

Beim Beta-Monitor wird die Masse der auf dem Filter abgelagerten Partikel mit Hilfe der Abschwächung von β -Strahlen bestimmt (siehe Abbildung 3.4).

Dazu wird der Filter, erst unbeladen, nachher beladen, zwischen den β -Strahler und den Detektor gelegt. Durch die am Filter zusätzlich abgeschiedenen Teilchen wird eine größere Abschwächung der β -Strahlen gemessen. Die Intensitätsabnahme kann dann wie folgt in die gesammelte Masse umgerechnet werden:

$$M = -\frac{1}{K_b} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (3.2)$$

wo I die Intensität bei beladenem Filter, I_0 die Intensität bei unbeladenem Filter und M die Massebelegung der am Filter abgeschiedenen Partikel [g/cm^2] ist. Der Koeffizient K_b [cm^2/g] ist abhängig von der Art des gesammelten Materials, von der Geometrie des Strahlenganges und des Messaufbaus und wird im Allgemeinen durch eine Kalibration an schon bekannten Filtern bzw. Platten bestimmt. Diese Methode zeigt eine gewisse Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchtigkeit, wodurch bei den Messungen auf eben diese zu achten ist (McMurry, 1999).

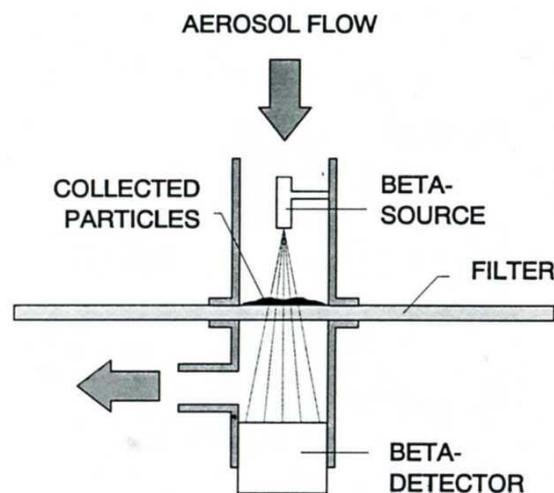


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Beta-Monitors. Aerosol strömt durch den Filter und die Partikel lagern sich dabei am Filter ab. Massenzunahme wird durch Intensitätsabnahme der β -Strahlen bestimmt (Willeke und Baron, 1993, Figure 7-5).

3.5 Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM)

Kernstück dieser Methode ist ein sich verjüngendes Quarzrohr (manchmal wird auch Glas, oder ein ähnliches Material verwendet). Dieses ist an seinem breiten Ende fix mit einer massiven Platte verbunden. Am schmalen Ende wird der Filter montiert. Das Rohr oszilliert entsprechend seiner Masse, also je nach Beladung des Filters, mit unterschiedlichen Frequenzen. Aus der Frequenzänderung kann dann auf die Masse wie folgt geschlossen werden:

$$M = K_0 \left(\frac{1}{f^2} - \frac{1}{f_0^2} \right) \quad (3.3)$$

wobei M die gesammelte Masse, K_0 eine Konstante, abhängig von den Eigenschaften des Rohres, f die Frequenz des Rohres mit beladenem Filter und f_0 die Frequenz des Rohres mit unbeladenem Filter ist. Es ist bei dieser Methode üblich, die Probe auf 50°C zu erhitzen, da die Schwingungseigenschaften des Rohres eine starke Temperaturabhängigkeit aufweisen. Es wird angenommen, dass sich durch diese Erwärmung der adsorbierte Wasserdampf und organische Komponenten verflüchtigen und sich Teile der Nitrate abbauen. Daher zeigen TEOM-Daten geringere Massenkonzentrationen als die Referenzmethoden, wodurch TEOM-Daten mit einem Faktor zwischen 1,2 und 1,4 (abhängig von der Aerosolzusammensetzung) multipliziert werden müssen (Muir, 2000).

Sowohl Beta-Monitor als auch TEOM können in sehr kurzen Intervallen, automatisiert Messergebnisse liefern, weswegen sie für durchgehende Messungen, wie Online-Abfragen, genutzt werden können. Sie besitzen allerdings nicht dieselbe Genauigkeit wie gravimetrisch gemessene Massenkonzentrationen.

3.6 Aethalometrie

Die Aethalometrie ist eine optische Messmethode, die, mittels der Transmission von weißem Licht durch einen beladenen Filter, die Lichtabschwächung durch die Probe, also des Filters mit den darauf abgeschiedenen Partikeln, bestimmt. Im Gegensatz zur Reflektometrie wird dabei die Probe nur einmal vom Licht durchdrungen. Wie bei den anderen Methoden, wird bei der Aethalometrie das Signal bei beladenem Filter (T), mit dem bei unbeladenem Filter (T_0) verglichen. Mittels des so genannten Arbeitsabsorptionskoeffizienten α_{Ext} [m^2/g], der von mehreren Faktoren, wie der Filterart, der verwendeten Wellenlänge oder auch Partikelart und -größe abhängt, und des Lambert – Beer – Gesetzes (siehe Formel 2.1), kann die Massenkonzentration der absorbierenden Teilchen (BC) bestimmt werden (siehe Kapitel 4.1.2). Das Aethalometer sollte vor der Messkampagne kalibriert werden, um den Arbeitsabsorptionskoeffizienten, der zwischen $5\text{m}^2/\text{g}$ und $20\text{m}^2/\text{g}$, und durch Streueinflüsse auch darüber hinaus, variieren kann, für die Umrechnung fest zu stellen.

3.7 Thermische Messmethoden

Bei thermischen Messmethoden, wie zum Beispiel der Cachier-Methode (Cachier et al., 1989), wird eine Probe erhitzt. Dabei wird kohlenstoffhaltiges Gas frei gesetzt. Dieses Gas wird von einem Detektor erfasst und anhand der aufgenommenen Signalfläche kann die Masse verschiedener kohlenstoffhaltiger Fraktionen, abhängig von der Verbrennungstemperatur, ermittelt werden. Man geht dabei davon aus, dass sich bis zu einer bestimmten Temperatur (T_{EC}) organischer Kohlenstoff verflüchtigt. Oberhalb von T_{EC} verflüchtigt sich der bis dahin stabile elementare Kohlenstoff (EC). Diese kohlenstoffhaltige Fraktion wird oft mit BC, das mit optischen Messmethoden bestimmt wurde (siehe Kapitel 3.6), verglichen.

Wird eine Verbrennungstemperatur gewählt, die viel höher als T_{EC} liegt, kann die Menge an Gesamtkohlenstoff bestimmt werden.

4 Die Umrechnung von Black Smoke in Black Carbon

BS-Messreihen gibt es seit den frühen 60er Jahren. Da die BS-Messmethode kostengünstiger als die Methoden zur Bestimmung von BC/EC ist (und daher auch noch weiterhin Anwendung finden wird), gab es einige Studien, siehe Kapitel 4.2, die Umrechnungen von BS auf BC bzw. EC empirisch ermittelten. Auch eine theoretischere Betrachtung für eine Umrechnung wurde entwickelt. Der theoretischere Ansatz kann gut als Anhaltspunkt verwendet werden. Es hat sich allerdings gezeigt, dass das Verhältnis von BS zu BC nicht konstant ist und unter anderem stark von der geografischen Lage und der Emissionscharakteristik der Messstation abhängt.

4.1 Theoretischer Ansatz für die Umrechnung

4.1.1 Eine theoretische Betrachtung der BS - Messung (Quincey, 2007):

Die Abschwächung eines Lichtstrahls durch ein Medium wird vom Lambert – Beer – Gesetz beschrieben:

$$I = I_0 e^{-\alpha L} \quad (4.1)$$

wo I die Intensität des transmittierten Lichtes, I_0 die Intensität des einfallenden Lichtes, α [m^{-1}] der Absorptions- (oder Extinktions-) koeffizient und L [m] die Weglänge des Lichtes durch das Medium ist.

Die Weglänge des Lichtes durch das Medium entspricht in unserem Fall der Länge der Luftsäule, die durch den Filter gesaugt wurde:

$$L = \frac{V}{A} \quad (4.2)$$

wobei V [m^3] das Volumen der gesammelten Luft und A [m^2] die durchdrungene Filterfläche ist.

4 Die Umrechnung von Black Smoke in Black Carbon

Durch das Einsetzen von Gleichung (4.2) in (4.1) kann aus der daraus resultierenden Gleichung und unter Berücksichtigung des zweimaligen Durchganges des Lichtes durch die am Filter abgelagerte Partikelschicht, der scheinbare Absorptionskoeffizient α' [m^{-1}] wie folgt berechnet werden:

$$\alpha' = \frac{A}{2V} \ln\left(\frac{R_0}{R}\right) \quad (4.3)$$

wobei R die Intensität des reflektierten Lichtes des beladenen Filters und R_0 die Intensität des reflektierten Lichtes des unbeladenen Filters ist. Der scheinbare Absorptionskoeffizient α' wurde eingeführt um den zusätzlichen Faktor 2, der wegen des doppelten Durchgangs durch das Medium auftritt, zu berücksichtigen. Dieser Faktor kann je nach geografischer Lage der Messstation und den verwendeten Filtern zwischen 2 und 2,8 liegen (Edwards et al. 1983).

Der so ermittelte scheinbare Absorptionskoeffizient α' wird dann durch das Einsetzen in eine Tabelle in den Black-Smoke-Index [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] umgewandelt. Diese Tabelle kann nicht analytisch wiedergegeben werden, kann aber in dem Bereich unter $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gut mit einer quadratischen Kurve angenähert werden:

$$BS = 3,462 \times 10^9 \alpha'^2 + 4,438 \times 10^5 \alpha' \quad (4.4)$$

Unter Verwendung von α statt α' , was die Annahme inkludiert, dass der Faktor 2 als exakt angenommen werden kann, kann dieses Verhältnis folgendermaßen geschrieben werden:

$$BS = 8,655 \times 10^8 \alpha^2 + 2,219 \times 10^5 \alpha \quad (4.5)$$

Dies ist laut Quincey (2007) die OECD Konvention für Black Smoke, nach der World Health Organisation (WHO, 1976, Internetref.6), gibt es jedoch abhängig von den verwendeten Instrumenten und Filtern unterschiedliche Kalibrationskurven (siehe Kapitel 3.2).

4.1.2 Eine theoretischere Betrachtung der BC-Messung:

Aus Gleichung (4.1) und (4.2) lässt sich der Absorptionskoeffizient α [m^{-1}] fast analog zu vorhin berechnen:

$$\alpha = \frac{A}{V} \ln\left(\frac{I_0}{I}\right) \quad (4.6)$$

Der Faktor 2, der bei der Betrachtung von Black Smoke hinzugekommen ist, fällt bei Black Carbon weg, da das Licht transmittiert wird und somit die Probe nur einmal durchdringt.

Um die Massenkonzentration von Black Carbon [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] zu erhalten, muss der Absorptionskoeffizient α [m^{-1}] wie folgt umgerechnet werden:

$$BC = \frac{10^6 \alpha}{\alpha_{Abs}} \quad (4.7)$$

Wobei α_{Abs} der spezifische Arbeitsabsorptionskoeffizient [m^2/g] ist, der von Geräteeigenschaften, der verwendeten Wellenlänge des Lichtes, dem Filter und von der Partikelgröße und Partikelart abhängt. Er kann zwischen 2 und 25 m^2/g (Martins et al, 1998) variieren und muss empirisch bestimmt werden.

Ein typischer Wert für α_{Abs} wäre 16,6 m^2/g (Quincey, 2007), woraus sich für BC

$$BC = 6,02 \times 10^4 \times \alpha \quad (4.8)$$

ergibt.

Aus (4.5) und (4.8) lässt sich somit eine mögliche Umrechnung für BS [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] \rightarrow BC [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] angeben:

$$BC = \sqrt{(4,18 \times BS + 59,6)} - 7,72 \quad (4.9)$$

Diese, auf theoretischerem Fundament erstellte, Umrechnung liefert einen guten Ansatzpunkt für eine mögliche Umrechnung. Allerdings zeigten mehrere empirische Studien (Schaap und Denier van der Gon, 2007; Petzold und Niessner, 1995, zitiert nach ten Brink und Keuken, 2000. Internetref.7), dass je nach Standort unterschiedliche Umrechnungen notwendig sind (siehe weiter unten).

Eine weitere Unsicherheit bei der theoretischen Berechnung ist der zusätzliche Faktor 2 in Gleichung (4.3). Edwards et al. (1983) haben gezeigt, dass dieser Faktor, je nach Standort und den dort vorherrschenden Aerosolzusammensetzungen und verwendeten Filtern, zwischen 2 und 2,8 variieren kann. Der Faktor 2 wird dabei allerdings nur erreicht, wenn das gesamte einfallende Licht nur einmal reflektiert wird. Da aber so gut wie immer mit Mehrfachstreuung und Rückstreuung gerechnet werden muss, trifft das Licht öfter als 2-mal auf absorbierende Teilchen, was mit einer Erhöhung dieses Faktors berücksichtigt werden kann.

4.2 Empirische Umrechnungen

Wie bereits erwähnt stellt die theoretische Umrechnung einen guten Anhaltspunkt dar und ist hilfreich für das Verständnis der beiden Messmethoden. Mehrere Studien haben allerdings gezeigt, dass mögliche Umrechnungen sehr unterschiedlich sein können. Im Folgenden werden einige dieser Studien beschrieben und im Anschluss auf die unterschiedlichen Umrechnungen (auch im Vergleich zu der angegebenen theoretischen) eingegangen.

4.2.1 Umrechnung nach Schaap und Denier van der Gon (2007):

Schaap und Denier van der Gon (2007) nutzten Daten des RIVM – Netzwerks (Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (niederländisches nationales Institut für Gesundheit und Umwelt)) und Daten des Gesundheitservices von Amsterdam, um Daten für BS (gemessen nach dem OECD-Protokoll, siehe Kapitel 3.2) zu erhalten. Für EC-Konzentrationen nutzten sie Daten einer Studie von Visser et al. (2001) und des HEAVEN Projekts (Spoelstra et al, 2002).

4 Die Umrechnung von Black Smoke in Black Carbon

Die BS und EC Daten wurden dann (wenn sie aus demselben Zeitraum und von denselben Stationen waren) nach ländlichen und städtischen Gebieten unterteilt und gegeneinander aufgetragen. Es wurden all jene Messpunkte an zwei ländlichen Stationen (De Zilk und Vredepeel) und sieben städtischen Stationen (in Amsterdam und Rotterdam) verwendet, an denen sowohl EC als auch BS gemessen wurde.

Dadurch ergaben sich folgende Relationen:

$$BC = 0,088 \times BS + 0,32 \quad (\text{urban}) \quad (4.10)$$

$$BC = 0,056 \times BS + 0,16 \quad (\text{ländlich}) \quad (4.11)$$

4.2.2 Umrechnung laut Ruellan und Cachier (2000):

Ruellan und Cachier (2000) nahmen simultan BC- und BS- Messungen in der Nähe einer dicht befahrenen Straße um Paris (Ringautobahn um Paris, mit 8 Fahrspuren pro Fahrtrichtung) vor. Beginnend im August 1997 wurden 3 Monate lang Daten gesammelt. BC wurde mittels eines Aethalometers (siehe Kapitel 3.6) gemessen, BS nach dem OECD-Protokoll.

Für diese urbane, verkehrsstarke Station ergab sich dadurch folgende Umrechnung:

$$BC = 0,1 \times BS + 1,18 \quad (4.12)$$

4.2.3 Umrechnung nach Penner et al. (1993):

Penner et al. (1993) fanden aus globalen Daten für Hintergrund-Messungen die Relation

$$BC = 0,5 \times BS \quad (4.13)$$

Dabei verwendeten sie einerseits den Umstand, dass sie bei den meisten Stationen eine gute Korrelation zwischen BC und SO₂ feststellen konnten um aus bereits veröffentlichten Daten für Schwefeldioxid BC-Konzentrationen zu errechnen. Andererseits nutzten sie geschätzte Emissionsfaktoren und veröffentlichte Treibstoffproduktionen sowie Statistiken von der Verbrennung von Holz, Diesel, Kohle und anderen, um auf die global freigesetzte Kohlenstoffmenge zu schließen.

4.2.4 Umrechnungen zitiert nach ten Brink und Keuken (2000), sowie Penner et al. (1993):

- Erdmann et al. (1993) (zitiert nach ten Brink und Keuken, 2000, Internetref.7) vollführten in Berlin Hintergrundmessungen von BS und thermografischen Messmethoden und ermittelten die Umrechnung:

$$BC = 0,22 \times BS + 0,6 \quad (4.14)$$

- Petzold und Niessner (1995) (zitiert nach ten Brink und Keuken, 2000) fanden folgende Verhältnisse für 2 Stationen in Berlin und München:

$$EC = 0,2 \times BS + 2 \quad (\text{Urban, Hintergrund}) \quad (4.15)$$

$$EC = 0,15 \times BS + 3,8 \quad (\text{Starker Verkehr}) \quad (4.16)$$

- Edwards et al. (1983) (zitiert nach Penner et al., 1993) zeigten als erstes einen Zusammenhang zwischen BS und EC. Sie fanden dabei die Korrelation:

$$EC = 0,13 \times BS \quad (4.17)$$

4.3 Vergleich der Umrechnungen:

Es ist leicht zu erkennen, dass die Umrechnungsmöglichkeiten einiges an Spielraum lassen. Vor allem die nicht empirisch ermittelte Relation (Gleichung 4.9) von Quincey (2007) und die Umrechnung von Penner et al. (1993) (Gleichung 4.13) fallen sehr stark aus dem Rahmen. Quinceys Umrechnung zeigt, im Gegensatz zu den empirisch erhobenen Formeln, keine lineare Form. Allerdings liegt sie, wie in Abbildung 4.1 zu erkennen ist, in dem für atmosphärisches Aerosol üblichen Größenbereich der BS-Konzentrationen (0-200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), nur leicht über den meisten experimentell ermittelten Formeln. Die Umrechnung von Penner et al. (1993) zeigt einen mehr als doppelt so starken Anstieg wie die übrigen Möglichkeiten und wurde daher für diese Arbeit als Umrechnung ausgeschlossen.

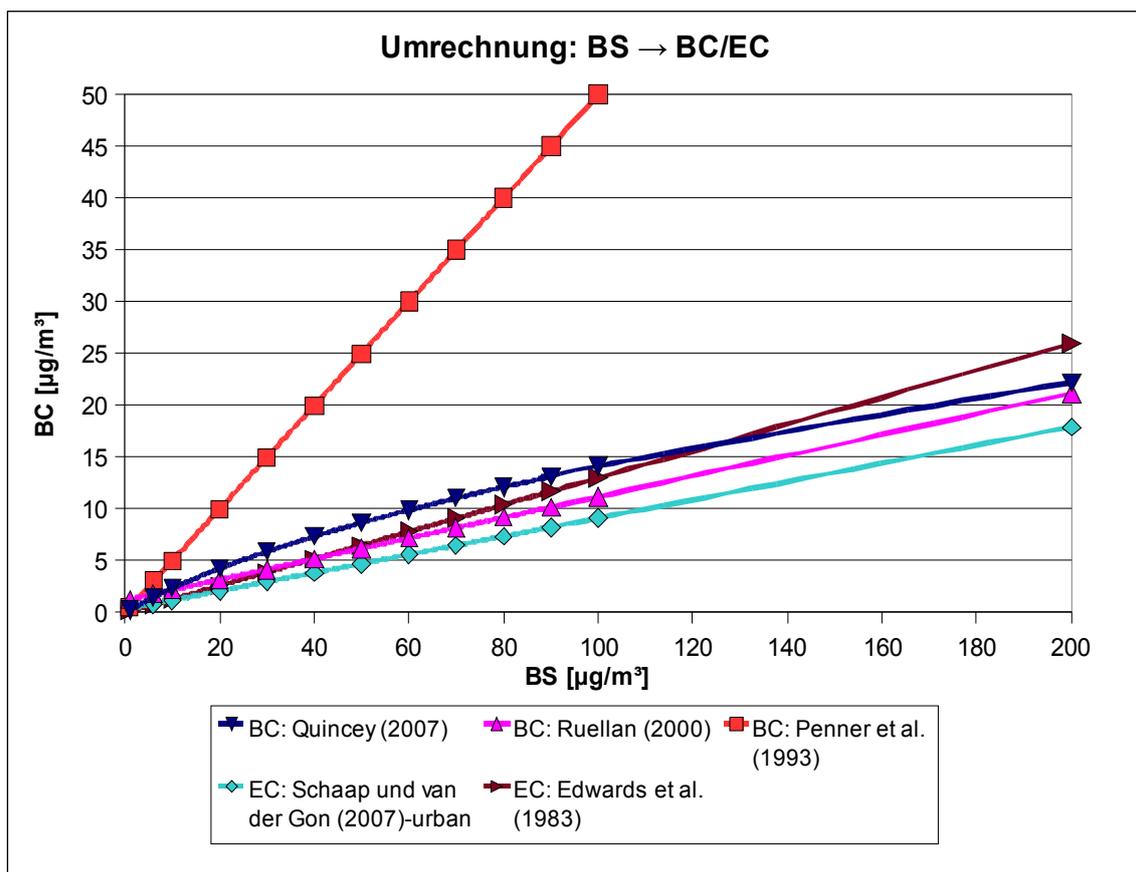


Abbildung 4.1: Mehr theoretisch erhobene und empirisch ermittelte Umrechnungsrelationen von BS auf BC bzw. EC.

Innerhalb der experimentell ermittelten Relationen (ausgenommen jener von Penner et al. (1993)) sind teilweise deutliche Unterschiede zu erkennen. Die Relation mit dem niedrigsten Anstieg (Gleichung 4.11) unterscheidet sich von jener mit dem höchsten Anstieg (Gleichung 4.14) um den Faktor 4.

4 Die Umrechnung von Black Smoke in Black Carbon

Die Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Aerosols zeigt sich bei jenen Studien, die eine nach der geografischen Lage differenzierte Umrechnung durchführten (Schaap und Denier van der Gon (2007) sowie Petzold und Niessner (1995)). Aber auch anhand der unterschiedlichen Faktoren zwischen den Studien ist sie zu erkennen, wobei zu beachten ist, dass in den unterschiedlichen Studien unterschiedliche Analysemethoden und Filter verwendet wurden, wodurch ein Vergleich schon an und für sich nicht sinnvoll ist.

Um eine möglichst korrekte Umrechnung zu erhalten, müsste bei jeder Messstation, an der BS-Messungen vorgenommen wurden, eine Studie betrieben werden, um die spezifische Relation zu ermitteln (mit genormten Mess- und Analysemethoden). Da dies aber zu kostspielig ist und bei Archivdaten nicht wirklich sinnvoll ist, müssen bei umgerechneten Daten entsprechende Unsicherheiten angenommen werden. Es ist prinzipiell auch nicht sinnvoll, verschiedene Stationen mehr als größenordnungsmäßig zu vergleichen, da bei historischen Daten die Kenntnis der verwendeten Methoden teilweise lückenhaft ist.

Da Schaap und Denier van der Gon (2007) die jüngsten Umrechnungen angeben und zudem auch noch unterschiedliche Gleichungen für urbanes und ländliches Gebiet erfassten, wurden diese Relationen (Gleichungen 4.10 und 4.11) in dieser Diplomarbeit verwendet.

5 Ergebnisse und Diskussion

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die verwendeten Messmethoden (Kapitel 3) und die Umrechnung der BS-Daten in BC- bzw. EC-Daten (Kapitel 4) beschrieben. Im folgenden Kapitel wird zunächst die geographische und zeitliche Verteilung der Stationen betrachtet. Anschließend daran werden, nach verschiedenen Messgrößen unterteilt, die längsten und aussagekräftigsten Messreihen aus verschiedenen Ländern vorgestellt. Zusätzlich zu den Jahresmitteln werden ausgewählte Messreihen nach saisonalen Gesichtspunkten untersucht. Zum Abschluss des Kapitels werden noch wo möglich Vergleiche der Ergebnisse der optischen BS-Messmethode mit denen der gravimetrischen Messmethoden gezeigt.

5.1 Geographische und zeitliche Abdeckung der Messstationen

Durch die, auch heute noch nicht völlig geklärten, wissenschaftlichen und politischen Unsicherheiten, welche Fraktionen des urbanen Aerosols gesundheits- und/oder klimarelevant sind, haben sich in vielen westlichen Ländern Europas flächendeckend entweder TSP oder BS als Messgrößen nationaler Netzwerke durchgesetzt. Im Folgenden wird ausschließlich auf jene Stationen Bezug genommen, von denen Daten im Zuge dieser Arbeit verwendet wurden. Bei TSP und vermutlich auch BS sind viele Daten der 60er, 70er und 80er Jahre nicht in digitaler Form vorhanden und werden daher in dieser und vermutlich leider auch in zukünftigen, ähnlichen Arbeiten, nicht aufscheinen.

5.1.1 Entwicklung an den BS-Messstationen

Die ältesten Daten für BS stammen aus dem Jahre 1961, aus Großbritannien. Durch den Great Smog und den darauf folgenden Clean Air – Act (siehe Kapitel 1) hat sich in Großbritannien schon früh ein engmaschiges Netz an Luftmessstationen entwickelt, das bis heute verwendet und ausgebaut wird. All jene Messstationen, von denen Daten zur Verfügung stehen sind in Abbildung 5.1 eingezeichnet. Man kann deutlich erkennen, dass Messstationen in Großbritannien, Slowenien, Belgien und den Niederlanden flächendeckend vorhanden sind oder waren. Einige Länder, wie z.B. Schweden, haben erst Ende des 20ten Jahrhunderts begonnen, BS zu messen. Der Grund dafür liegt vermutlich in dem Umstand, dass BS ein kostengünstiger, und mit entsprechenden Kalibrierungskurven auch zuverlässiger Ersatz für teure BC- oder EC-Messungen ist (Schaap und Denier van der Gon, 2007).

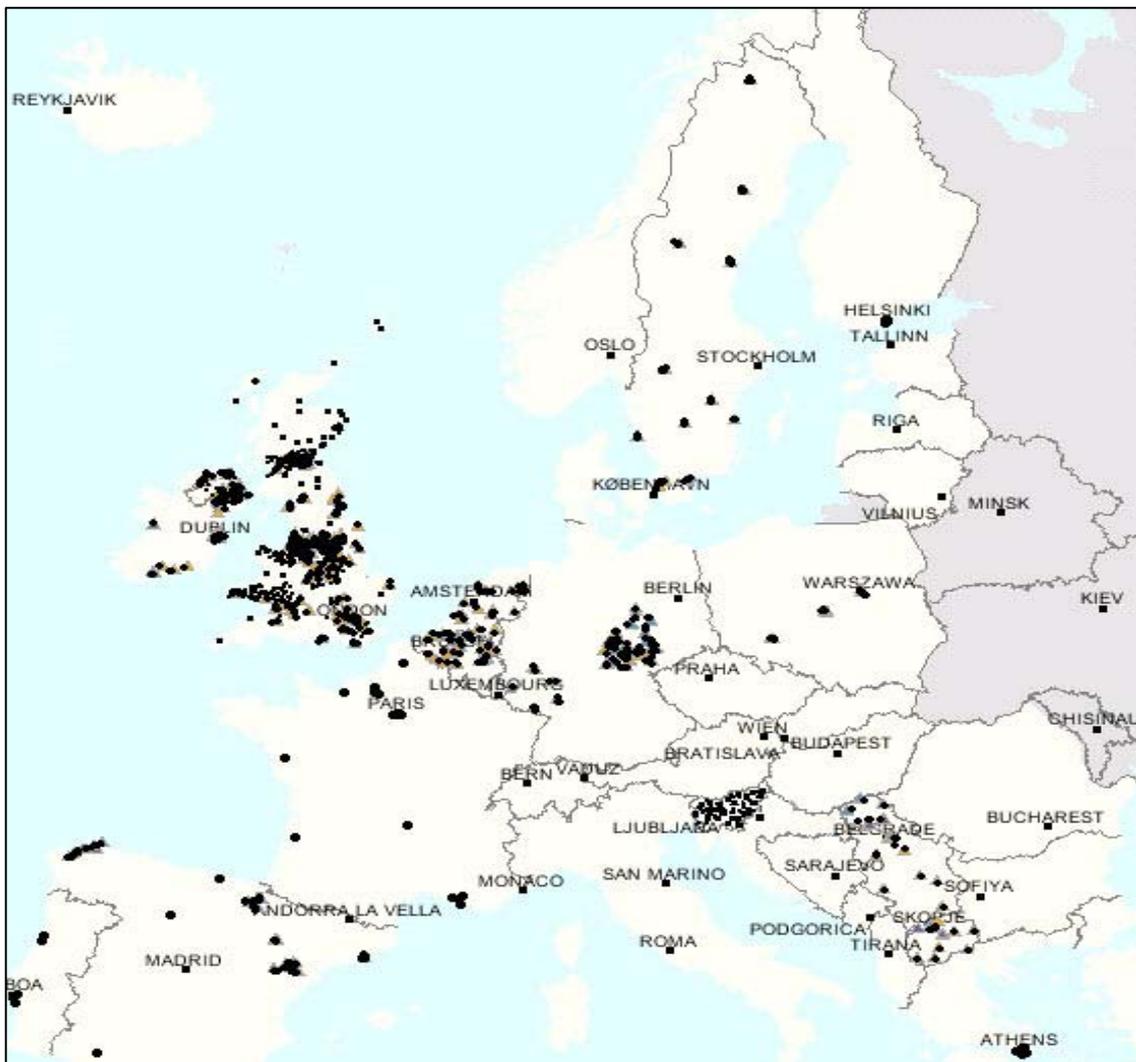


Abbildung 5.1: Geographische Verteilung aller BS-Messstationen von 1961-2005. Es ist deutlich sichtbar, für welche Länder BS als Maß für die Luftverschmutzung relevant ist.

5 Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 5.2 sind all jene Stationen eingezeichnet, deren Daten zwischen den Jahren 1969-1988 aufgenommen wurden und in dieser Arbeit verwendet wurden. Wie man gut erkennen kann, wurde in den 70er und 80er Jahren BS flächendeckend nur in Großbritannien und Slowenien erfasst. Die meisten in Abbildung 5.2 schwarz dargestellten Stationen werden noch heute betrieben. Der Vergleich von Abbildung 5.1 und 5.2 zeigt, wie stark die Anzahl der Stationen in gewissen Ländern zugenommen hat. Viele der in Abbildung 5.1 dargestellten Stationen wurden jedoch meist nur kurze Zeit, für gerade anliegende Studien, betrieben und nach wenigen Jahren wieder aufgegeben. So zum Beispiel bei der großen Anzahl an Stationen in Deutschland in Abb. 5.1, welche 2003 und 2005 in Betrieb waren. Diese zeitlichen und räumlichen Lücken machen es schwer, allgemein gültige Aussagen über die europaweite Entwicklung der Rußkonzentrationen zu treffen.



Abbildung 5.2: Verfügbare Messstationen für BS in den Jahren 1969-1978(schwarz) und 1979-1988 (grau).

5.1.2 Entwicklung an den TSP – Messstationen

Durch die Einfachheit der Messmethode wurde TSP schon früh statistisch erfasst. Die ältesten zugänglichen Daten stammen von 1976 und wurden in Deutschland, Dänemark und Italien aufgenommen. Die Messstationen wurden aber selten durchgehend betrieben, wodurch kaum lange Zeitreihen, im Vergleich zu BS, zur Verfügung stehen. Es wurden aus 15 Staaten TSP Messungen bearbeitet. Es hat sich allerdings gezeigt, dass es nur in 4 Ländern (Deutschland, Dänemark, Italien und Spanien) Zeitreihen gibt, die sich über 20 Jahre oder mehr erstrecken. Diese 4 Länder haben allerdings keine oder nur wenige BS - Stationen betrieben (siehe Abbildung 5.2), wodurch direkte Vergleiche der Langzeittrends von BS mit TSP an einzelnen Stationen nicht möglich sind.

5.1.3 Entwicklung an den PM10 – Messstationen

Im Gegensatz zu BS wurden PM10-Messstationen erst viel später eingerichtet. Die ältesten verwendeten Daten dieser Arbeit stammen aus dem Jahr 1991 aus Finnland. Aber schnell wurde, unter anderem forciert durch die EU-Richtlinien 96/62/EG (Internetref.8) und 1999/30/EG (Internetref.9), PM10 zur wichtigsten Messgröße für die Feststellung der Luftverschmutzung und es wurden flächendeckend Messstationen in vielen europäischen Ländern errichtet. Wie man in Abbildung 5.3 erkennen kann, wurden und werden vor allem in dicht besiedelten und stark industrialisierten Gebieten viele Messstationen betrieben. Dadurch ist die Entwicklung von PM10 spätestens ab 2001 in fast allen EU-Ländern gut dokumentiert. Es ist allerdings durch die meist sehr kurzen Zeitreihen kaum möglich, sinnvolle Trendanalysen durchzuführen.

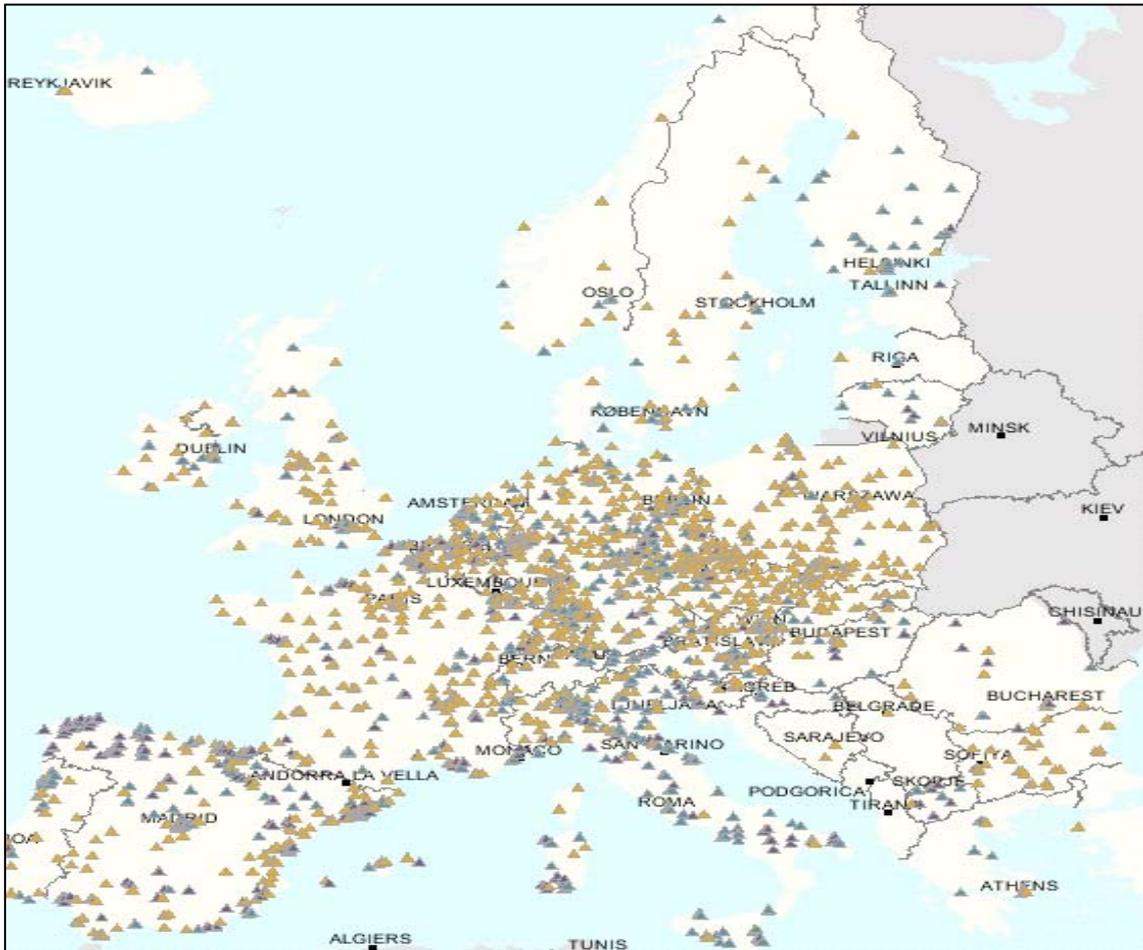


Abbildung 5.3: PM10-Messstationen. Vor allem in dicht bewohnten und industrialisierten Gebieten (Deutschland, Belgien, etc.) sind viele Stationen vorhanden

5.1.4 Entwicklung an den PM 2.5-Messstationen

Die PM 2.5-Fraktion wurde in den meisten Ländern erst ab 2002 gemessen. Auch die Anzahl der Stationen in den jeweiligen Ländern ist gering. Die längste und älteste zugängliche Zeitreihe stammt aus Island von 1996 – 2001.

In Tabelle 1 sind die Zeiträume der untersuchten Messgrößen der Länder zusammenfassend angegeben. Die Angaben beziehen sich allerdings nur auf die erste und letzte vorhandene Messung. Es ist damit nicht gemeint, dass durchgängige Zeitreihen in diesem Zeitraum auch wirklich vorhanden sind. Von den 24 Ländern wurden in 7 Ländern (siehe Tabelle 1) sowohl TSP als auch BS gemessen. Von diesen wurde in 3 Ländern (Griechenland, Portugal und Spanien) gleichzeitig mit den beiden Messungen begonnen und bei den restlichen 4 sind auch zeitliche Übereinstimmungen zu sehen. Es ist jedoch kaum möglich, einzelne Stationen zu finden, an denen beide Messgrößen aufgenommen wurden.

5 Ergebnisse und Diskussion

Tabelle 1: Verwendete Zeiträume der Messgrößen.

Land	BS	TSP	PM10	PM 2.5
Belgien (BE)	1990-2005		1999-2005	
Bulgarien (BG)		1998-2005	2000-2005	
Dänemark (DK)	1967-2002	1976-2005	2001-2005	2004-2005
Deutschland (DE)		1976-2005	1998-2005	2003-2005
Finnland (FI)		1993-2005	1991-2005	2001-2005
Frankreich (FR)	1976-1990	1982-1989	2001-2005	2001-2005
Großbritannien (GB)	1961-2005		1992-2005	1999-2005
Griechenland (GR)	1984-2004	1984-1987	2001-2005	2005
Irland (IL)	1973-1996		1999-2005	
Island (IS)			1994-2005	1996-2005
Italien (IT)		1976-2004	1999-2005	2003-2005
Mazedonien (MK)	1997-2005		2003-2005	
Niederlanden (NL)	1964-2005		1997-2005	
Norwegen (NO)			1994-2005	2003-2005
Österreich (AT)		1990-2004	1999-2005	2000-2005
Polen (PL)	1997-2003	2001-2003	1997-2005	2002-2005
Portugal (PO)	1986-1991	1986-1988	1997-2005	2002-2005
Rumänien (RO)		2001-2005	2003-2005	
Schweden (SE)	1997-2004	1993-1994	1998-2005	
Schweiz (CH)		1992-1997	1992-2005	
Slowenien (SLO)	1968-2002			
Spanien (ES)	1986-1992	1986-2004	1997-2005	2002-2005
Tschechien (CZ)		1992-1995	1996-2005	2004-2005
Ungarn (HU)			2000-2005	

5.2 Jährliche und saisonale Massenkonzentrationen

Die im Folgenden verwendeten Massenkonzentrationen wurden zum größten Teil über die Airbase - Datenbank der European Environment Agency (EEA) (Internetref. 10) bezogen (weitere Datenquellen: siehe Anhang A). Aus den zur Verfügung stehenden Tagesmittelwerten wurden Monatsmittel und aus diesen wiederum die Jahresmittel bzw. saisonalen Mittel berechnet. Monate und Jahre, die keine zeitliche Abdeckung von mehr als 60% als Berechnungsgrundlage bieten konnten wurden nicht verwendet. In den Anhängen B – E sind alle Massenkonzentrationen dargestellt, die zur Verfügung standen. Aus diesen wurden nur jene für die folgenden Unterkapitel ausgewählt, die zeitliche und/oder räumliche Aussagekraft besitzen. Die saisonalen Mittel für den Sommer wurden aus Daten der Monate Juni, Juli und August und für den Winter aus den Monaten Dezember, Jänner und Februar berechnet. Alle angegebenen Werte können nur als Richtwerte interpretiert werden und sollten nur innerhalb einer Station betrachtet werden, da vor allem bei langen, und damit interessanten, Zeitreihen der Messaufbau nicht exakt bekannt ist und unterschiedliche Einlässe, Filter usw. zu abweichenden Messergebnissen führen. Es ist aber anzunehmen, dass der Messaufbau an einer Station über die Jahre gleich geblieben ist.

5.2.1 Massenkonzentrationen von Black Smoke / Elemental Carbon

5.2.1.1 Jahresmittel

Die BS-Jahresmittel wurden mit Hilfe der von Schaap und Denier van der Gon (2007) angegebenen Umrechnungen in EC-Konzentrationen umgewandelt (Formeln 4.10 und 4.11). Welche der verschiedenen Umrechnungen von Kapitel 4 ausgewählt wurde ist nicht so relevant, da nur die Entwicklung an einzelnen Stationen betrachtet wurde und die unterschiedlichen Umrechnungen zwar die Höhe der errechnete EC-Werte beeinflussen, nicht jedoch die Form des Verlaufes. Die verwendete Umrechnung trägt, wenn auch nur in geringen Maßen, dem Umstand Rechnung, dass die Konversionen aerosol- und somit lageabhängig sind.

Die längsten Zeitreihen stammen aus Großbritannien. Das, öffentlich zugängliche, UK-airquality-archiv (Internetref. 11) liefert Daten ab 1961 für Großbritannien, von denen einige in Abbildung 5.4 dargestellt sind. Man erkennt deutlich den starken Rückgang der

5 Ergebnisse und Diskussion

Massenkonzentrationen, der sich auch in fast allen anderen europäischen Ländern finden lässt. Die stärkste Reduktion wurde in den ersten 10 Jahren erreicht. Während 1961 in Middleton noch ein Wert von $65,8\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurde, waren es 1971 nur noch $9,8\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ab 1981 wurden Werte zwischen 1 und $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ registriert.

Ähnliche Verläufe lassen sich auch für die anderen britischen Stationen finden. Der starke Rückgang von 1961 bis 1965 ist nur in Großbritannien zu beobachten, da die Daten der anderen Länder nicht so weit zurück reichen.

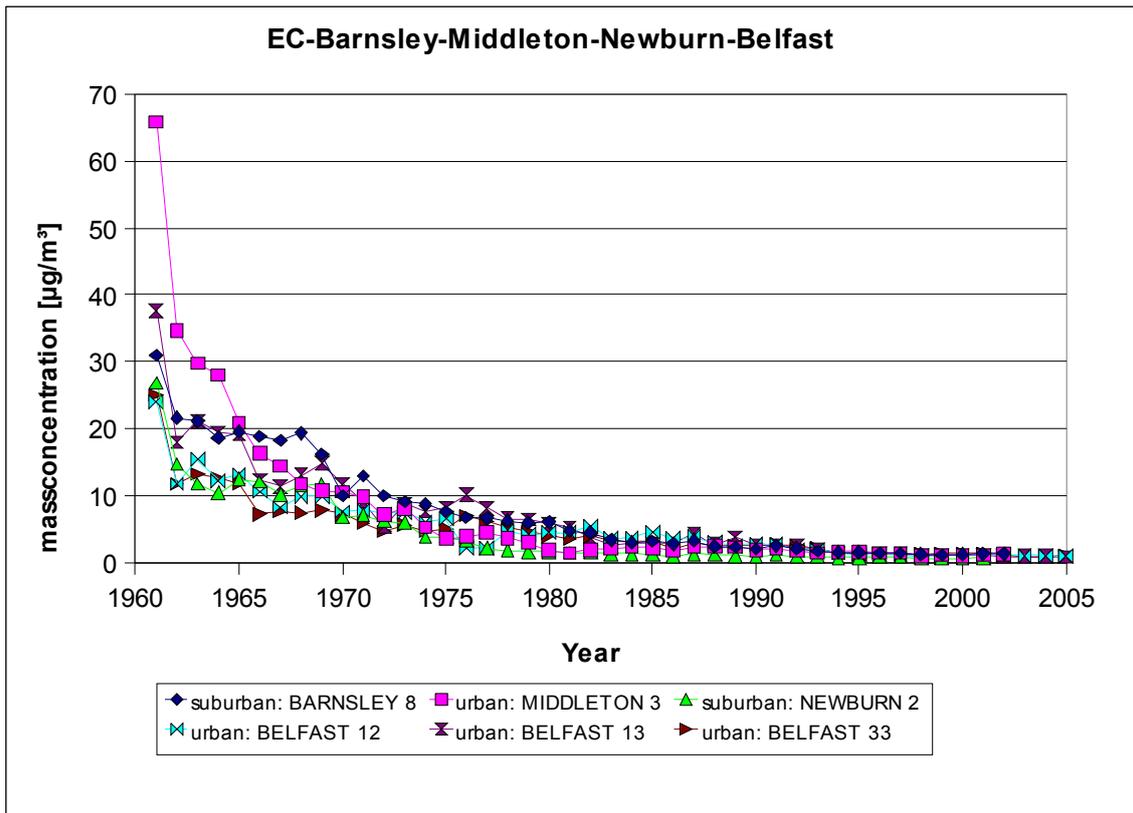


Abbildung 5.4: Einige EC-Zeitreihen aus Großbritannien von 1961-2005. Die hohen Startkonzentrationen nehmen kontinuierlich ab

Die von Janja Tursic (Slovenian Environmental Agency) und Flemming Cassee (RIVM) zur Verfügung gestellten Daten von Slowenien und den Niederlanden (Abbildung 5.5 und Abbildung 5.6) zeigen denselben Trend. Es ist dabei jedoch zu beachten, dass unterschiedliche Skalierungen verwendet wurden, um den Verlauf stärker hervor zu heben. Die Werte in Ljubljana haben sich von 1968 bis 2002 um teilweise mehr als das 10-fache reduziert, in Resljeve sogar von $24,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 1968 auf $1,5\mu\text{g}/\text{m}^3$. Sowohl die slowenischen Zeitreihen in Abbildung 5.5 als auch die niederländischen Zeitreihen in Abbildung 5.6 zeigen vereinzelte lokale Maxima, wie z.B. in Naaldwijk (Abbildung 5.6), wo ein Sprung von $1,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $8,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu sehen ist. Diese sind auf kurzfristige lokale Quellen, vermutlich Baustellen, zurückzuführen. Die lange Zeitreihe von Schiedam (Niederlande) in Abbildung 5.6 zeigt einen

5 Ergebnisse und Diskussion

Aufwärtstrend, der jedoch ab 1986 durch den Abbruch der Messungen an dieser Station nicht weiter verfolgt werden kann. In Utrecht-Wittefrouwenstr. (Niederlande) wurden von 1990 bis 2000 Werte zwischen $6,4\mu\text{g}/\text{m}^3$ und $3,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Diese für das Land ungewöhnlich hohen Werte fielen erst 2002 auf das Niveau der anderen Stationen.

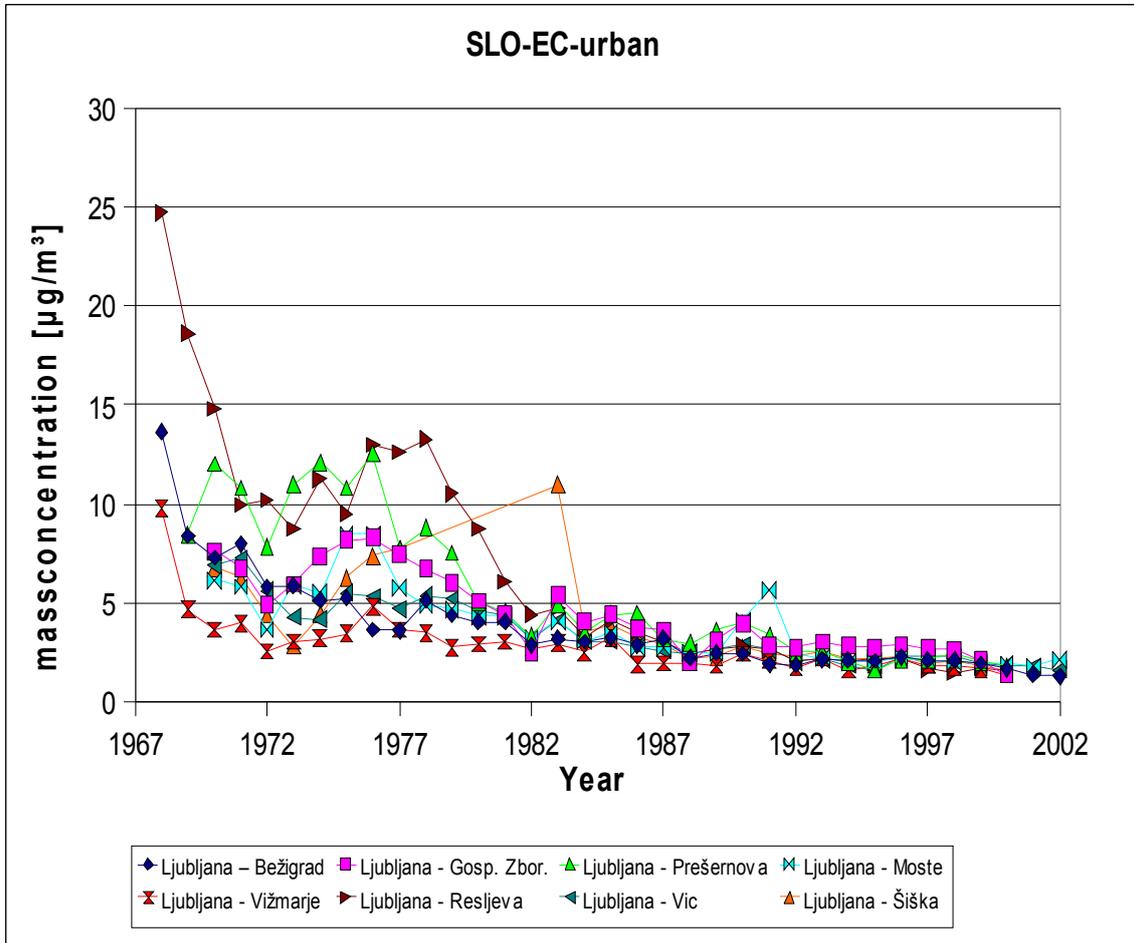


Abbildung 5.5: EC-Zeitreihen aus Ljubljana (SLO). Ein starker Rückgang Ende der 60er Jahre und Ende der 70er Jahre ist deutlich sichtbar.

Im ländlichen Gebiet kann dieser Trend teilweise auch verfolgt werden. Die EC-Konzentrationen sind jedoch meist so gering, dass keine nennenswerten Änderungen sichtbar oder möglich sind (siehe Abbildung 5.7). In Vredepeel wurde das Maximum mit $1,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 1991 gemessen. Ab 2000 sind gleich bleibende Werte von $\sim 0,6\mu\text{g}/\text{m}^3$ verzeichnet.

Es lassen sich auch Ausnahmen dieses allgemeinen Abwärtstrends finden. Die in Abbildung 5.8 dargestellten mazedonischen Rußkonzentrationen an verkehrs- und industrienahen Stationen zeigen von 1998-2005 einen leichten Aufwärtstrend. Hintergrund-Stationen Mazedoniens zeigen jedoch ebenfalls den europaweiten Abwärtstrend.

5 Ergebnisse und Diskussion

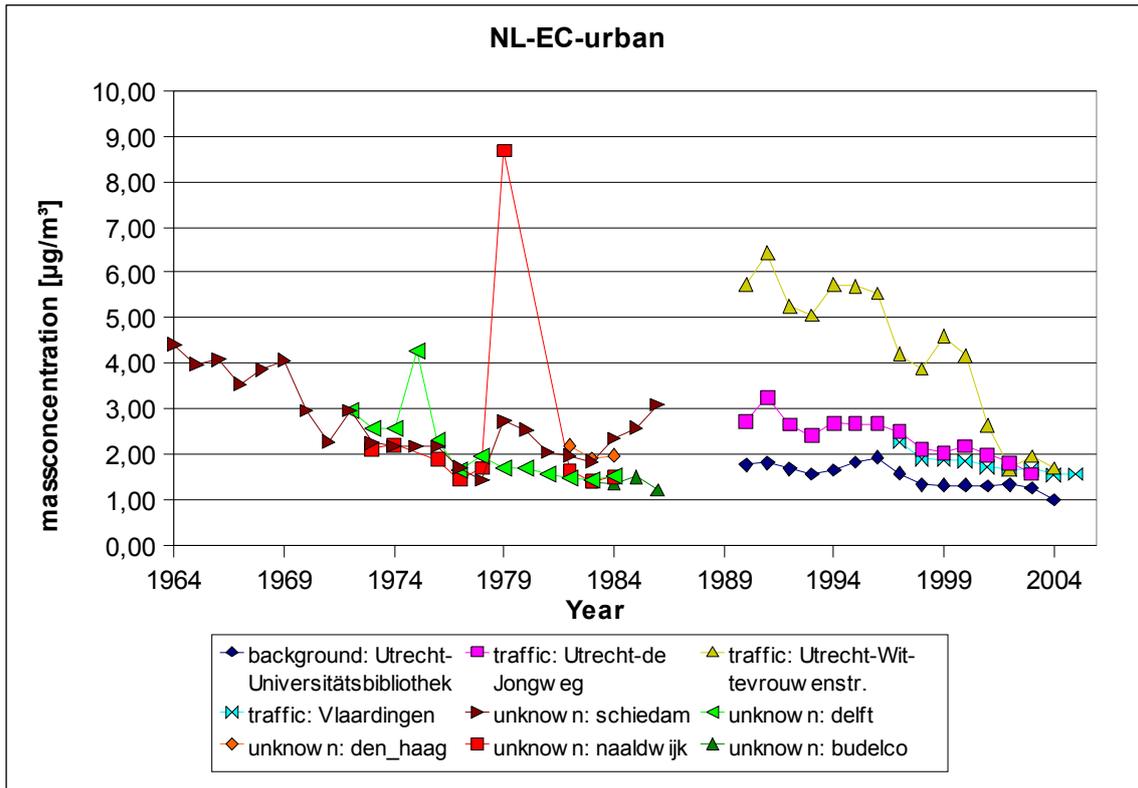


Abbildung 5.6: EC-Zeitreihen aus den Niederlanden (städtisches Gebiet). Die von F.Cassee zur Verfügung gestellten Daten von 1964–1986 zeigen ebenso einen Abwärtstrend wie jene von Airbase von 1990–2005.

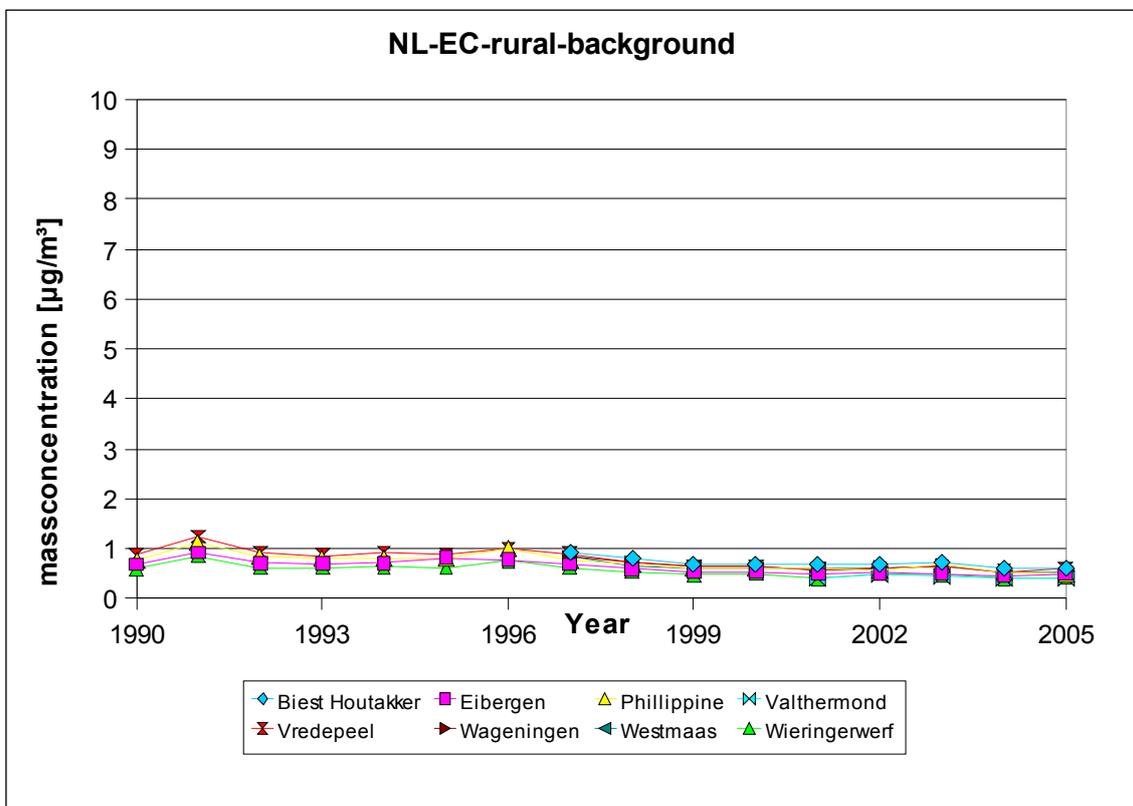


Abbildung 5.7: EC-Zeitreihen aus den Niederlanden (ländliches Gebiet). Leichter Abwärtstrend sichtbar, kann aber eher als stagnierend bezeichnet werden.

5 Ergebnisse und Diskussion

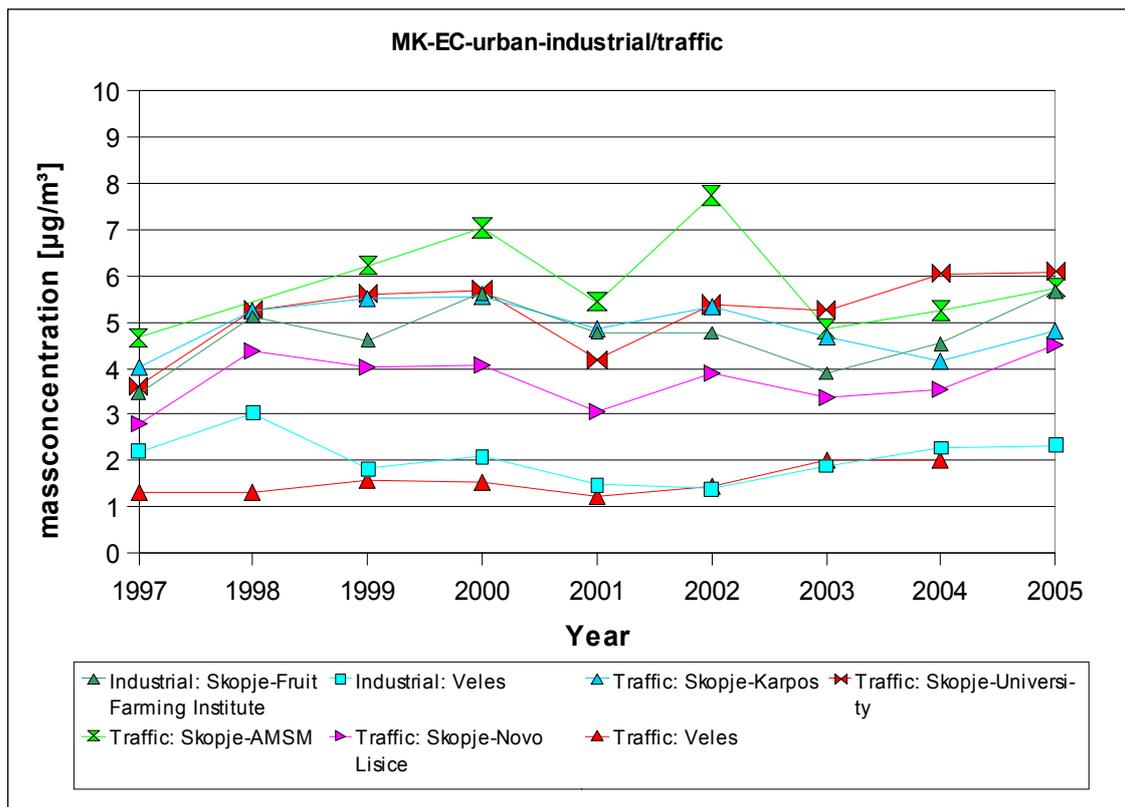


Abbildung 5.8: EC-Zeitreihen aus Mazedonien. Ein leichter Aufwärtstrend ist zu erkennen.

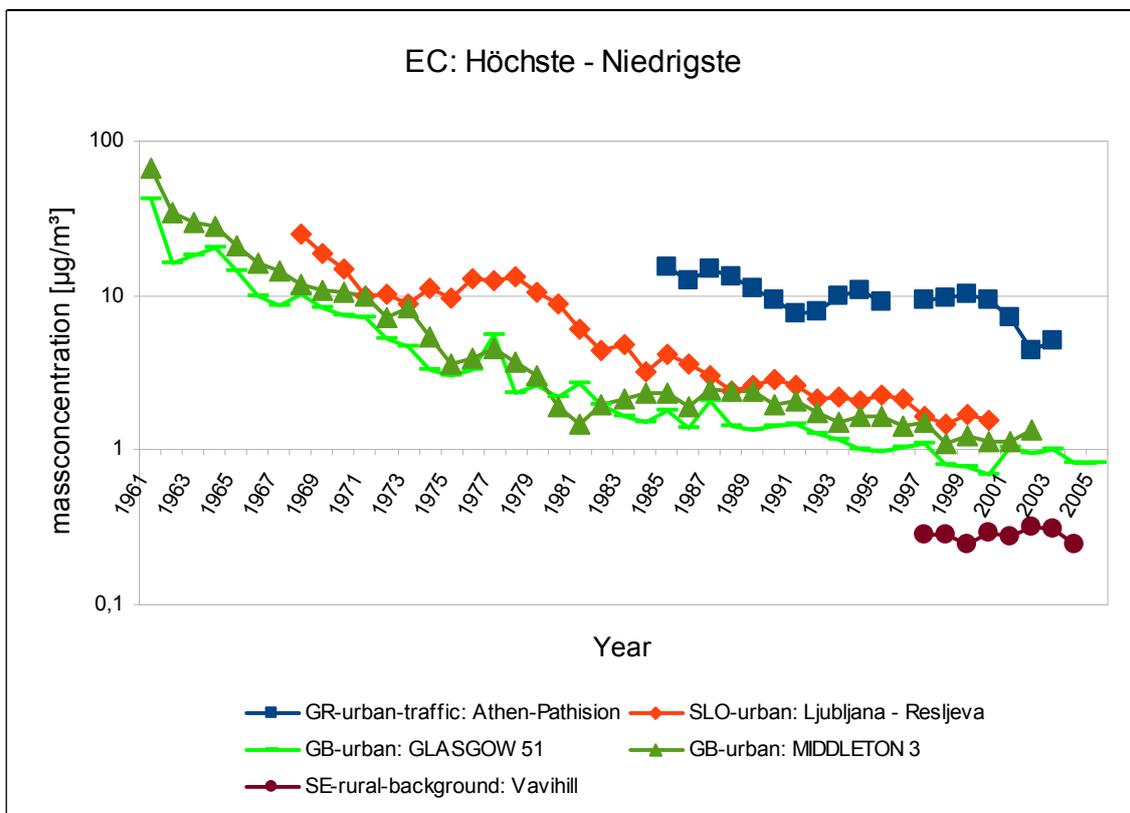


Abbildung 5.9: Zeitreihen an Stationen mit den höchsten und niedrigsten EC-Konzentrationen. Maximum ($65,8\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Glasgow (GB) 1961, Minimum ($0,3\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Vavihill (SE).

5 Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 5.9 sind die höchsten und niedrigsten EC-Werte logarithmisch dargestellt. Es ist wenig überraschend, dass die höchsten Werte in städtischem Gebiet zu finden sind. Der höchste Wert ($65,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$), im Jahresmittel, wurde in Middleton (Großbritannien) 1961 gemessen. Der starke Rückgang in den folgenden Jahren lässt sich vermutlich auf verbesserte Technologien in der Industrie, dem Verkehr und vor allem den Heizsystemen zurückführen (Effizienzsteigerung bei Motoren, Umstieg von Kohle auf andere Energieträger, Filteranlagen, usw.). Die höchsten Werte in den 90er Jahren des letzten Jahrhunderts wurden in Athen gefunden. Auch wenn die Werte zurückgingen, können um die Jahrtausendwende noch immer Werte um $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen werden, was den Werten von Middleton Anfang der 70er entspricht. Die niedrigsten Werte ($0,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) lassen sich im ländlichen Vavihill in Schweden feststellen. Ähnlich niedrige Werte wurden bei einigen Stationen in Deutschland gemessen, aber auch in Middleton sind die Werte auf $\sim 1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ab 1998 zurückgegangen.

Bei kurzen Zeitreihen muss eine Trendanalyse sehr vorsichtig getätigt werden. In Abbildung 5.10 sind die Zeitreihen aus Kopenhagen (Dänemark), die über Airbase in den Jahren 1976-1982 verfügbar sind, dargestellt. Diese Zeitreihen würden einen generellen Aufwärtstrend in Kopenhagen nahe legen. Die lange, in Rot dargestellte Zeitreihe zeigt jedoch, dass es sich bei diesem Anstieg um ein, unter Umständen durch die Ölkrise ausgelöstes, lokales Maximum Mitte der 80er handelt. Dieser Anstieg ab Mitte der 70er Jahre kann auch unter anderem in Fingl und Rathmi, Irland, beobachtet werden. Wie man in Abbildung 5.5. und Abbildung 5.6 erkennen kann, ist eine Generalisierung dieses Verlaufes über ganz Europa nicht möglich. Ebenfalls in Abbildung 5.10 gut zu erkennen ist die Ähnlichkeit des Verlaufes an verschiedenen Stationen derselben Region. Dies wird in Abbildung 5.11 an Beispielen aus den Niederlanden, Irland und Frankreich nochmals verdeutlicht. Die beiden Stationen in Paris zeigen eine fast identische Entwicklung. Dagegen sind die niederländischen Reihen nur dahingehend gleich, dass sie zeitlich dieselben Schwankungen, jedoch in unterschiedlichen Stärken aufweisen. Die durch die BS-Messung beobachtete Fraktion des Aerosols scheint daher eine zumindest so lange Lebensdauer zu besitzen, dass sie sich gleichmäßig über ein größeres Gebiet verteilen kann.

5 Ergebnisse und Diskussion

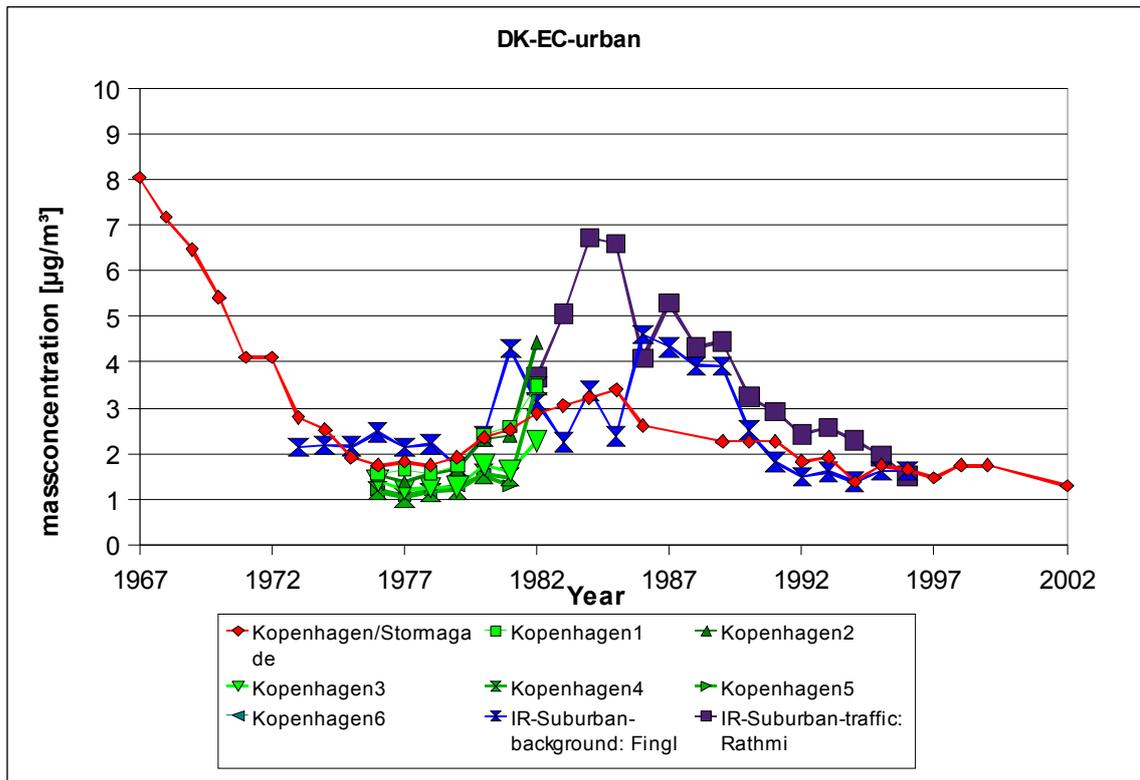


Abbildung 5.10: EC-Zeitreihen aus Kopenhagen (DK), Fingl (IR) und Rathmi (IR). Anstieg bis Mitte der 80er Jahre. Danach Abfall auf $\sim 1,6\mu\text{g}/\text{m}^3$ an allen Stationen im Jahr 1996.

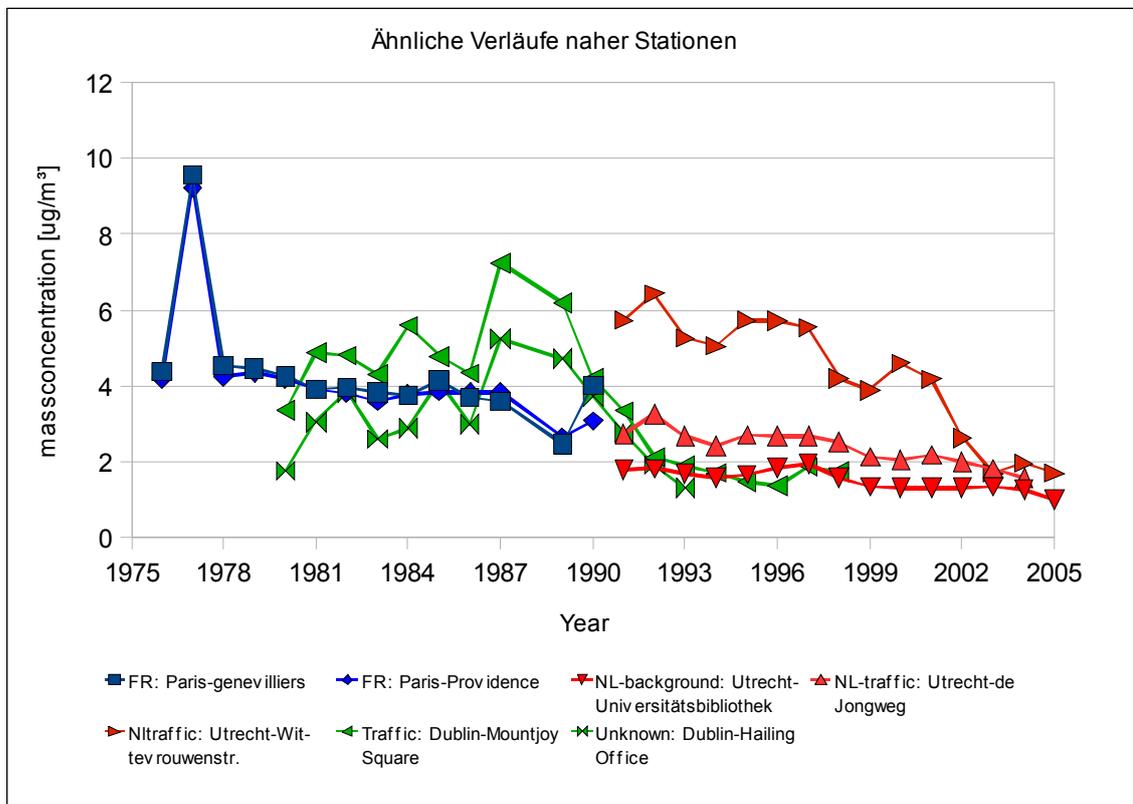


Abbildung 5.11: EC-Zeitreihen aus Paris, Utrecht und Dublin. Die Höhe der Konzentrationen in den Zeitreihen variiert, die Verläufe innerhalb desselben Gebietes sind allerdings sehr ähnlich.

5.2.1.2 Vergleich von Sommer- und Winterkonzentrationen

Um einen besseren Einblick zu erhalten, welche Änderungen der Aerosolzusammensetzung zu der Reduktion der Jahresmittel geführt hat, wurden die Mittelwerte der Monatsmittel von Dezember bis Februar und Juni bis August gebildet. Dies wurde für die längsten Zeitreihen gemacht, da bei diesen der Rückgang am deutlichsten sichtbar war. Man erkennt anhand Abbildung 5.12 sehr gut, dass die Rußbelastung im Winter deutlich über jener im Sommer liegt. Vor allem bei den frühen Aufzeichnungen lassen sich extreme Unterschiede feststellen. So liegt das Sommermittel in Manchester (Großbritannien) in den 60er Jahren bei $3 - 7,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ während die Wintermaxima auf bis zu $37,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ steigen. Die erhöhten Rußbelastungen im Winter lassen sich, wenn auch nicht so ausgeprägt, bis zu den neuesten Aufzeichnungen verfolgen. Es ist ebenfalls zu erkennen, dass die Hauptquelle des Rückgangs der Jahresmittel in der starken Reduktion der Wintermaxima liegt. Diese betragen 1961 in Elland (Großbritannien) noch $38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und reduzierten sich bis 2004 auf $1,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Einige Ursachen dafür sind sicher die Umstände, dass die Heiztechniken auf effizientere Verbrennungen bzw. andere Brennstoffe umgestellt wurden, sowie die Reduzierung offener Kaminfeuer. Aber auch die Sommermittel verringerten sich in Elland von $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (1962) auf $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2004).

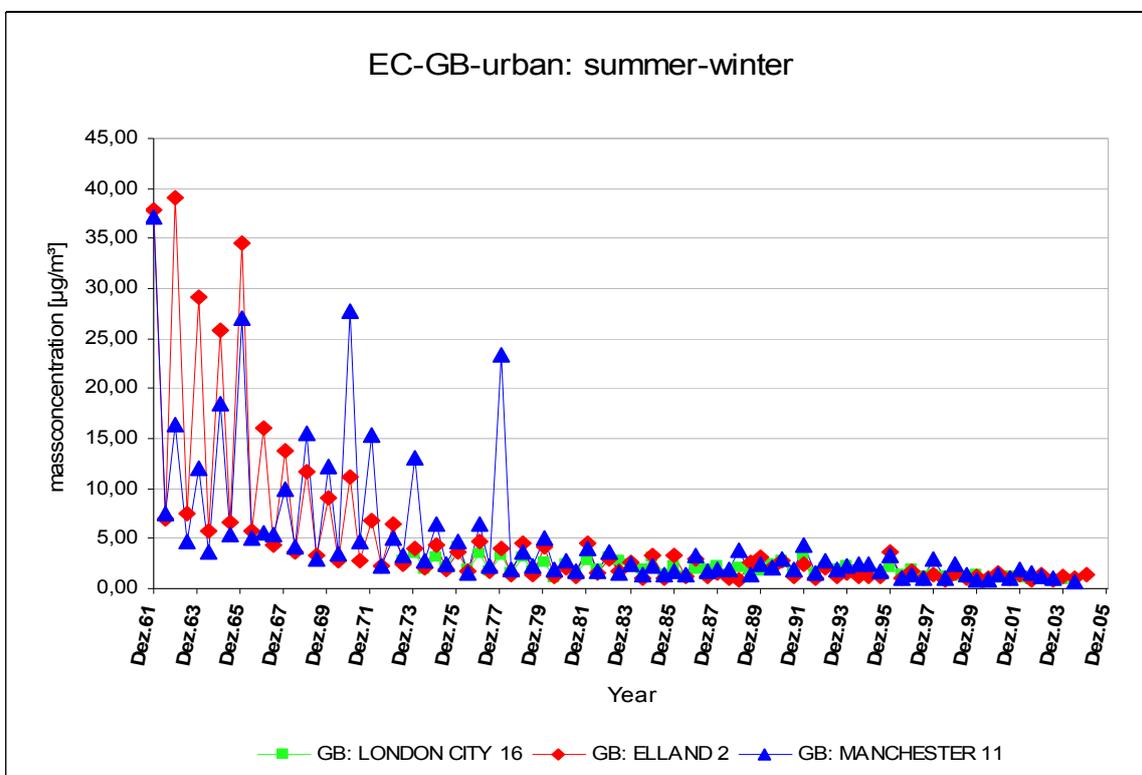


Abbildung 5.12: Typische städtische EC-Sommer-Winter-Zeitserien. Die Reduktion der Wintermaxima ist deutlicher sichtbar, als die Reduktion im Sommer.

5 Ergebnisse und Diskussion

Dass diese Entwicklung der Sommer- und Wintermittelwerte nicht auf Großbritannien und auch nicht auf städtisches Gebiet beschränkt ist zeigt Abbildung 5.13. Die Werte sind, wie erwartet, in ländlichen Gebieten wesentlich geringer, wobei die unterschiedlichen Skalierungen der Achsen zu berücksichtigen ist. Im Winter steigen die Rußkonzentrationen auf das ~2-fache der Sommerwerte an. Auch hier zeigt sich wieder vor allem ein starker Rückgang der Wintermaxima. In Vredepeel (Niederlande) wurden im Winter 1991 $1,5\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. 2004 ergab sich ein Wert von $0,7\mu\text{g}/\text{m}^3$. In Vavihill (Schweden) können im Sommer die niedrigsten Werte aller Stationen beobachtet werden. Bei $0,20\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Sommer 1999 liegt die Station nahe des, durch die Umrechnung gegebenen, Minimums von $0,16\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Rußkonzentrationen steigen in Vavihill im Winter auf das Doppelte der Sommerkonzentrationen an. Dies könnte unter anderem an einer ruhigen, austauscharmen Wetterlage oder an einem verstärkten Heizverhalten in der kalten Jahreszeit liegen.

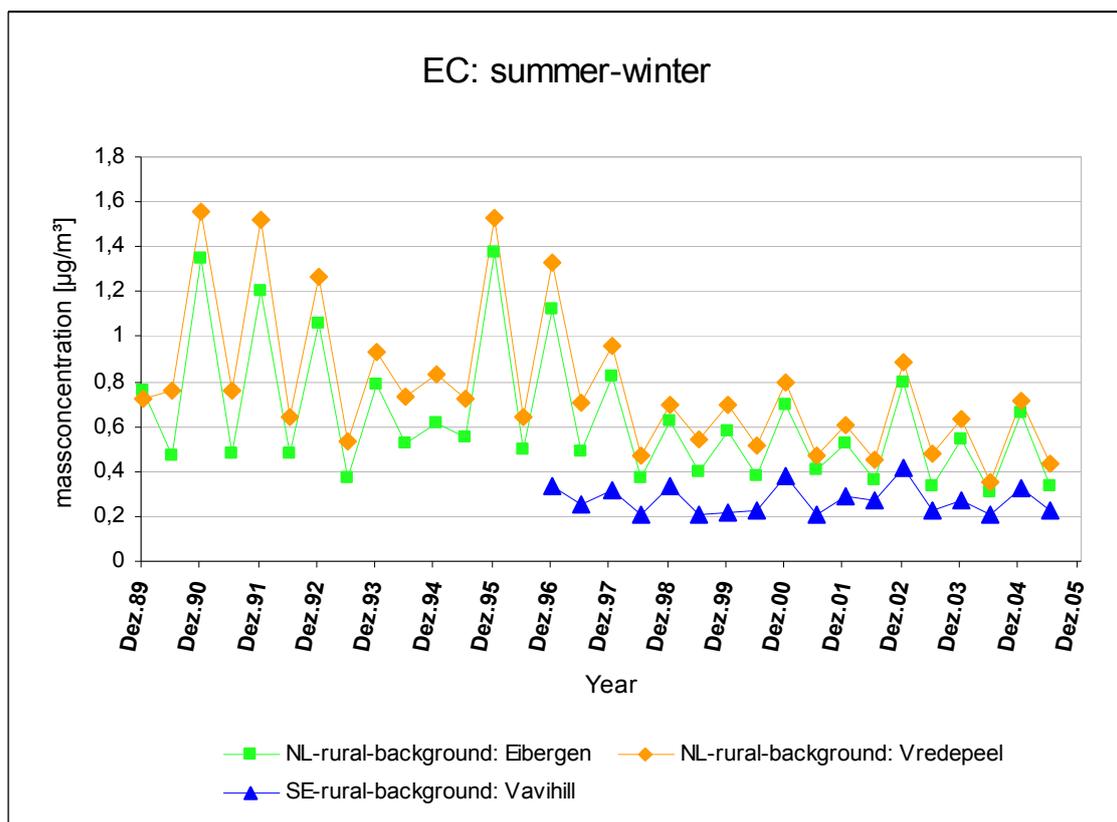


Abbildung 5.13: Typische ländliche EC-Sommer-Winter-Zeitreihen. Winterkonzentrationen liegen deutlich über jenen des Sommers.

5.2.2 TSP

5.2.2.1 Jahresmittel

Wie schon in der Einleitung des Kapitels 5 angedeutet, sind so gut wie keine über mehrere Dekaden durchgehende Zeitreihen vorhanden, was in Abbildung 5.14 gut zu erkennen ist. Oft liegen nur Daten von 3-4 Jahren vor, wodurch eine Trendanalyse dieser Zeitreihen einen eher spekulativen Charakter bekommt. Bei den längeren, leider fast immer lückenhaften Zeitreihen lässt sich ein Rückgang der Konzentrationen beobachten. Die im Anhang C aufgeführten Diagramme der TSP-Zeitserien untermauern dies. Die Verringerung der Massenkonzentrationen ist nicht nur in städtischen Gebieten, wie bei der in Abbildung 5.14 dargestellten Zeitreihe aus Turin (Italien), sondern auch in ländlichen Gebieten sichtbar. In Turin kann ein Rückgang von $180,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1979) auf $89,3\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2000) beobachtet werden. Die Zeitreihen in Abbildung 5.14 zeigen, neben dem Abwärtstrend, ebenfalls, dass die Höhe der jährlichen Massenkonzentrationen sehr stark von der spezifischen Station abhängen. Während die ländliche Hintergrundstation vom Schauinsland (Deutschland) Jahreskonzentrationen konstant bei $20\text{-}25\mu\text{g}/\text{m}^3$ von 1977-1989 und $6\text{-}9\mu\text{g}/\text{m}^3$ von 1997-2001 zeigt, findet man im ebenfalls ländlichen, aber auch industrienahen Montcada (Spanien) sehr deutliche Schwankungen der Jahresmittelkonzentrationen zwischen $179\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1978) und $66\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2001). Die Zeitreihe aus Kopenhagen (Dänemark) zeigt im Gegensatz zu den anderen Zeitreihen in Abbildung 5.14 kaum eine Verringerung der Massenkonzentrationen. Die höchste Konzentration im Jahresmittel wurde 1987 mit $106\mu\text{g}/\text{m}^3$, die niedrigste im Jahr 2004 mit $70\mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Allerdings wurde schon 1983 ein Jahresmittel von $82\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen.

5 Ergebnisse und Diskussion

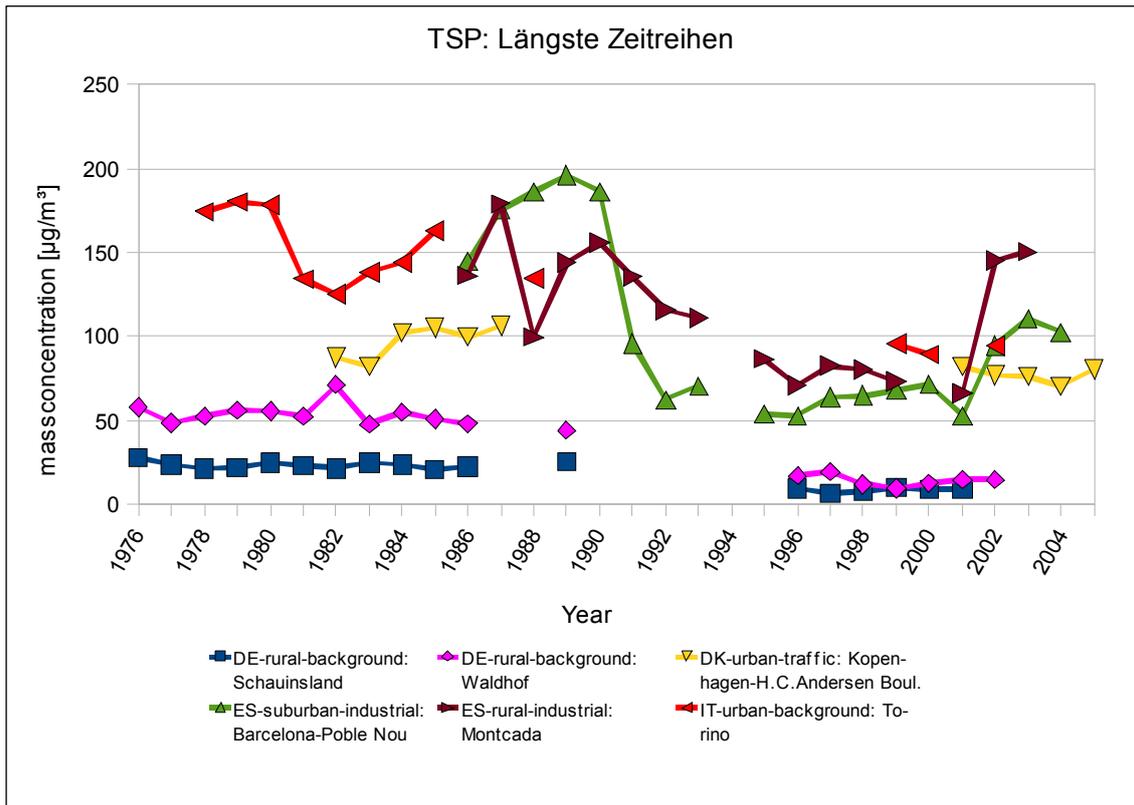


Abbildung 5.14: Längste Zeitreihen aus Europa. Verringerung der Massenkonzentrationen sichtbar.

In Abbildung 5.15 sind die Zeitreihen mit den höchsten und niedrigsten Massenkonzentrationen dargestellt. Die mit durchgängigen Linien gekennzeichneten hohen Massenkonzentrationen wurden nicht nach den maximalen Ausschlägen, sondern nach den konstant hohen Konzentrationen ausgewählt, mit Ausnahme der Zeitreihe für St.Pölten (Österreich). So kann man in Abbildung 5.16 erkennen, dass in Turin (Italien) die Jahresmittel von 1978 bis 1983 zwischen $214,5\mu\text{g}/\text{m}^3$ und $125,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ lagen. Um die Jahrtausendwende sind die Werte auf ca. $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ in Turin zurückgegangen. In Barcelona (Spanien) ist ein sehr starker Rückgang der Konzentrationen Anfang der 90er Jahre zu beobachten. Von 1990 bis 1992 reduzierten sich die Jahresmittelkonzentrationen von $186,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $62,1\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die kurzfristig höchsten erfassten Jahresmittelkonzentrationen wurden in St.Pölten gemessen. 1996 wurde ein Spitzenwert von $475\mu\text{g}/\text{m}^3$, mit einem Tagesmaximum von $863\mu\text{g}/\text{m}^3$ am 23.01.1996, ermittelt. Ein möglicher Grund für diese hohen Konzentrationen könnte eine Großbaustelle und die damit einhergehende Staubentwicklung gewesen sein.

5 Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 5.15 sind die niedrigen Konzentrationen mit gestrichelten Linien auf der sekundären y-Achse dargestellt. Die mit Abstand niedrigsten Konzentrationen wurden in den schwedischen Städtchen Kiruna und Bredkälen gemessen. Auch wenn in diesen Städten nur über 2 Jahre gemessen wurde, erscheint es plausibel, dass die niedrigen Konzentrationen von maximal $1,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ keinen langfristig starken Änderungen unterliegen, da Kiruna, die nördlichste Stadt Schwedens, und Bredkälen sehr abgelegen liegen. Neben diesen sehr niedrigen Zeitreihen finden sich in Deutschland, Österreich und Finnland Jahreskonzentrationen unter $25\mu\text{g}/\text{m}^3$.

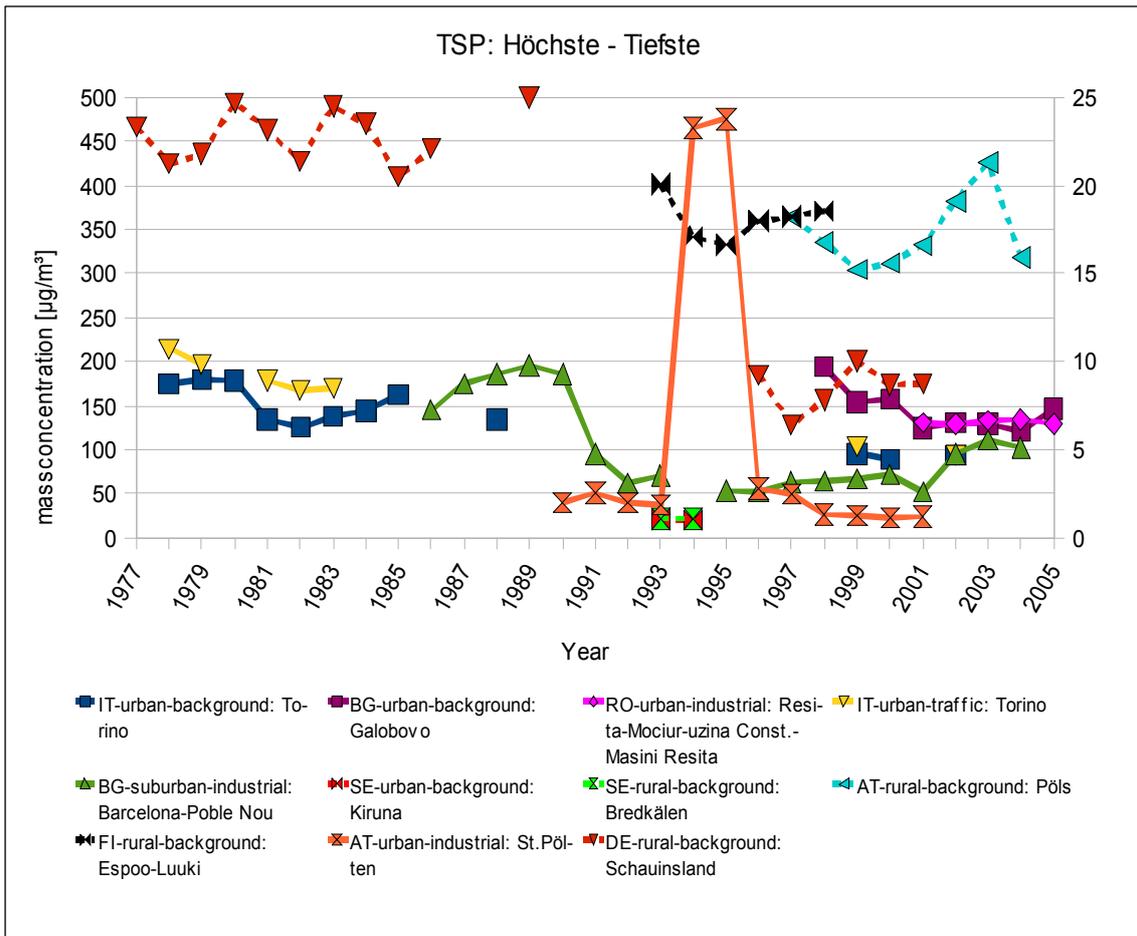


Abbildung 5.15: Zeitreihen der höchsten und niedrigsten TSP-Massenkonzentrationen. Hohe Massenkonzentrationen (linke Achse) sind mit durchgängigen, niedrige Massenkonzentrationen (rechte Achse) mit gestrichelten Linien dargestellt.

5.2.2.2 Vergleich Sommer – Winter – Konzentrationen

Wie schon bei EC wurden auch bei den TSP-Messungen Vergleiche zwischen Sommer- (Juni bis August) und Winter- (Dezember bis Februar) Konzentrationen durchgeführt. Es wurden dabei aus den längsten Zeitreihen aus den verschiedenen Ländern einzelne Reihen von Stationen mit unterschiedlicher geographischer Lage ausgesucht.

Die auf der Sekundärachse dargestellte Zeitreihe in Abbildung 5.16 aus Turin (Italien) zeigt die deutlichsten Unterschiede zwischen den Sommer- und den Winterkonzentrationen. Während die Sommerkonzentrationen konstant zwischen 110 und 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bis 1985 liegen, mit Ausnahme des Sommers 1981, variieren die Winterkonzentrationen im selben Zeitraum zwischen 150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ('82-'83) und 270 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ('80-'81). Die ab 1998 wieder aufgenommenen Messungen von TSP in Turin zeigen weiterhin eine Diskrepanz zwischen Sommer und Winter, allerdings halbierten sich die Konzentrationen auf ~60-70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Sommer und 90-140 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Winter.

In den anderen in Abbildung 5.16 angeführten Gebieten ist dieser jahreszeitliche Unterschied kaum bis gar nicht vorhanden. Im finnischen Vallila dreht sich diese Abfolge sogar um. Während bis 1996 Sommer- und Winterkonzentrationen gleichermaßen bei ca. 33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen, sind ab dem Sommer von 1996 die Massenkonzentrationen im Sommer höher als im Winter. Die Konzentrationen in der kalten Jahreszeit liegen bei 20-25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, während jene im Sommer ihren Höchstwert 1997 mit 48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ erreichen. In Aalborg (Dänemark) und Wiesbaden (Deutschland) ist diese deutliche Unterteilung der Konzentrationen im Sommer und im Winter ebenfalls nicht ersichtlich. Eine mögliche Erklärung wäre, dass in den nördlicheren Ländern auch im Sommer teilweise geheizt wird. Wahrscheinlicher ist jedoch, dass die durch den Heizvorgang freigesetzten Emissionen wenig bis keinen Einfluss auf die jahreszeitlichen Unterschiede der Massenkonzentration des Aerosols haben und die stabilere, windstille Großwetterlage im Sommer höhere Massenkonzentrationen verursacht. In den 70er bzw. 80er Jahren scheint dieser Einfluss noch stärker gewesen zu sein. Da die Verbrennungstechniken nicht so ausgereift waren und viele größere, und damit auch schwerere, Partikel bei der Verbrennung freigesetzt wurden, konnte damals eine generell höhere Belastung sowohl im Winter als auch im Sommer festgestellt werden. Verbesserte Filtertechniken haben sicher auch, wie auch schon bei EC, zur Reduktion sowohl der Sommer- als auch der Winterkonzentrationen beigetragen.

5 Ergebnisse und Diskussion

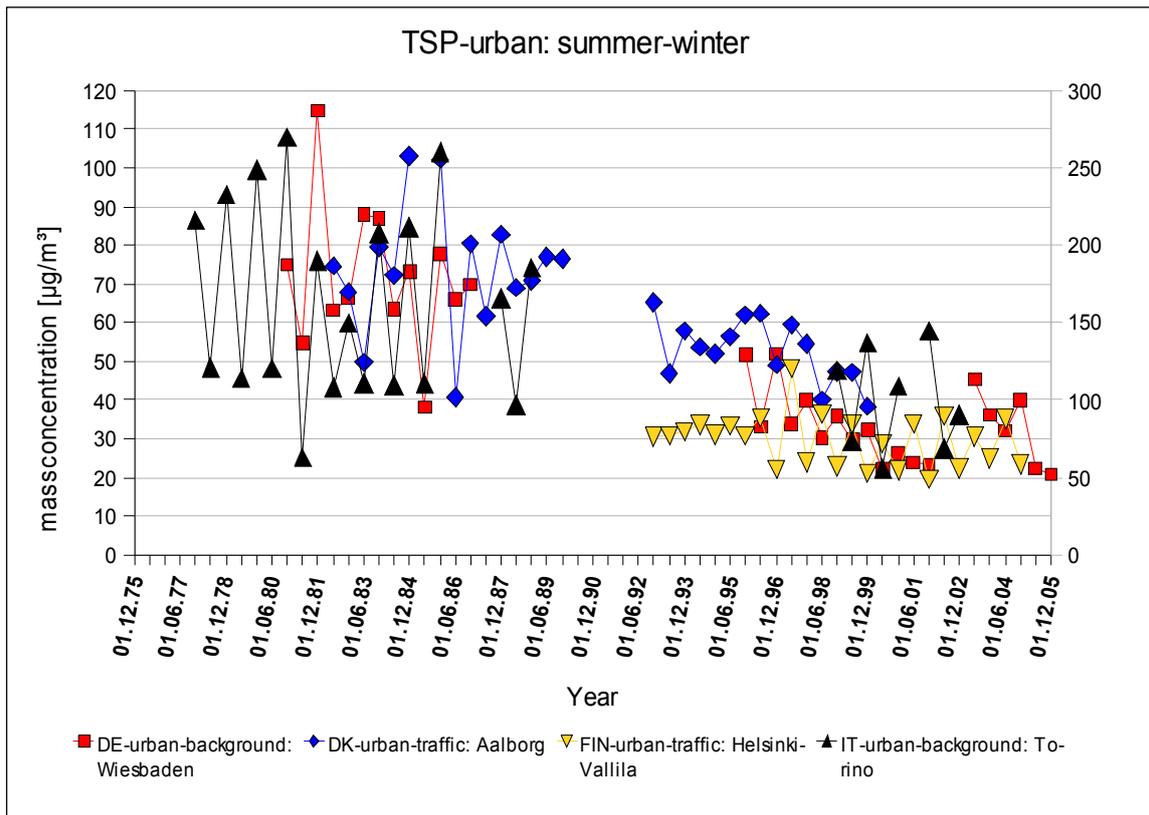


Abbildung 5.16: Zeitreihen urbaner Sommer- und Winterkonzentrationen (Turin: rechte Achse). Verkehrsnahe Stationen zeigen kaum bzw. teilweise keine saisonalen Unterschiede. Hintergrundmessungen zeigen, vor allem Anfang der 80er Jahre starke Unterschiede.

Im ländlichen Gebiet, siehe Abbildung 5.17, sind die höheren Sommerkonzentrationen noch deutlicher sichtbar als im städtischen. Sowohl am Schauinsland (Deutschland), als auch in Deuselbach (Deutschland) und im spanischen Montcada, dargestellt auf der sekundären y-Achse, sind die höchsten Massenkonzentrationen im Sommer zu finden. Vor allem am Schauinsland ist die regelmäßige Steigerung der TSP-Konzentrationen im Sommer deutlich sichtbar. Es scheint, dass die natürlichen Aerosolquellen im Sommer einen stärkeren Beitrag zum Gesamtaerosol leisten als im Winter. In Weiz (Österreich) lässt sich wiederum der entgegengesetzte Trend feststellen. Die Winterkonzentrationen liegen meist zwischen 50 und $60\mu\text{g}/\text{m}^3$, während die Sommerkonzentrationen zwischen 25 und $40\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen. Die Verringerung des Jahresmittels in Weiz ist sowohl auf die niedrigeren Sommer- als auch auf die niedrigeren Winterkonzentrationen zurück zu führen.

5 Ergebnisse und Diskussion

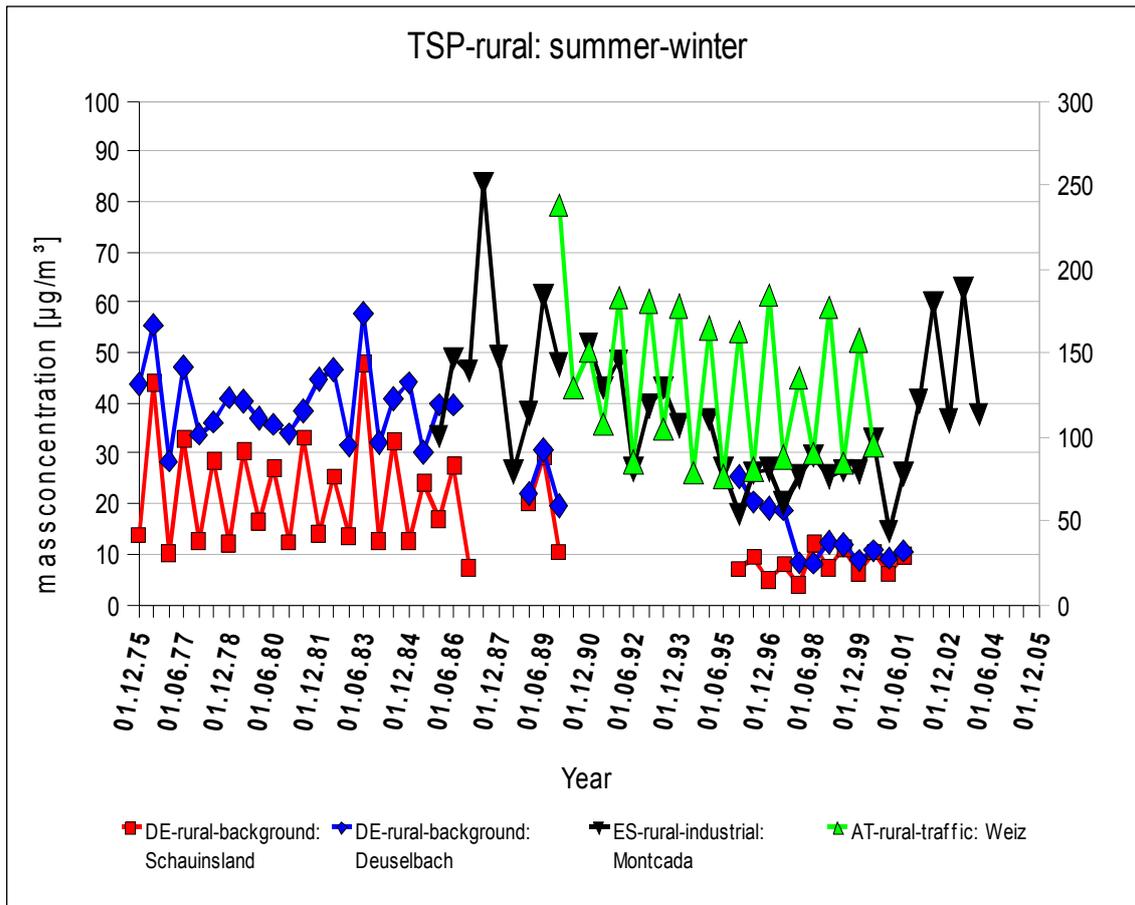


Abbildung 5.17: Zeitreihen ländlicher Sommer- und Winterkonzentrationen (Montcada: rechte Achse). Bis auf die Zeitreihe aus Weiz sind die Sommerkonzentrationen meist höher als die Winterkonzentrationen.

5.2.3 PM10

5.2.3.1 Jahresmittel

Während bei TSP Zeitreihen ab 1975 vorhanden sind, wurden PM10-Messungen flächendeckend erst ab Ende des 20. Jahrhunderts, teilweise erst Anfang des 21. Jahrhunderts aufgenommen (siehe Tabelle 5.1). In den meisten Ländern wurden sehr schnell viele Stationen eingerichtet (siehe auch Abbildung 5.3), wodurch eine große Menge an kurzen Zeitreihen vorhanden ist. Da die Methode für die PM10-Messungen von der EU vorgeschrieben ist, können die Massenkonzentrationen voraussichtlich untereinander verglichen werden (zumindest in den EU-Staaten). Längere Zeitreihen (über 10 Jahre) wurden in Norwegen, Island, Großbritannien, Finnland und der Schweiz erfasst, wobei auch in diesen Ländern diese langen Zeitreihen nicht flächendeckend aufgenommen wurden. Eine Auswahl der längsten Zeitreihen findet sich in Abbildung 5.18. Wie man erkennen kann, ist es kaum möglich, generelle Trendaussagen zu machen. Bei den meisten Stationen lässt sich allerdings ein leichter Rückgang feststellen (siehe auch Anhang D). In Abbildung 5.18 ist ein Rückgang in Belfast (Irland) von $41\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1993) auf $18,5\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2005) zu sehen. In Helsinki-Vallila (Finnland) kann ebenfalls eine Reduktion der Massenkonzentration von $22,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1991) auf $15,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2003) beobachtet werden. In Karvina (Tschechien) andererseits ist ein Rückgang von 1996 bis 1998 sichtbar, anschließend steigen die Konzentrationen allerdings wieder an, bis im Jahr 2003 der Wert von 1996 kurz überschritten wird. In Drammen (Norwegen) wiederum zeigen die Jahresmittelkonzentrationen weder einen Abwärts- noch einen Aufwärtstrend. Die Werte schwanken zwischen $17,4\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1994) und $23,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2000). Wie man bei BS (z.B. Abbildung 5.9) und auch TSP (z.B. Abbildung 5.14) sehen konnte, sind die deutlichsten Rückgänge der Konzentrationen in den 60er und 70er Jahren zu sehen, während ab 1990 meist ein konstanter Verlauf zu beobachten ist. Da die ältesten zur Verfügung gestellten Daten von PM10 von 1991 stammen, ist es kaum verwunderlich, dass keine so starken Rückgänge zu beobachten sind, wie bei den EC-Massenkonzentrationen (siehe Abbildung 5.4).

5 Ergebnisse und Diskussion

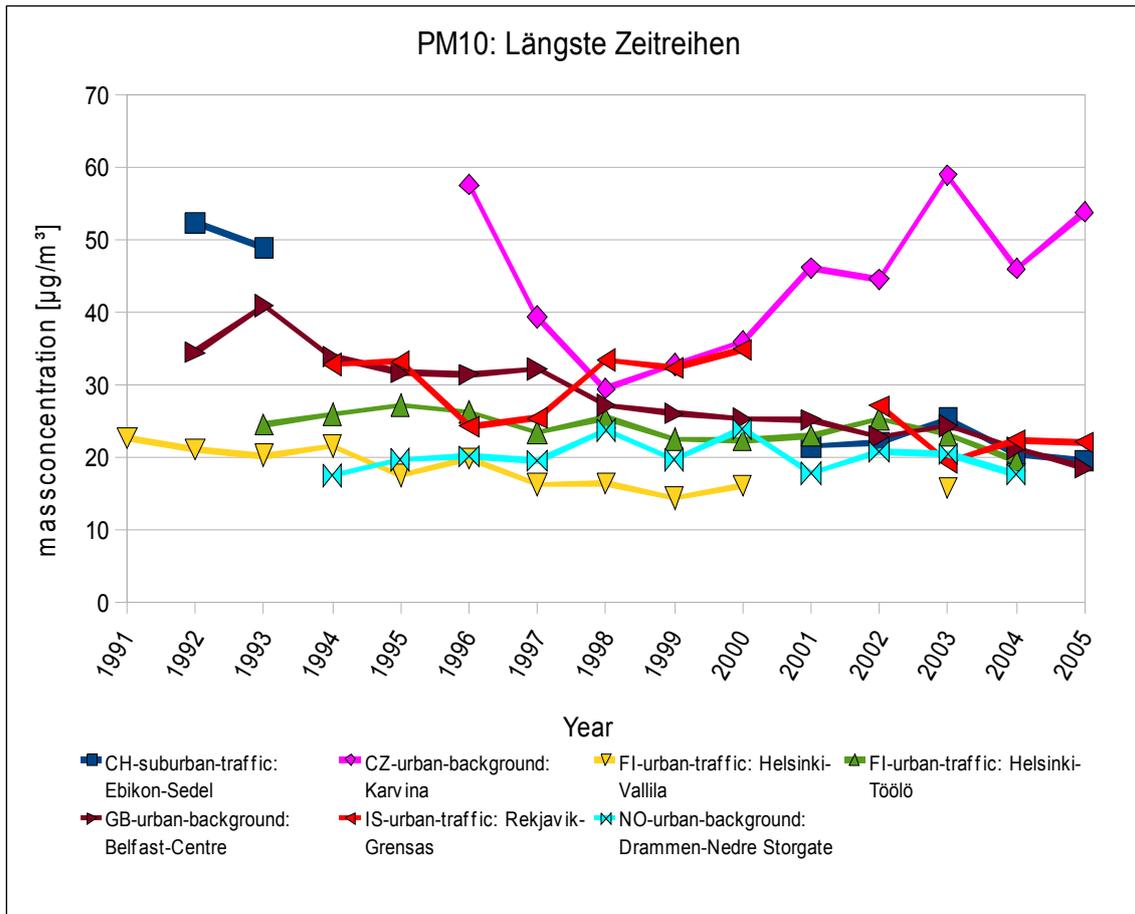


Abbildung 5.18: Längste Zeitreihen der PM10-Konzentrationen. Der leichte Rückgang bei den meisten Stationen kann nicht generalisiert werden.

Die höchsten Belastungen finden sich in Bulgarien, Italien, Mazedonien, Tschechien und Polen. Nicht selten werden in diesen Ländern Jahresmittel über $40\mu\text{g}/\text{m}^3$, dem von der EU vorgeschriebenen Grenzwert für die mittlere Jahreskonzentration (Umweltbundesamt, Internetref.12; Richtlinie 1999/30/EG, Internetref.9), erreicht (siehe Anhang D). In vielen anderen Ländern lassen sich ebenfalls Überschreitungen finden. Diese sind allerdings nur kurzfristig und/oder an vereinzelt Stationen. In Abbildung 5.19 sind sowohl die höchsten, als auch die niedrigsten erfassten Zeitreihen dargestellt. Das höchste Jahresmittel in Ploviv (Bulgarien) beträgt $112,8\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 2000. Diese hohe Massenkonzentration verringert sich allerdings im darauf folgenden Jahr auf $69,5\mu\text{g}/\text{m}^3$. Da jedoch keine Daten vor 2000 vorliegen, ist es nicht möglich zu sagen, ob der hohe Wert ein lokales Maximum darstellt, oder die Belastung vorher ebenso hoch oder höher war. Die in Abbildung 5.19 dargestellten PM10-Konzentrationen aus Italien und Polen zeigen die oberen Grenzen der Massenkonzentrationen der jeweiligen Länder. Typische Massenkonzentration in Polen und Italien liegen zwischen 30 und $60\mu\text{g}/\text{m}^3$.

5 Ergebnisse und Diskussion

Die geringsten Belastungen sind in Schweden und Finnland zu finden. Im schwedischen Vindeln liegen konstante Jahresmittelkonzentrationen von $\sim 7,6\mu\text{g}/\text{m}^3$ vor. In finnischen Virolahti liegen die Massenkonzentrationen bei $\sim 10\mu\text{g}/\text{m}^3$, während bei der vorstädtlichen, industrienahen Station in Imatra (Finnland) nur unwesentlich höhere Konzentrationen zwischen $11,8$ und $14,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ fest zu stellen sind. Um daraus auf die Relevanz der Industrie auf die Höhe der PM10-Werte zu schließen fehlt allerdings eine genügend hohe Anzahl an Stationen im selben Gebiet.

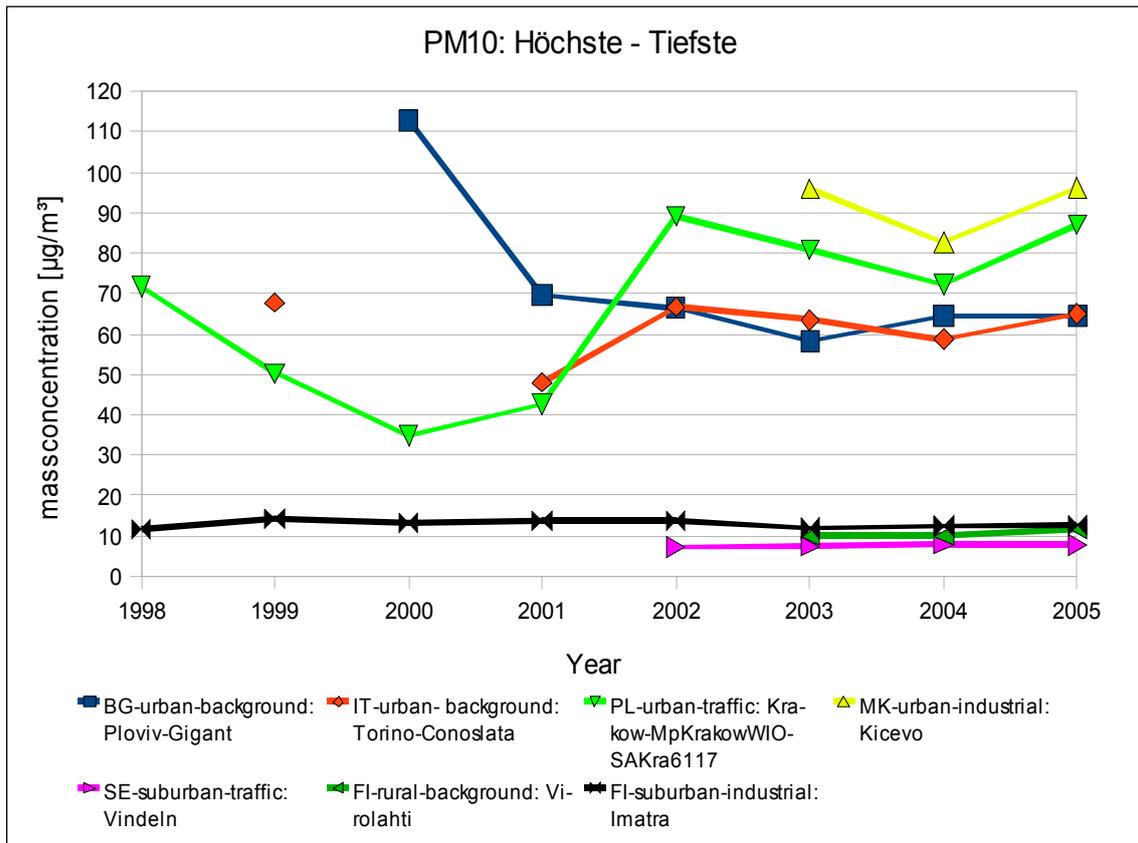


Abbildung 5.19: Höchste und niedrigste PM10-Konzentrationen. Der Höchstwert ist in Ploviv bei $112,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu finden, der niedrigste Wert in Vindeln bei $7,3\mu\text{g}/\text{m}^3$

5 Ergebnisse und Diskussion

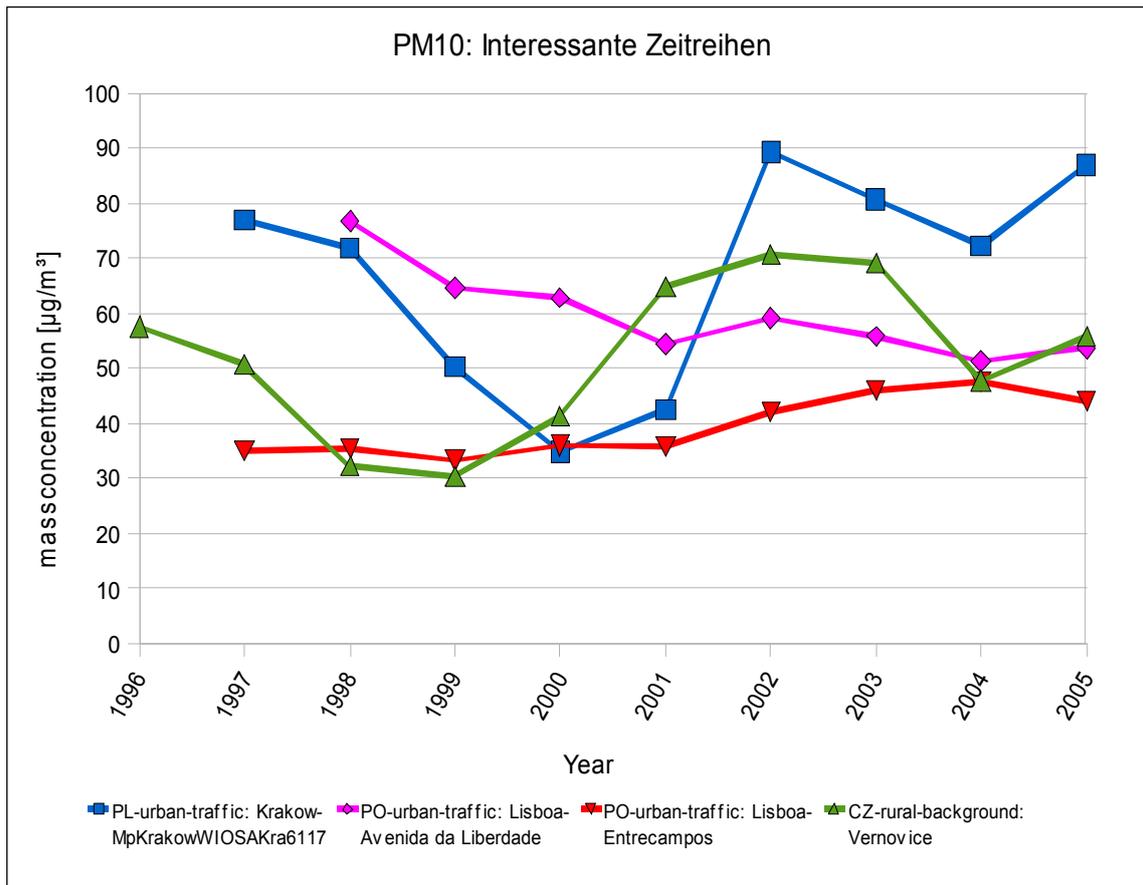


Abbildung 5.20: Interessante Zeitreihen der PM10-Konzentrationen. Die Schwankungen der Zeitreihen aus Polen und Tschechien könnten mit dem wirtschaftlichen Aufschwung der Regionen zusammen hängen. Die beiden Zeitreihen aus Portugal zeigen gegenläufiges Verhalten.

Die in Abbildung 5.20 dargestellten Zeitreihen aus Krakau (Polen) und Vernovice (Tschechien) zeigen beide nach einem Rückgang der Massenkonzentrationen einen starken Anstieg über den Wert des ersten Jahres. In Krakau beträgt das Jahresmittel 1997 $77,0\mu\text{g}/\text{m}^3$, fällt dann bis ins Jahr 2000 auf $34,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ um anschließend den Höchststand der Aufzeichnungen 2002 mit $89,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu erreichen. Bei den meisten anderen polnischen Stationen lässt sich dieser Verlauf nicht nachvollziehen. In Tschechien hingegen findet sich bei einigen anderen Stationen ein ähnlicher Verlauf, wie jener, den Vernovice in Abbildung 5.20 zeigt (siehe Anhang D). Die Tiefstwerte liegen meist im Jahr 1999. Diese Entwicklung hat vermutlich mit der Rezession in Tschechien zu tun, die ab 1997 einsetzte.

Die beiden Zeitreihen von Lissabon (Portugal) in Abbildung 5.20 zeigen interessanterweise einen gegenläufigen Trend. Während bei der Station an der Avenida da Liberdade die Massenkonzentrationen von $76,8\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 1998 auf $53,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 2005 zurückgehen, steigen im gleichen Zeitraum die Jahresmittel an der, in Abbildung 5.20 dargestellten Station am Entrecampos (ein Bahnhof in Lissabon), von $35,5\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $44,0\mu\text{g}/\text{m}^3$. Daran erkennt man, dass

anhand verkehrs- oder industrienaher Stationen nicht der Trend der Konzentrationen in einem Gebiet festgelegt werden kann. Es müsste daher ein noch dichteres Netz an Messstationen (und vor allem Hintergrund-Messstationen) betrieben werden, um feststellen zu können, welche dieser Zeitreihen die Ausnahme und welche die Regel sind.

5.2.3.2 Vergleich: Sommer – Winter – Konzentrationen

Die Vergleiche der Sommer- und Winterkonzentrationen in den PM₁₀-Zeitreihen zeigen dieselben Charakteristika wie jene der TSP-Zeitreihen. Die in Abbildung 5.20 dargestellten Verläufe der Zeitreihen aus Bern (Schweiz), Decin (Tschechien) und Sevilla (Spanien) zeigen deutlich erhöhte Winterkonzentrationen. Bei den beiden urbanen finnischen Stationen in Abbildung 5.20 sind jedoch keine Wintermaxima zu erkennen. Die Massenkonzentrationen im Sommer und im Winter zeigen an den Stationen in Helsinki einen gleichmäßigen Verlauf, der nicht vom Heizverhalten oder anderen saisonalen Ursachen abzuhängen scheint.

Dieser Trend scheint auch für ländliche Gebiete Finnlands zu gelten. Die Zeitreihe aus dem finnischen Ahtäri (siehe Abbildung 5.21) zeigt ebenfalls keine Bevorzugung einer Jahreszeit. Im Gegensatz dazu lassen sich in Wrodaw (Polen) in Abbildung 5.21 deutliche saisonale Unterschiede erkennen. Dabei sind jedoch die Sommerkonzentrationen deutlich höher als die Winterkonzentrationen, die meist $\sim 20\mu\text{g}/\text{m}^3$ unter jenen des Sommers liegen. Ähnlich wie der Verlauf an der polnischen Station stellt sich die Entwicklung an der Station in Vreukelen (Niederlanden) dar. Allerdings sind die Maxima im Sommer nicht so ausgeprägt. Mögliche Erklärungen dafür wären unterschiedliche Großwetterlagen, die im Winter heftige Winde mit sich bringen während im Sommer oft stabiles Hochdruckwetter herrscht, oder verstärkte Baustellentätigkeit im Sommer.

5 Ergebnisse und Diskussion

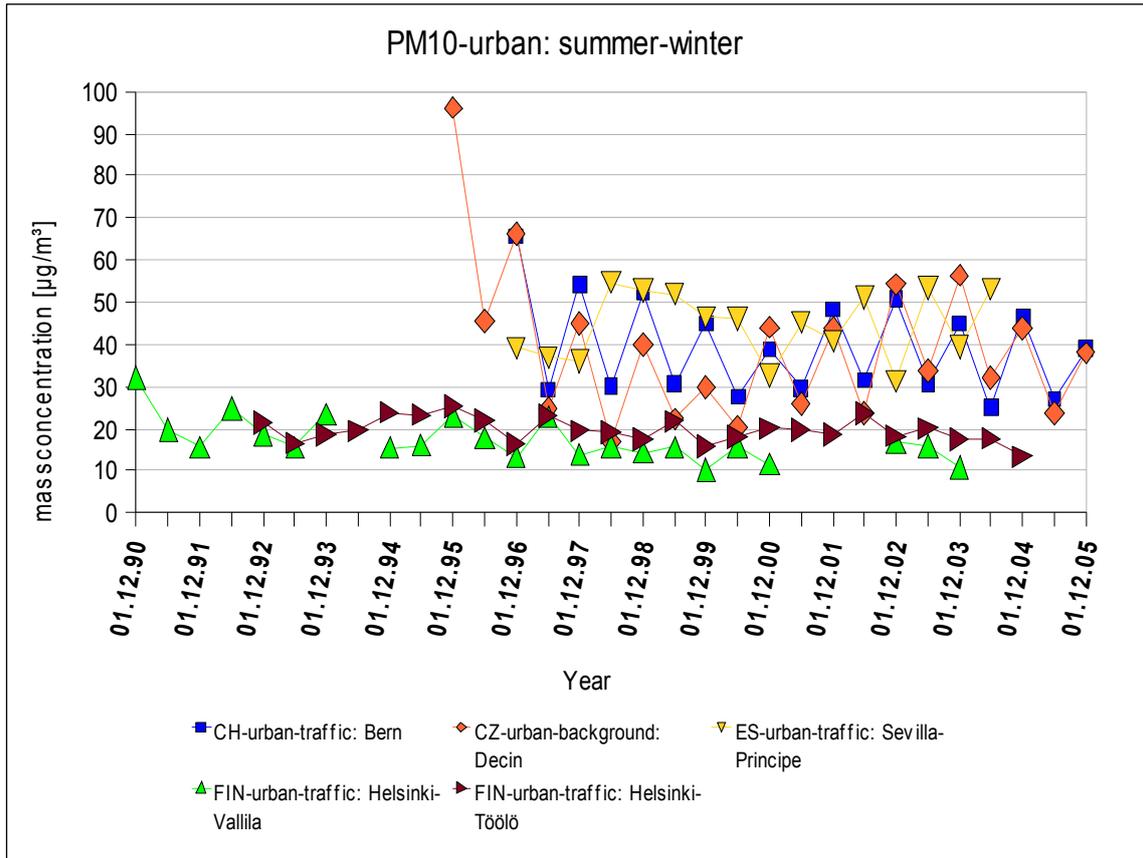


Abbildung 5.20: Sommer- und Winterkonzentrationen in städtischen Gebieten. Die Maxima liegen meist im Winter.

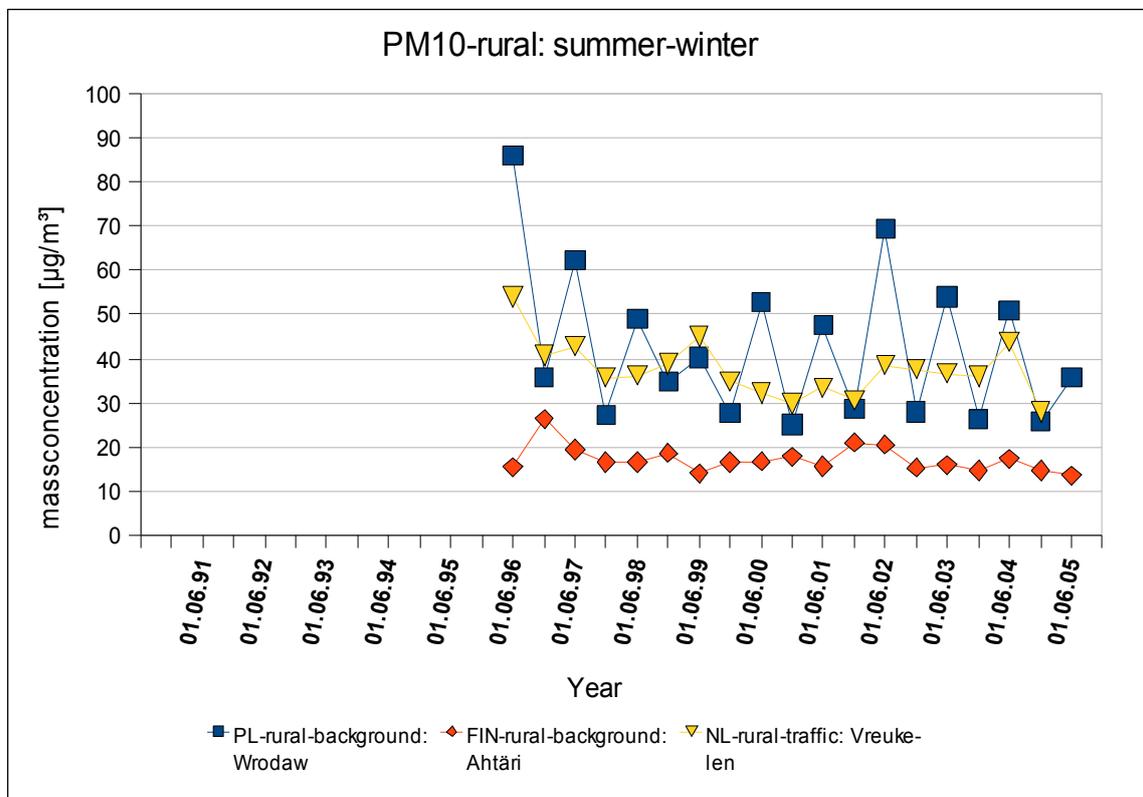


Abbildung 5.21: Sommer- und Winterkonzentrationen in ländlichen Gebieten. Die Maxima liegen im Sommer. In Ahtäri sind keine Unterschiede zwischen Sommer- und Winterkonzentrationen sichtbar

5.2.4 PM2.5

5.2.4.1 Jahresmittel von PM2.5

Noch ungeeigneter für Trendanalysen als PM10 ist PM 2.5, da es nur an sehr wenigen Stationen und meist erst ab 2001 oder 2002 gemessen wurde. Die längsten verwendeten Zeitreihen sind in Abbildung 5.22 dargestellt. Die frühesten Messungen stammen aus Miklatorg, Island (siehe Abbildung 5.22). Die Station wurde von 1995 bis 2001 betrieben und zeigt nach einem leichten Anstieg in den ersten 4 Jahren einen Abwärtstrend. Die höchste Konzentration im Jahresmittel wurde 1998 mit $9,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Nach diesem Maximum verringert sich die Massenkonzentration auf $2,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 2001.

Die längste Zeitreihe stammt von einer verkehrsnahen Station Londons und zeigt Daten von 1998 bis 2005. Zu Beginn der Messungen liegt die Massenkonzentration bei $20,3\mu\text{g}/\text{m}^3$, am Ende bei $19,2\mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Höchstwert an dieser Station (in Marylebone) im Jahr 2000 beträgt $25,7\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Zeitreihe die im ländlichen Illmitz (Österreich) aufgenommen wurde zeigt einen Anstieg von 2001 bis 2003 um fast $5\mu\text{g}/\text{m}^3$ von $20,3\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $25,2\mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Jahr 2004 fällt die Massenkonzentration auf $18,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ um anschließend wieder zu steigen. Die anderen Zeitreihen in Abbildung 5.22 zeigen gleichbleibende Massenkonzentrationen in unterschiedlichen Höhen und verschiedenen Ländern.

Die höchsten Massenkonzentrationen sind in Tschechien und Polen zu finden (siehe Abbildung 5.23). In Krakau (Polen) wurde der höchste Wert 2002 mit $49,0\mu\text{g}/\text{m}^3$ festgestellt. Dieser Spitzenwert hat sich im darauf folgenden Jahr auf $38,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ verringert. Es wurden allerdings von ganz Polen nur 3 Stationen erfasst (siehe Anhang E), und diese wurden jeweils nur 2 Jahre lang betrieben. Dadurch ist es nicht möglich, über die Entwicklung der PM2.5-Konzentrationen Rückschlüsse zu ziehen.

Die niedrigsten Konzentrationen sind, wenig überraschend, in Finnland, Island und (in Abbildung 5.23 nicht dargestellt) Schweden zu finden. Der niedrigste Wert tritt in Miklatorg (Island) 2001 auf und beträgt $2,7\mu\text{g}/\text{m}^3$. In Utö (Finnland) liegen die Konzentrationen unwesentlich höher bei $6,7\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2004) und $6,2\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2005).

5 Ergebnisse und Diskussion

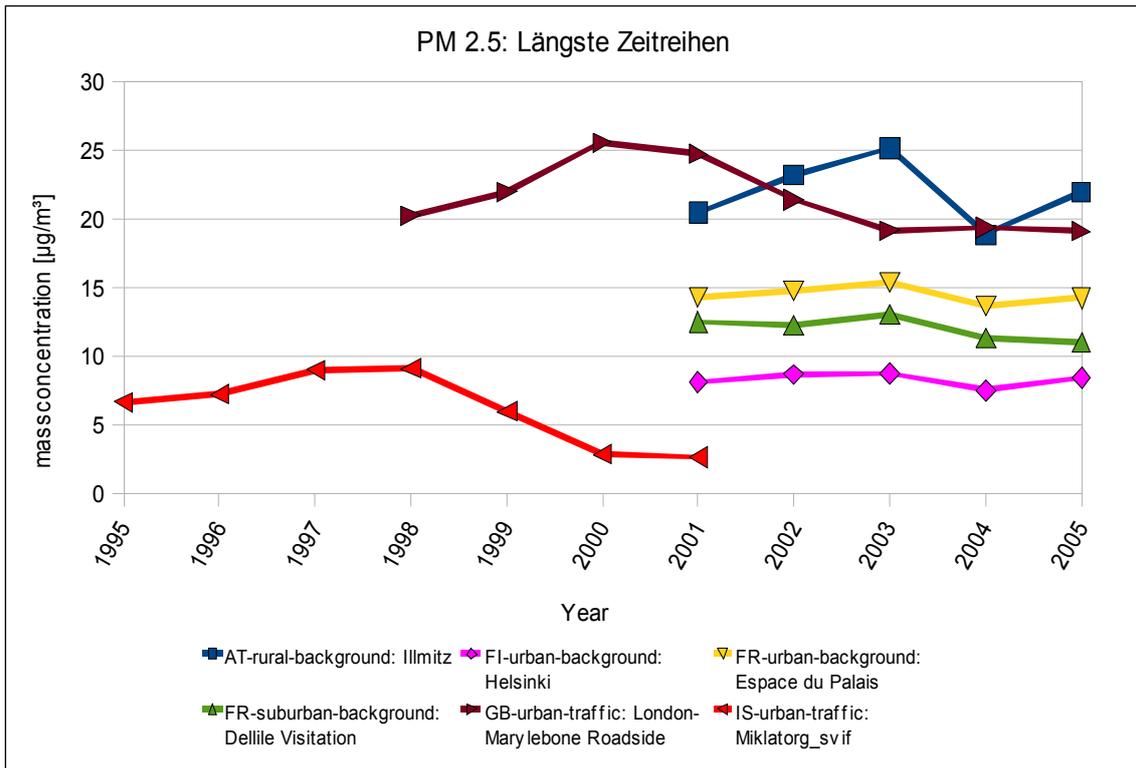


Abbildung 5.22: Längste Zeitreihen von PM_{2.5}-Konzentrationen: Die Reihen aus Miklatorg zeigt einen leichten Abwärtstrend, die restlichen Zeitreihen zeigen gleichbleibende oder schwankende Massenkonzentrationen.

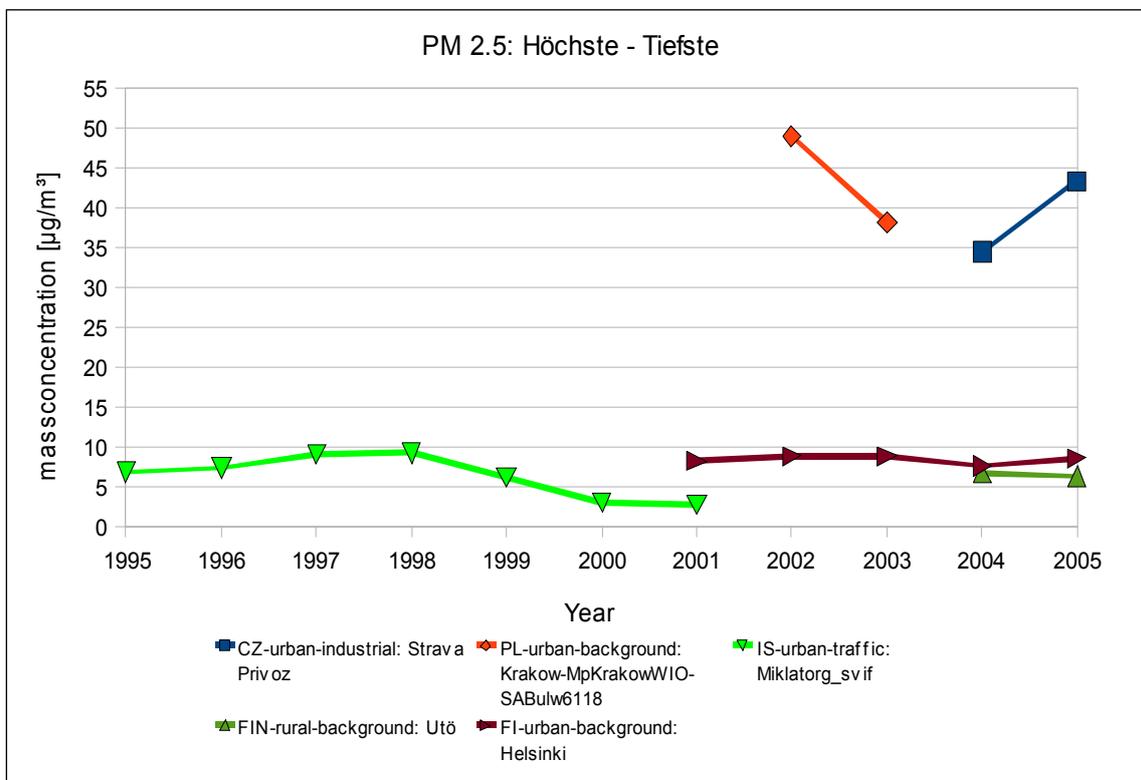


Abbildung 5.23: Zeitreihen der höchsten und tiefsten PM_{2.5}-Konzentrationen. Höchstwert in Krakau mit 49,0µg/m³, Tiefstwert in Miklatorg, mit 2,7µg/m³ erreicht.

5.2.4.2 Vergleich: Sommer-Winter-Konzentrationen von PM2.5

Wie auch schon bei den Messgrößen zuvor, zeigen die Sommer- und Winterkonzentrationen stationsabhängig sehr unterschiedliche Charakteristika (siehe Abbildung 5.24). An der verkehrsnahen Station in Miklatorg (Island) kann eine deutliche Unterscheidung zwischen den Maxima im Winter und den Minima im Sommer getroffen werden. Die Konzentrationen in den 3 Wintermonaten von 1995 bis 1998 liegen zwischen $8,9\mu\text{g}/\text{m}^3$ und $11,4\mu\text{g}/\text{m}^3$, während jene im Sommer im selben Zeitraum zwischen $4,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ und $5,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ pendeln. Nach dem Sommer 1999 verringern sich die Winterkonzentrationen auf die Höhe der Sommerkonzentrationen und die Sommerkonzentrationen auf $1,6$ bzw. $2,4\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Interessanterweise zeigen die Daten aus Vavihill (Schweden) und Helsinki (Finnland) ähnliche Verläufe in Abbildung 5.24. Da allerdings ca. 500km zwischen diesen beiden Stationen liegen, ist dies vermutlich eher eine zufällige Übereinstimmung. Die beiden, einander wesentlich näher liegenden Stationen in London zeigen dagegen keine ähnlichen Verläufe. Es ist allerdings weder bei der Hintergrund-Station in Bloomsbury, noch bei der verkehrsnahen Station in Marylebone eine saisonale Differenzierung, wie in Miklatorg, zu erkennen. Der Höchstwert an der Station in Marylebone liegt im Sommer 2000 bei $26,1\mu\text{g}/\text{m}^3$, während der tiefste Wert dieser Zeitreihe im Winter 2003/2004 bei $16,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegt.

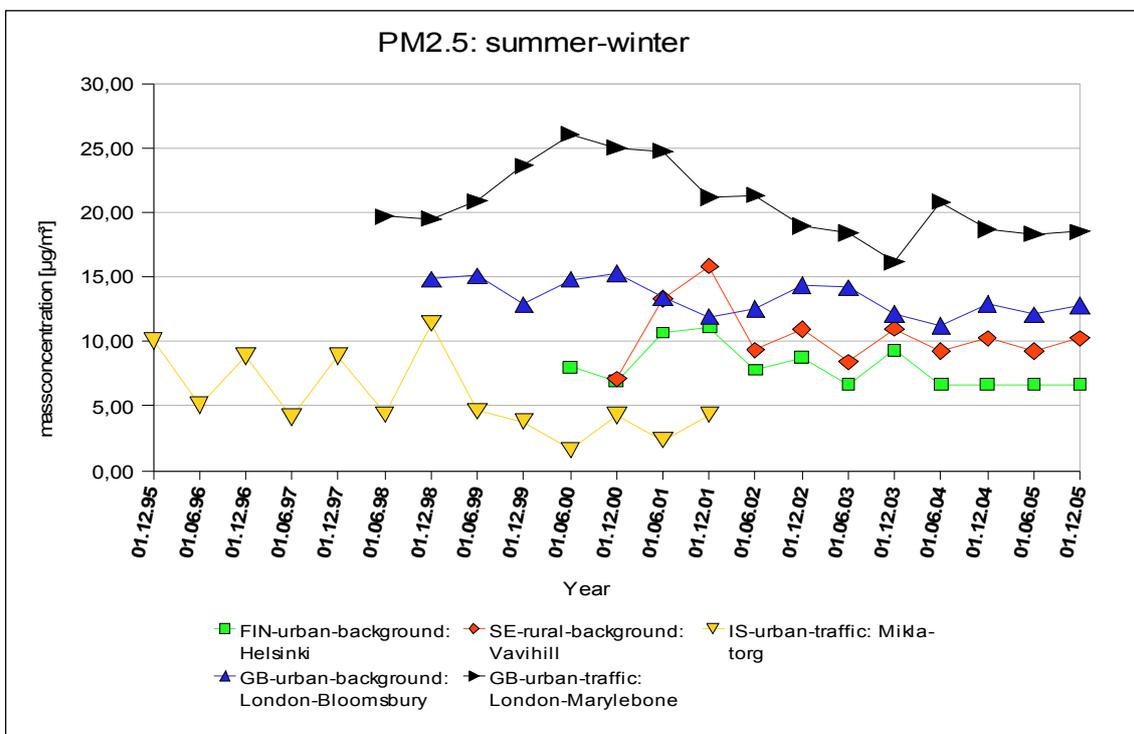


Abbildung 5.24: Vergleich der Sommer- und Winterkonzentrationen. Wintermaxima und Sommerminima sind sehr stark in Miklatorg ausgeprägt, etwas weniger deutlich in Helsinki und Vavihill. In den Stationen Londons sind keine erhöhten Winter- oder Sommerkonzentrationen zu erkennen.

5.3 Mögliche Vergleiche der Massenkonzentrationen von EC mit PM10 und TSP mit PM10 und PM2.5

5.3.1 EC vs. PM10

Neben der Frage nach dem Verlauf der Zeitreihen, ist es auch interessant, die verschiedenen Messgrößen miteinander zu vergleichen. Im Folgenden wird die, in früheren Jahren häufig diskutierte Frage betrachtet, ob Rußmessmethoden als Stellvertreter für gravimetrische Messmethoden, wie PM10, herangezogen werden können (Muir, 1994). Für diesen Vergleich war es notwendig, Stationen zu finden, an denen beide Messgrößen gleichzeitig erfasst wurden. In 8 der 24 Länder konnten Überschneidungen der Messzeiten gefunden werden. In diesen 8 Ländern wurden wiederum insgesamt 10 Stationen gefunden, an denen während derselben Zeiträume BS und PM10 gemessen wurden. In Abbildung 5.25 sind die 3-jährigen Zeitreihen an einer verkehrsnahen Station in Athen dargestellt. EC und PM10 zeigen ähnliche Verläufe. Allerdings variiert das PM10/EC Verhältnis zwischen 9,4 und 62,0. Es scheint dabei keinen Zusammenhang zwischen der Jahreszeit und diesem Verhältnis zu geben.

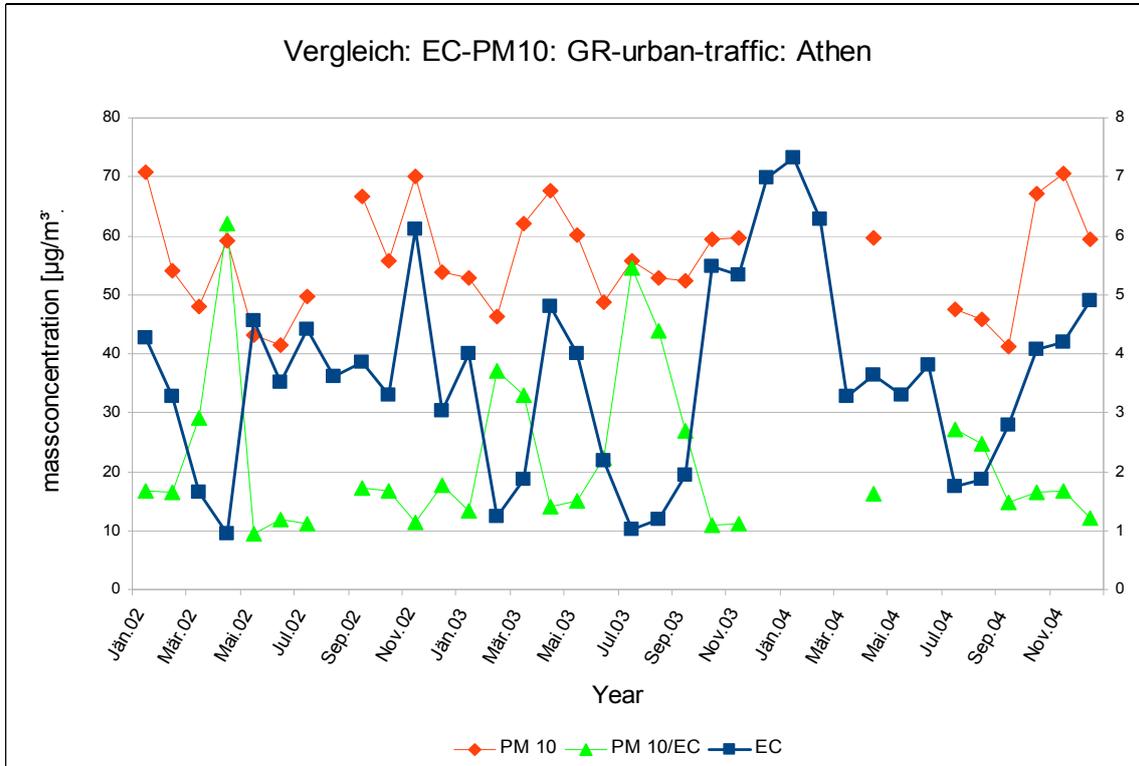


Abbildung 5.25: Vergleich der Zeitreihen der EC- und PM10-Konzentrationen in Athen. PM10 und EC zeigen großteils ähnlichen Verlauf. Das PM10/EC-Verhältnis variiert jedoch zwischen 9,4 und 62. PM10/EC-Verhältnis variiert sehr stark.

5 Ergebnisse und Diskussion

Ein noch höheres PM10/EC-Verhältnis zeigt die Station im schwedischen Vavihill (Abbildung 5.26). Bei der im ländlichen Hintergrund liegenden Station können Werte zwischen 31,1 und 85,3 beobachtet werden, auch wenn sich die PM10- und EC-Zeitreihen ähneln. Das Verhältnis der beiden Messgrößen liefert meist im Sommer höhere Werte als im Winter. Die PM10/EC Verhältnis-Werte liegen im Winter meist zwischen 30 und 40, im Sommer hingegen zwischen 60 und 80. Demnach ist das Aerosol, unabhängig der Massenkonzentration, im Sommer weniger „schwarz“ als im Winter und das Aerosol in Athen „schwärzer“ als jenes in Vavihill. Wie auch schon unter anderem Muir (1994) feststellte hat, werden bei BS- (oder EC-) und PM10- Messungen unterschiedliche Eigenschaften des Aerosols beobachtet und daher verwundert es kaum, dass sich kaum Korrelationen zwischen den beiden ziehen lassen.

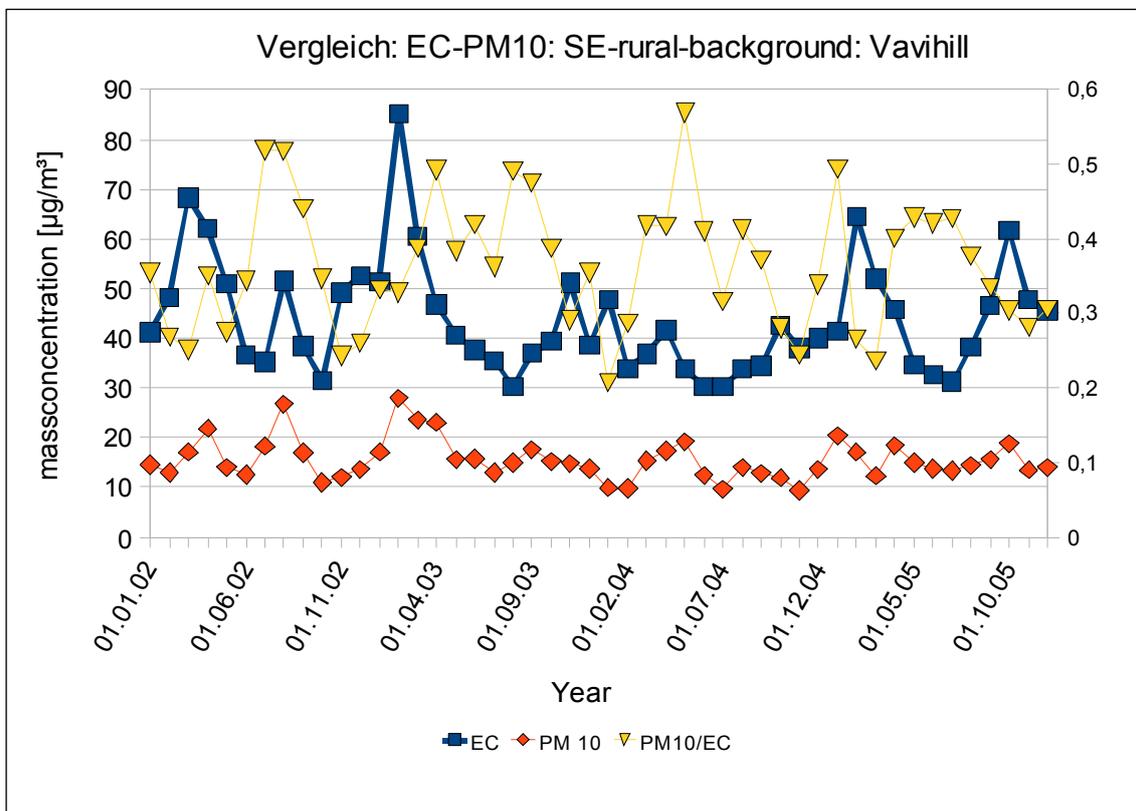


Abbildung 5.26: Vergleich der EC- und PM10-Konzentrationen aus Vavihill. Die Verläufe sind teilweise ähnlich, das PM10/EC-Verhältnis variiert jedoch sehr stark, abhängig von der Jahreszeit.

5.3.2 TSP vs. PM10 vs. PM2.5

Neben dem Vergleich der EC- mit den PM10-Zeitreihen, wurden auch die gravimetrischen Messgrößen untereinander verglichen. Ebenso wie bei BS und PM10 konnten auch bei TSP kaum Stationen gefunden werden, an denen sowohl TSP, als auch eine der anderen beiden Größen gemessen wurde. Ab 2002 wurden in vielen Stationen sowohl PM10- als auch PM2.5-Daten erhoben, wodurch viele Stationen für Vergleiche dieser beiden Messgrößen zur Verfügung stehen. Im finnischen Vallila wurden 2003 sowohl TSP, als auch PM10 und PM2.5 gemessen (siehe Abbildung 5.29).

Abbildung 5.27 zeigt die Zeitreihen der TSP- und PM10- Konzentrationen in Töölö (Finnland). Ähnlich wie bei EC-PM10 gleichen sich die Verläufe der Zeitreihen. Das Verhältnis von TSP zu PM10 variiert jedoch sehr stark zwischen 1,3 und 4,9 (auf der Sekundärordinate aufgetragen). Die Maxima und Minima des TSP-PM10-Verhältnisses sind zufällig über das Jahr verteilt. Eine mögliche Erklärung für diese starken Schwankungen des Verhältnisses könnte die Nähe zum Meer sein, da die Salzpartikel windabhängig zu der Messstation gelangen und große Partikel bei PM10-Messungen nicht auf die Filter gelangen.

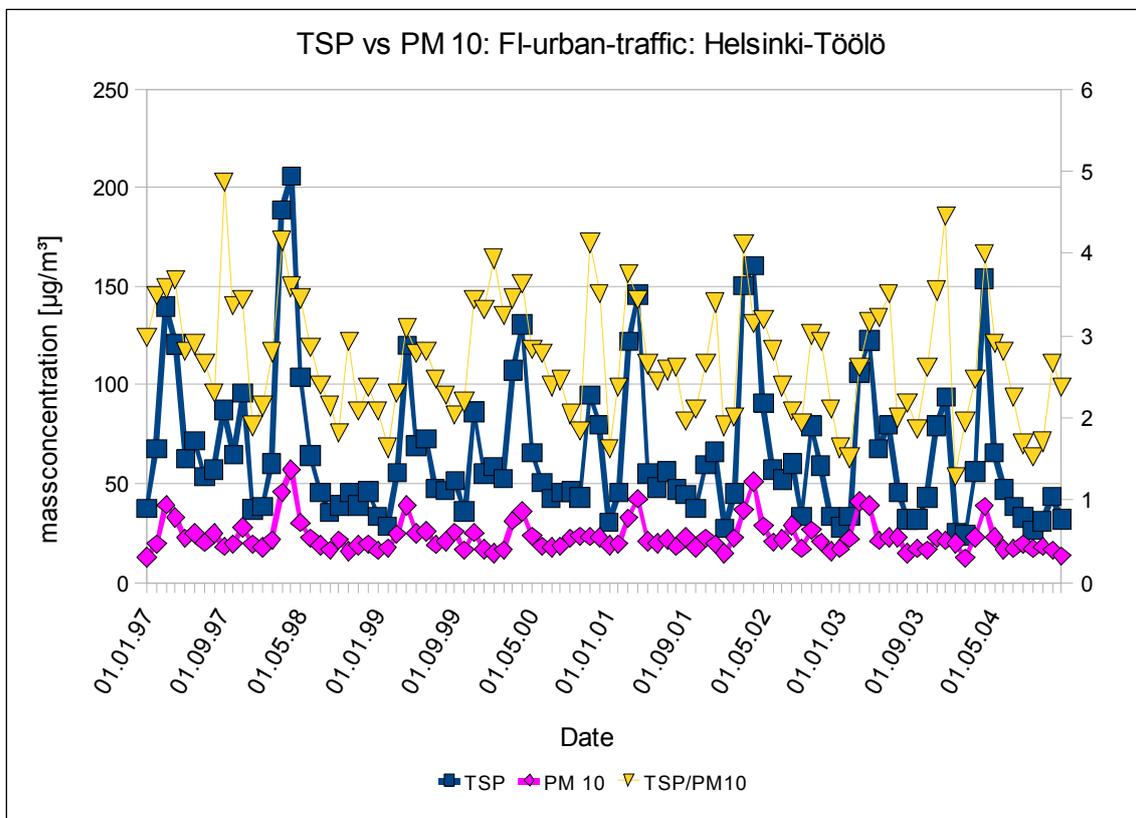


Abbildung 5.27: Vergleich der Zeitreihen der TSP- und PM10-Konzentrationen. Verläufe der Zeitreihen ähneln sich, das Verhältnis der beiden variiert jedoch zwischen 1,3 und 4,9.

5 Ergebnisse und Diskussion

Noch stärkere Variationen zeigen sich beim Verhältnis der PM10-Zeitreihe mit jener der PM2.5-Messungen in Miklatorg (Reykjavik, Island). In Abbildung 5.28 erkennt man sehr gut die starken Schwankungen der Massenkonzentrationen. Das PM10/PM2.5 – Verhältnis (auf der sekundären Ordinate aufgetragen) liegt bei $3,7 \pm 1,3$, die Extremwerte bei 1,6 und 10,4. Es zeigt sich, dass vor allem im Frühjahr höhere PM10/PM2.5 - Verhältnisse zu beobachten sind. Vermutlich kann dies teilweise auf die Wetterlage zu dieser Zeit zurückgeführt werden, die anscheinend mehr maritimes Aerosol zu dieser Zeit zur Messstation bringt. Dieses kann in Küstengebieten bis zu $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10 (auf den Kanarischen Inseln) und $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PM2.5 (im südlichen Schweden) beitragen (Querol et al, 2004).

So starke Schwankungen zwischen PM10 und PM2.5 sind allerdings nicht überall zu finden. In Aspvreten (Schweden) liegt das PM10/PM2.5-Verhältnis meist zwischen 1 und 1,5 und auch in Wien (1,1-1,4) und in Vallila (1,5-2, siehe Abbildung 5.29) sind konstante und niedrige Verhältnisse zu finden. An diesen Stationen sind auch kaum saisonale Schwankungen zu beobachten. Das PM10/PM2.5-Verhältnis scheint daher sehr lagespezifisch und vor allem wetterabhängig zu sein.

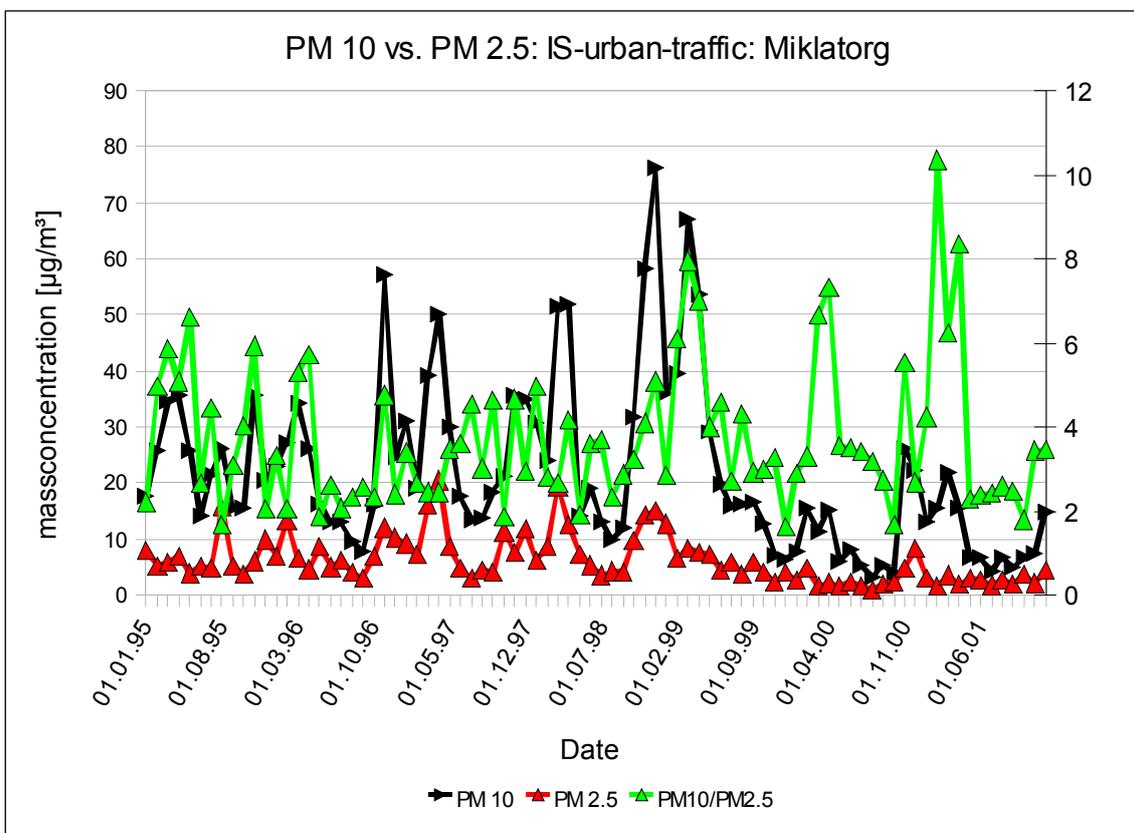


Abbildung 5.28: Vergleich der Zeitreihen der PM10- und PM2.5-Konzentrationen. Die Verläufe der Zeitreihen sind sehr unterschiedlich, das Verhältnis der beiden variiert meist zwischen 2,4 und 5.

5 Ergebnisse und Diskussion

In Vallila wurden 2003 die Messungen für TSP, PM10 und PM 2.5 durchgeführt (Abbildung 5.29). Es ist daher möglich, alle drei direkt miteinander zu vergleichen. Man erkennt deutlich, dass die Zeitreihen von PM10 und PM2.5 eher übereinstimmen, als jene mit den Zeitreihen von TSP. Während TSP ein Maximum im April aufweist, liegt es bei PM10 im März und bei PM2.5 (kaum ausgeprägt) im Februar. Bei TSP kann im März, im Gegensatz zu den anderen beiden Messgrößen, ein sehr starker Anstieg auf den doppelten Wert des Februars festgestellt werden. Die PM_{Coarse} -Fraktion, also die Massenkonzentration jener Partikel, die zwischen $10\mu m$ und $2.5\mu m$ groß sind ($PM_{Coarse}=PM10-PM2.5$), zeigt vor allem von März bis Juli sehr hohe Werte. Dem Maximum im März ($11,9\mu g/m^3$) steht ein Minimum im Jänner ($0,5\mu g/m^3$) gegenüber. Ab September zeigt die TSP-Zeitreihe, als einzige, einen stetigen Aufwärtstrend. Dies zeigt sich auch in den TSP/PM10- und PM10/PM2.5-Verhältnissen. Während das Verhältnis von PM10 zu PM2.5 meist zwischen 1,5 und 2 pendelt, unterliegt das TSP/PM10-Verhältnis starken Schwankungen zwischen 1,3 und 3,1. Diese unterschiedlichen Verläufe verdeutlichen sehr stark die unterschiedlichen Fraktionen des atmosphärischen Aerosols. Da TSP alle drei Moden des atmosphärischen Aerosols umfasst (siehe Kapitel 2.3.3.3) könnte in der Massenkonzentration der Einfluss des Meeres (Salzpartikel) enthalten sein. Der teilweise hohe PM2.5 Anteil in den PM10-Konzentrationen (im Jänner 2003 wurden $13,5\mu g/m^3$ PM10 und $13,0\mu g/m^3$ PM2.5 gemessen) ist vermutlich auf die Verkehrsnähe der Station zurück zu führen, da bei anthropogenen Verbrennungsprozessen viele kleine Partikel ($<1\mu m$) erzeugt werden. Diese wachsen mit zunehmender Entfernung zum Entstehungsort (bei Autos der Motor) durch Kondensation und Koagulation an (Wehner et al., 2002).

5 Ergebnisse und Diskussion

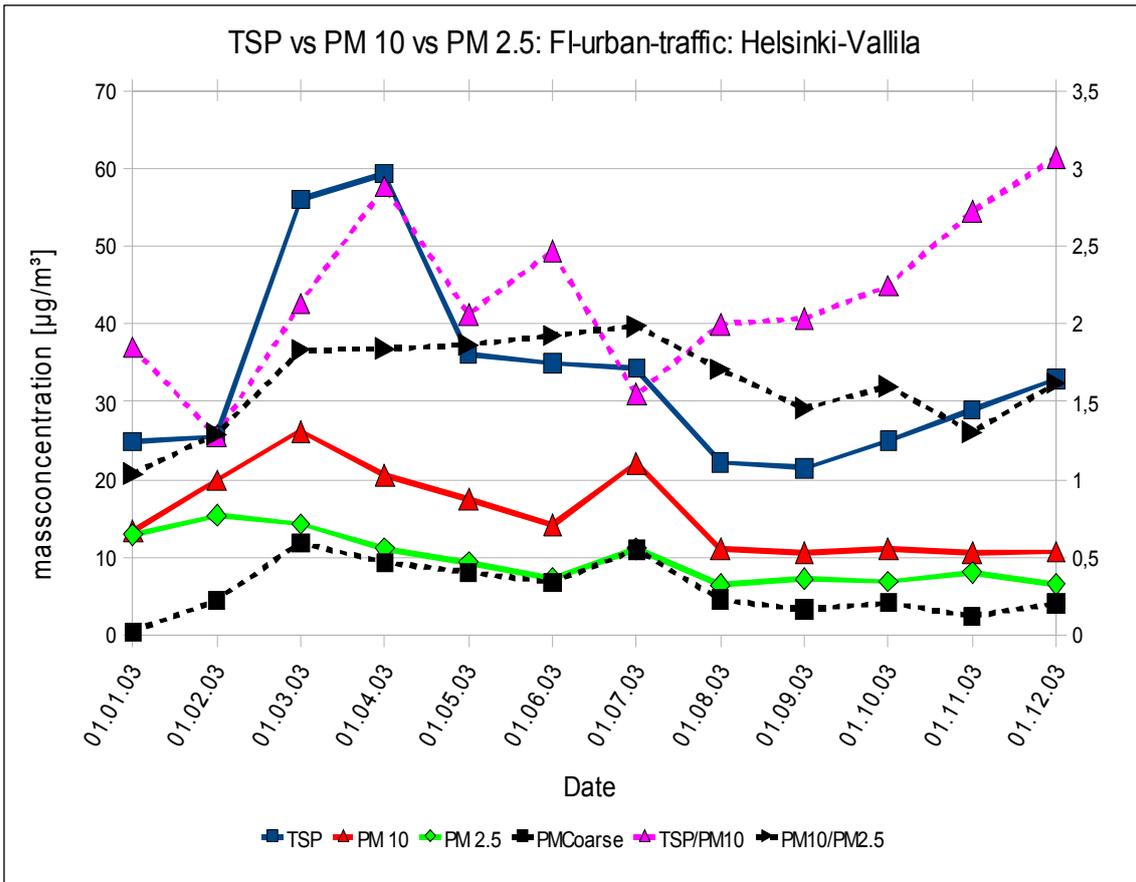


Abbildung 5.29: Vergleich der Zeitreihen von TSP-, PM10- und PM2.5-Konzentrationen in Vallila (TSP/PM10 und PM10/PM2.5 auf der rechten Achse dargestellt). Die Verläufe der PM10- und PM2.5- Zeitreihen sind einander ähnlicher als jene der TSP-Zeitreihe mit den anderen beiden. TSP/PM10 variiert sehr stark, PM10/PM2.5 liegt, vor allem im Sommer, konstant zwischen 1,5 und 2. PM_{Coarse} variiert stark und zeigt von März bis Juli Werte bei $9\mu\text{g}/\text{m}^3$, die restlichen Monate bei $4\mu\text{g}/\text{m}^3$.

6 Zusammenfassung

Die EC-Massenkonzentrationen zeigen einen sehr deutlichen Rückgang in vielen Gebieten Europas im Zeitraum von 1961 bis 2005. Die stärkste Reduktion sieht man bei britischen und slowenischen Messstationen, da in Großbritannien und Slowenien auch die längsten Zeitreihen zu finden sind. An Stationen in Mazedonien konnten auch steigende EC-Konzentrationen gefunden werden. Eine mögliche Erklärung dafür wäre der wirtschaftliche Aufschwung, der seit Beginn der Messungen 1997 statt gefunden hat. Urbane Rußkonzentrationen liegen, zumindest bei geographisch nahen Stationen, meist höher als ländliche Rußkonzentrationen.

Gravimetrische Messungen zeigen nicht diesen starken, kontinuierlichen Rückgang der Massenkonzentrationen wie die Rußmessungen. Einerseits liegt das, speziell bei PM10 und PM2.5, an den nicht lange zurückreichenden Zeiträumen der Messungen. Andererseits vermutlich daran, dass die optische BS-Messmethode eine andere Fraktion des atmosphärischen Aerosols misst als die gravimetrischen Messmethoden, was durch die unterschiedlichen Verläufe der Jahresmittelkonzentrationen (vgl. Abbildung 5.4 und 5.14) verdeutlicht wird. Der Rückgang der Massenkonzentrationen im Laufe der Jahrzehnte ist vermutlich unter anderem auf sich ändernde Aerosolquellen zurück zu führen. Vor allem der Umstieg von Kohle auf andere Energieträger könnte zu einer gravierenden Änderung der Aerosolcharakteristik geführt haben. Aber auch die Stärke der Quellen hat sich wahrscheinlich durch z.B. verbesserte Filteranlagen geändert und auch die Weiterentwicklung der Verbrennungstechniken könnte das atmosphärische Aerosol in seiner Zusammensetzung beeinflusst haben.

Es hat sich gezeigt, dass für Trendanalysen vor allem lange und durchgängige Zeitreihen notwendig sind und es gefährlich ist, aus Zeitreihen weniger Jahre Rückschlüsse auf den allgemeinen Trend zu ziehen, da unter Umständen ein lokales Maximum (oder Minimum) des Langzeittrends fehlinterpretiert wird (siehe Abbildung 5.6).

Der Einfluss des Wetters auf die Massenkonzentrationen müsste durch die Bildung der Jahresmittel zumindest reduziert worden sein und wurde daher bei der Analyse der Jahresmittelkonzentrationen nicht mit einbezogen. Bei Betrachtung der Sommer- und Winterkonzentrationen sollte der Einfluss des Wetters jedoch beachtet werden, da sich stationsspezifisch sehr unterschiedliche Verläufe zeigen. Während an einigen Stationen im Winter höhere Konzentrationen als im Sommer gemessen wurden (dies tritt vor allem bei den EC-Konzentrationen auf), dreht sich dieser Verlauf bei anderen Stationen wiederum um und manche Stationen zeigen wiederum fast keine saisonalen Unterschiede. Dies könnte ein

6 Zusammenfassung

Hinweis auf den Einfluss des Wetters und der damit verbundenen Mischungshöhe auf die Aerosolkonzentration sein.

Bei Vergleichen verschiedener Messgrößen an denselben Messstationen hat sich gezeigt, dass die Rußmessungen und die gravimetrischen Messmethoden meist Ausschläge in dieselbe Richtung aufweisen, die Höhe der Ausschläge jedoch sehr unterschiedlich ist. PM10 und PM2.5 zeigen dabei meist einen konstanten, teilweise parallelen Verlauf (siehe Abbildung 5.29). Bei TSP und PM10 sind stärkere Unterschiede zu sehen. Das Verhältnis von PM10 zu EC variiert sehr stark zwischen 9,4 und 62 (Athen, Abbildung 5.25). Die PM10/EC- Verhältnisse an den wenigen Stationen deuten darauf hin, dass das atmosphärische Aerosol im Sommer einen niedrigeren Rußanteil aufweist als im Winter und in Städten ein höherer Rußanteil zu finden ist als in ländlichen Gebieten, was unter Umständen durch die Bevölkerungsdichte und den damit einhergehenden Mehrbelastungen durch Heizung und Verkehr in den Städten erklärt werden kann.

Ein großes Problem bei der Behandlung historischer Daten ist die großteils fehlende Kenntnis der angewandten Messmethoden. Alle dargestellten EC-Werte können nur als Richtwerte verwendet werden, da sowohl die BS-Messmethode, auch wenn von der OECD vorgegeben und vermutlich meist eingehalten, nicht als einheitlich über ganz Europa angenommen werden kann und die Umrechnung von BS auf EC von der Aerosolzusammensetzung abhängt und daher für jede Station eine spezifische Umrechnung erstellt werden müsste.

7 Anhang

In Anhang A ist eine zusammenfassende Liste all jener Personen dargestellt, die Datensätze zur Verfügung gestellt oder Hinweise auf Datensätze geschickt haben.

In den darauf folgenden Anhängen B-E sind alle bearbeiteten Zeitreihen der EC, TSP, PM10 und PM2.5 Zeitreihen dargestellt. Sie wurden alphabetisch nach Ländern und innerhalb der Länder nach urbanen (urban), suburbanen (suburban) und ländlichen (rural) Gebieten und im weiteren nach verkehrsnahen (traffic), industriellen (industrial) und im Hintergrund liegenden (background) Stationen unterteilt. Anhang B wurde außerdem in 2 Teile aufgeteilt. Anhang B-1 zeigt alle EC-Daten, die über die Airbase-Datenbank der EEA und von Einzelpersonen zugeschickt wurden sind. In Anhang B-2 sind dagegen alle Zeitreihen dargestellt, die von der Datenbank des UK Air Quality Archives bezogen wurden. Zum Zwecke der Übersichtlichkeit wurden alle Diagramme (Anhänge B bis E) nach dem Literaturverzeichnis, den Internetreferenzen und dem Lebenslauf angehängt.

Anhang A

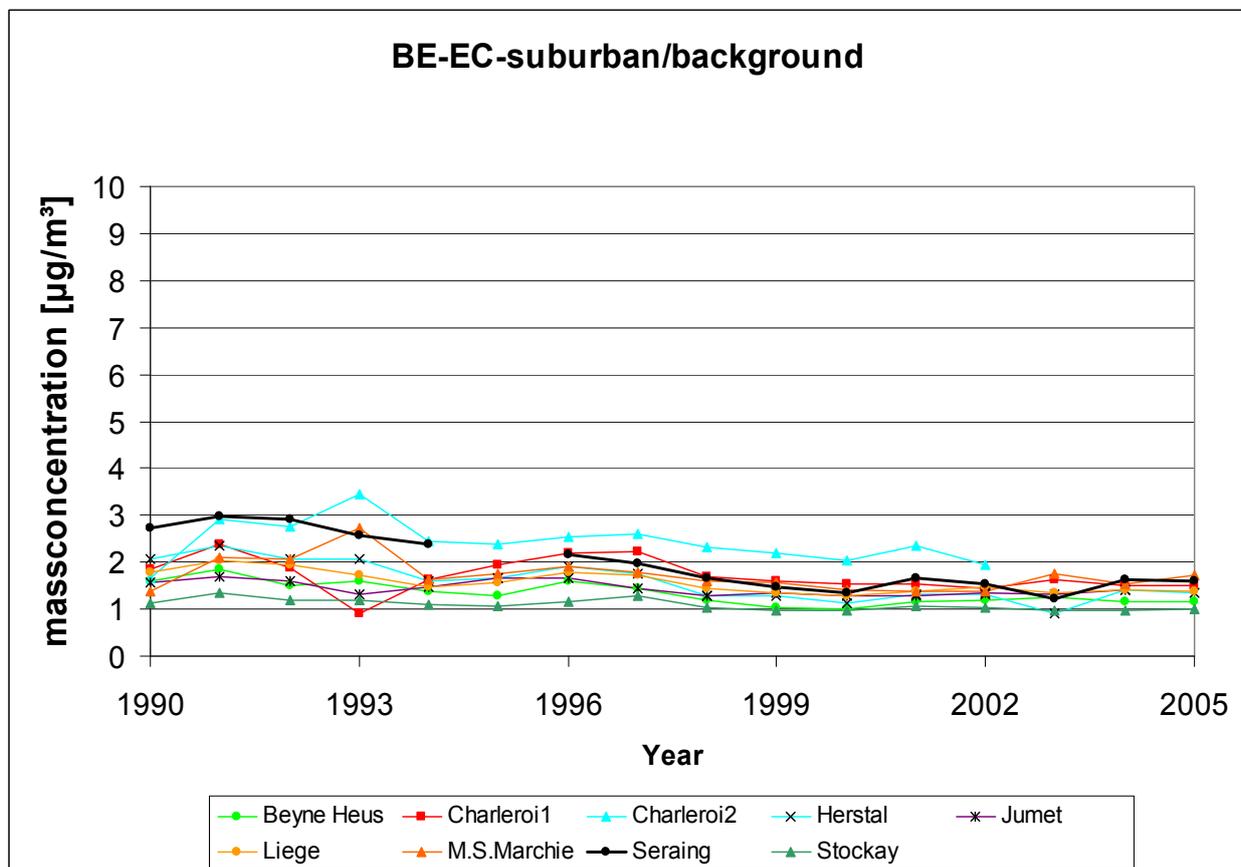
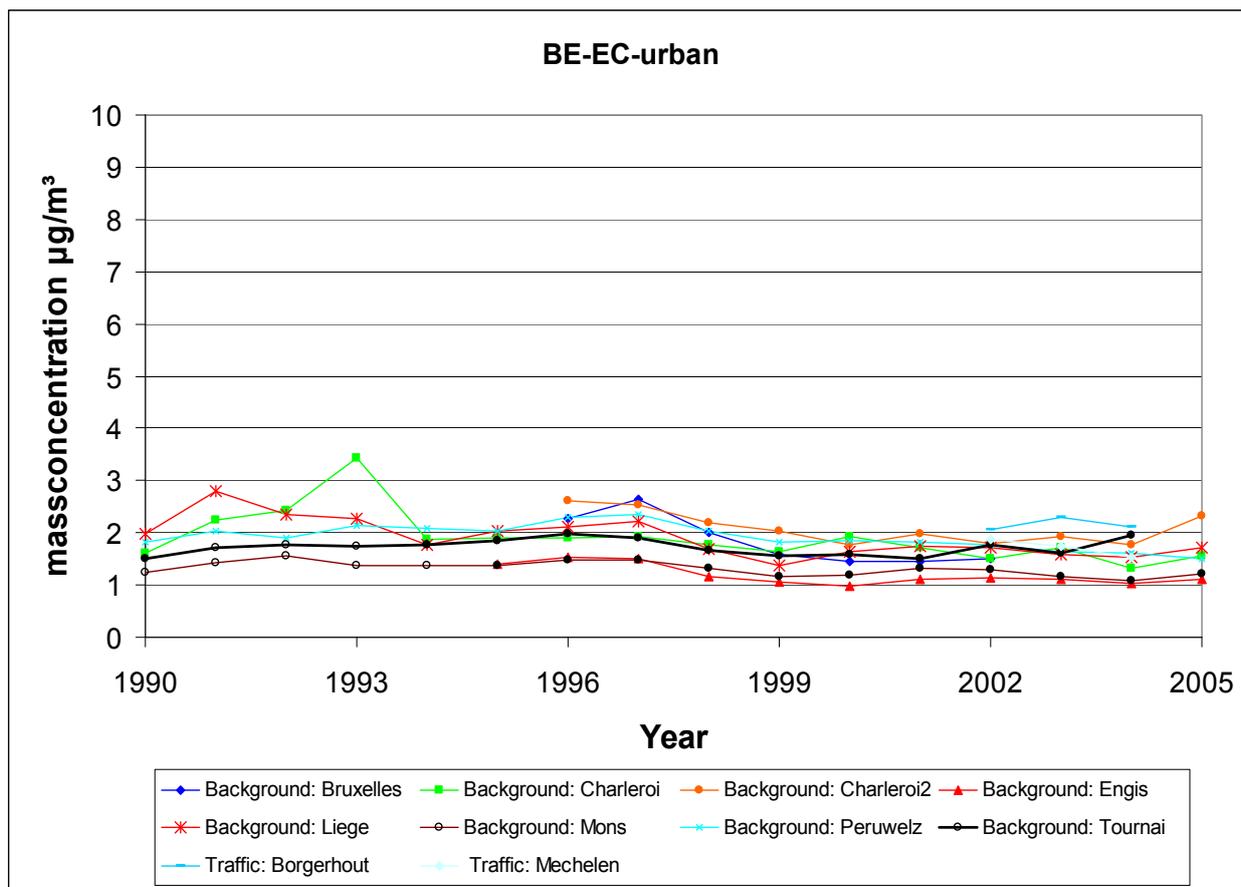
Direkt Daten geschickt:

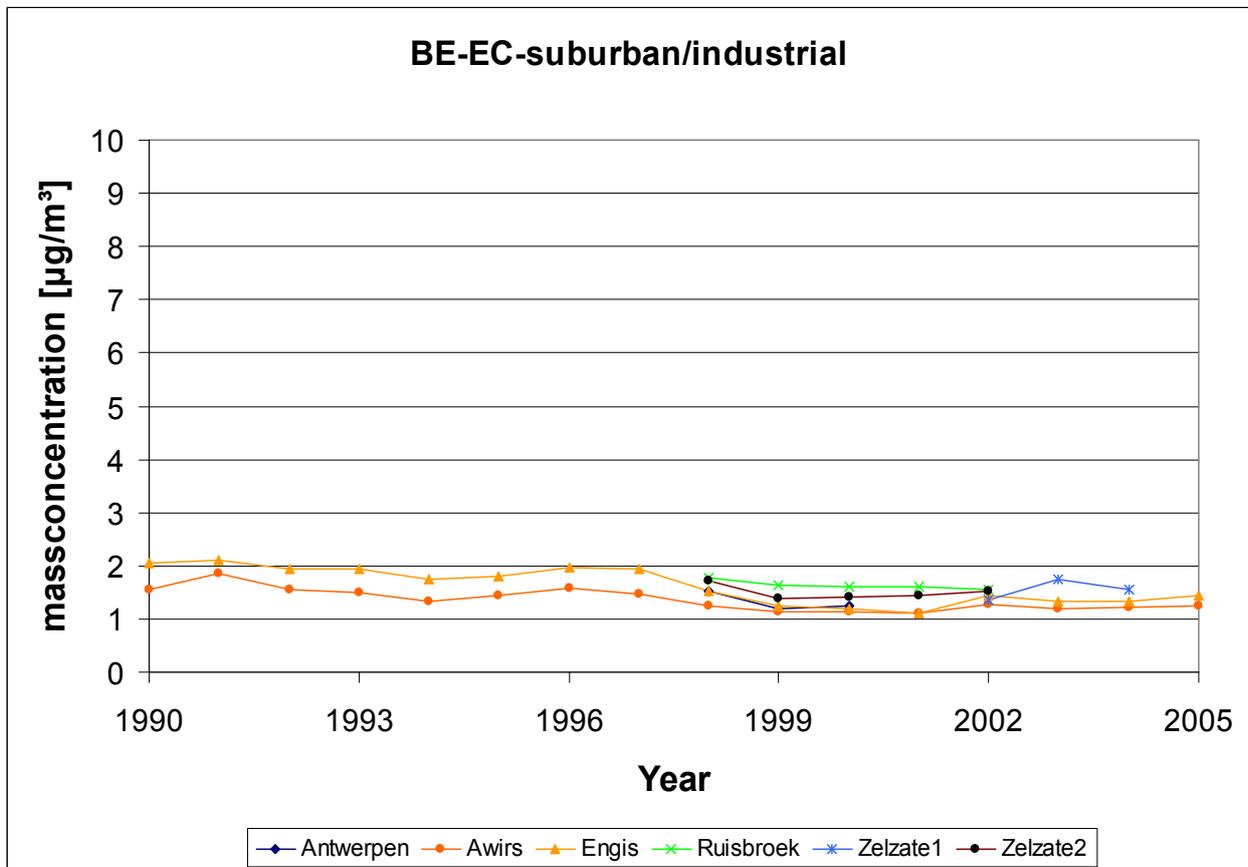
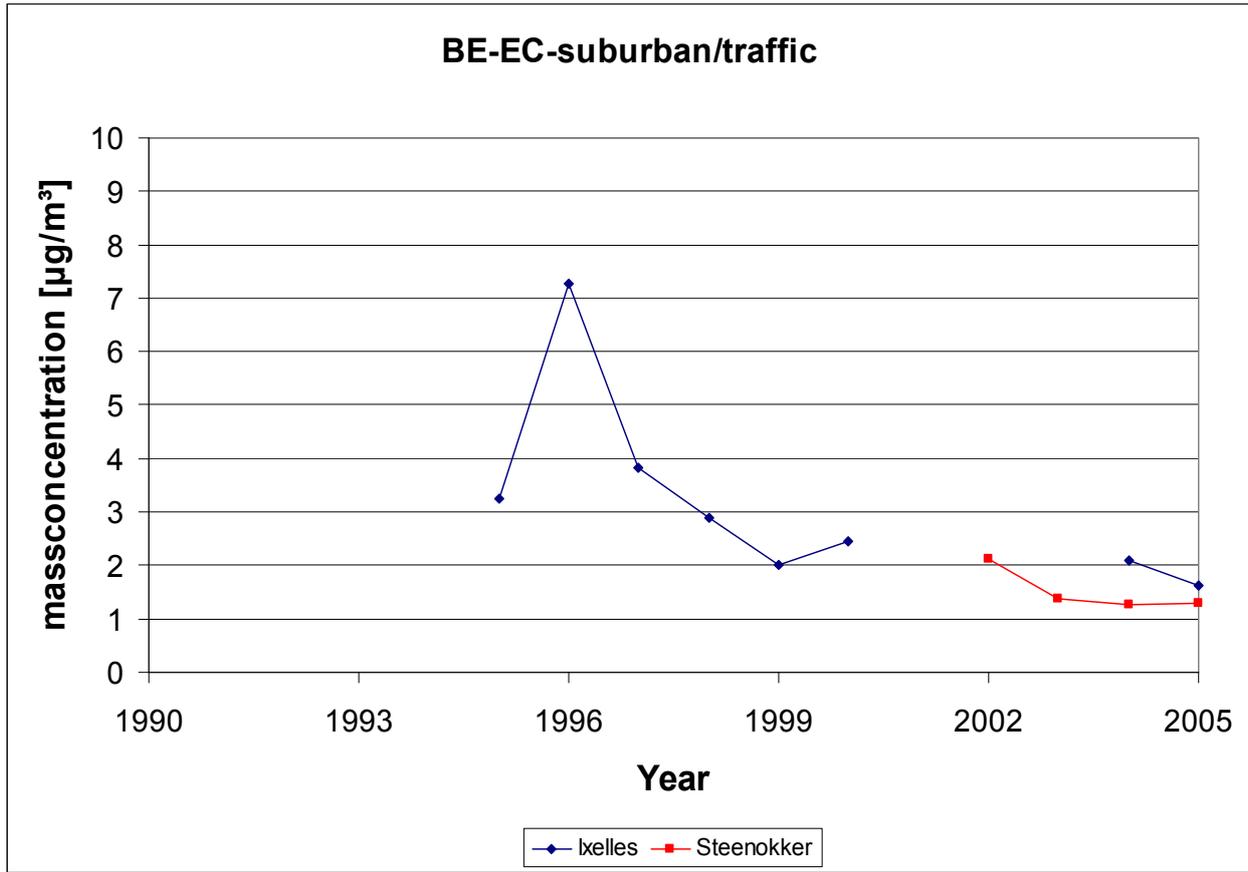
Janja Tursic	Slowenien	1972-2002	
Mathias Ketzl (von Kaare Kemp)	Dänemark (Kopenhagen)	1967-2002	
F.Cassee	Niederlande	1964-1986	
Anu Kousa (von Juha Pekkanen)	Finland (Helsinki)	1992-1996	

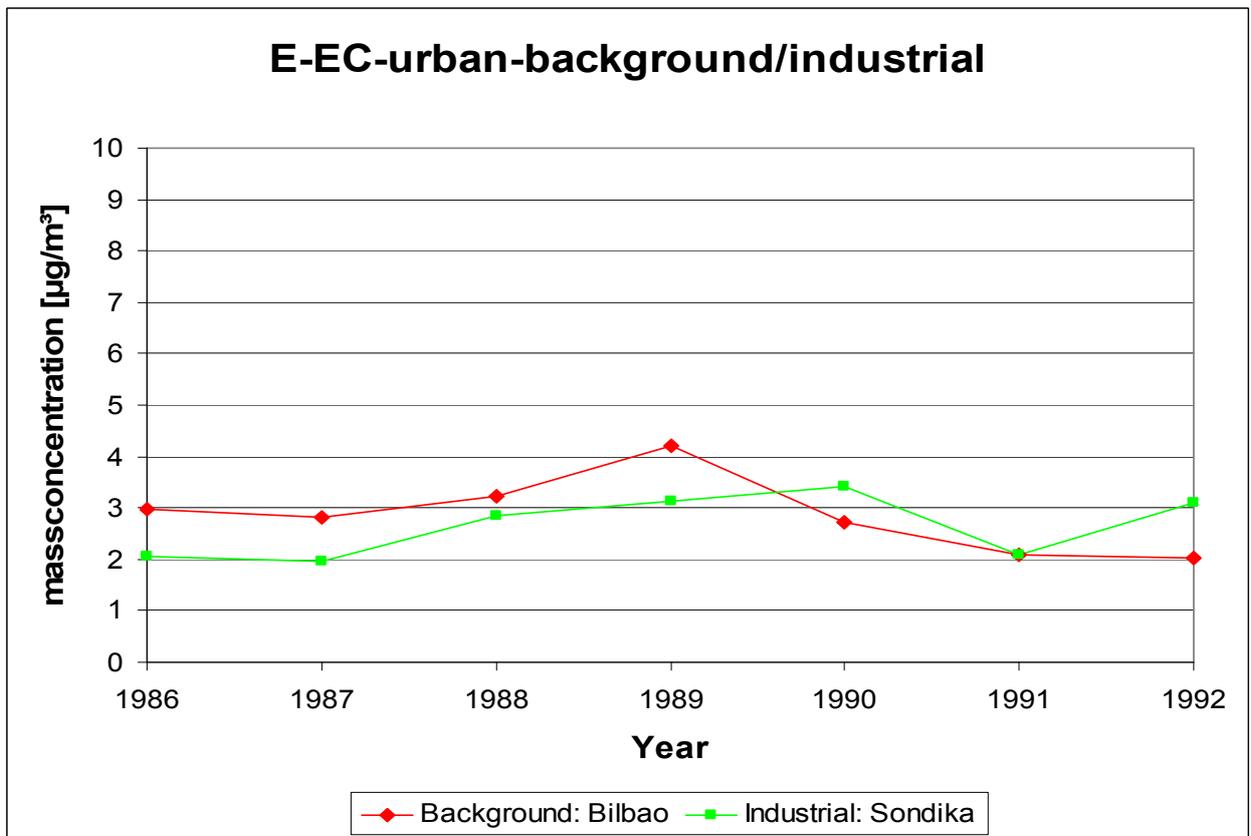
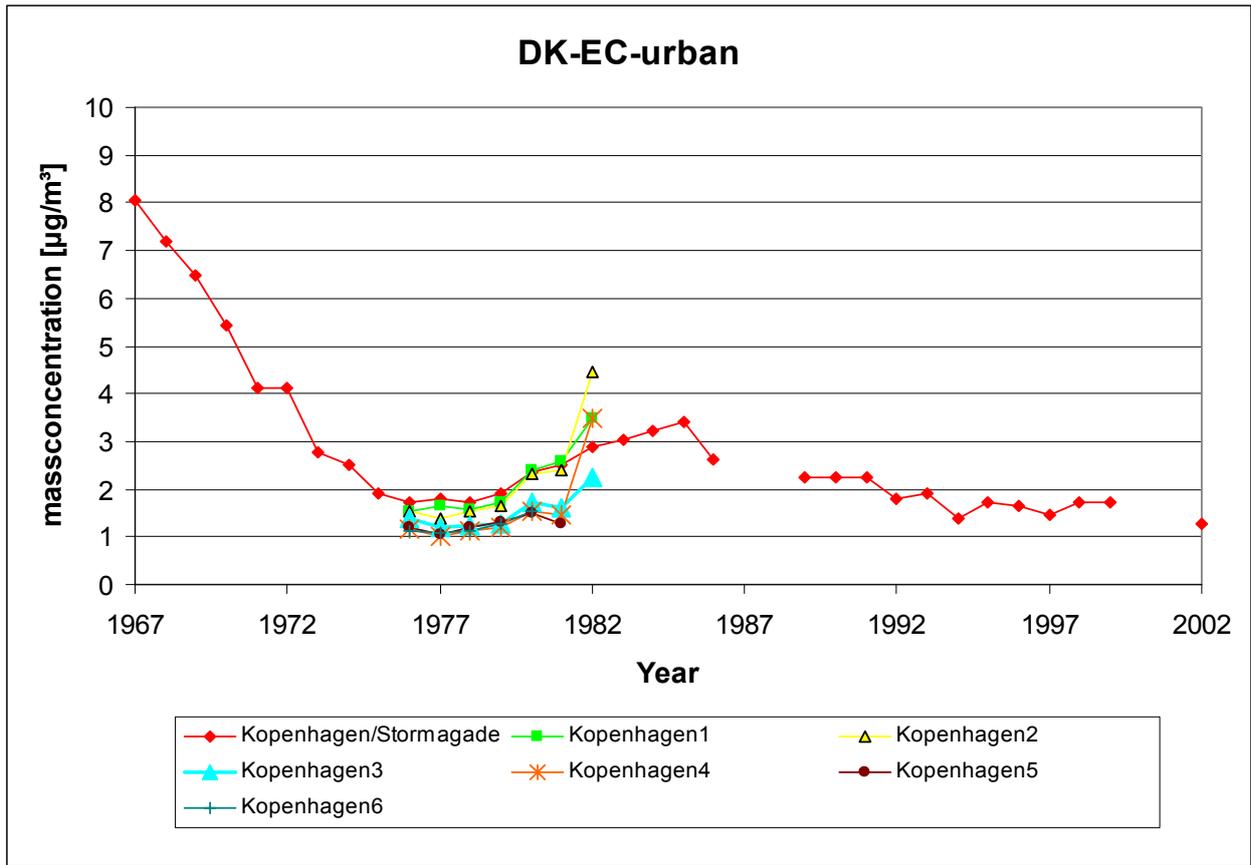
Verweise auf Datenbanken:

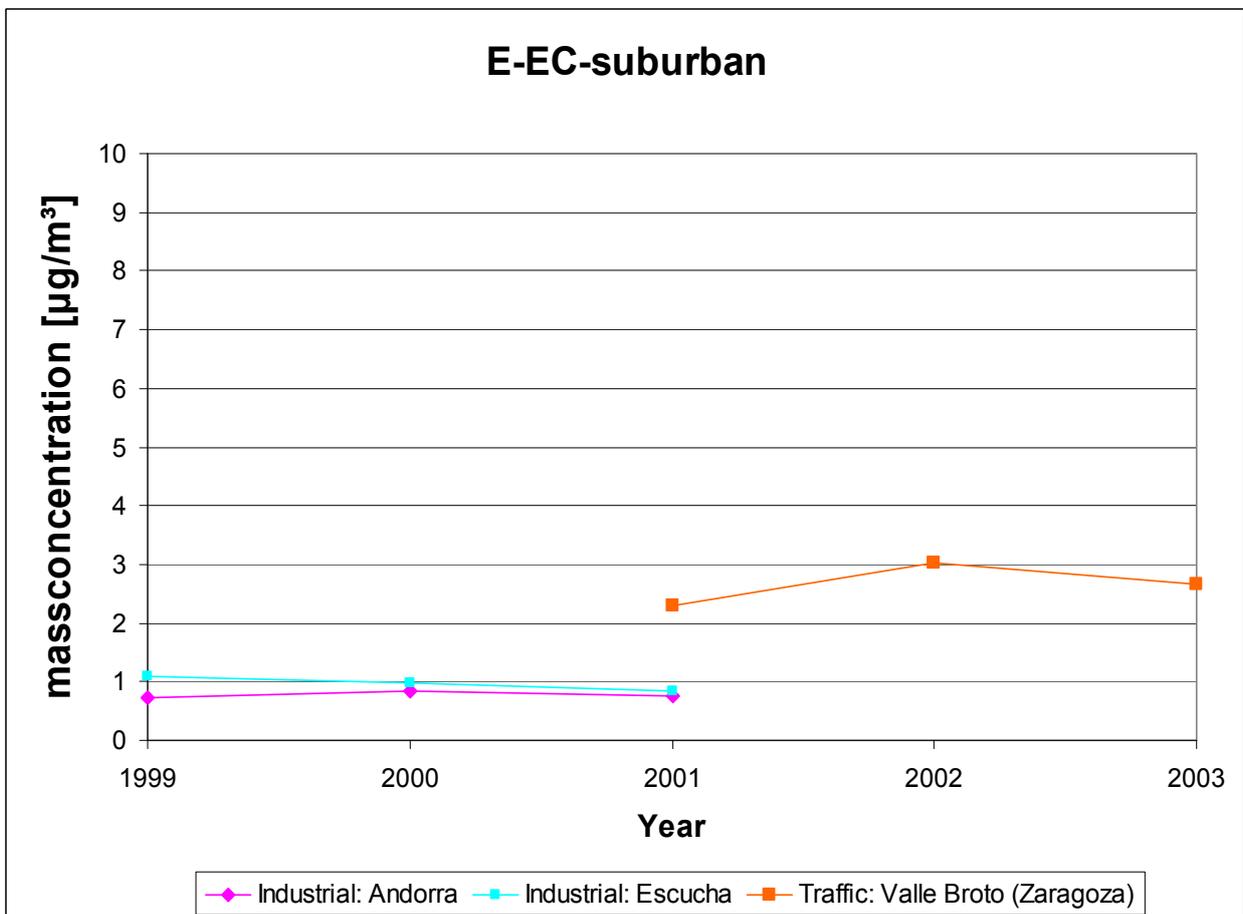
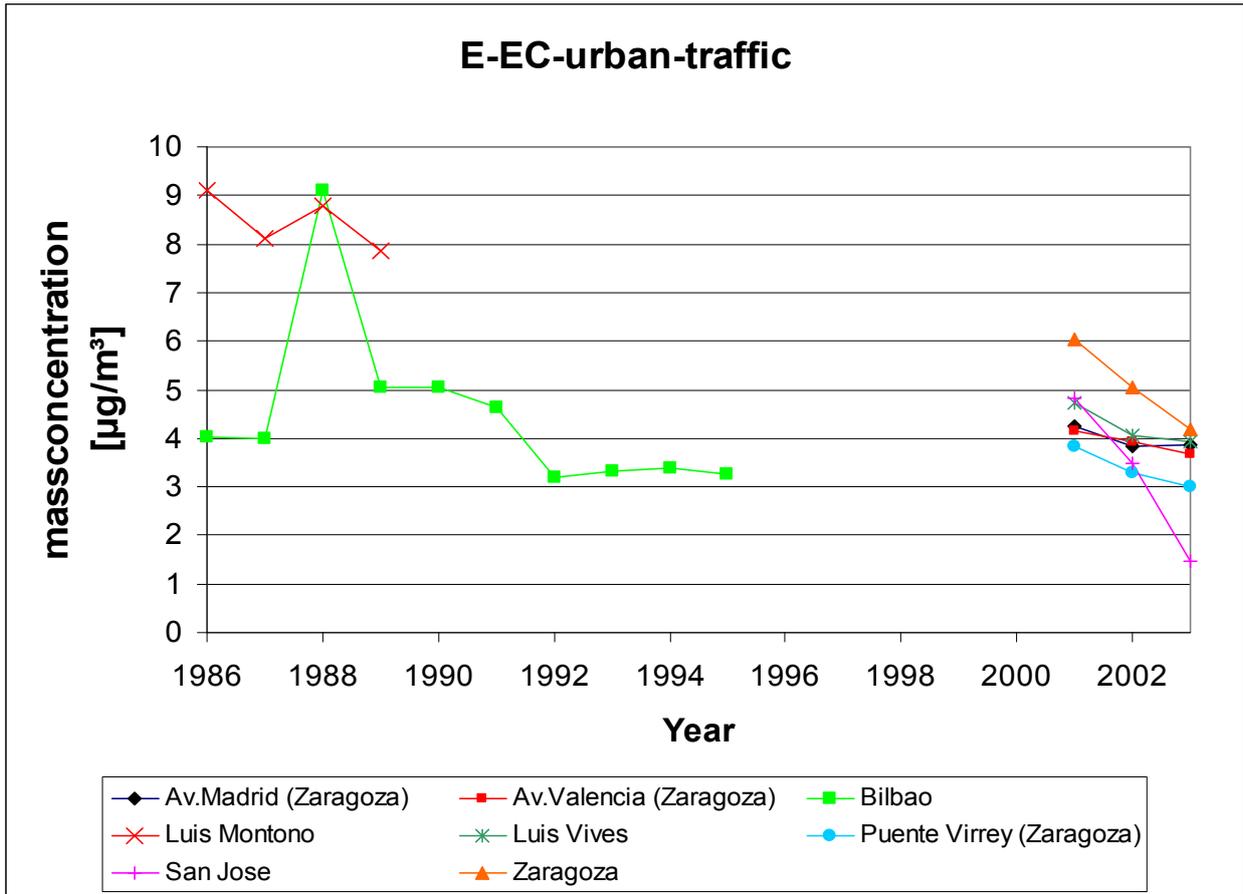
H.M. ten Brink	Airbase (Datenbank der EEA)		Internetref. 10
Alan Jones	UK-Datenbank		Internetref. 11
Joachim Heinrich	Verweist auf ULTRAII-Studie		

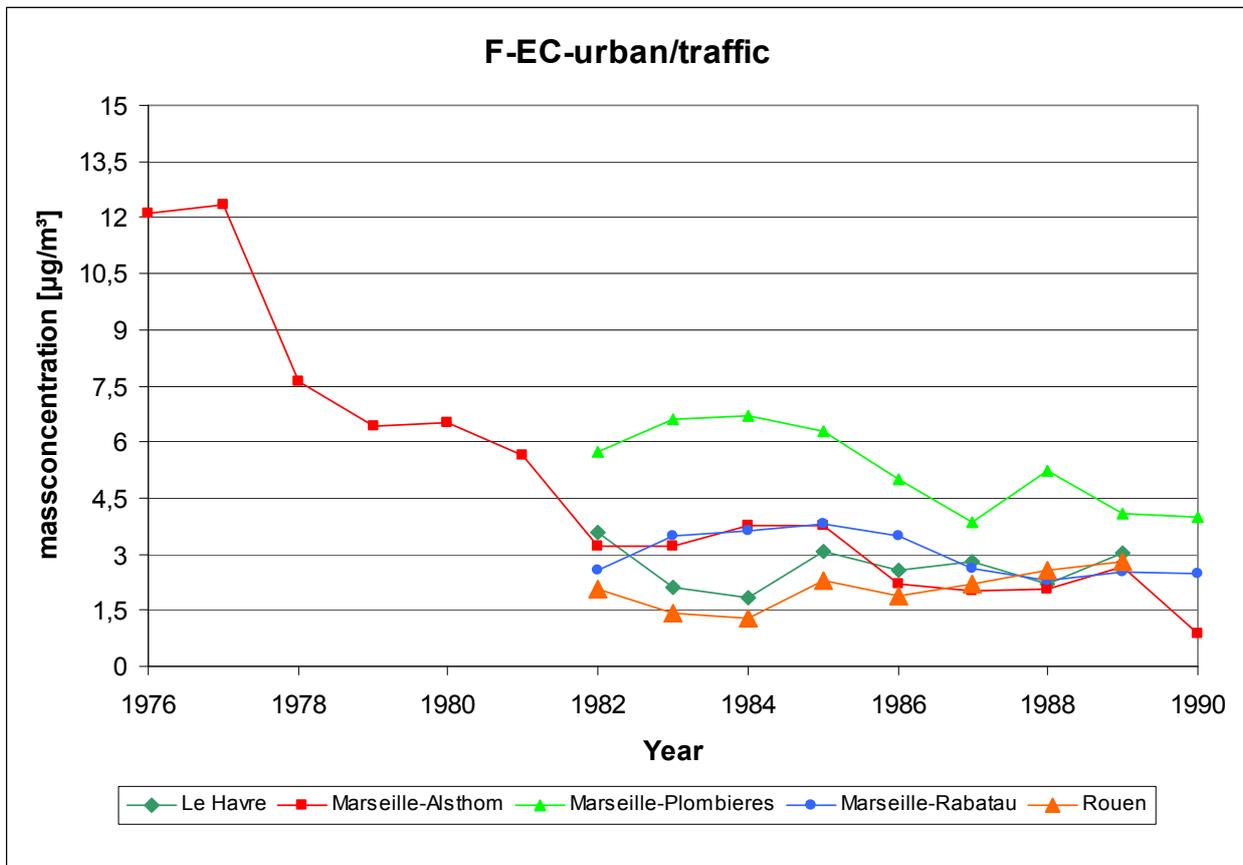
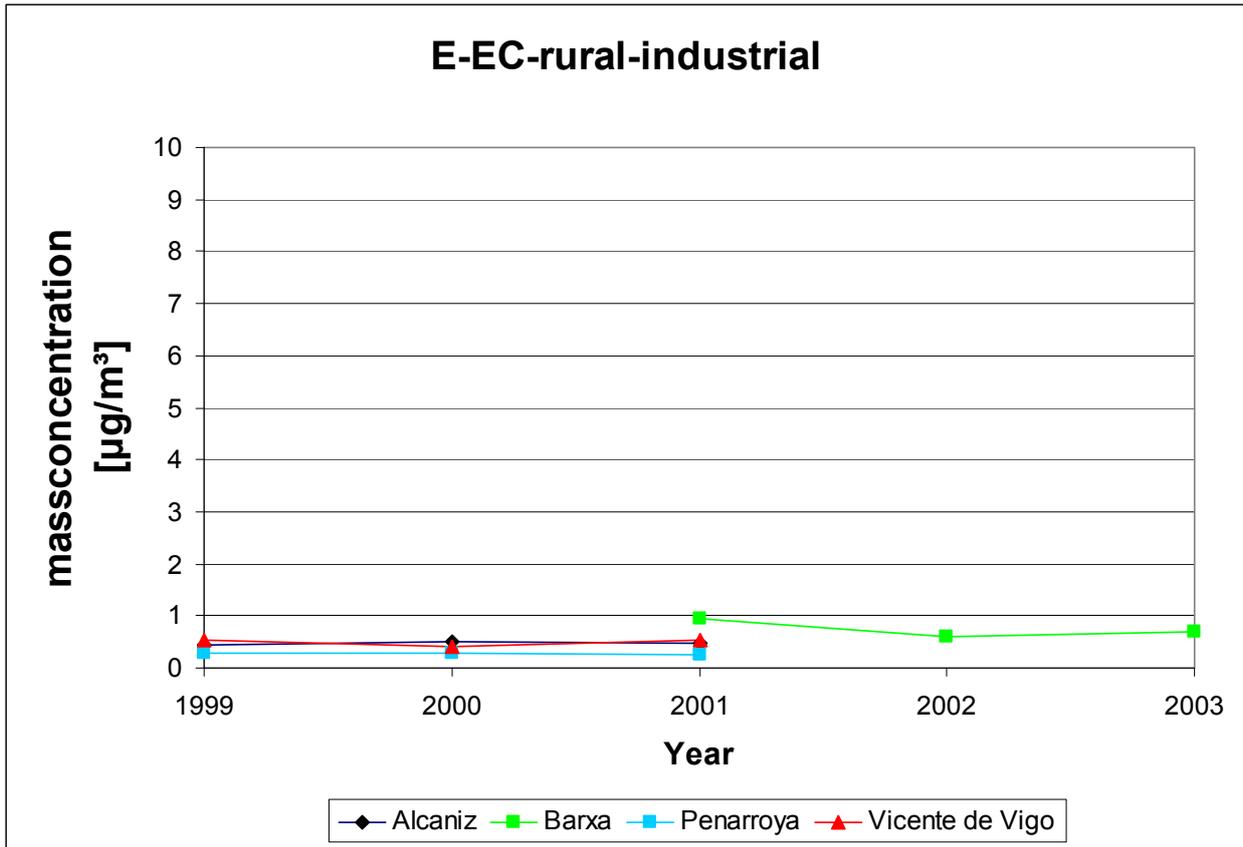
Anhang B-1

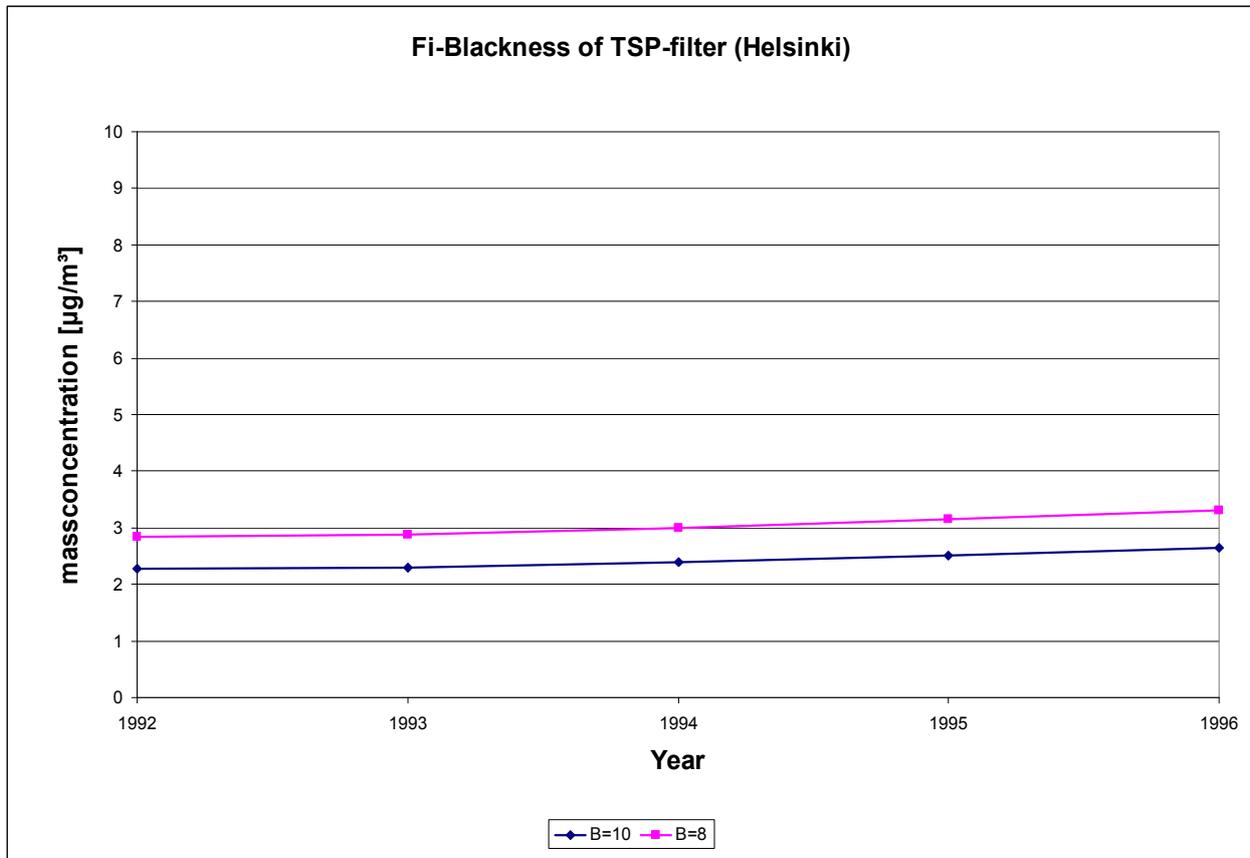
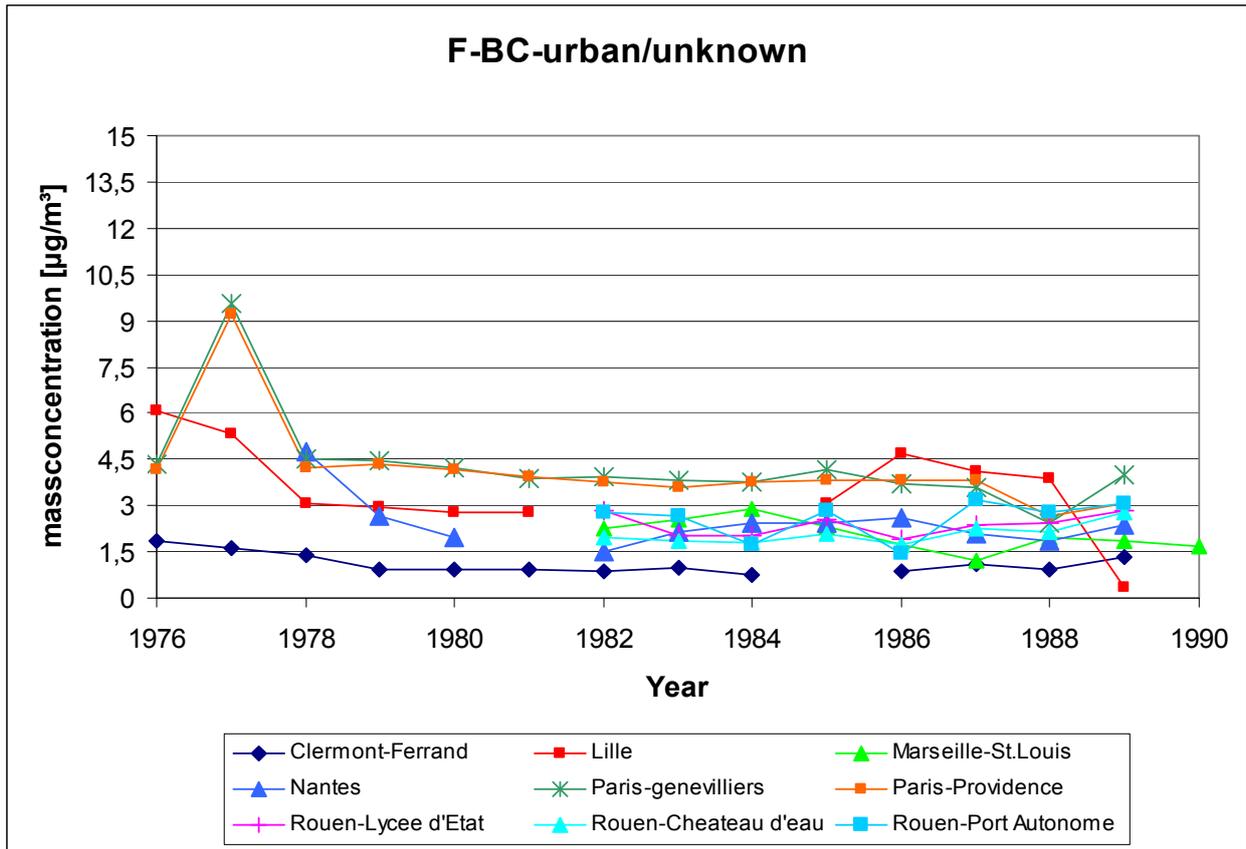


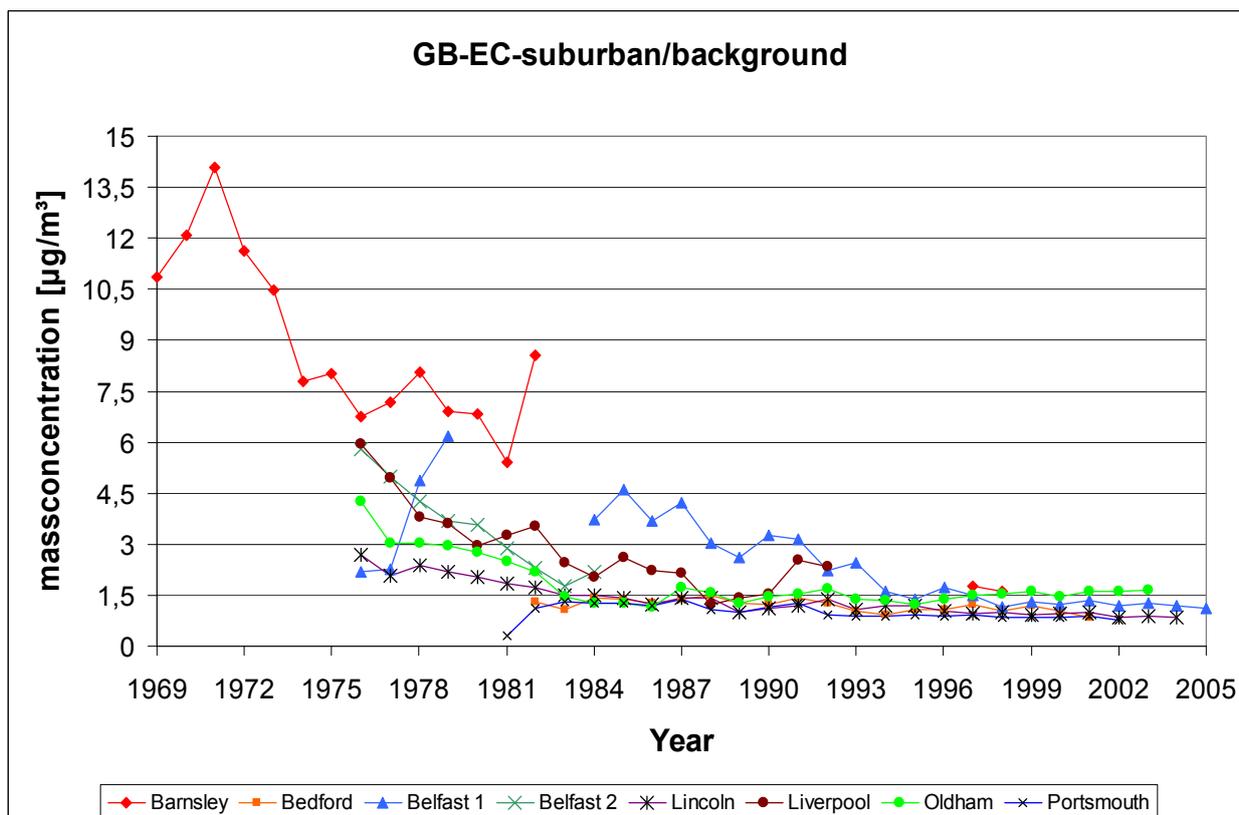
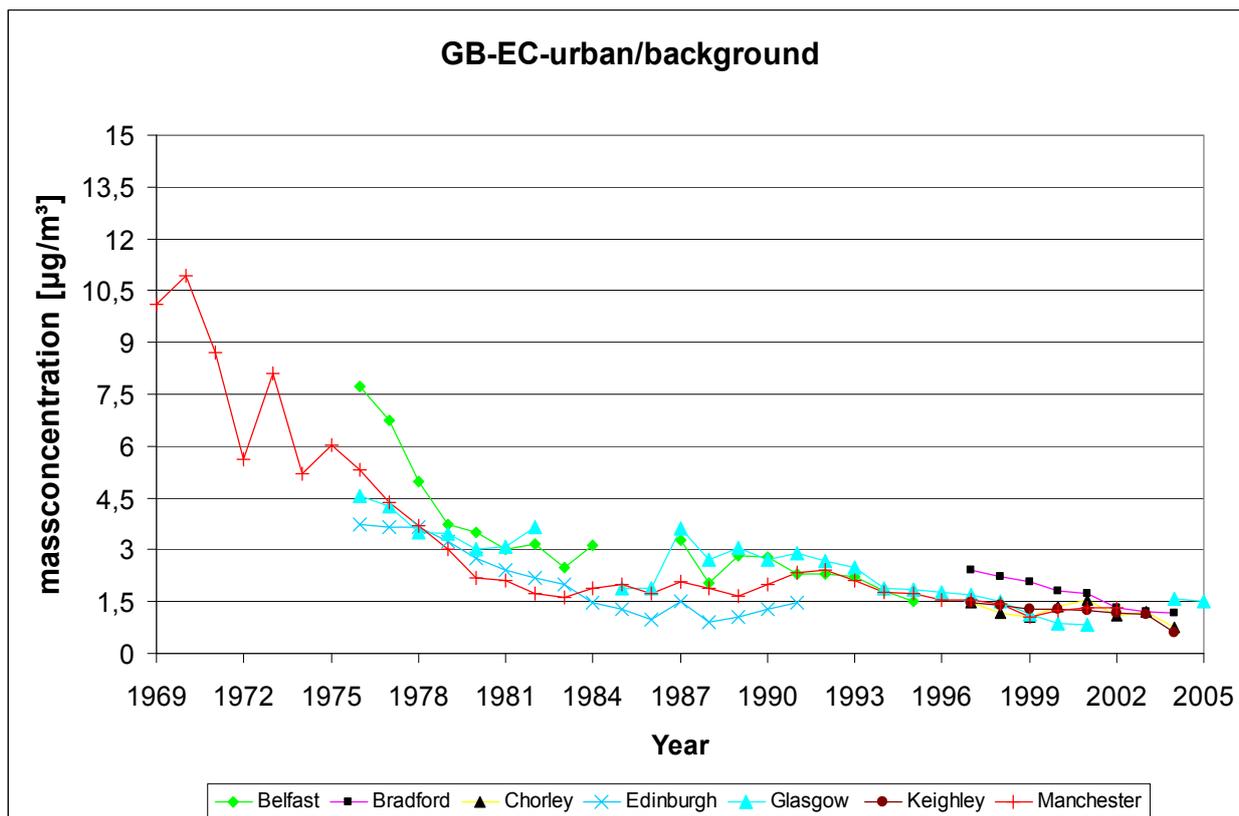


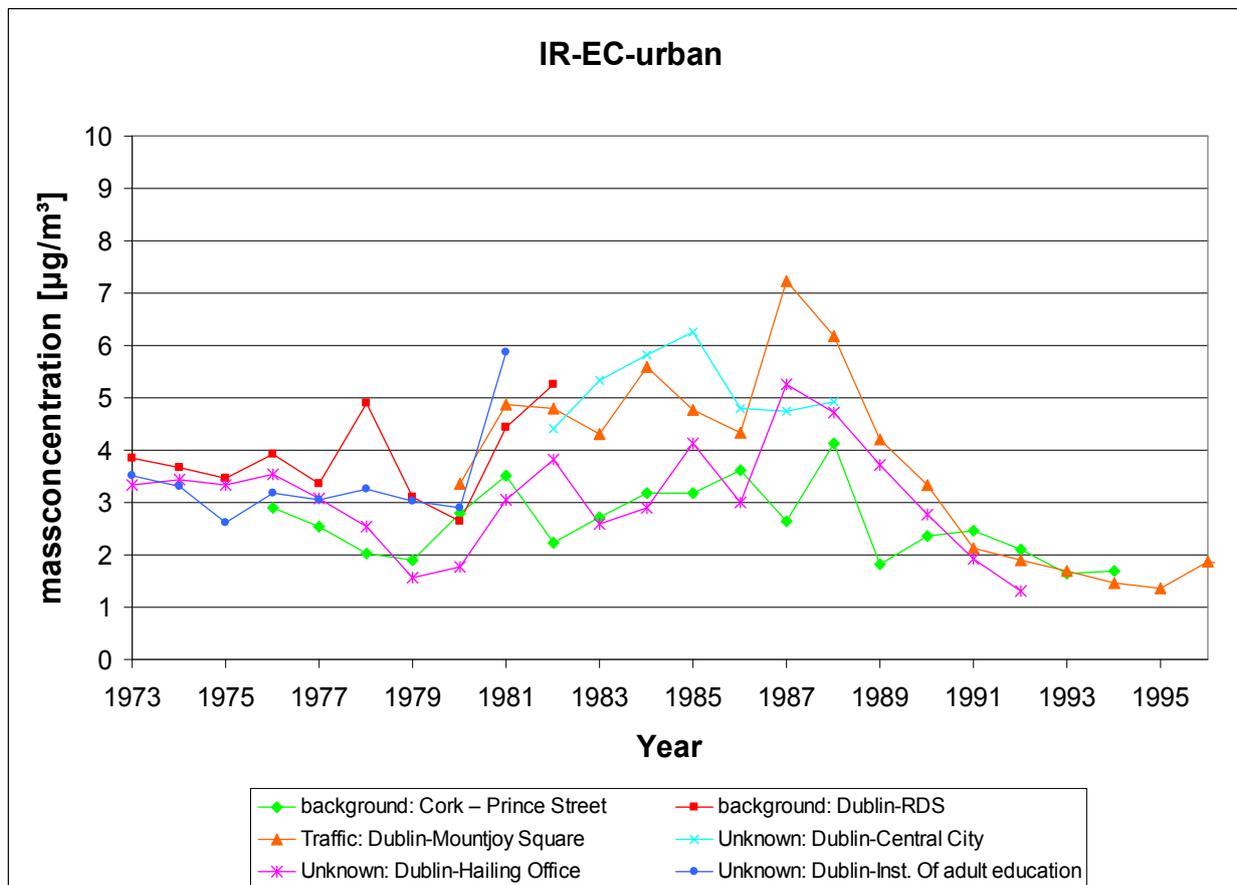
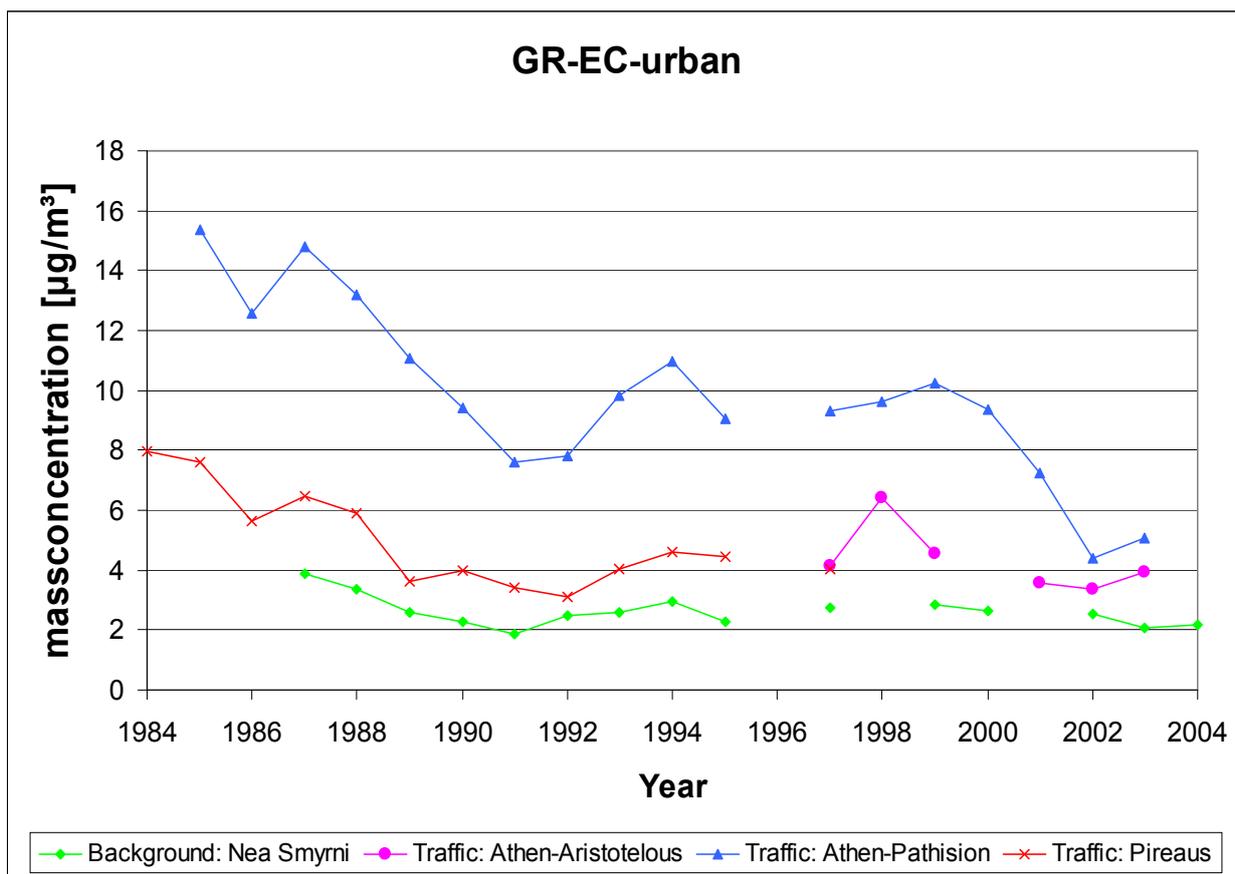


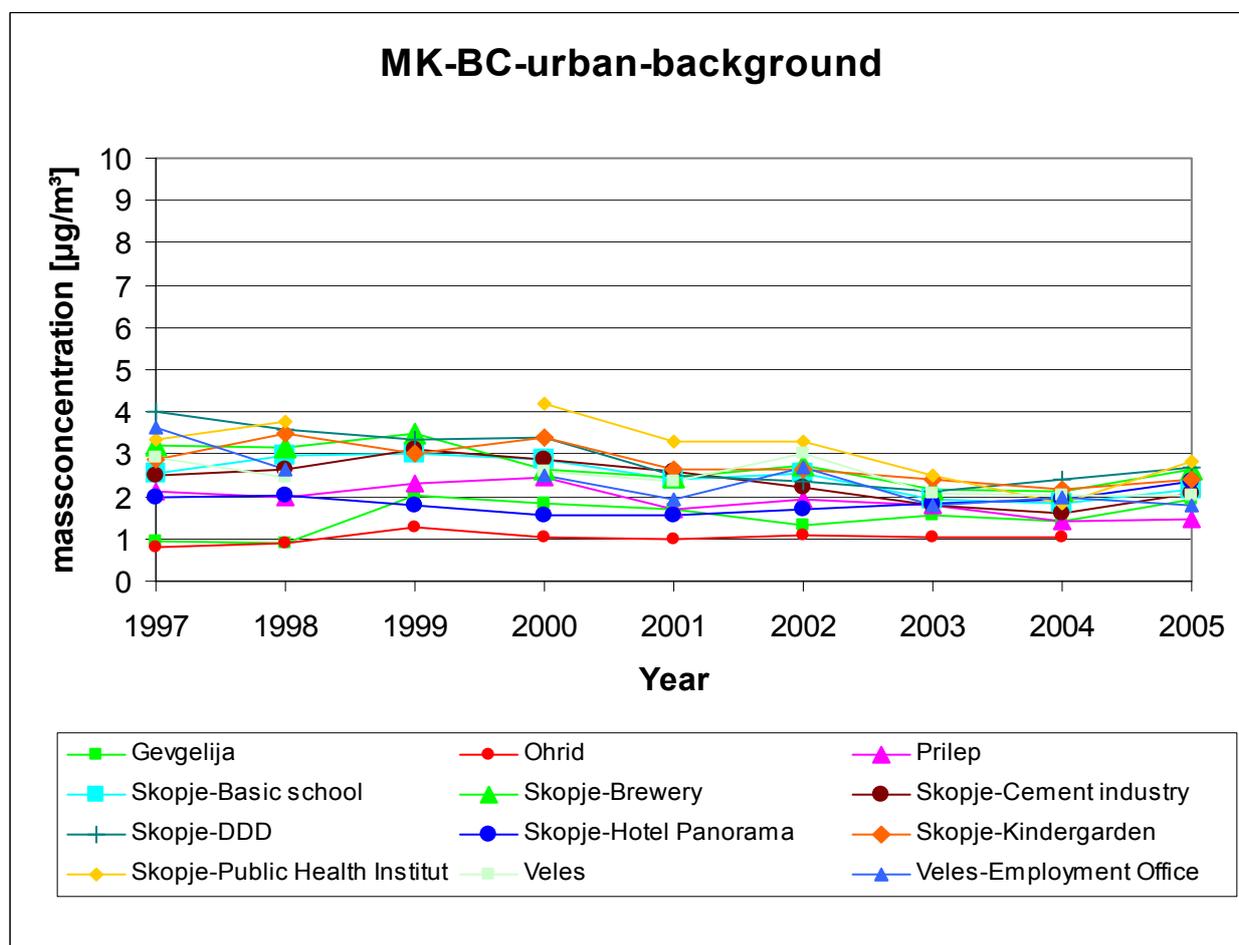
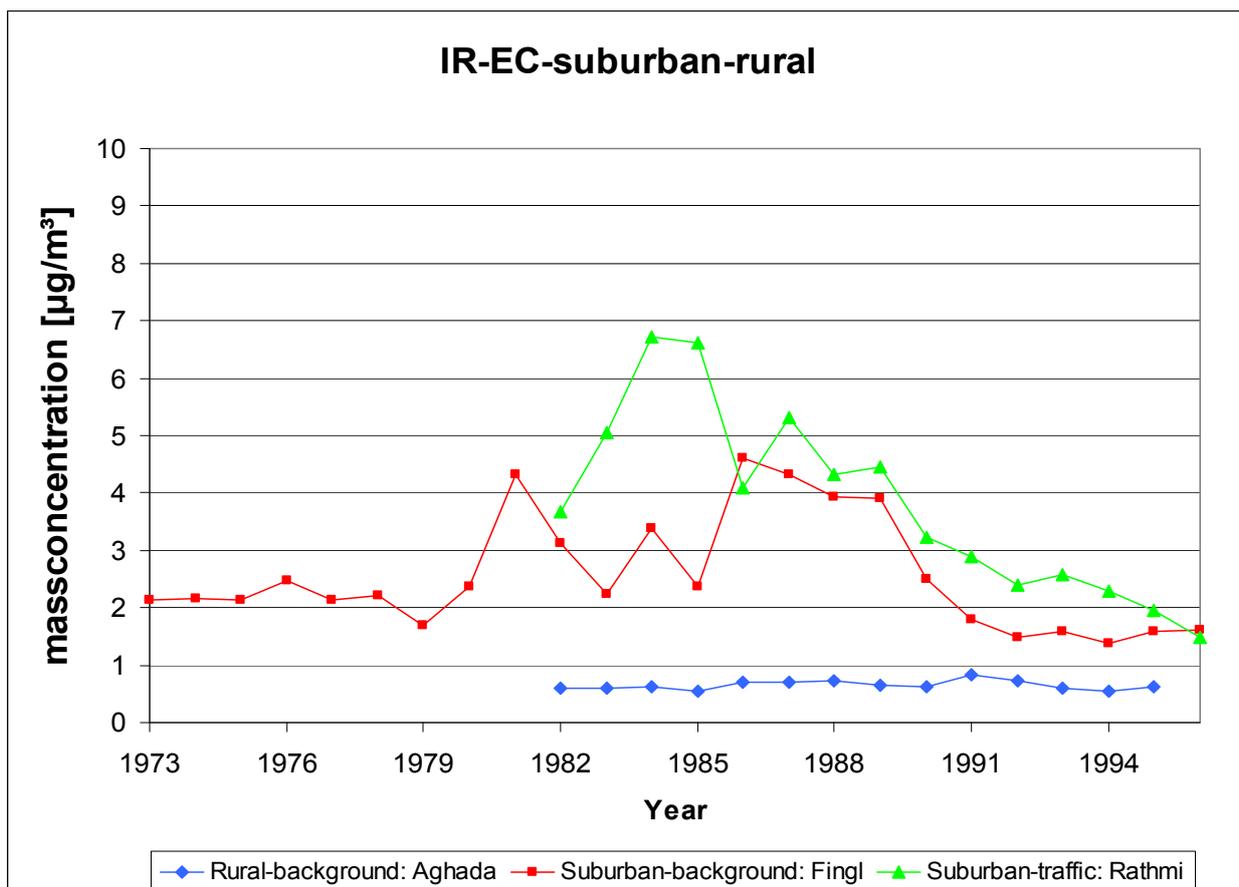


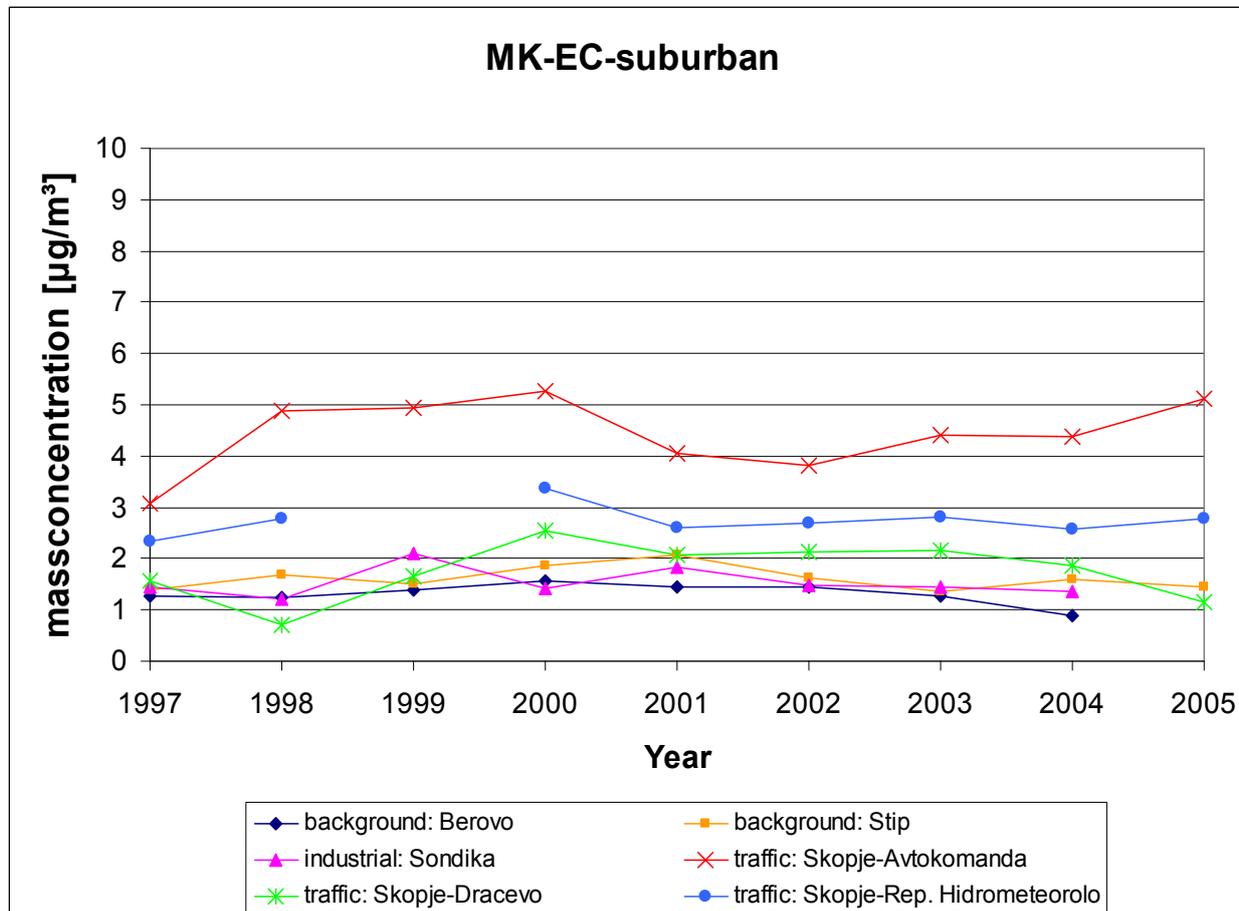
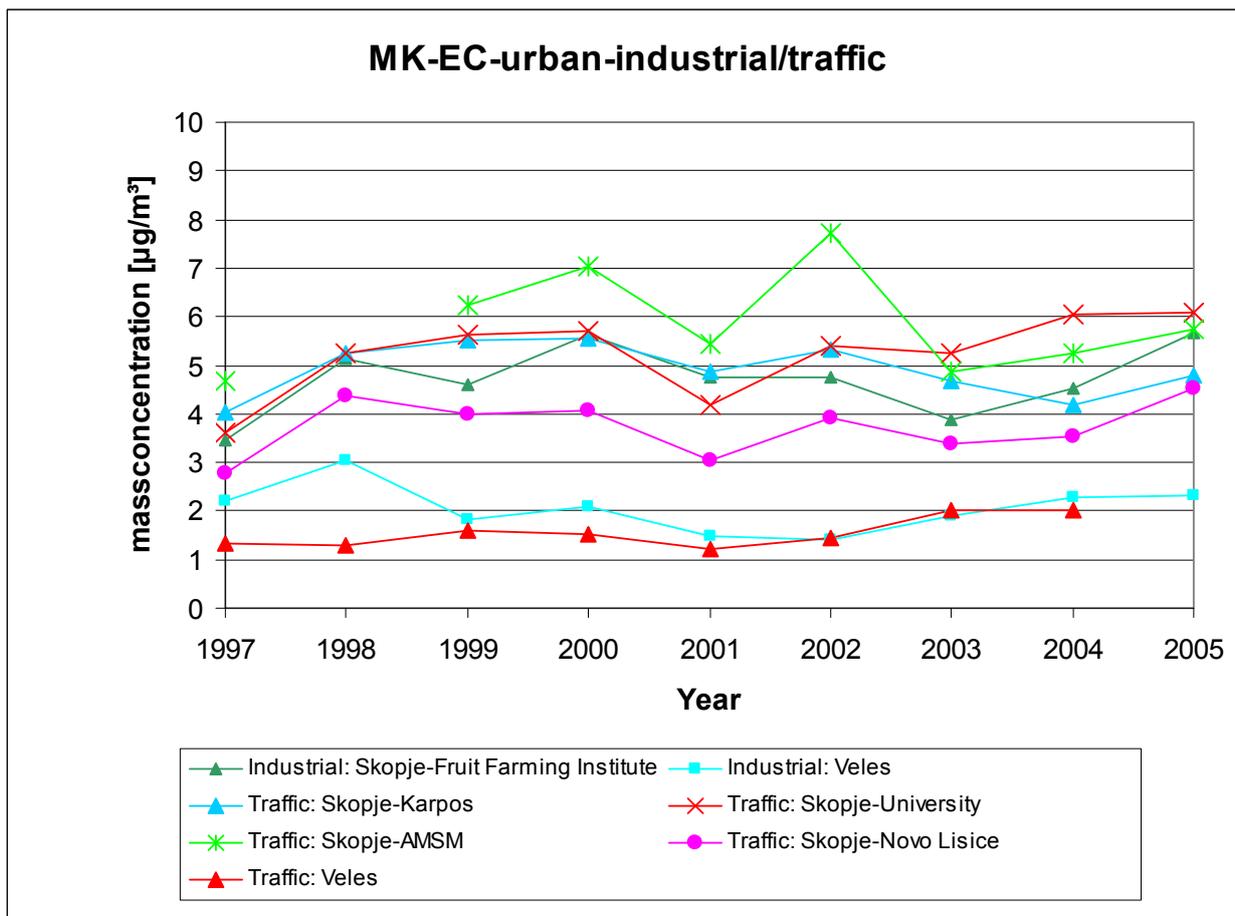


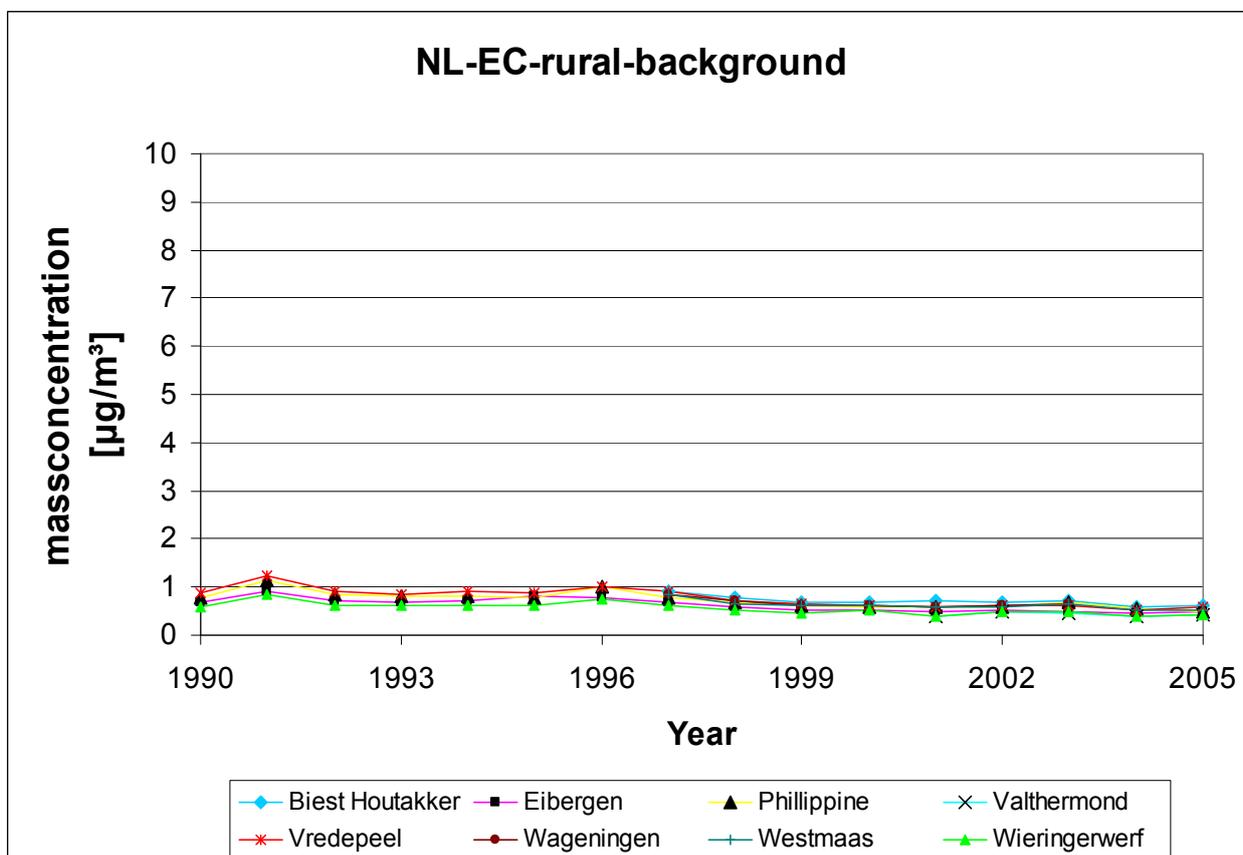
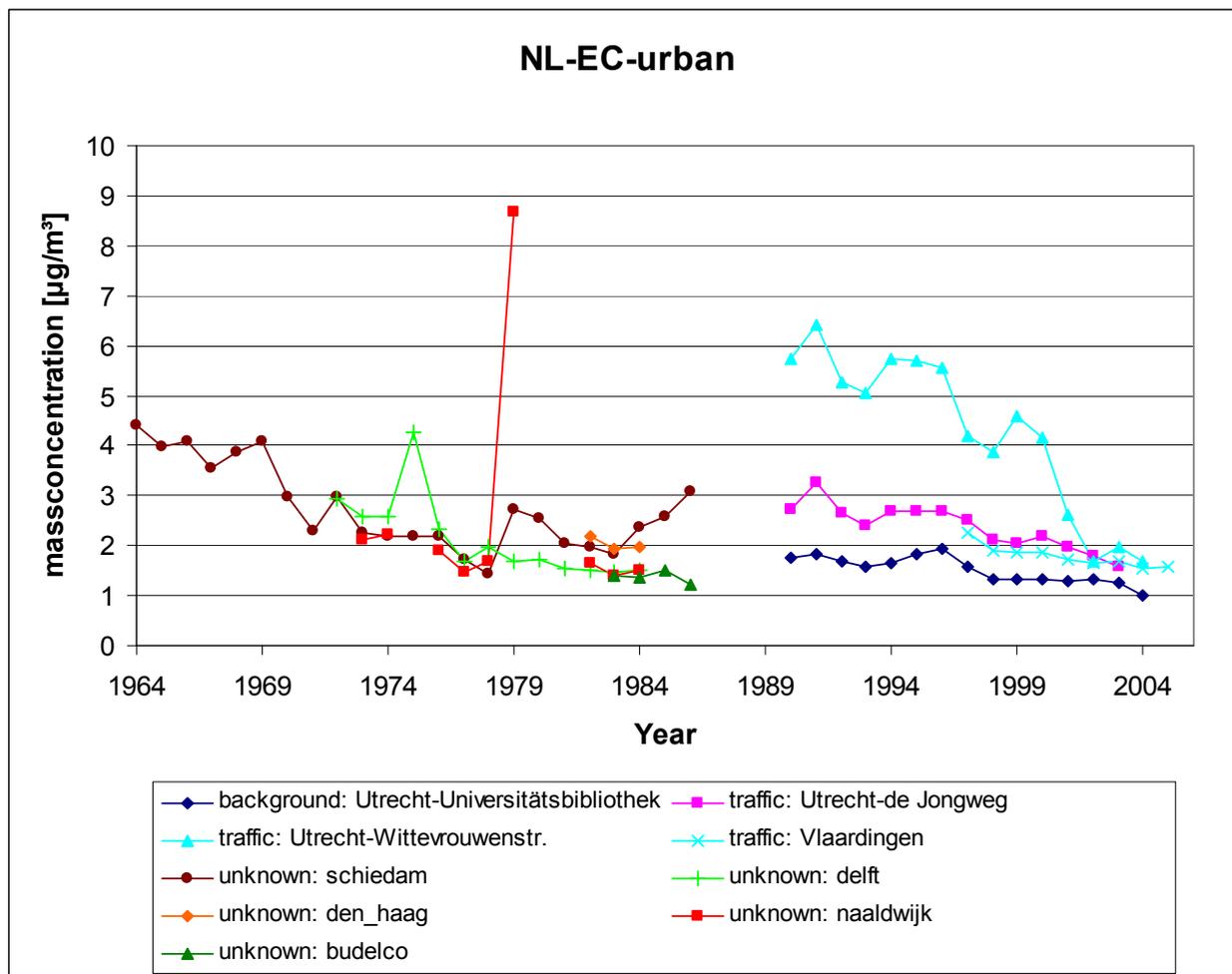


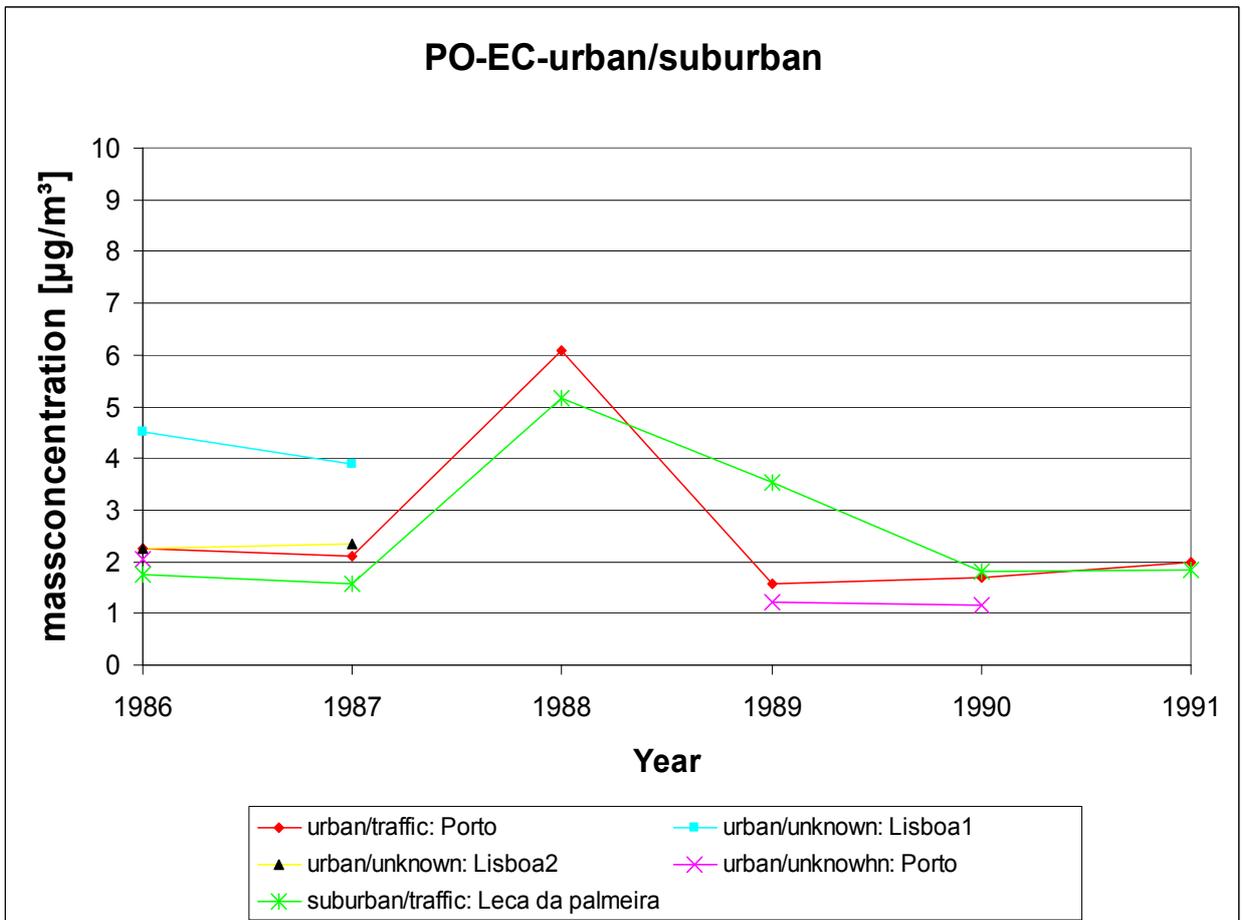
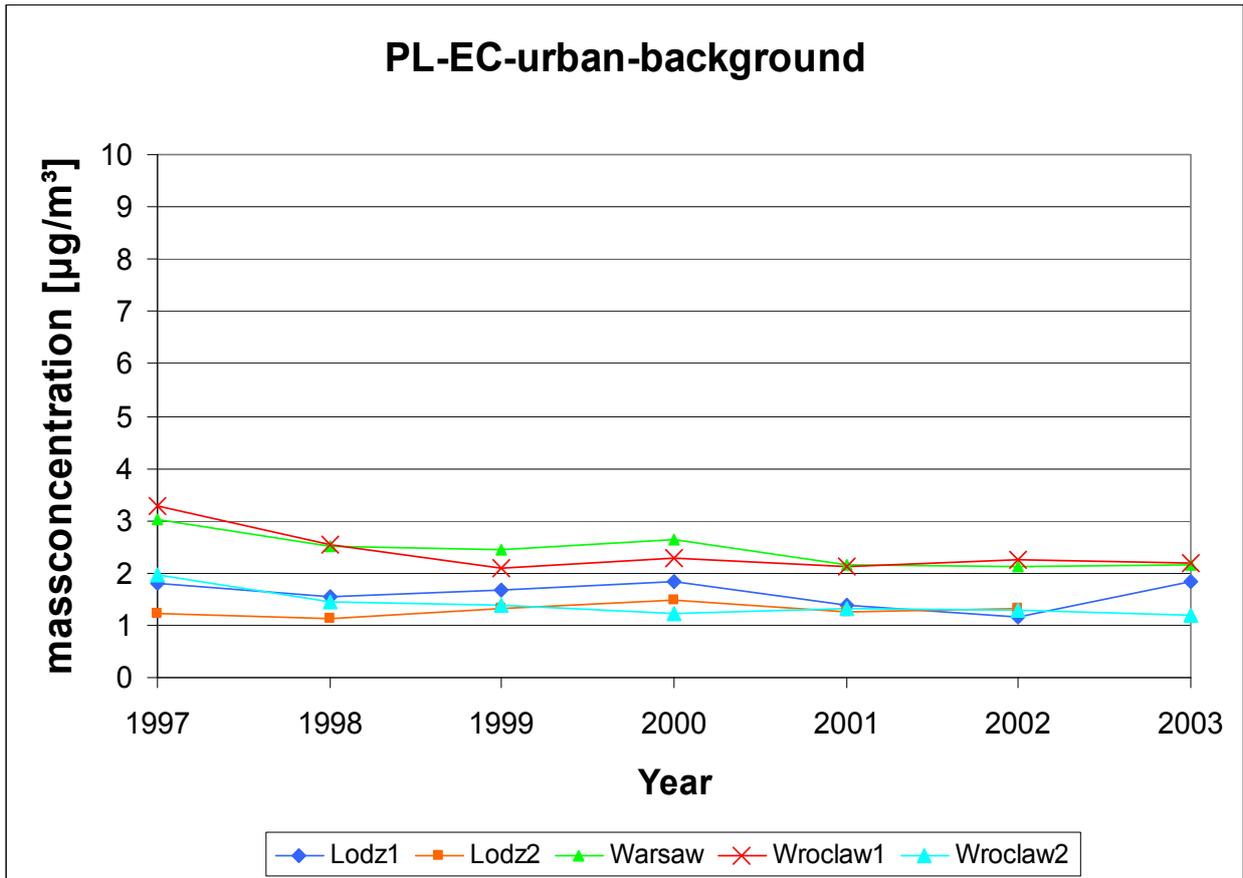


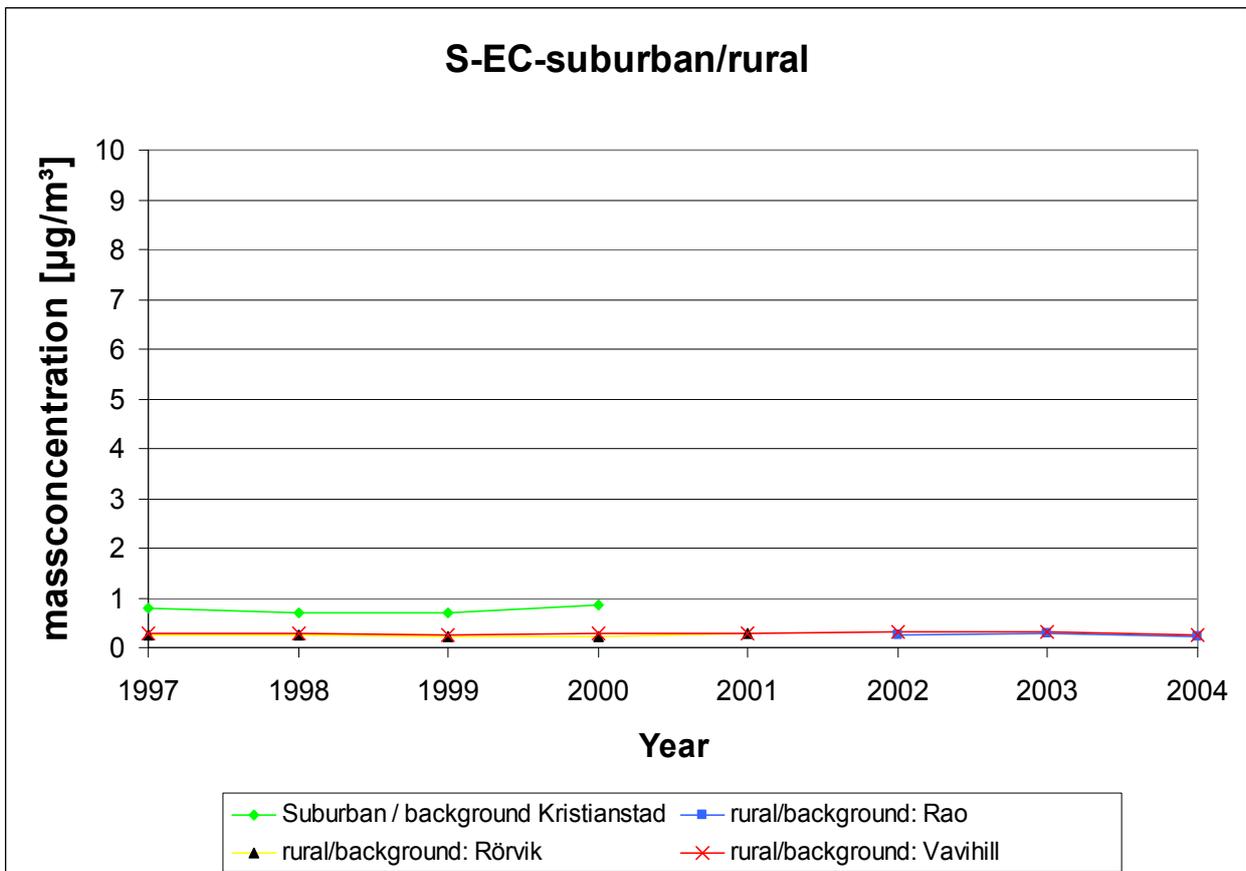
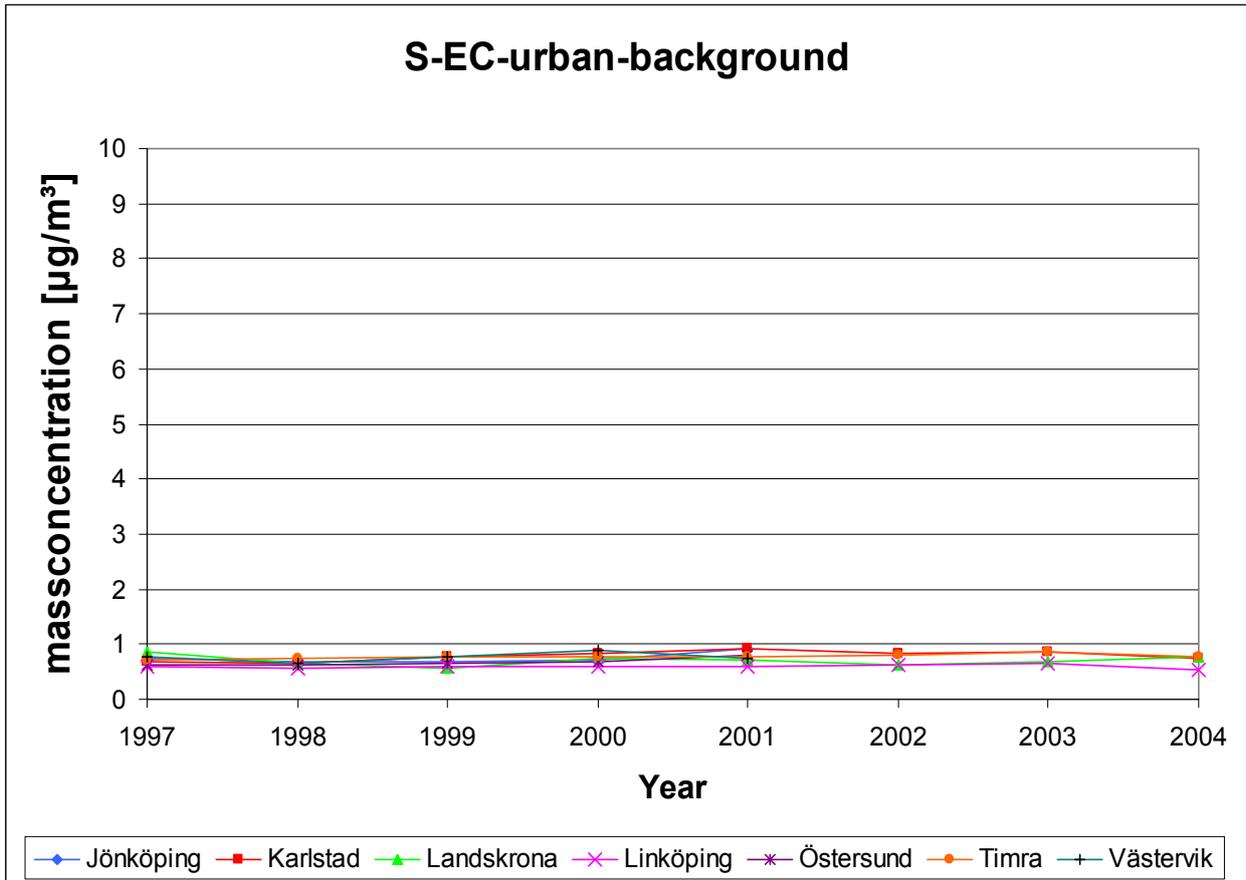


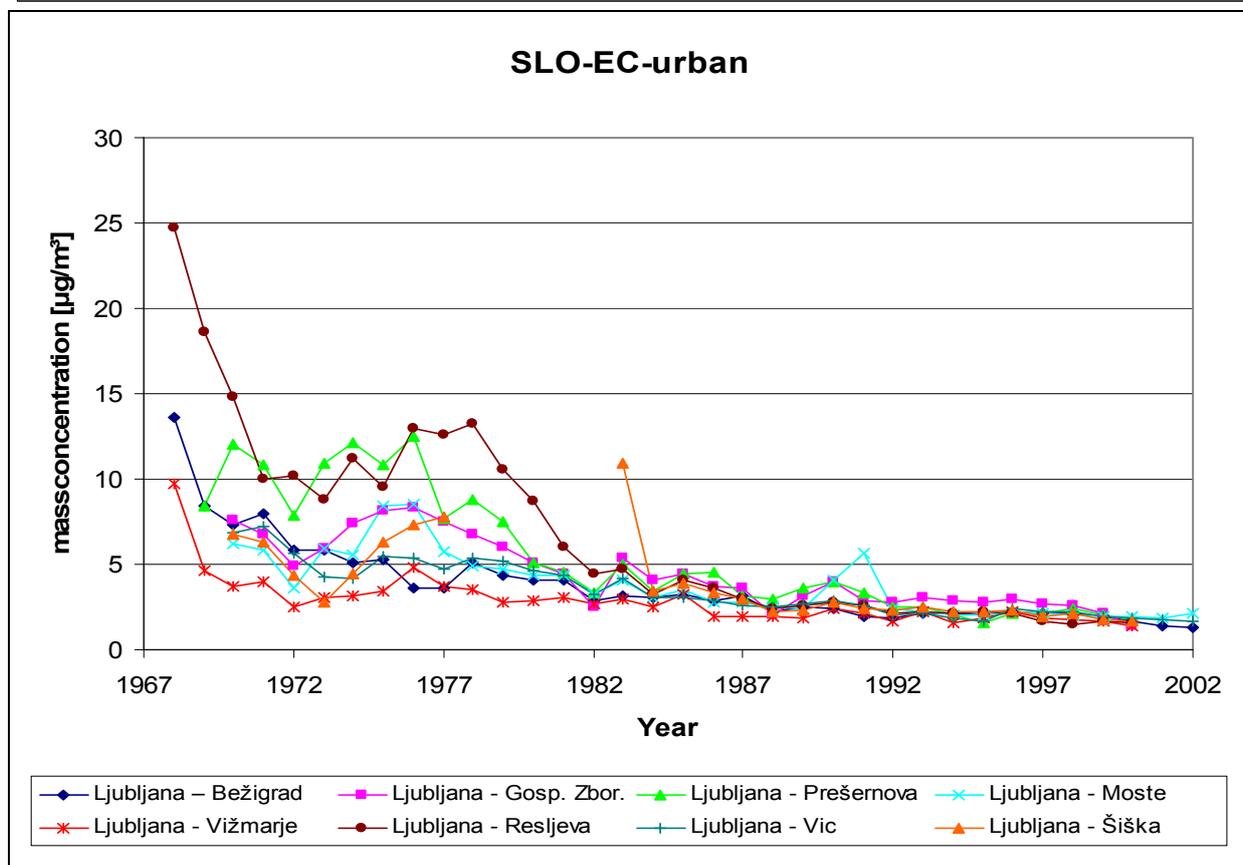
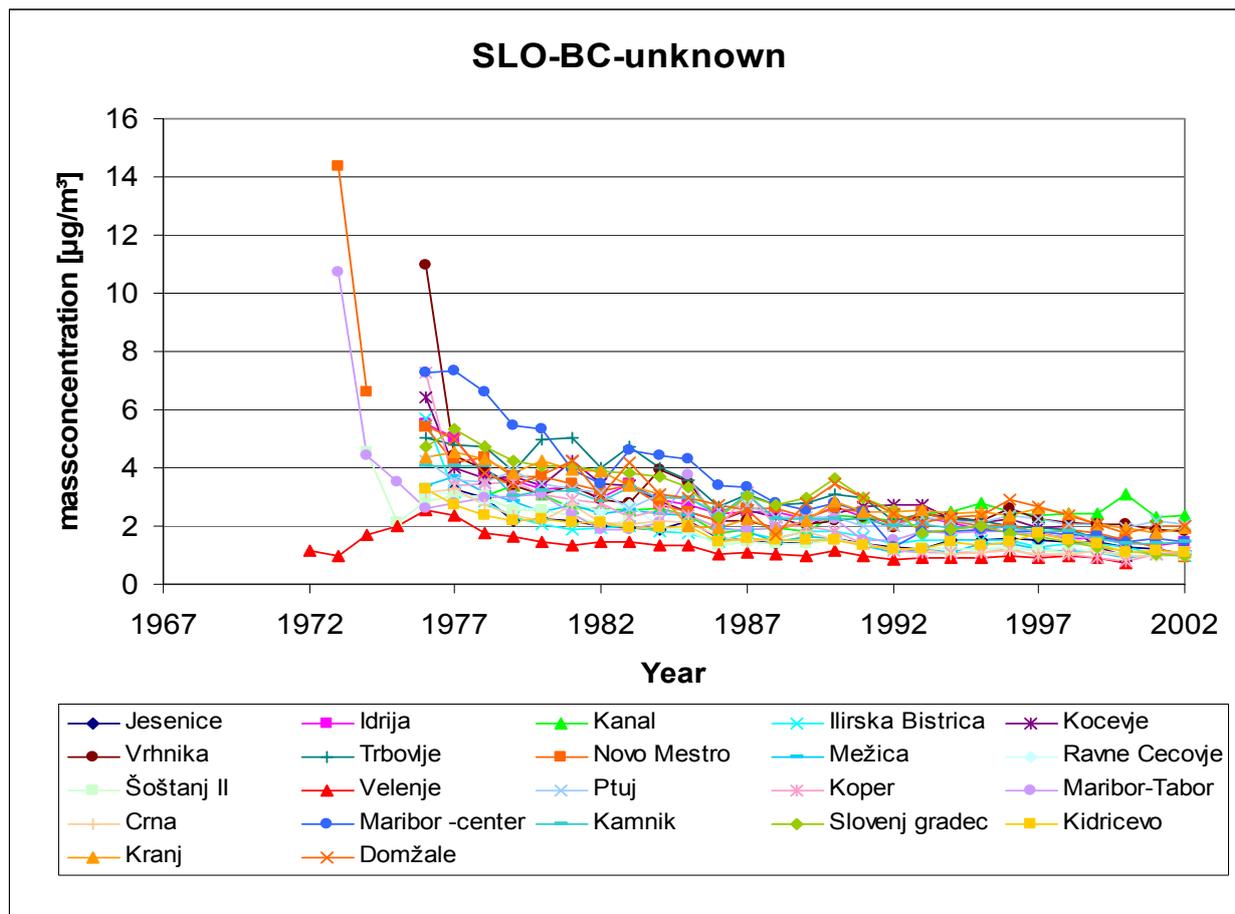




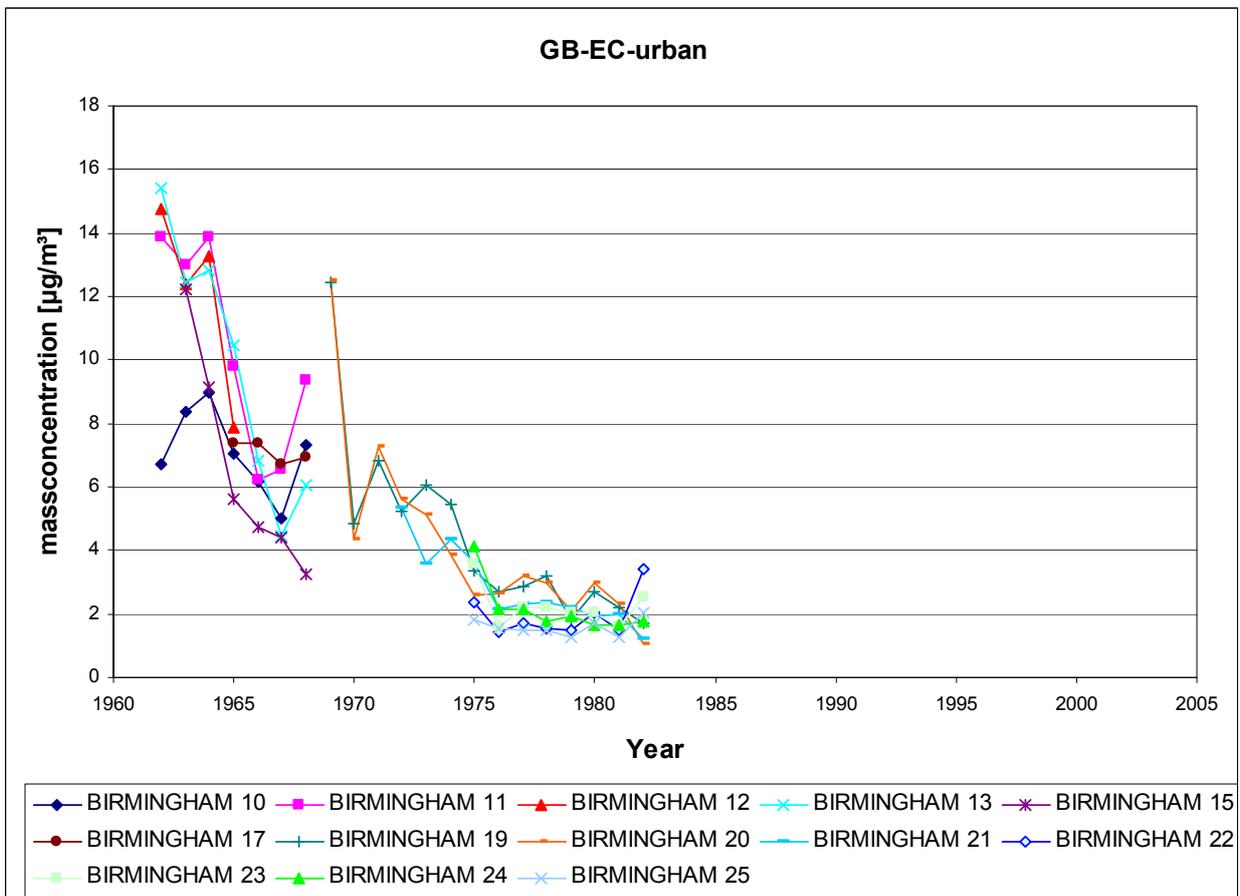
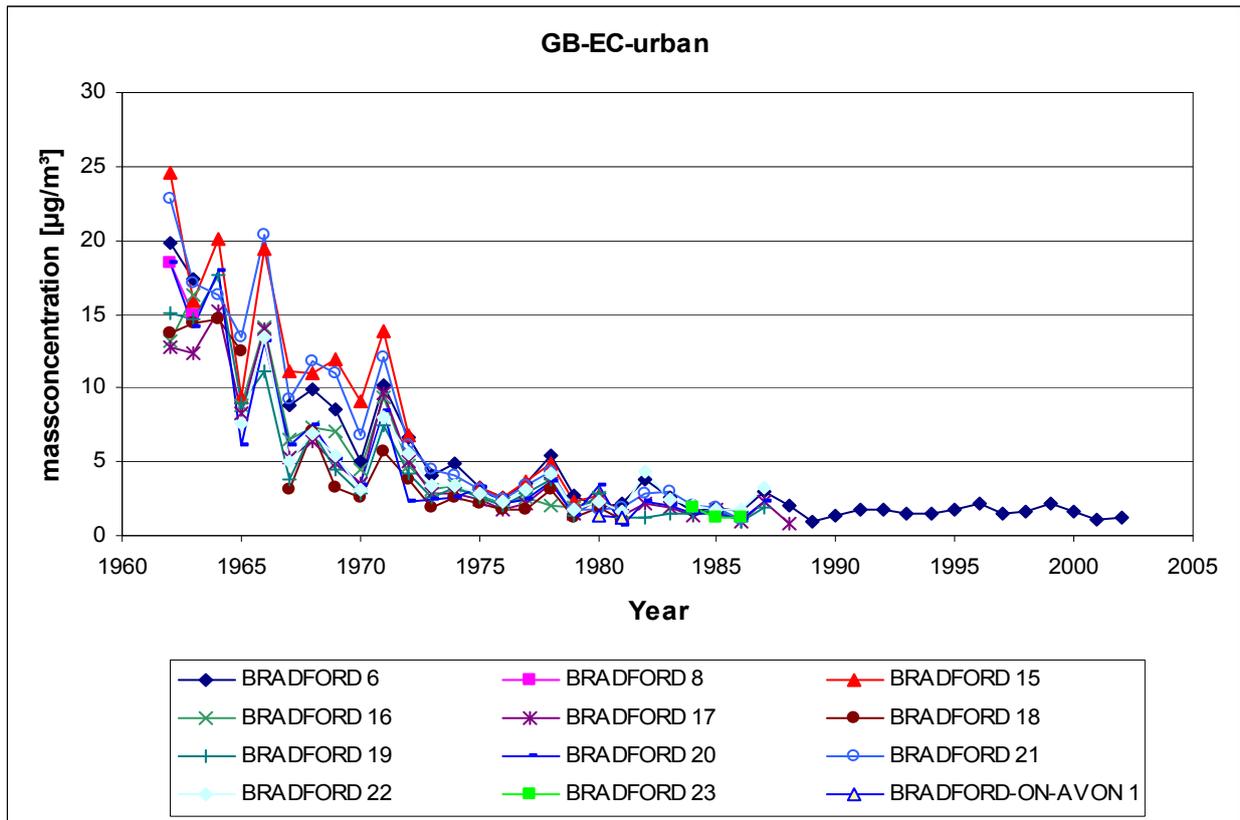


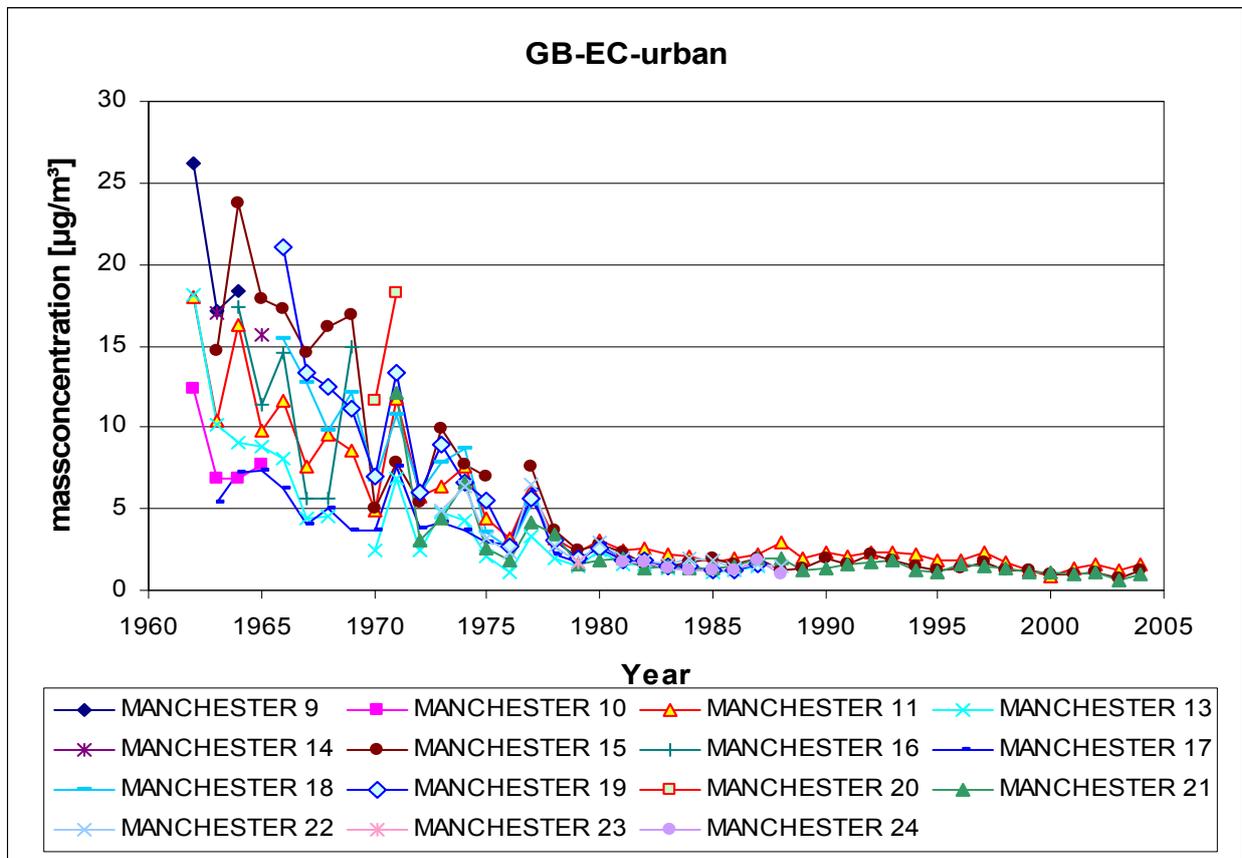
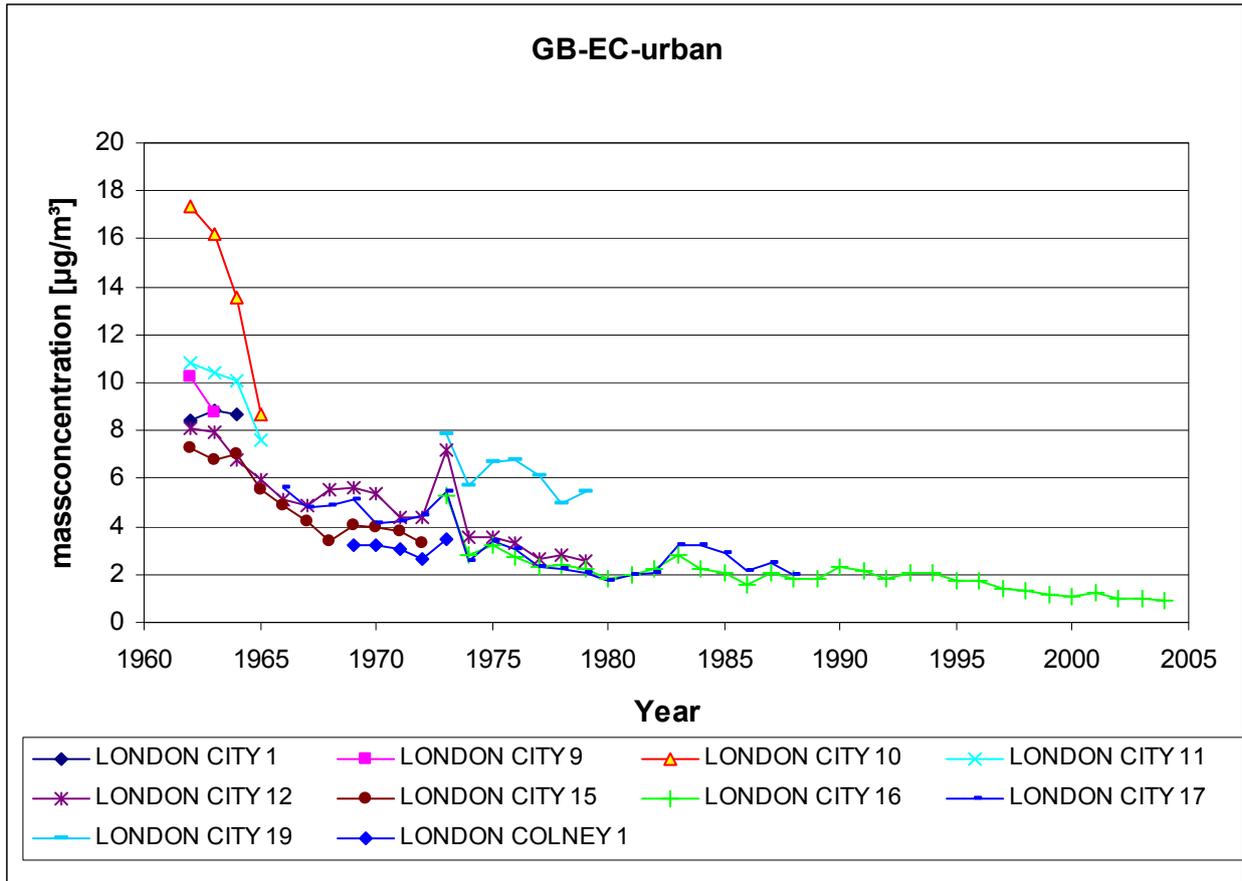


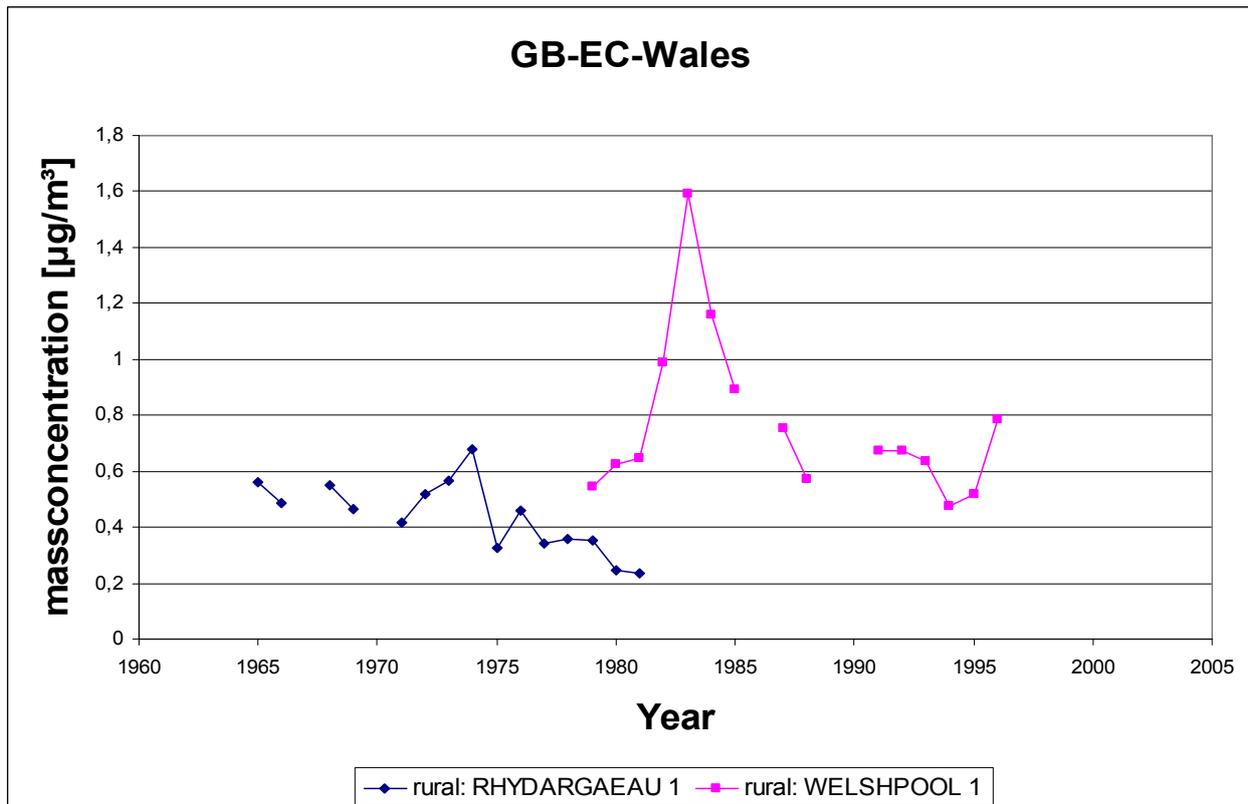
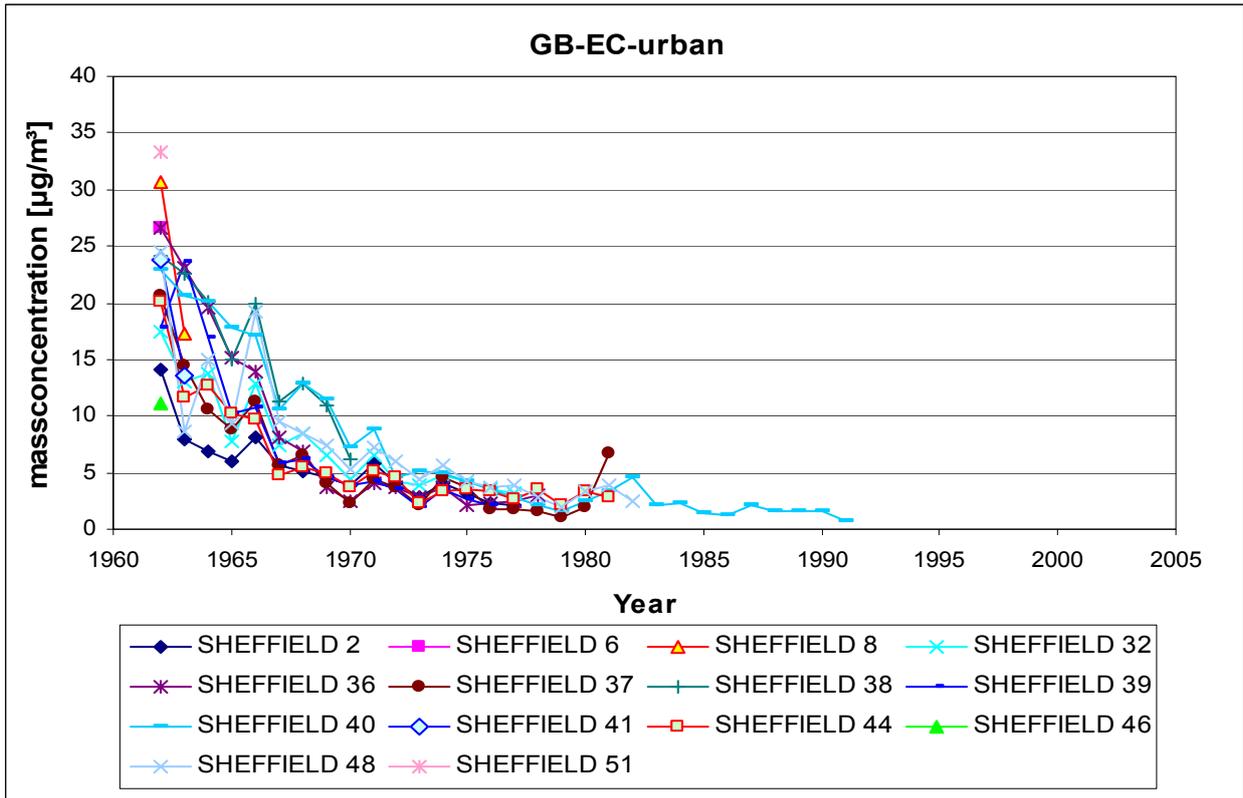


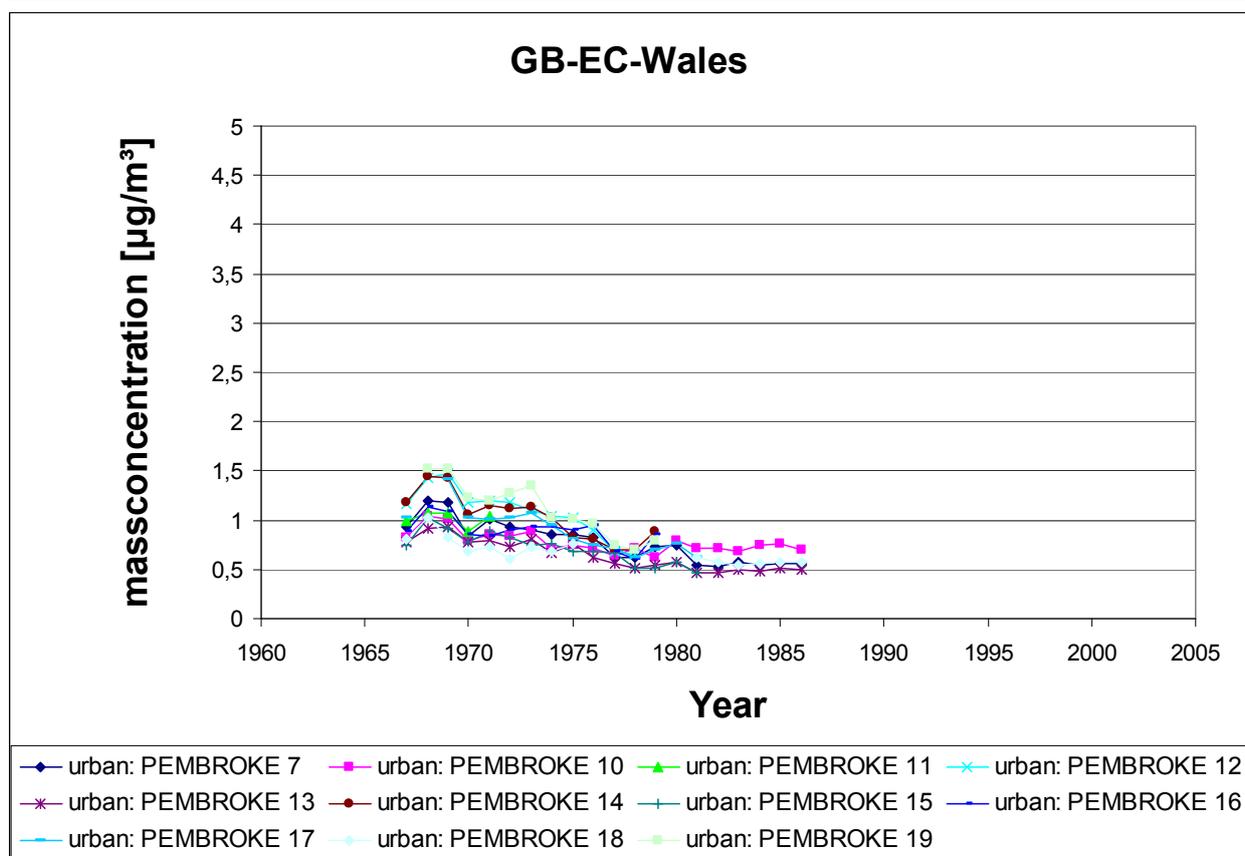
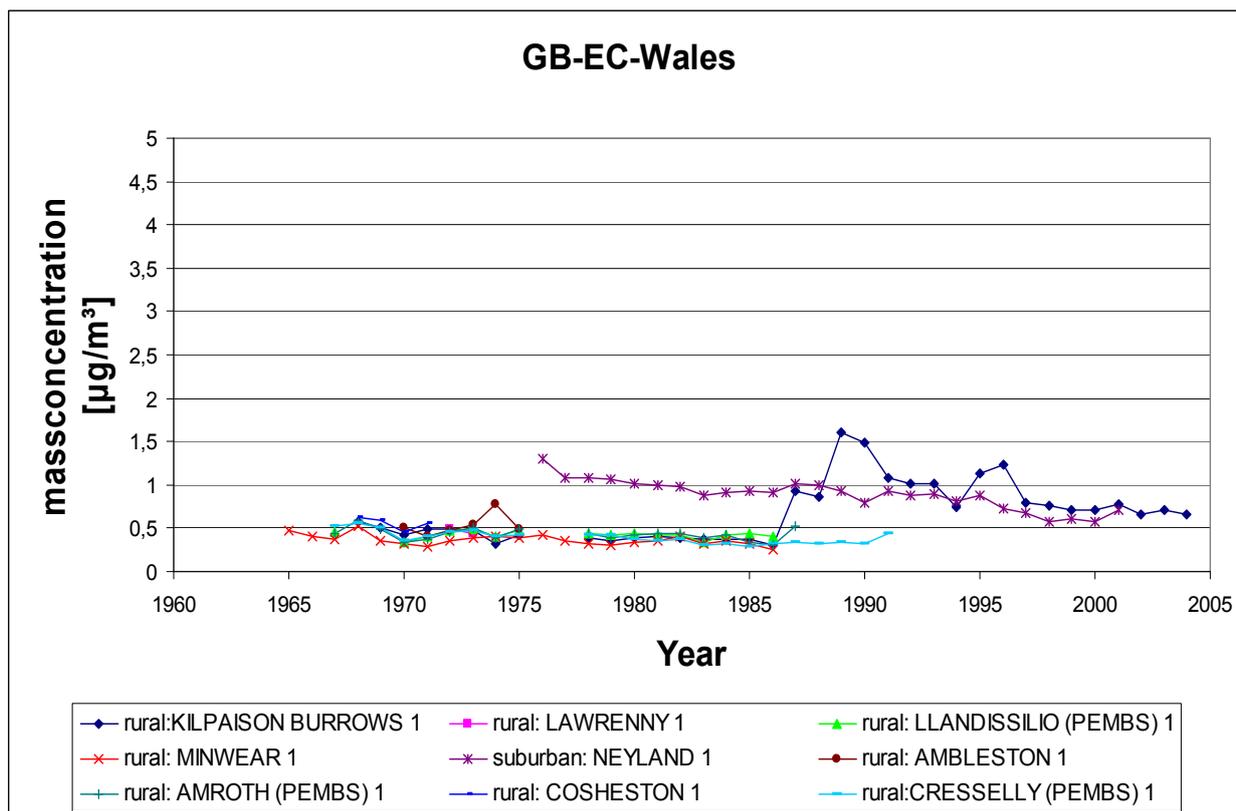


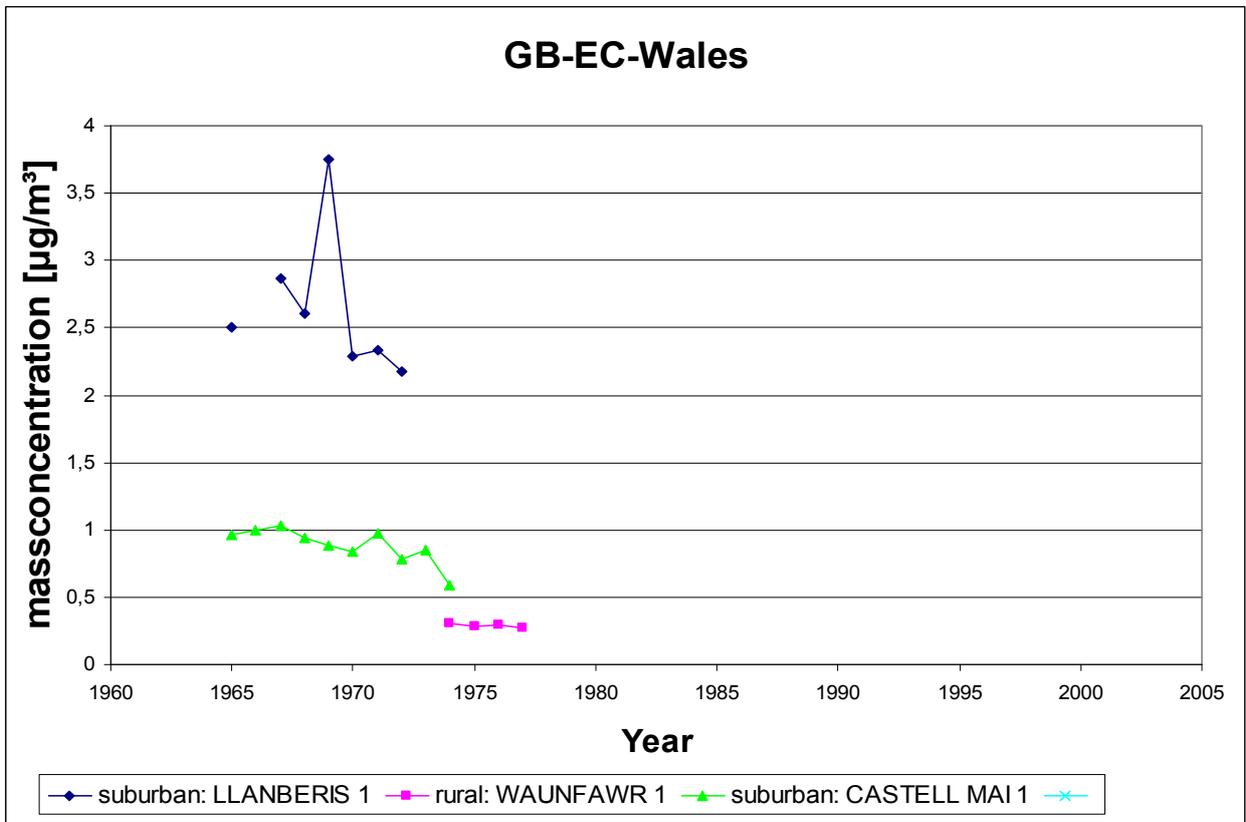
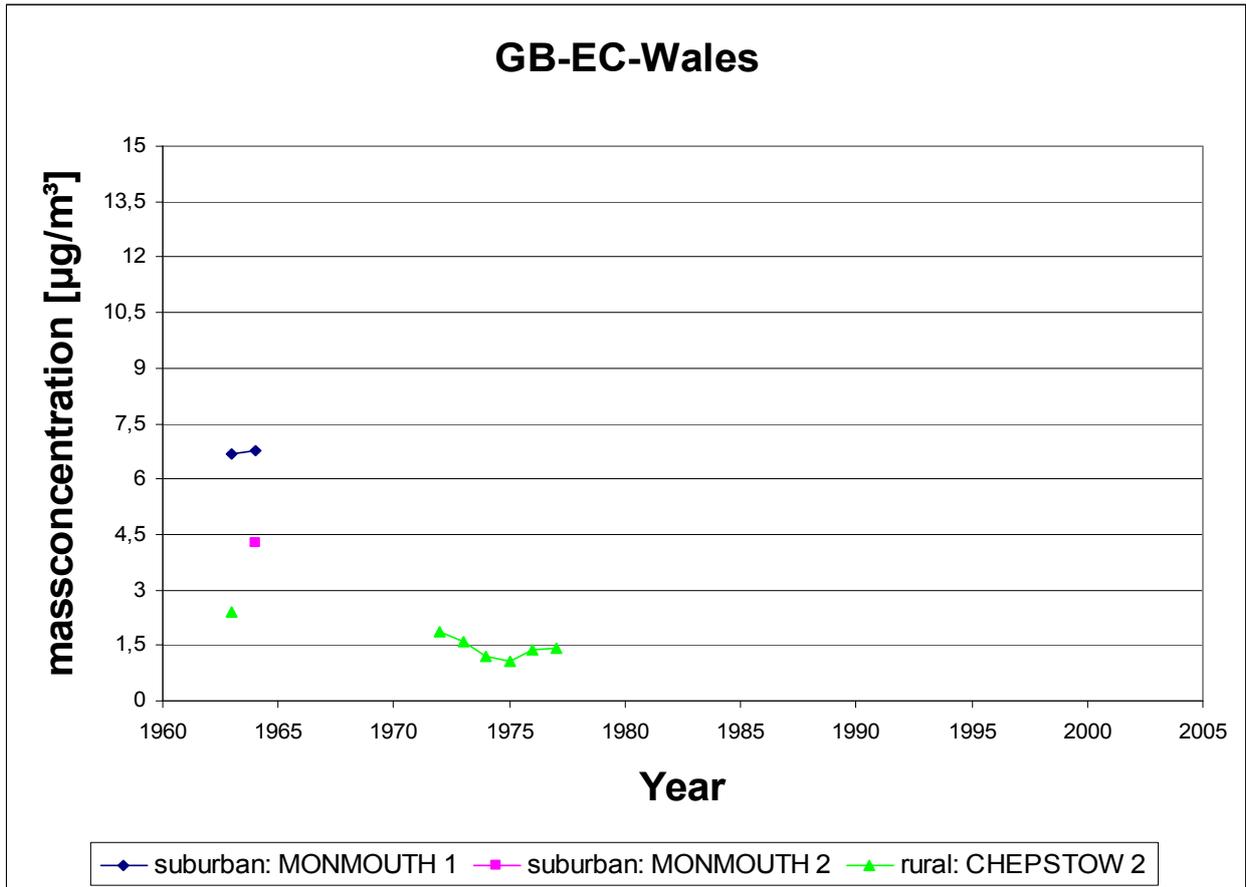
Anhang B-2

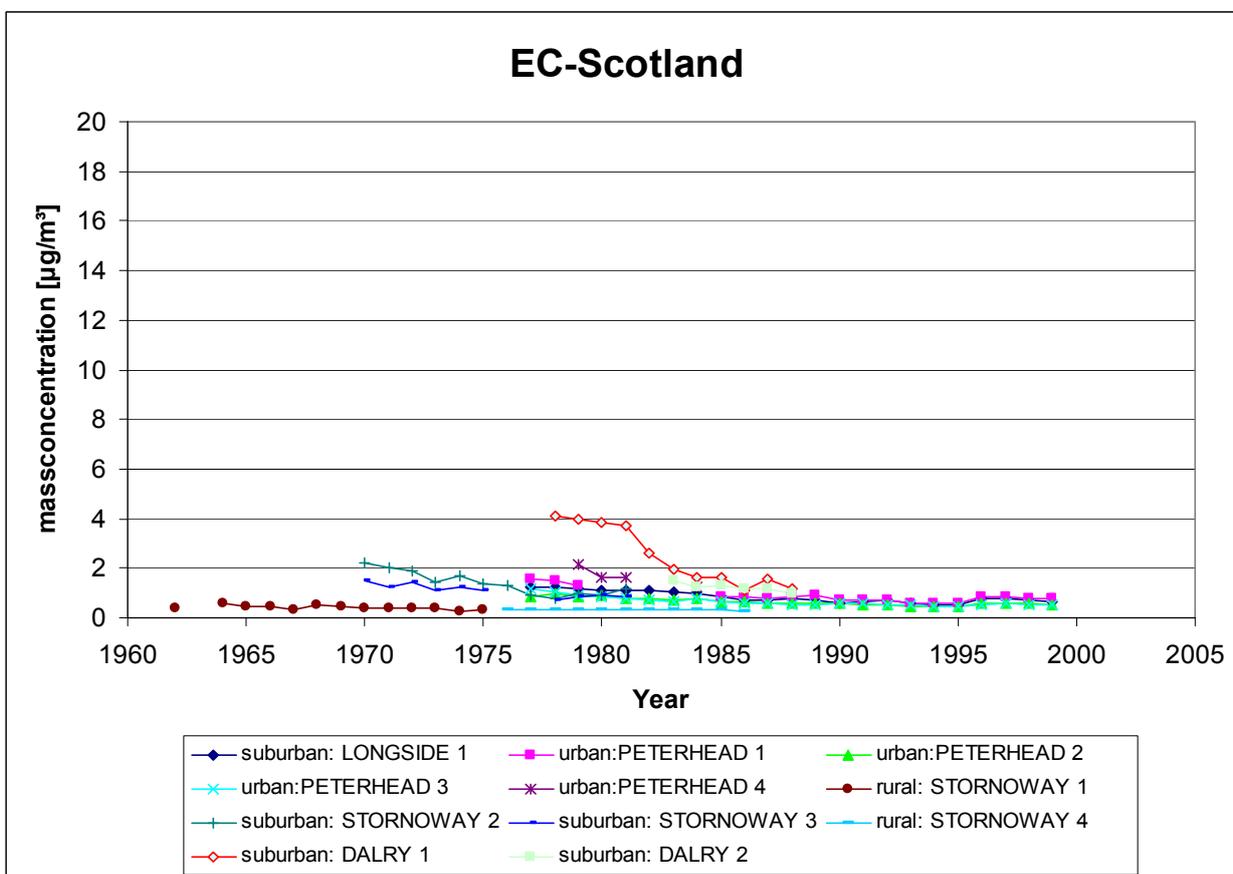
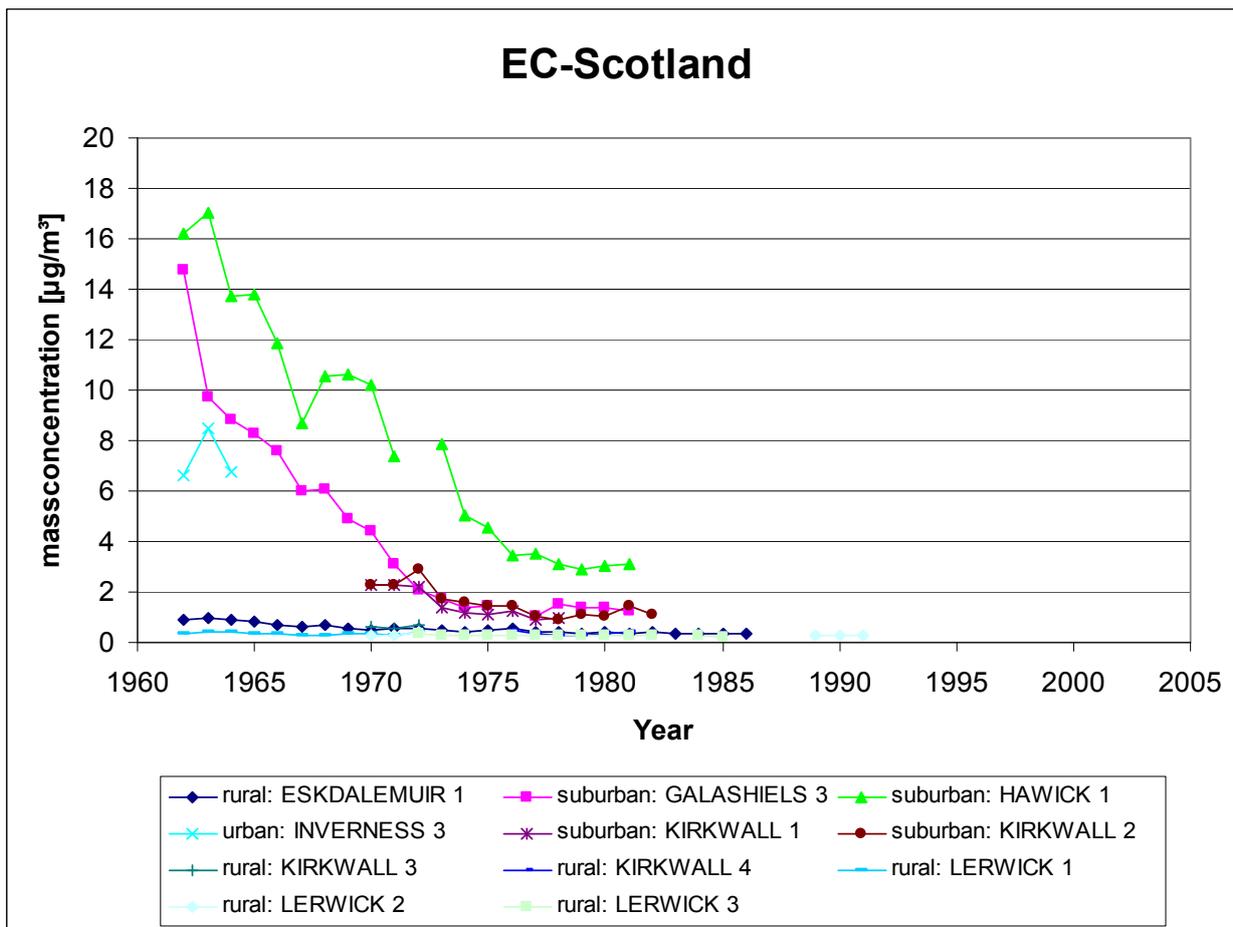


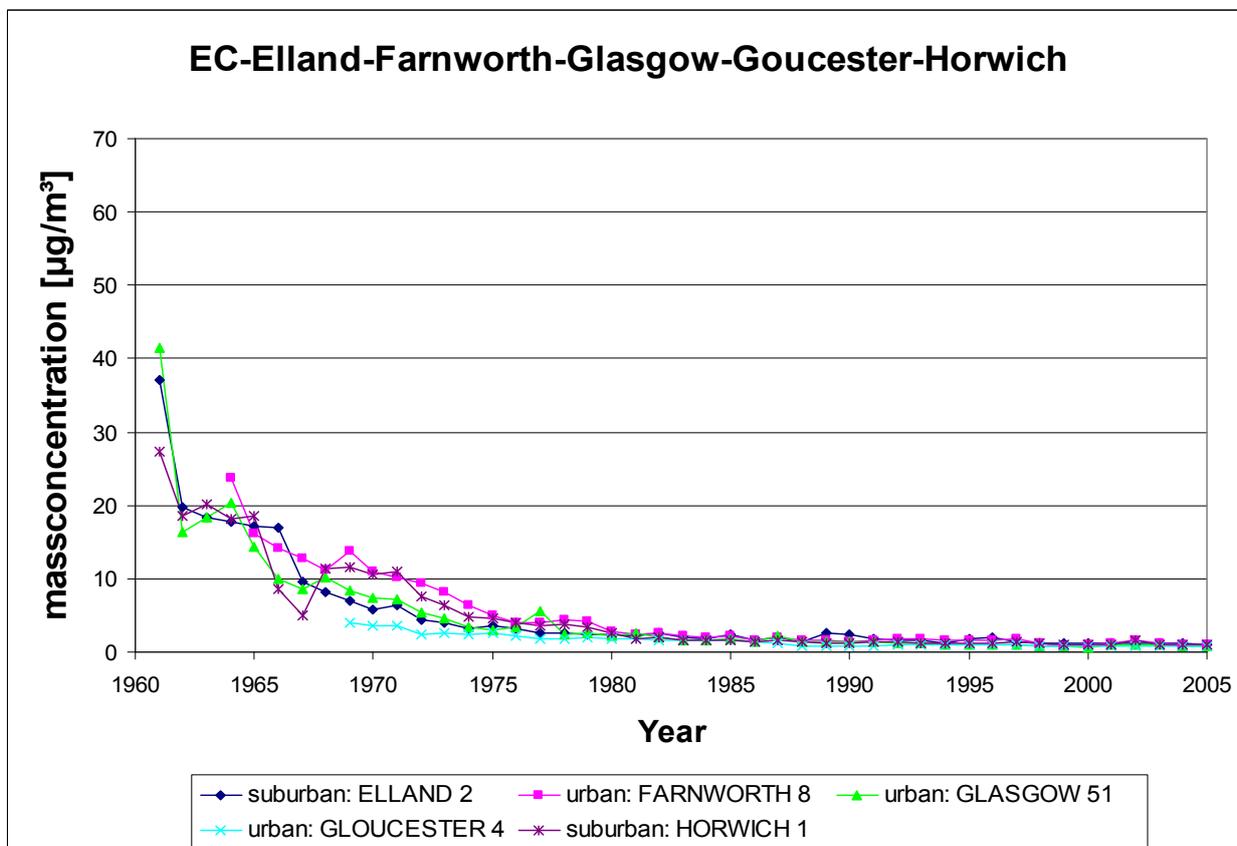
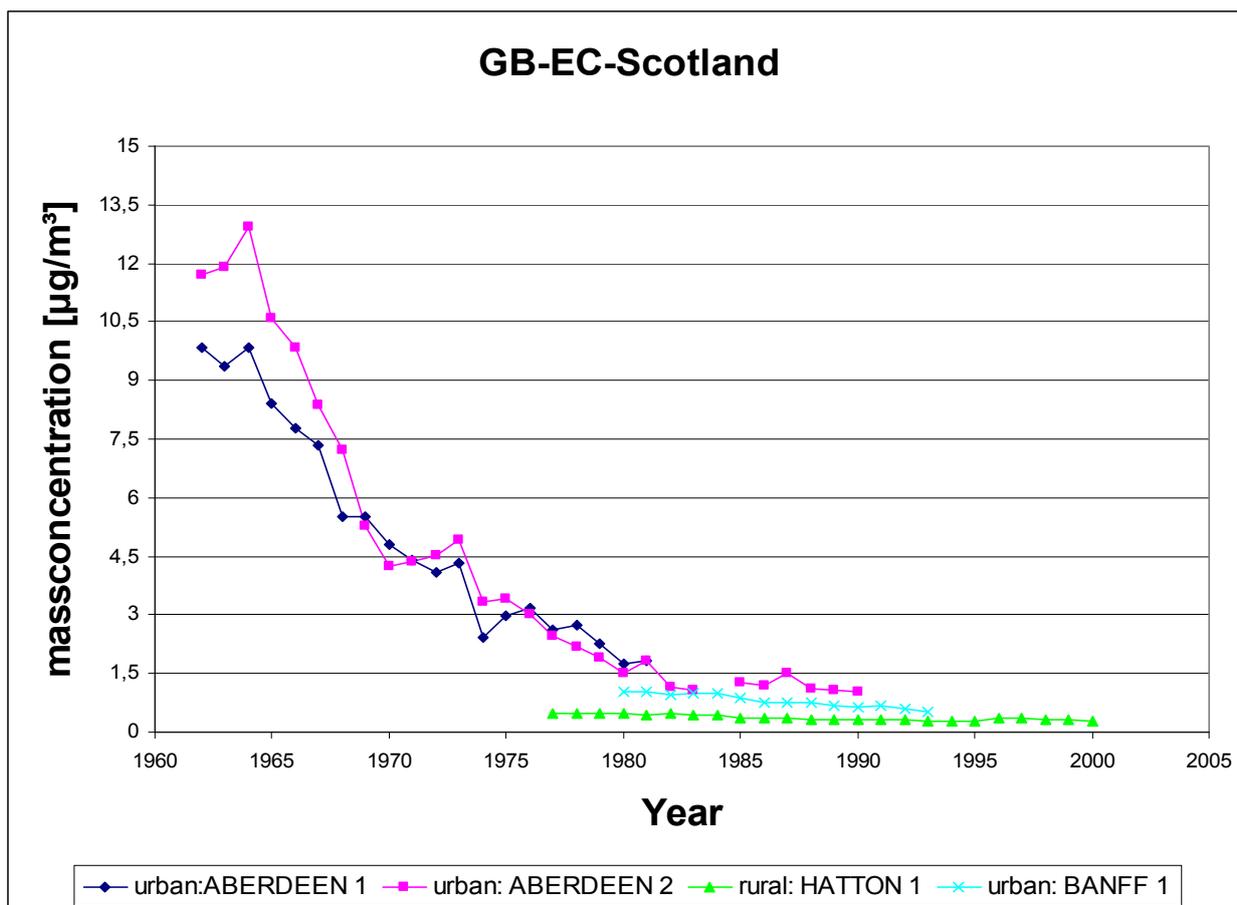


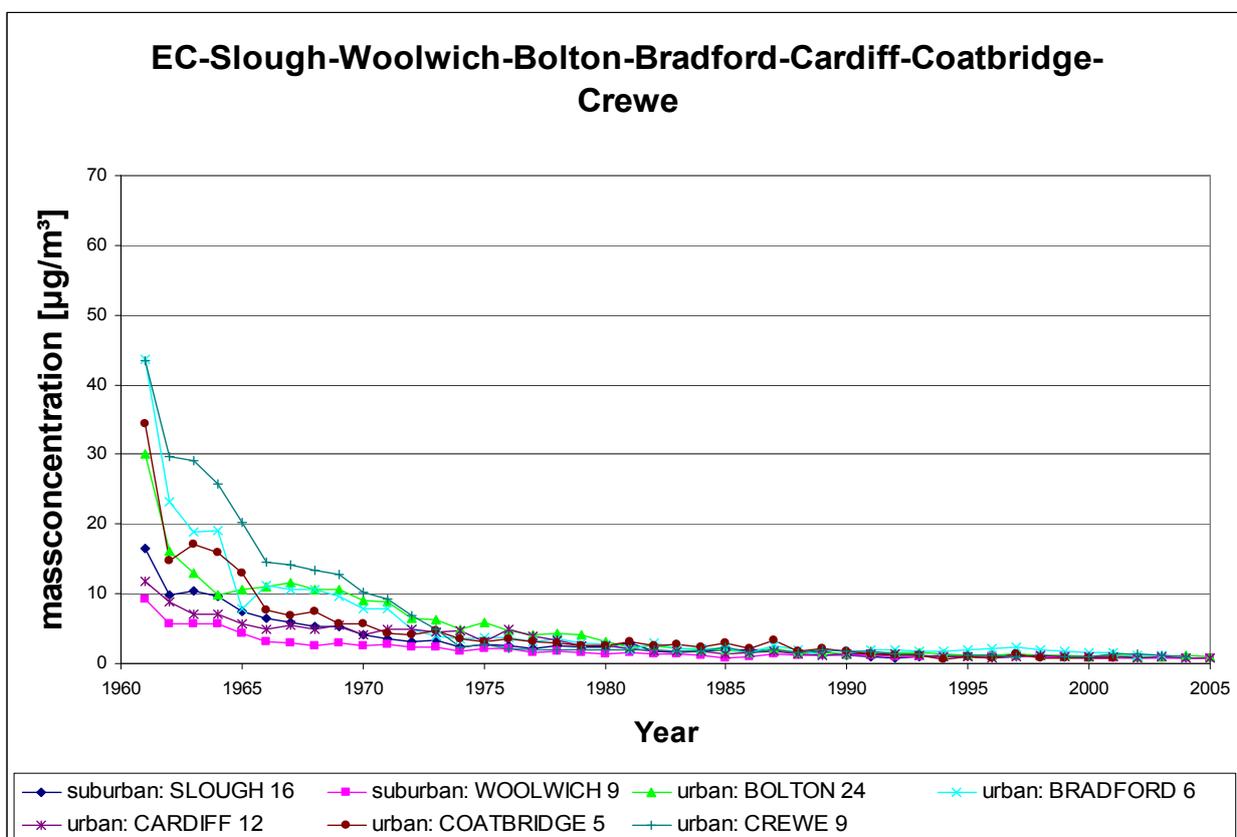
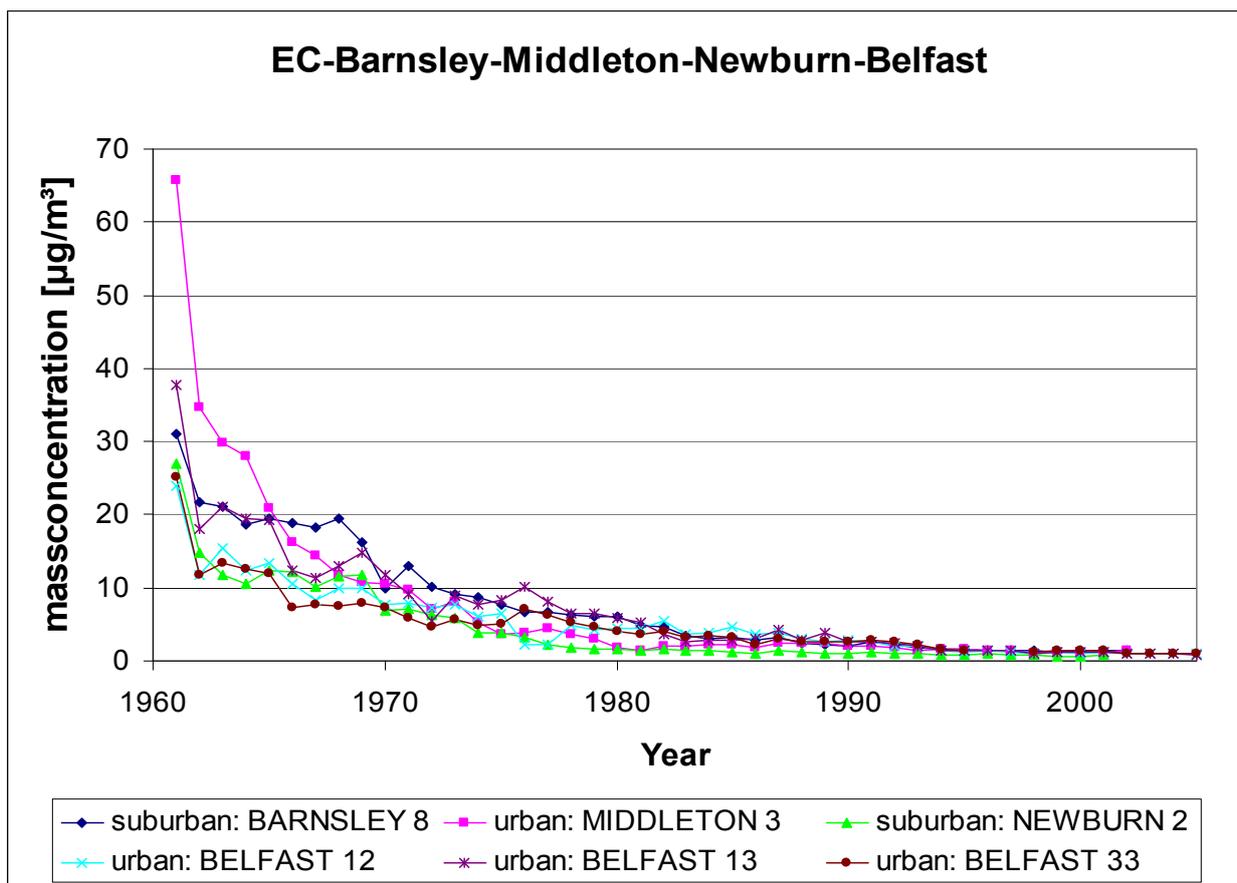




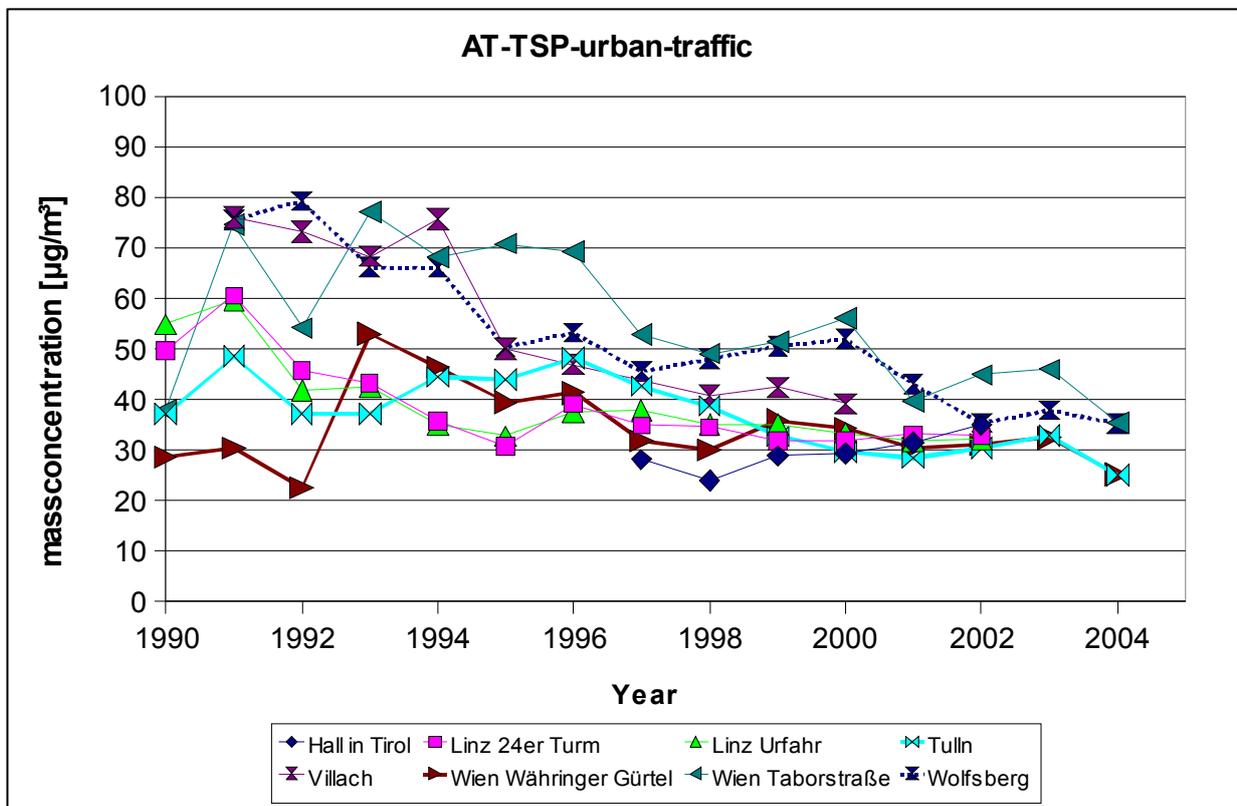
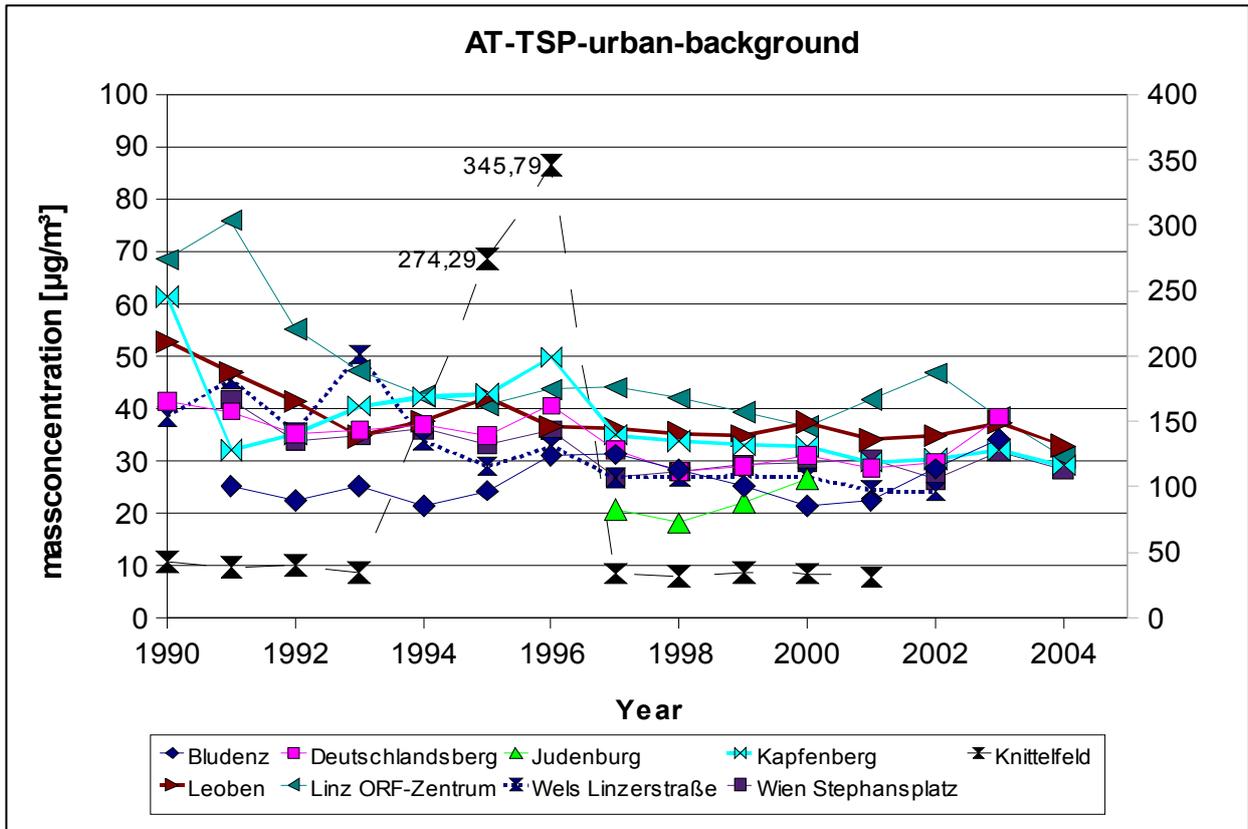


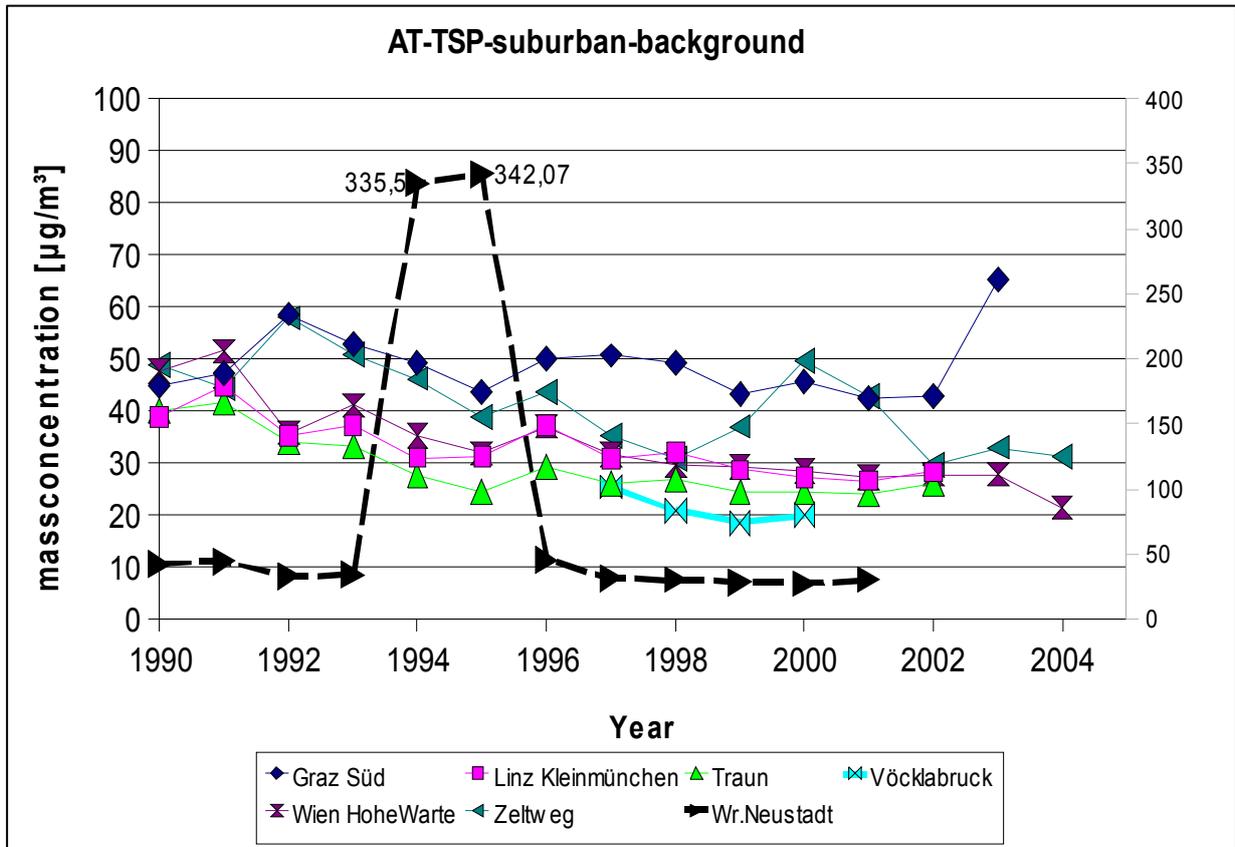
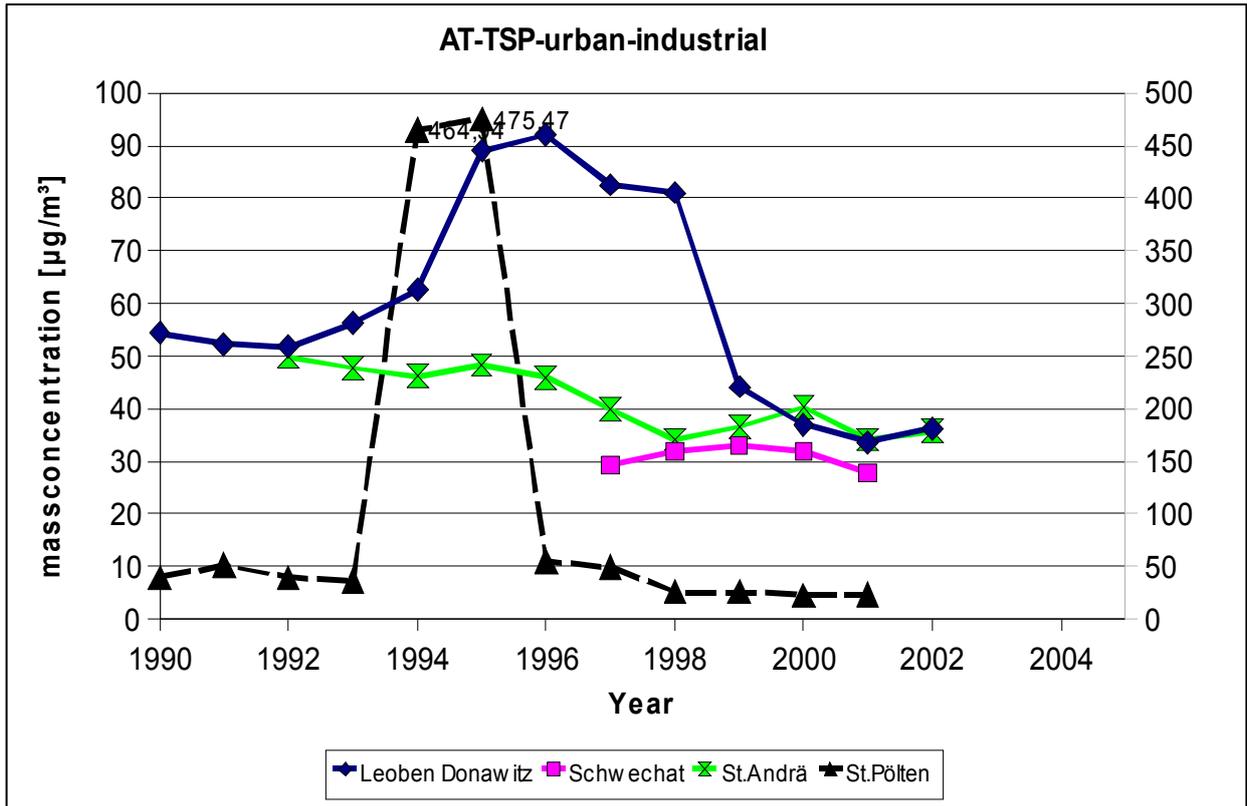


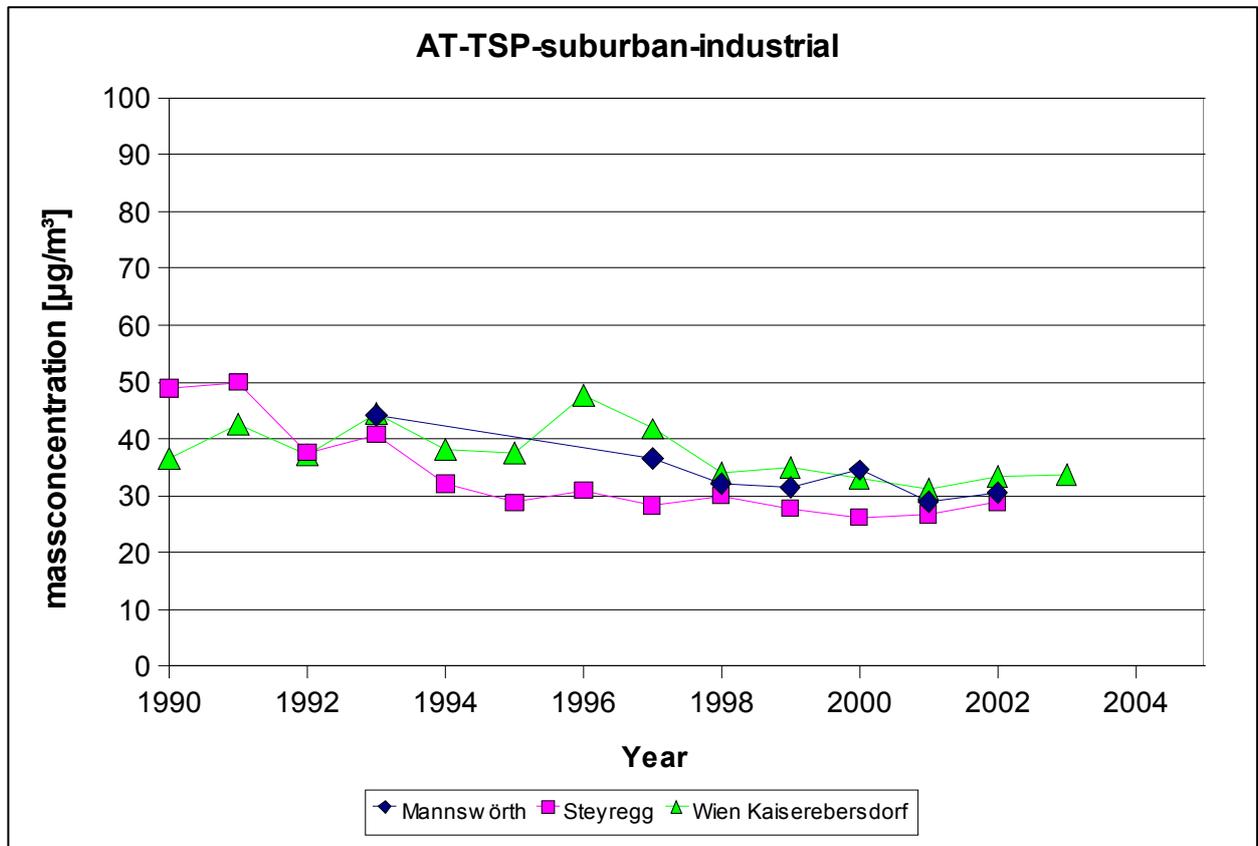
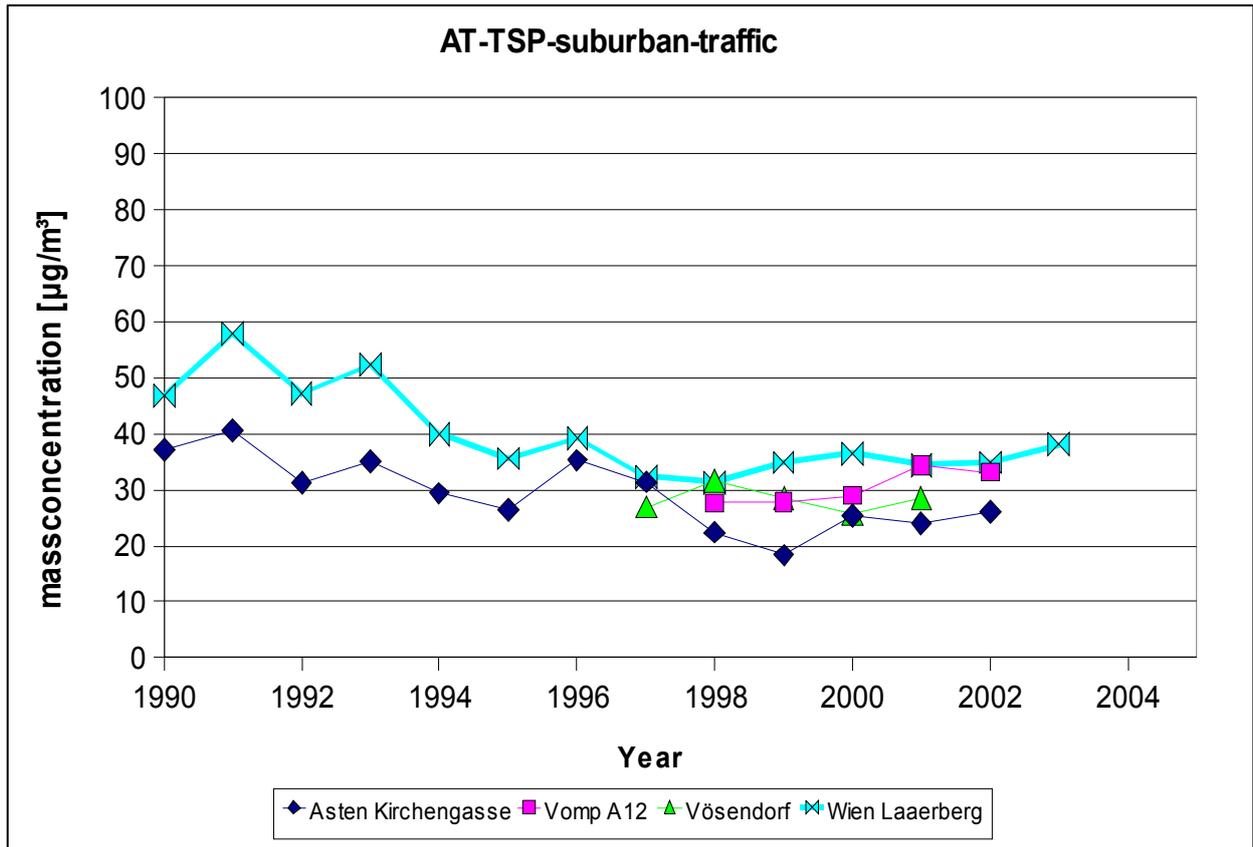


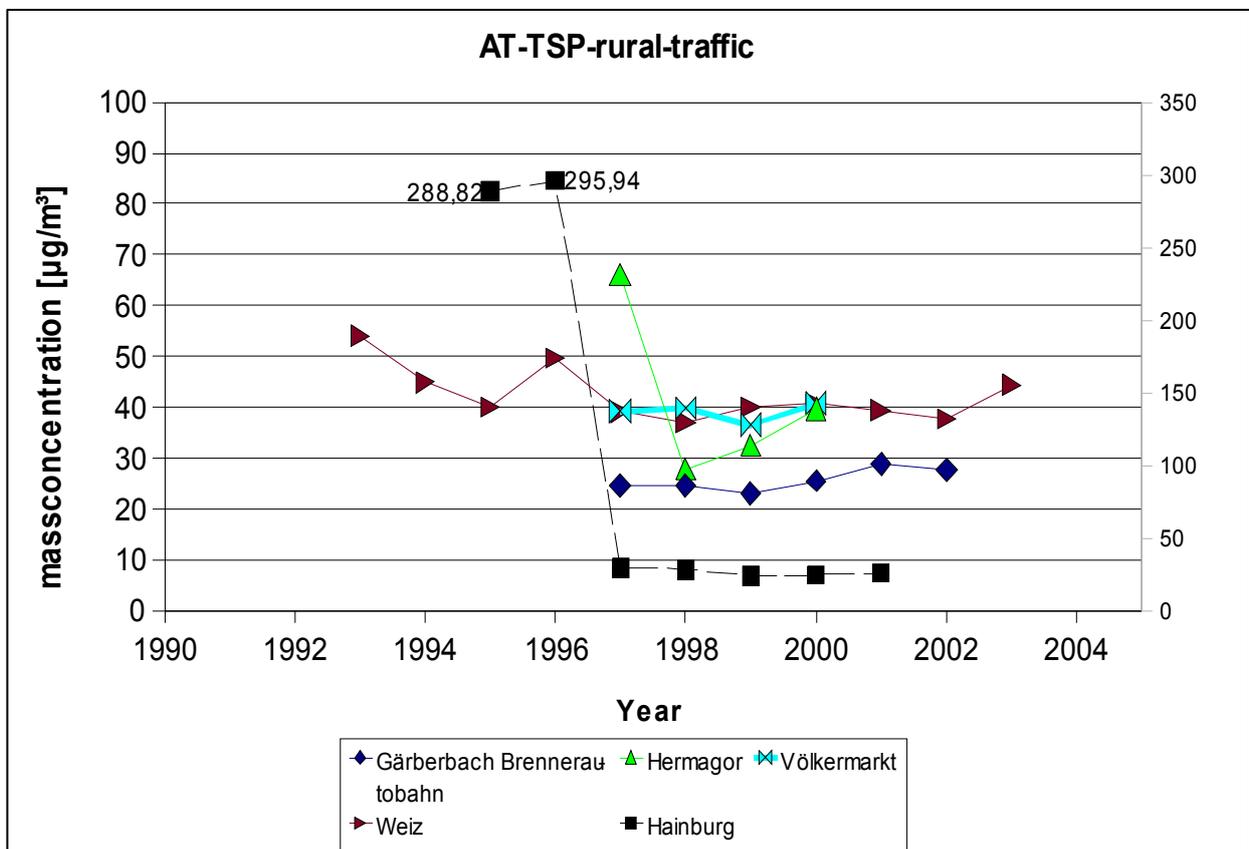
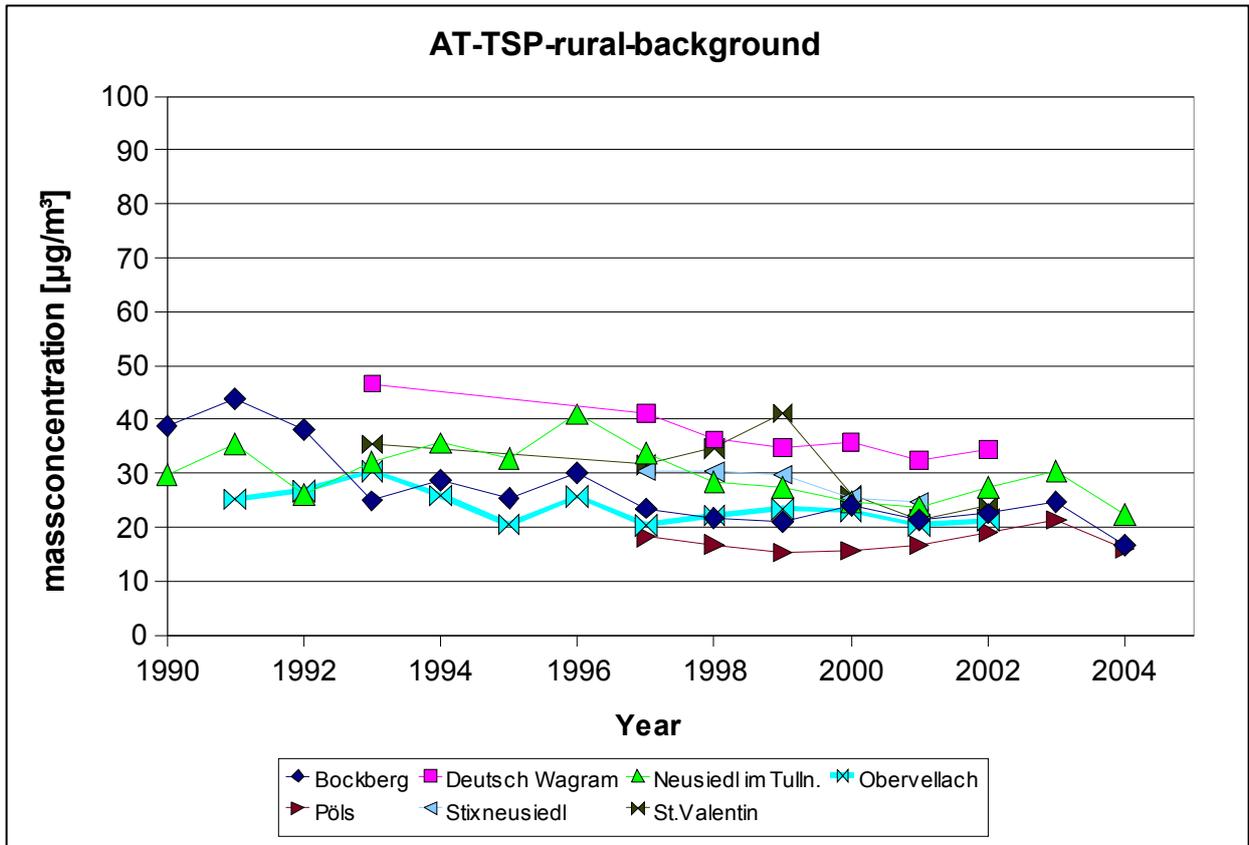


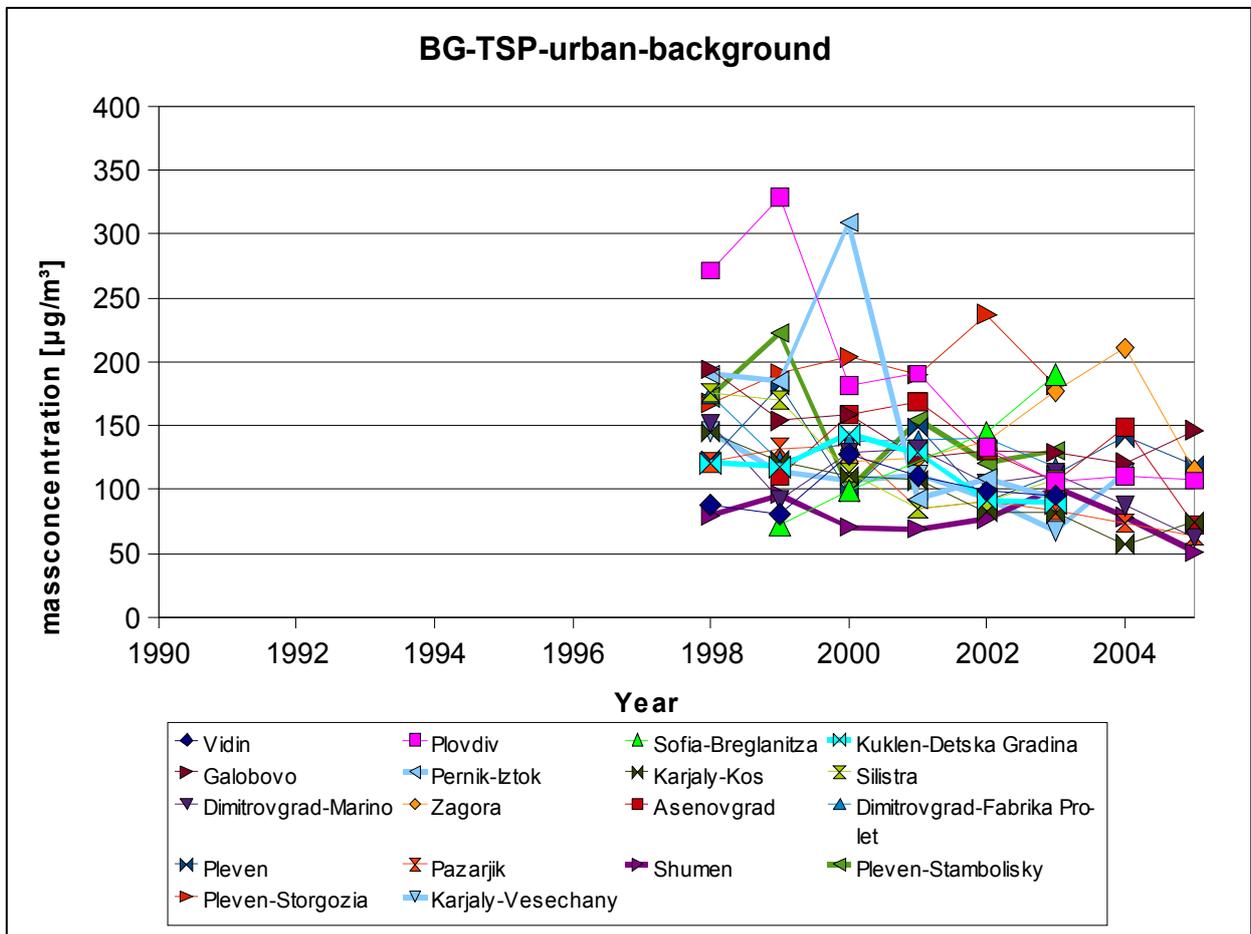
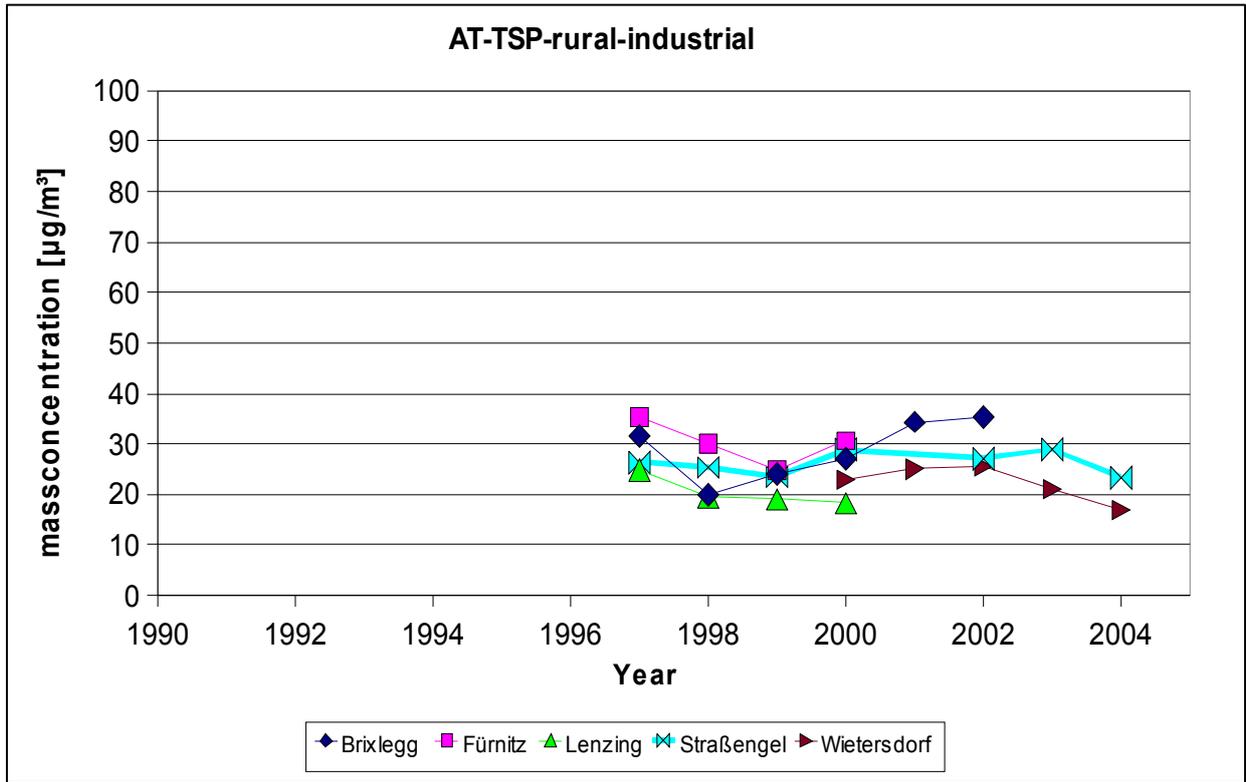
Anhang C

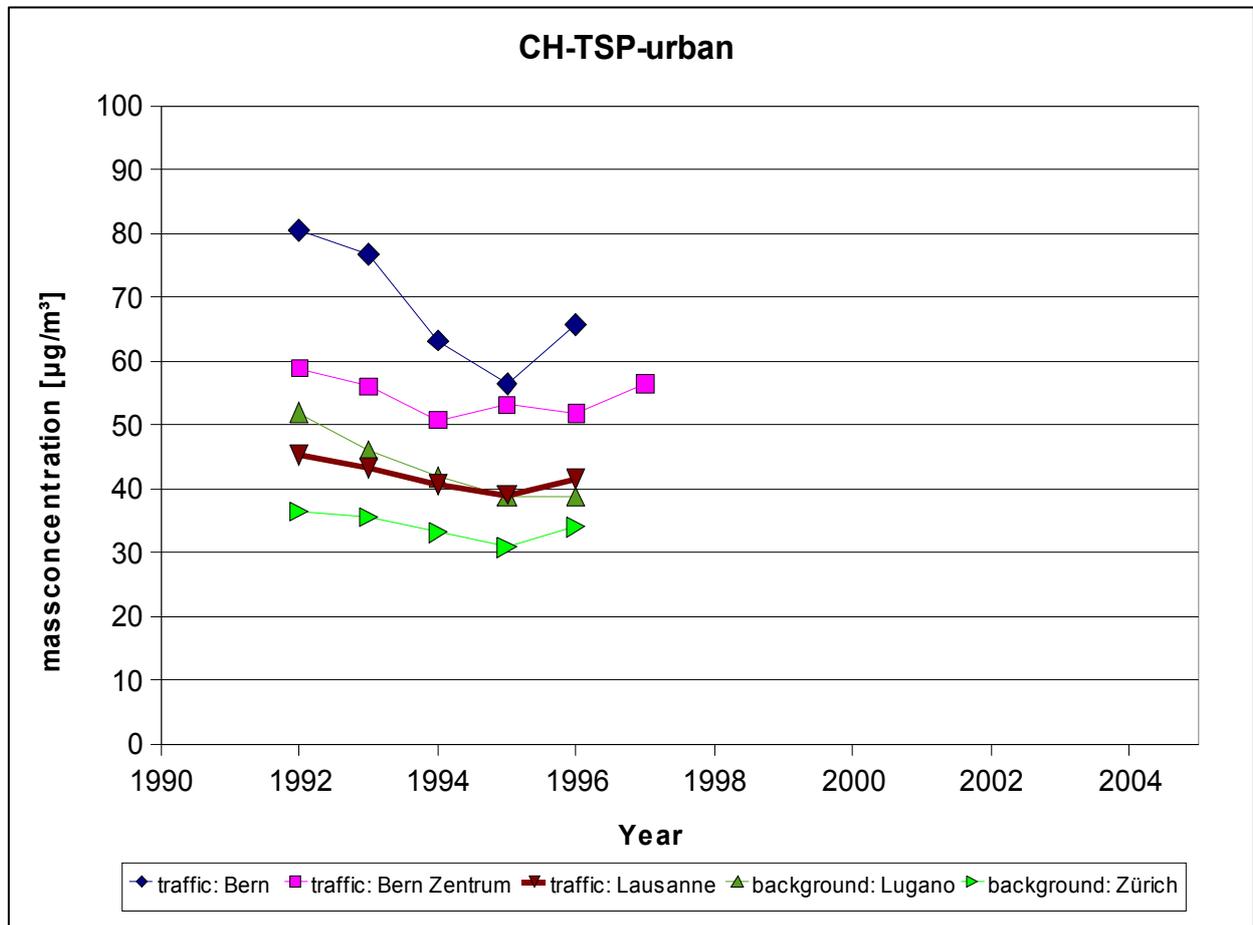
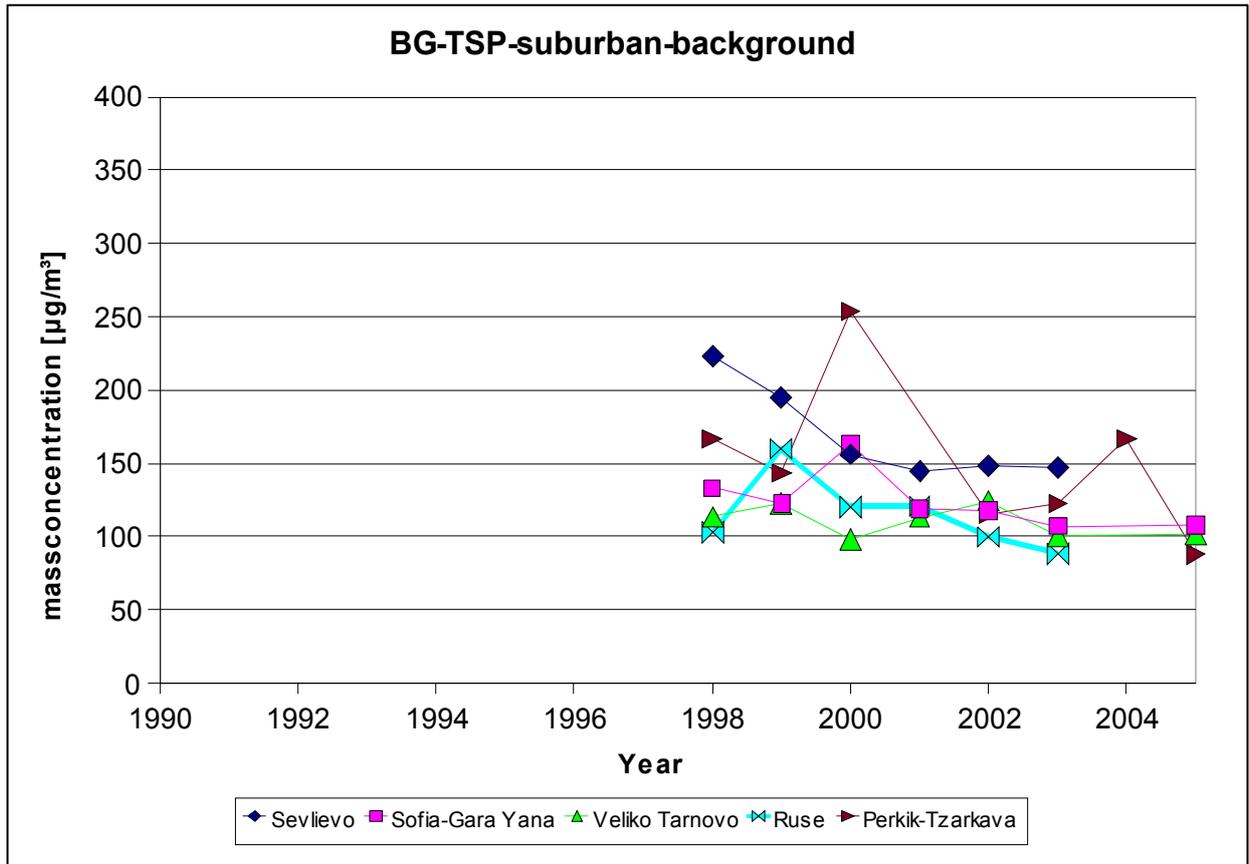


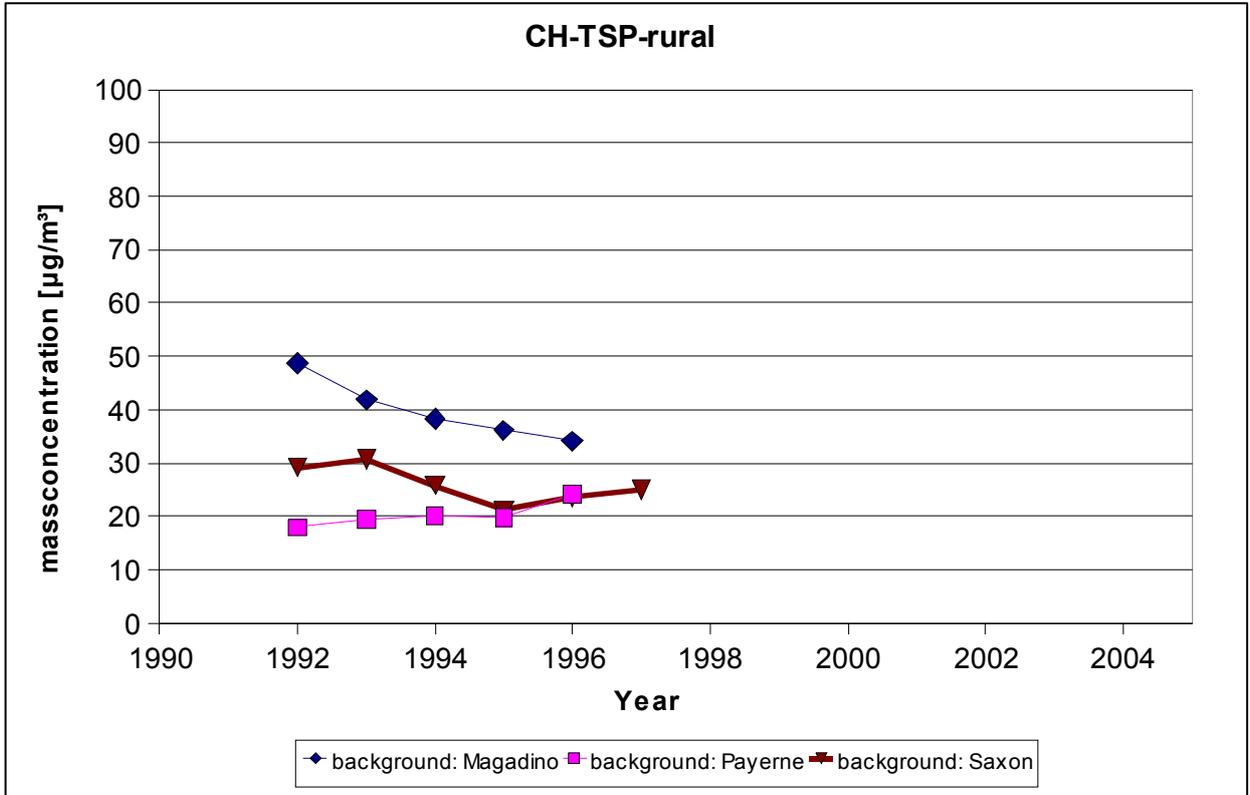
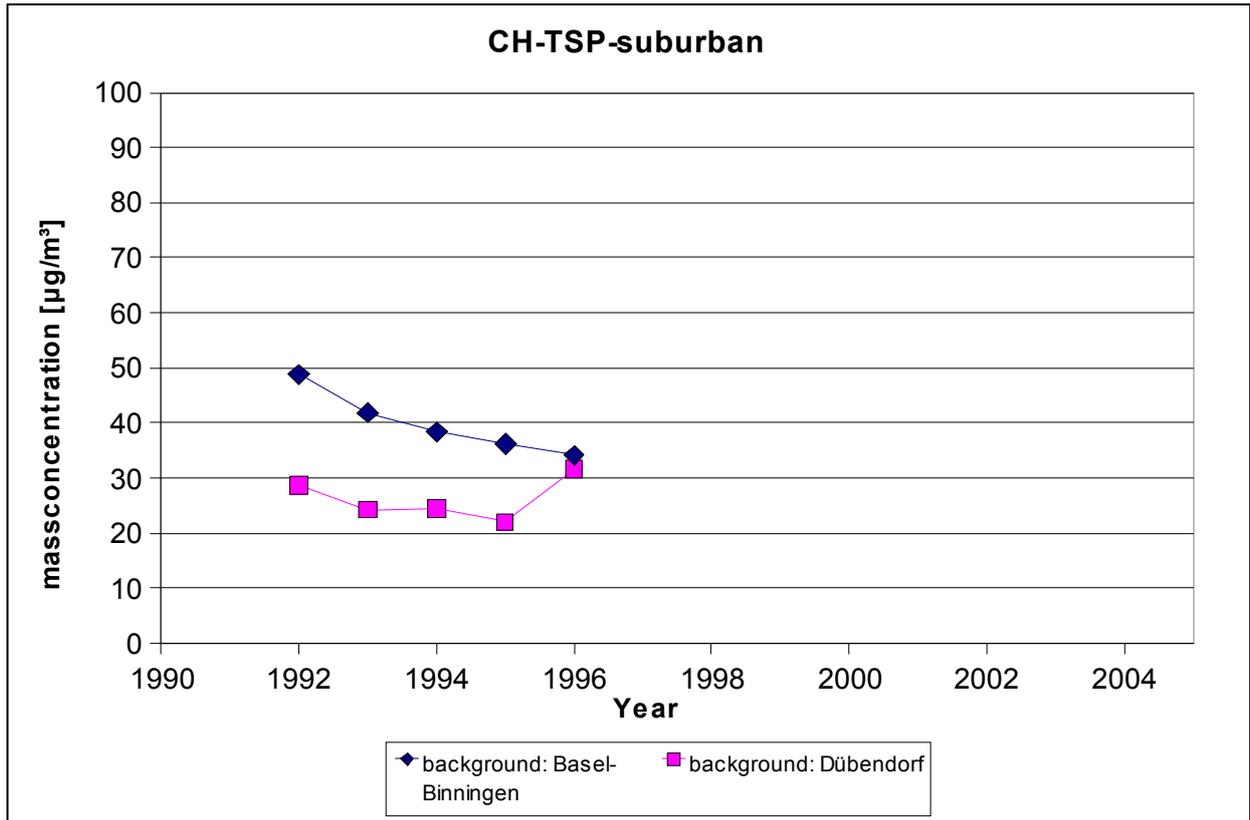


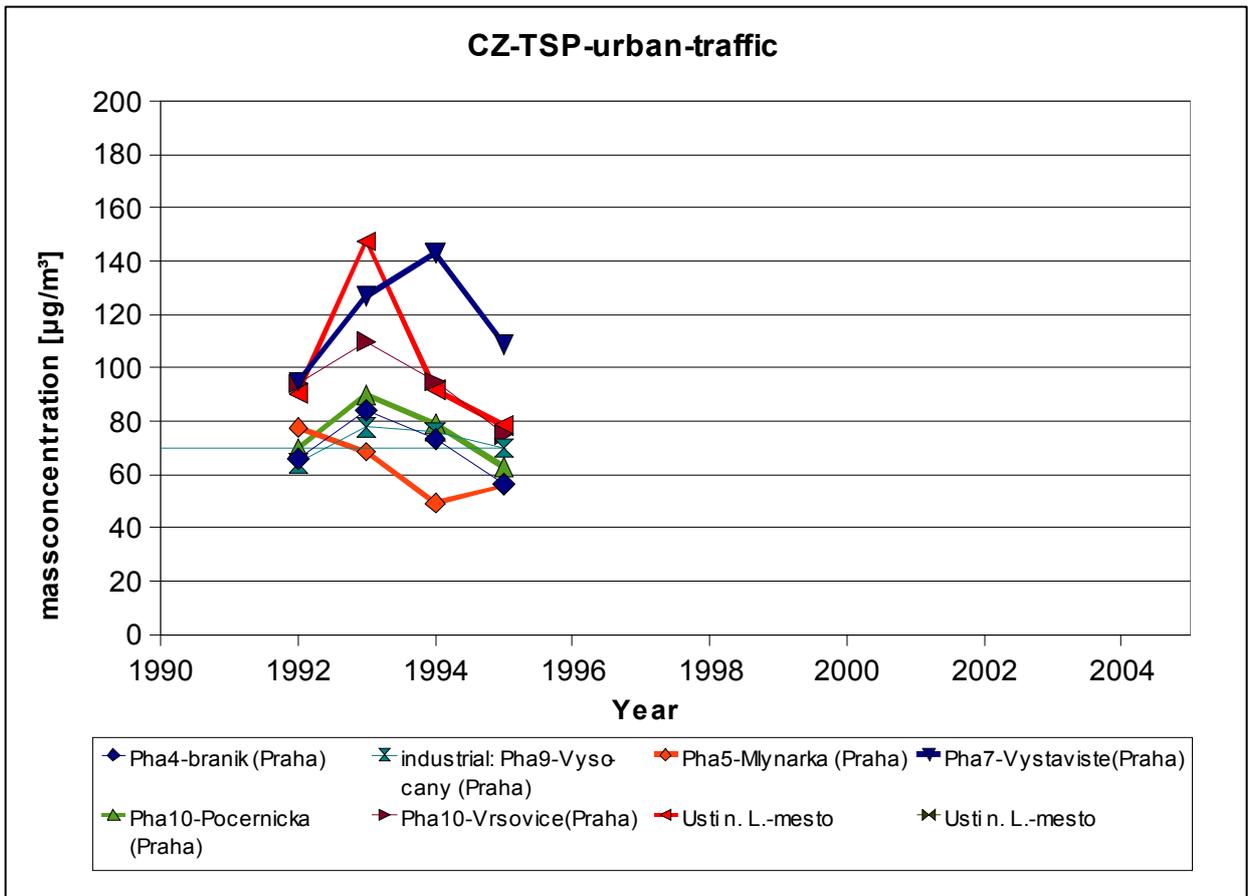
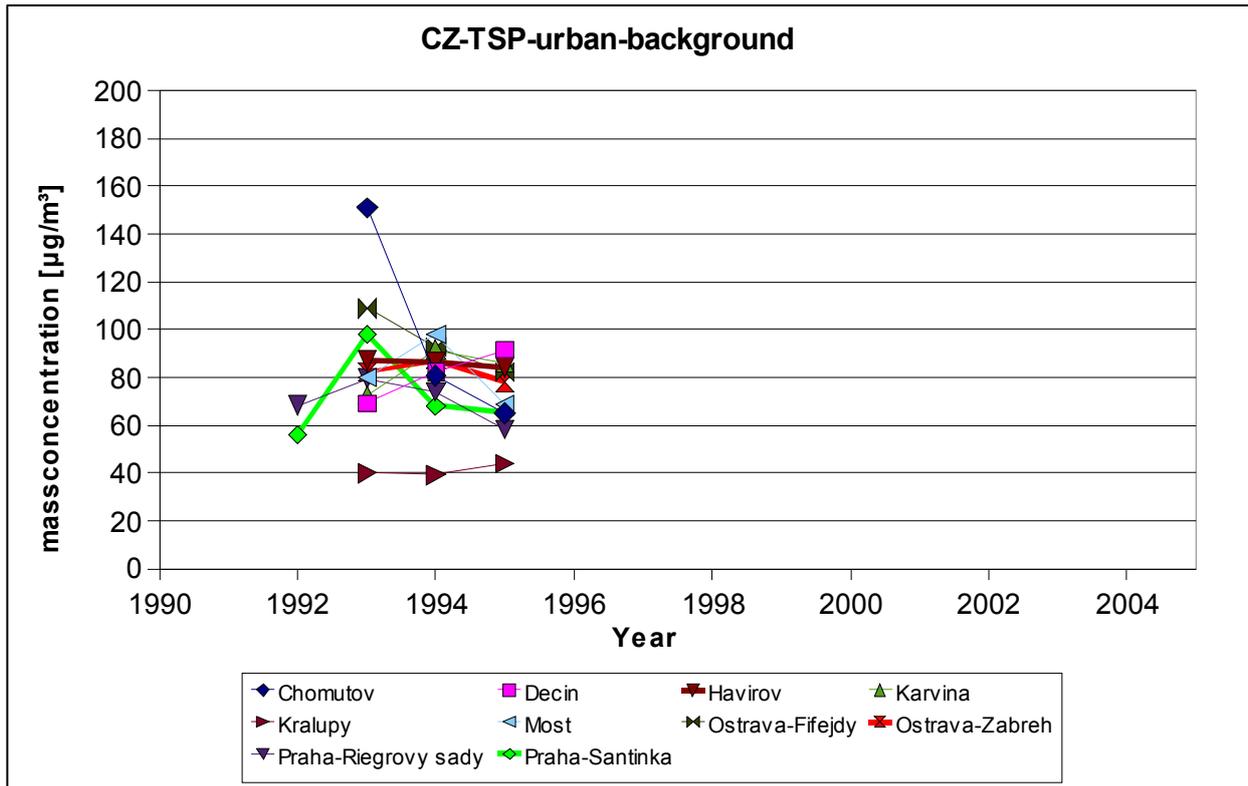


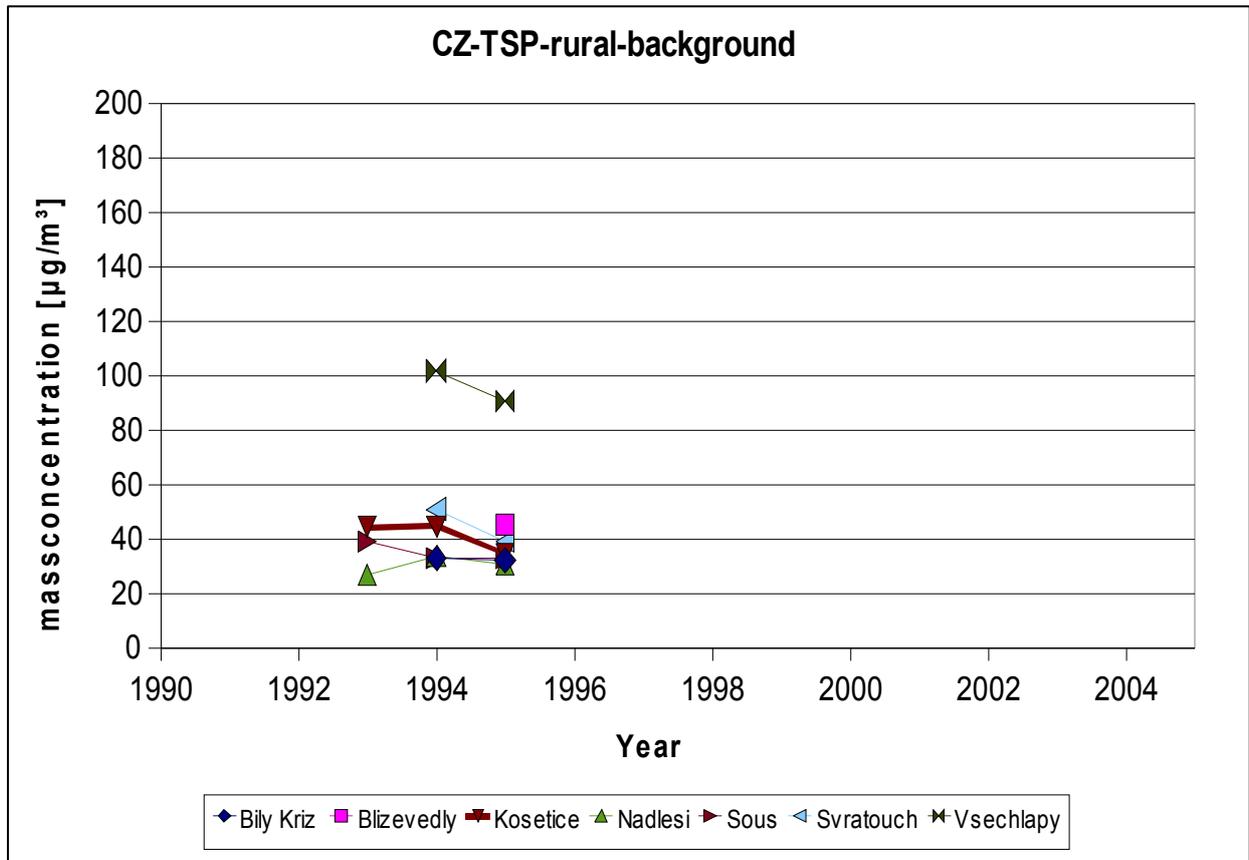
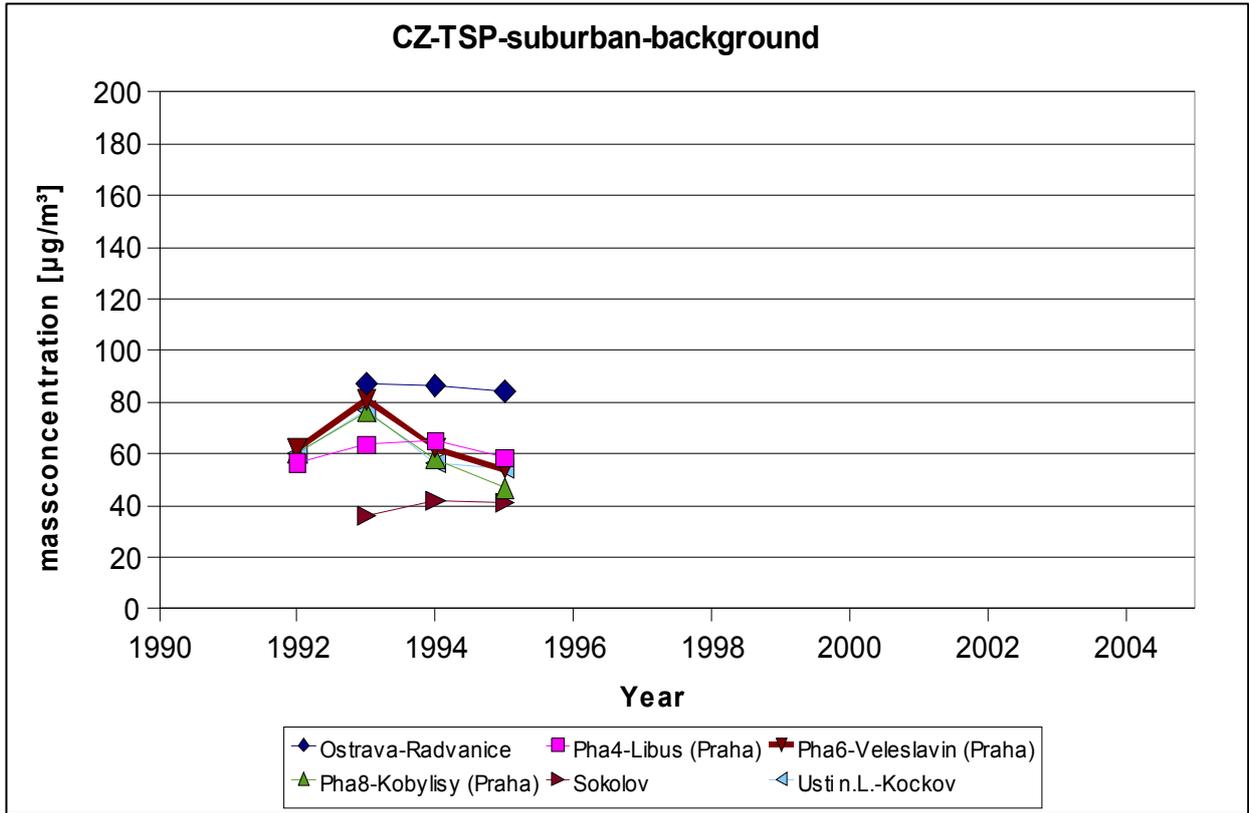


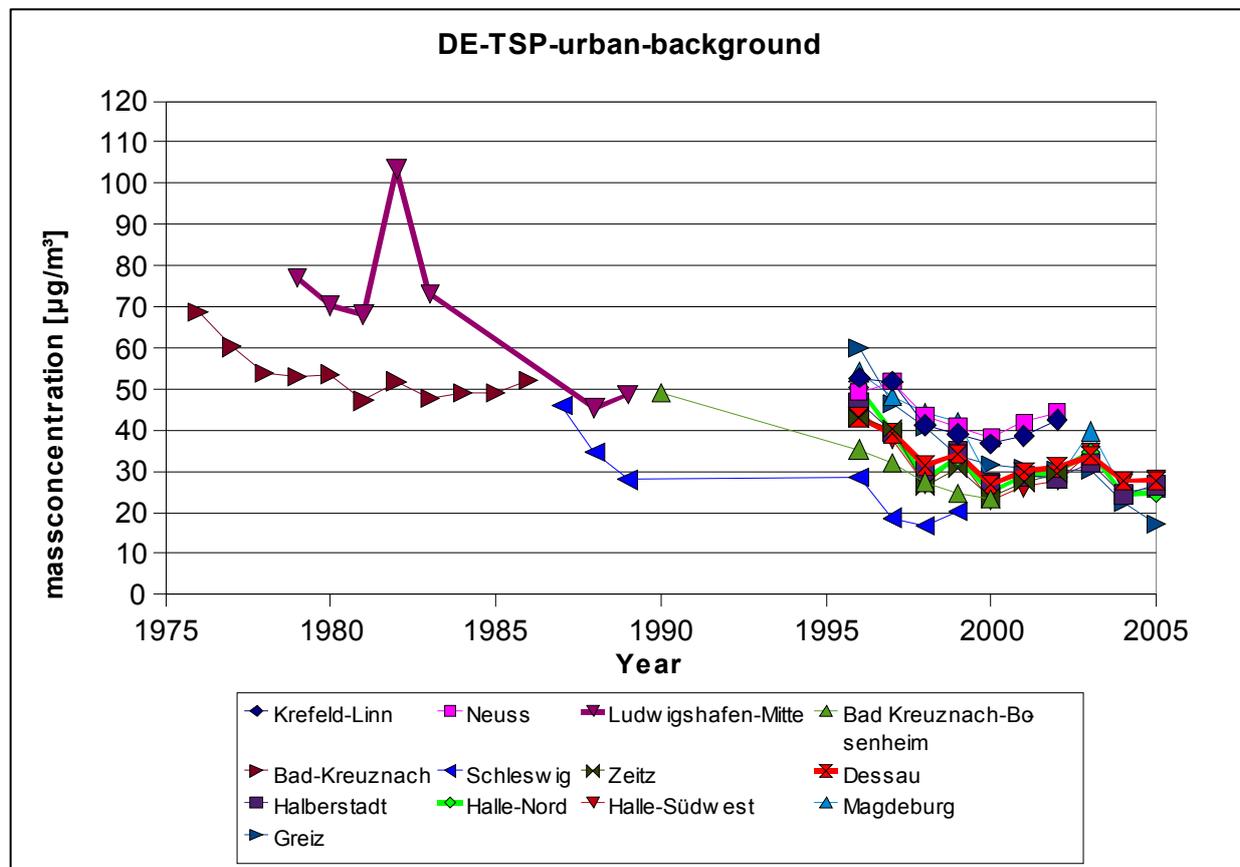
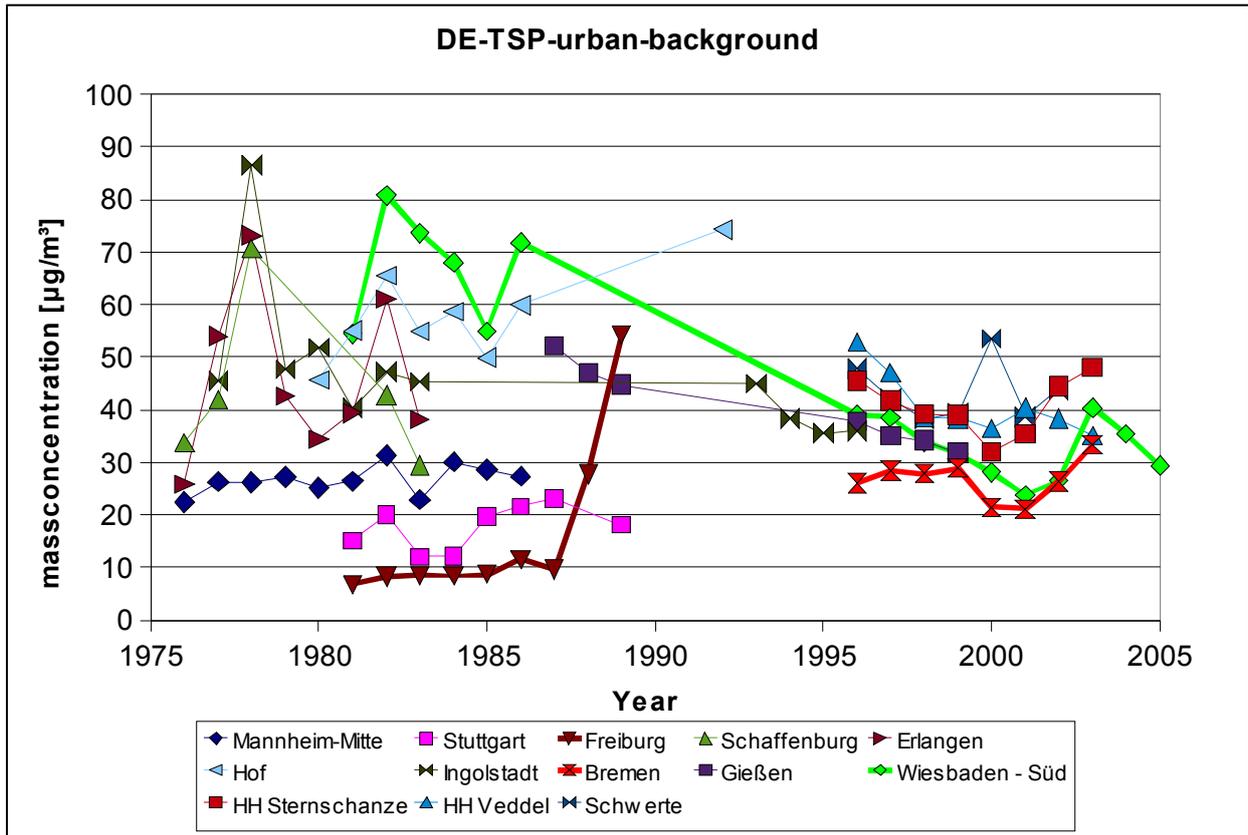


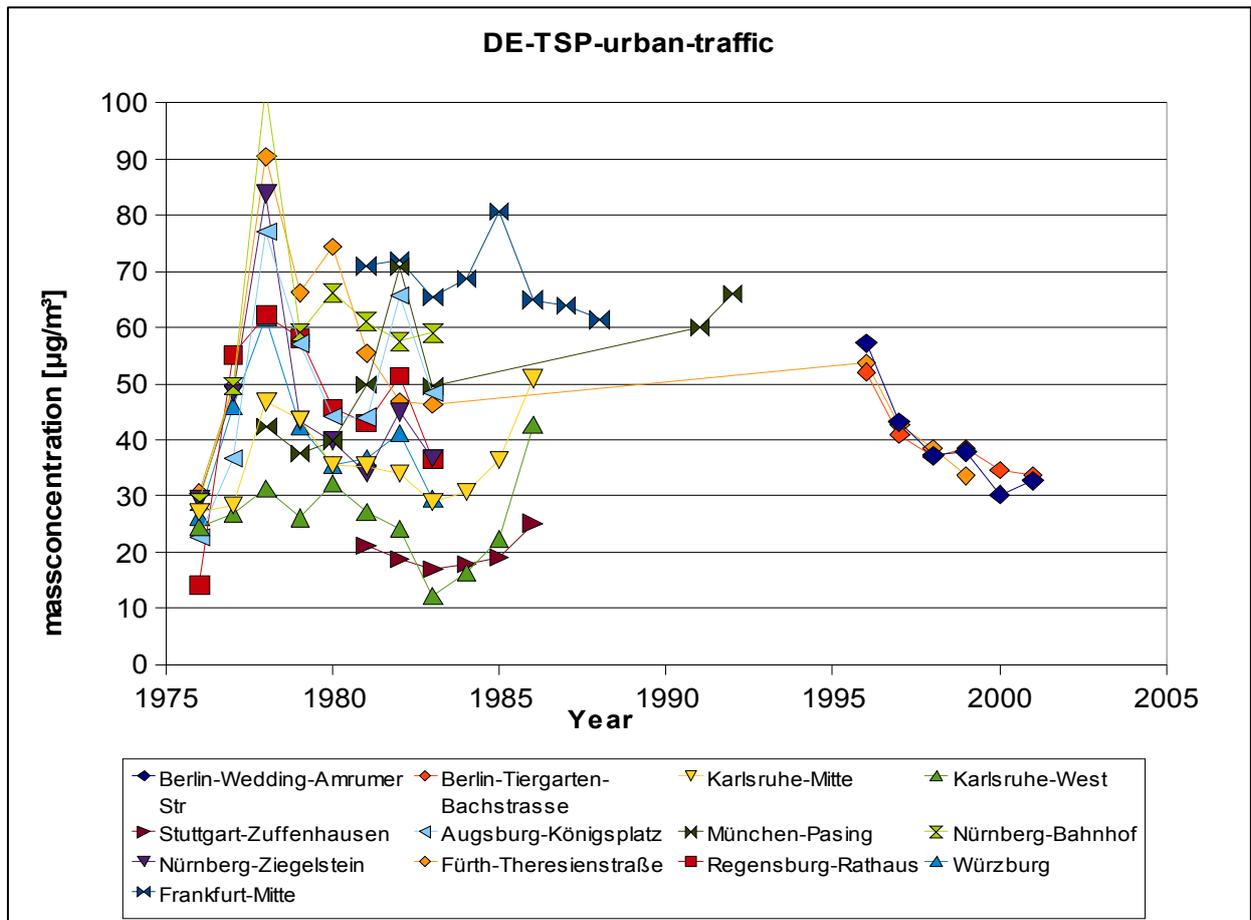
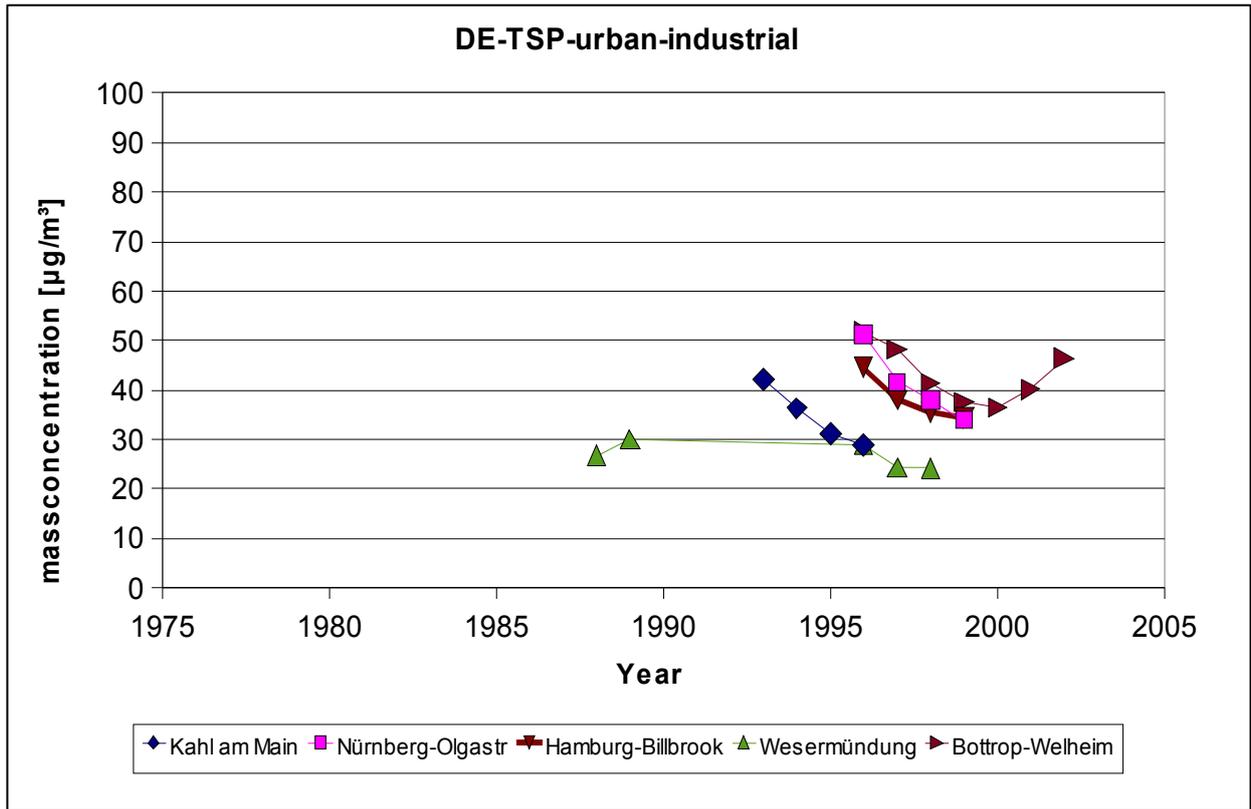


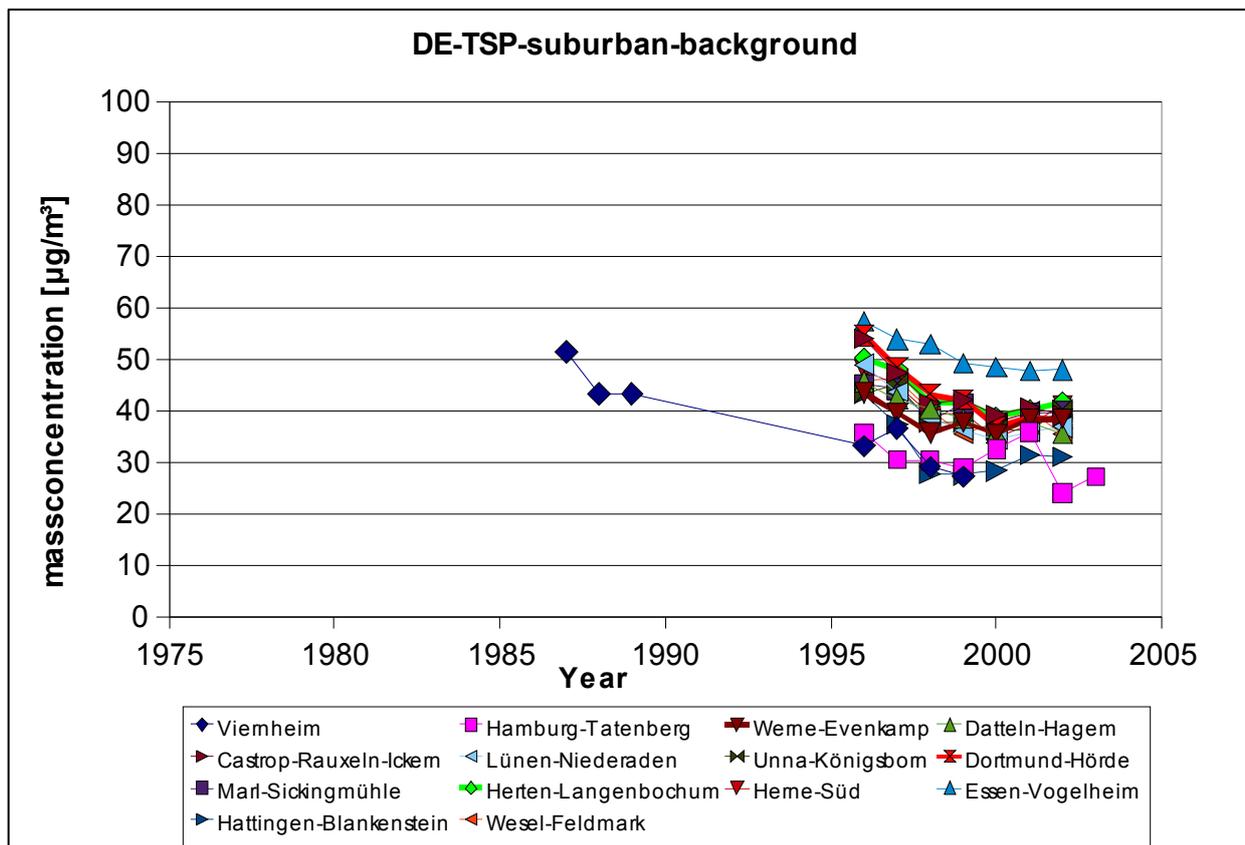
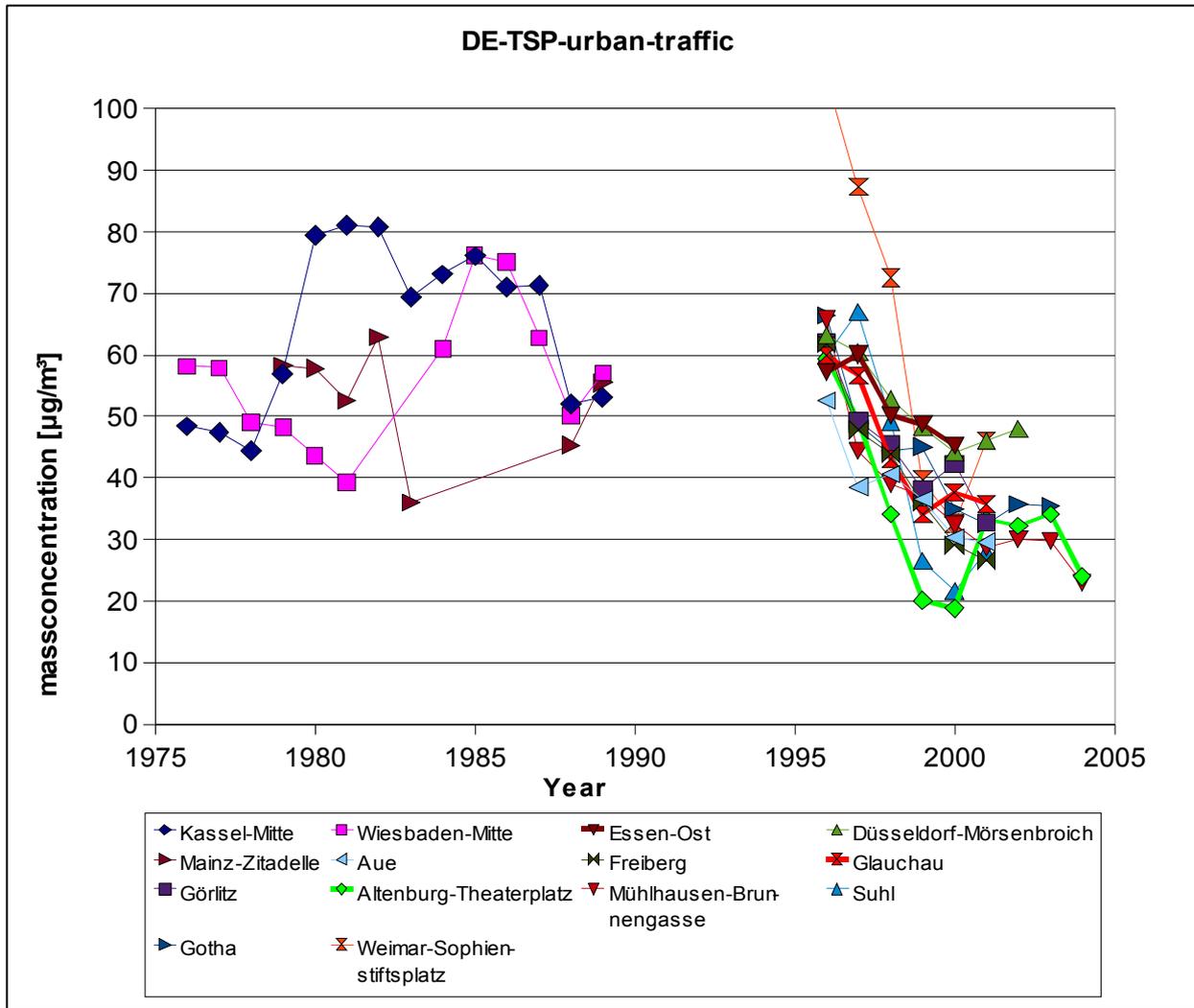


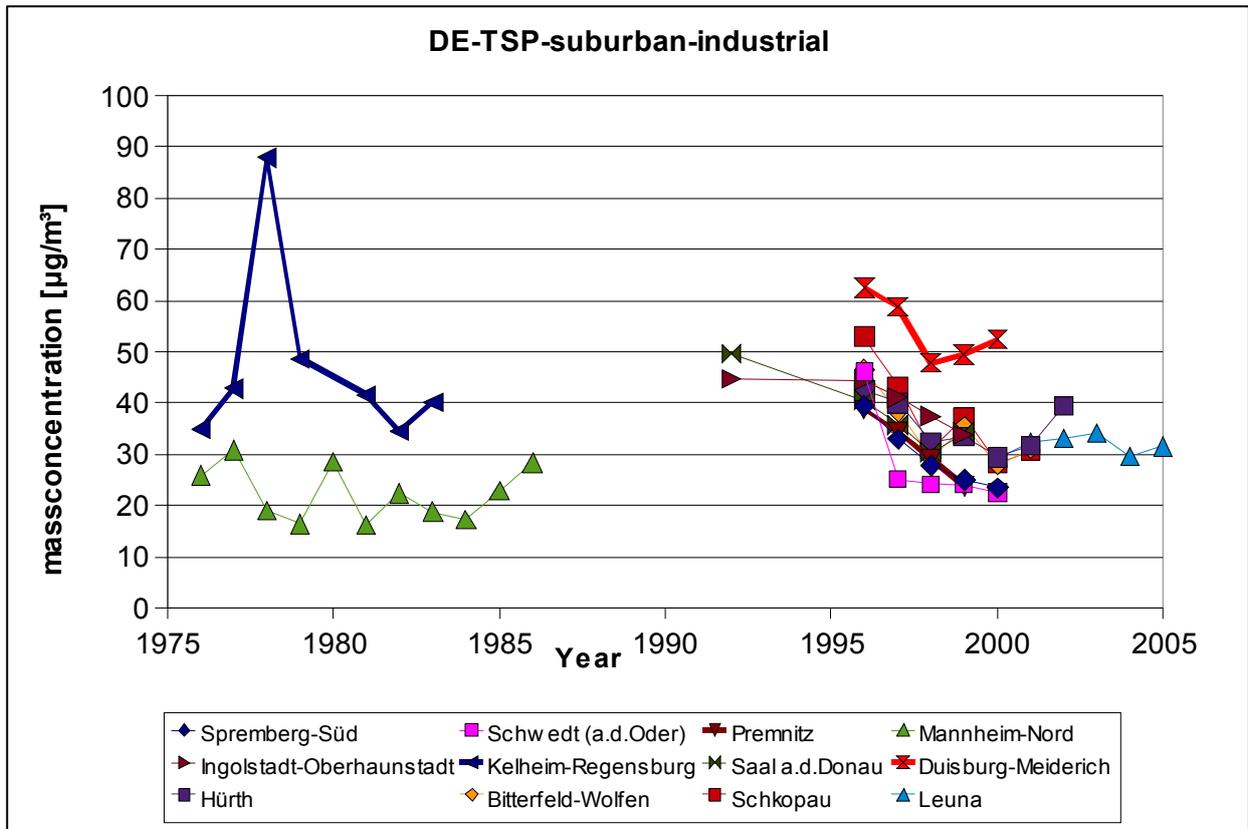
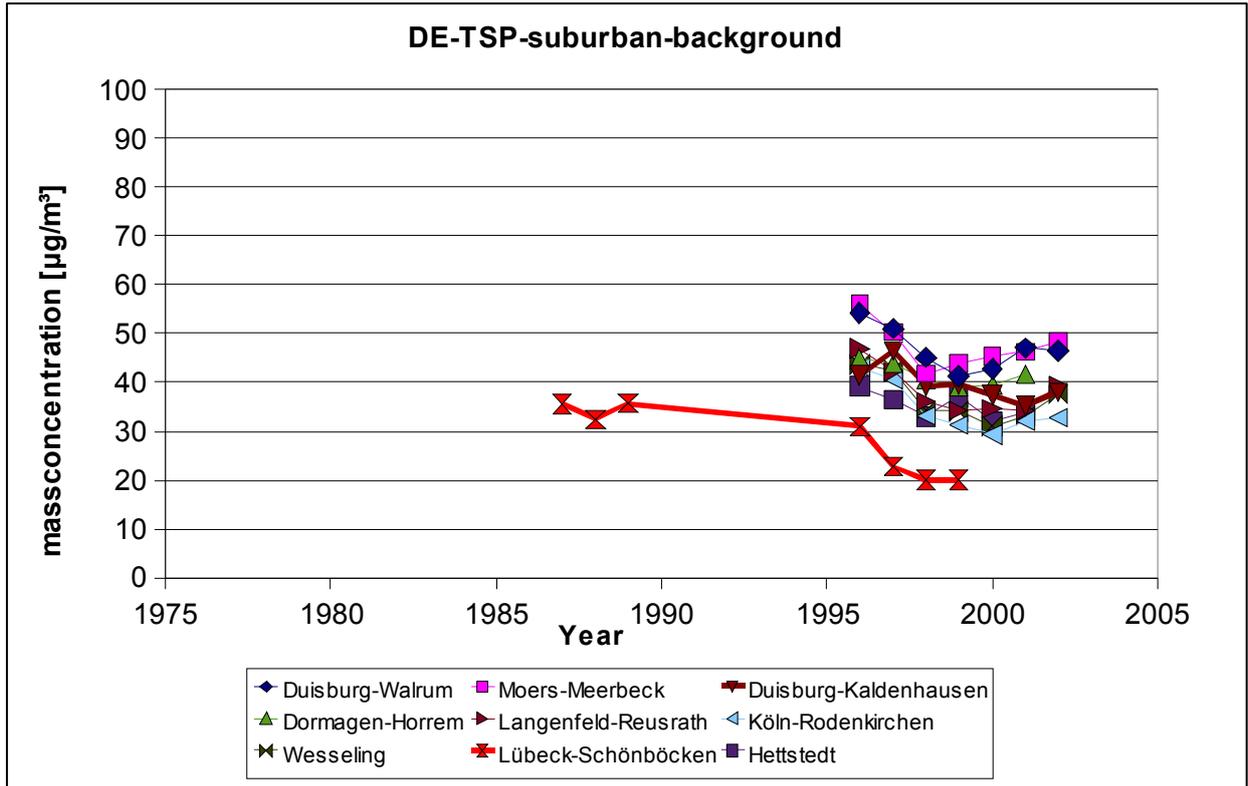


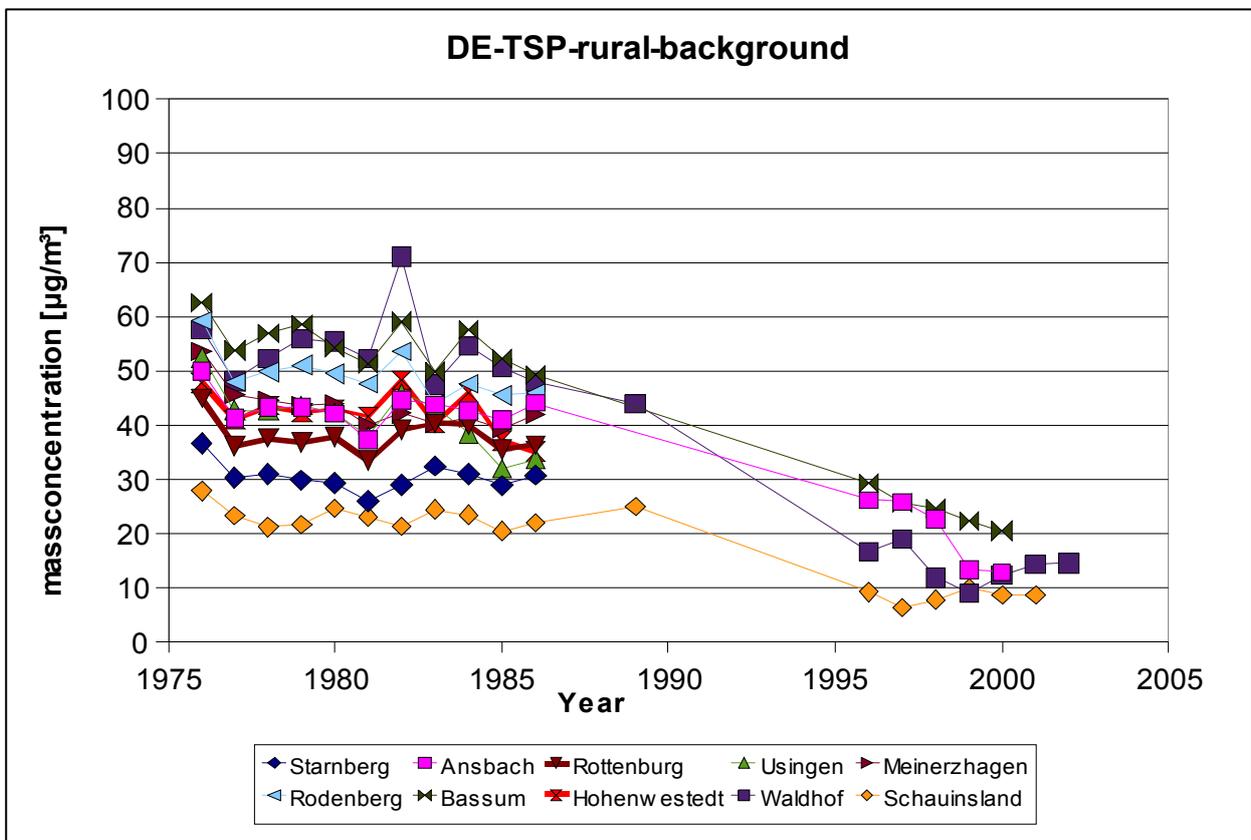
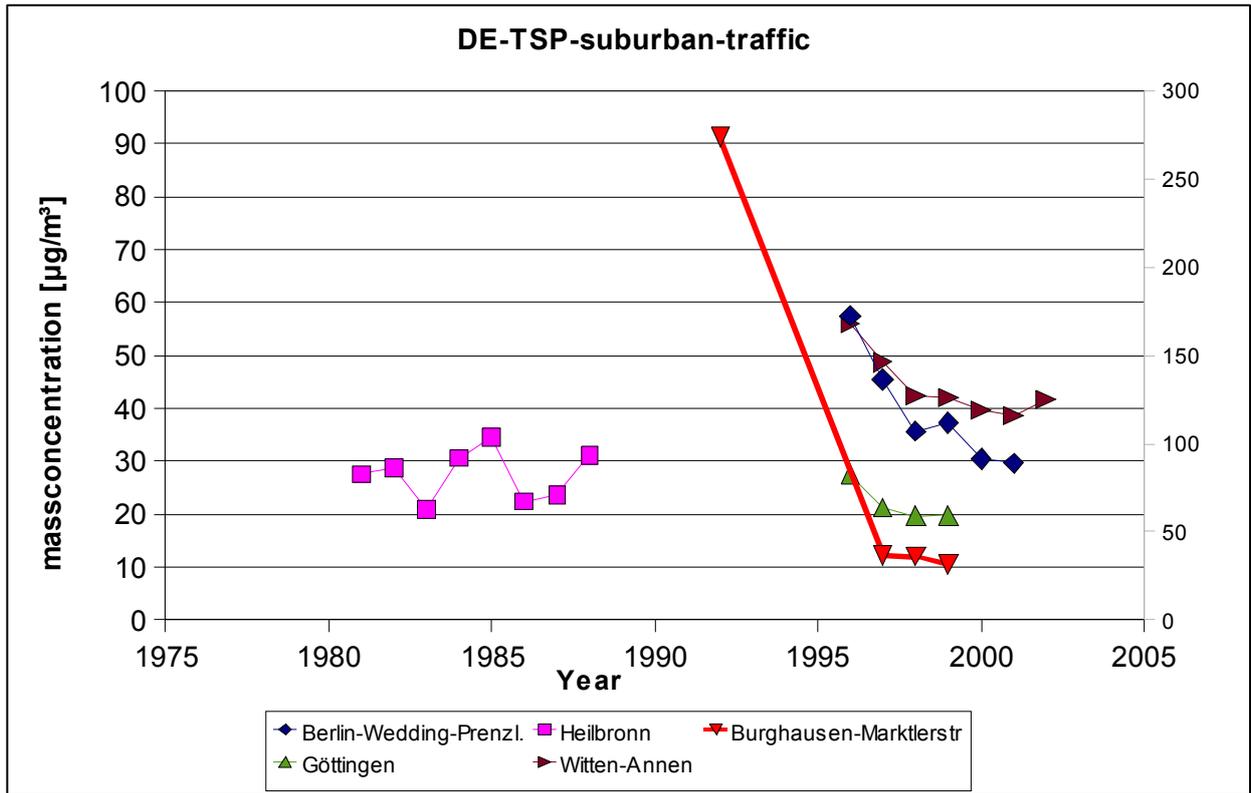


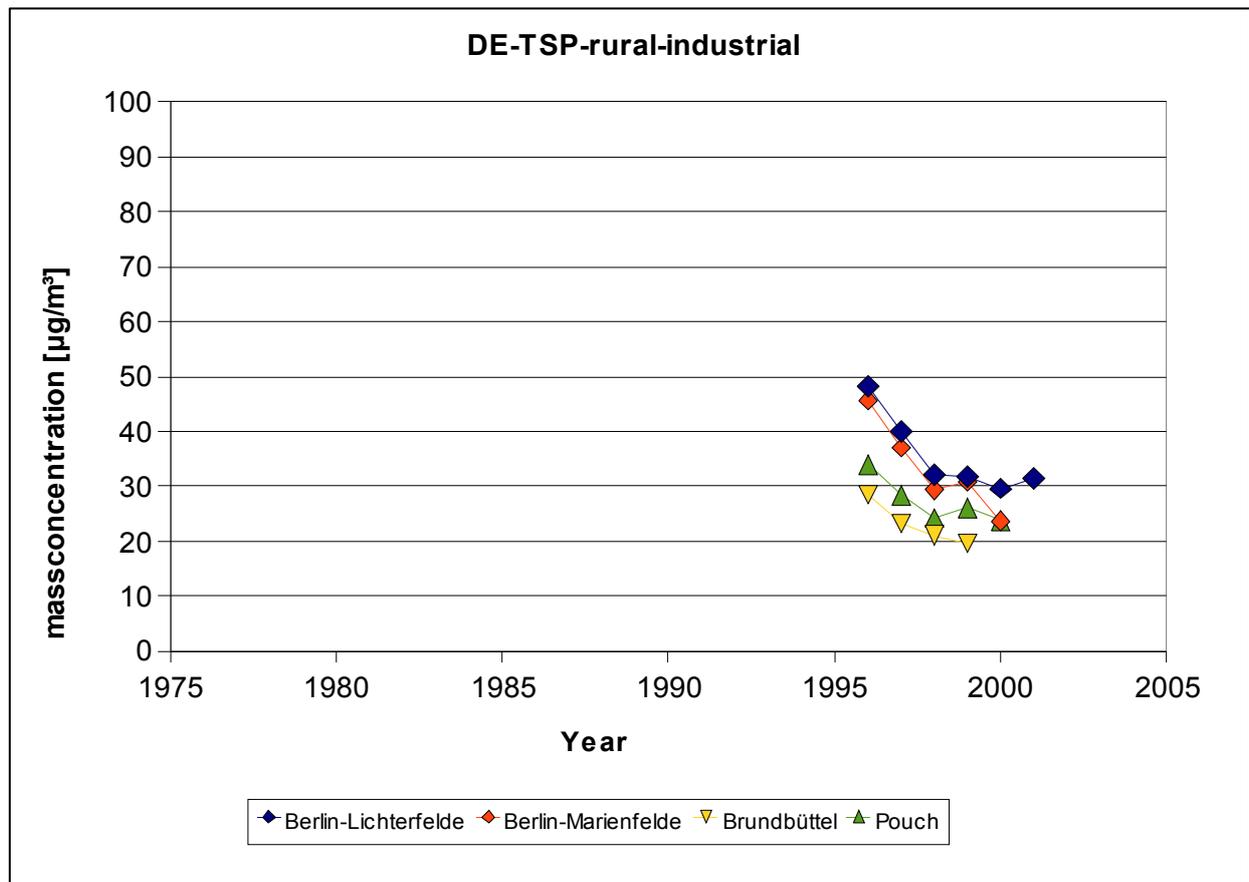
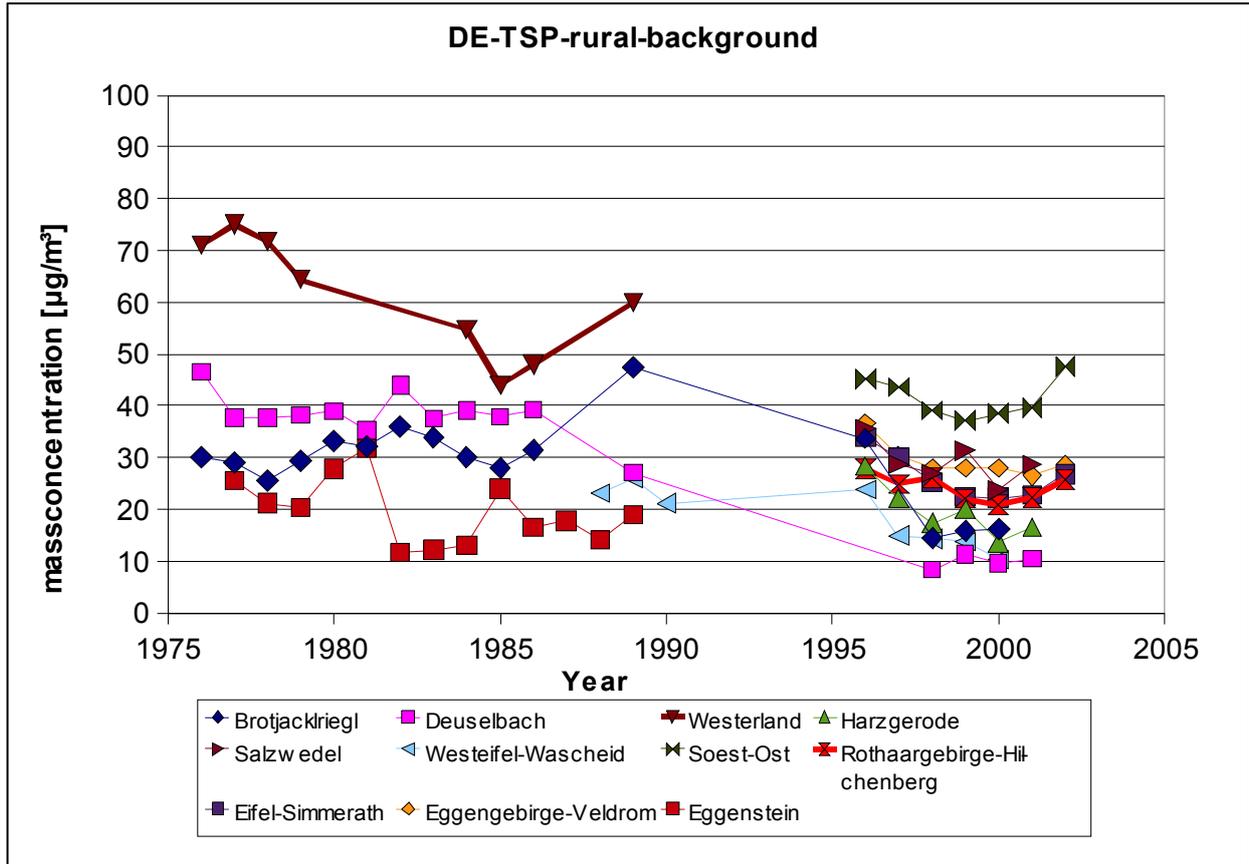


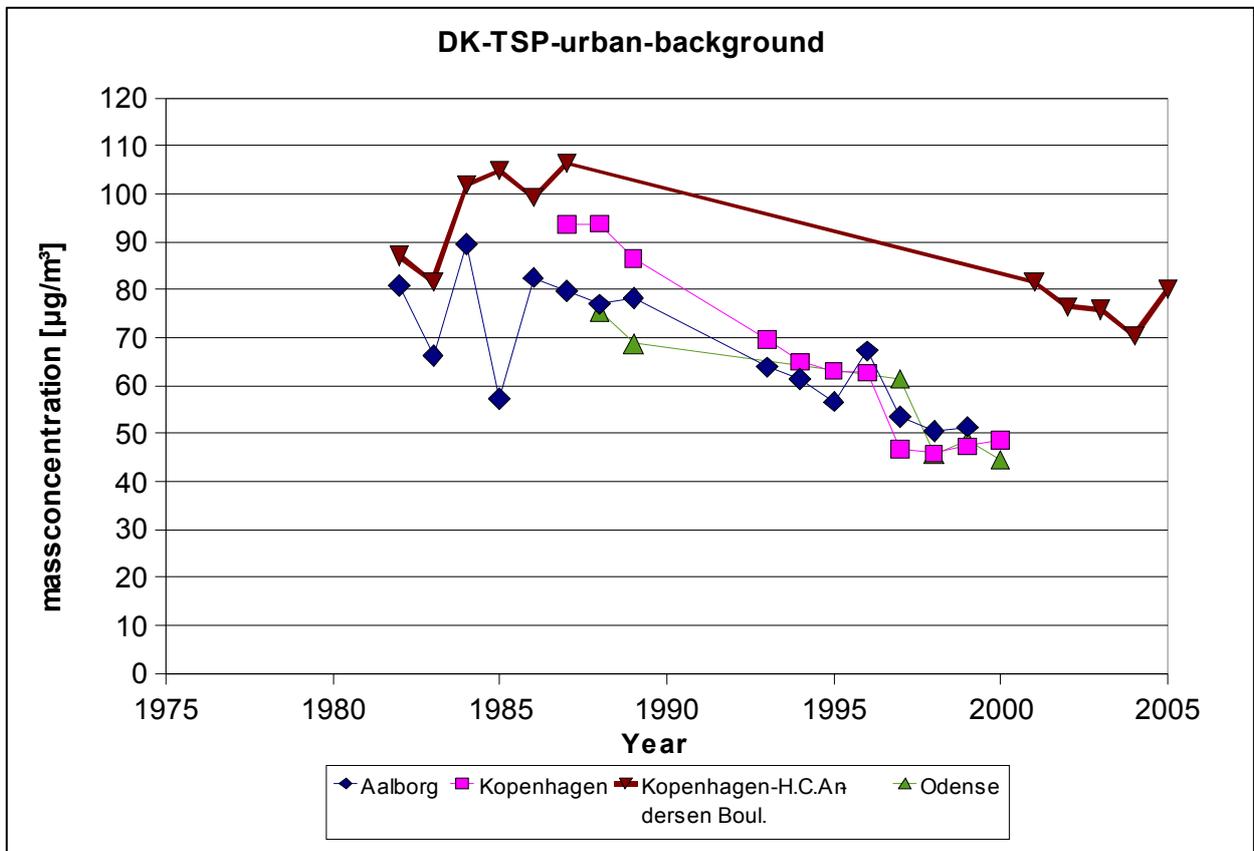
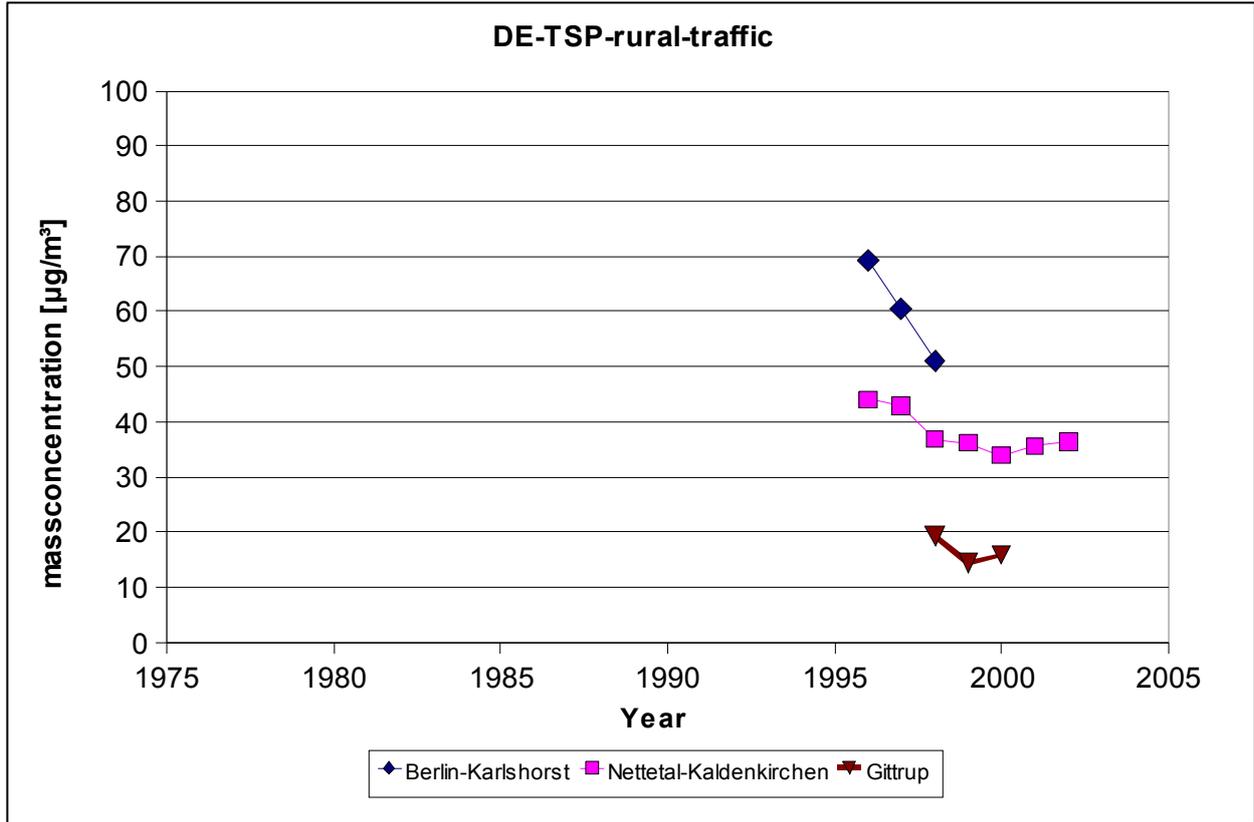


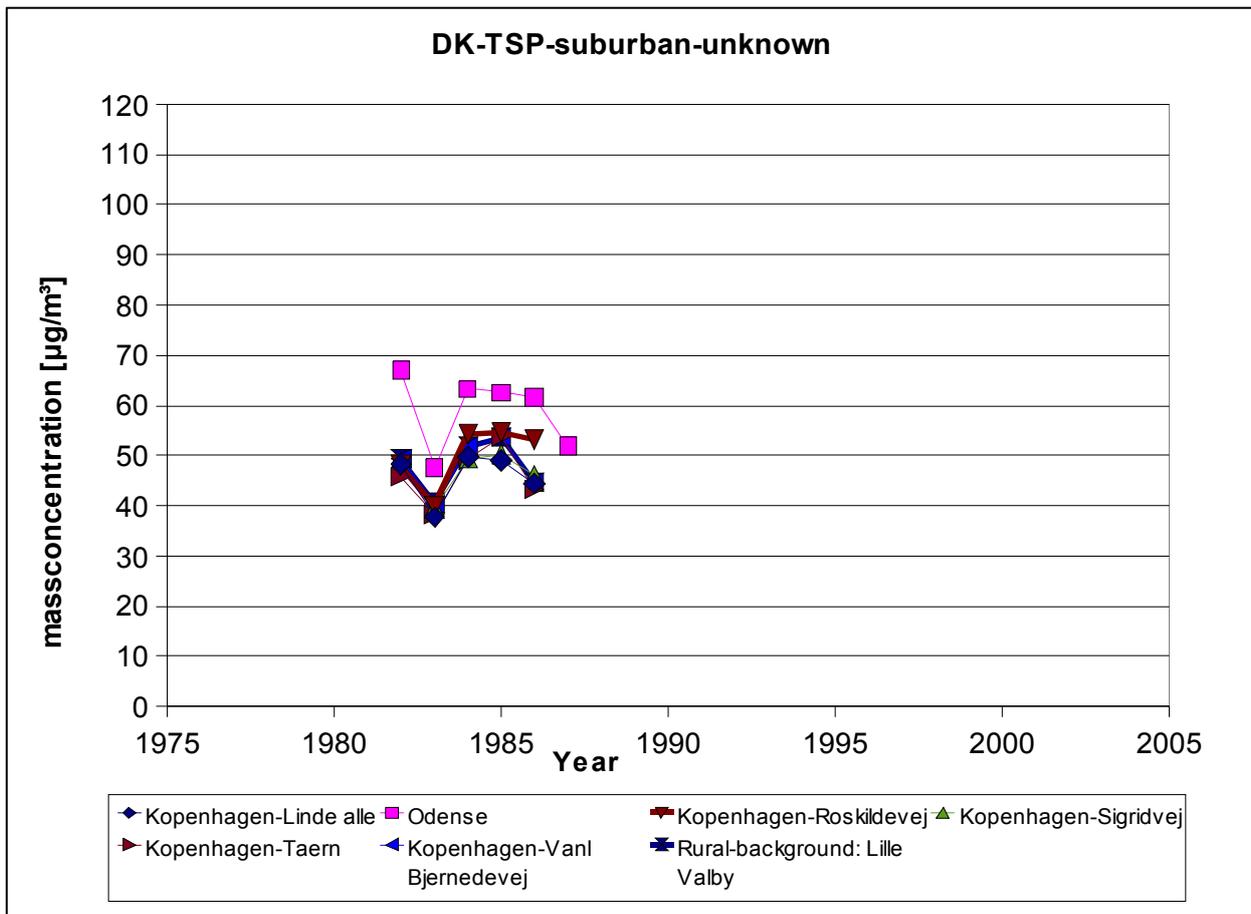
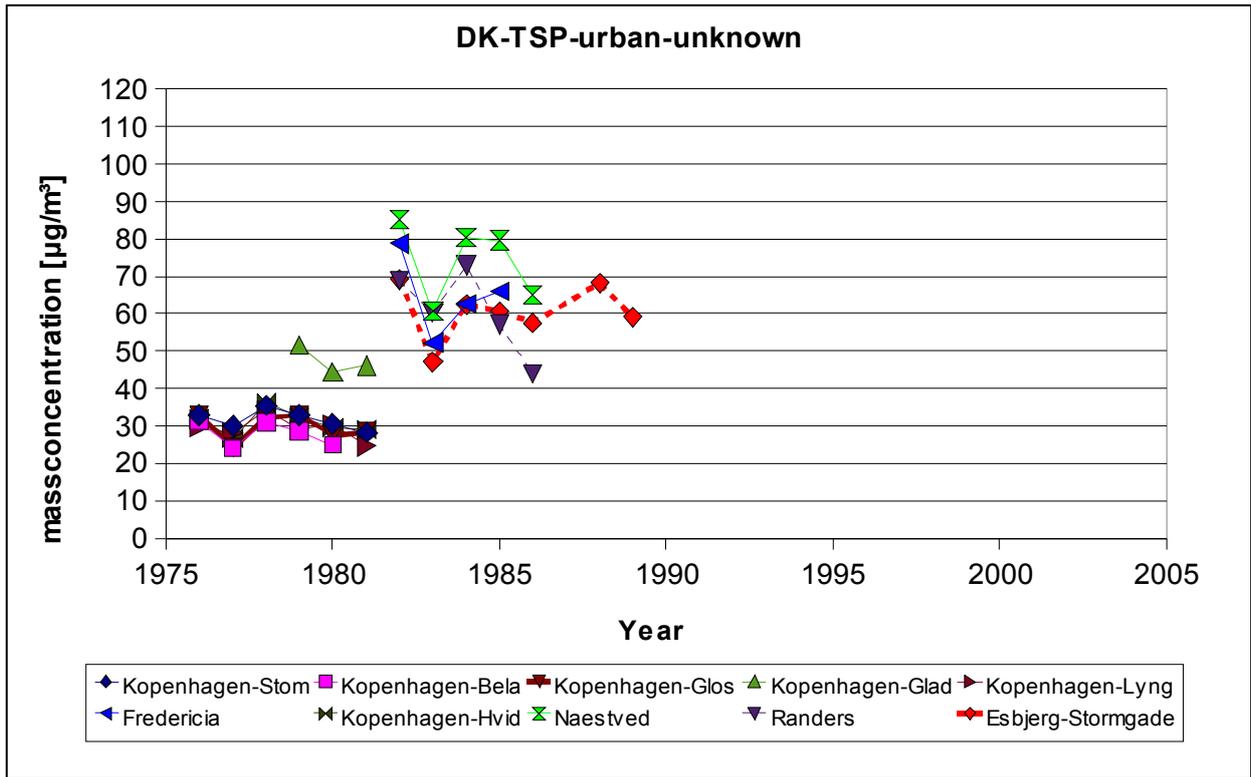


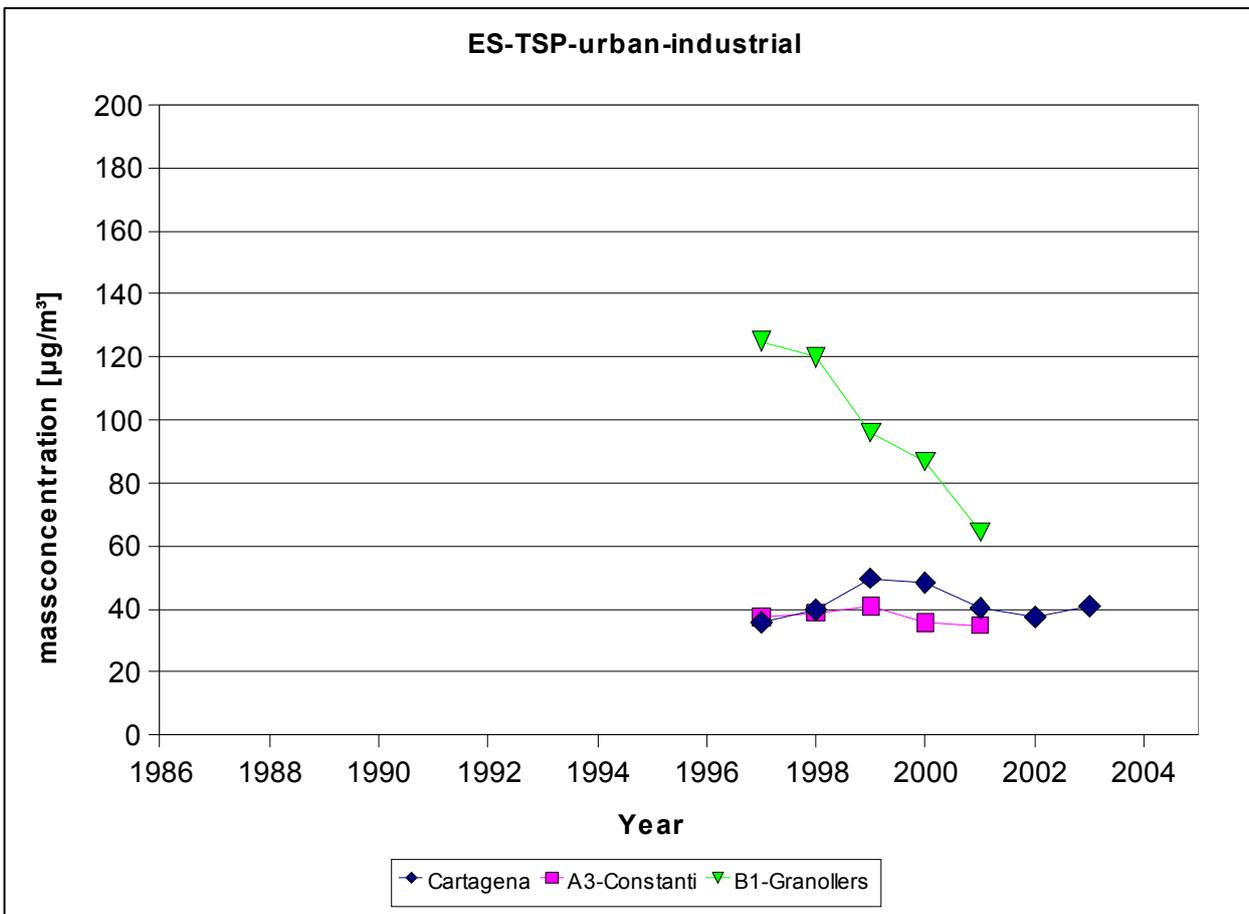
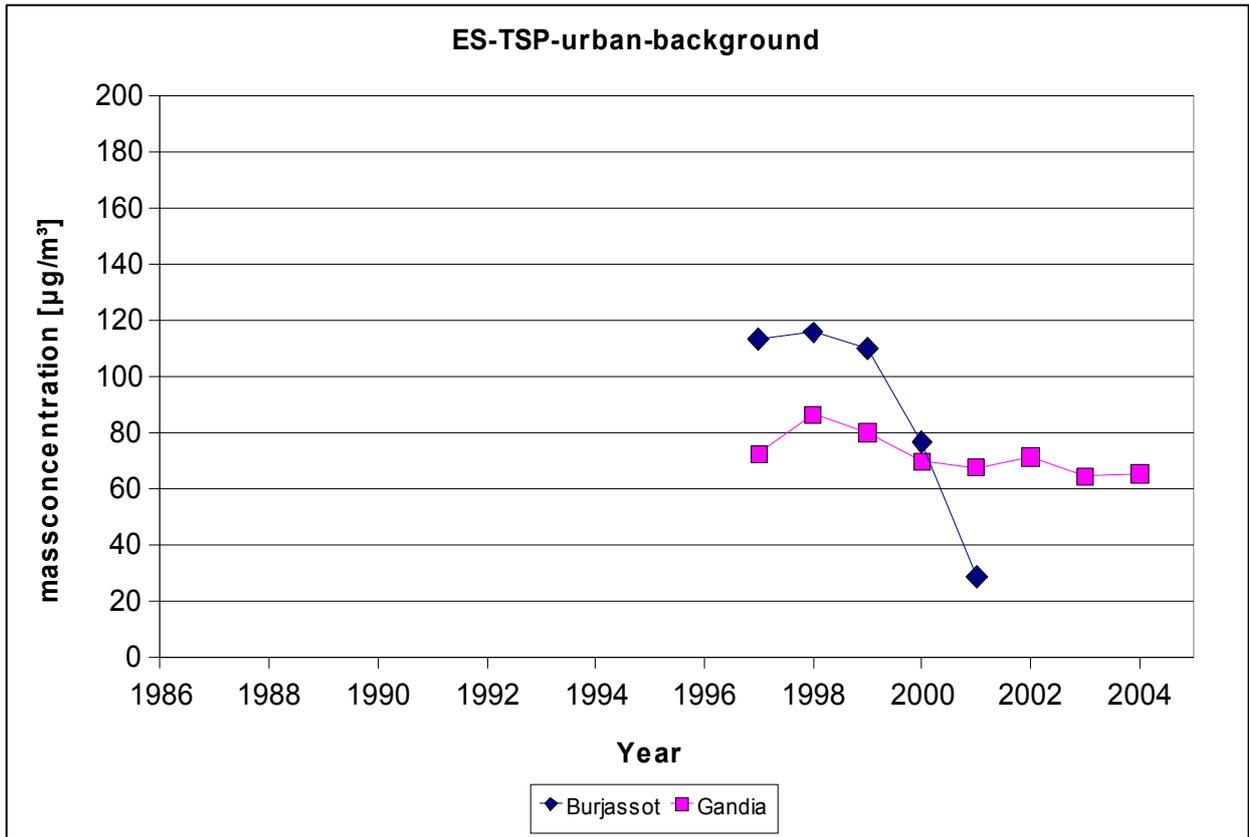


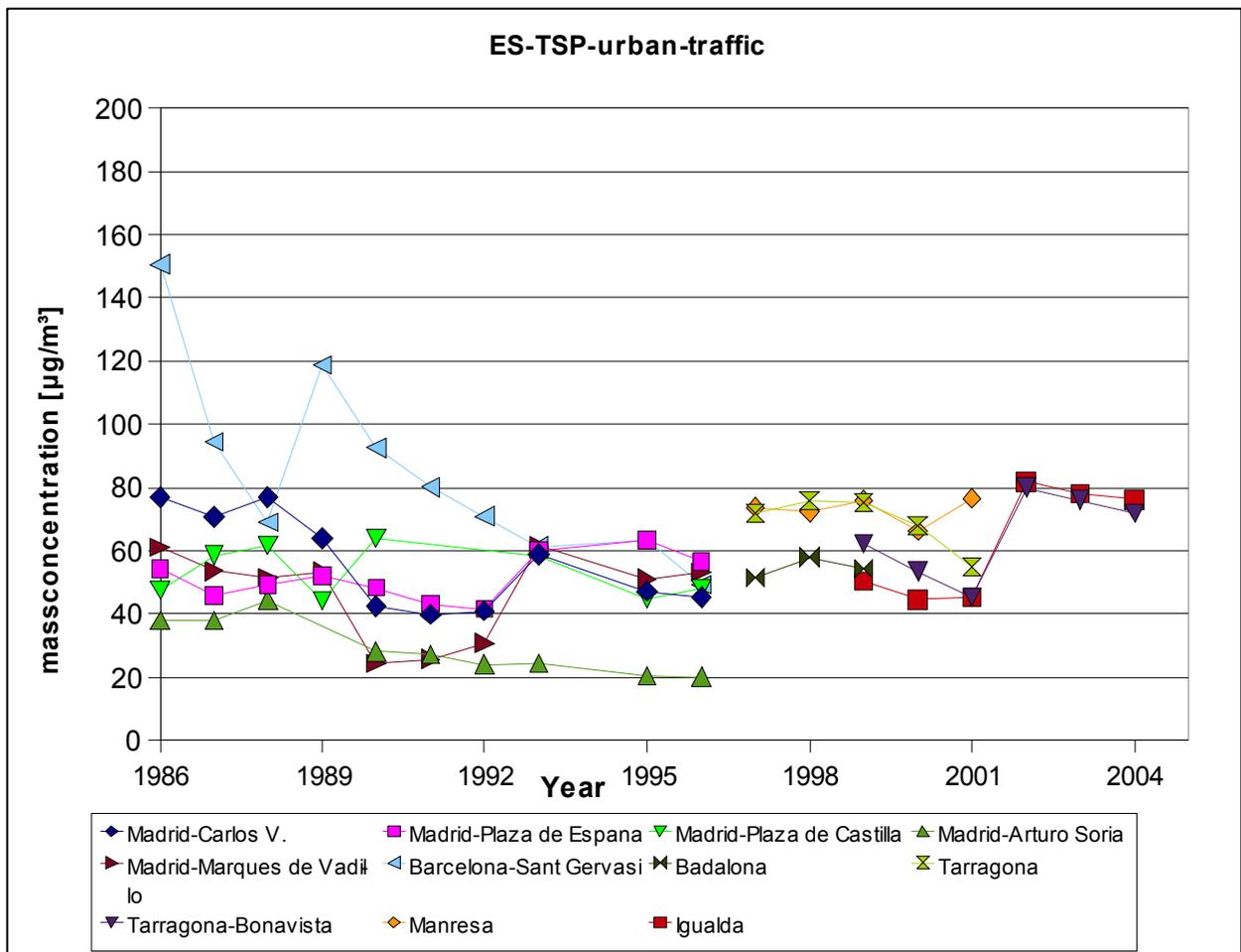
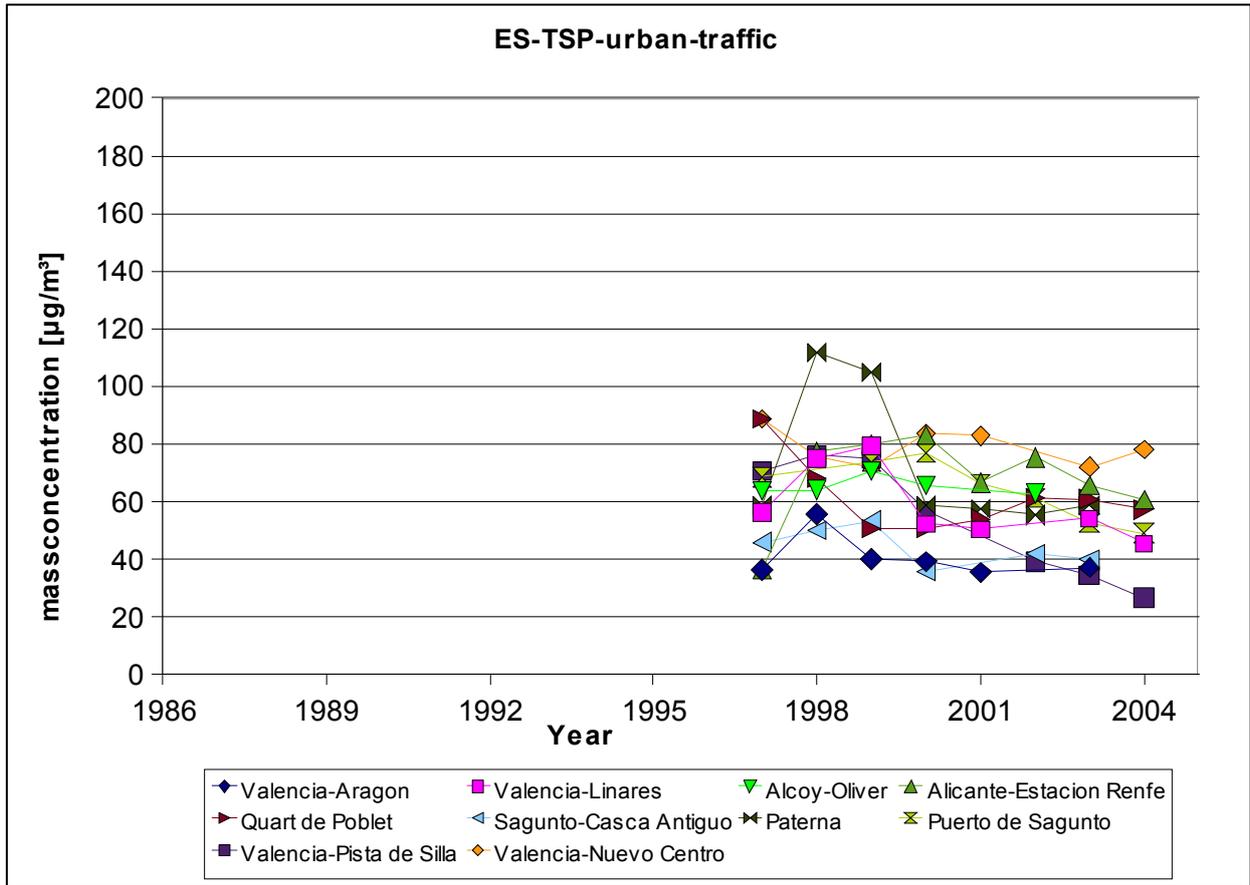




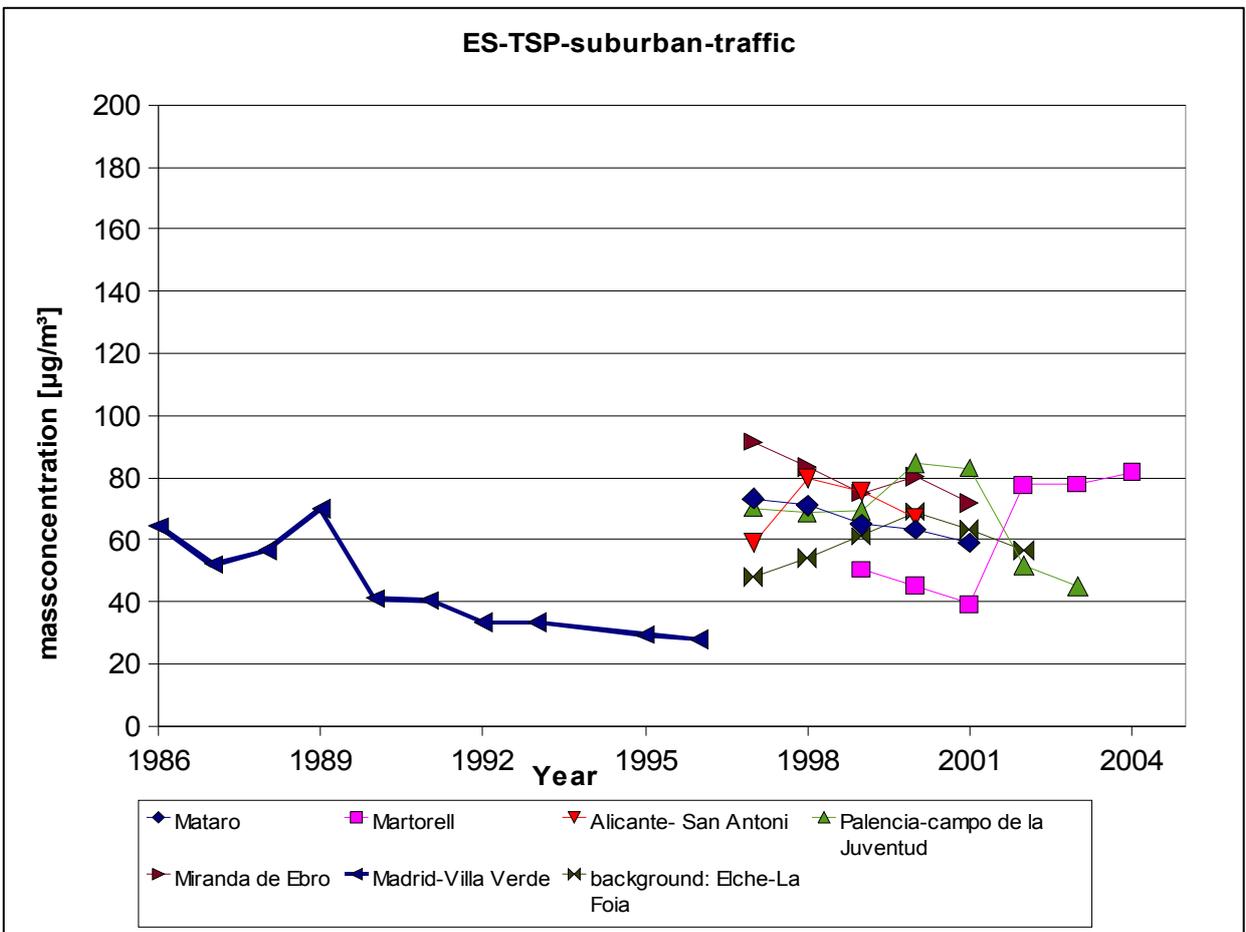
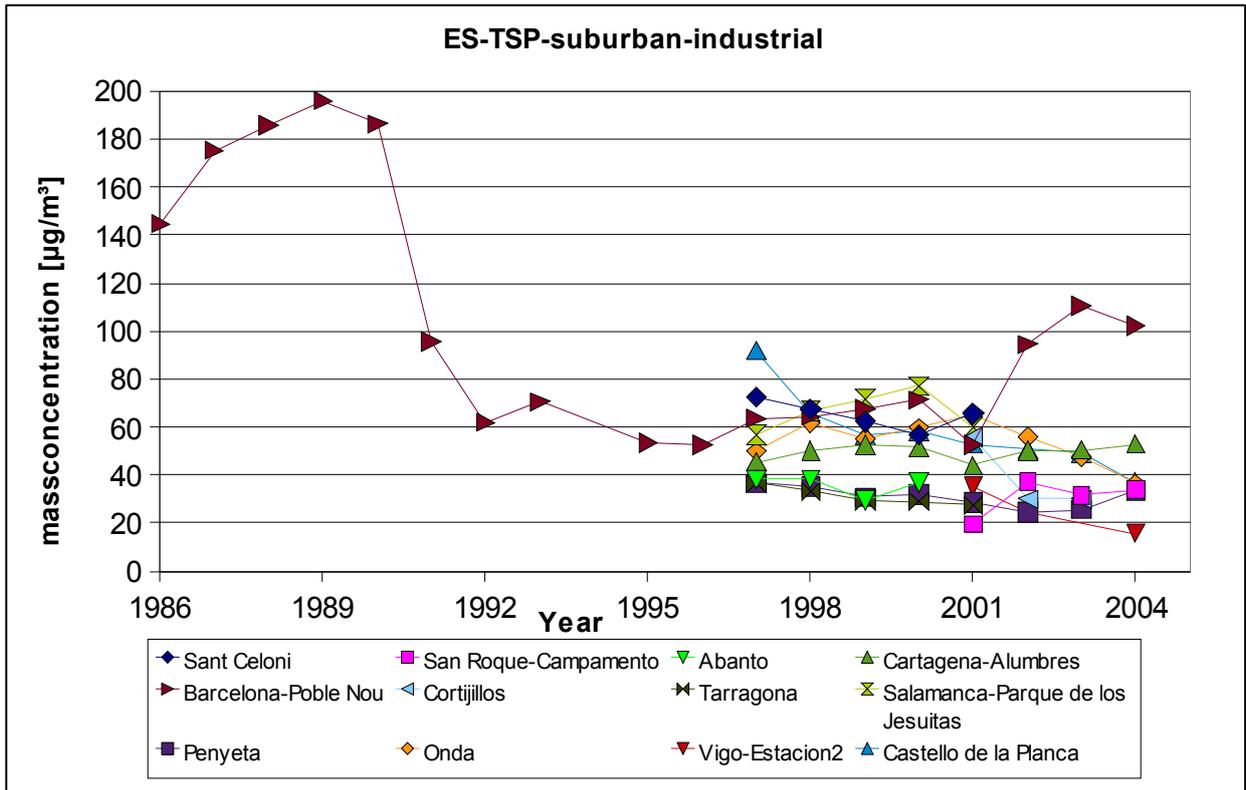


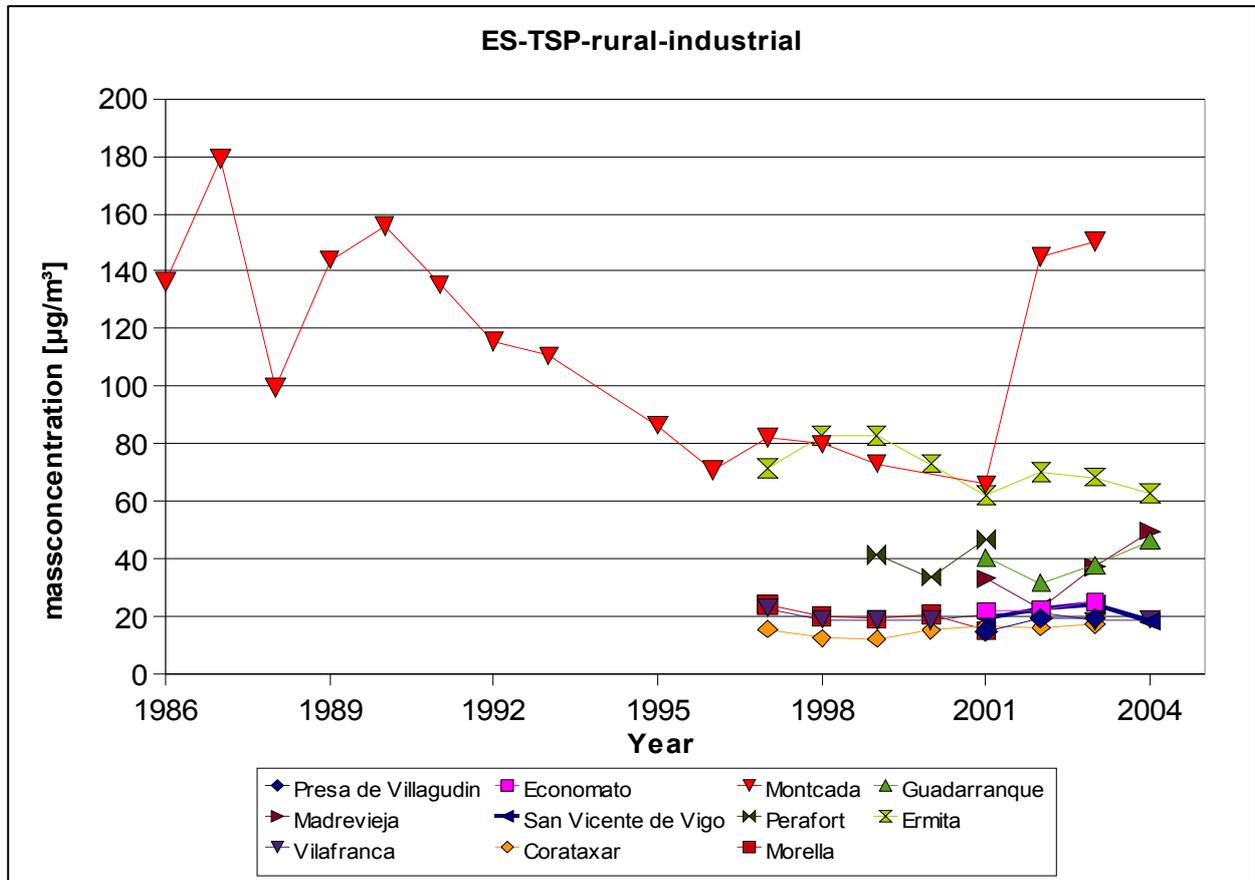
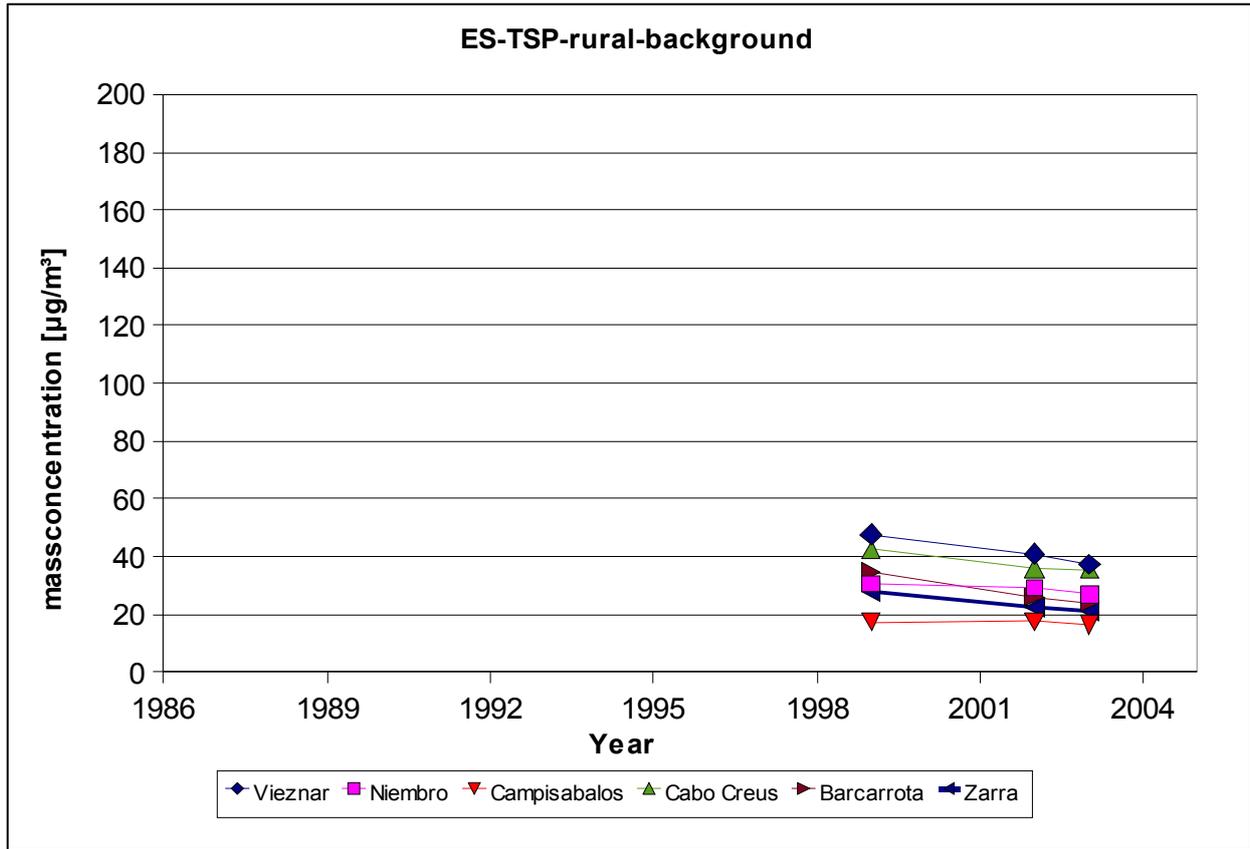


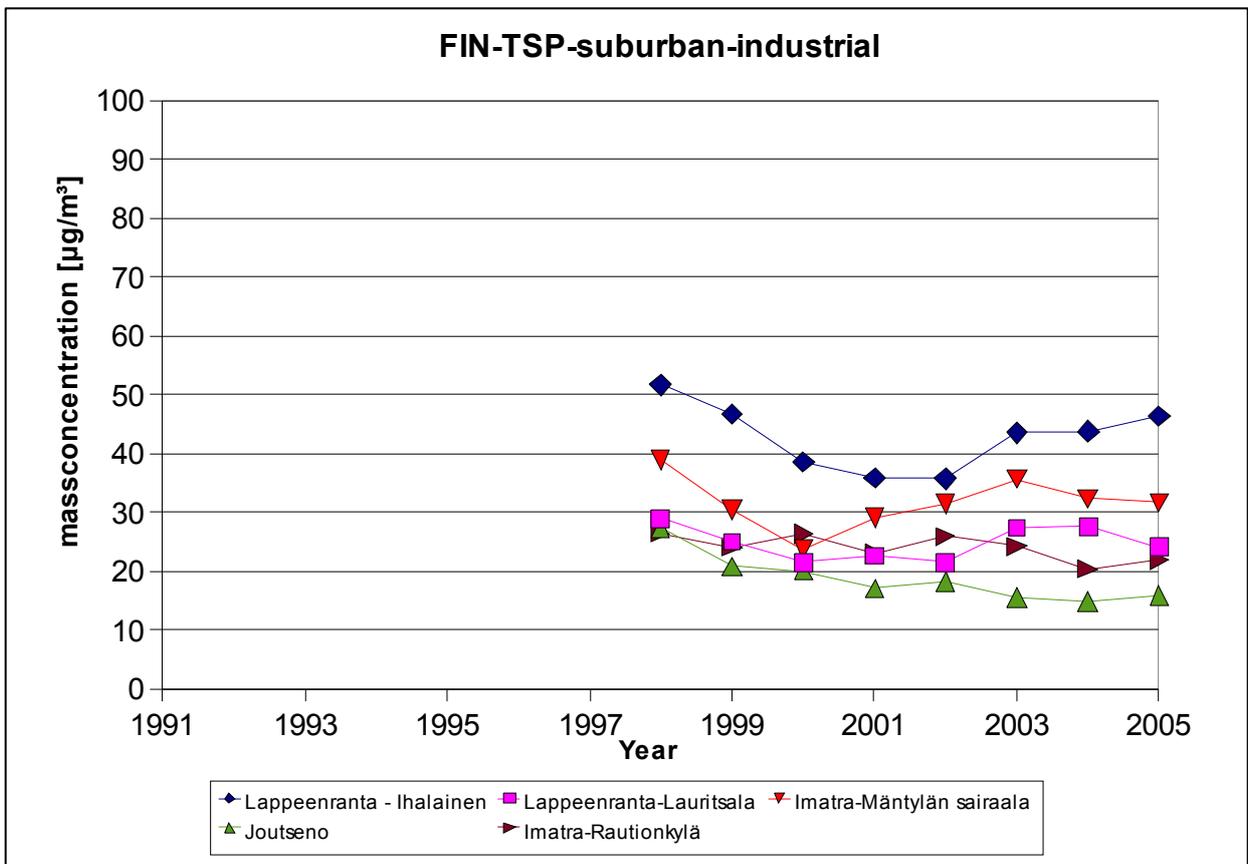
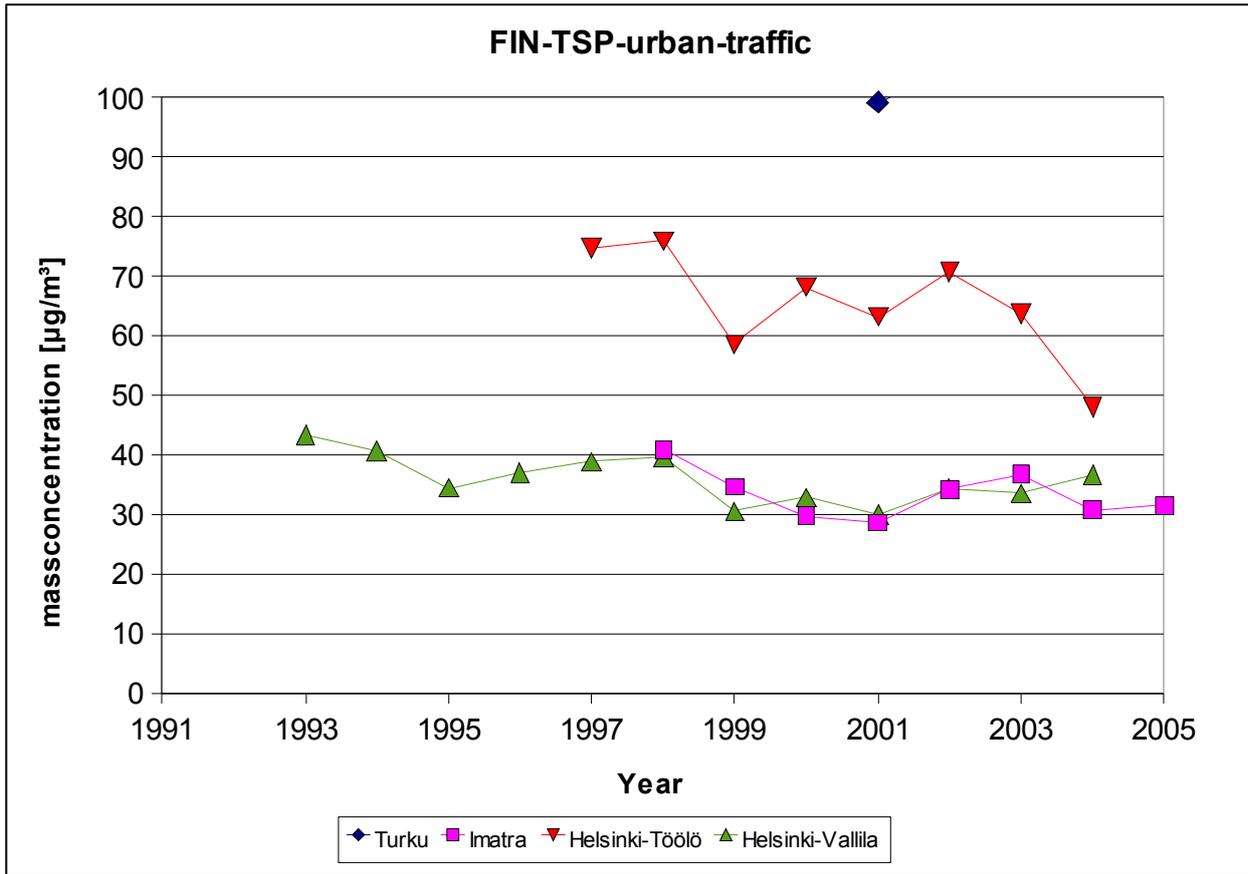


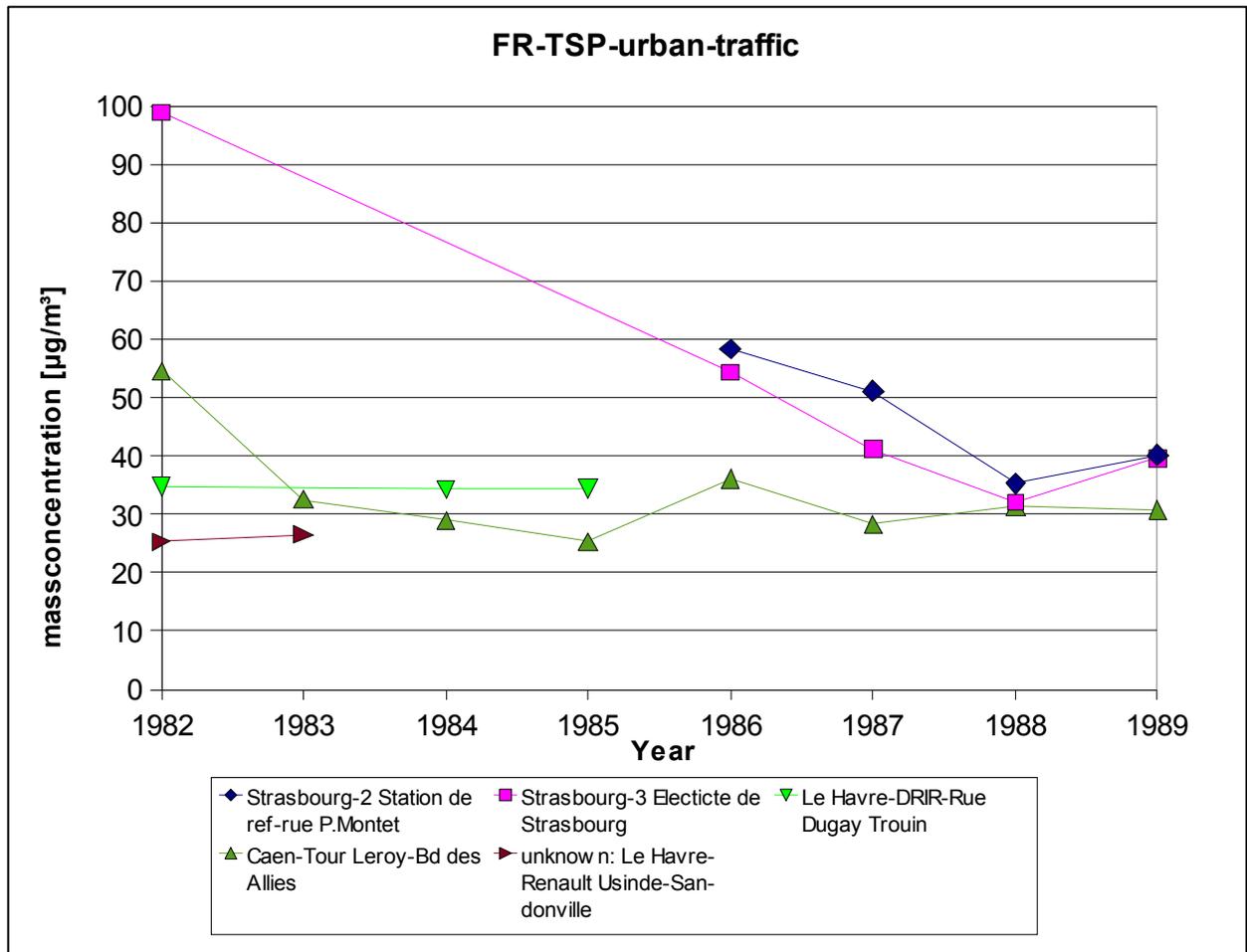
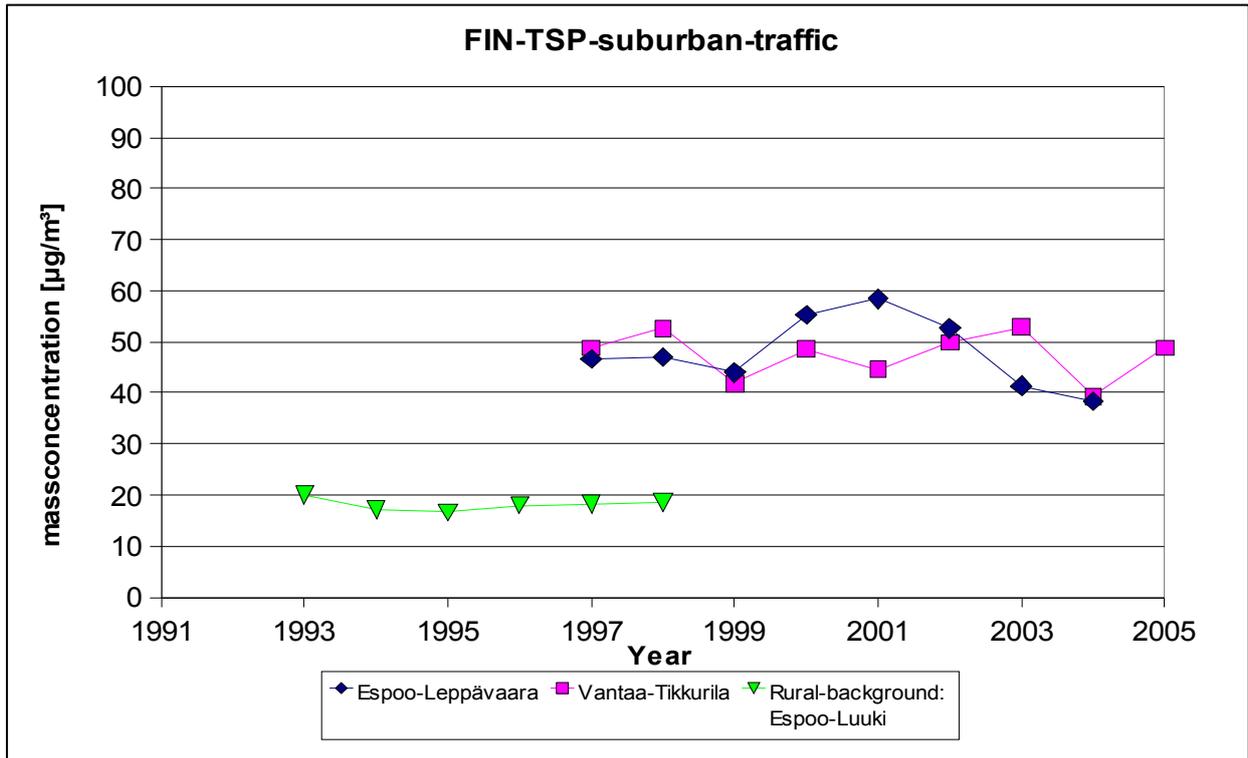


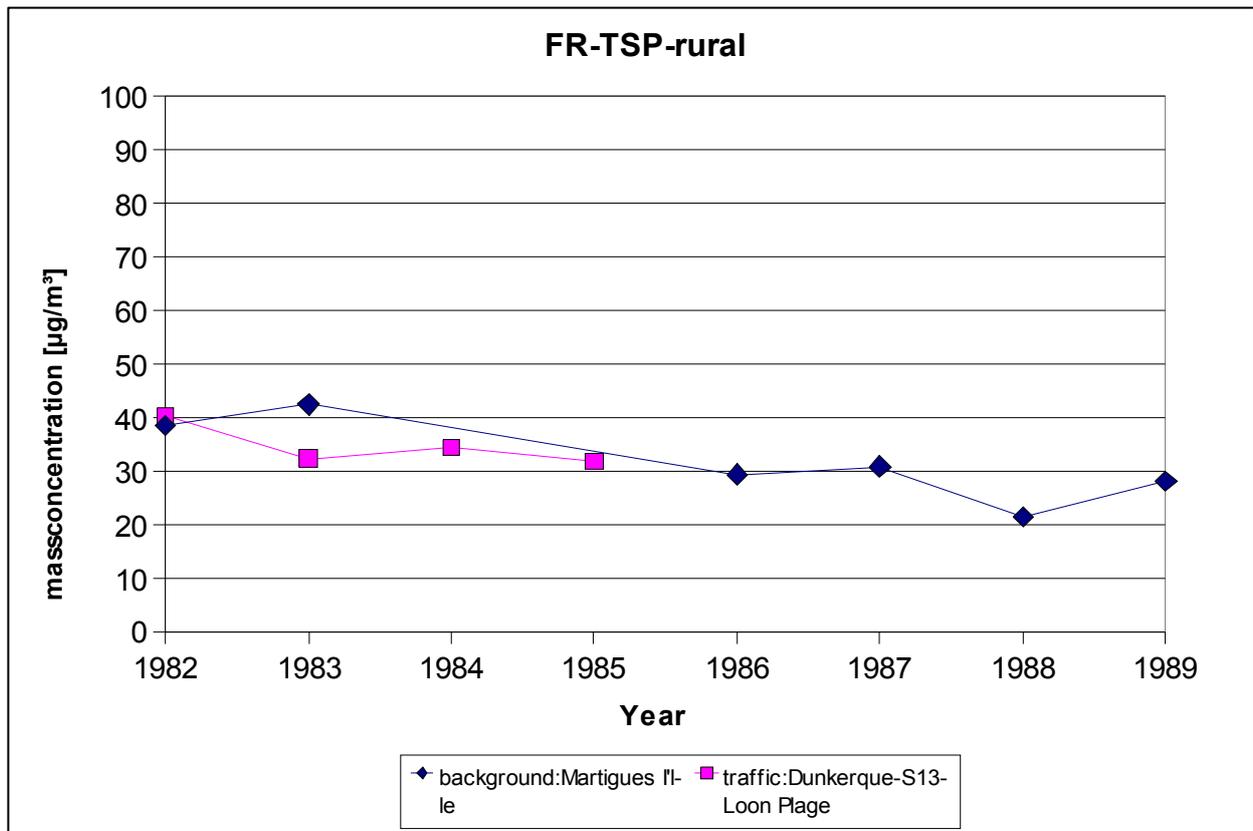
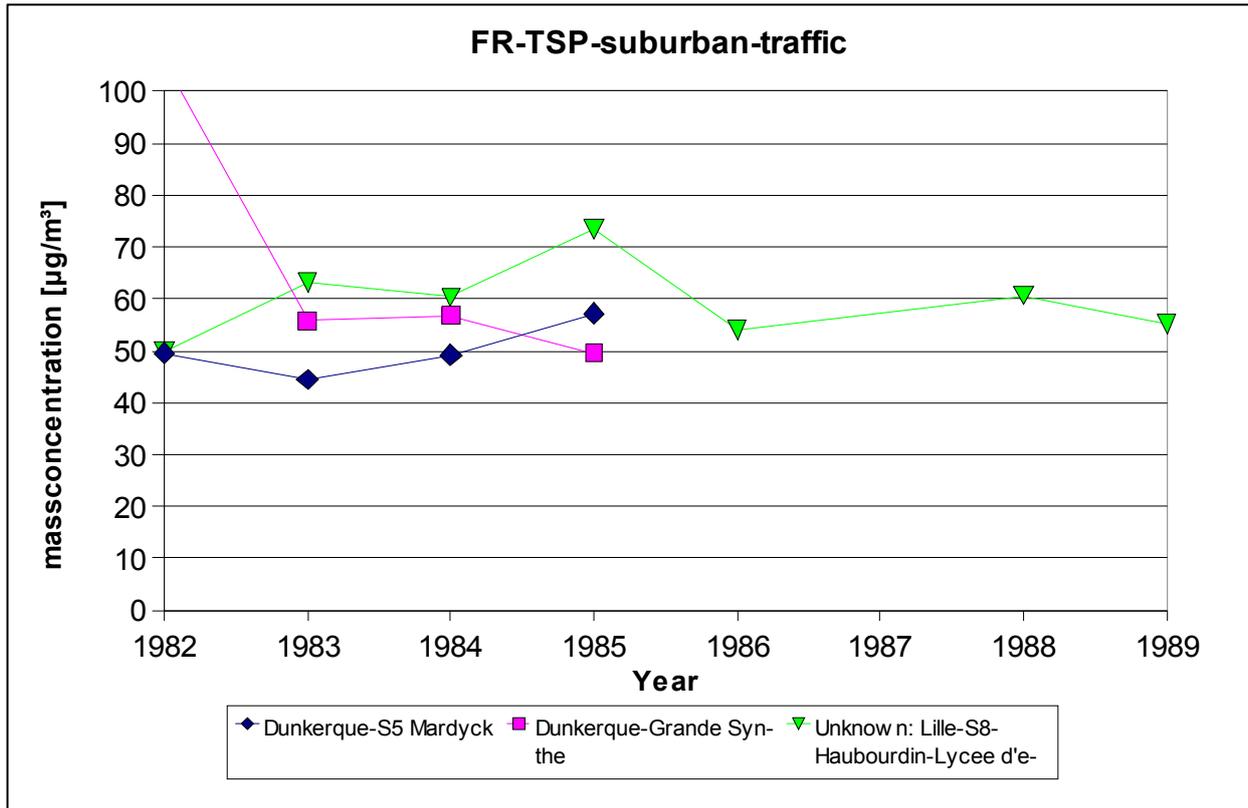
7 Anhang C

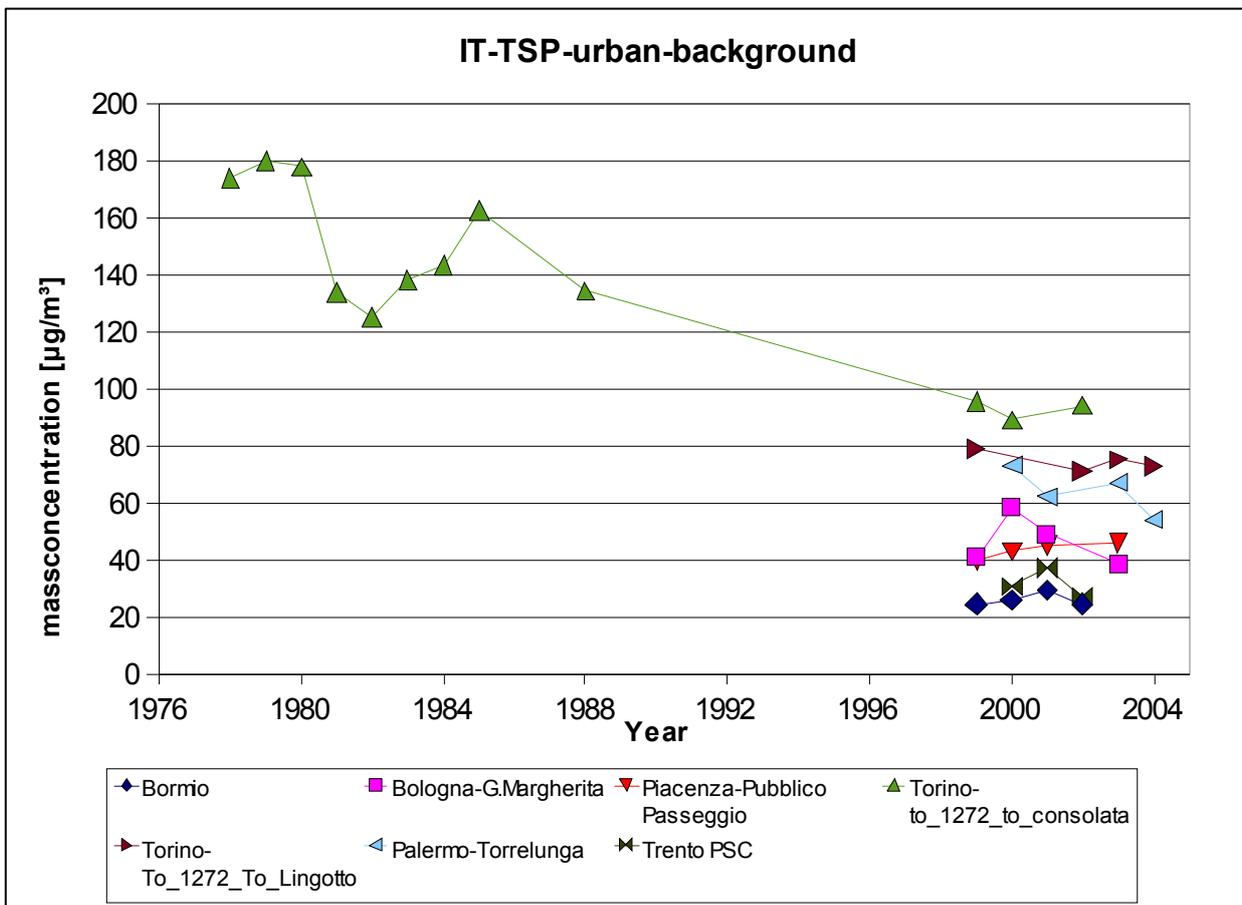
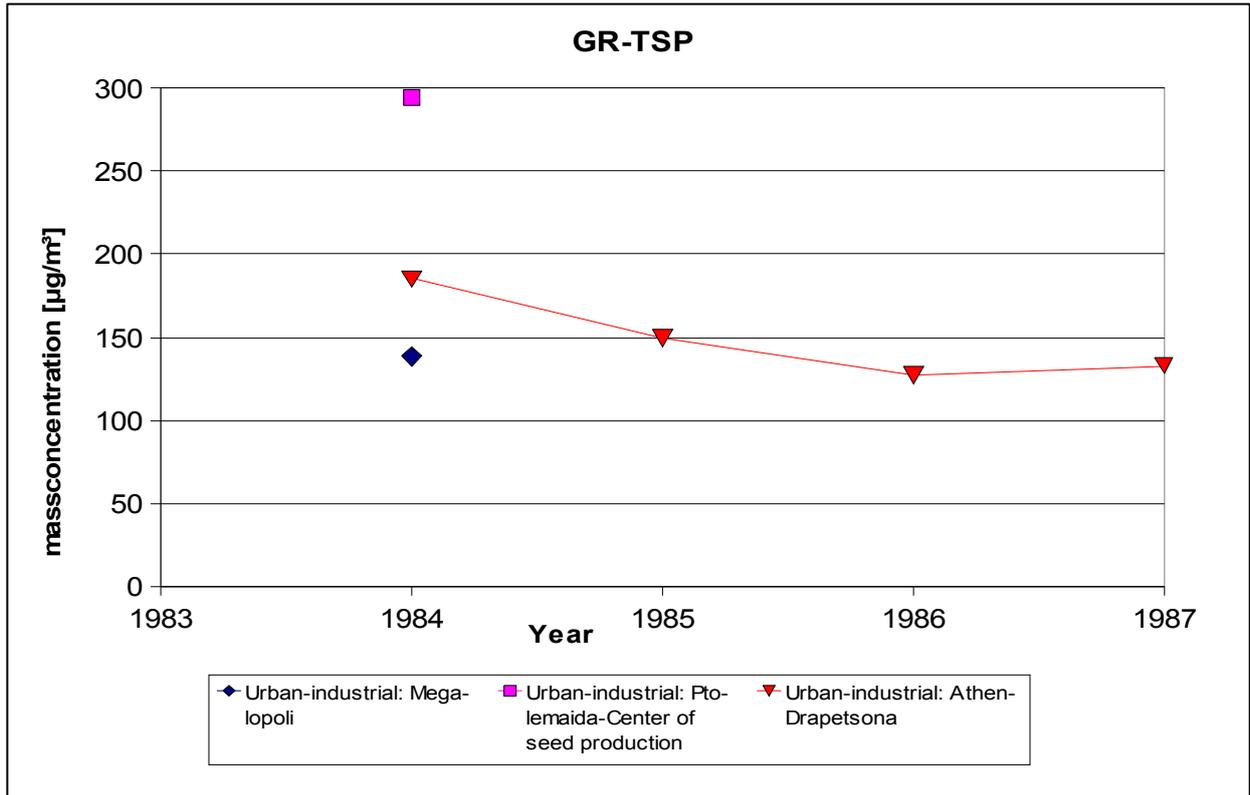


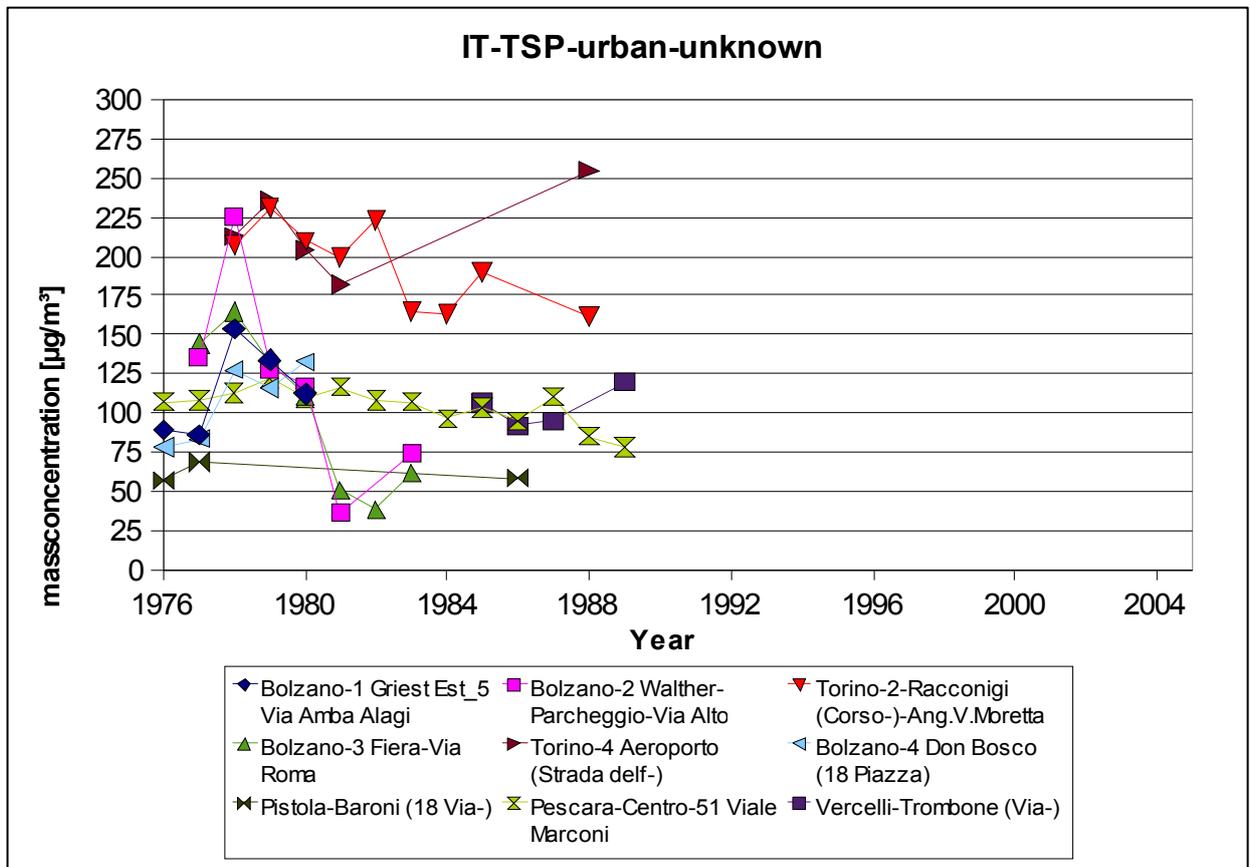
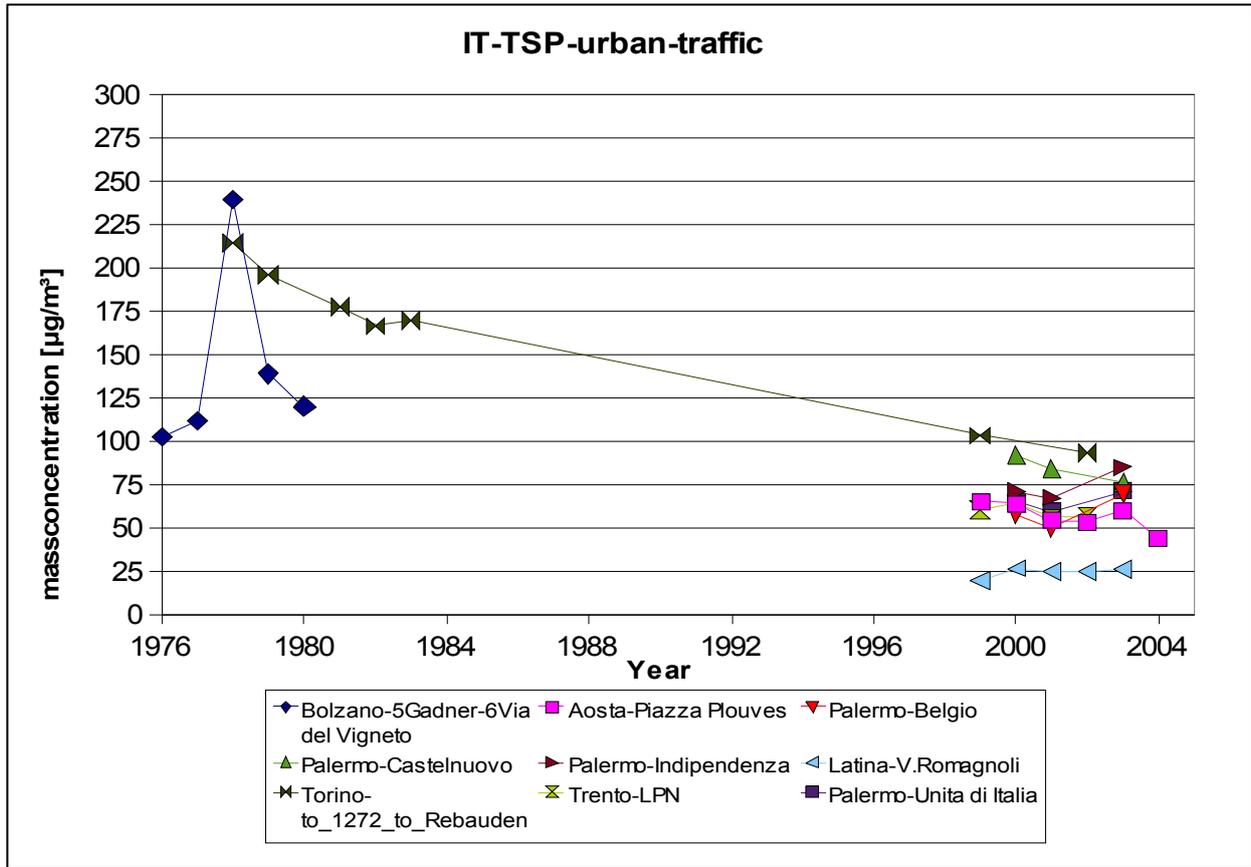


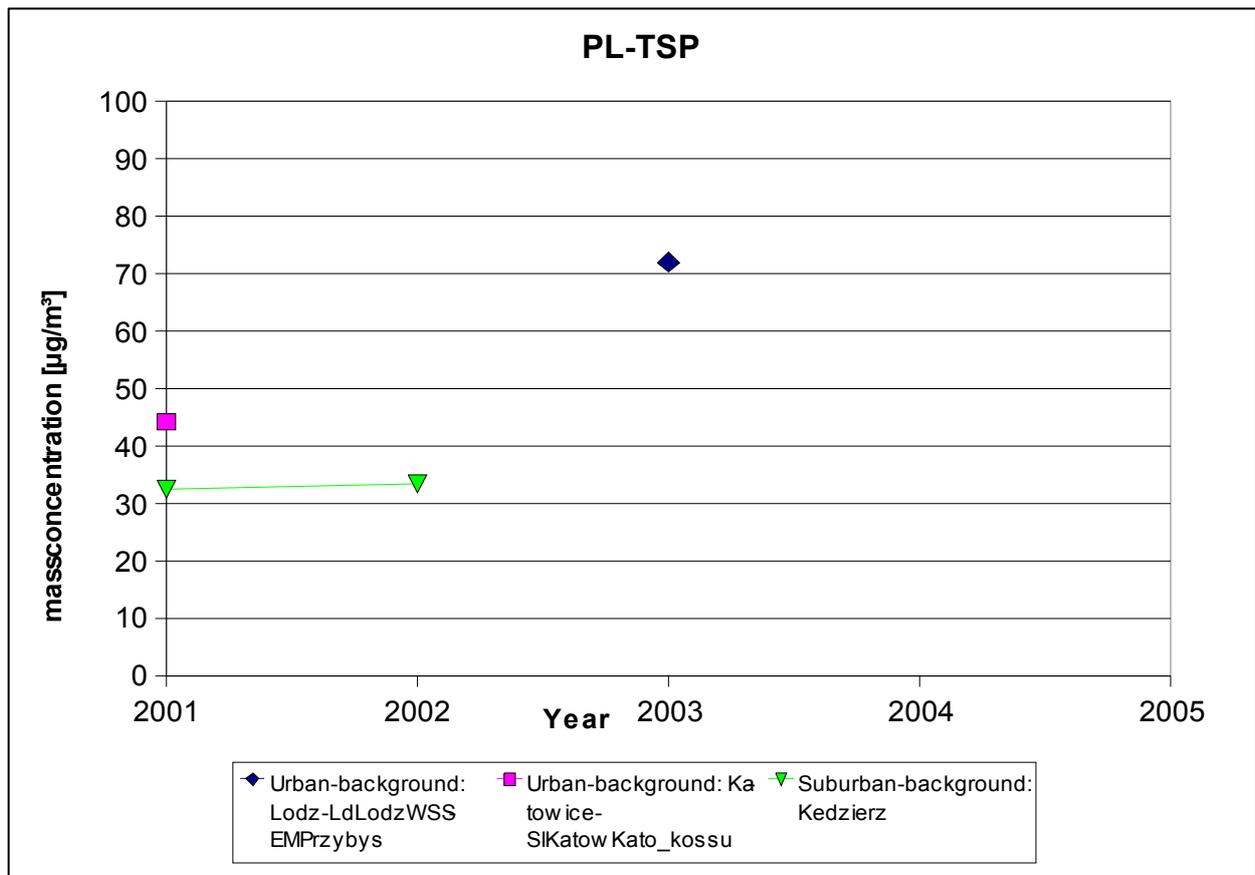
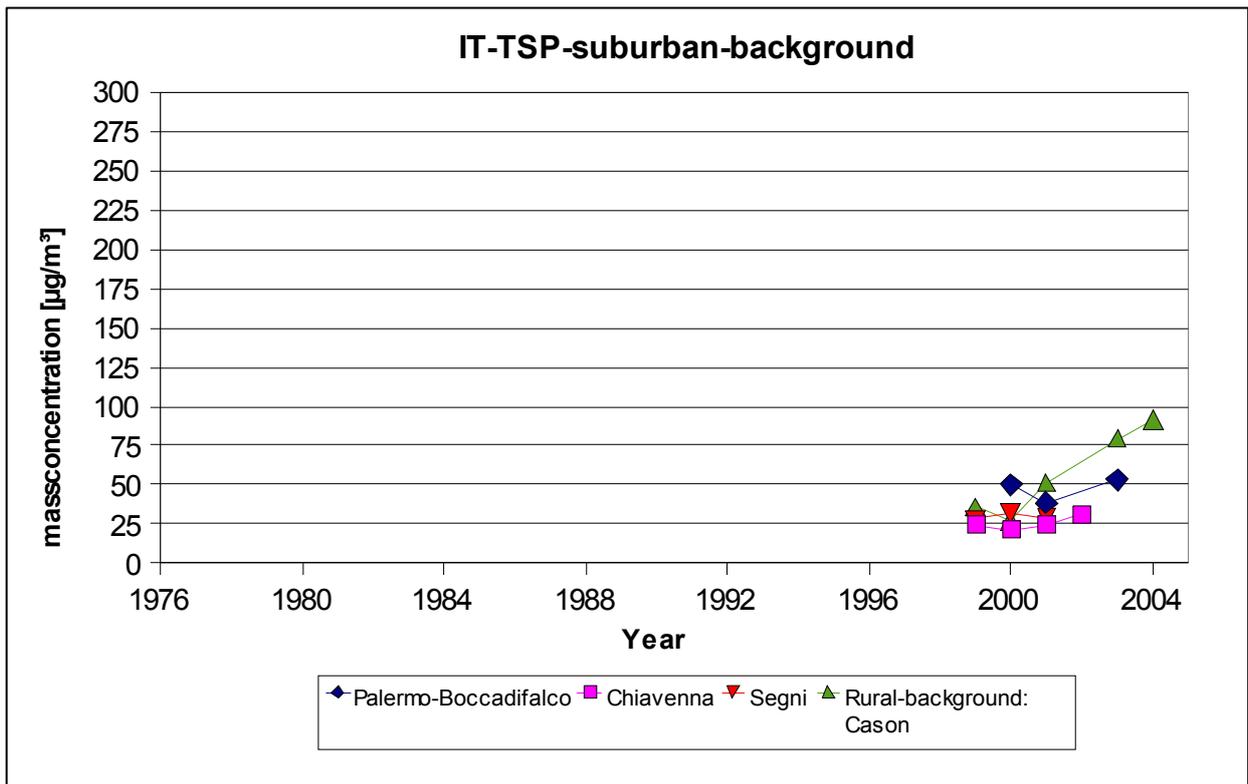


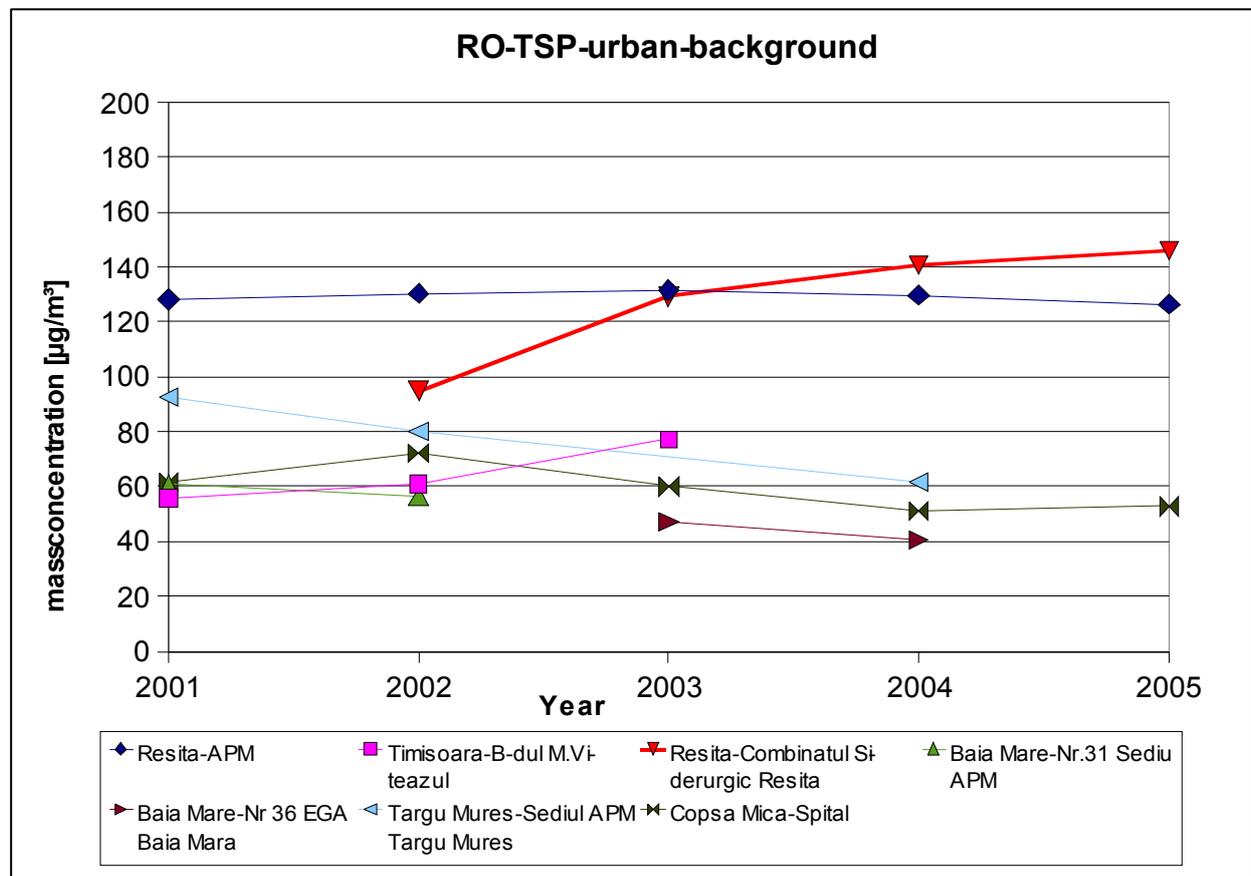
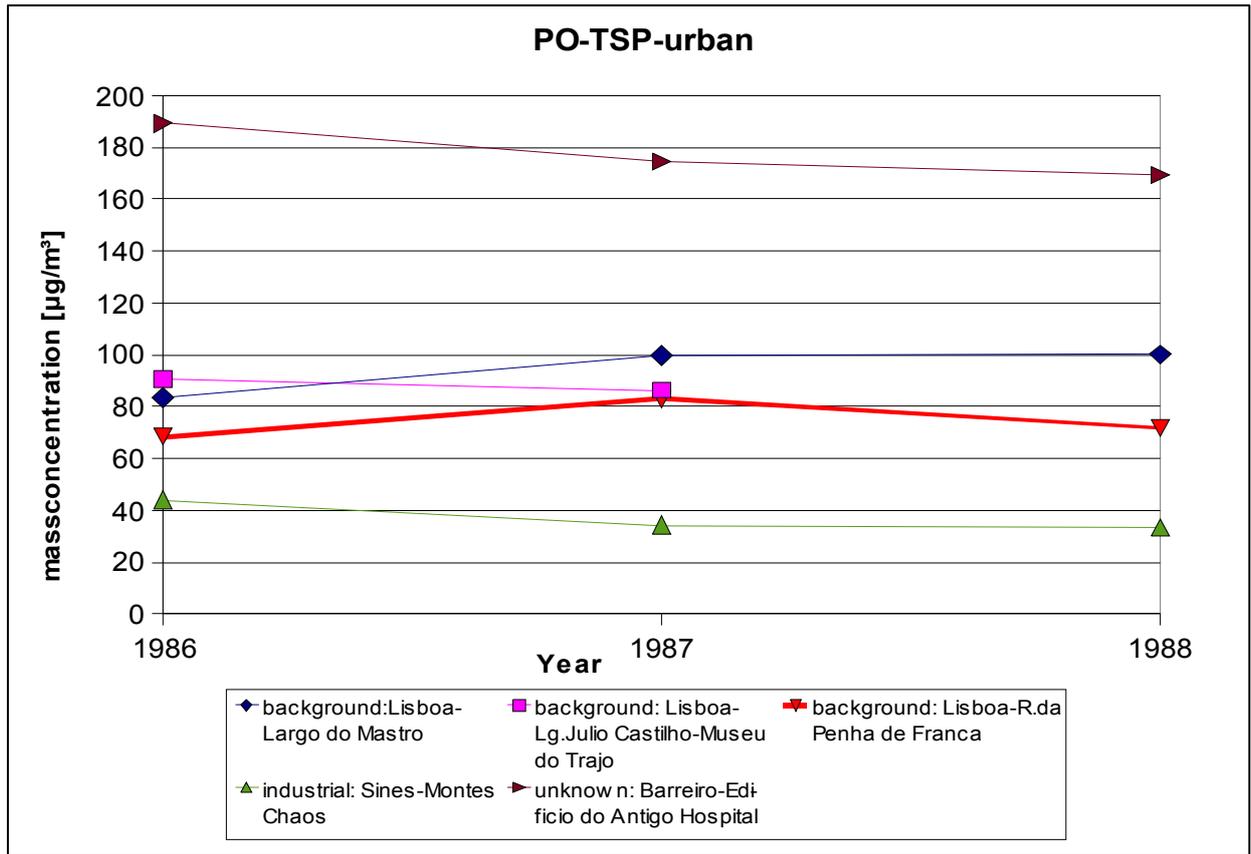


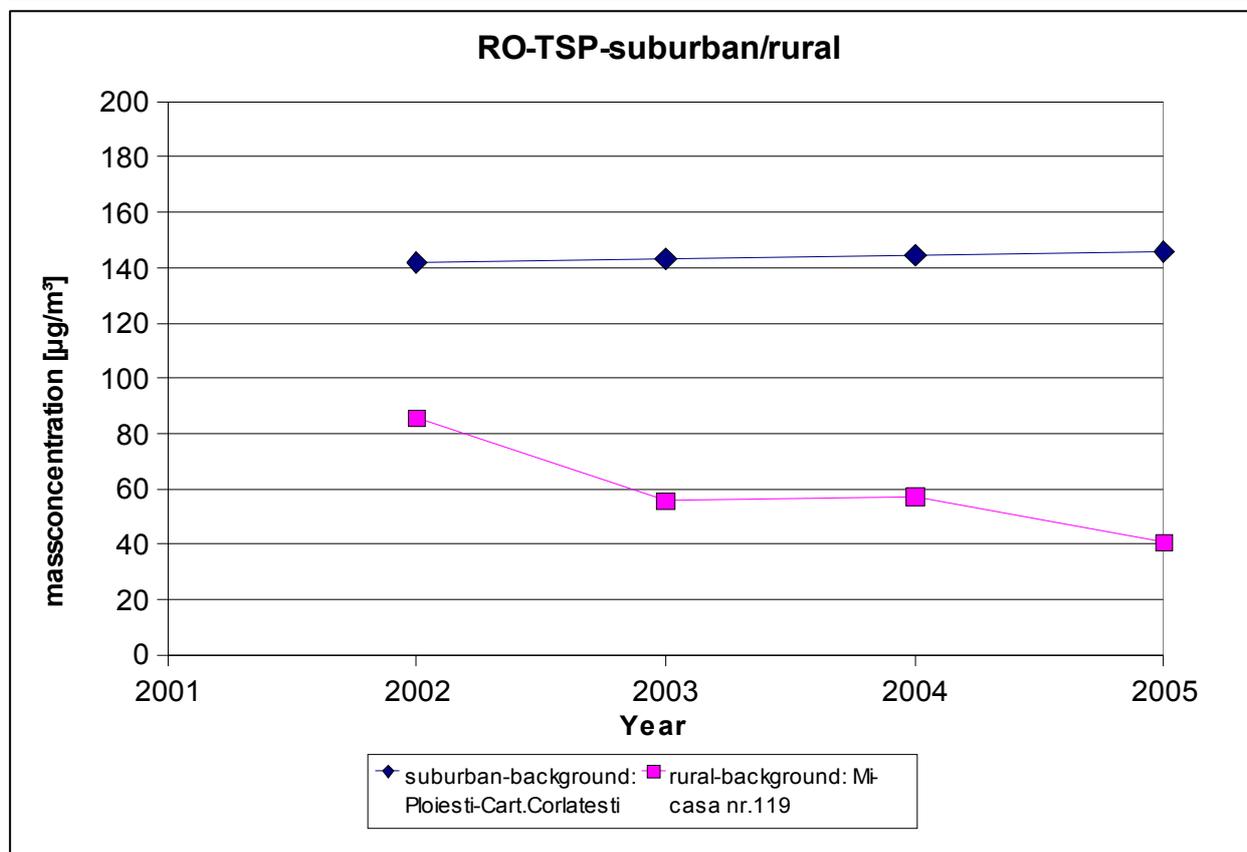
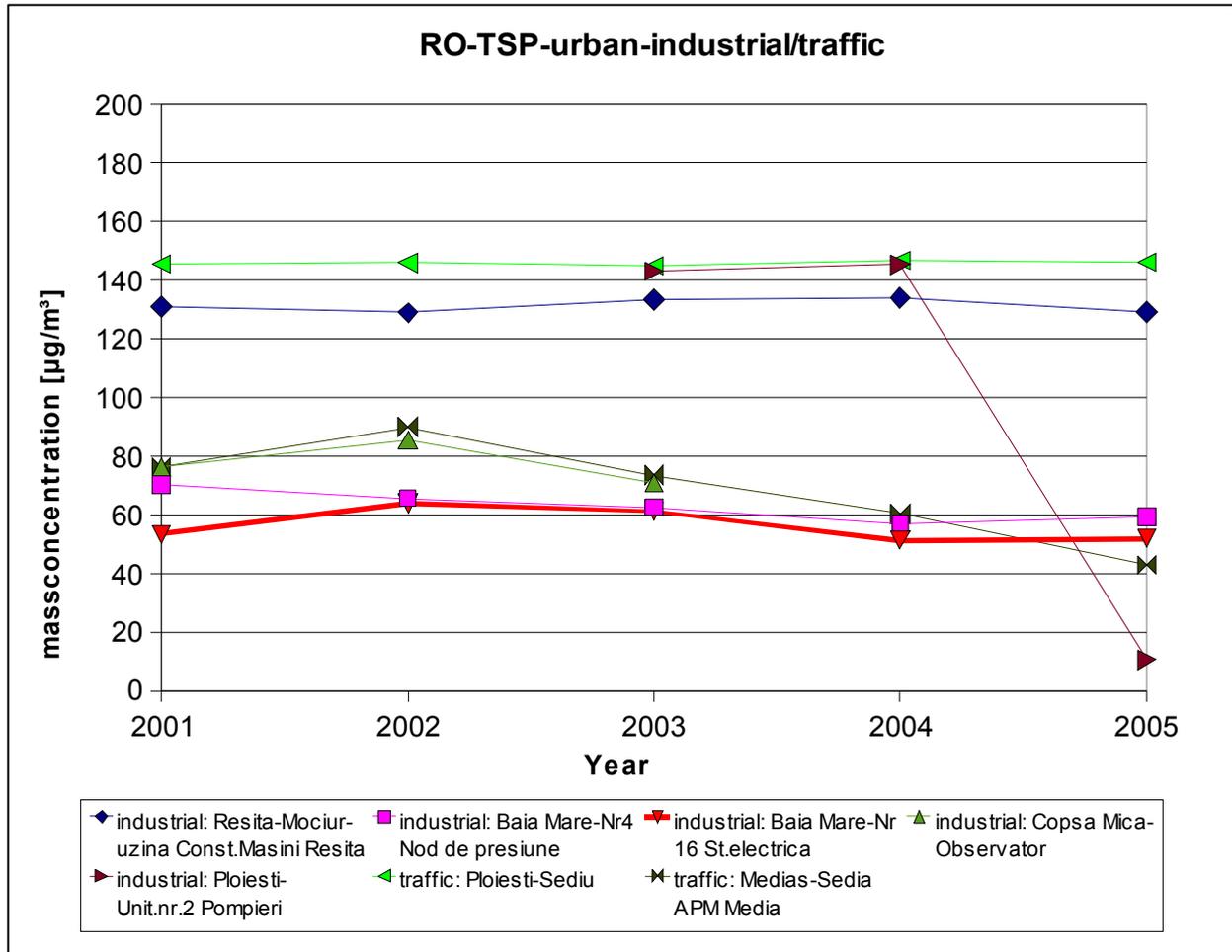


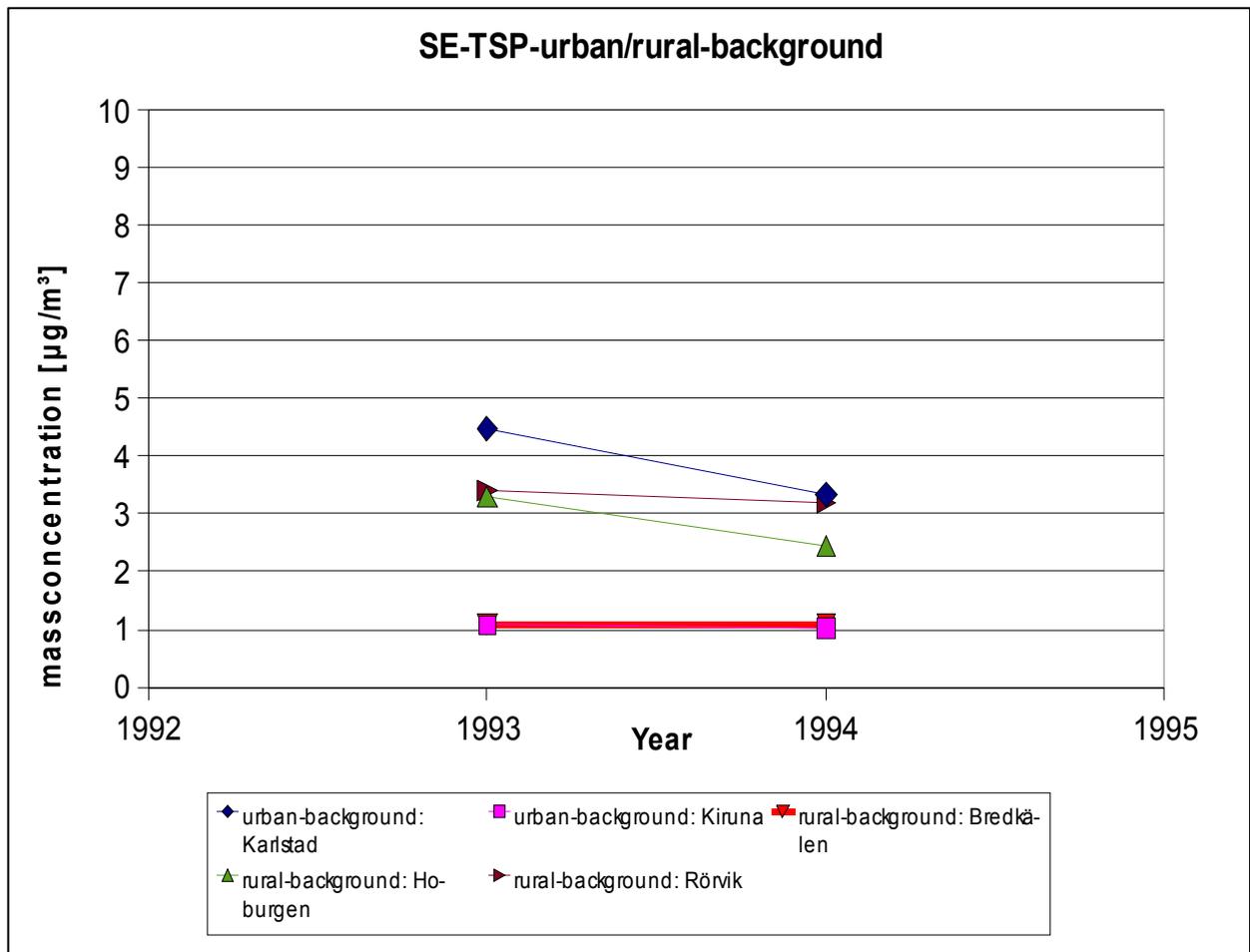




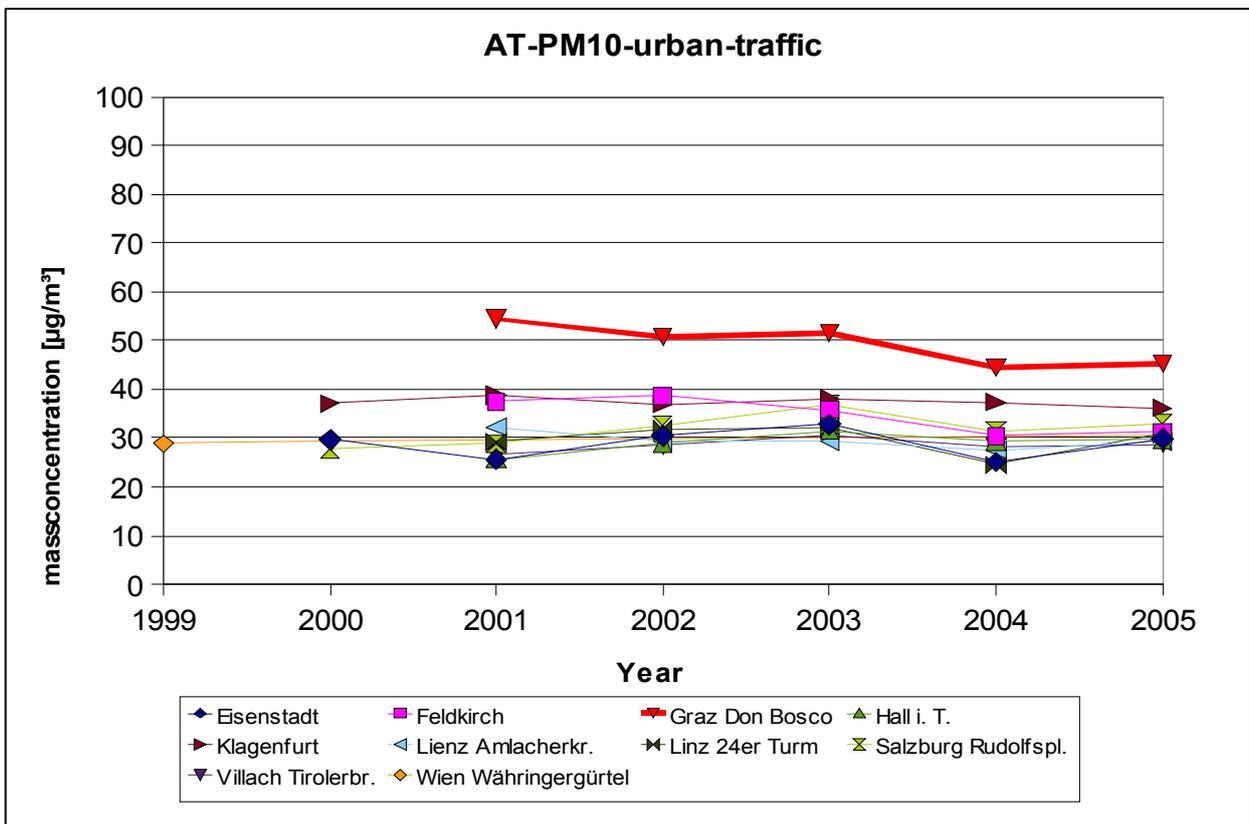
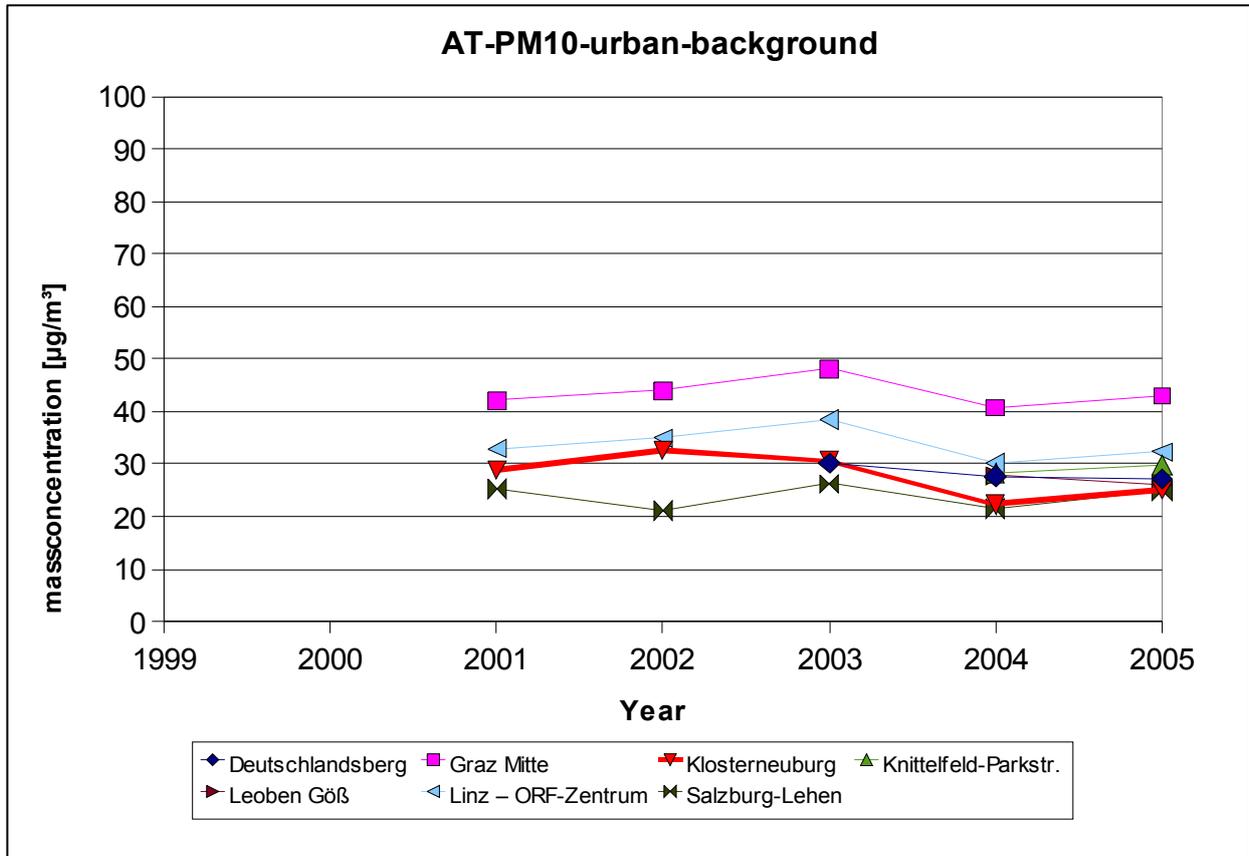


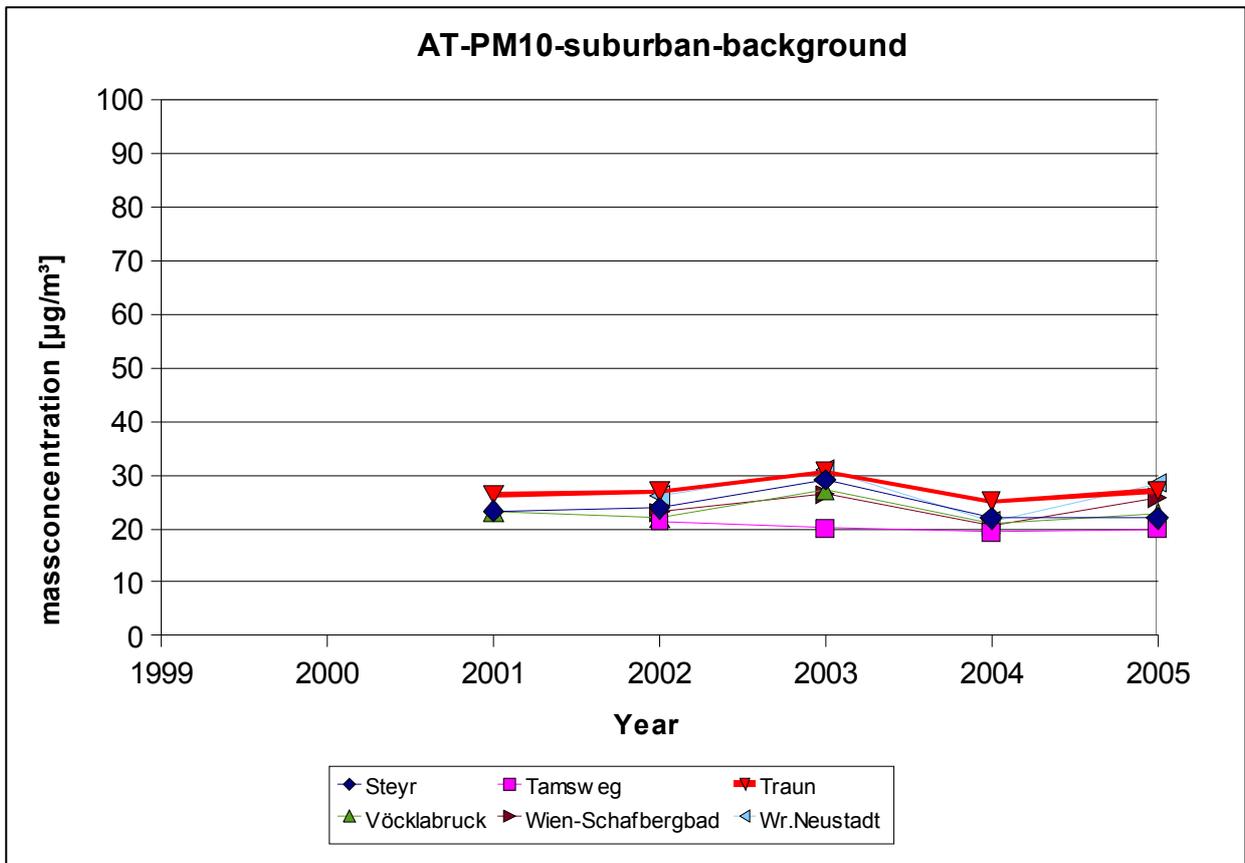
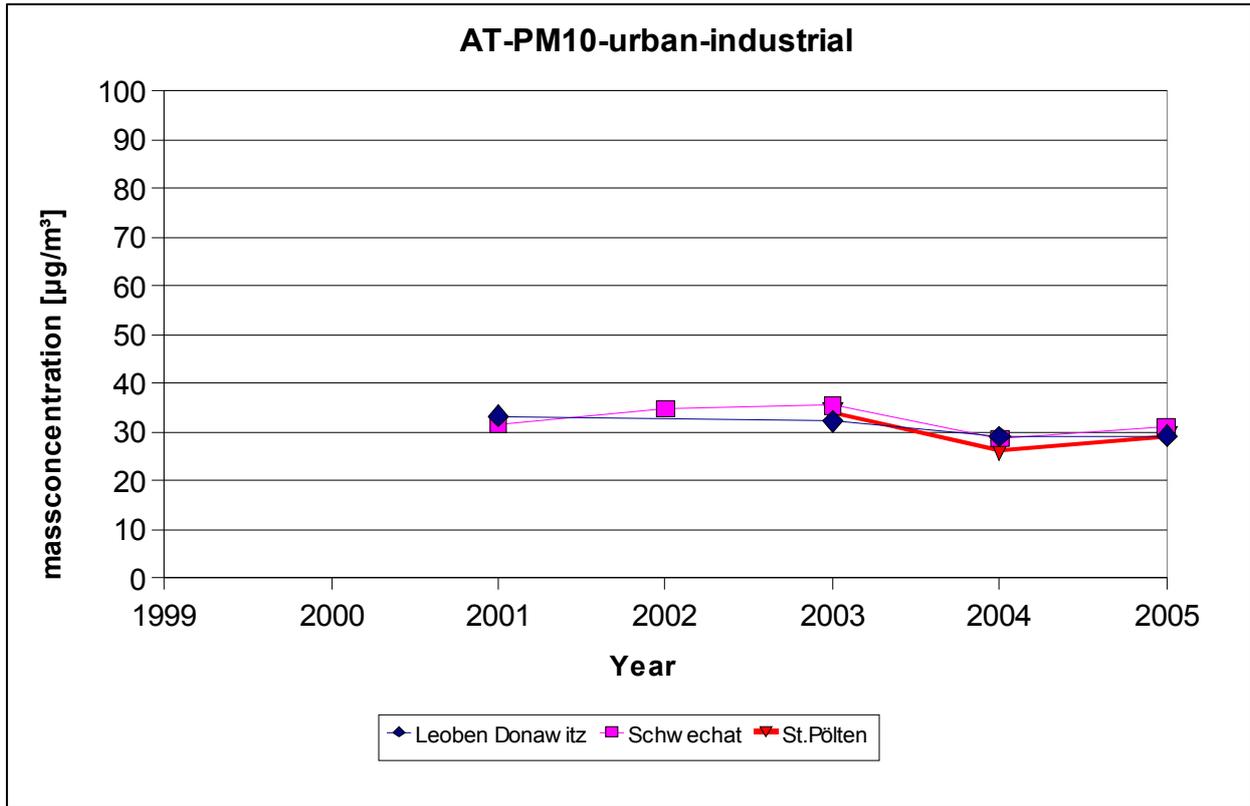


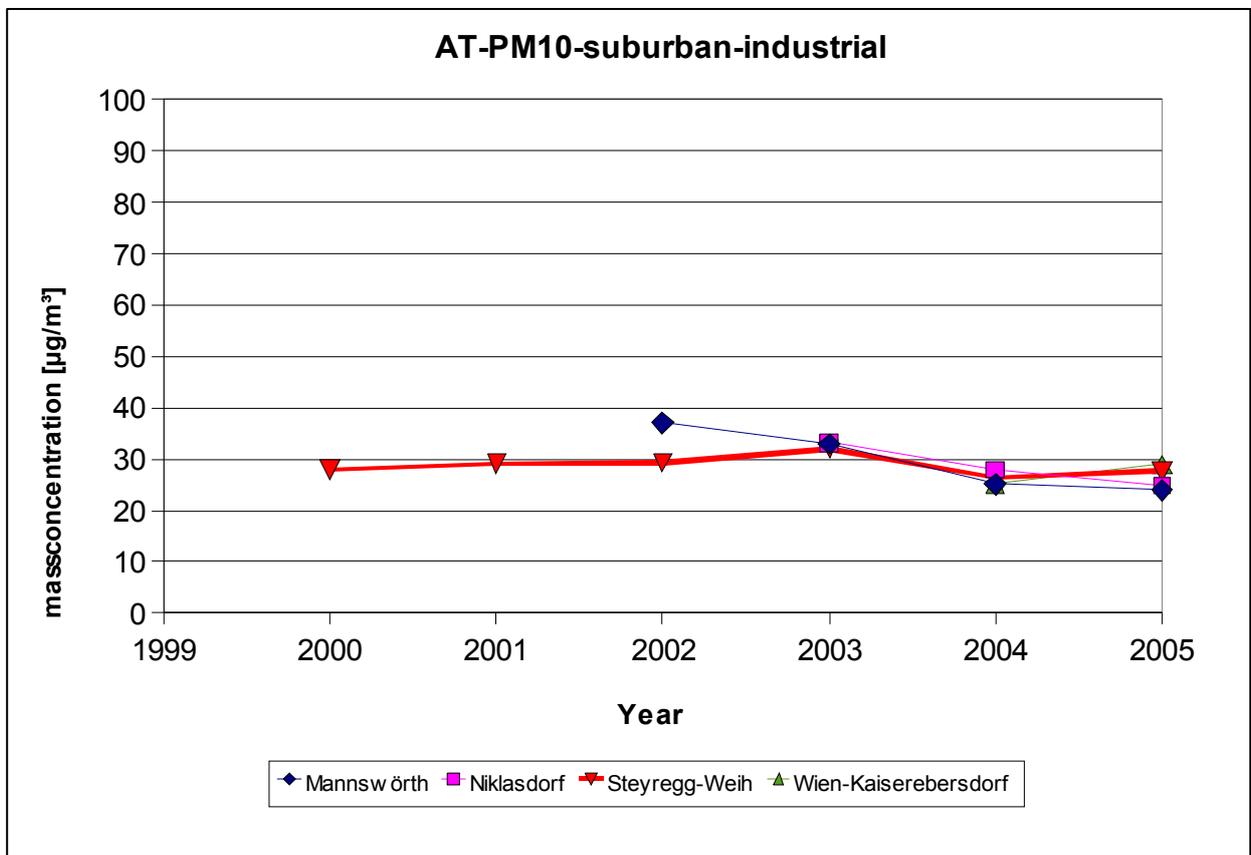
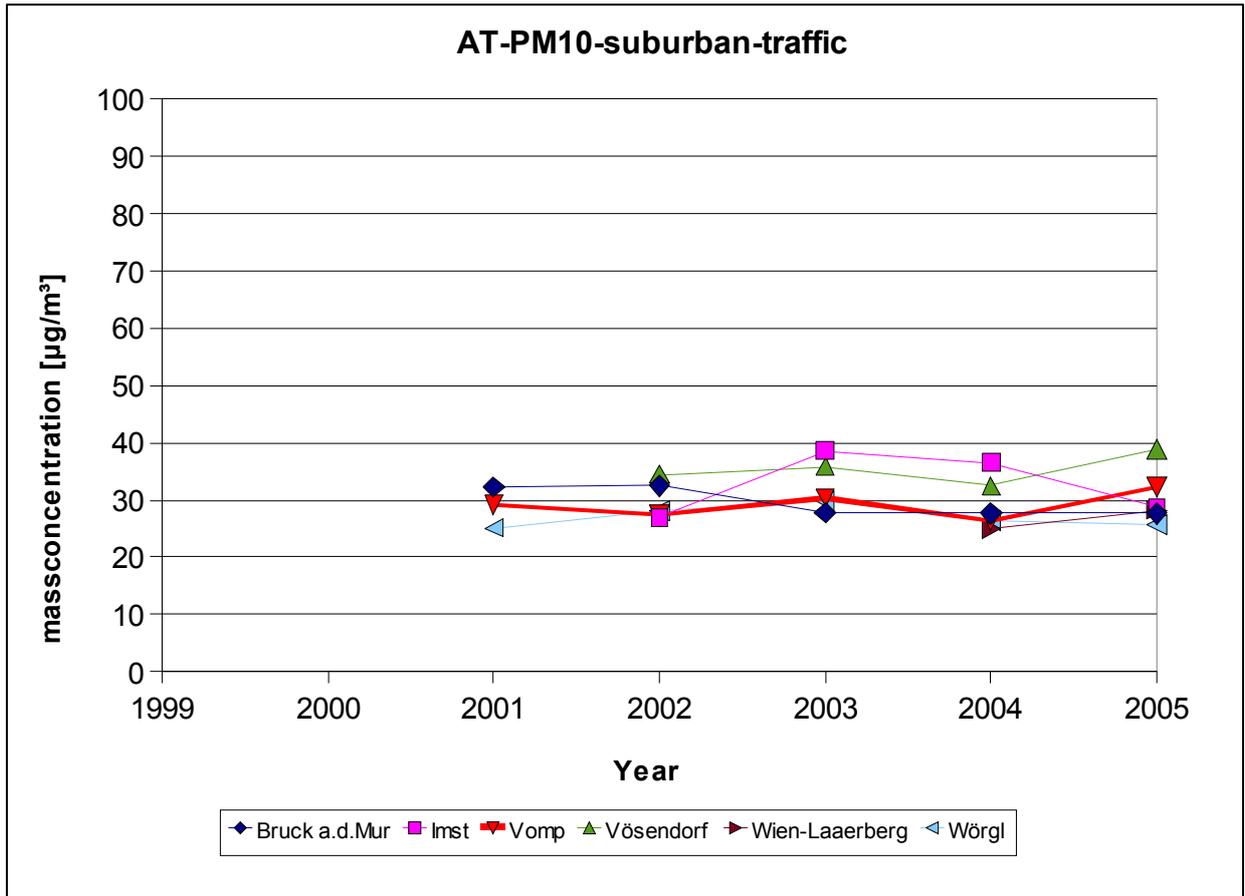


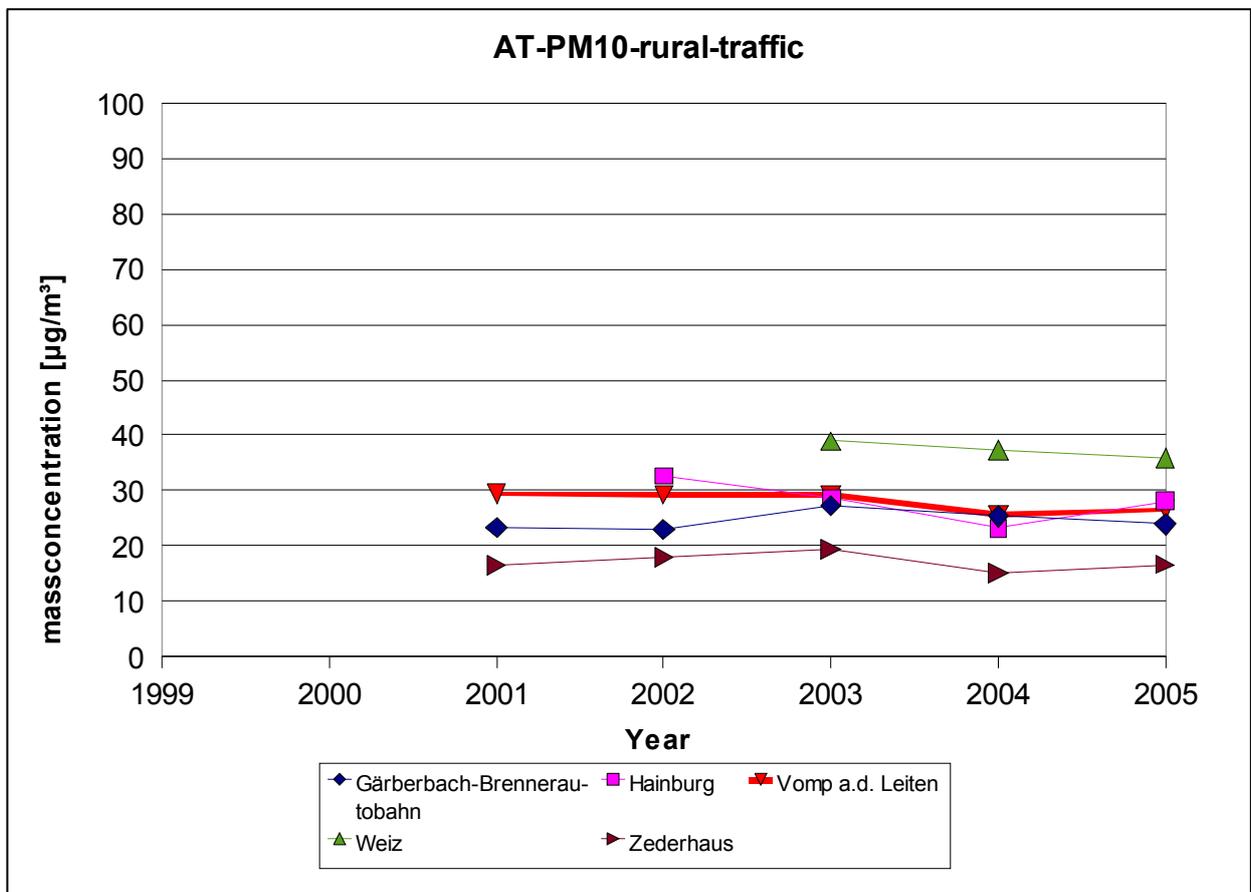
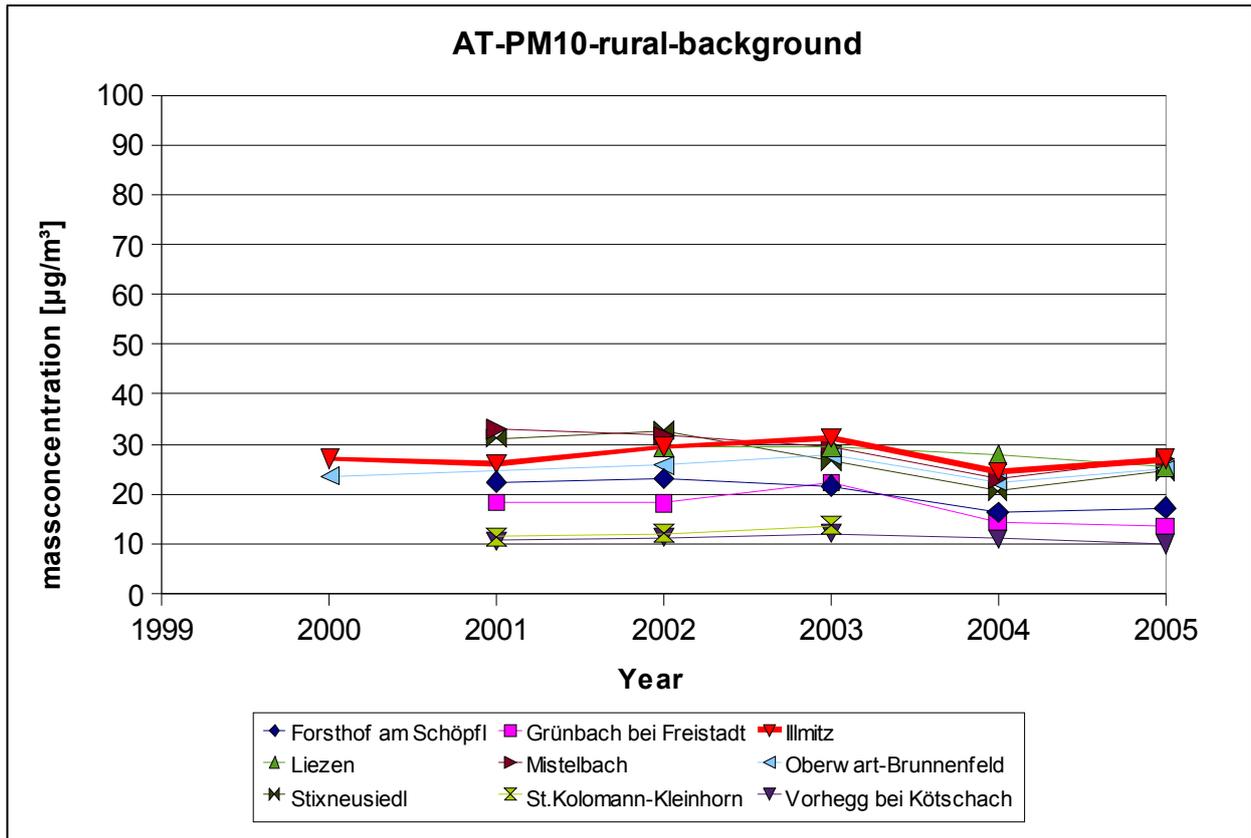


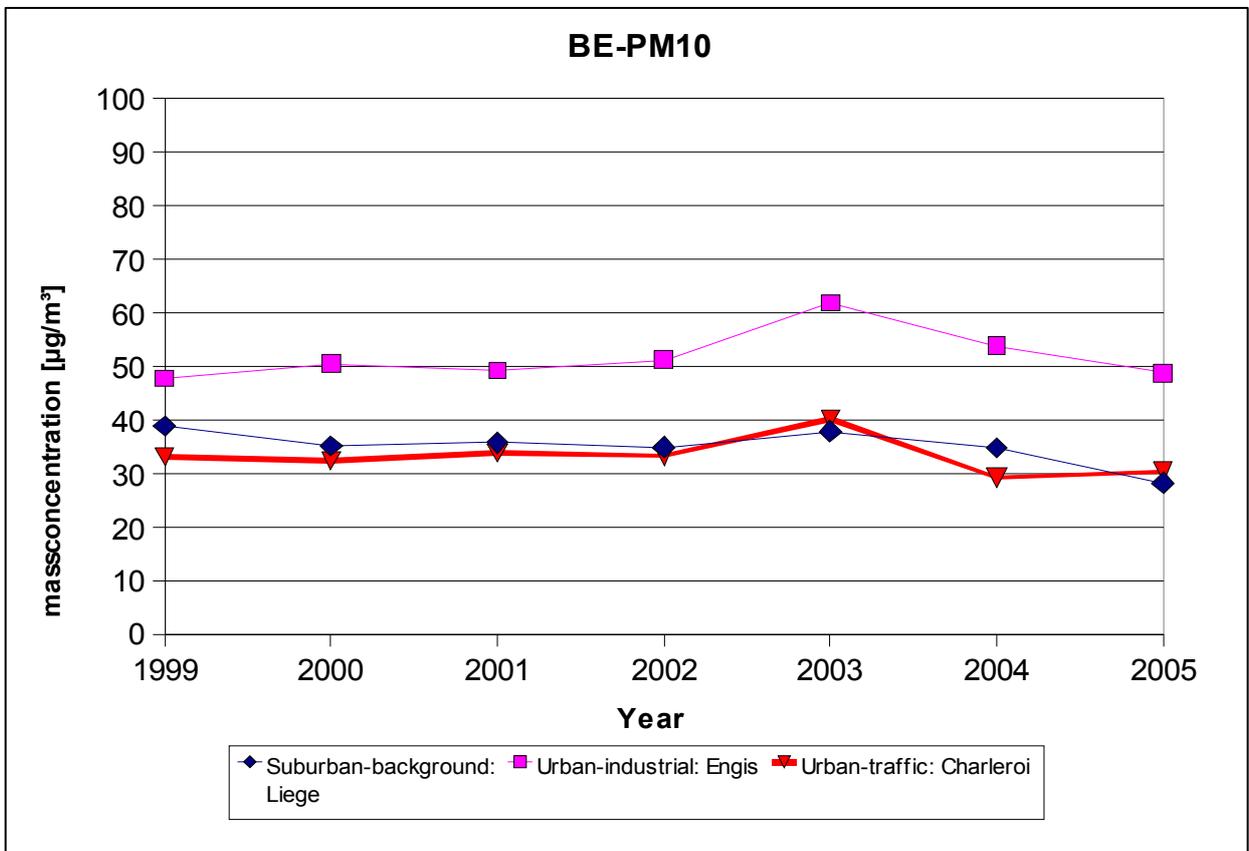
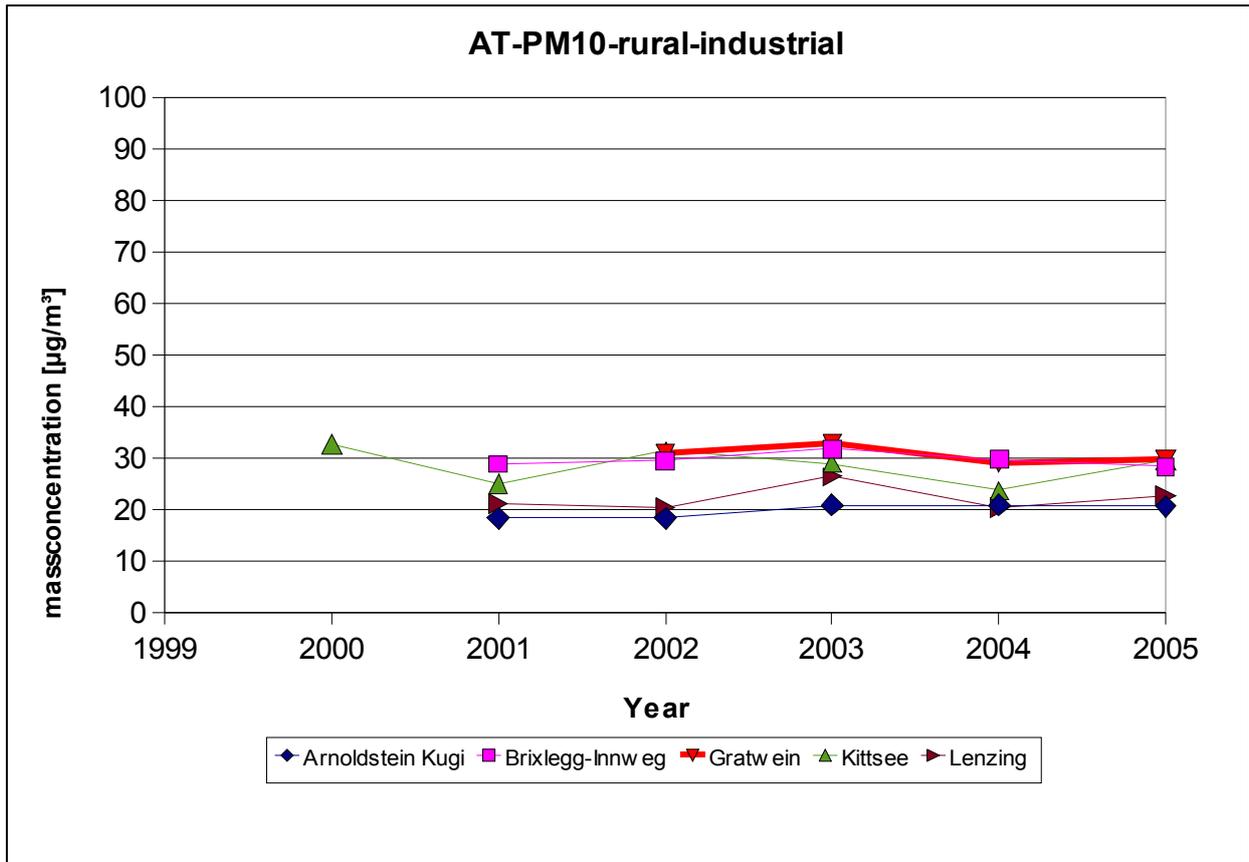
Anhang D

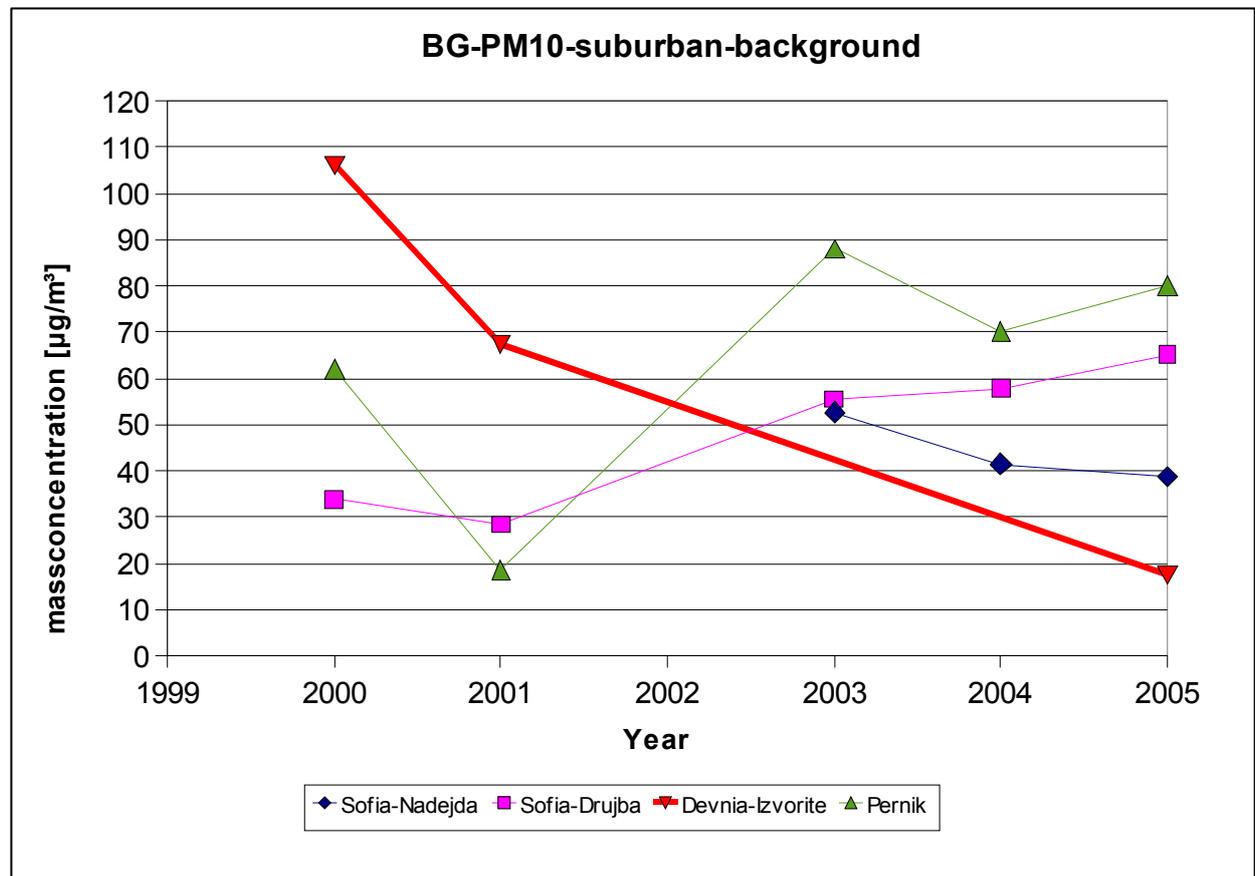
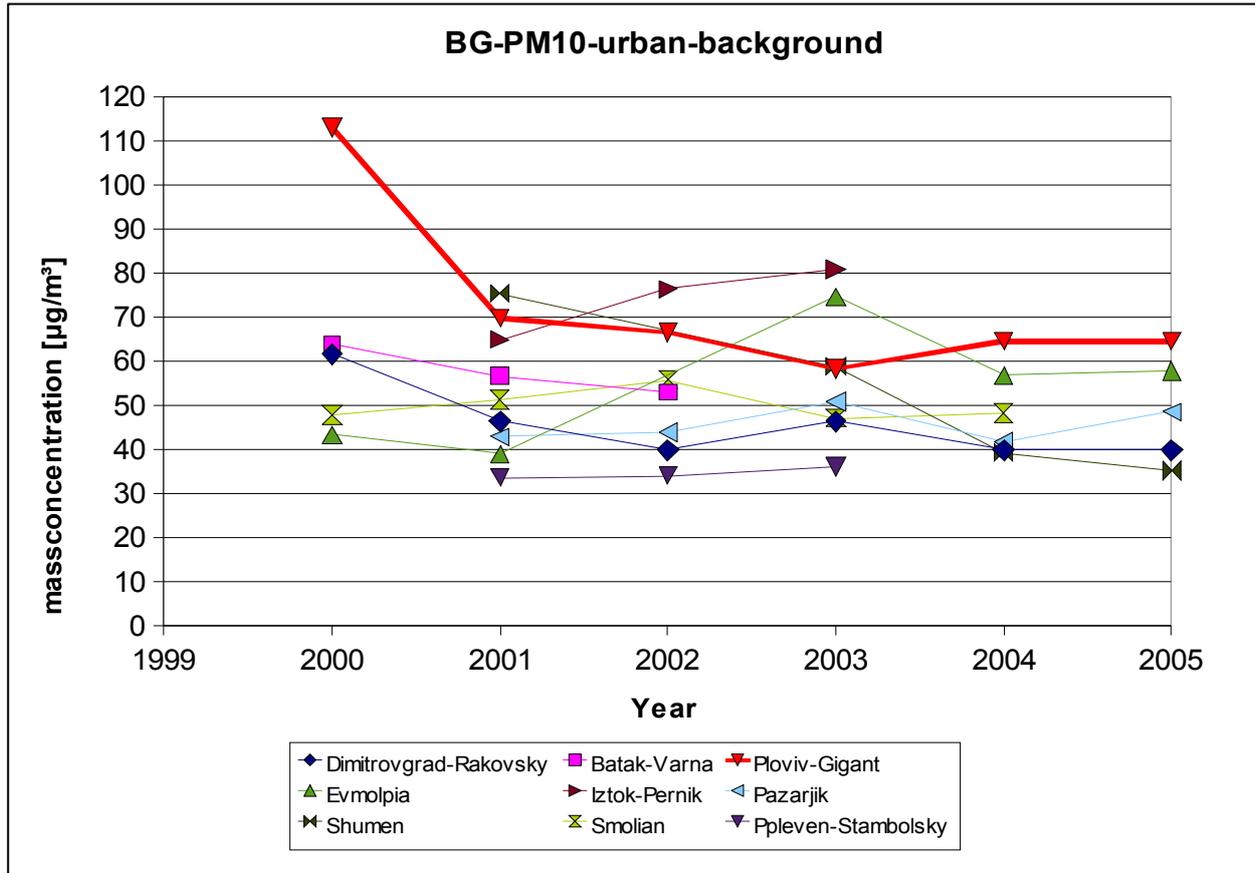


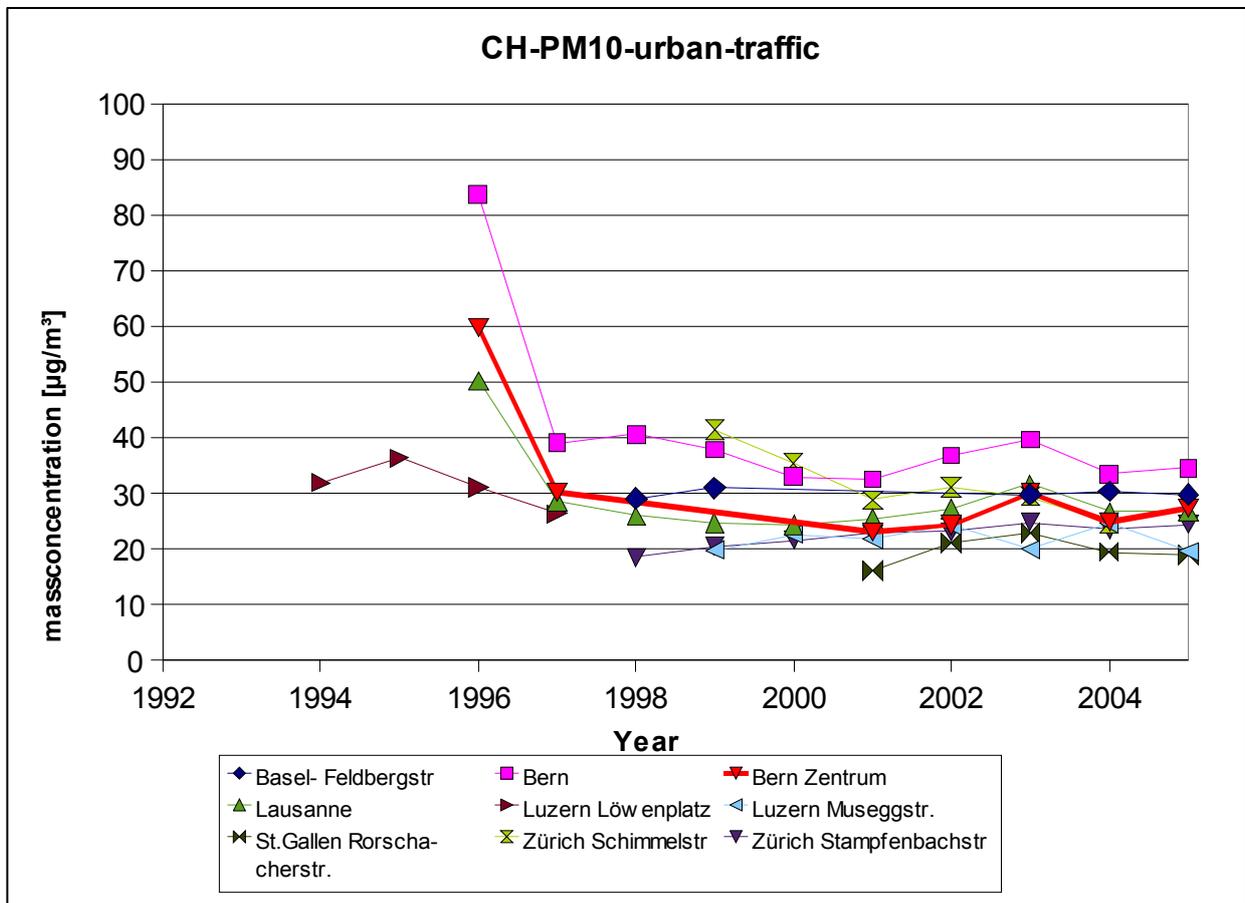
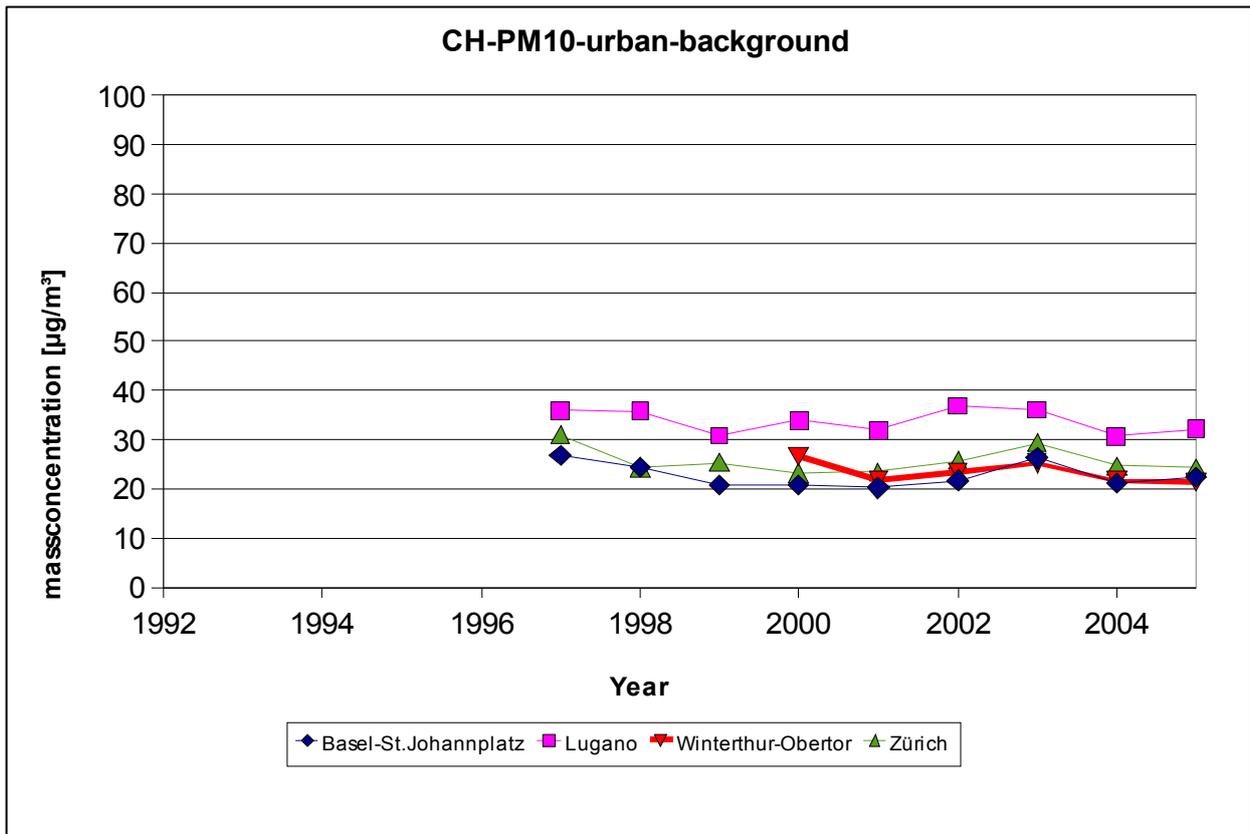


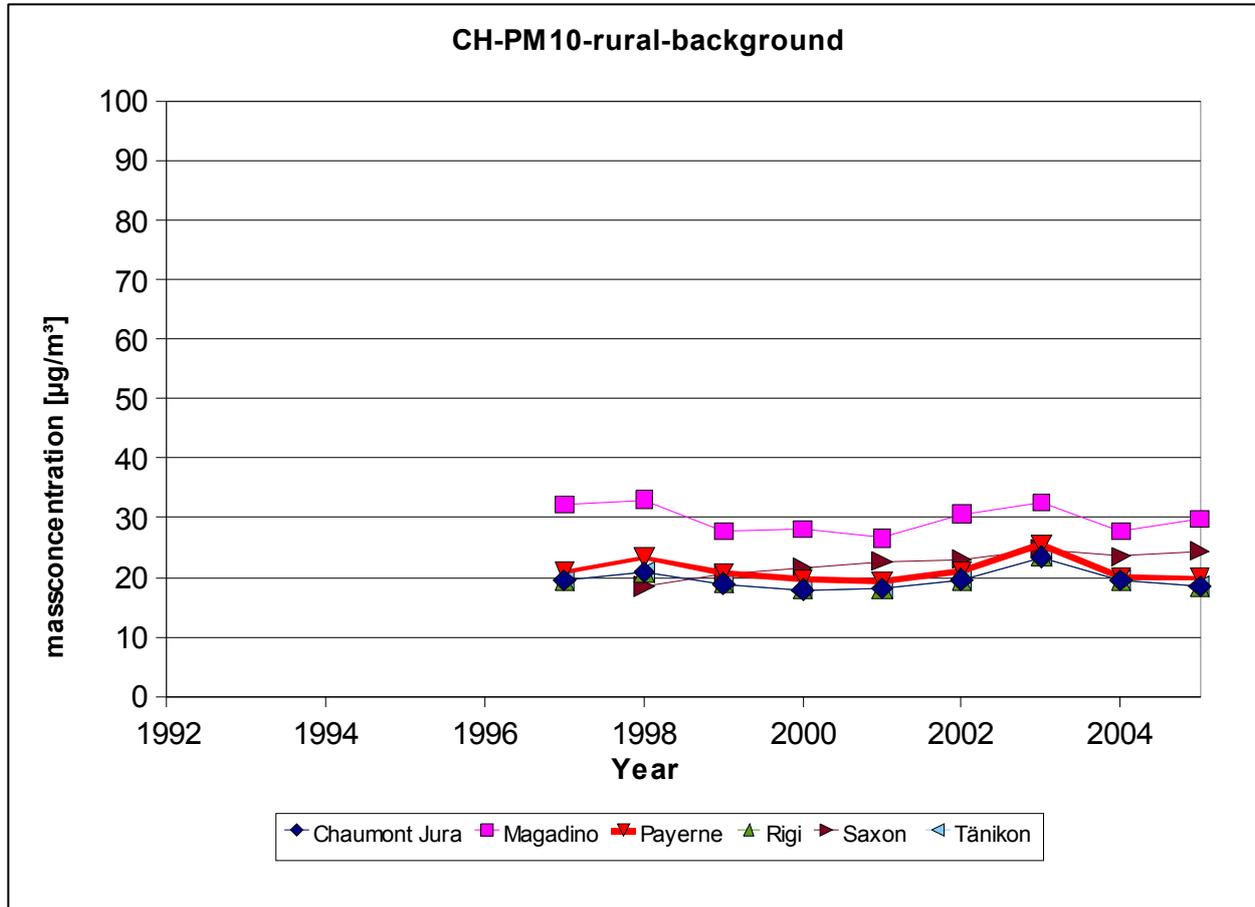
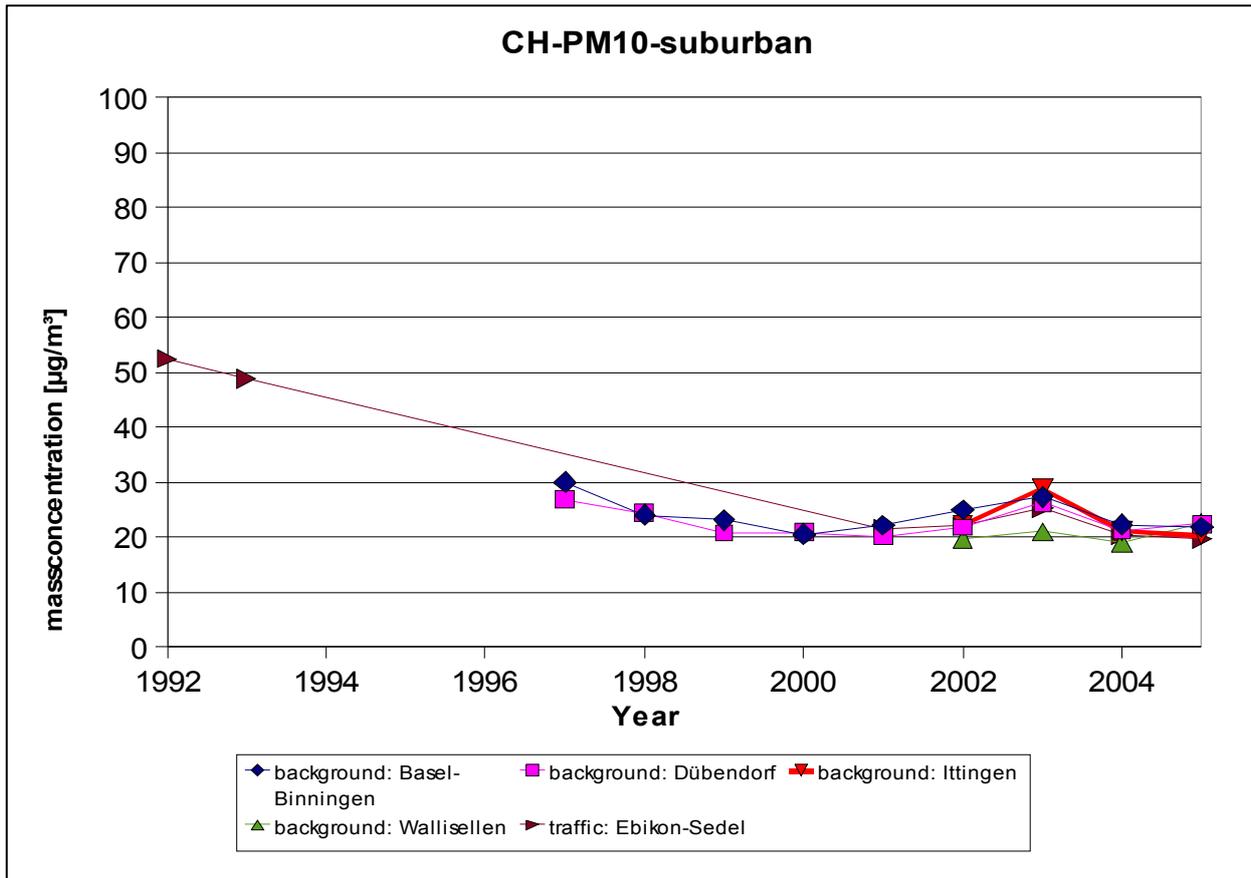


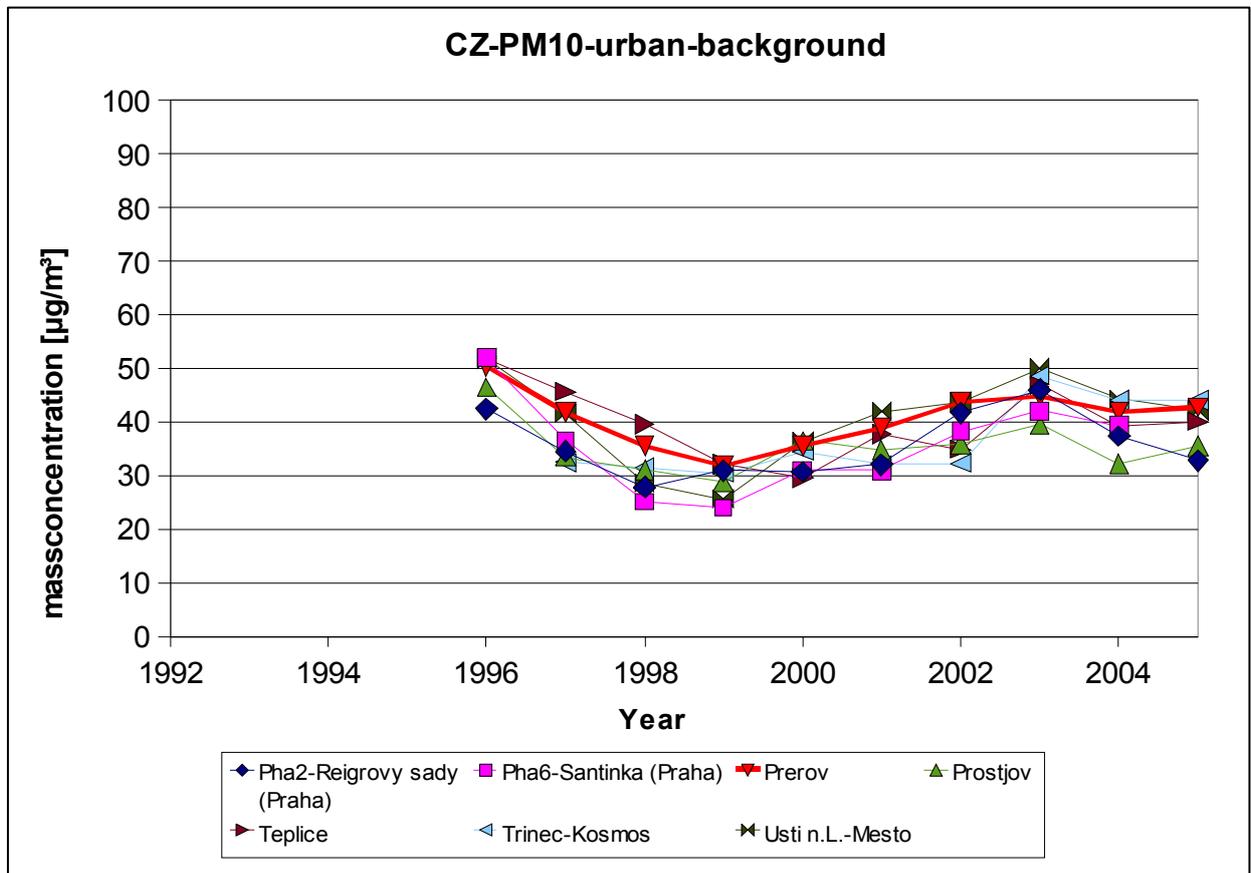
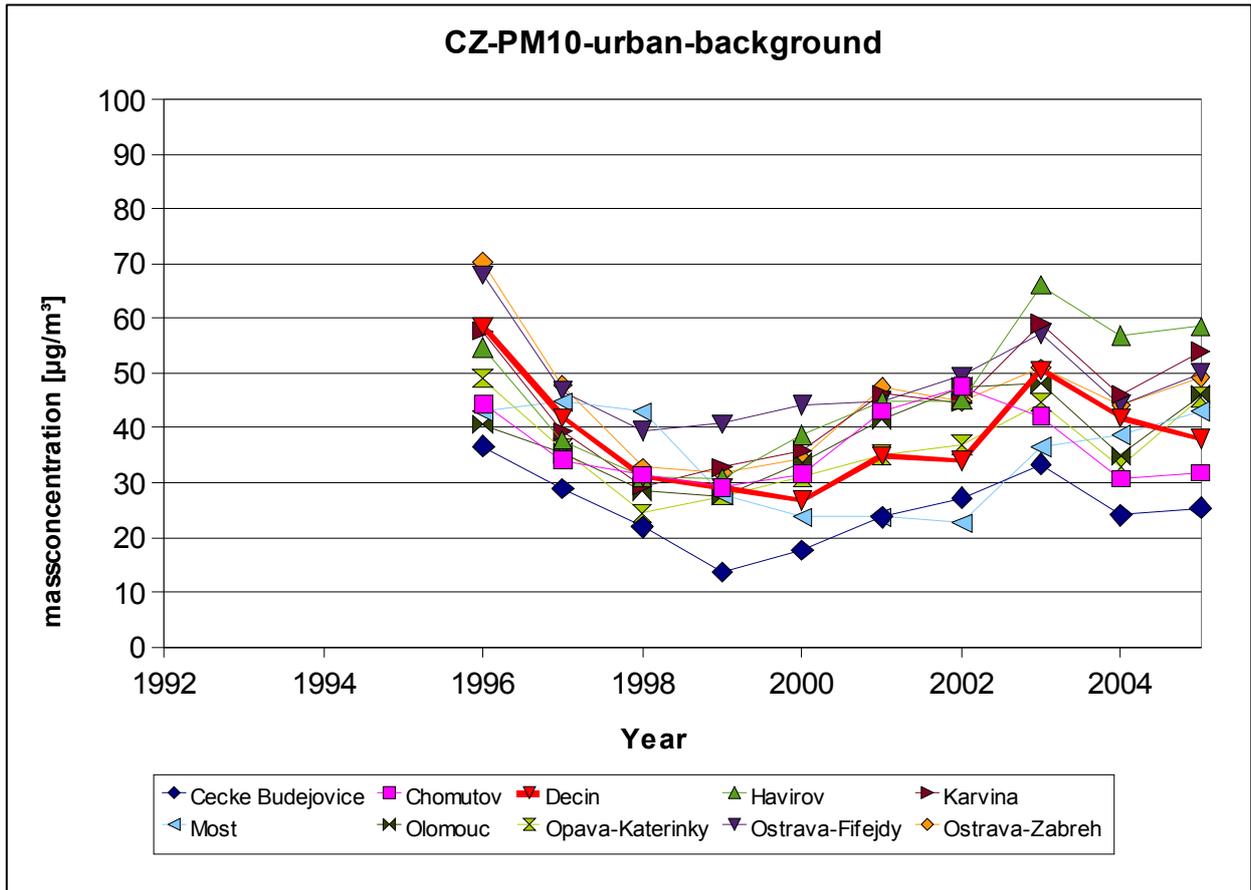


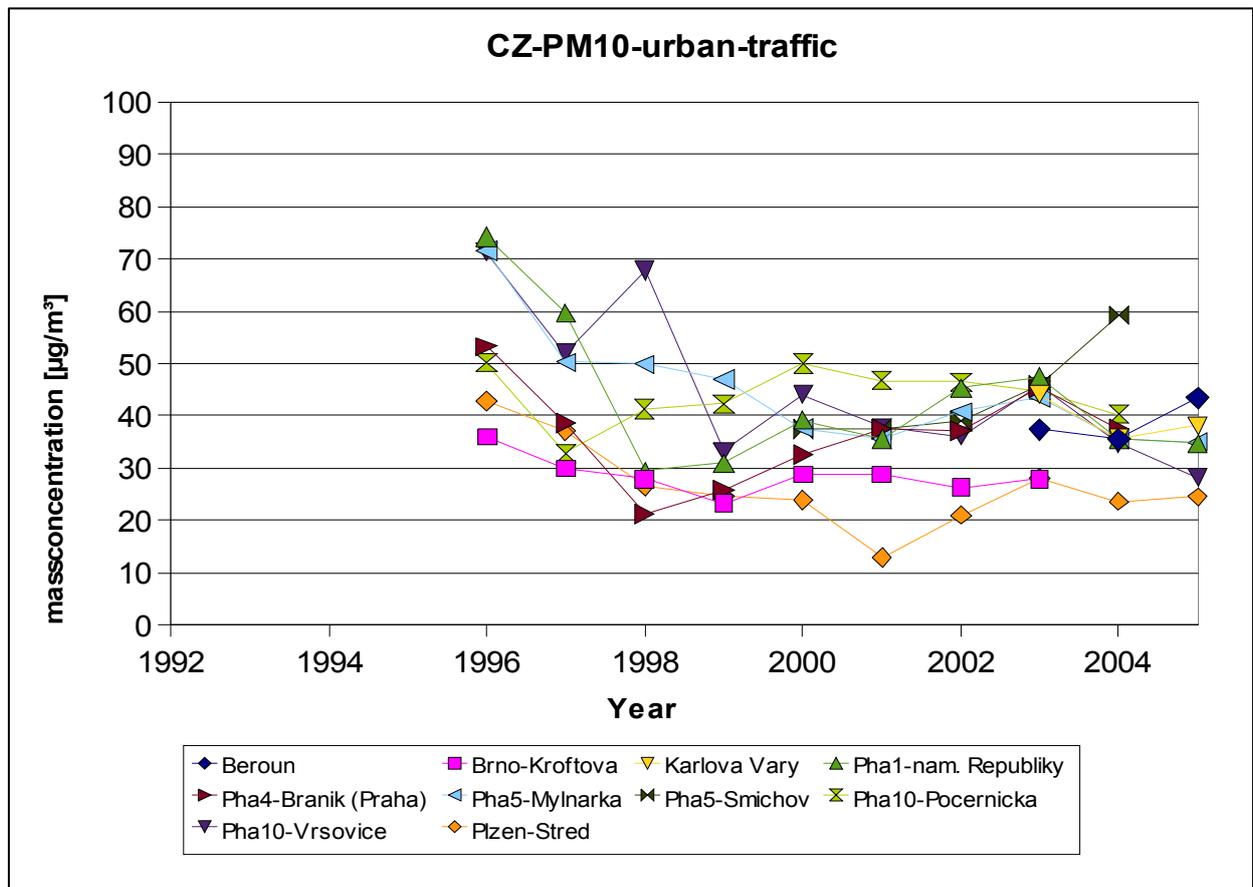
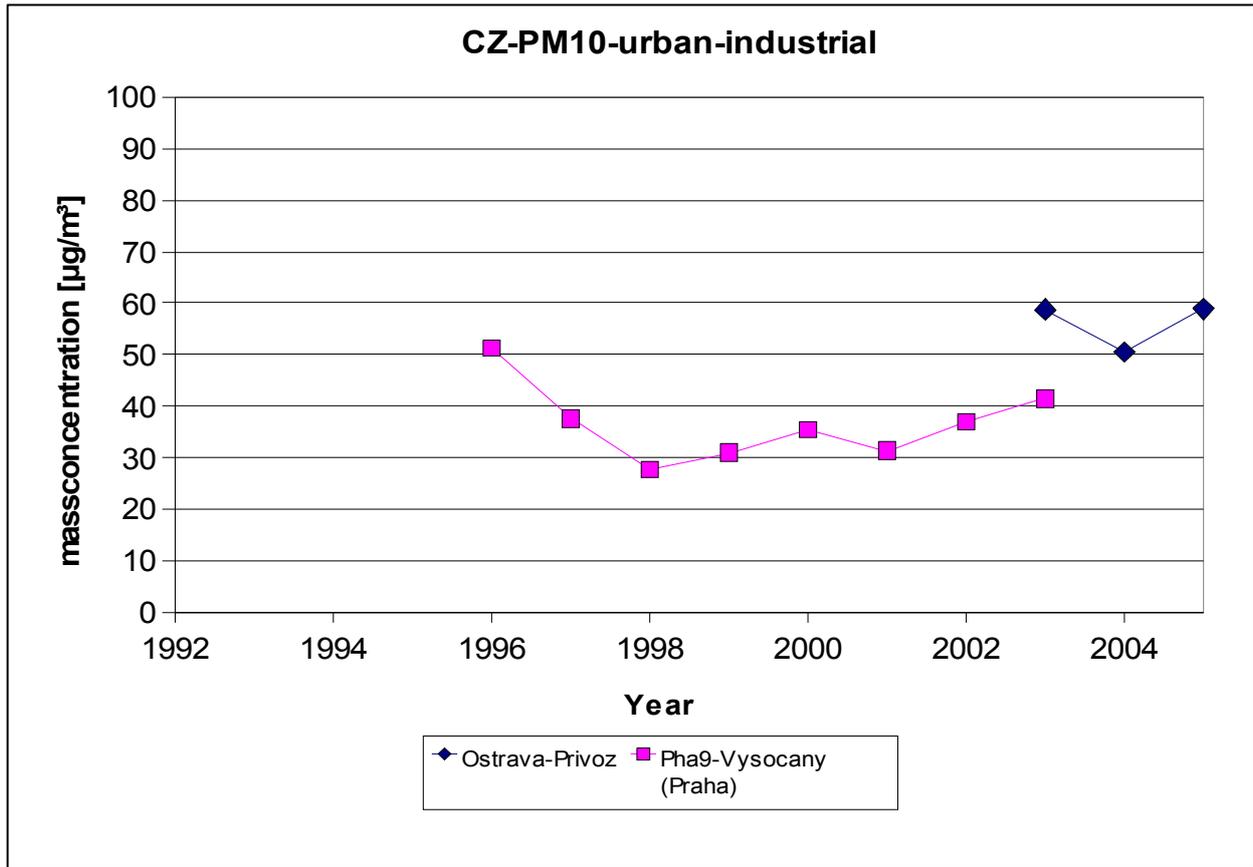


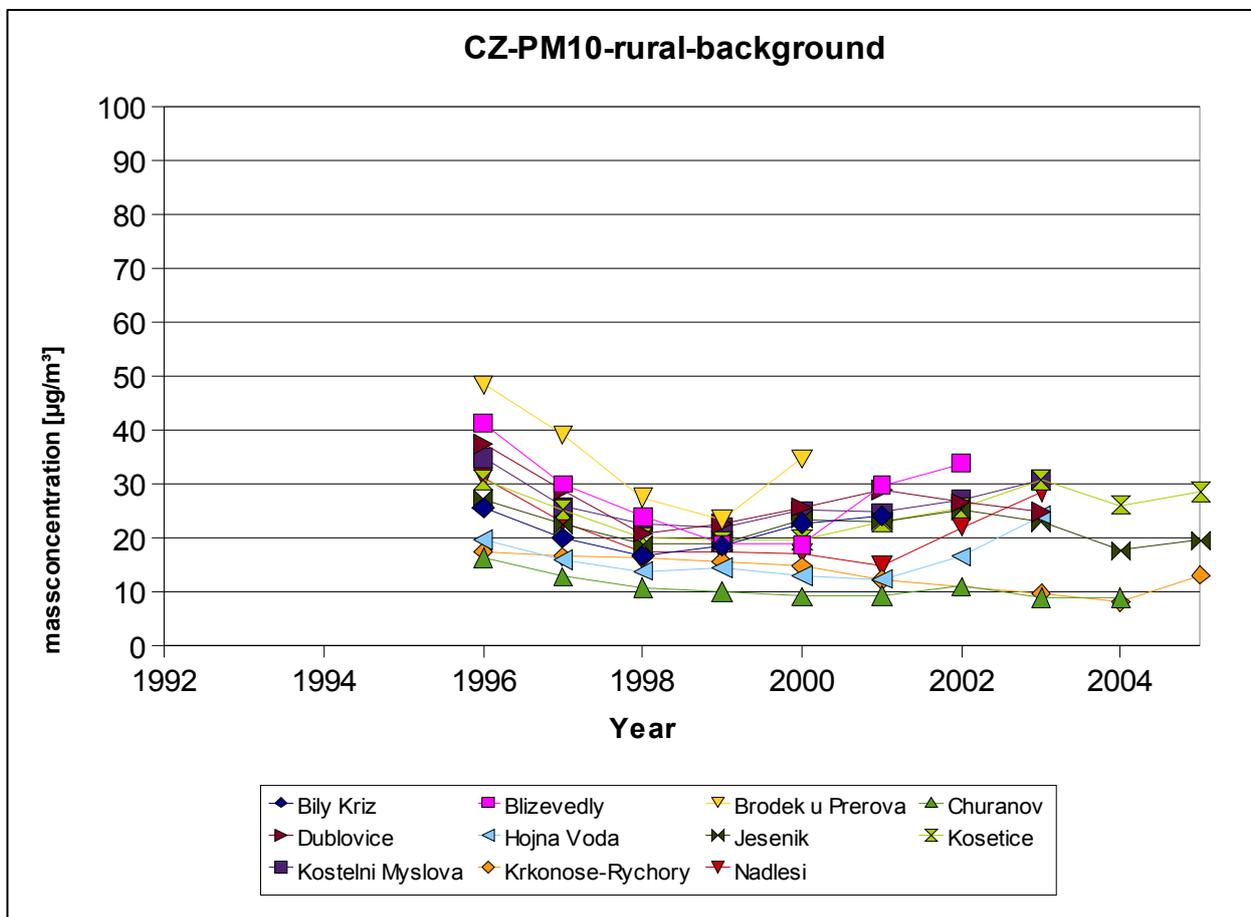
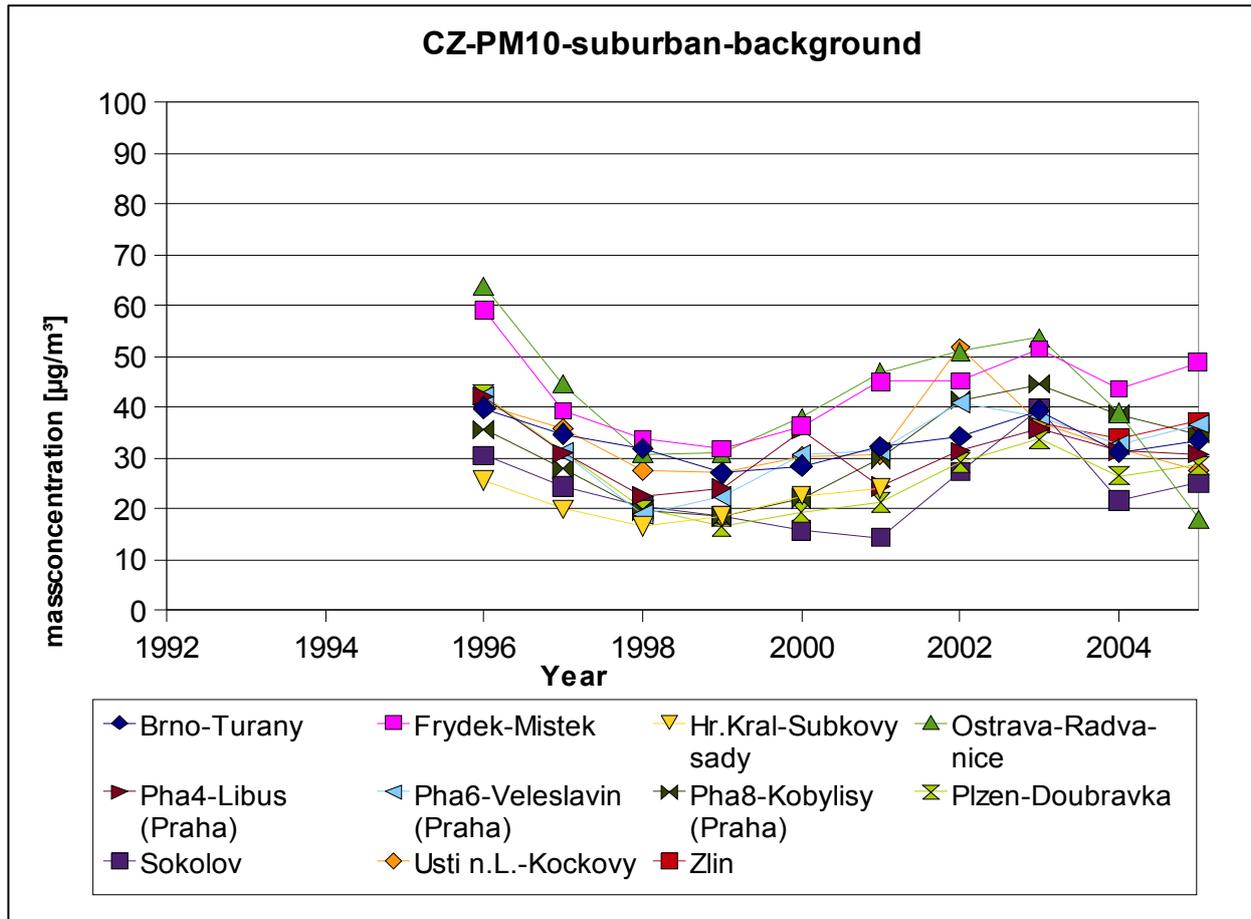


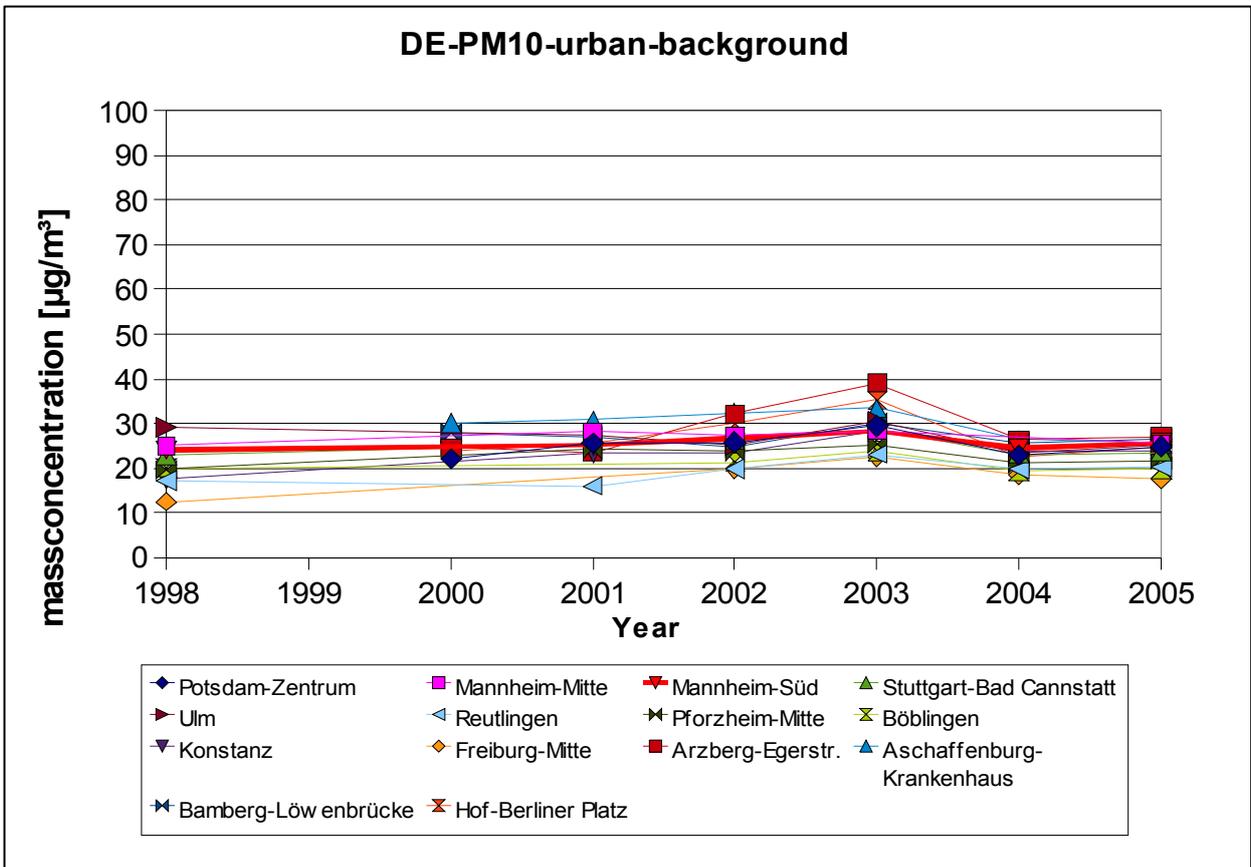
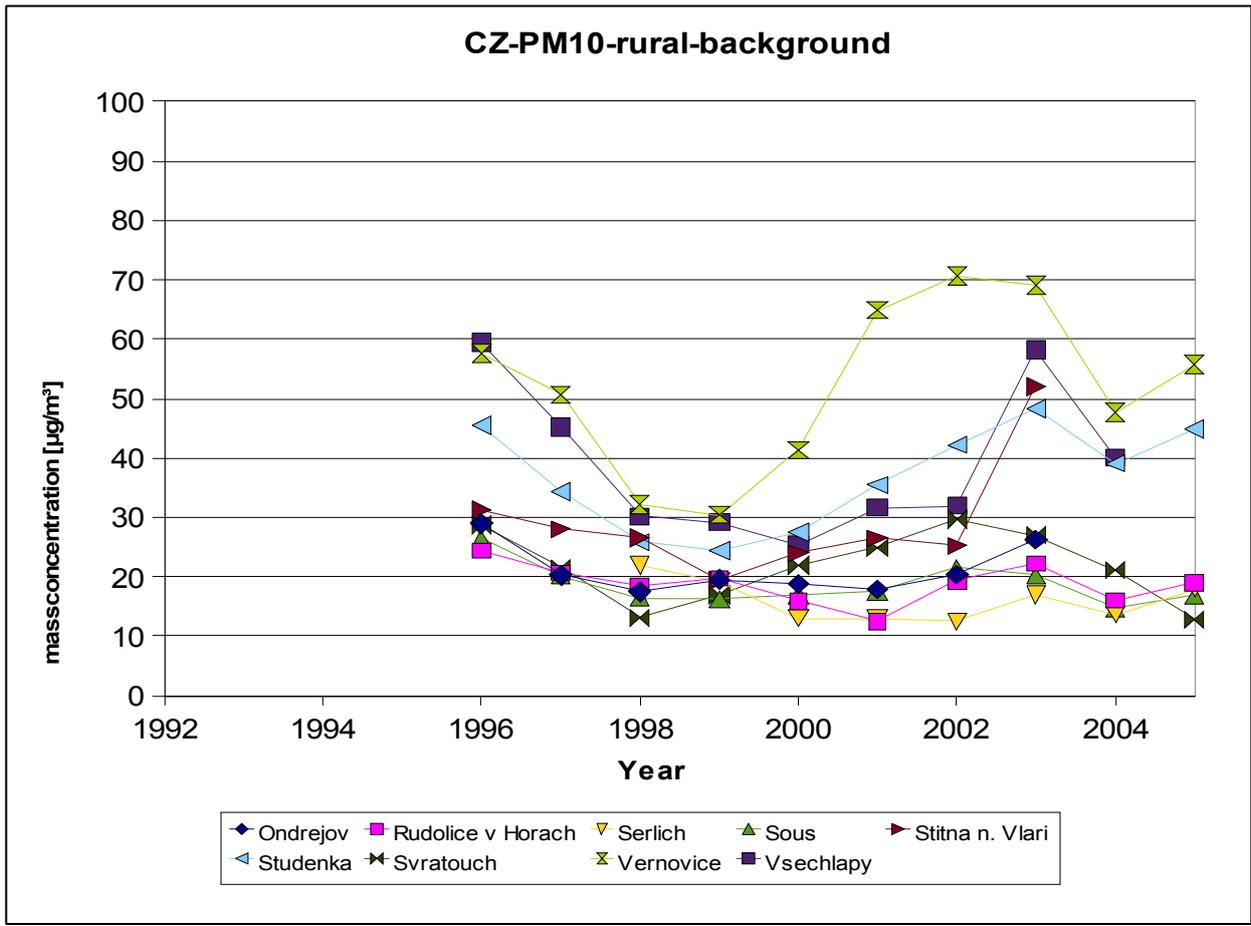


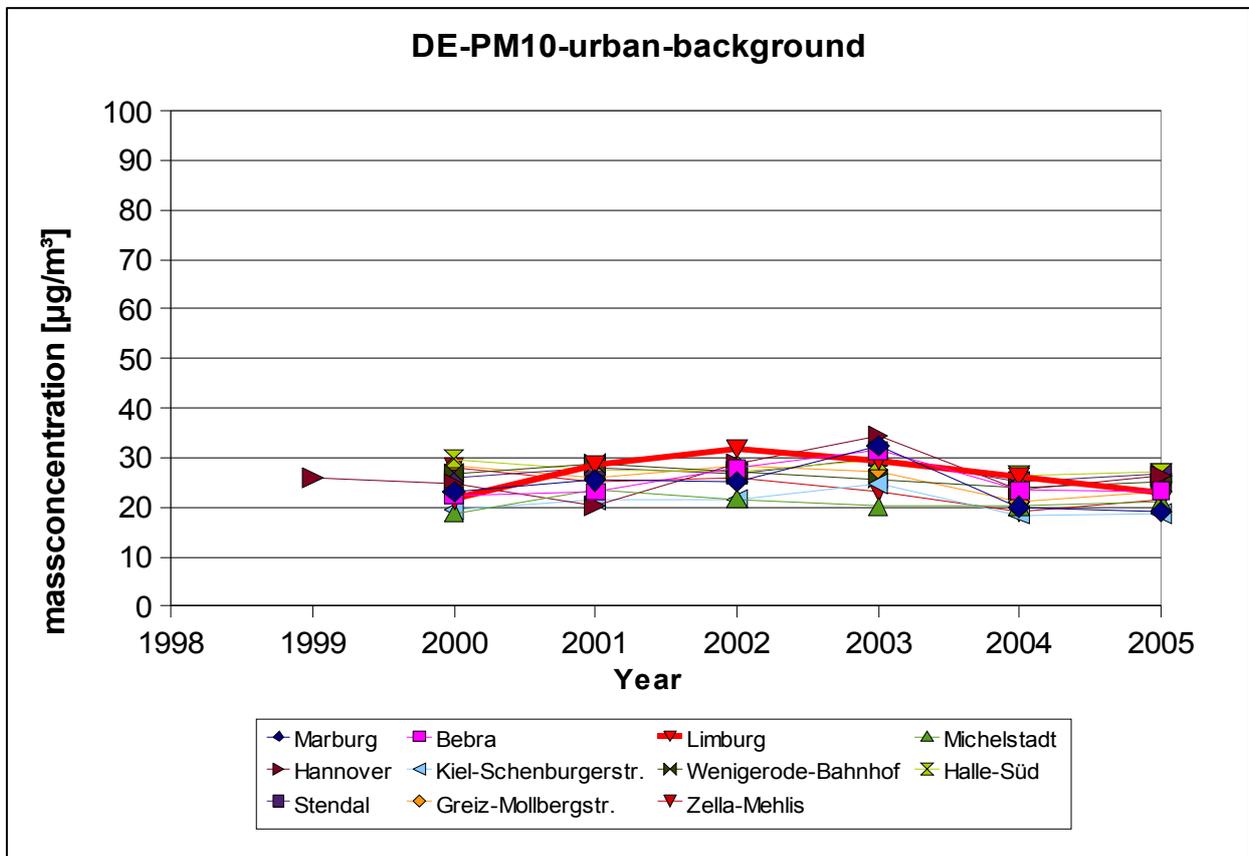
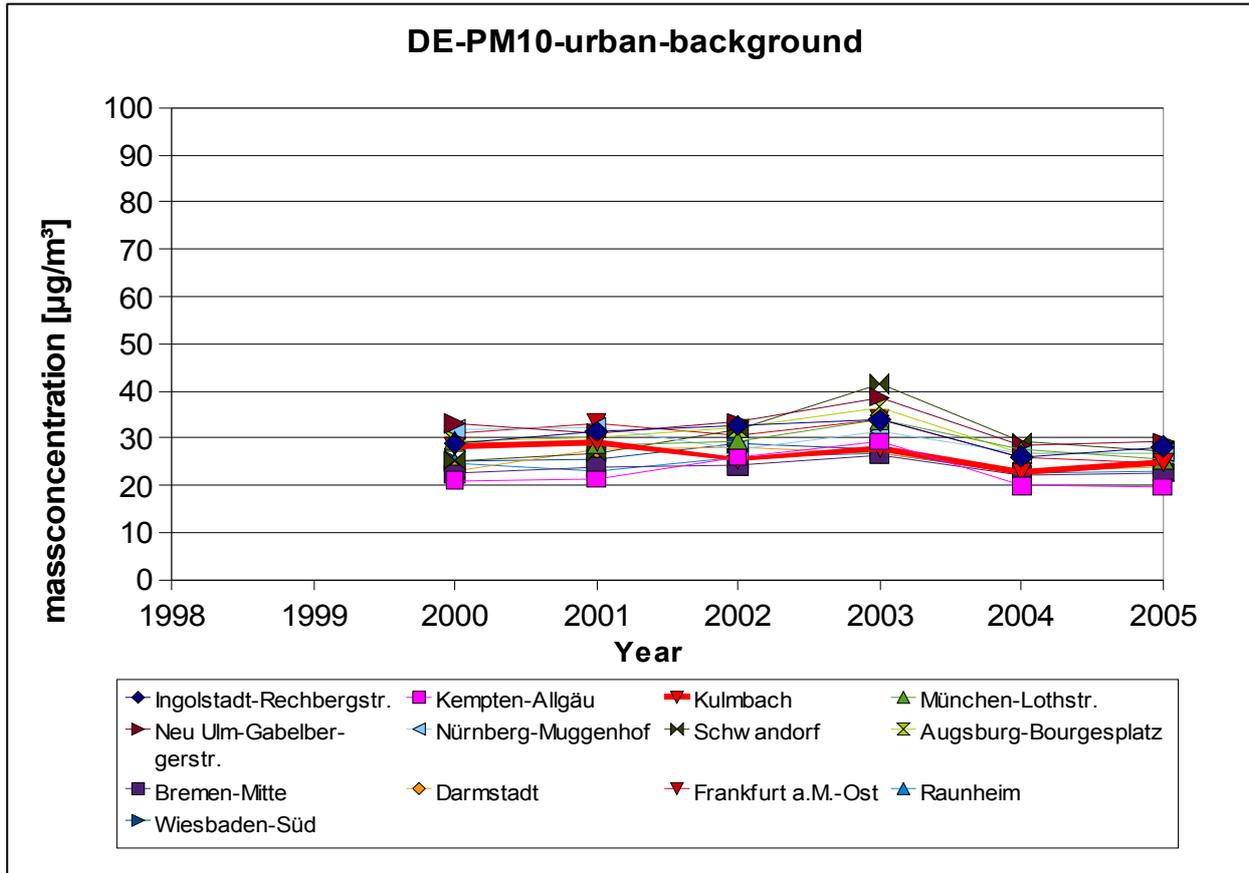


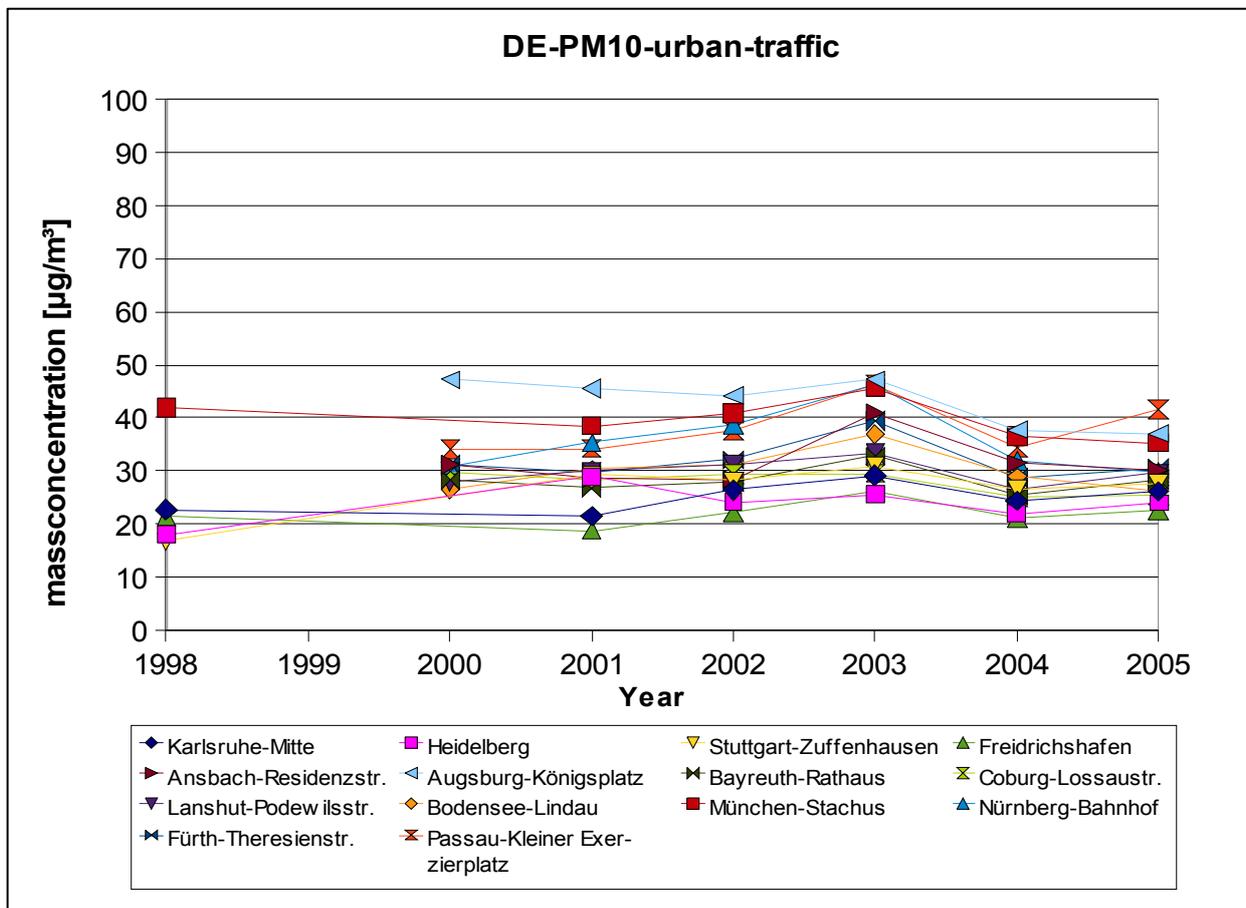
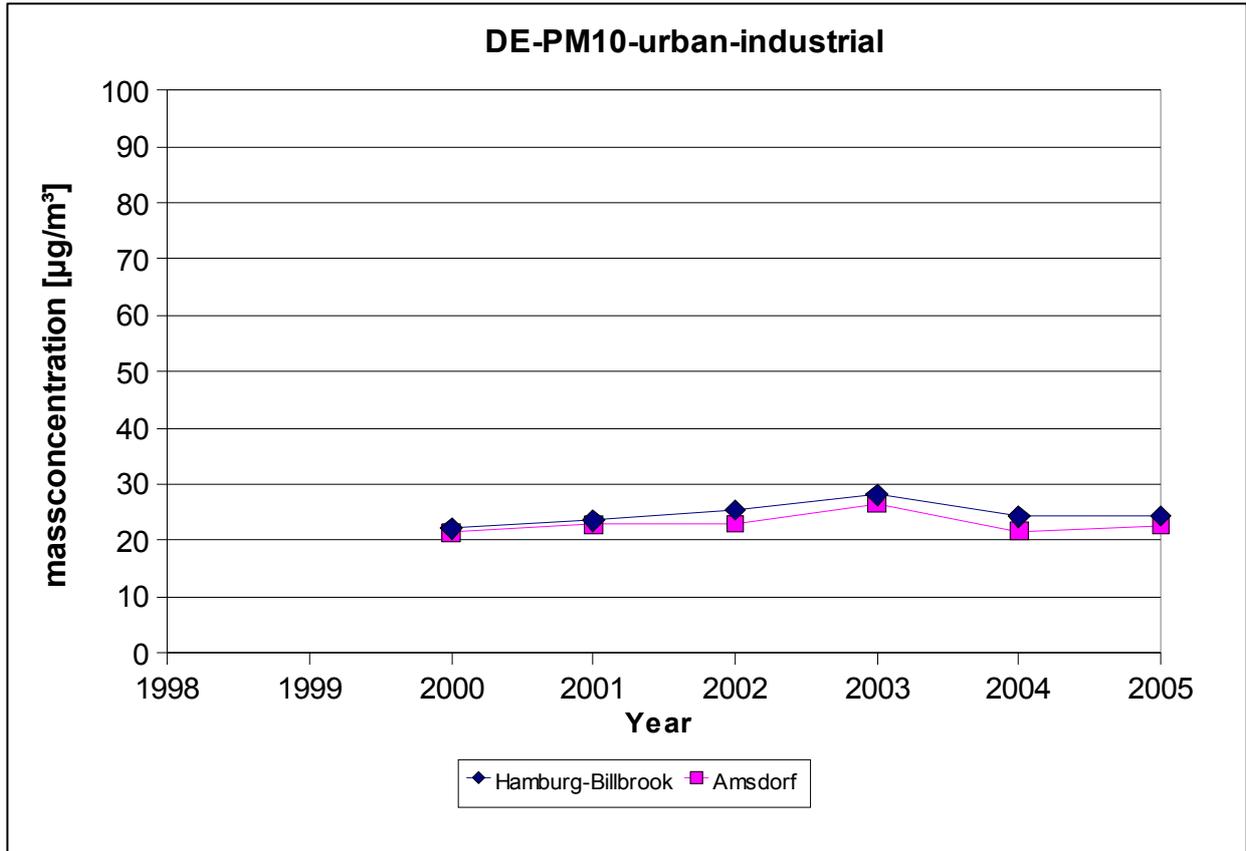


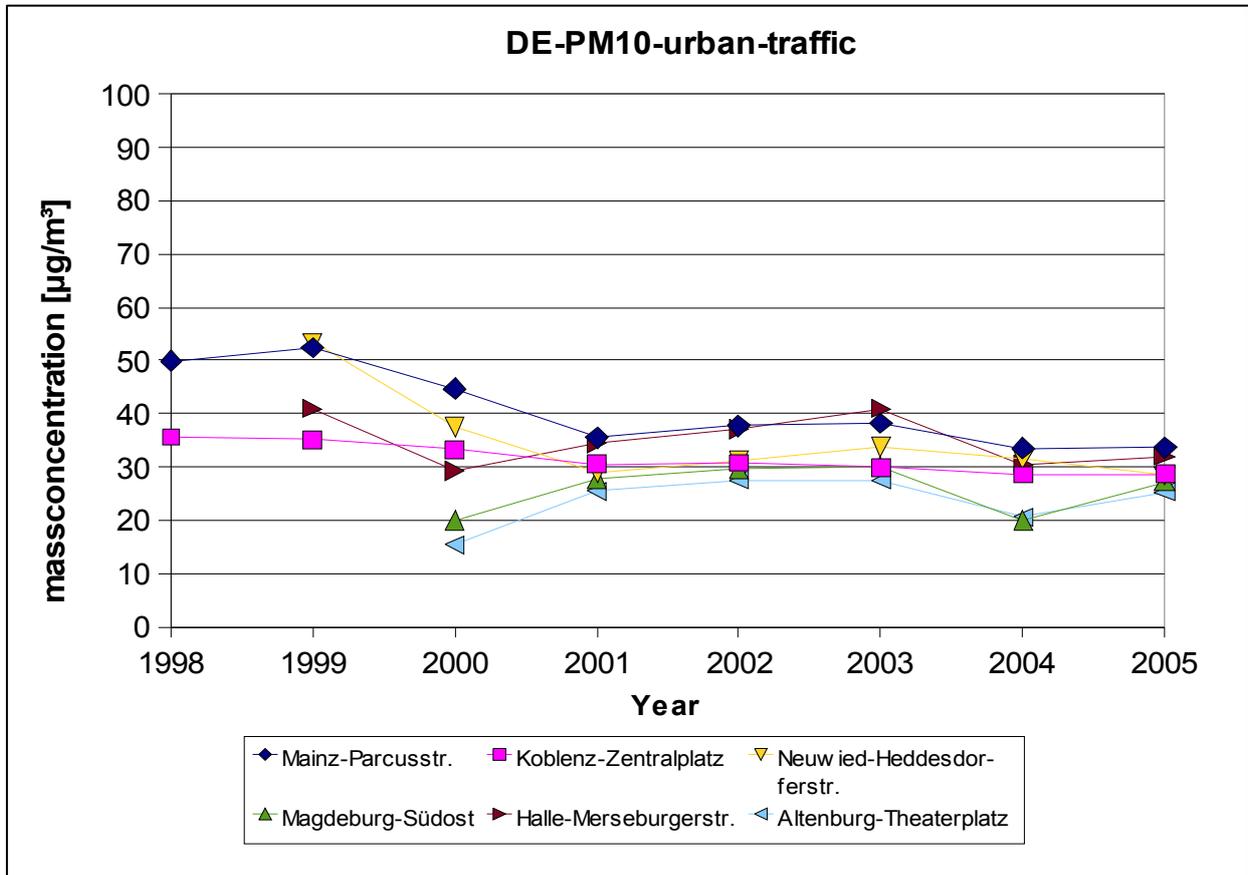
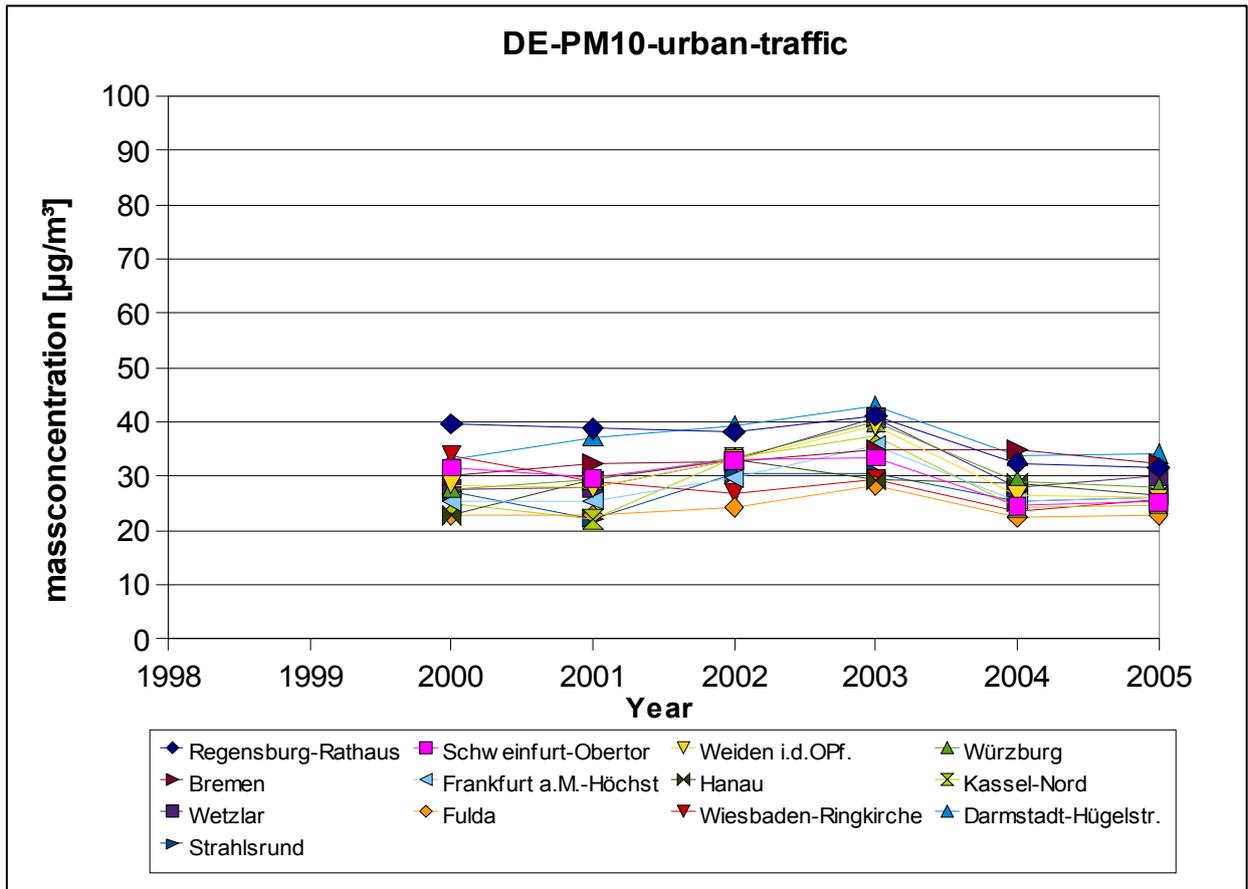


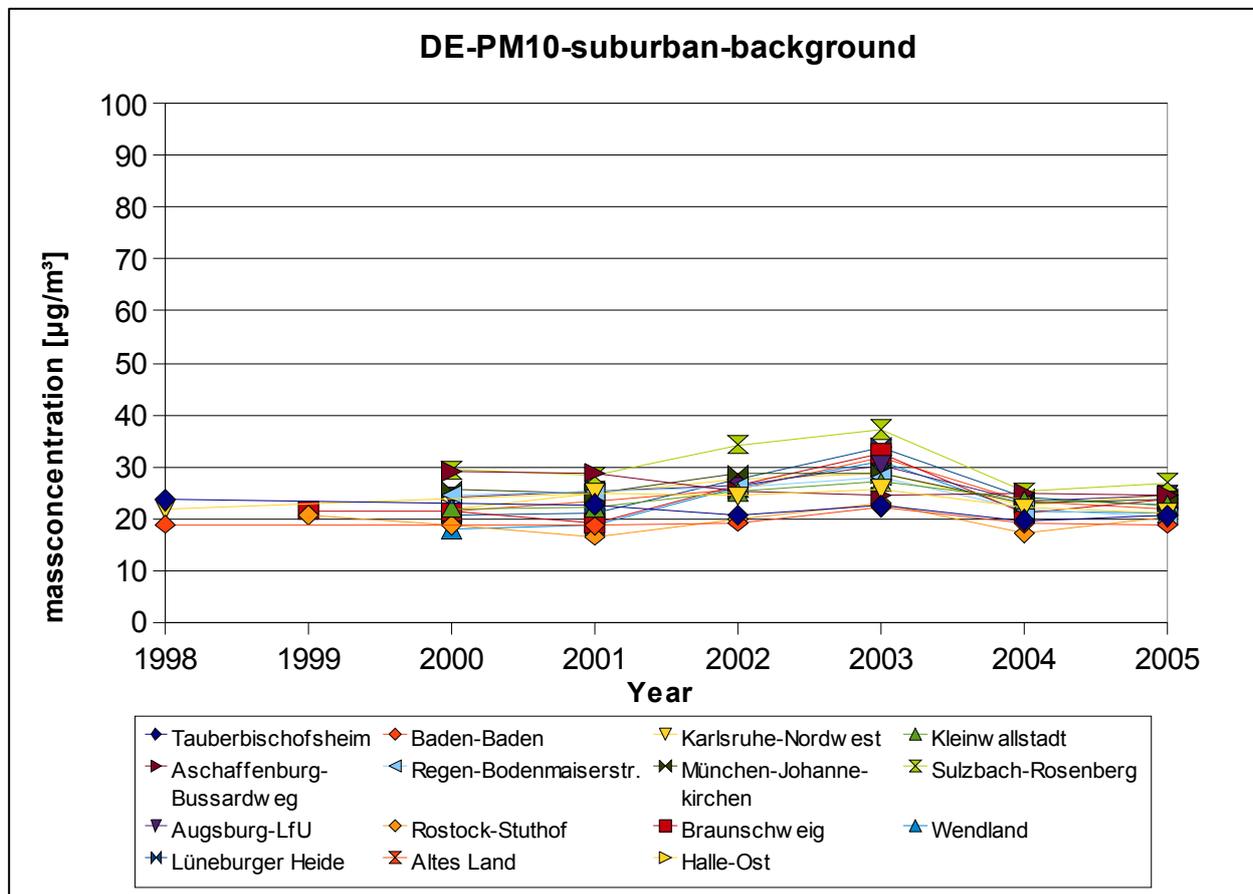
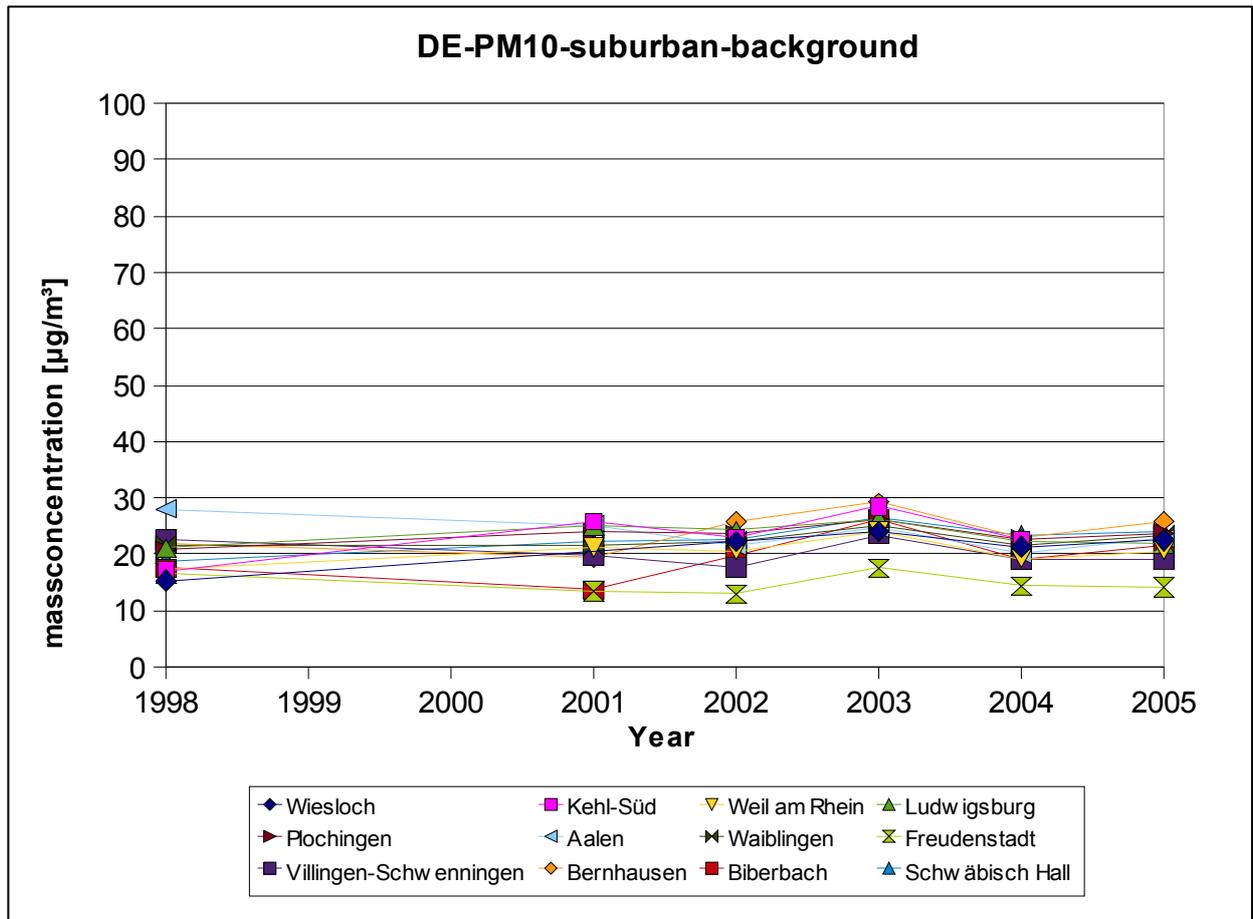


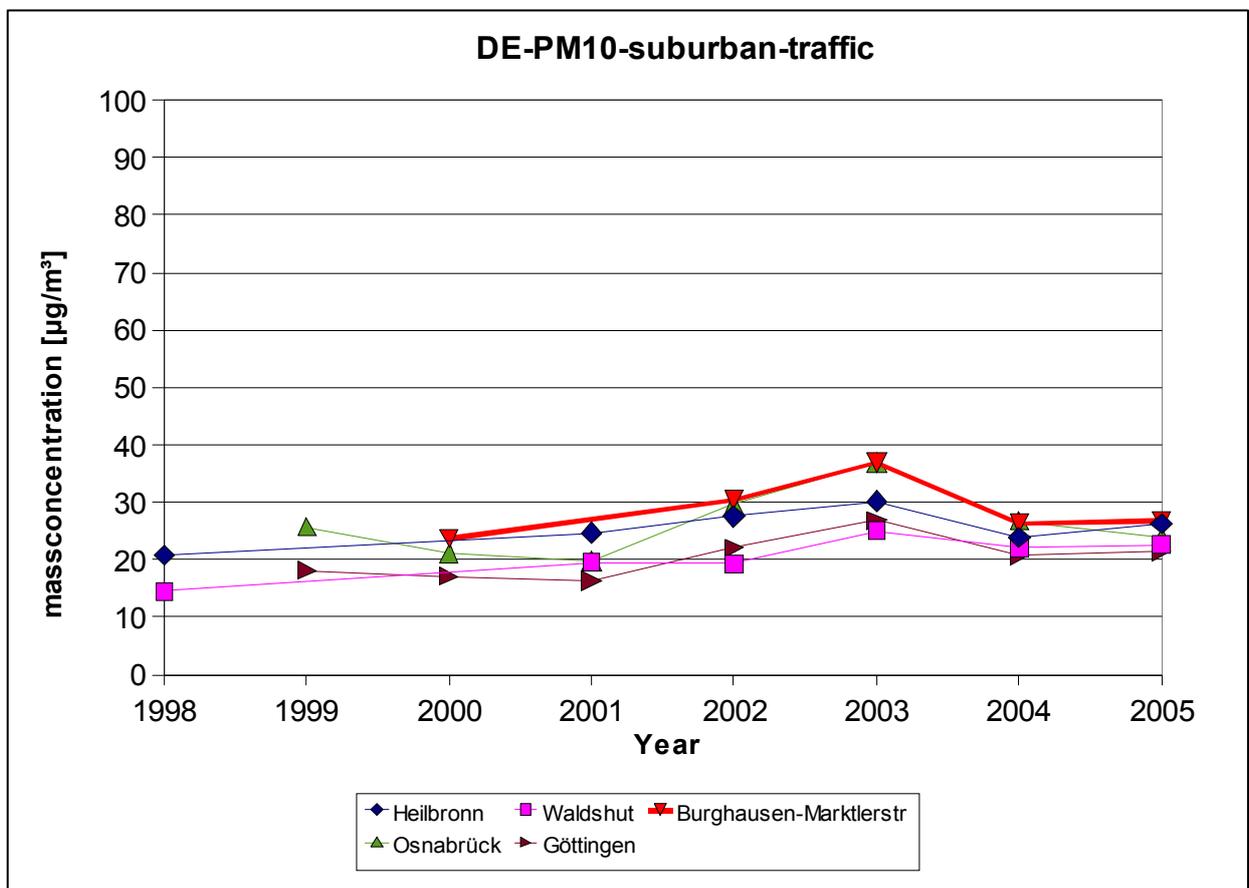
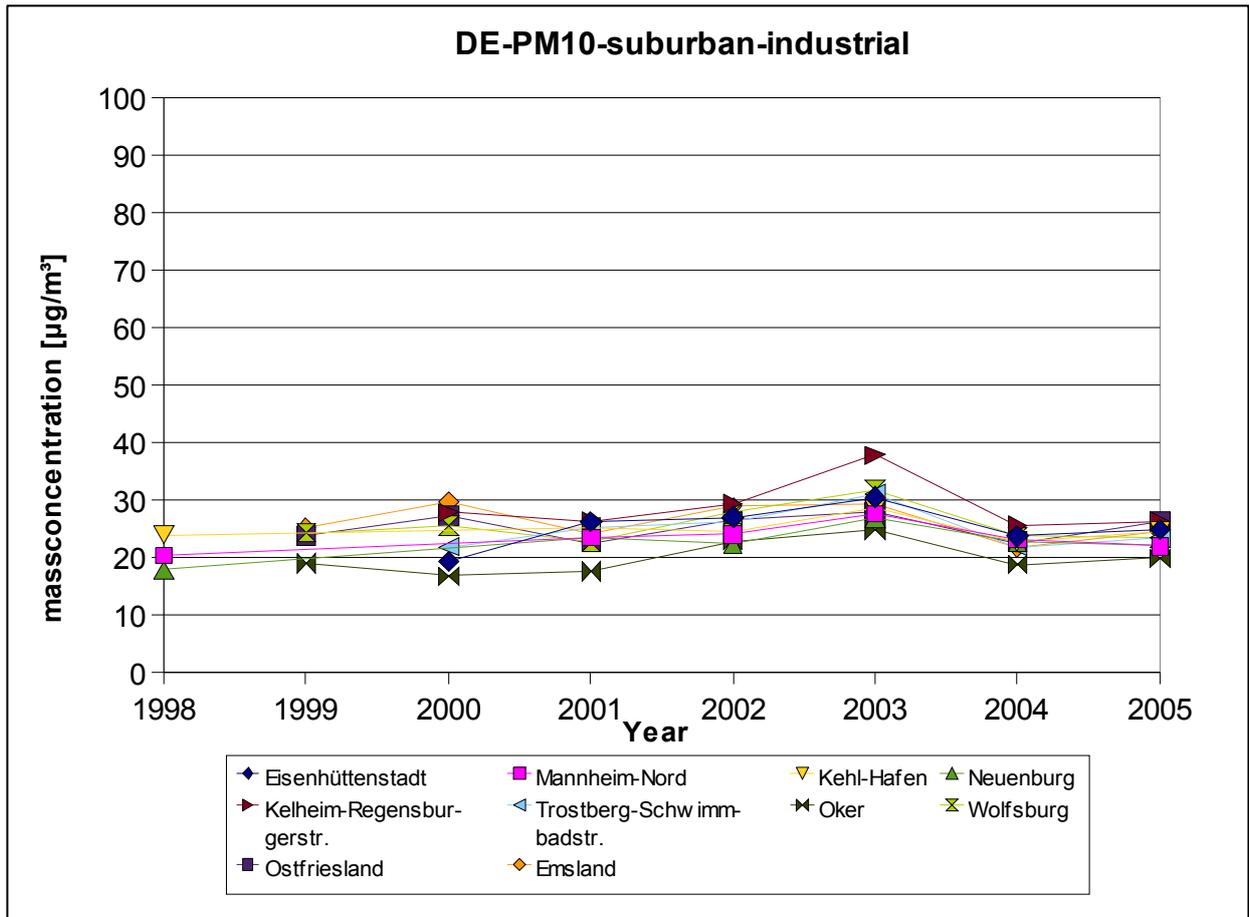




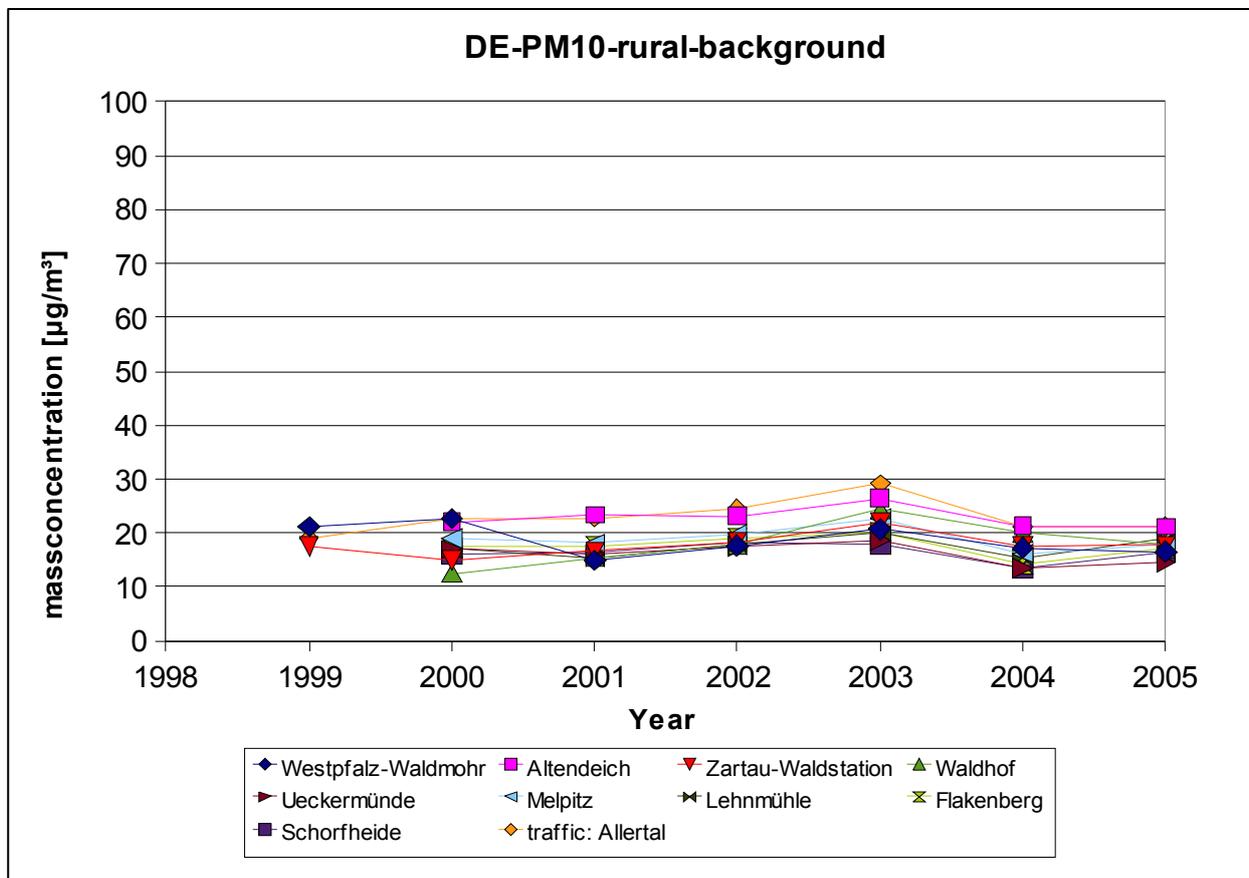
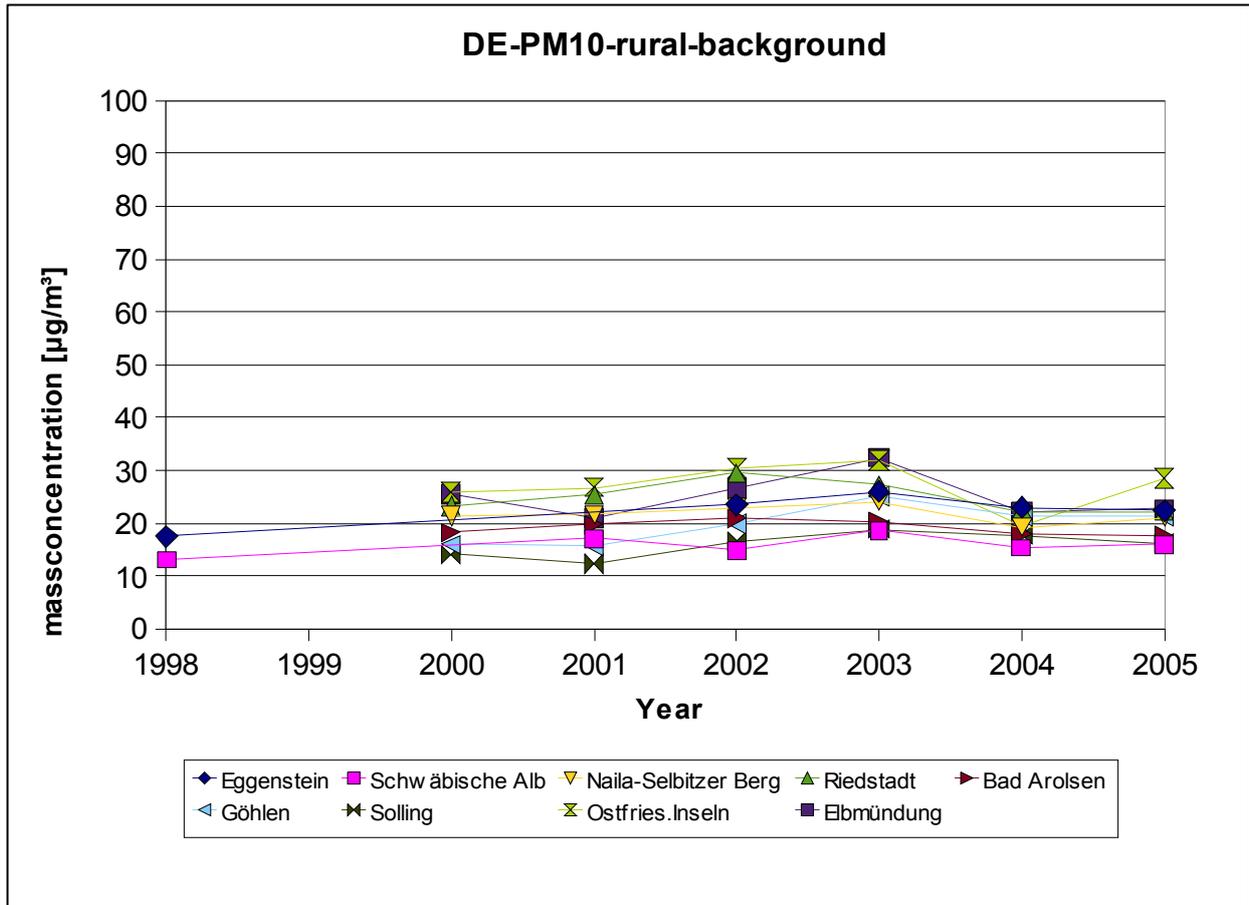


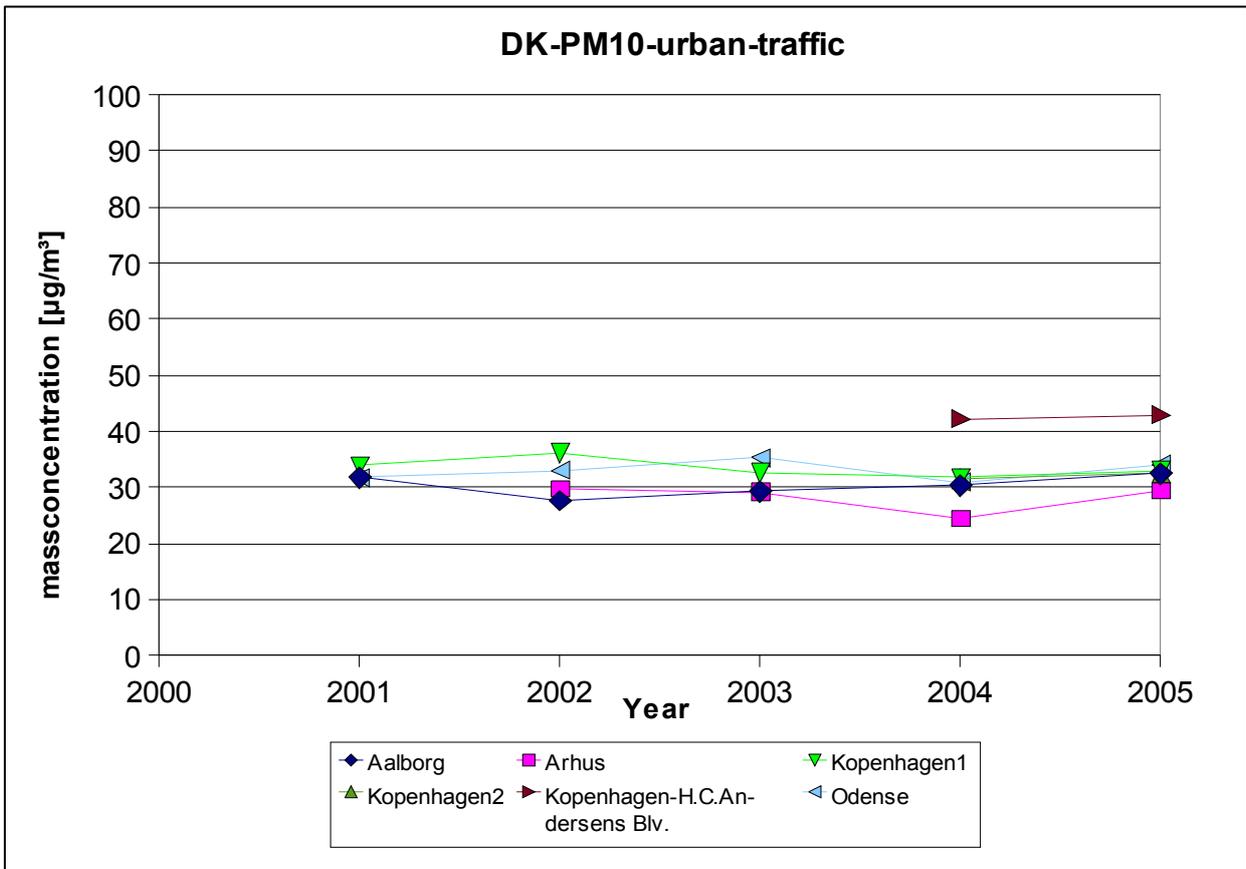
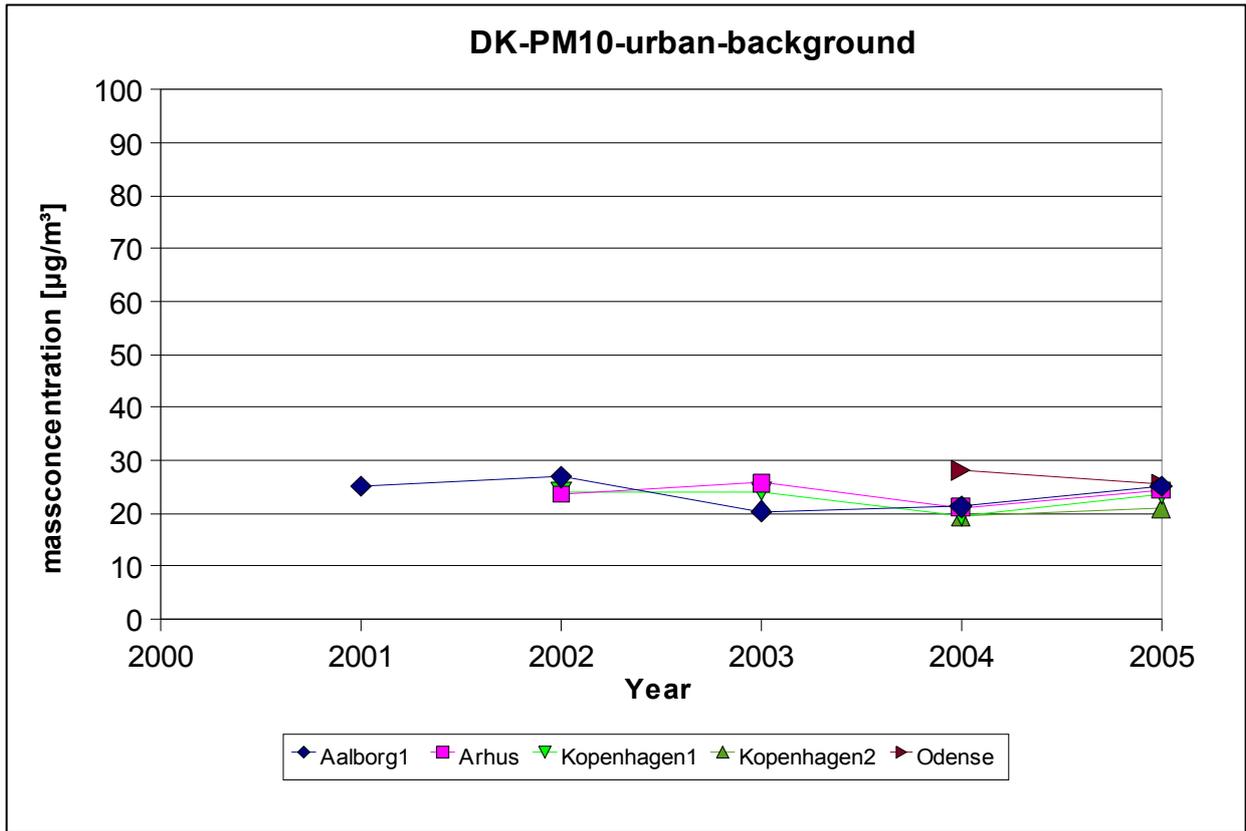


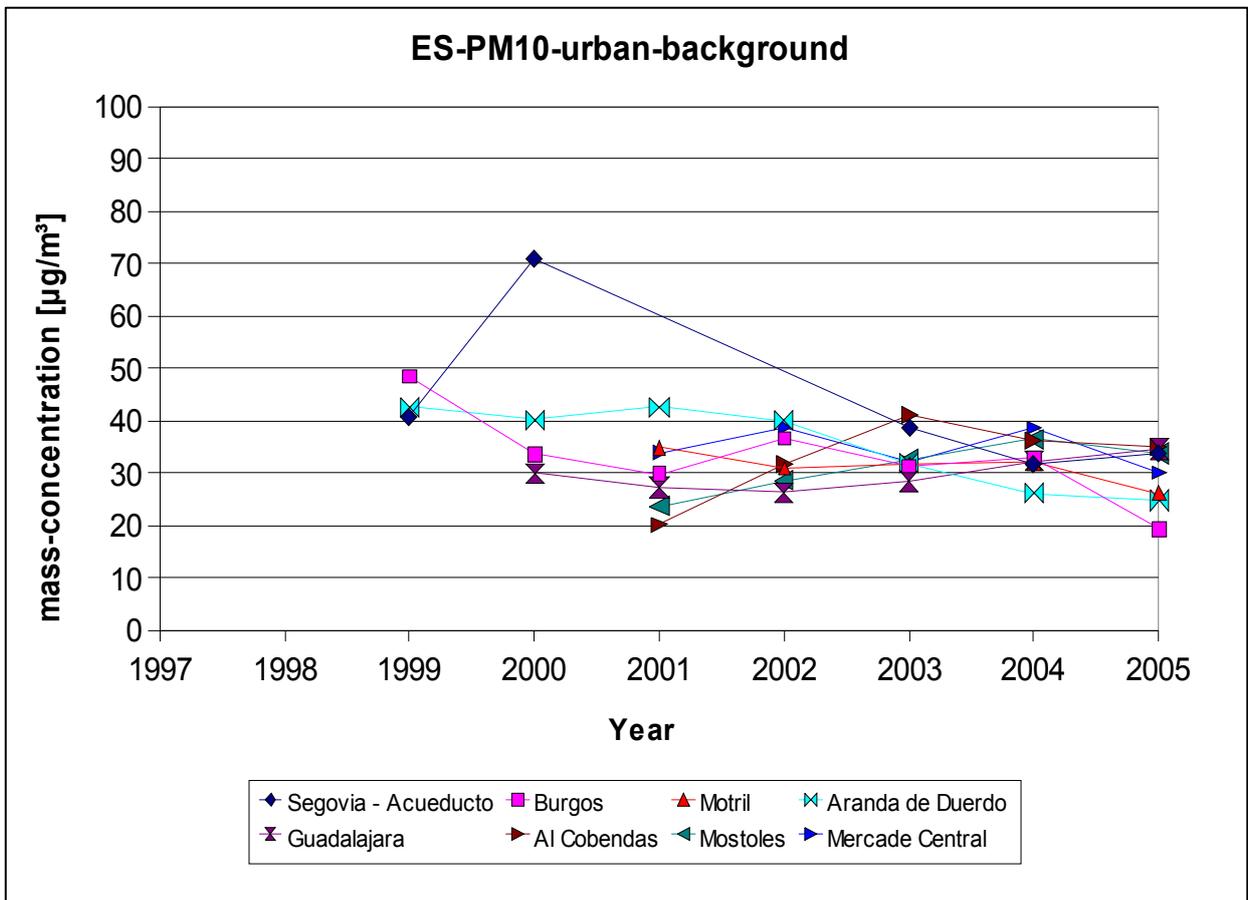
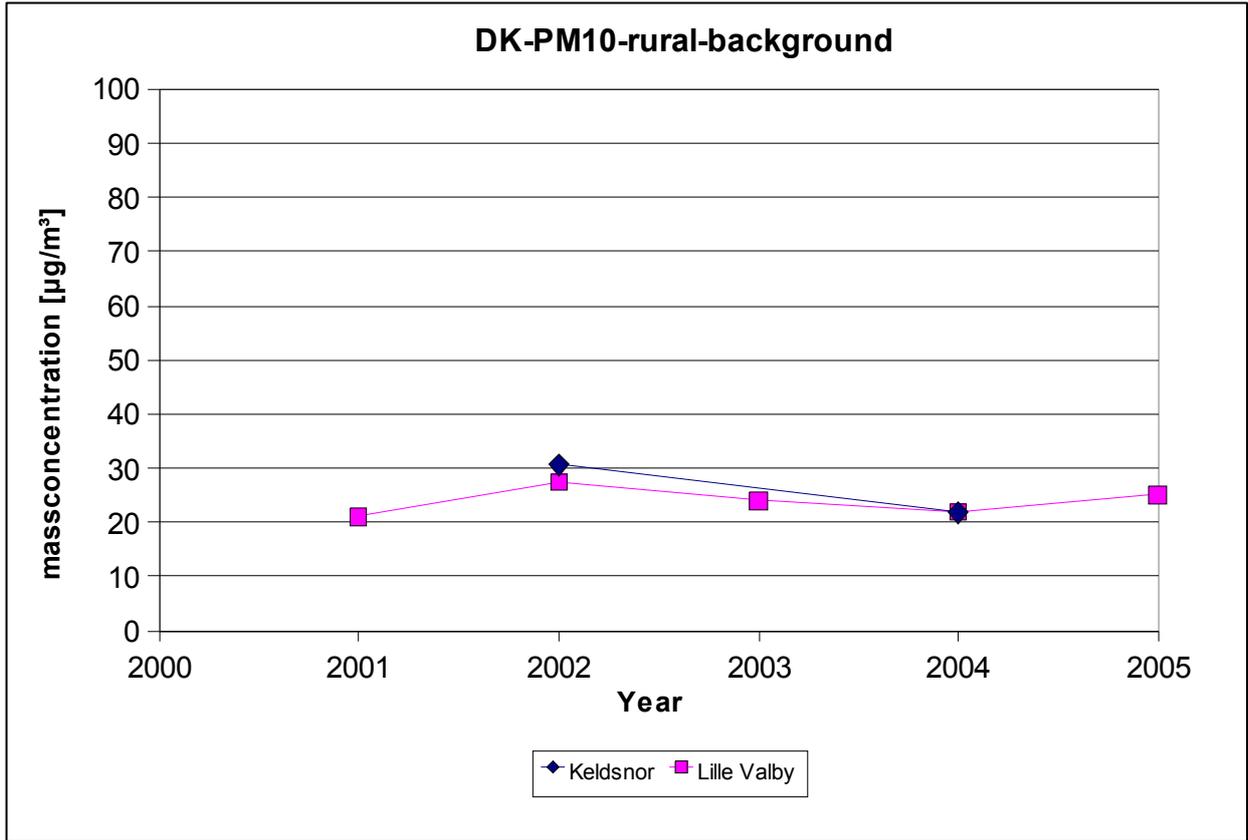


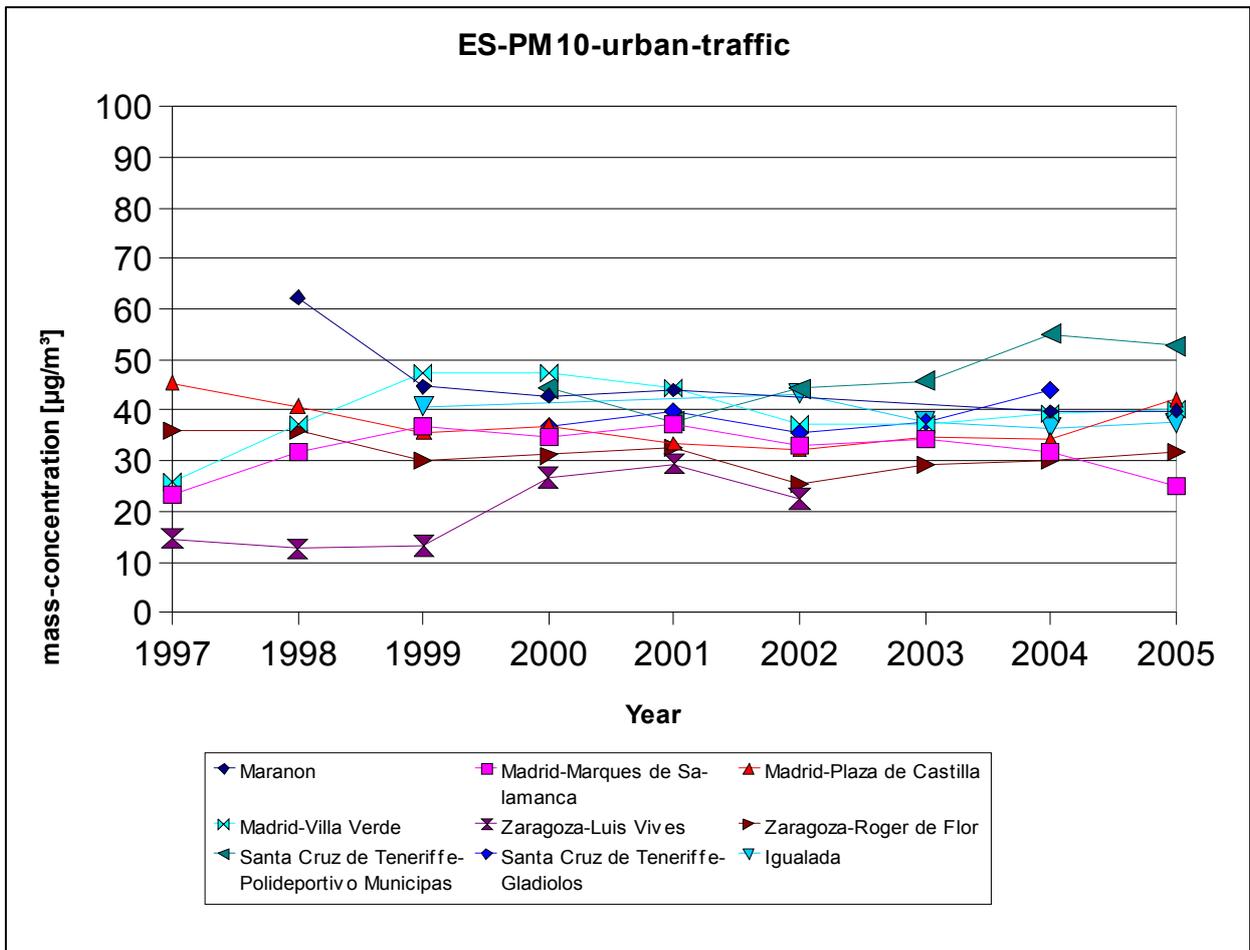
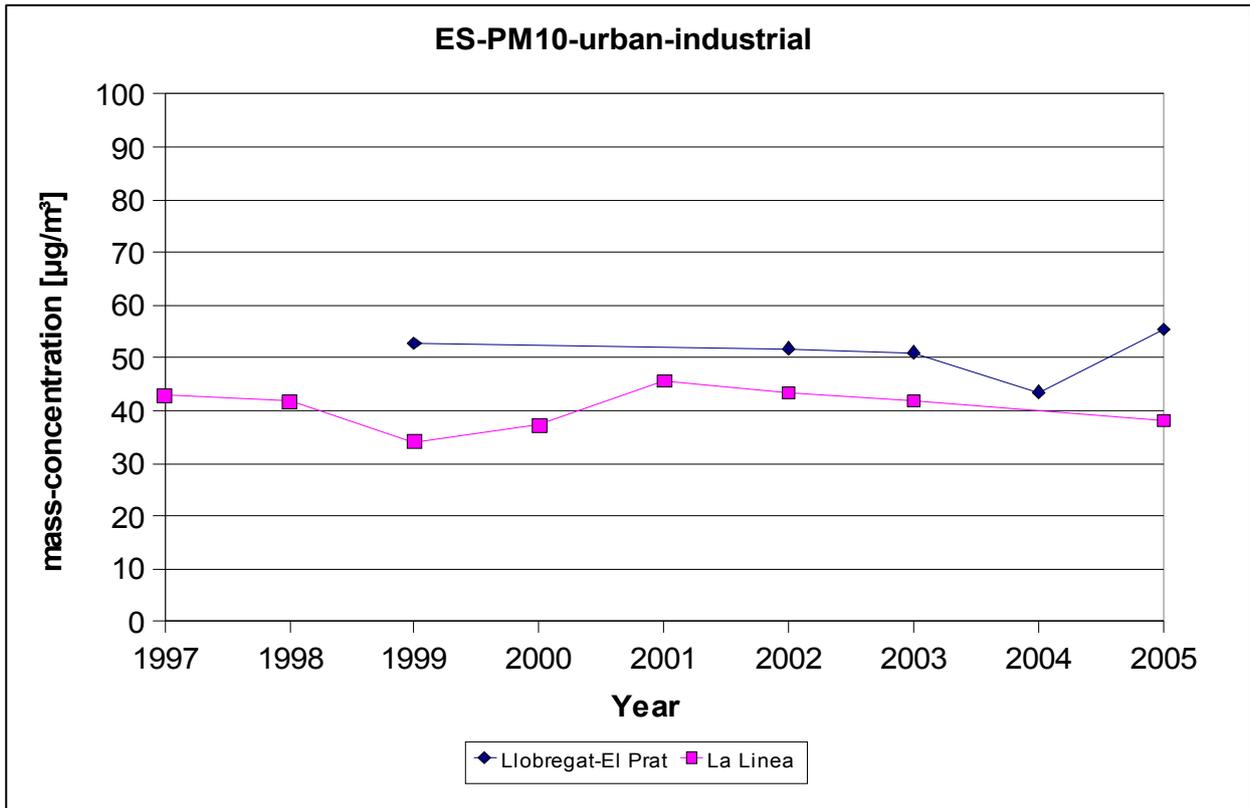


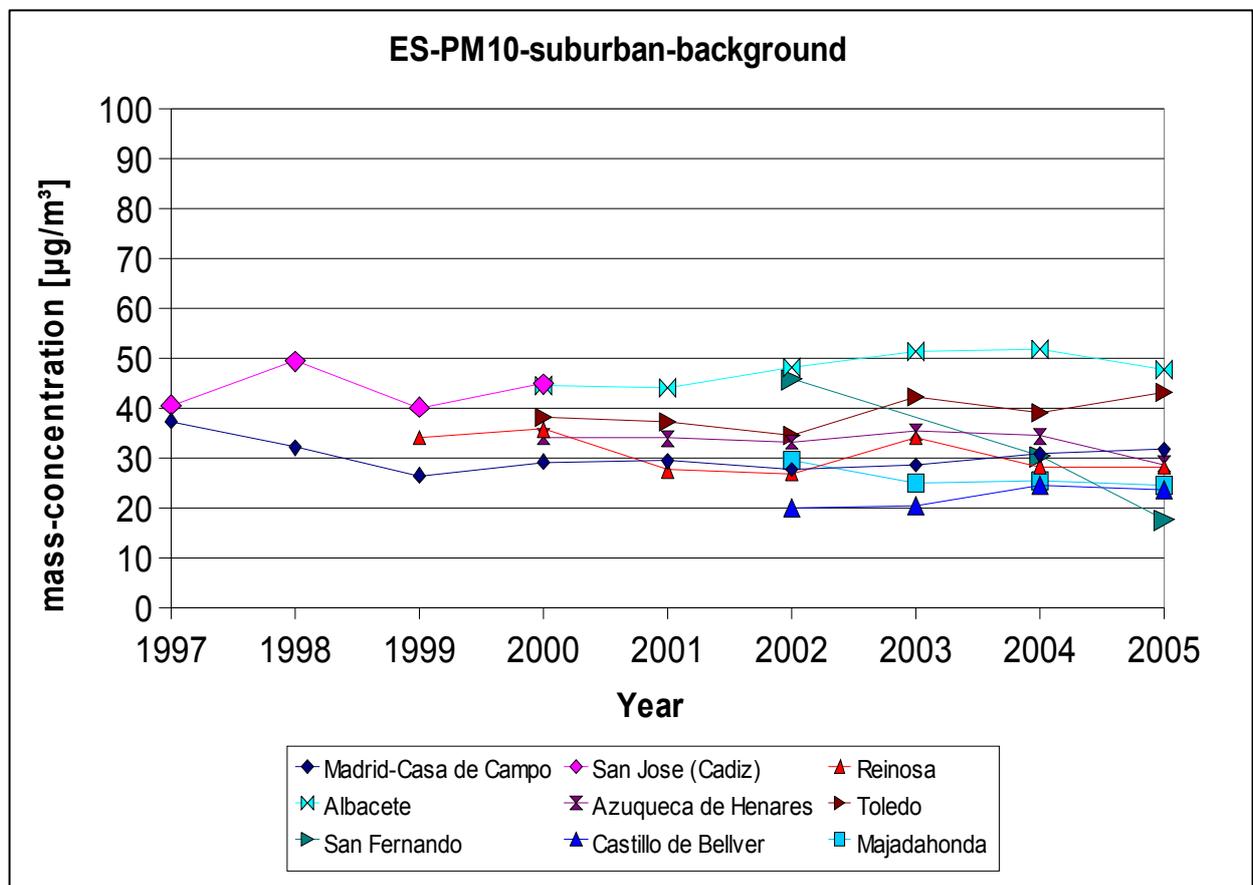
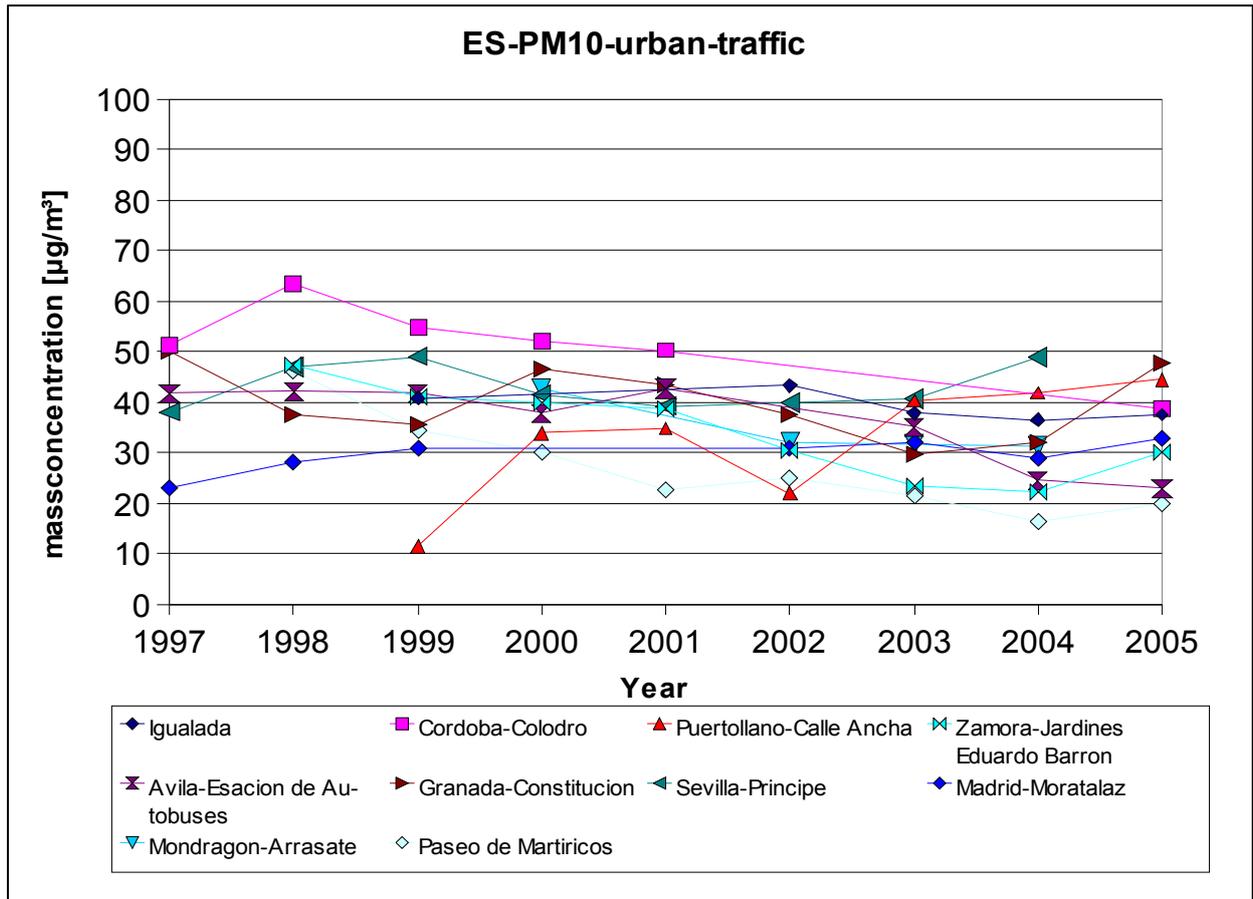
7 Anhang D

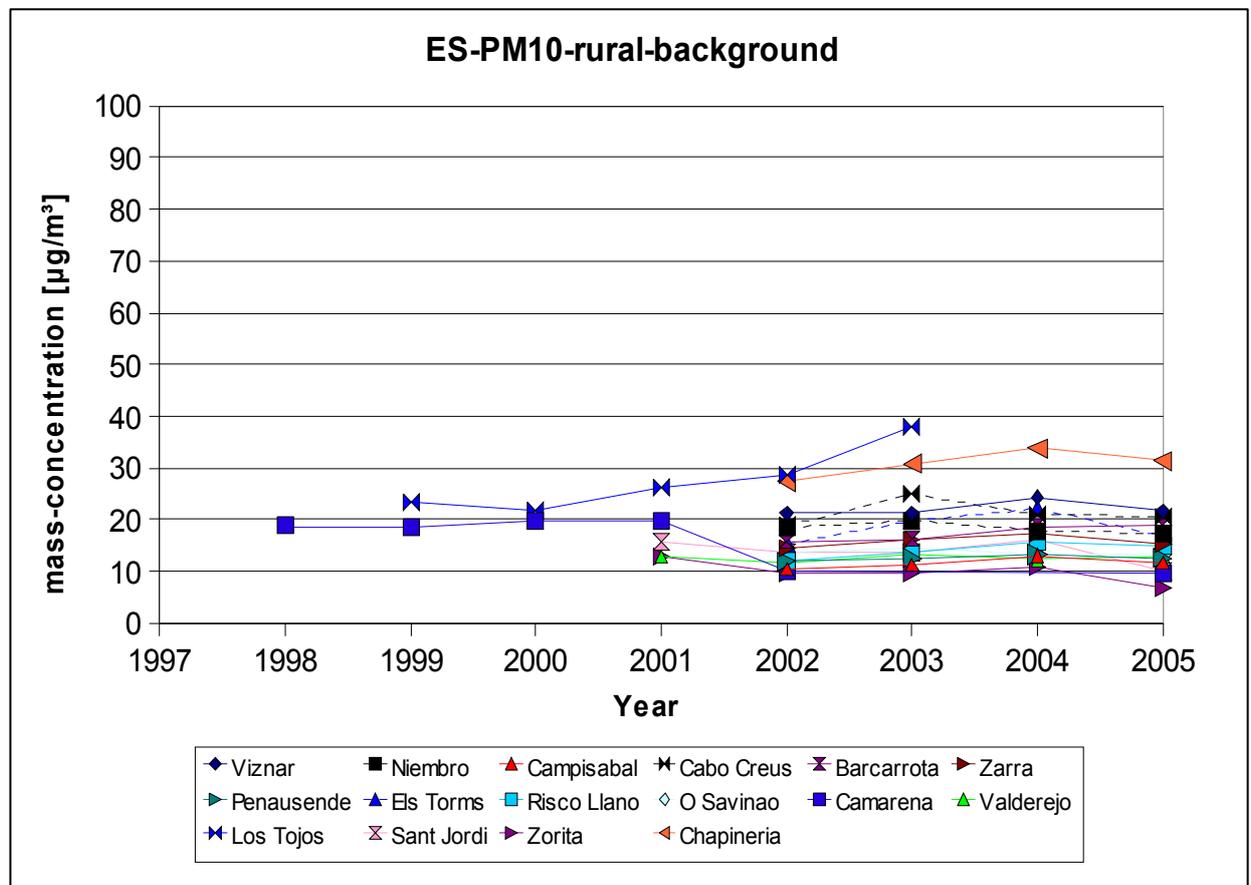
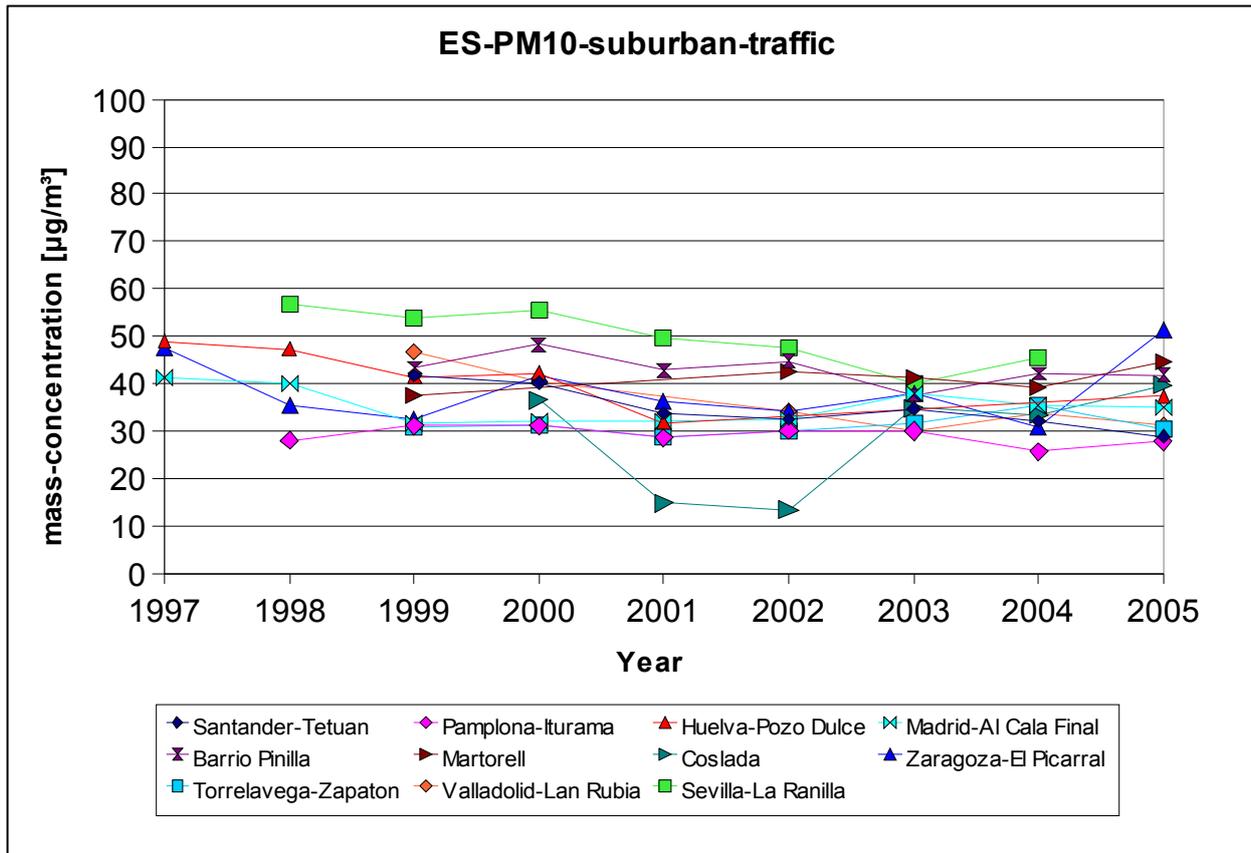


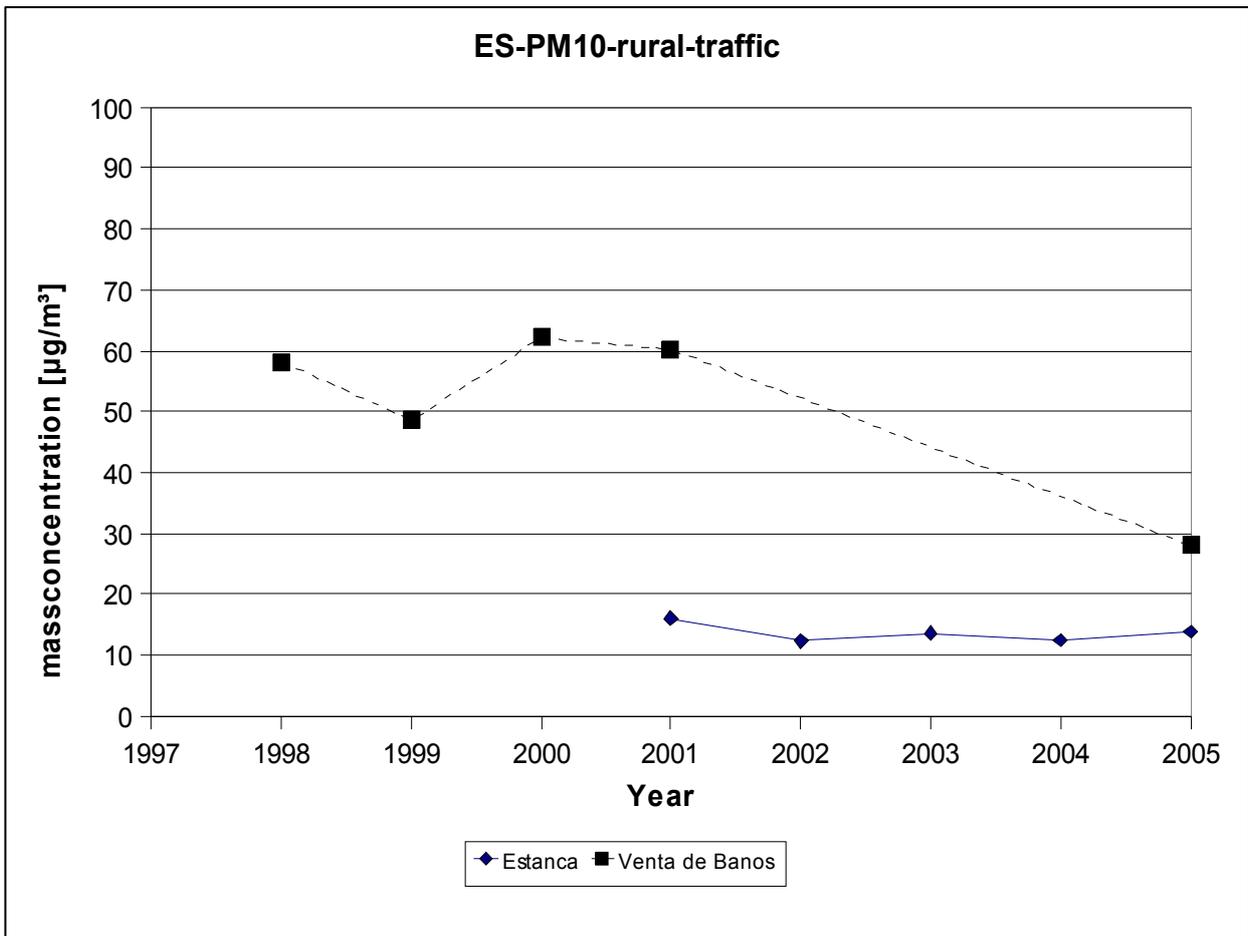
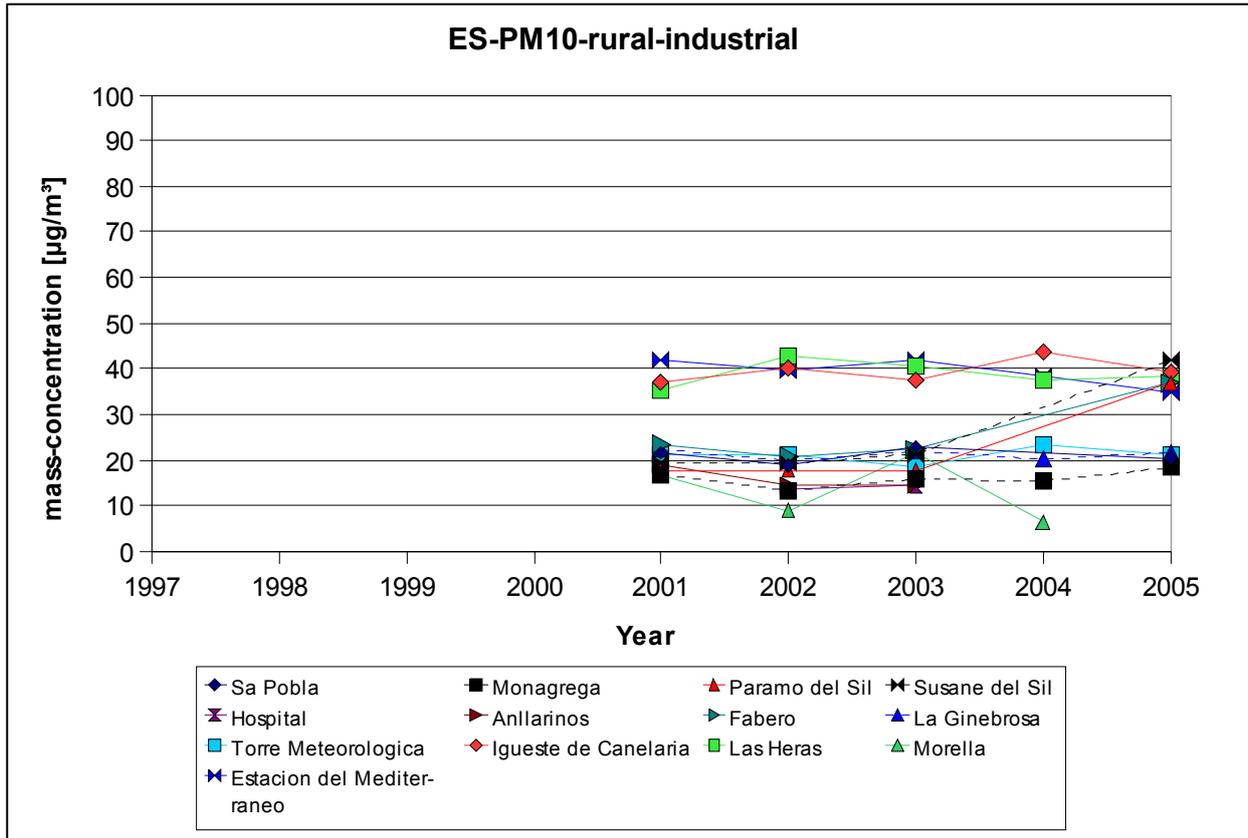


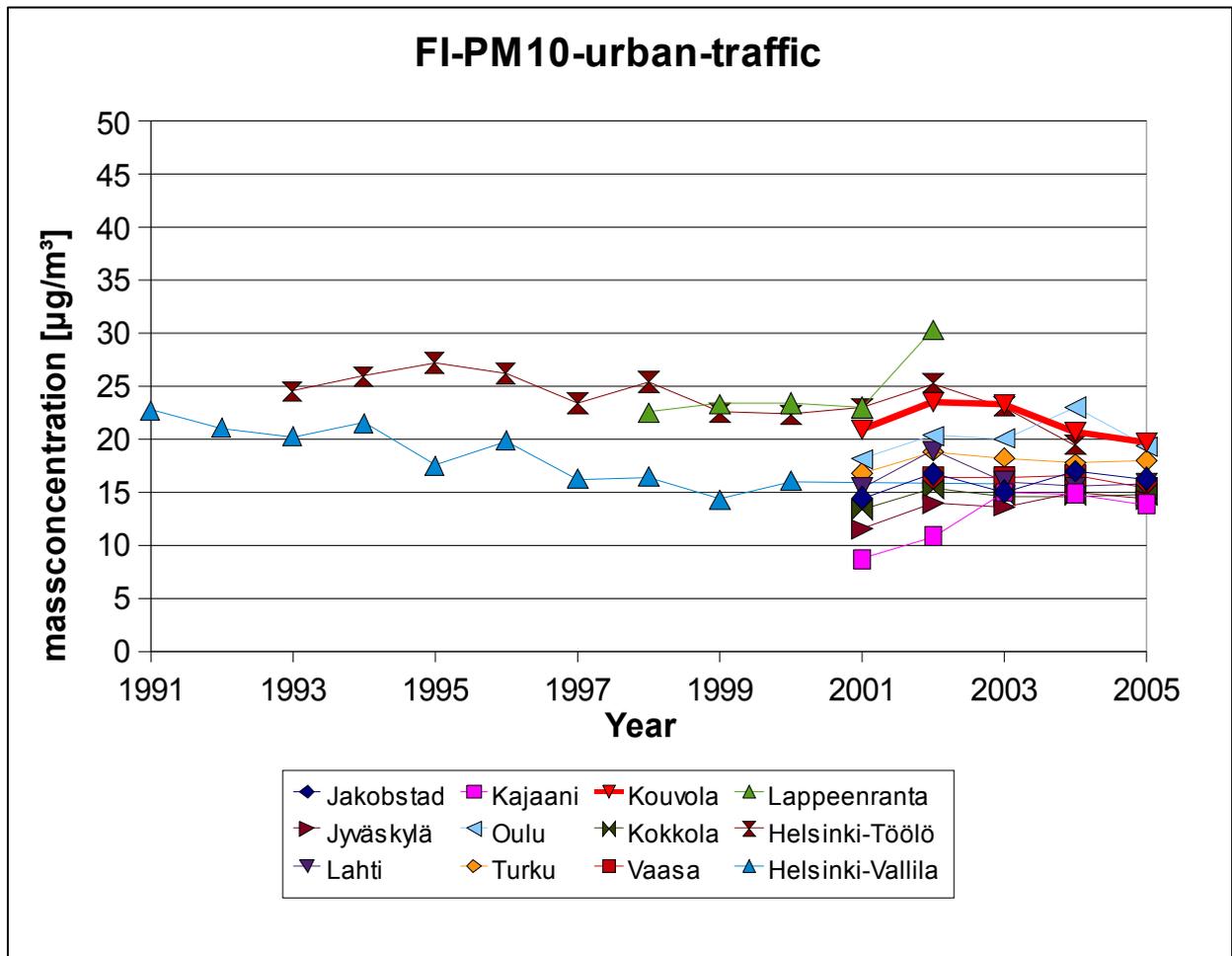
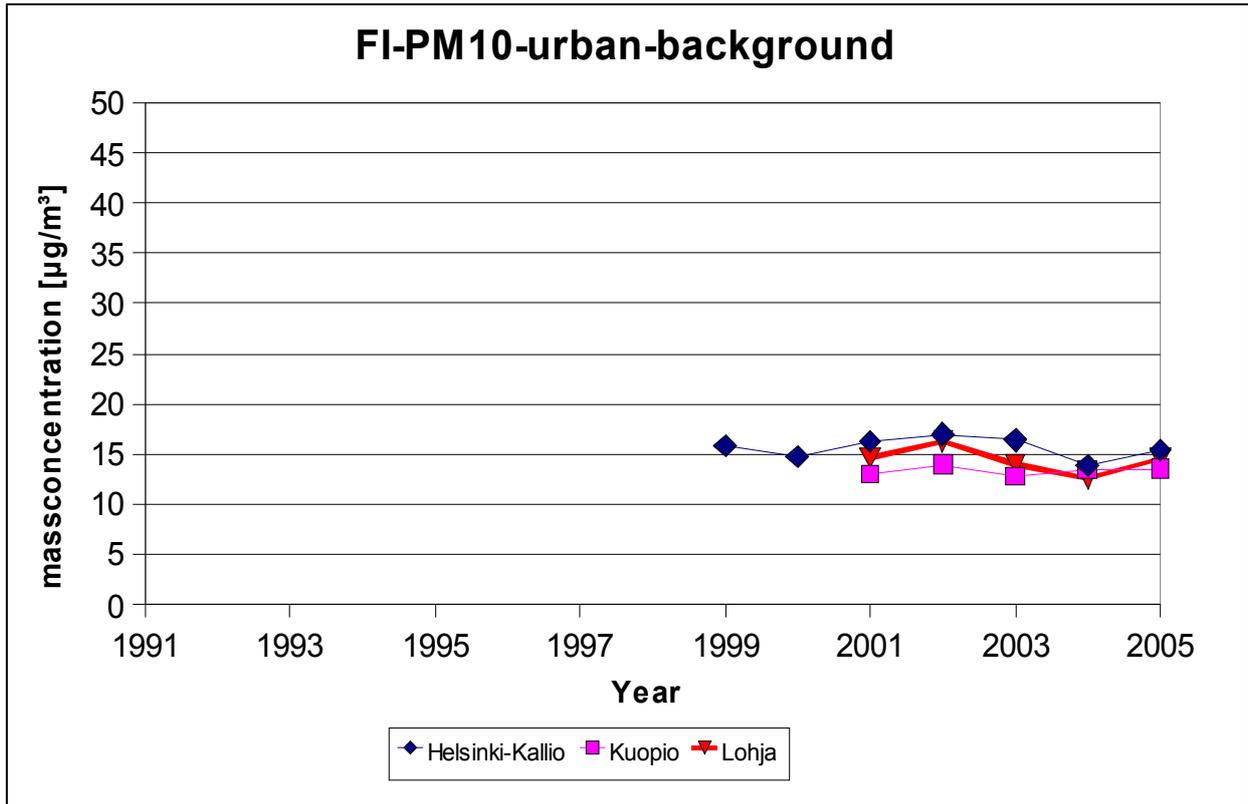


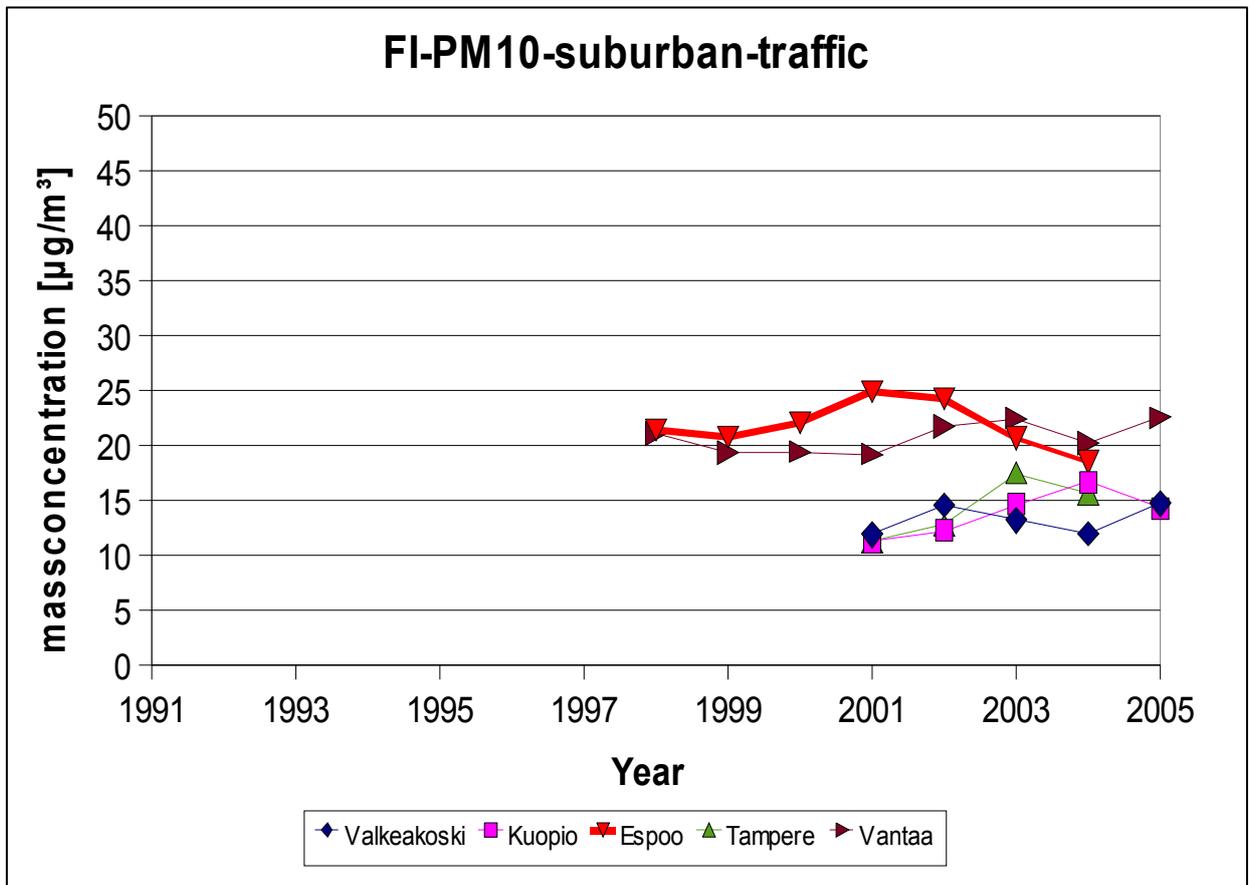
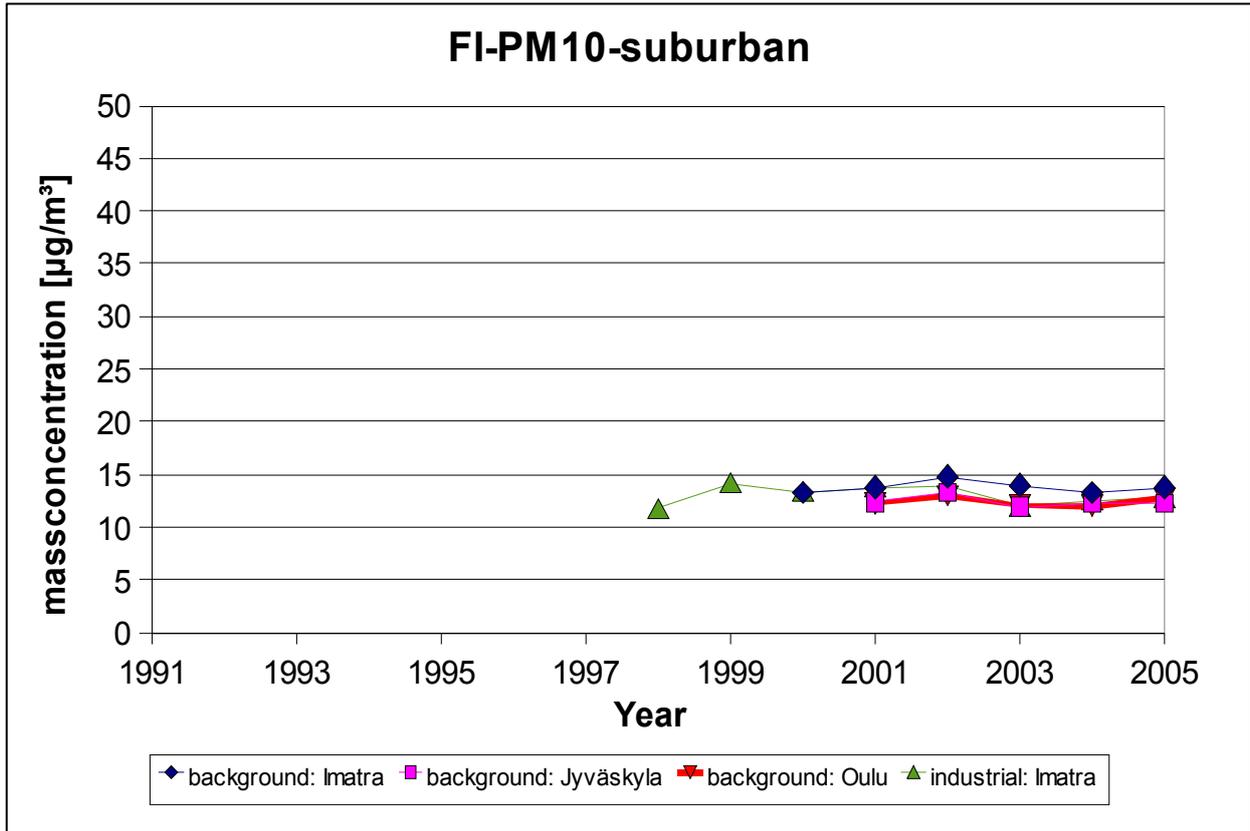


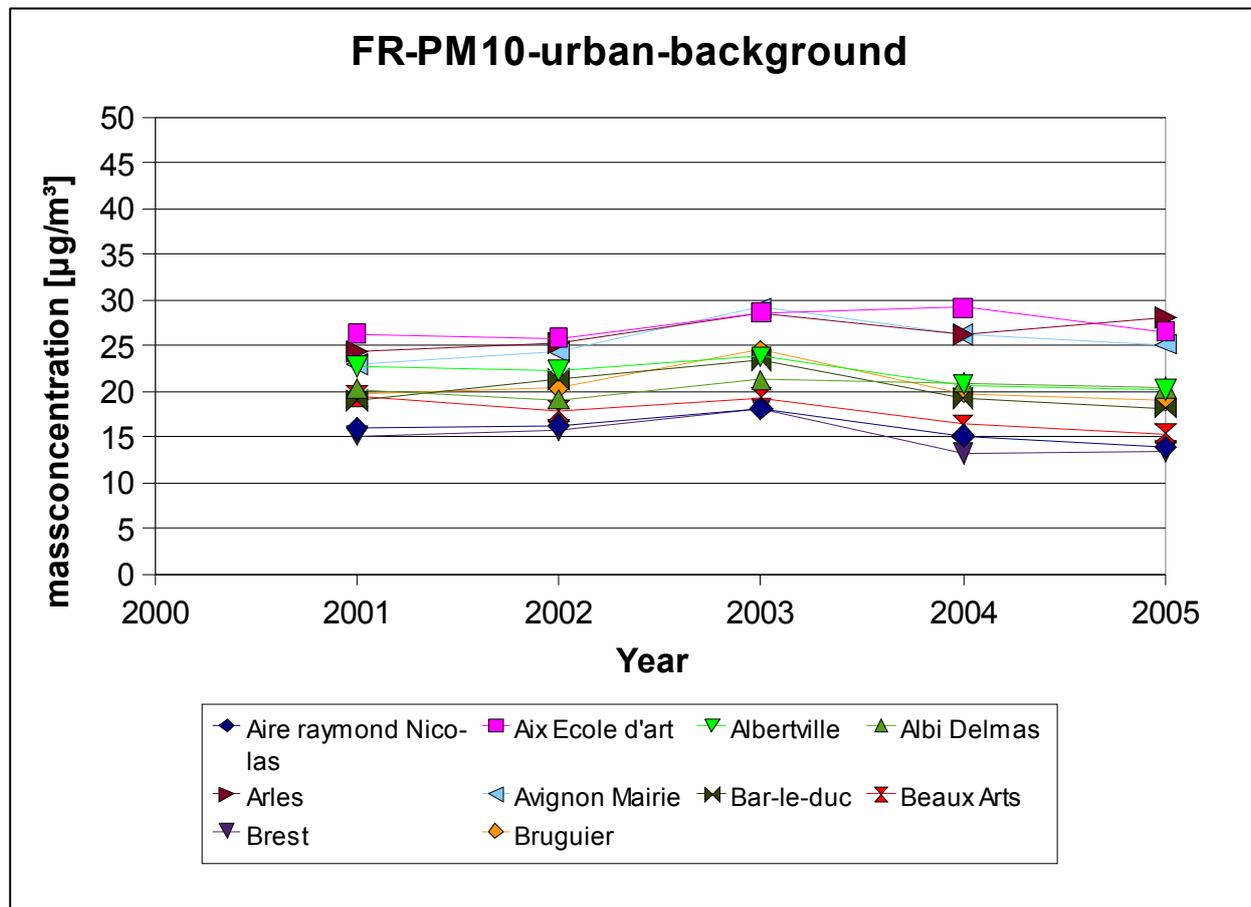
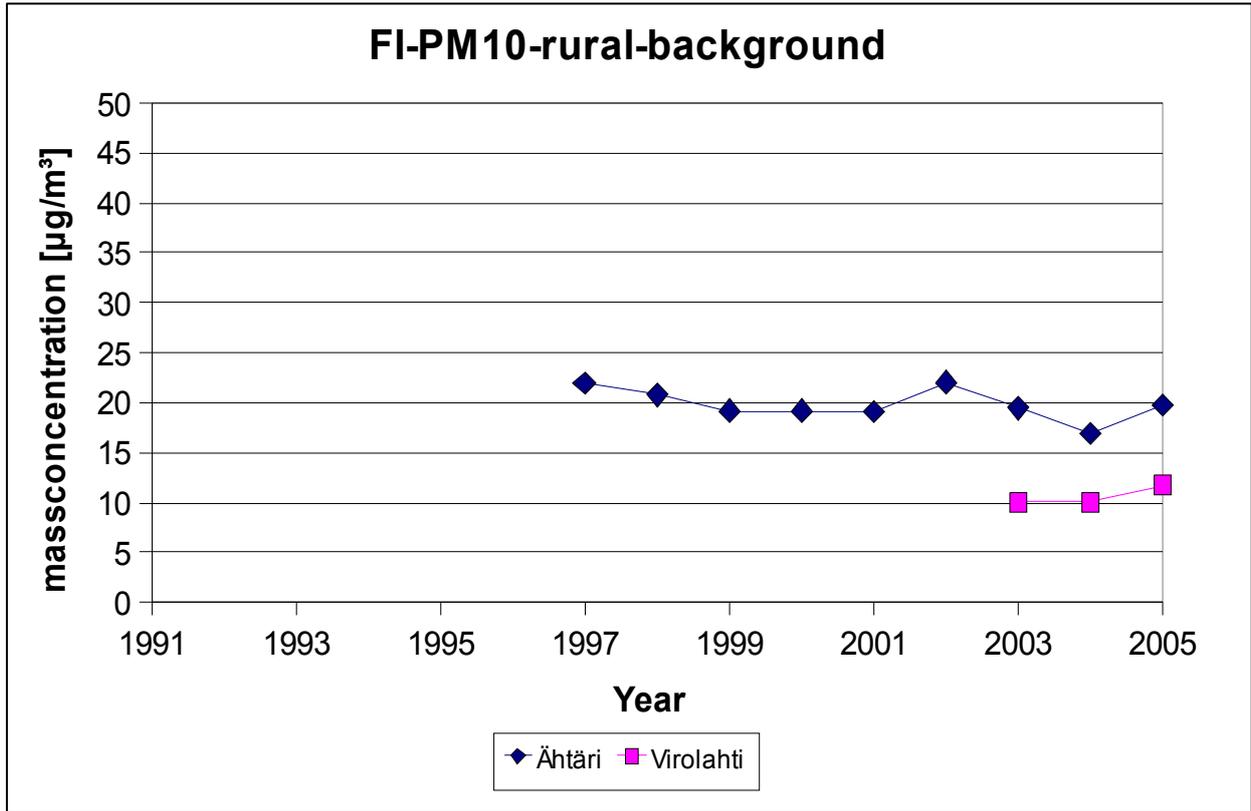


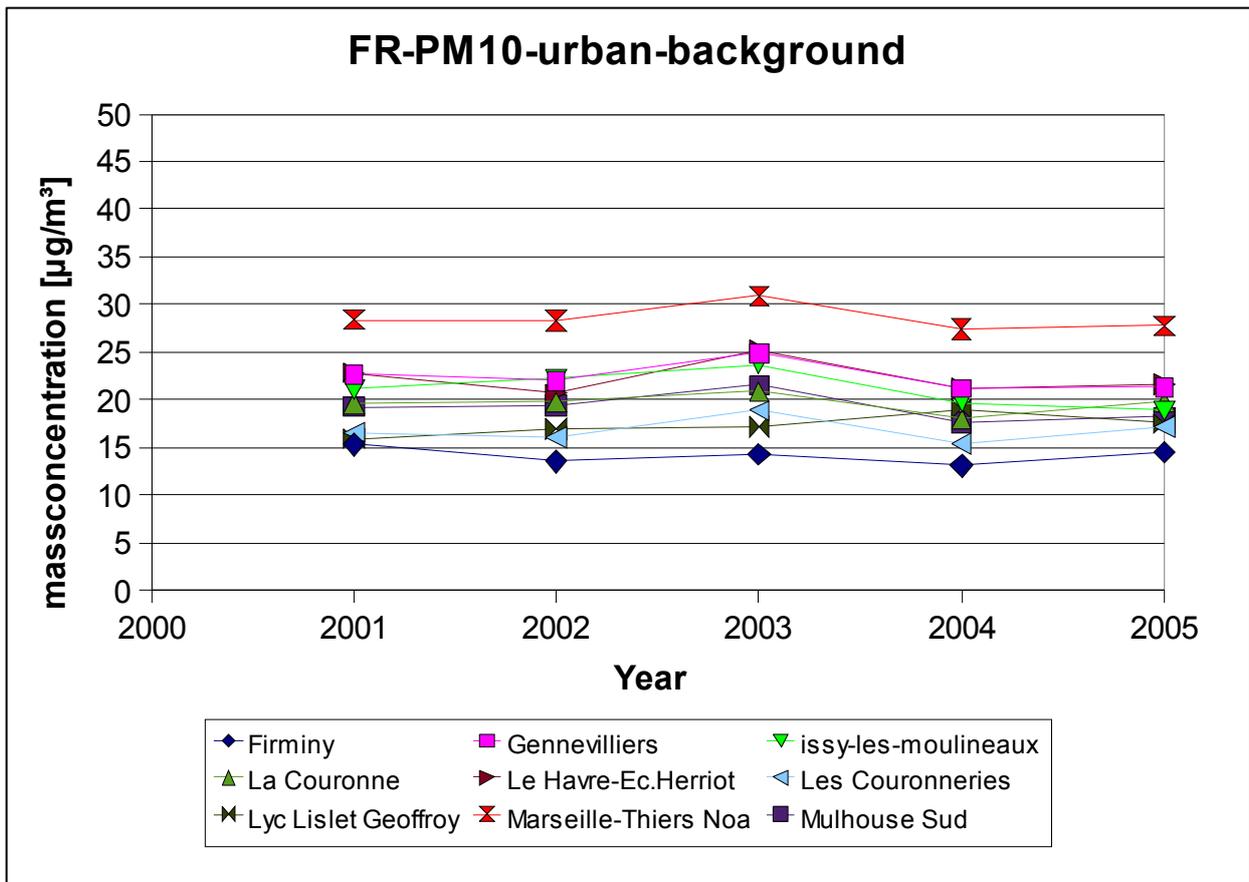
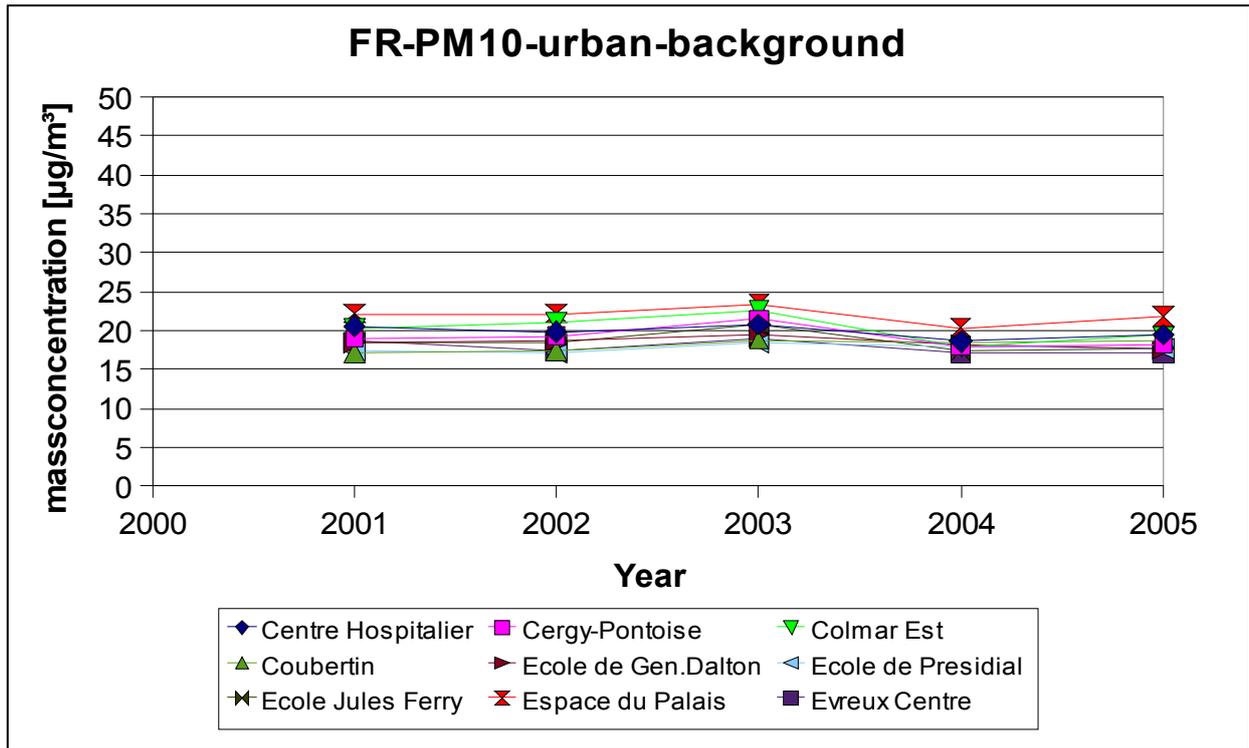


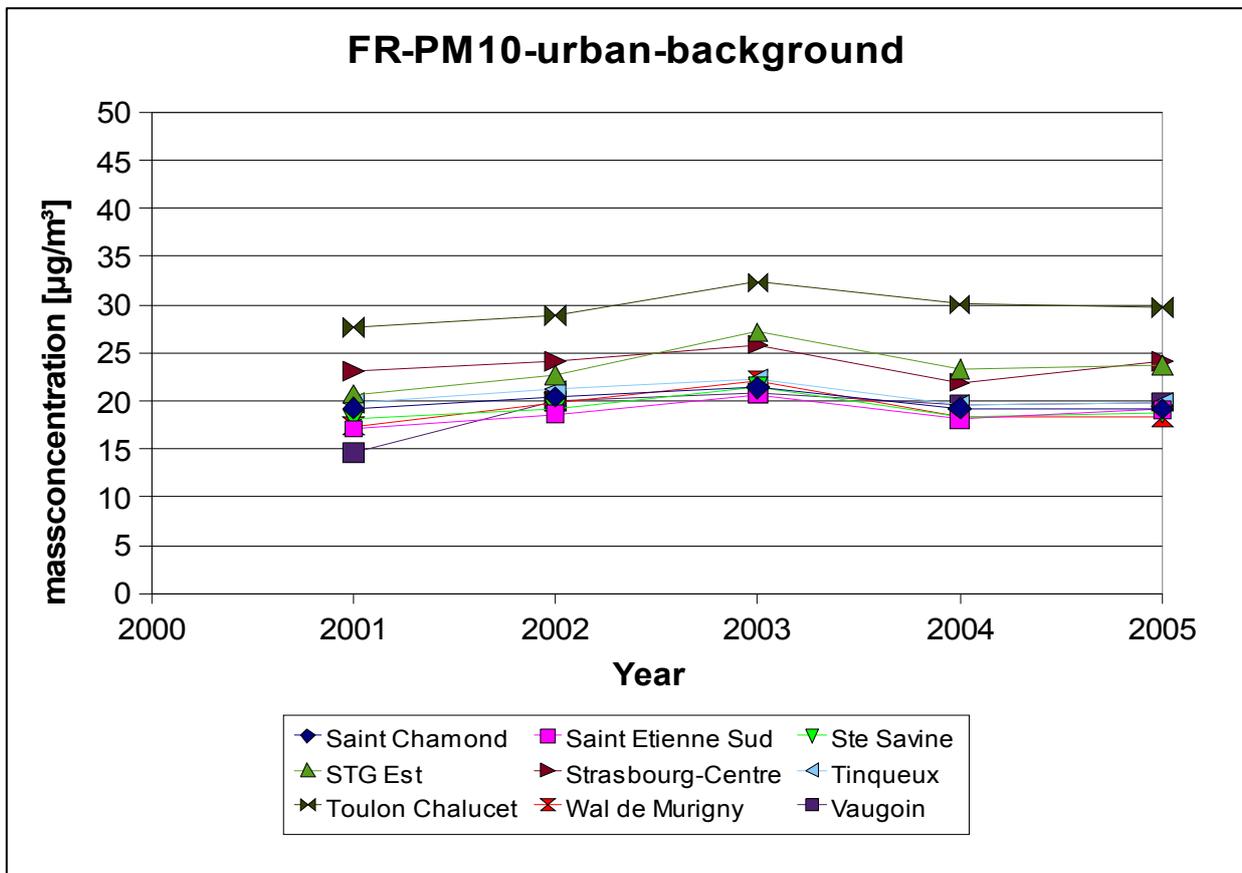
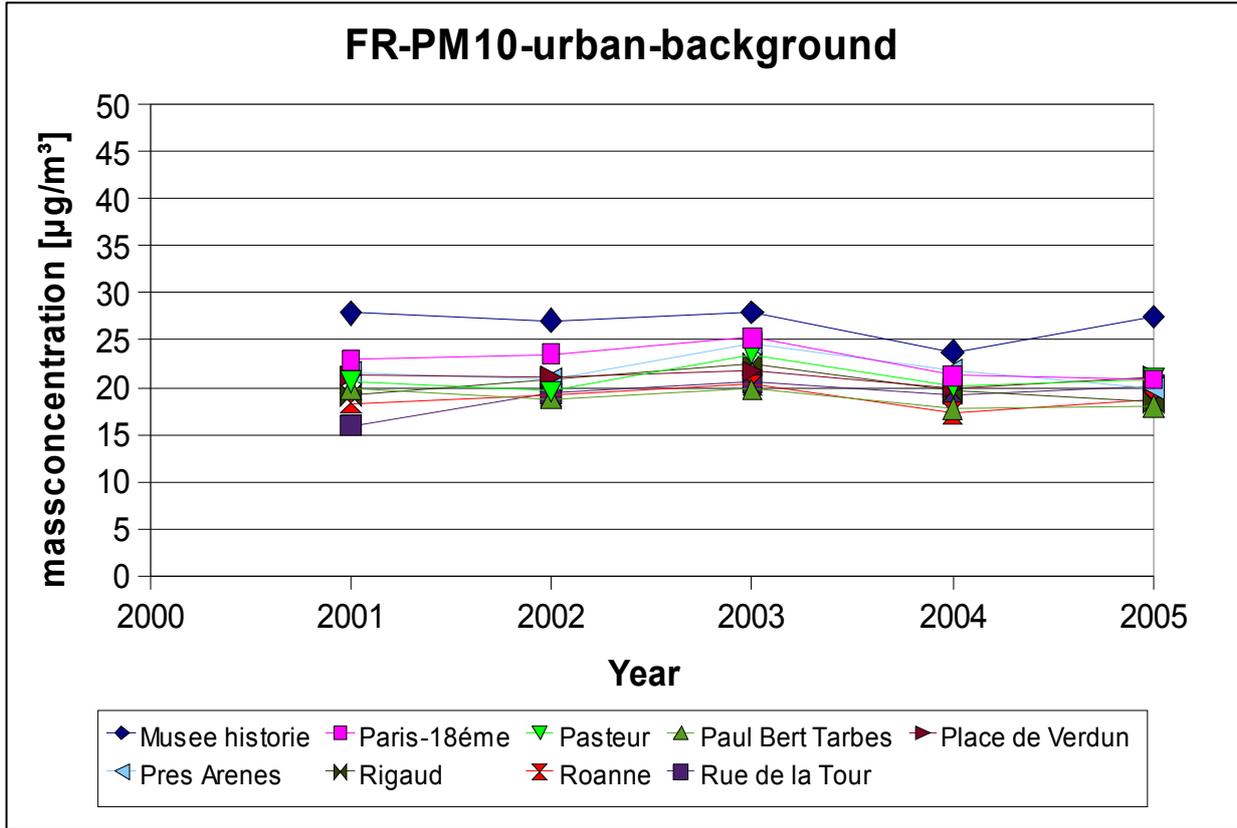


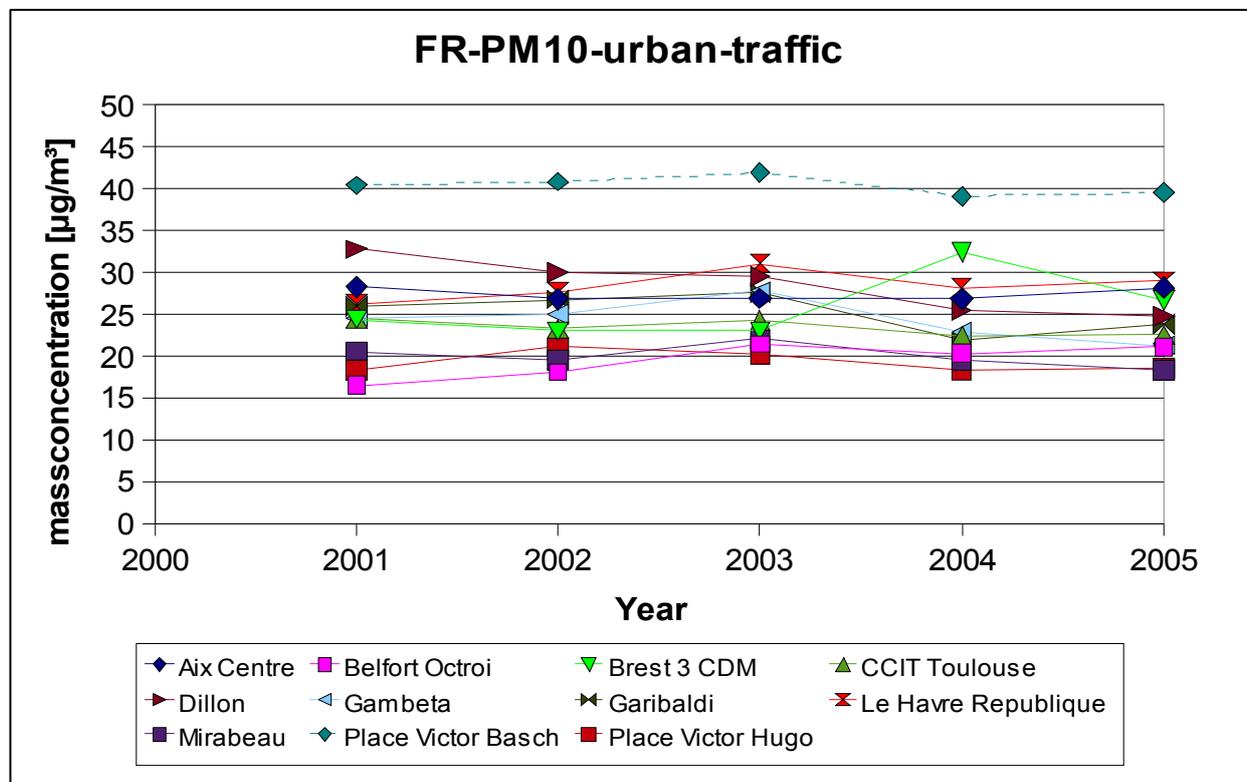
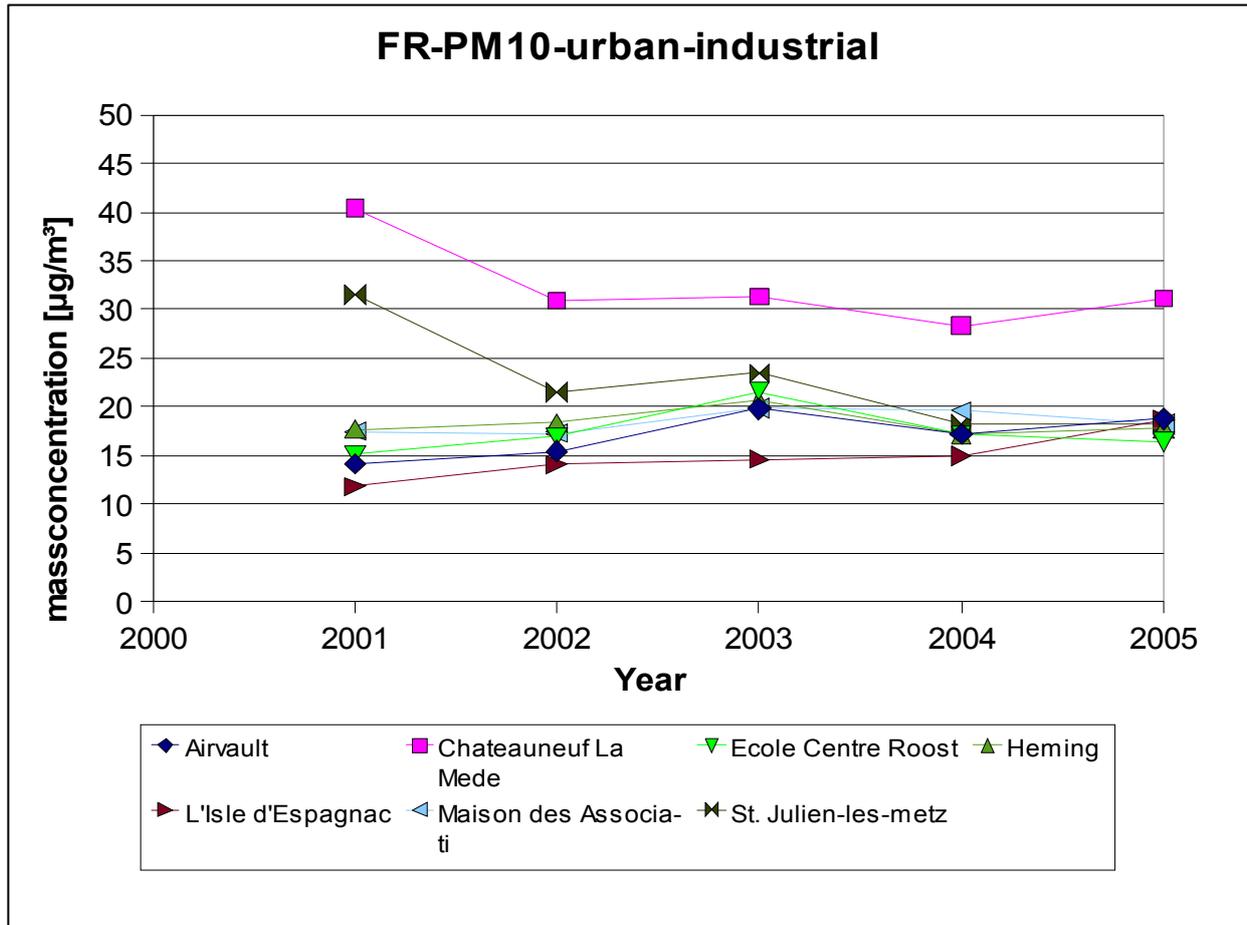


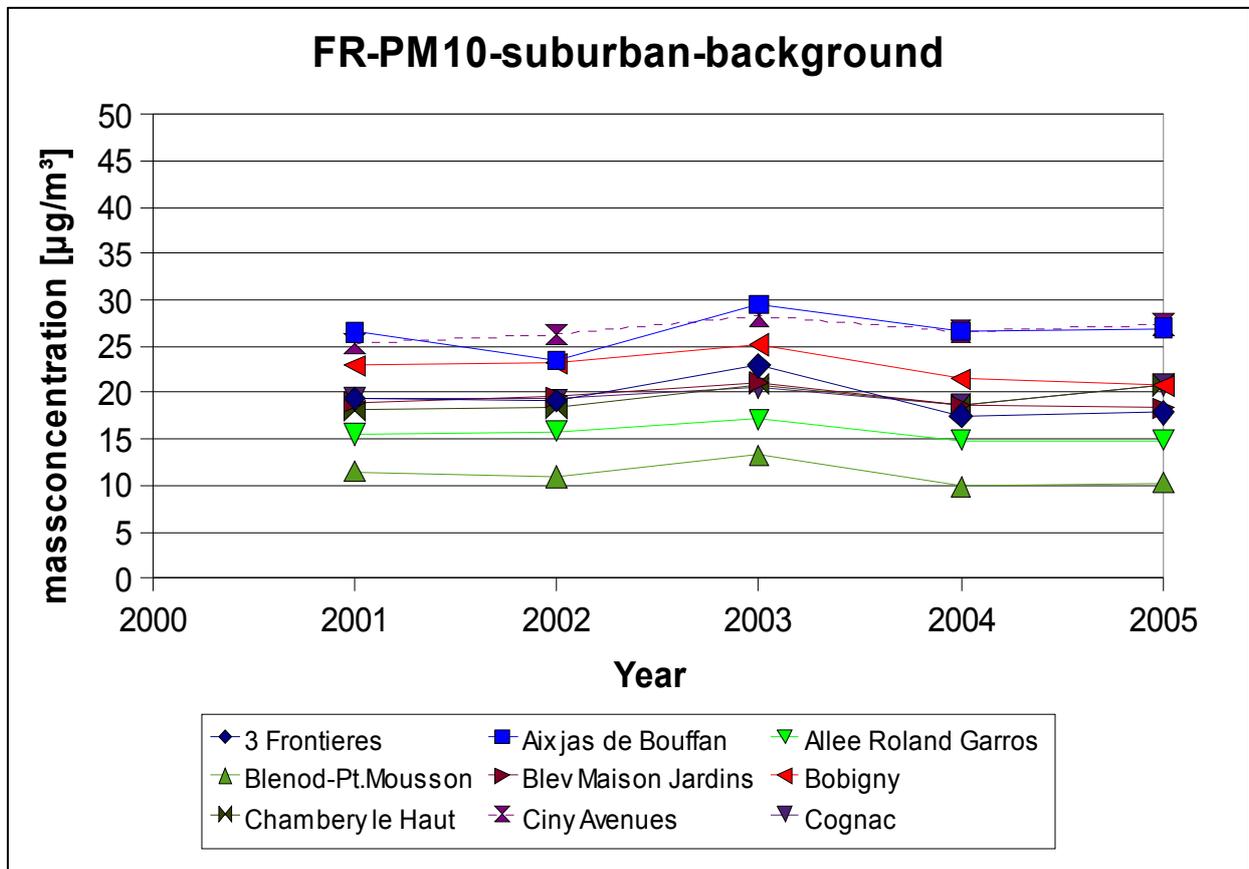
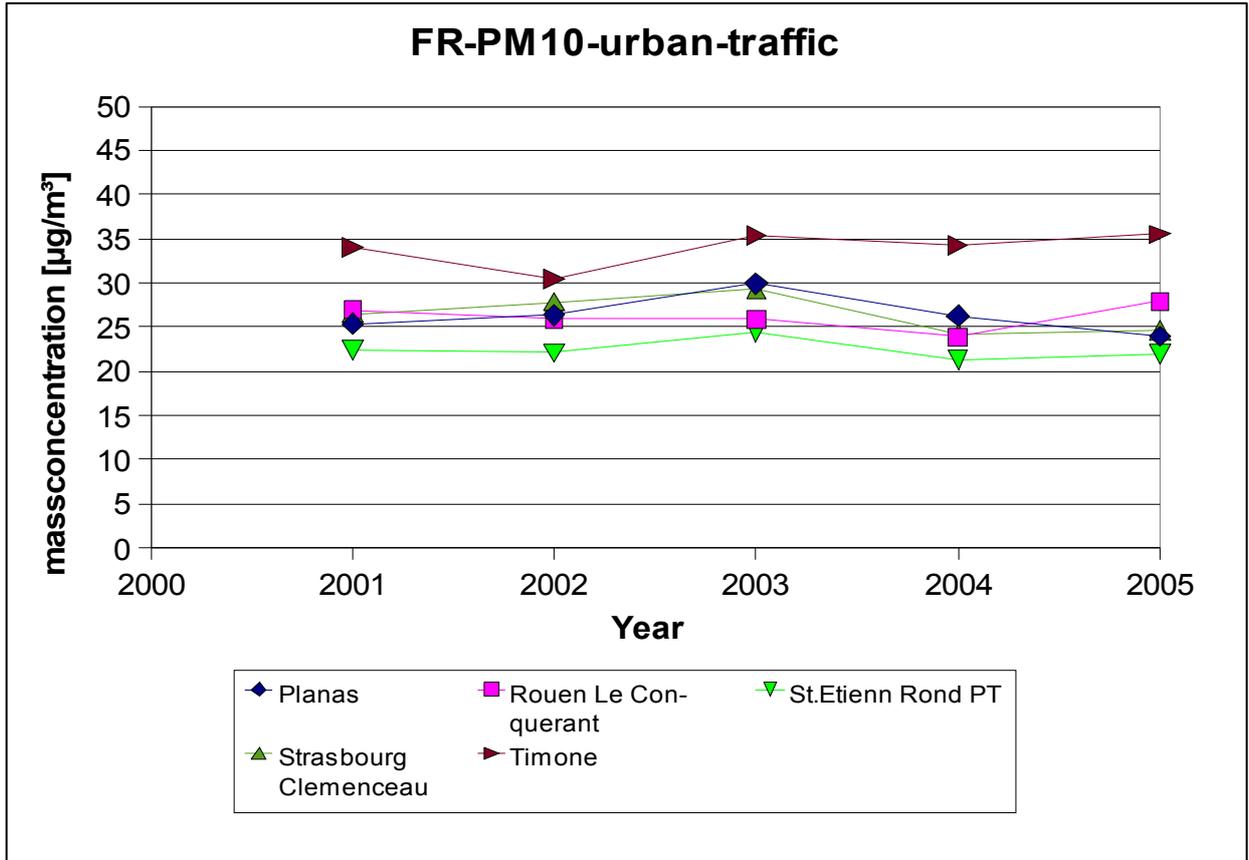


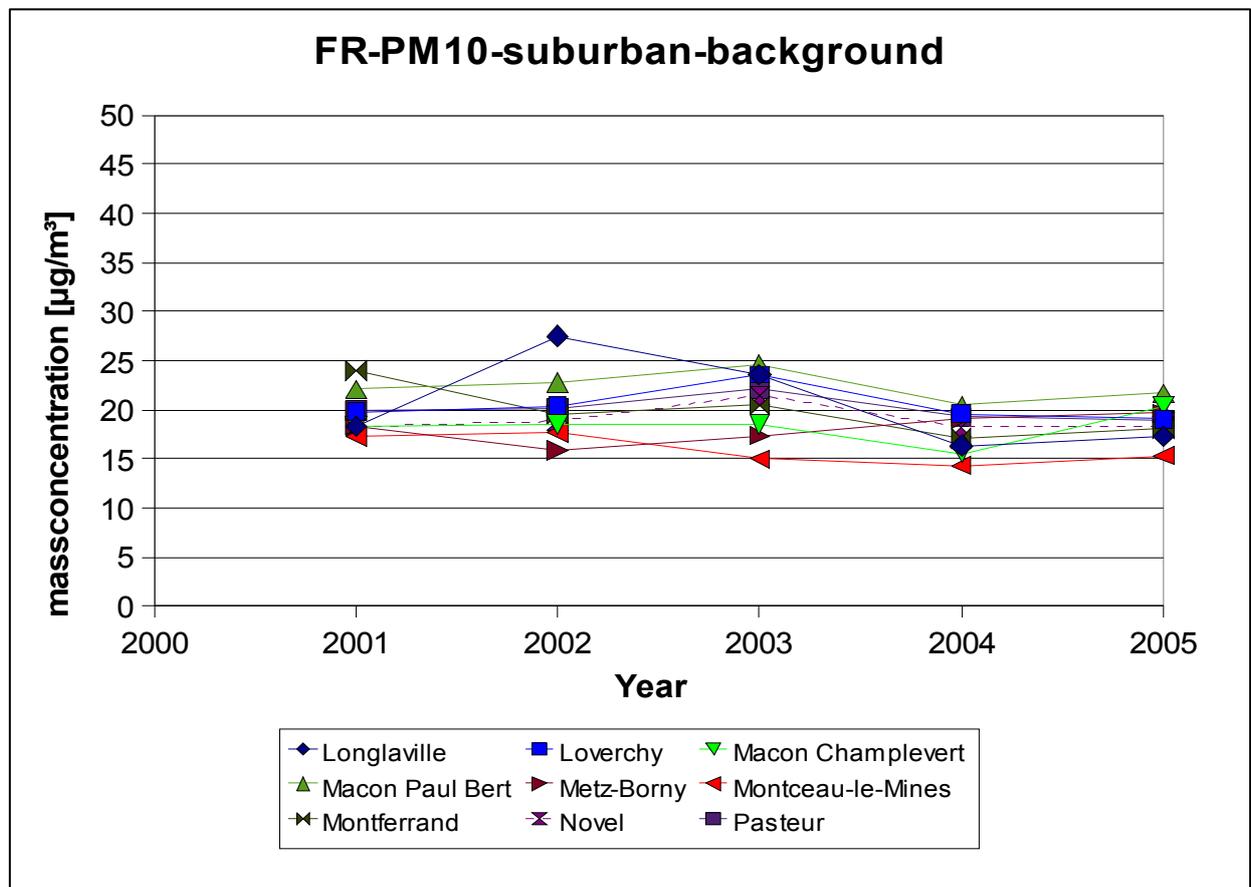
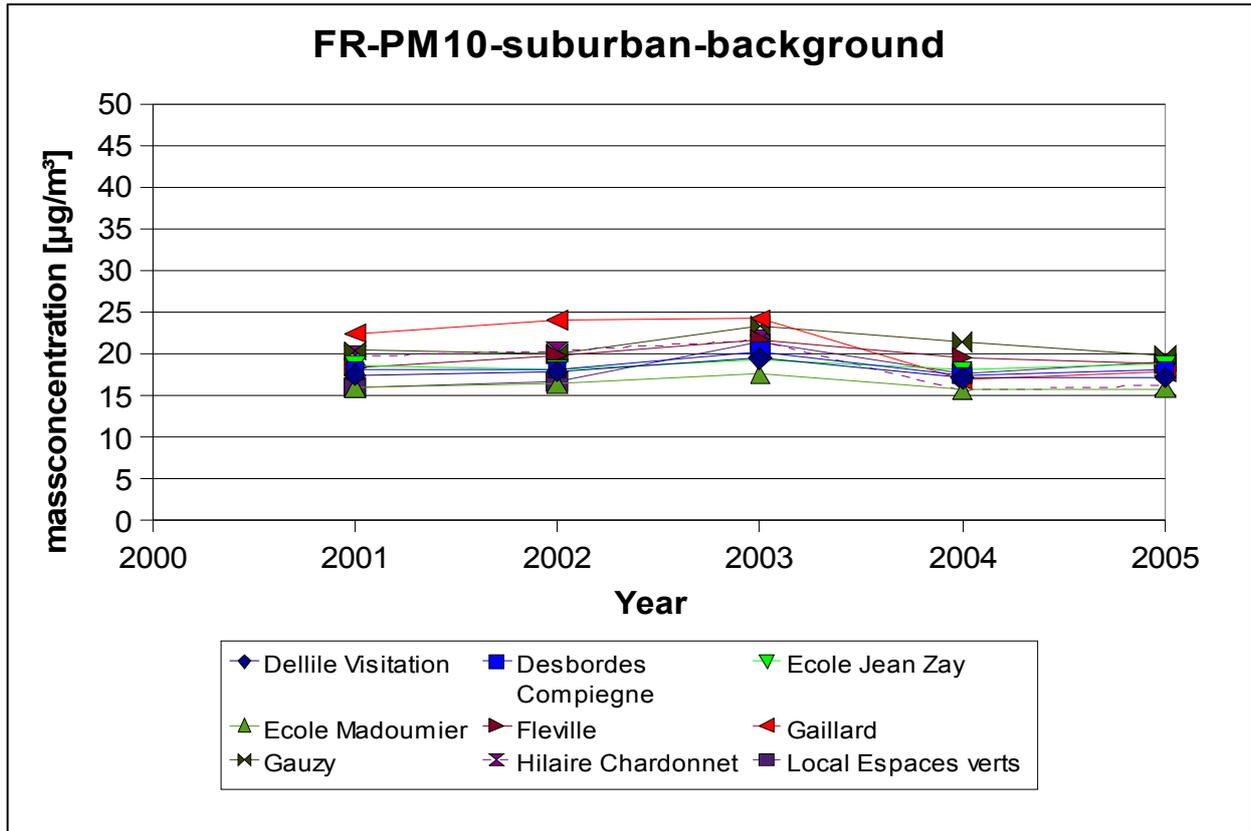




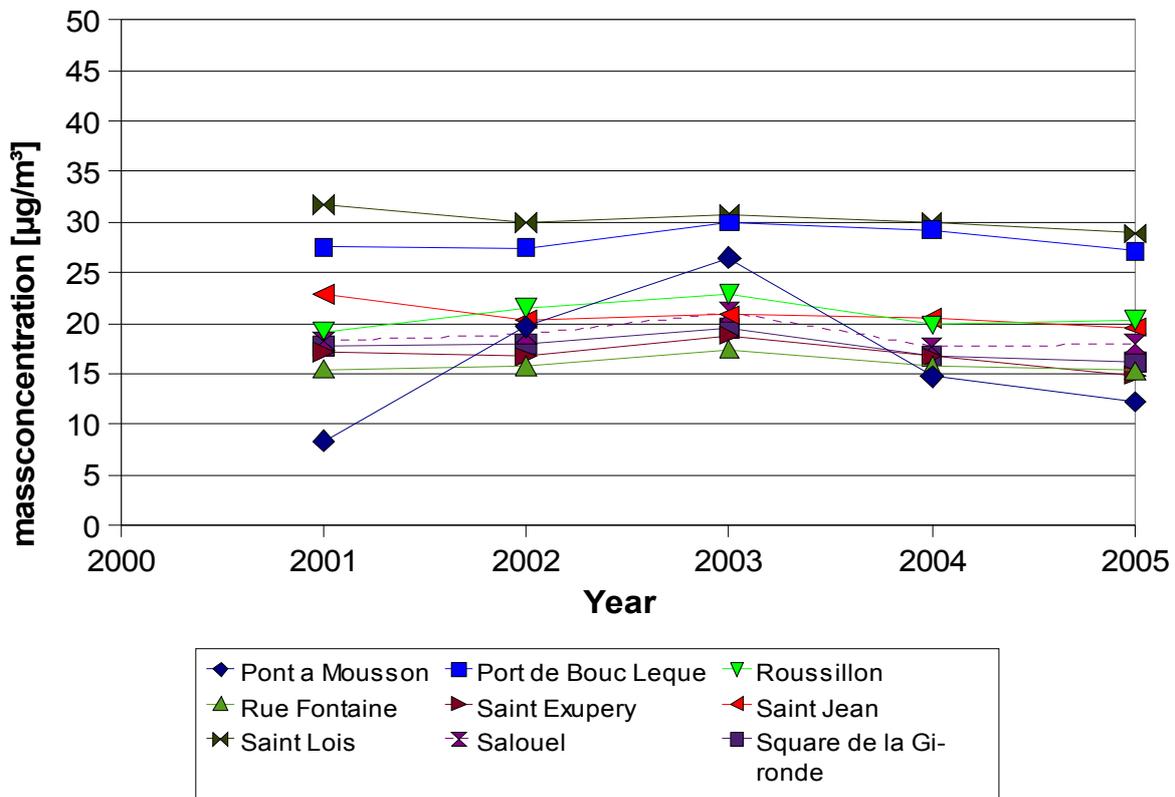




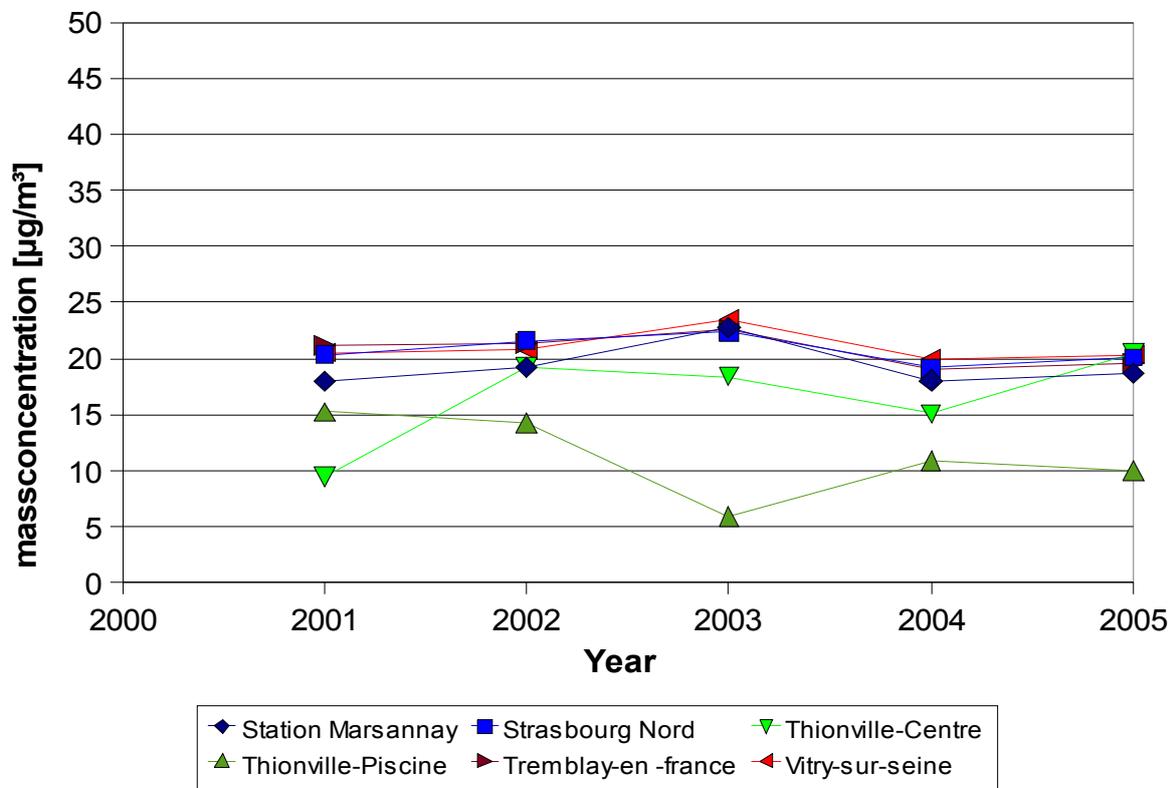


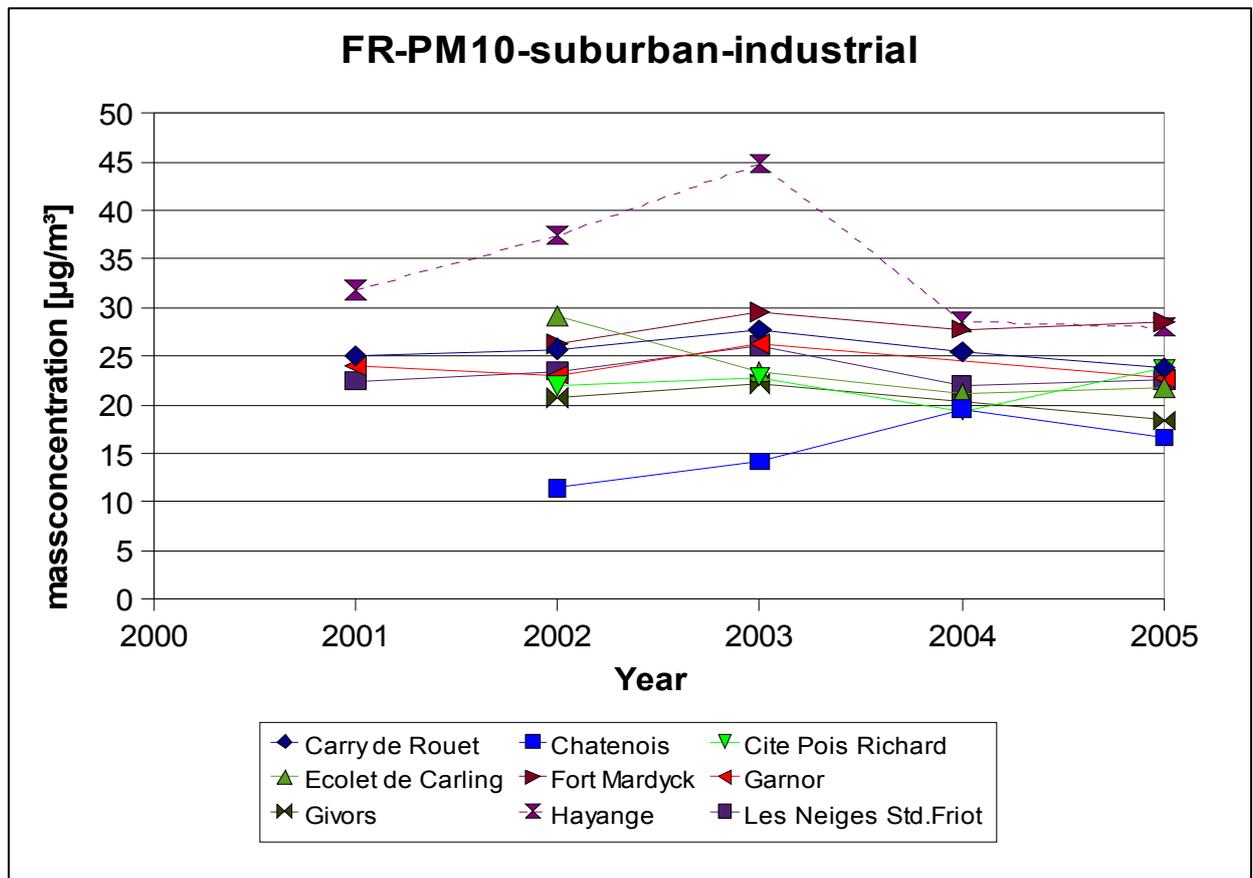
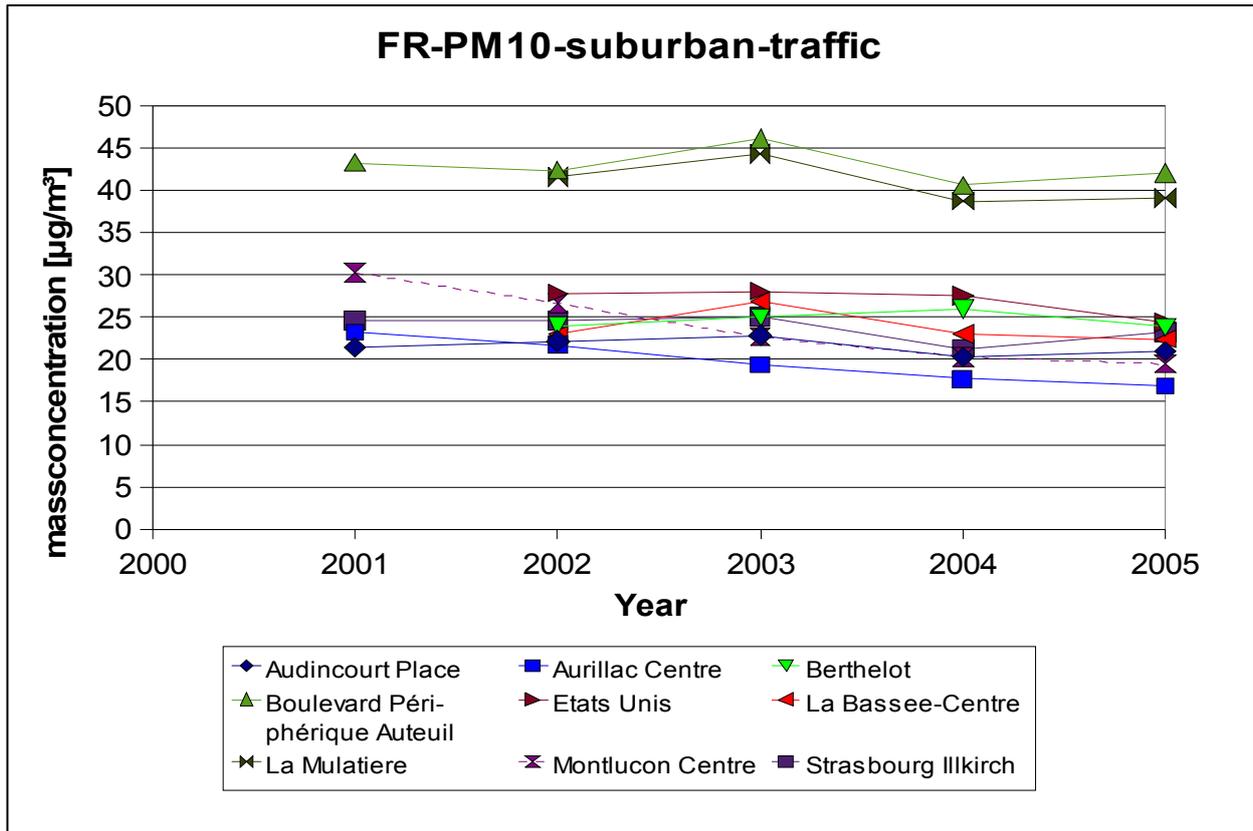


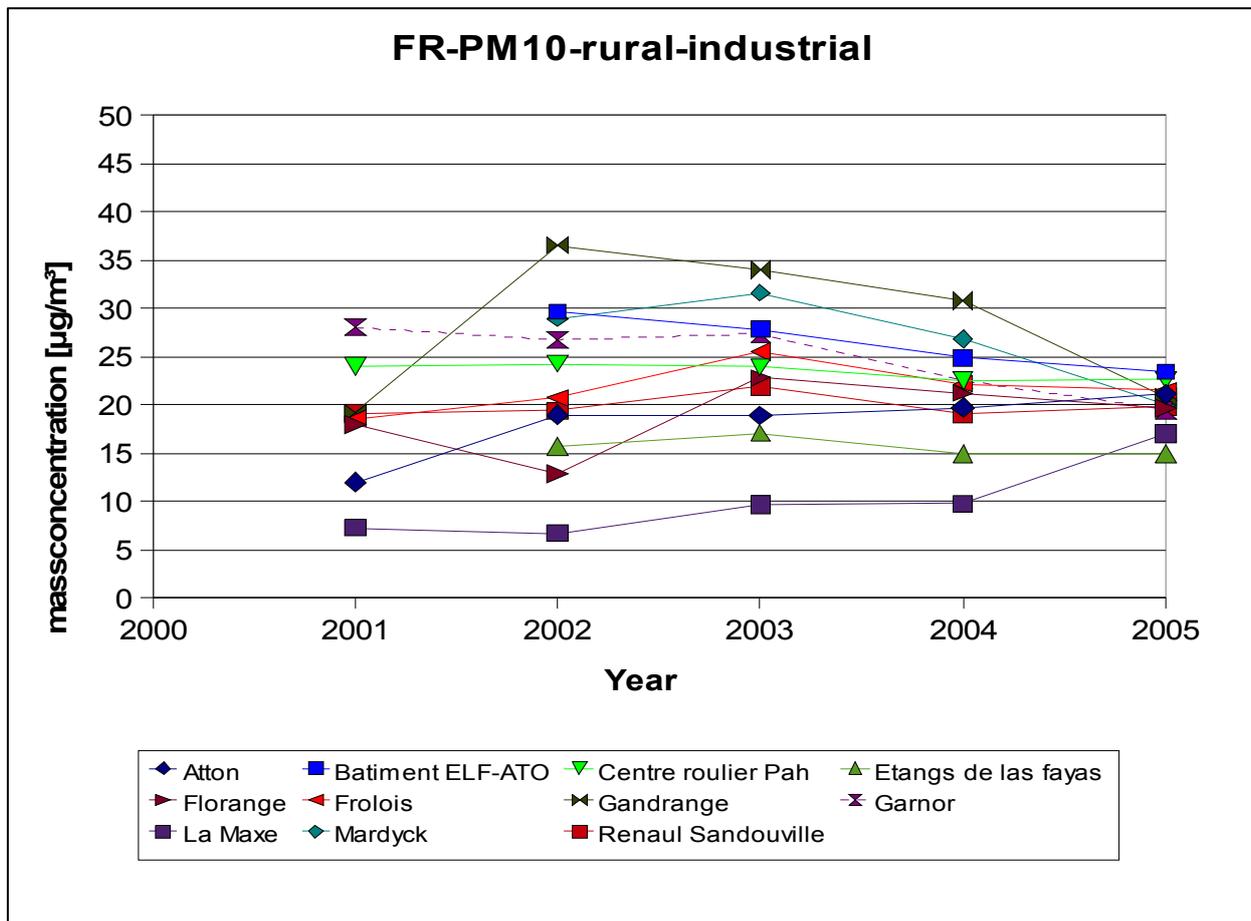
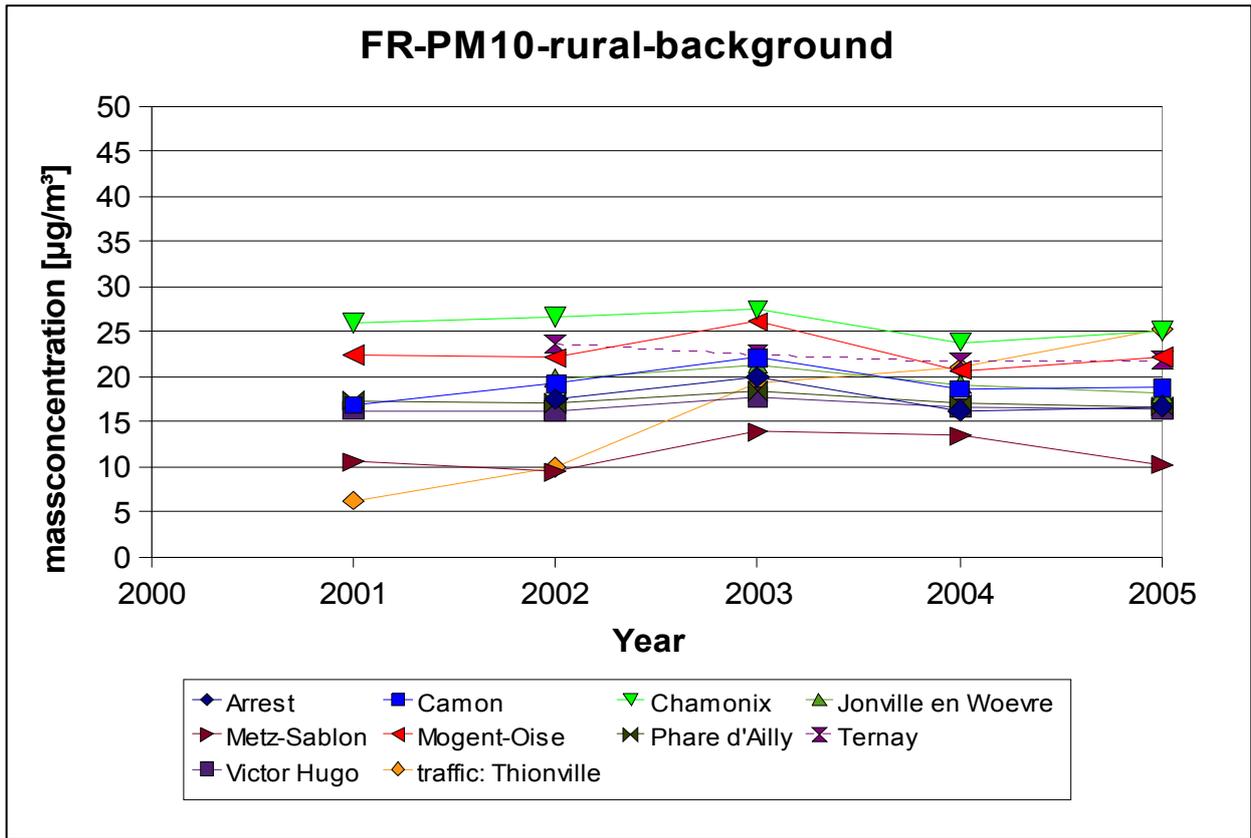
FR-PM10-suburban-background

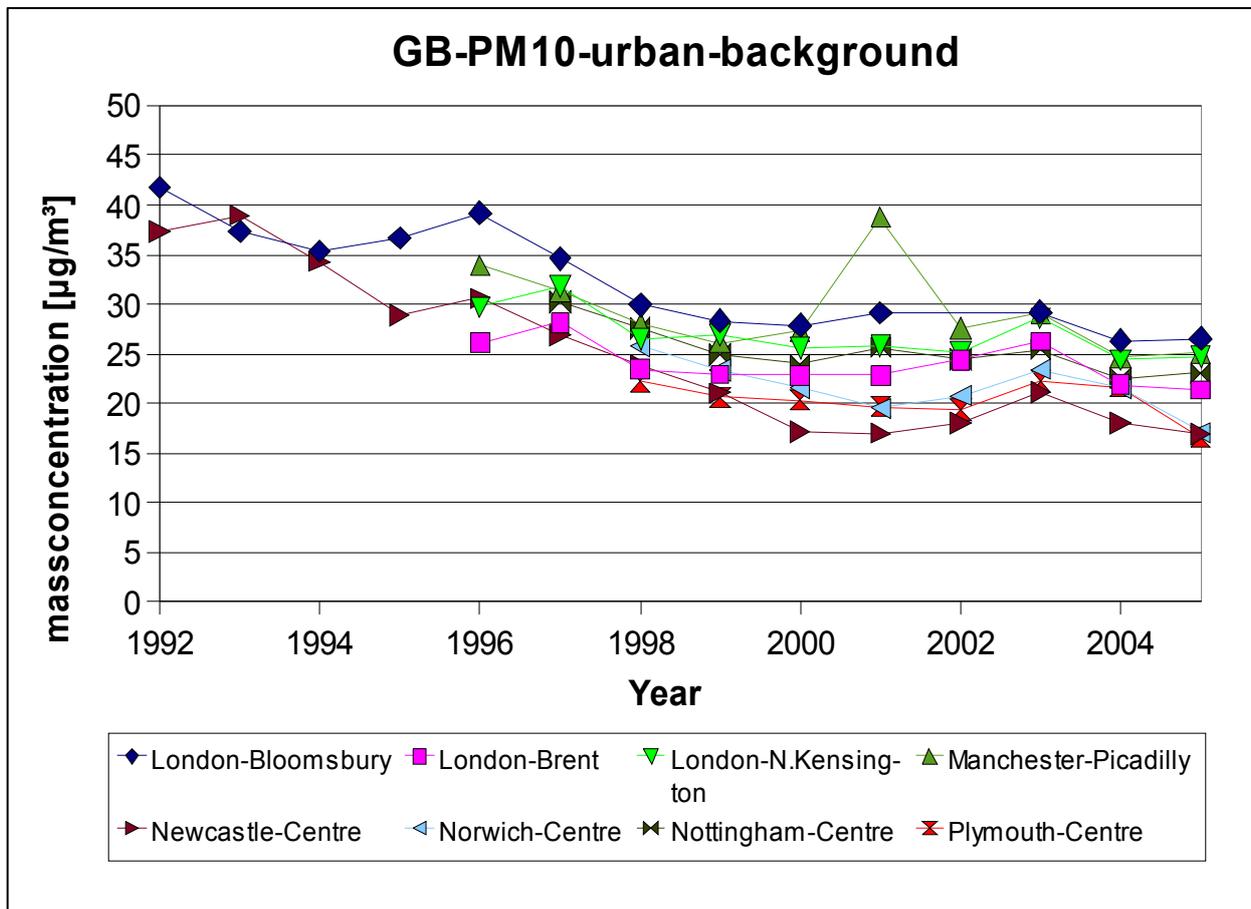
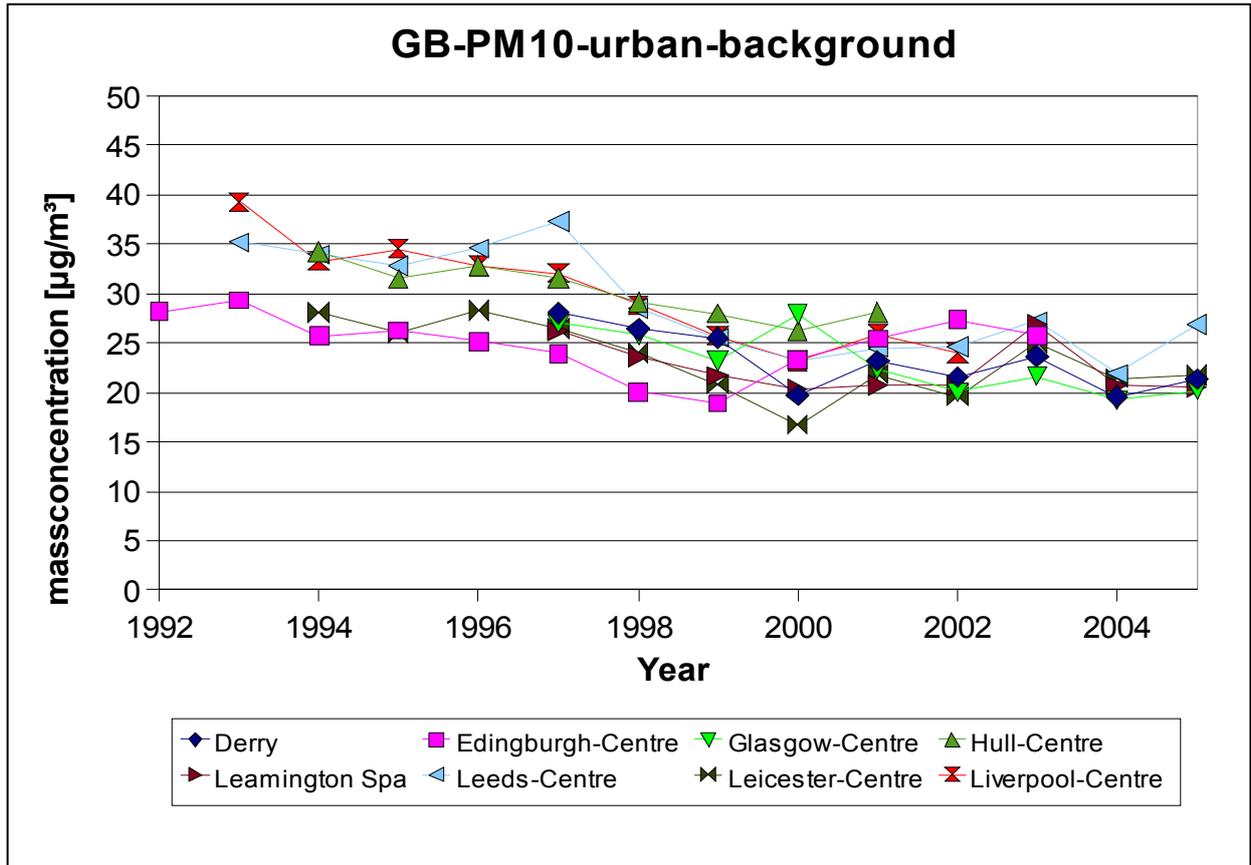


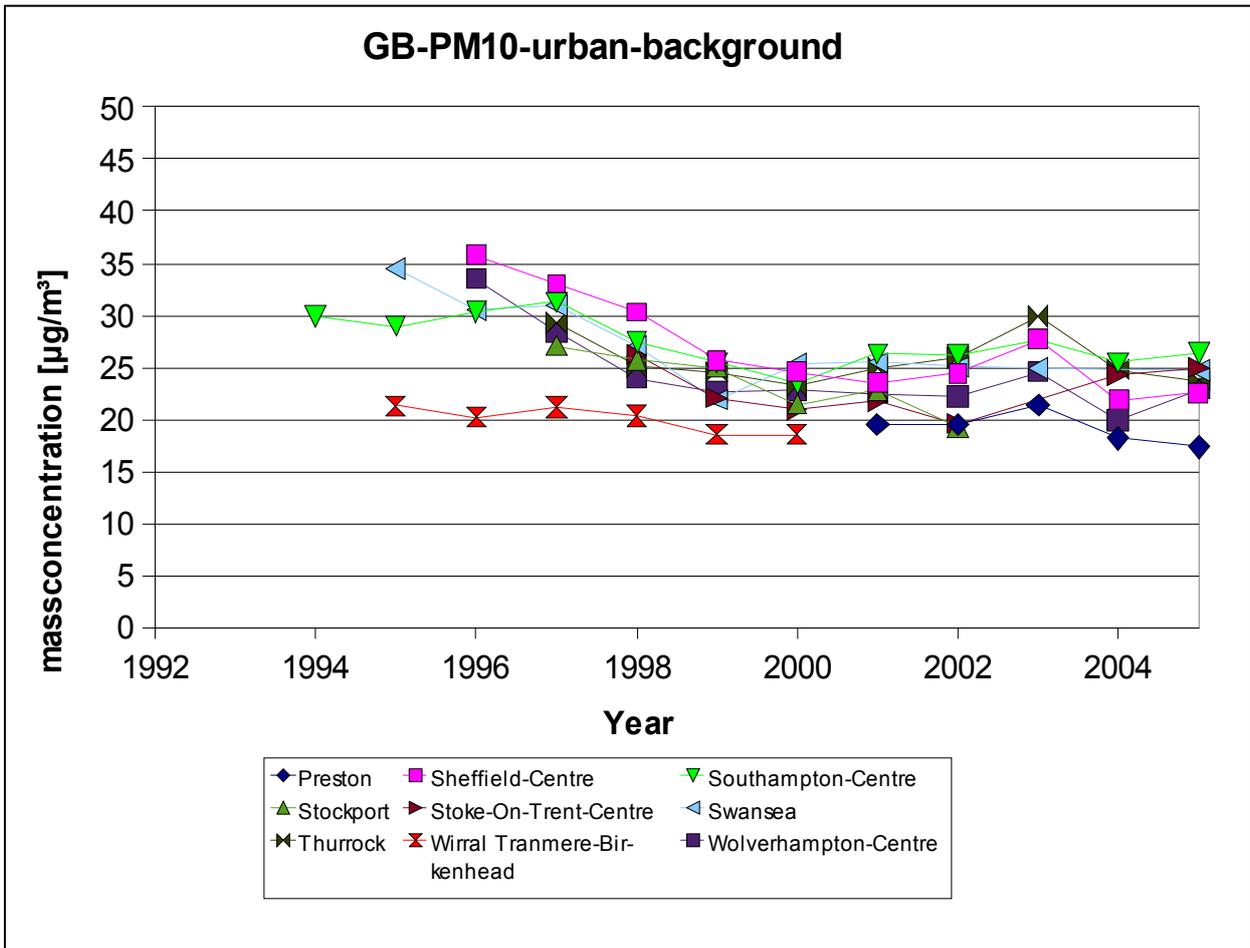
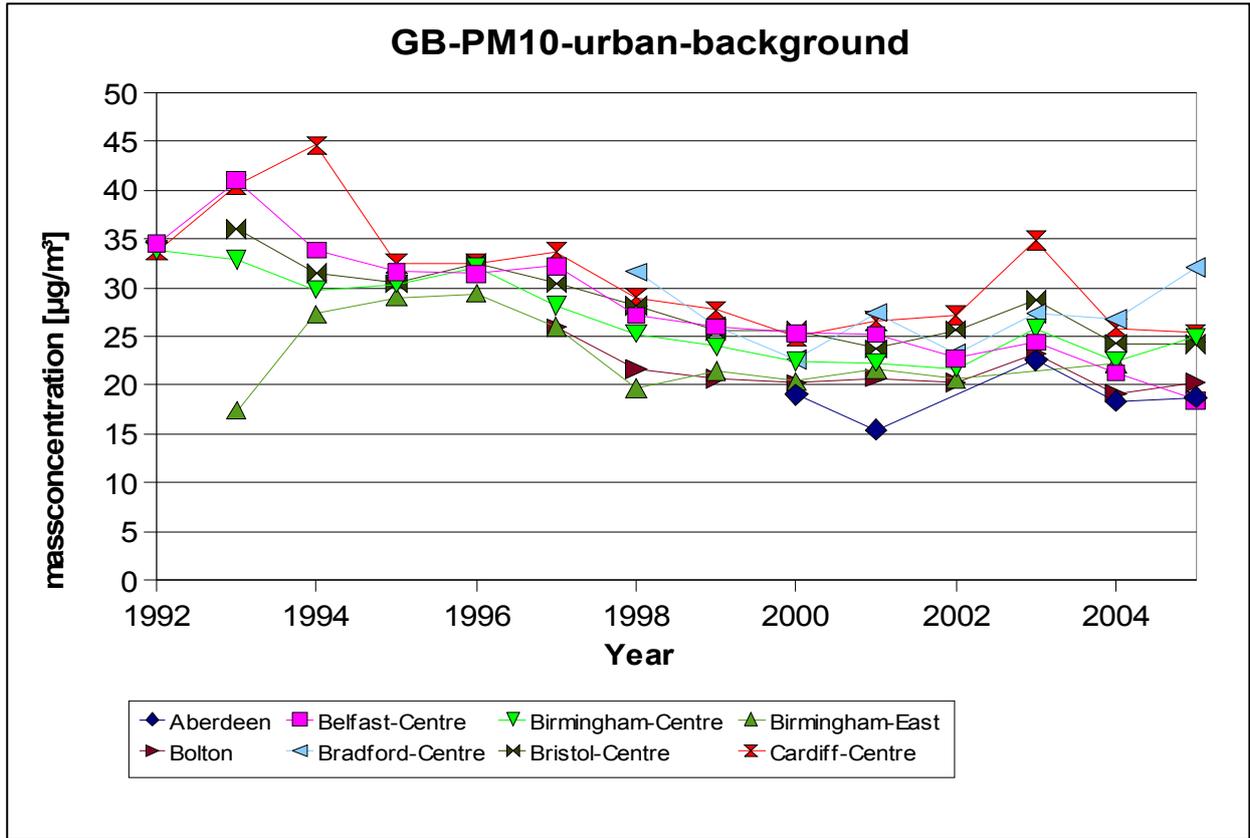
FR-PM10-suburban-background

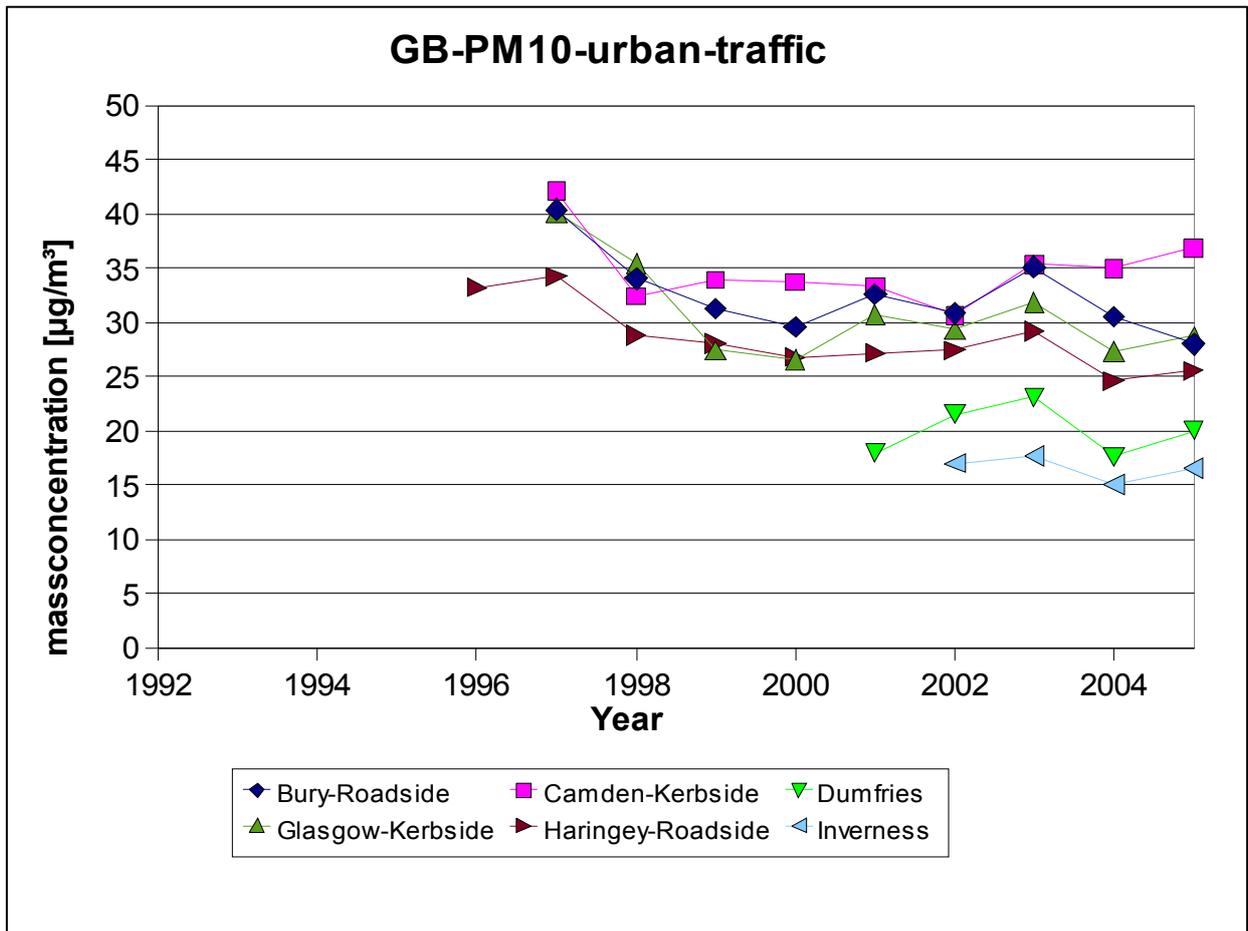
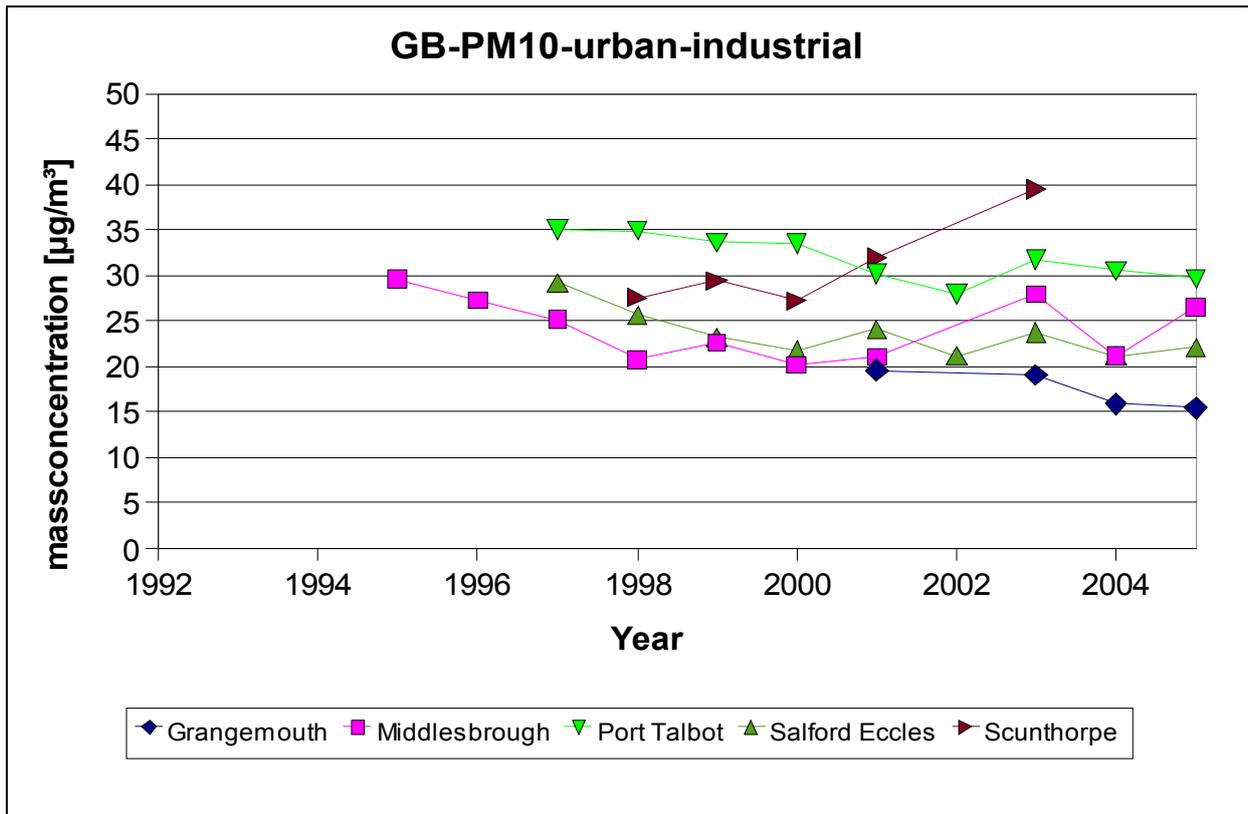


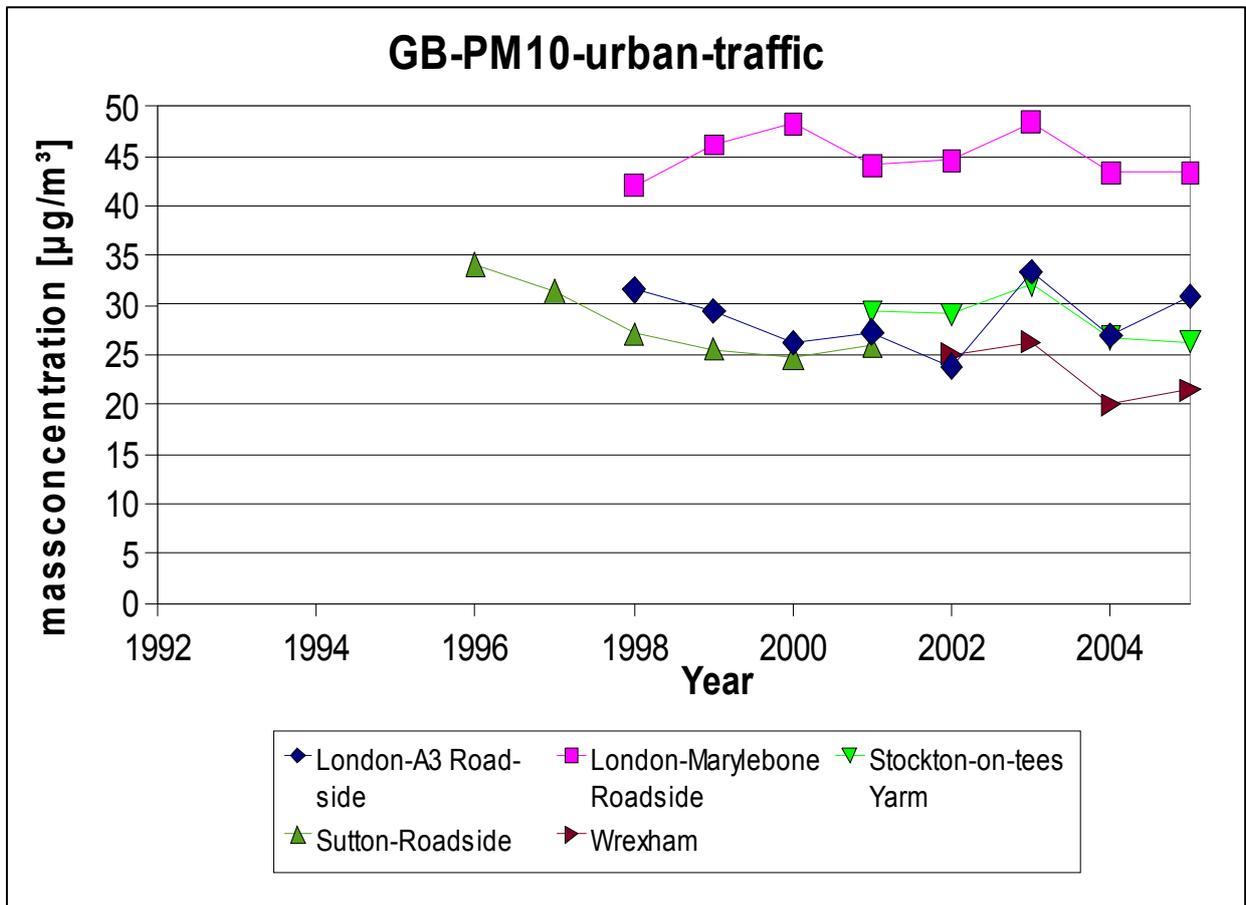
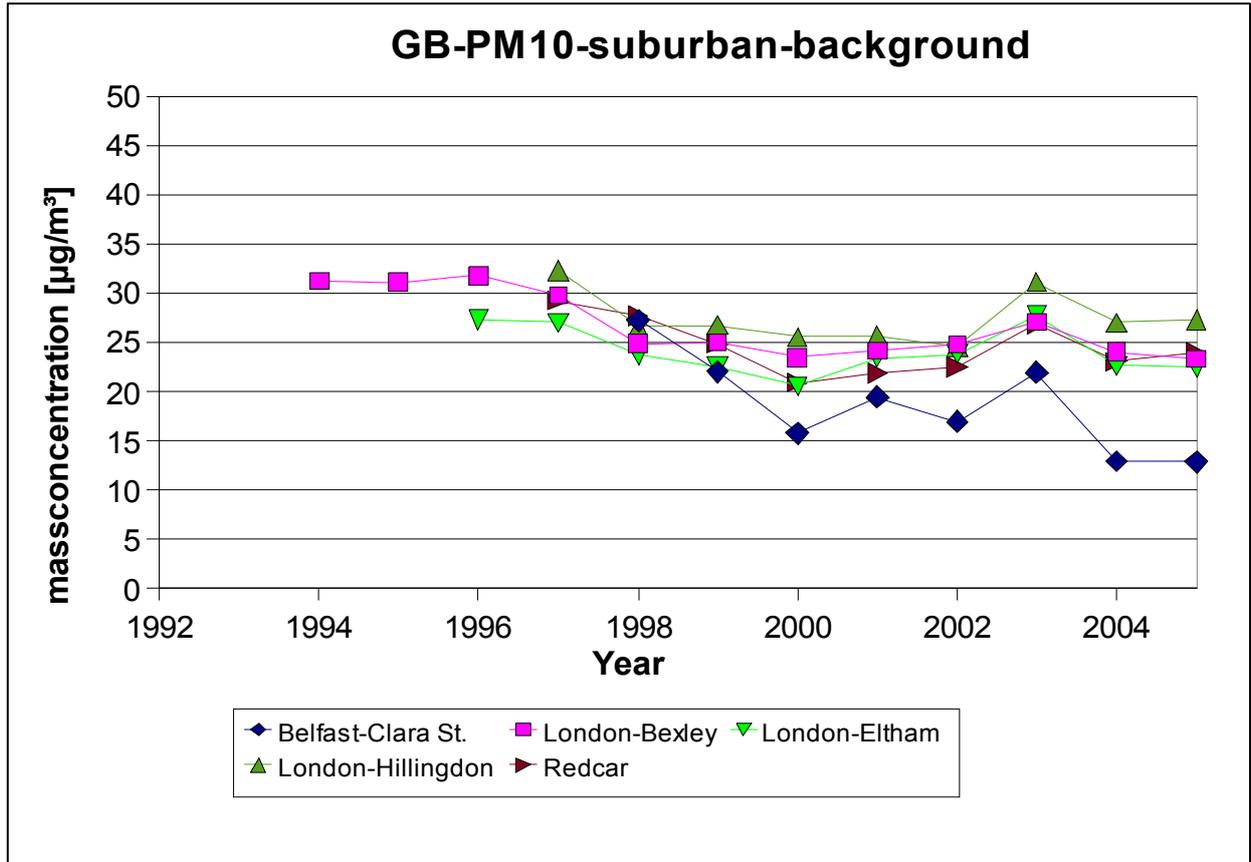


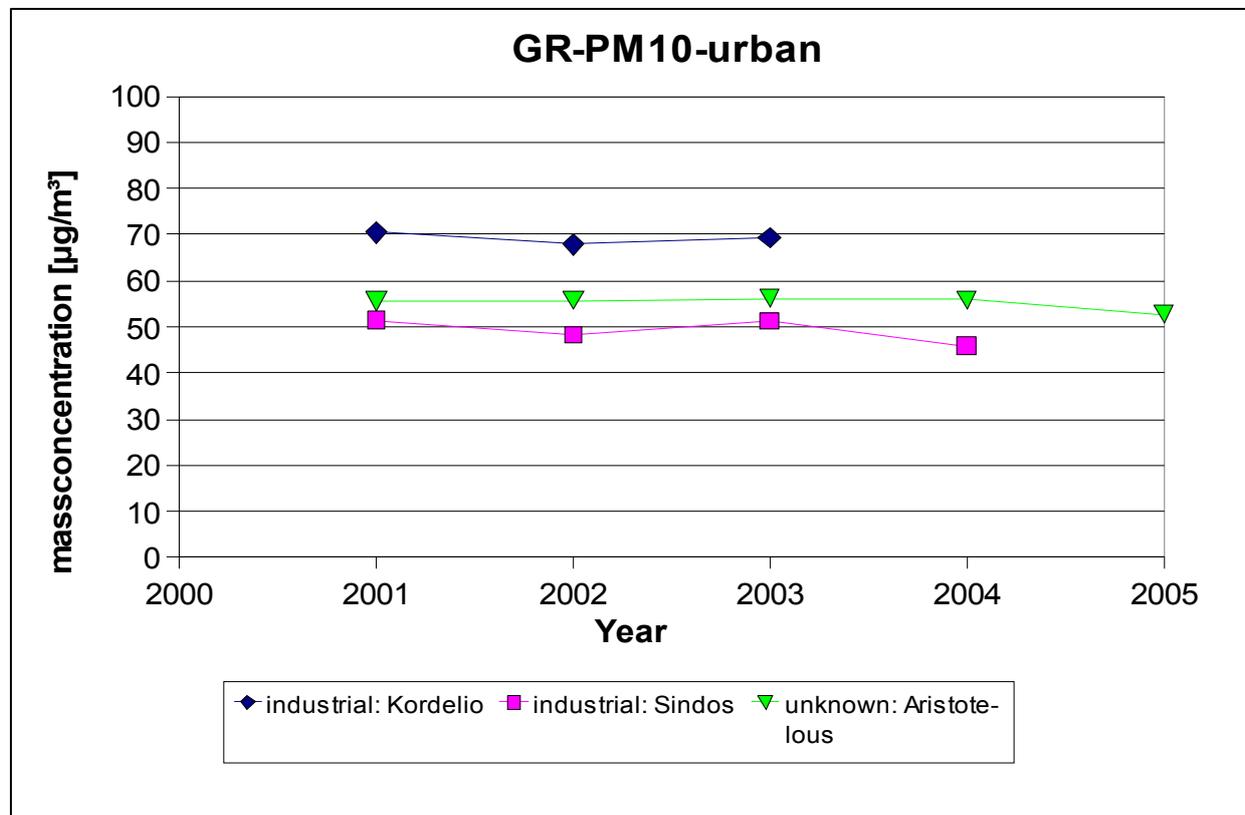
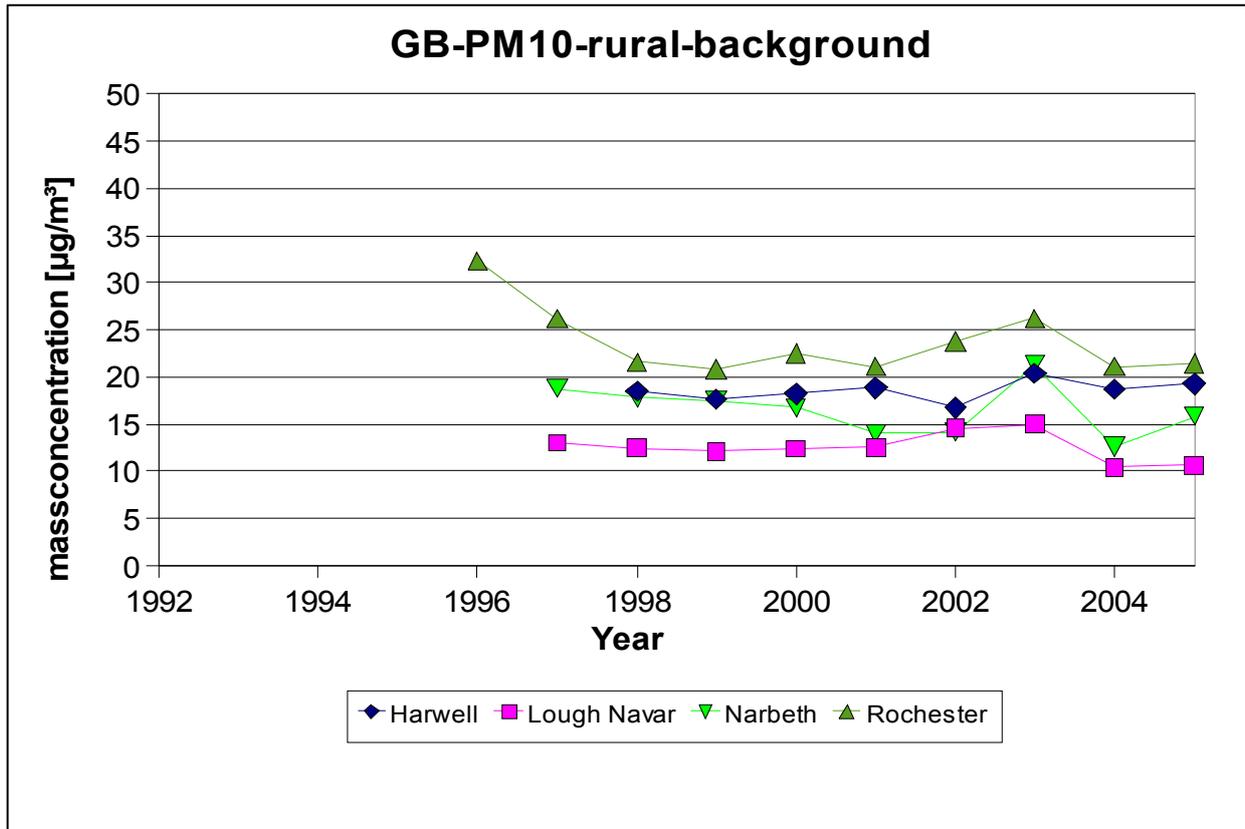


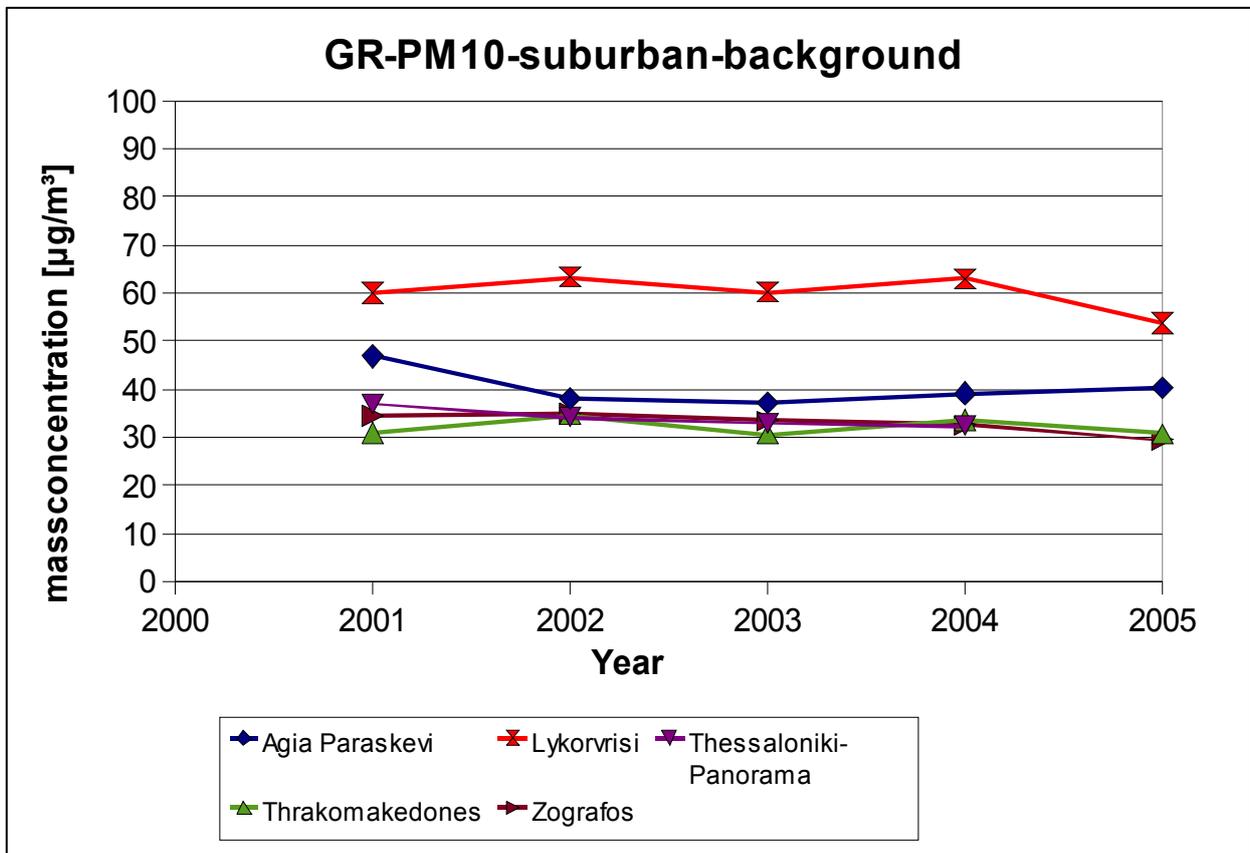
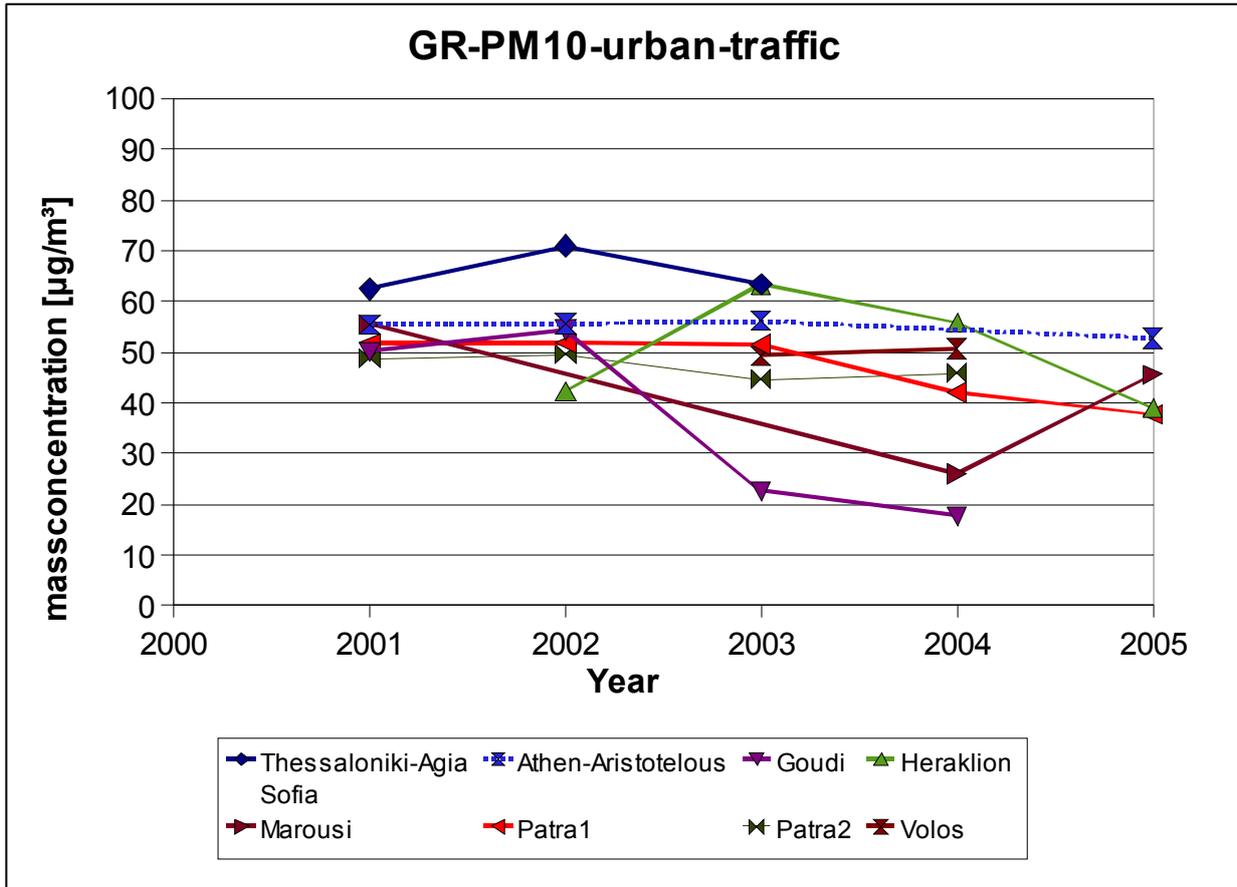


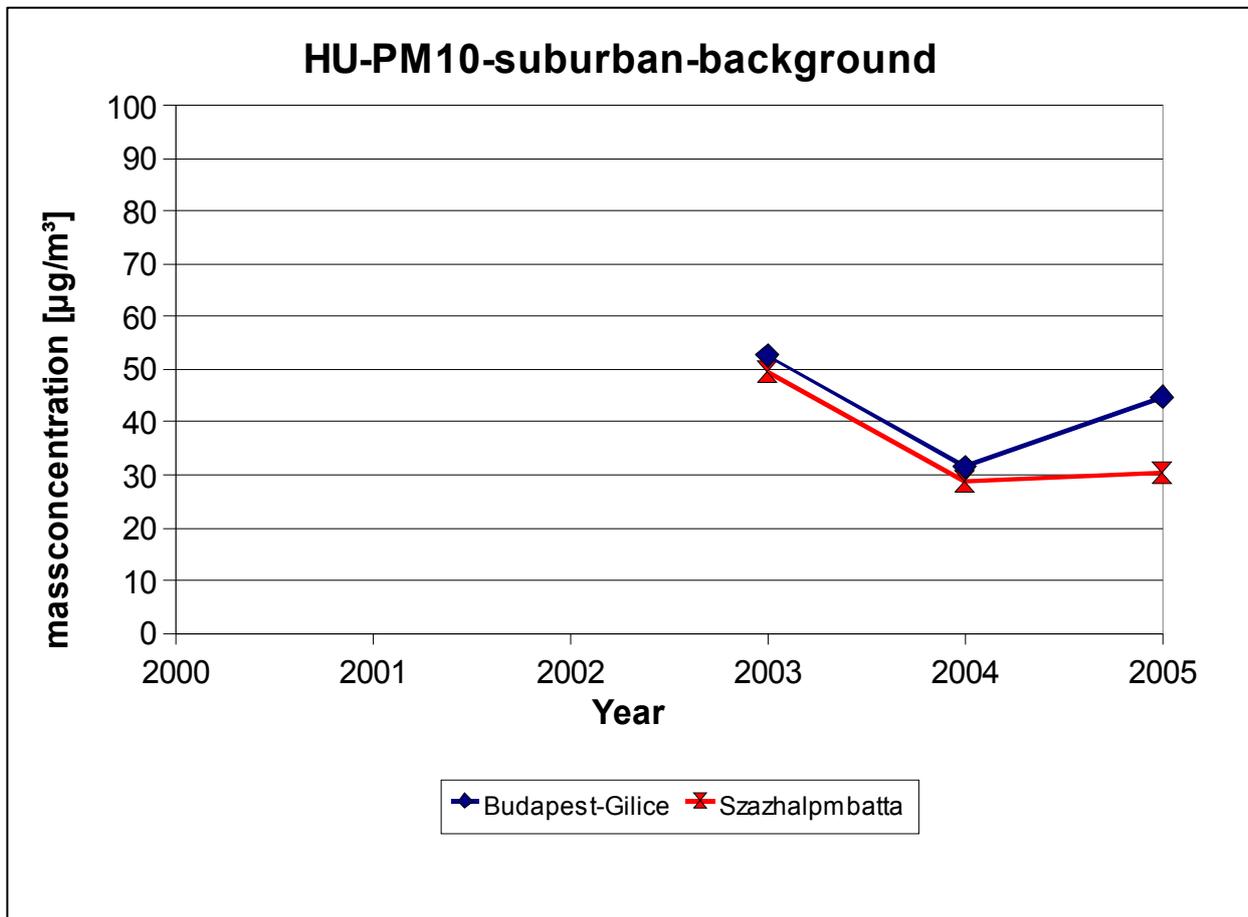
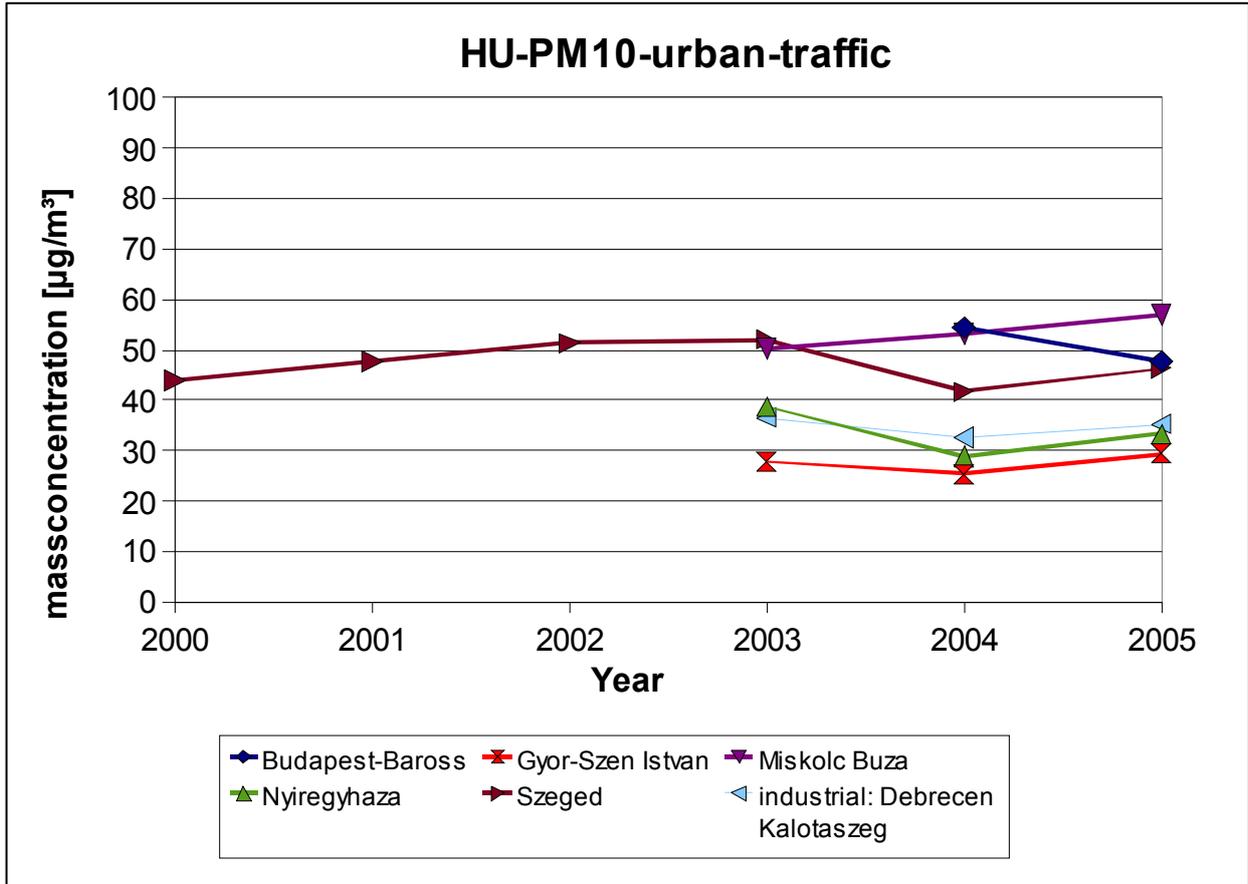


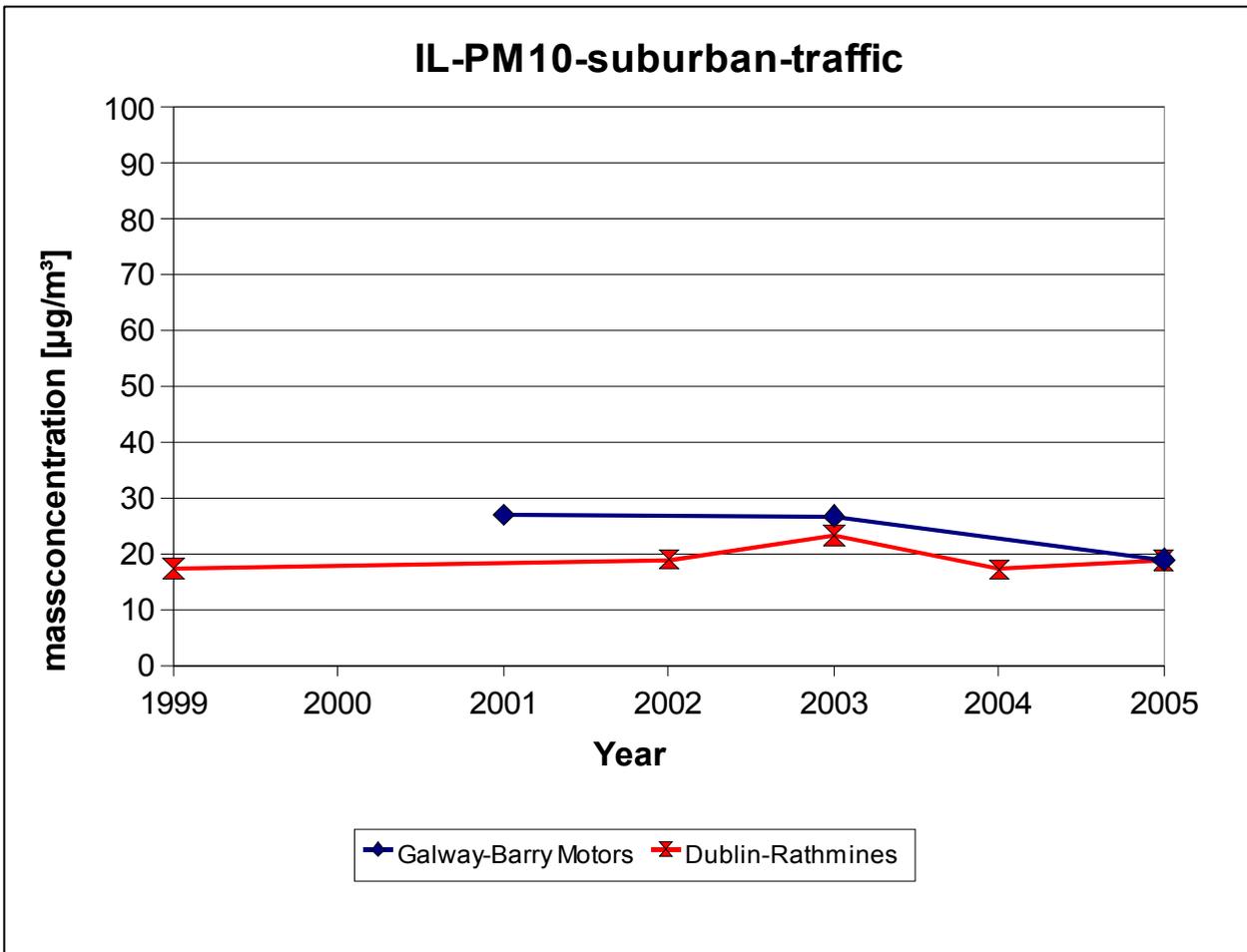
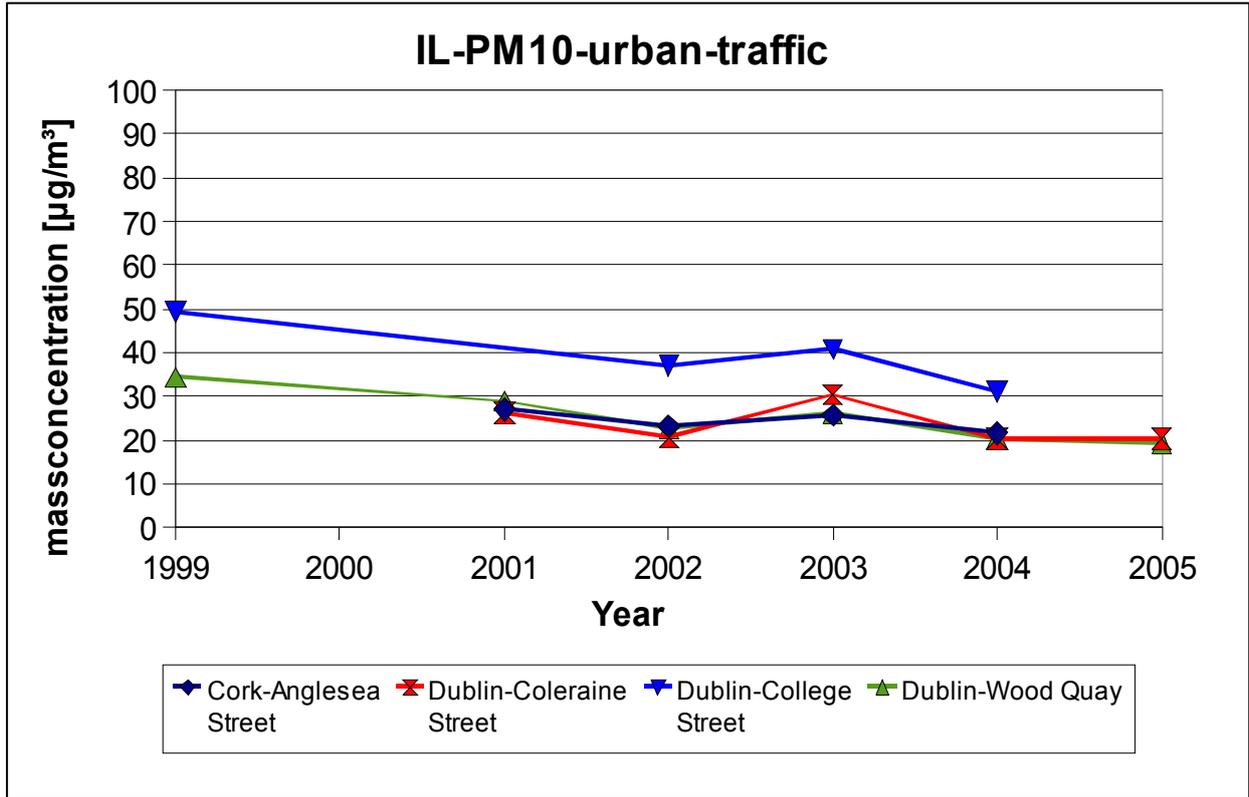


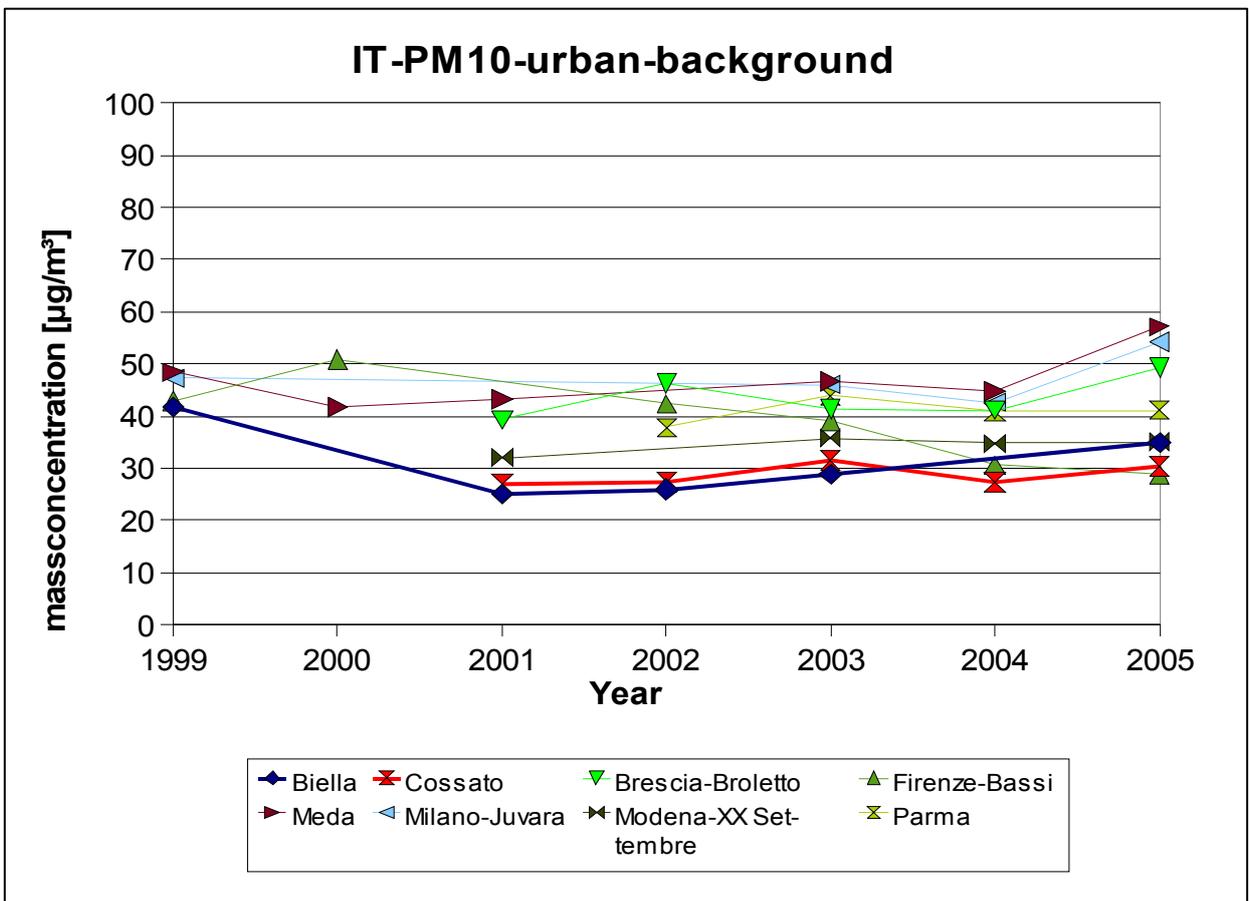
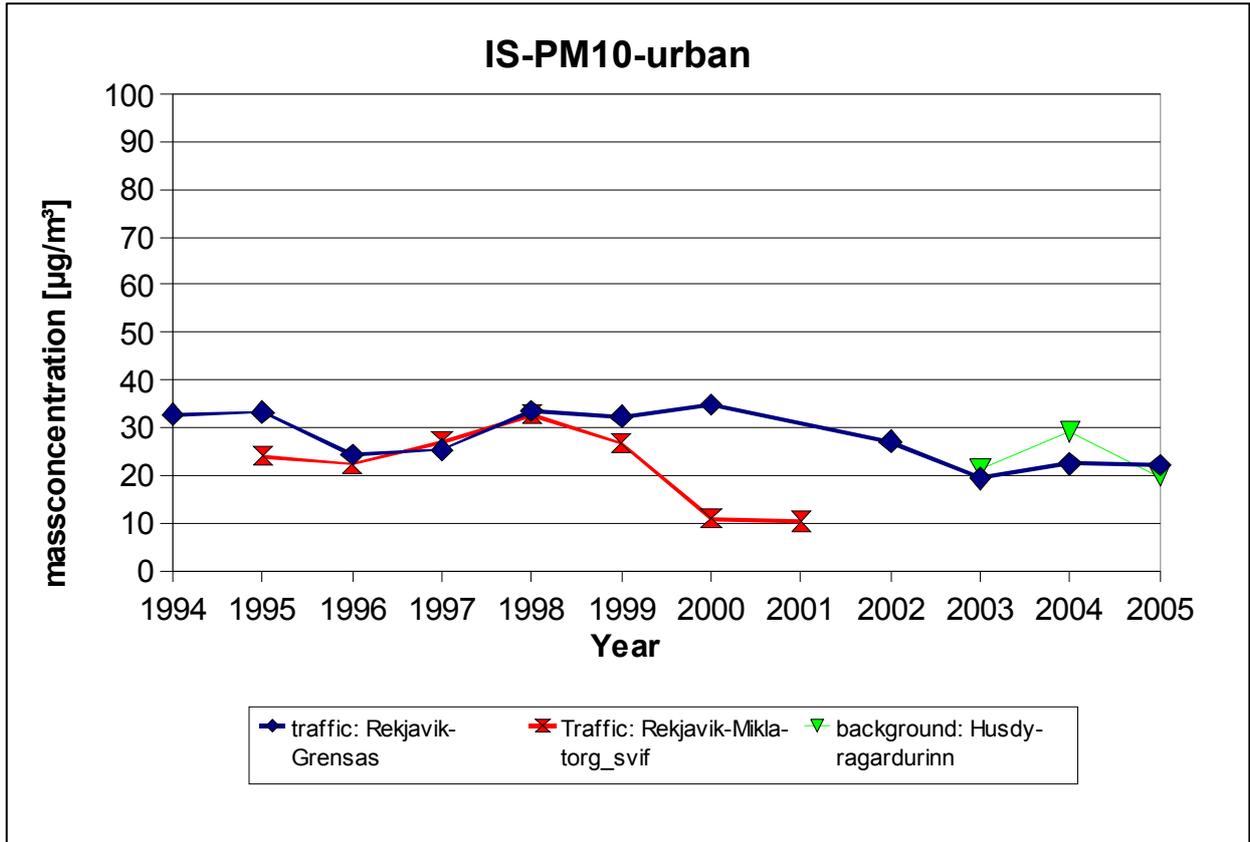


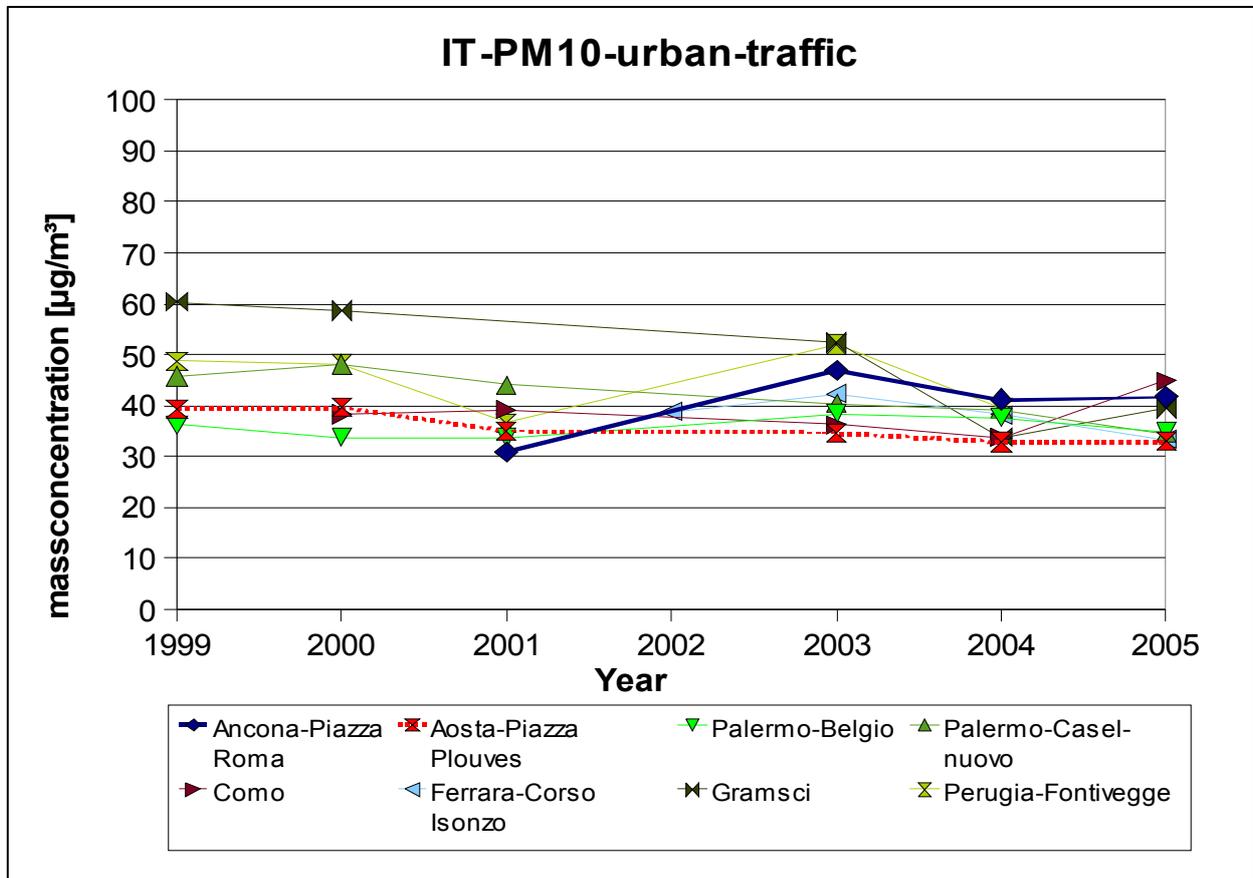
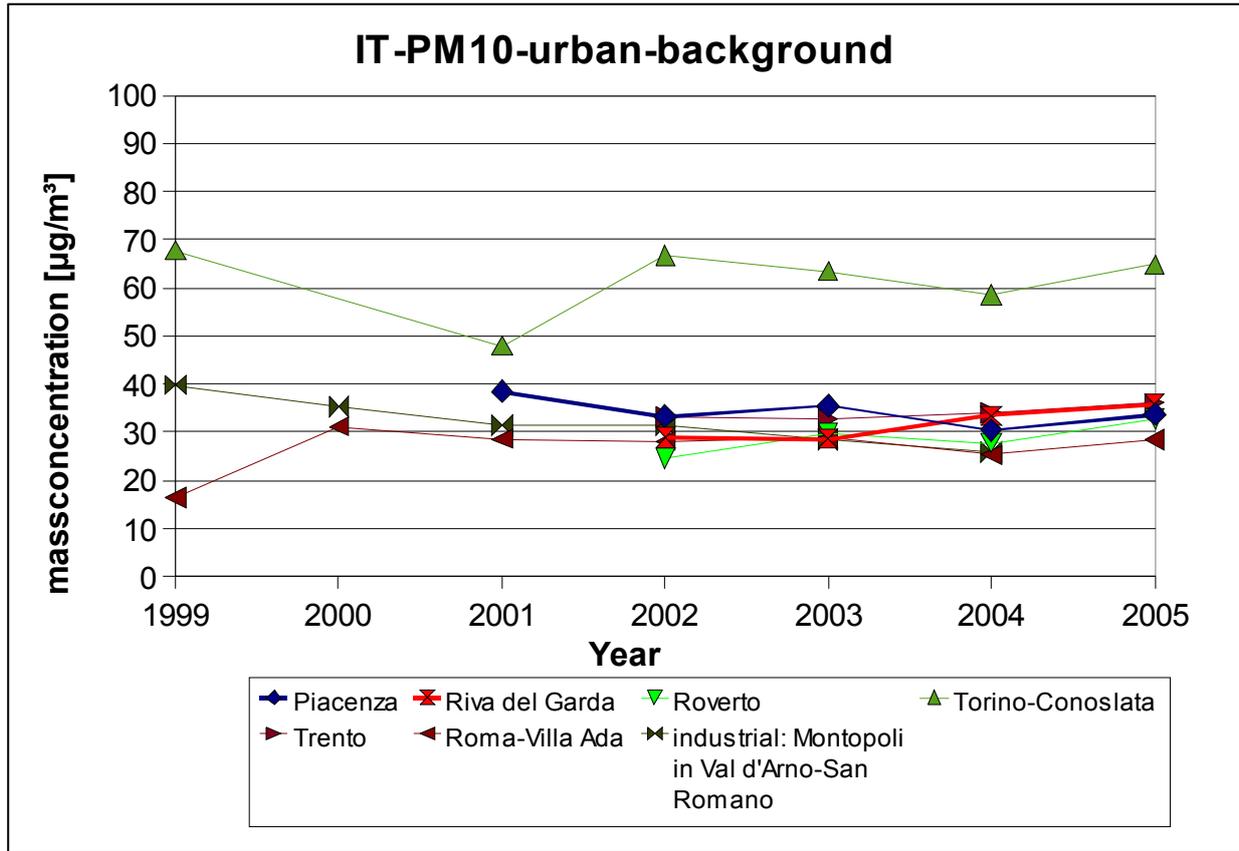


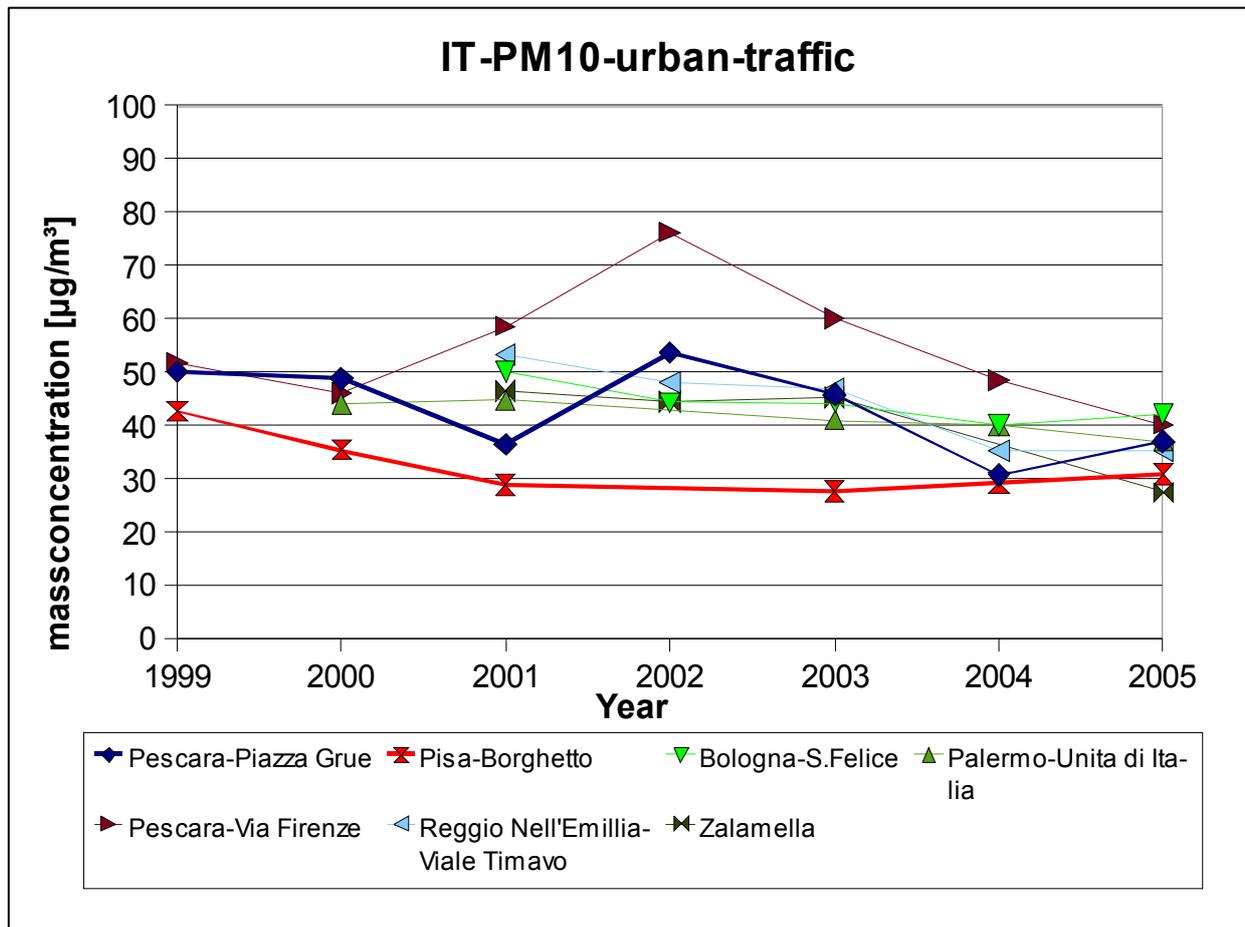
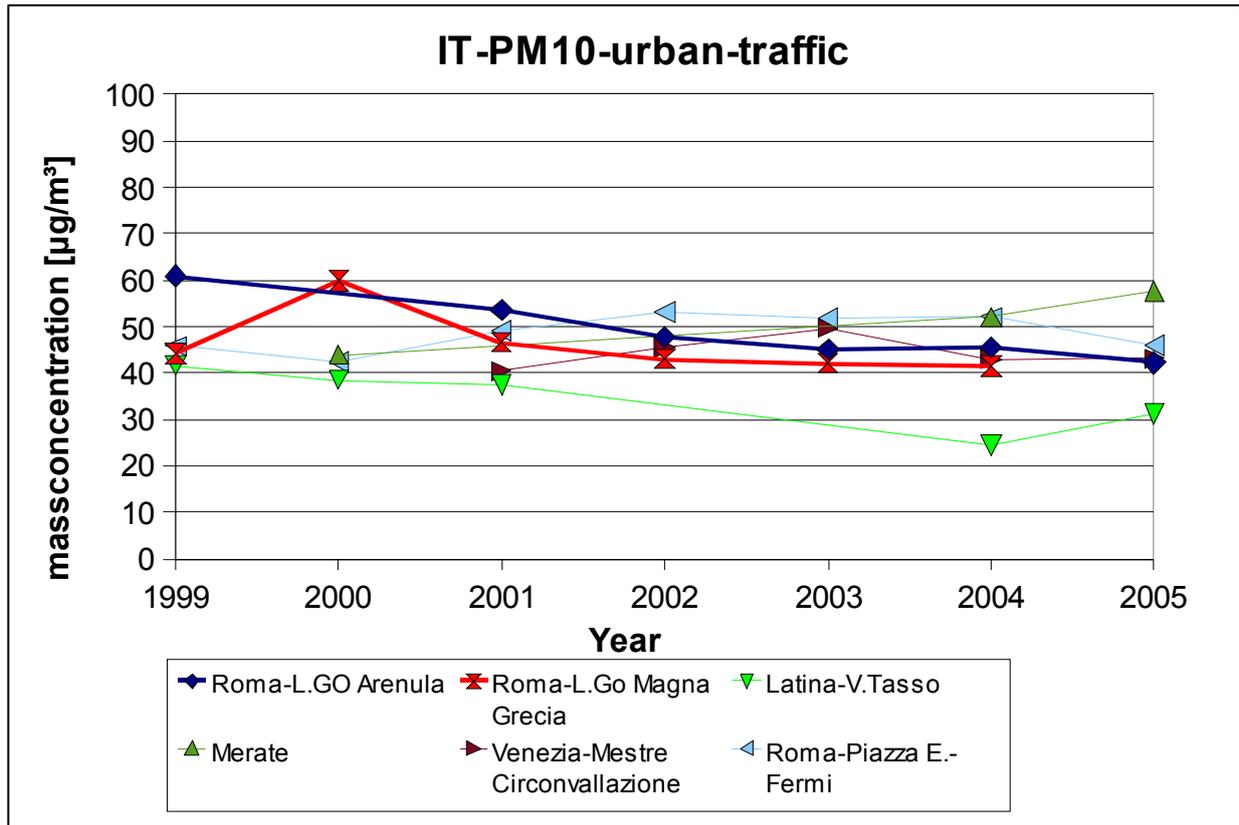


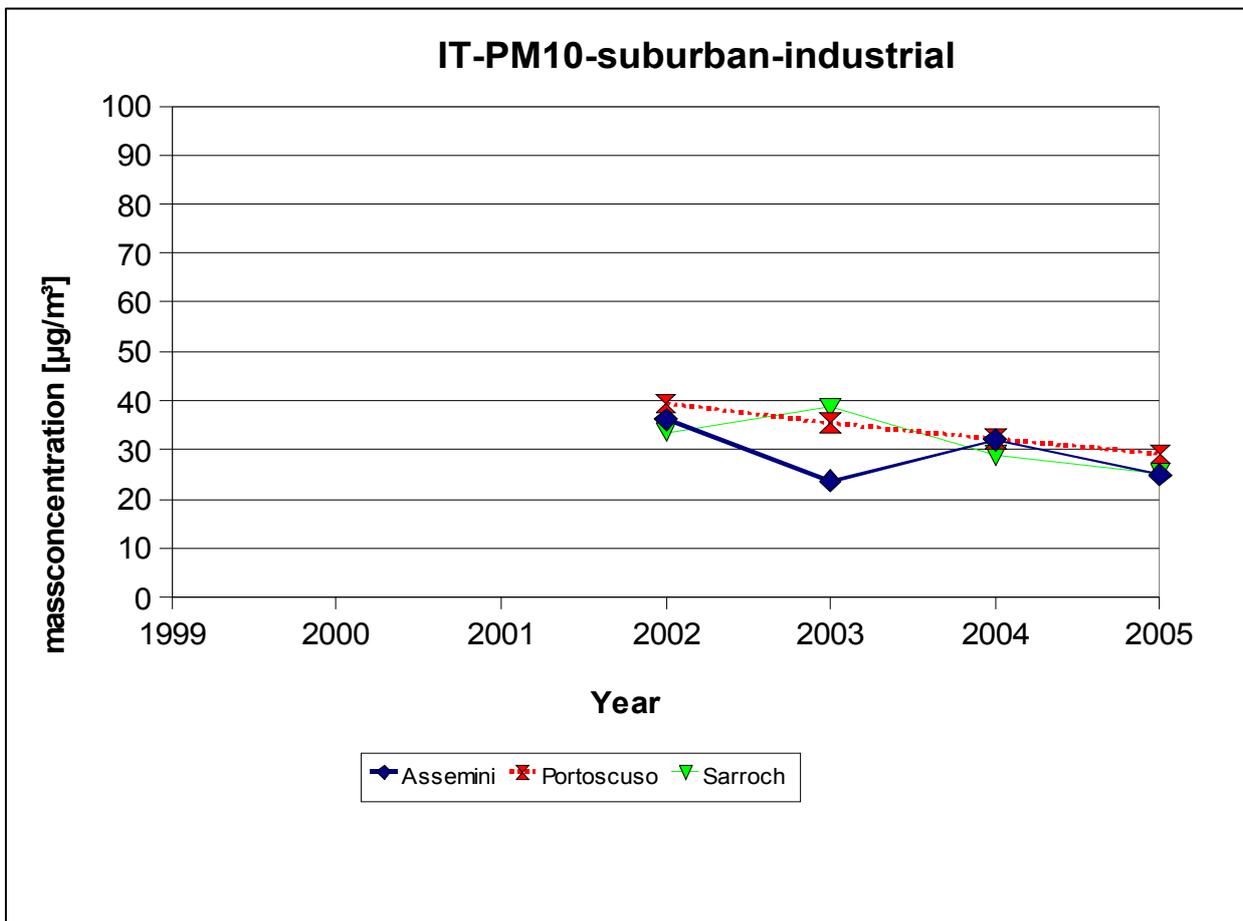
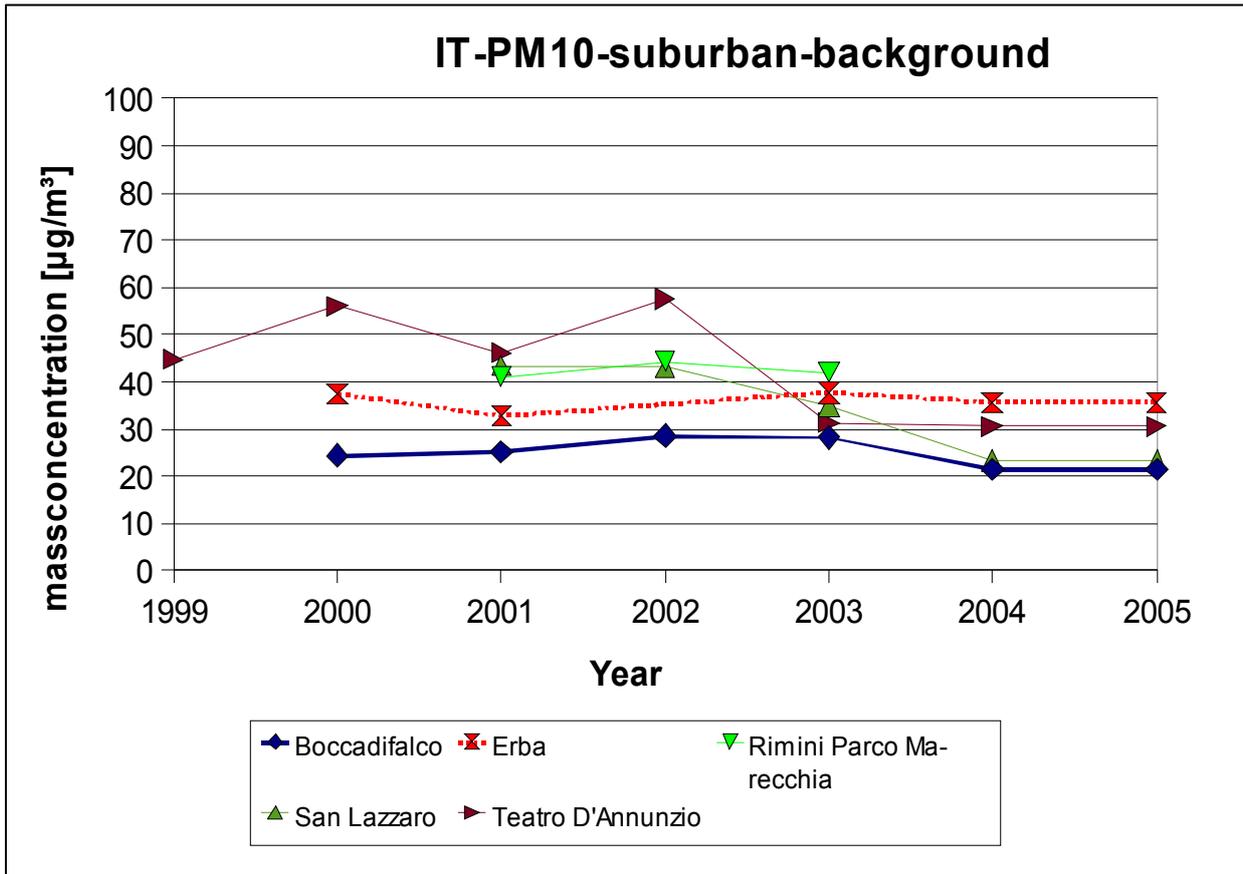


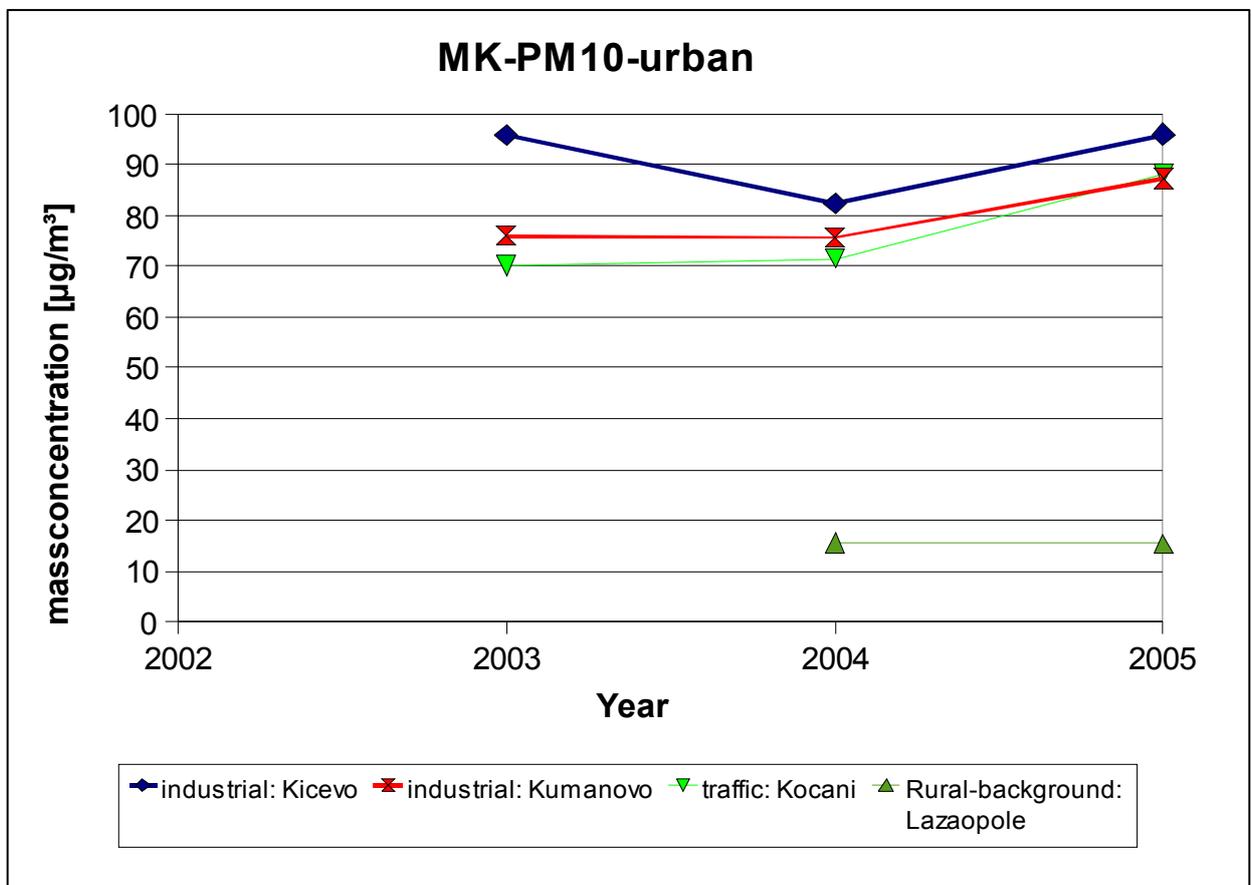
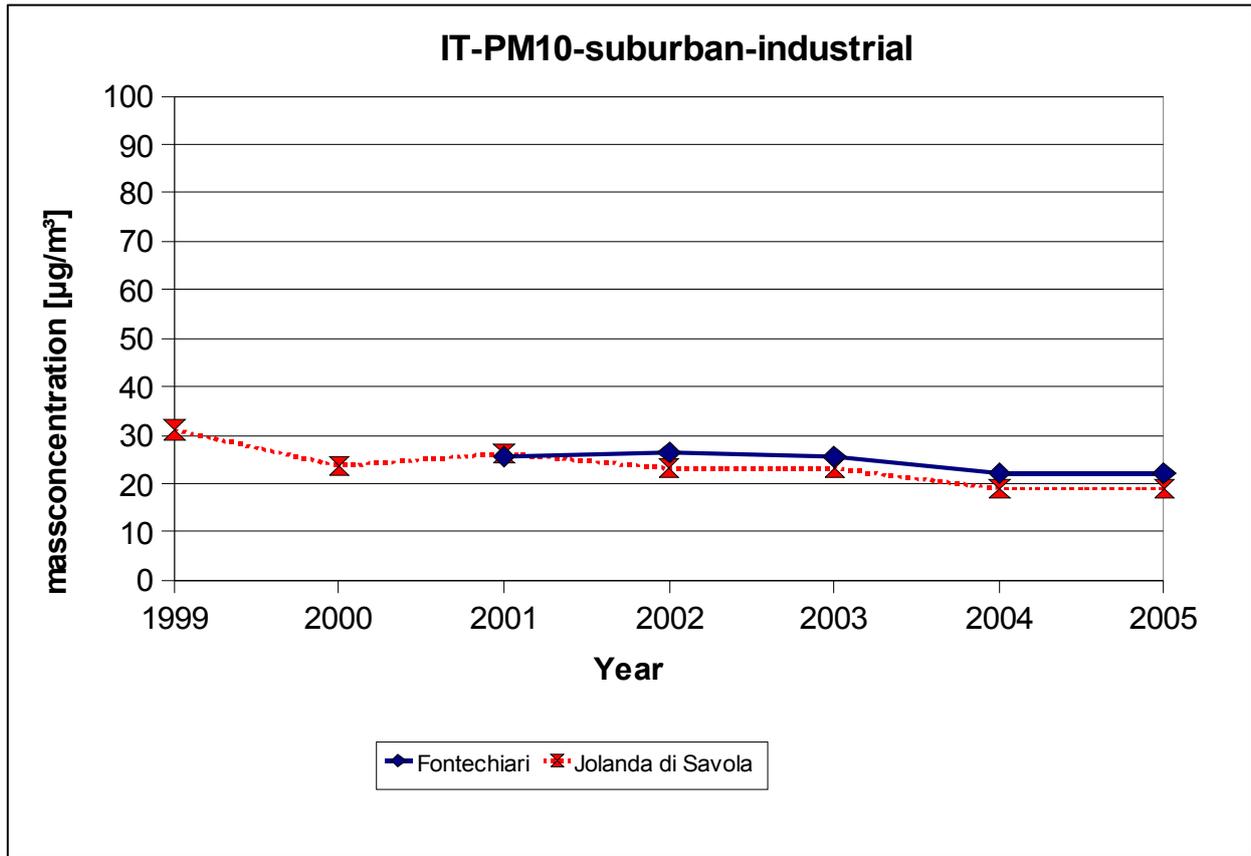


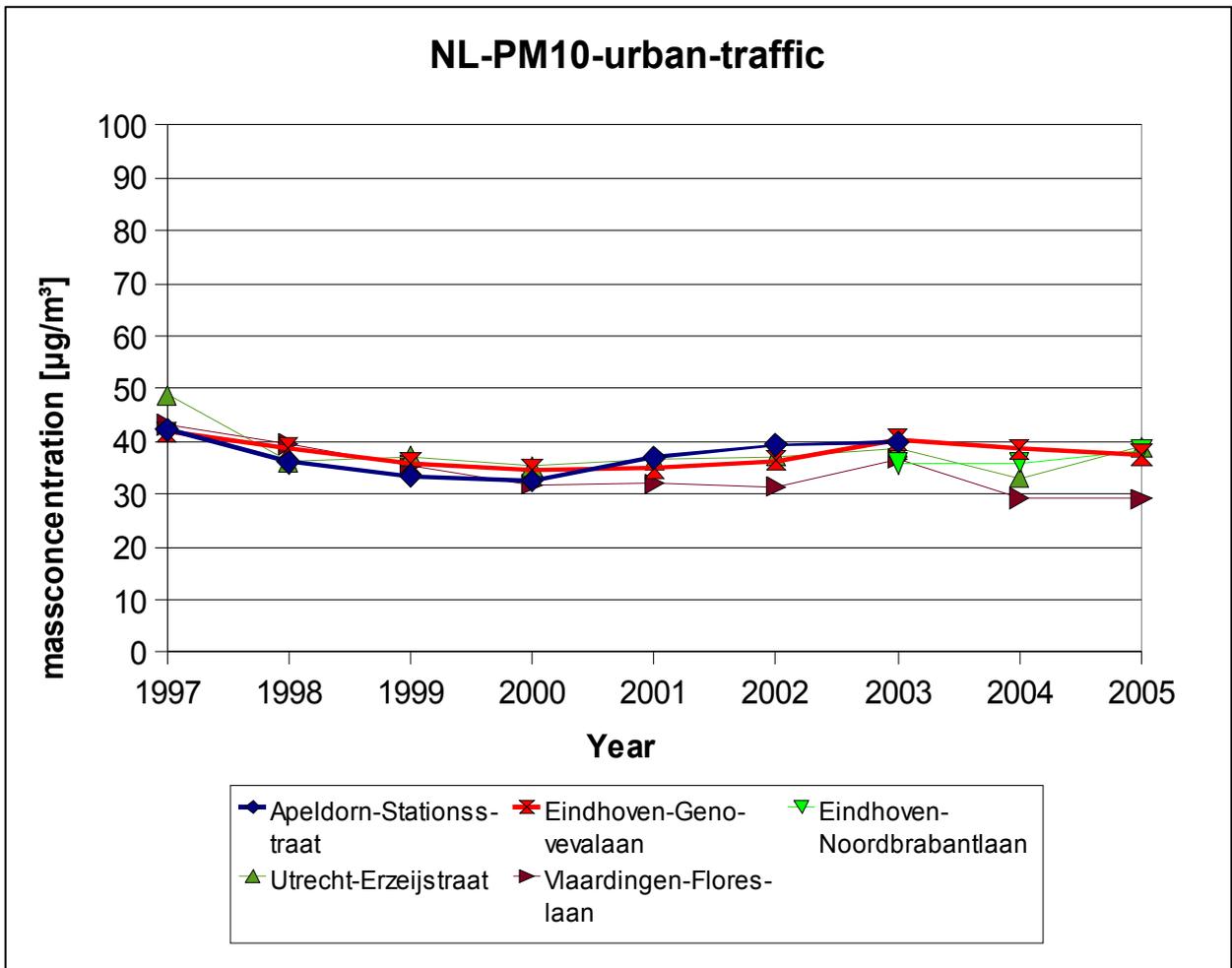
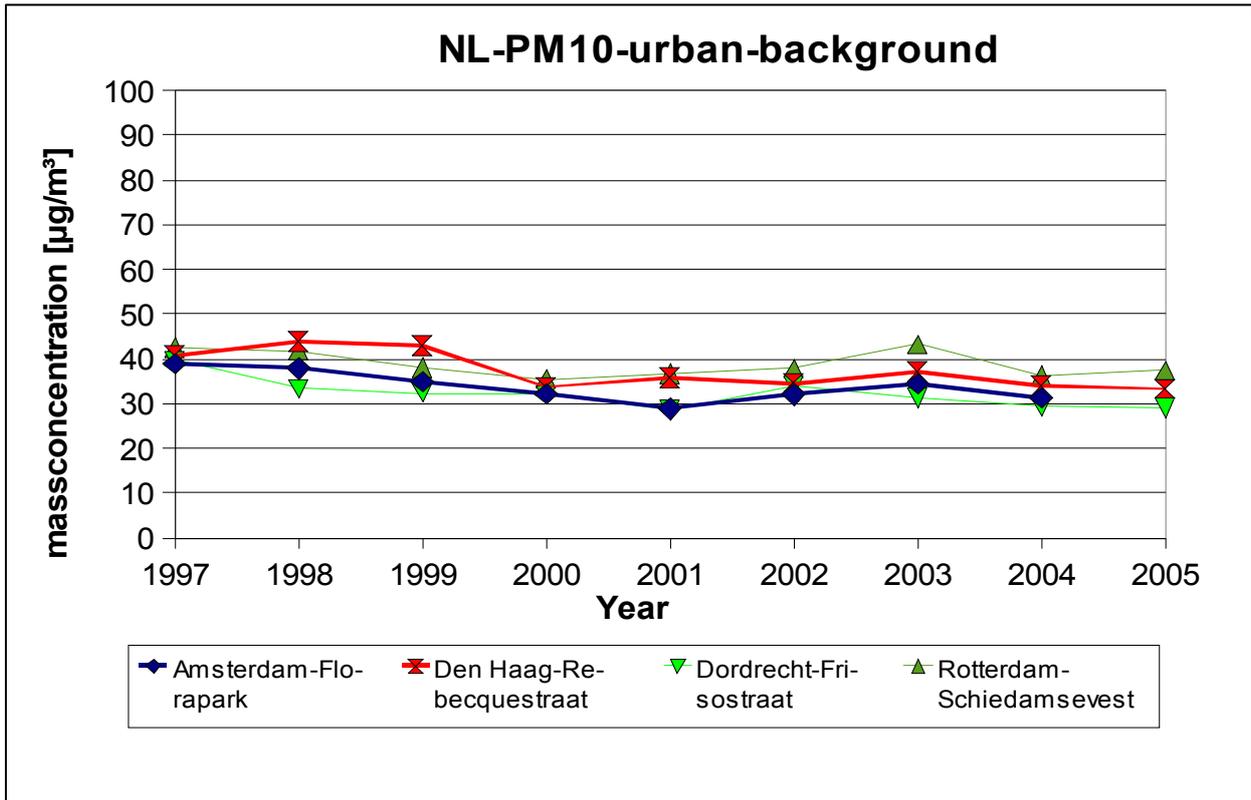


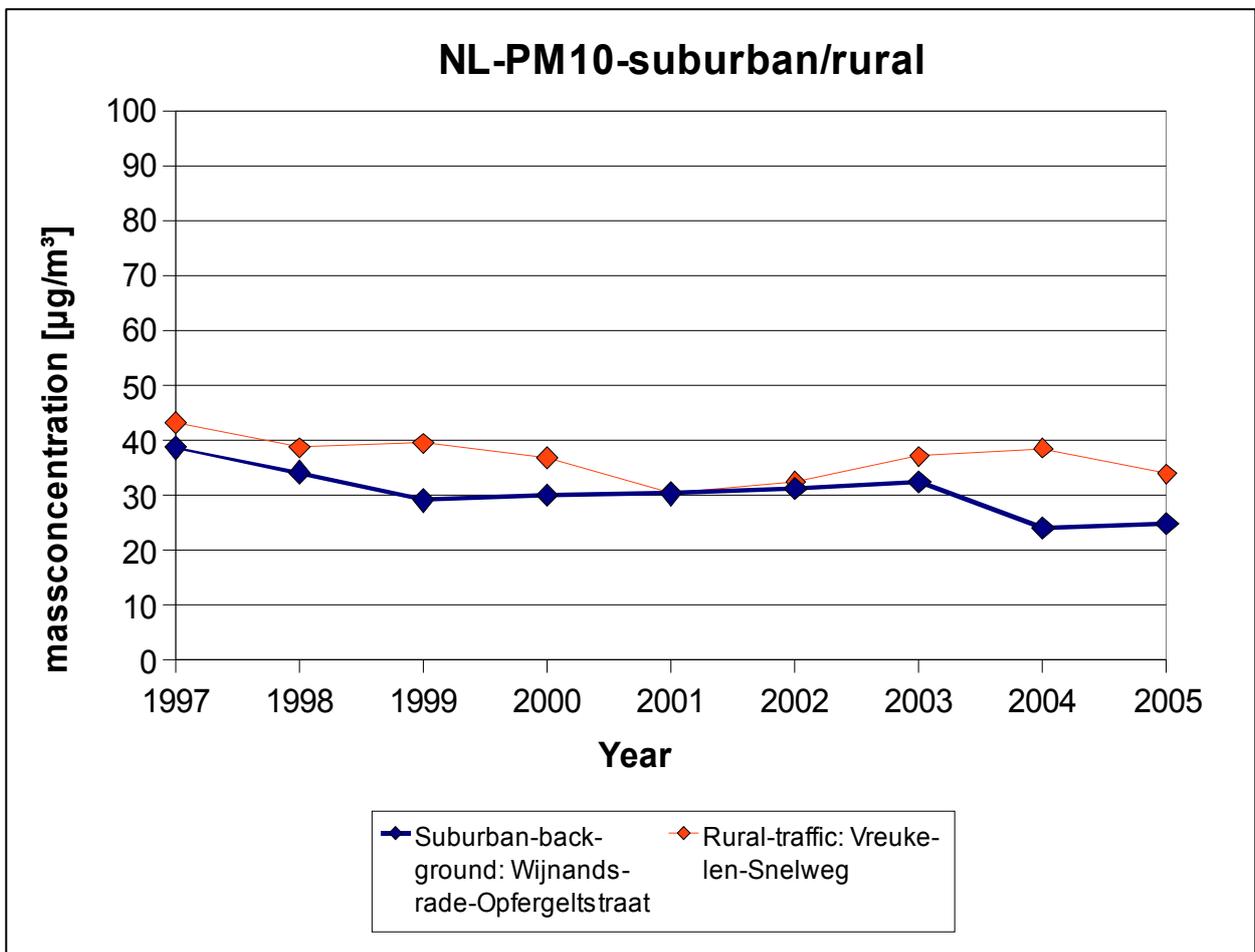
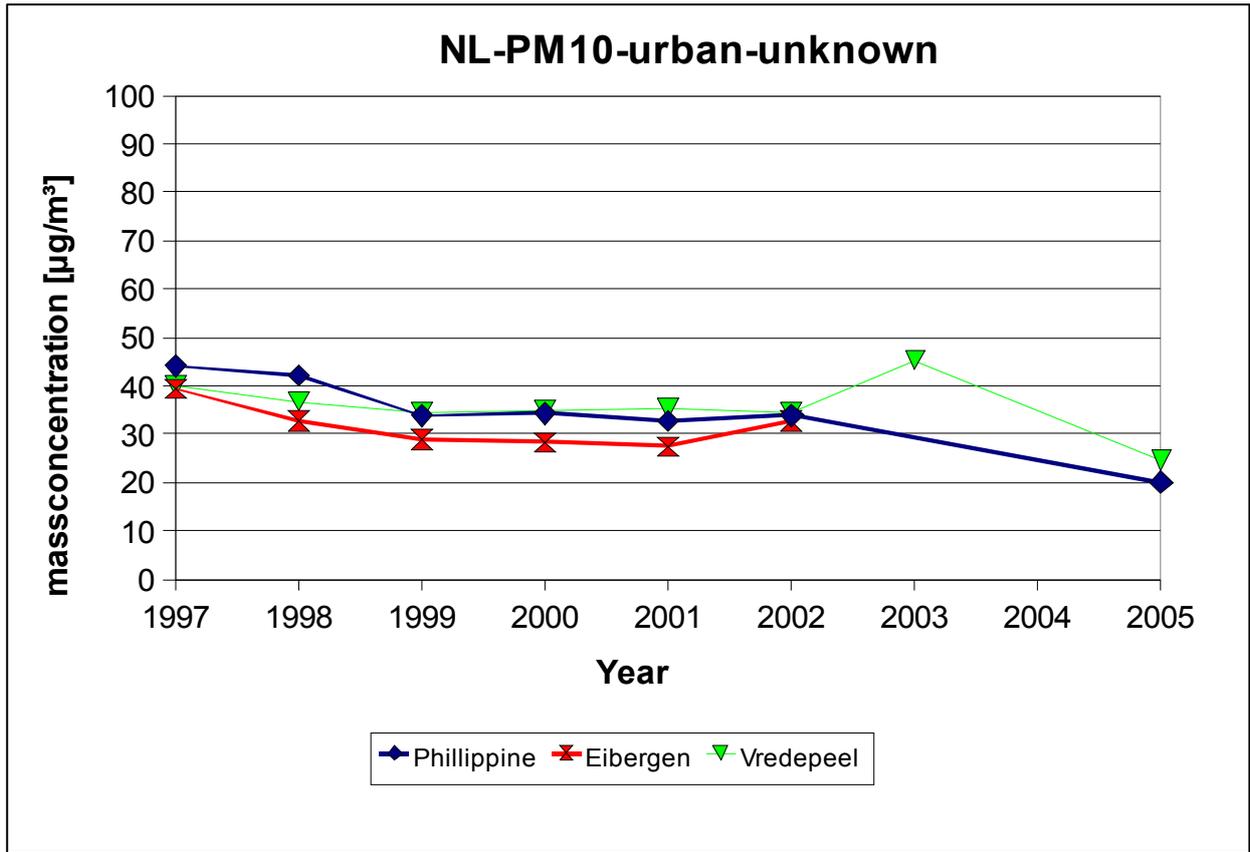


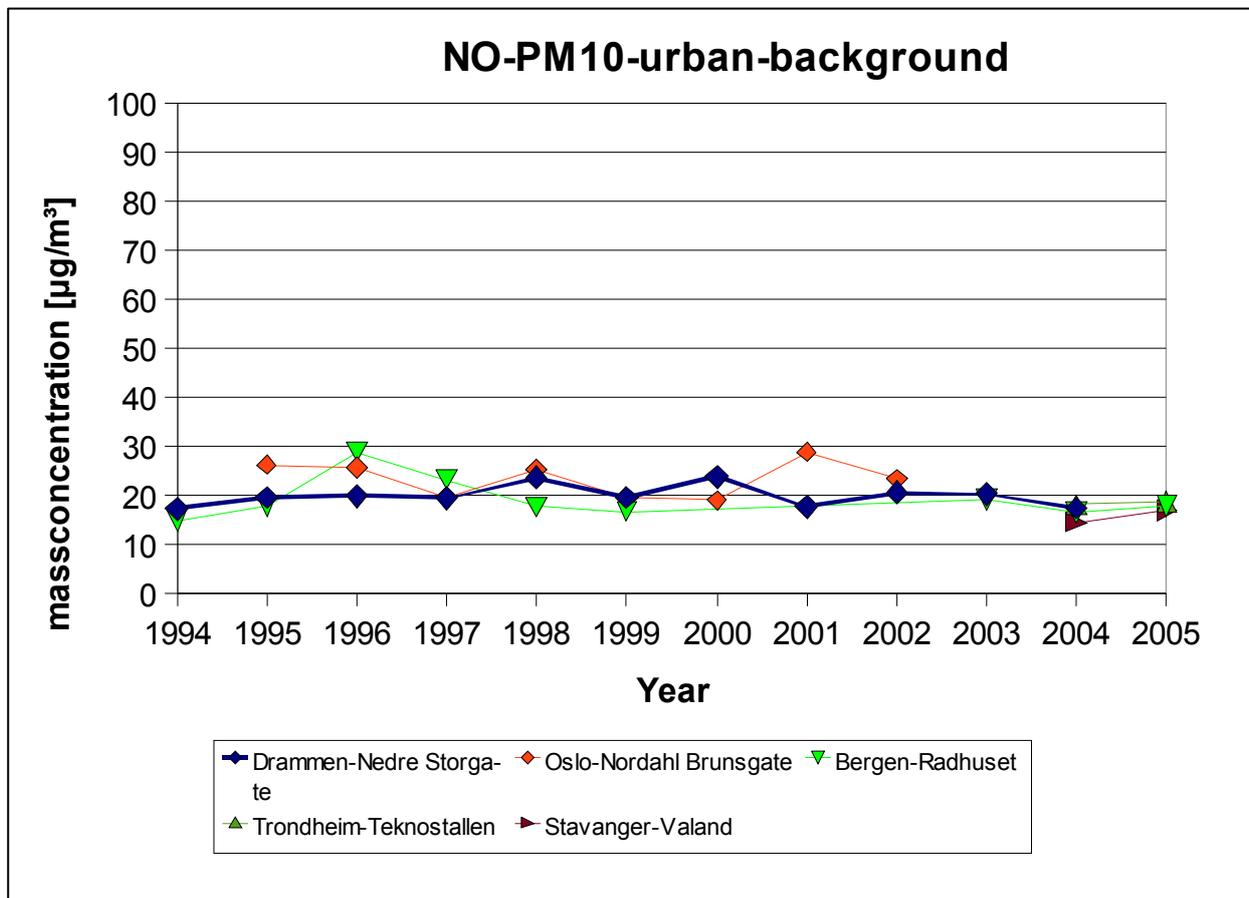
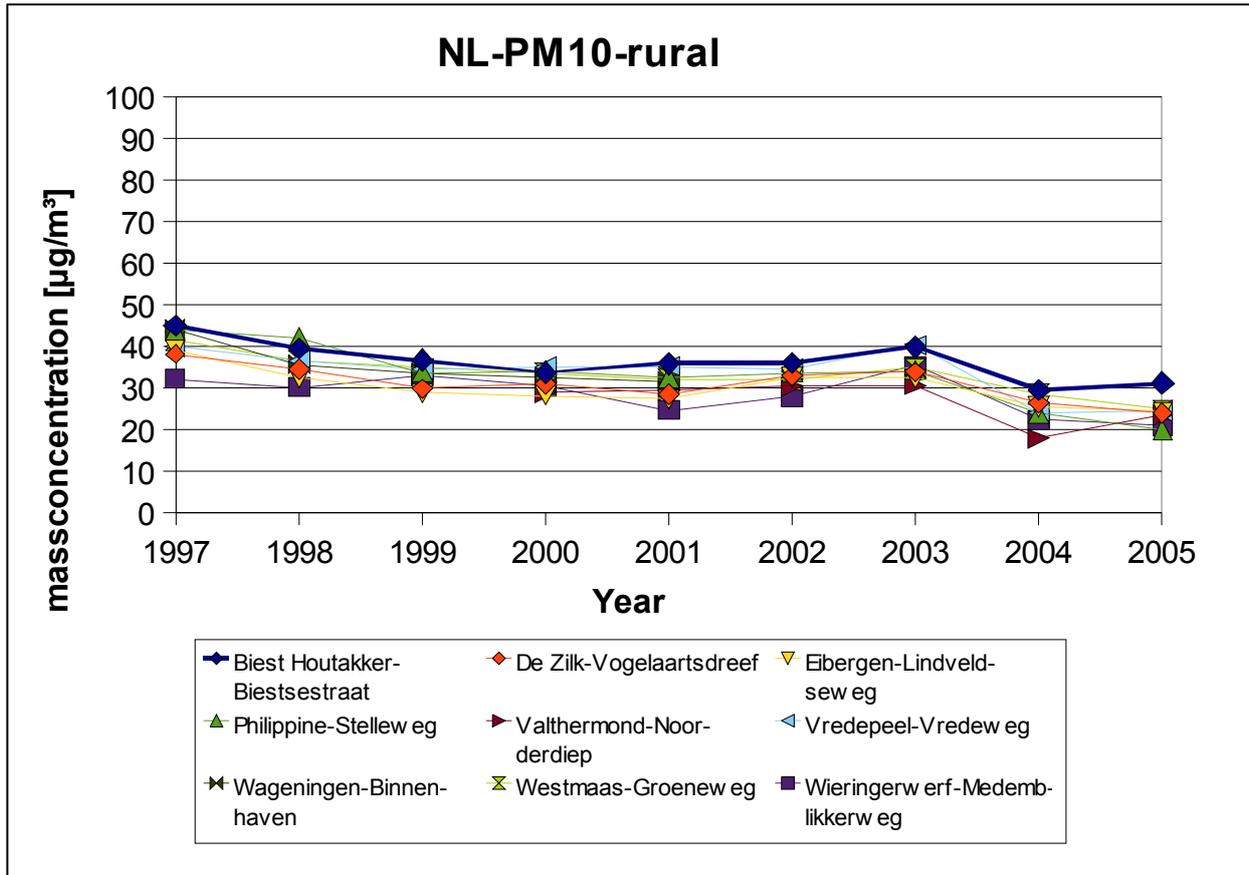


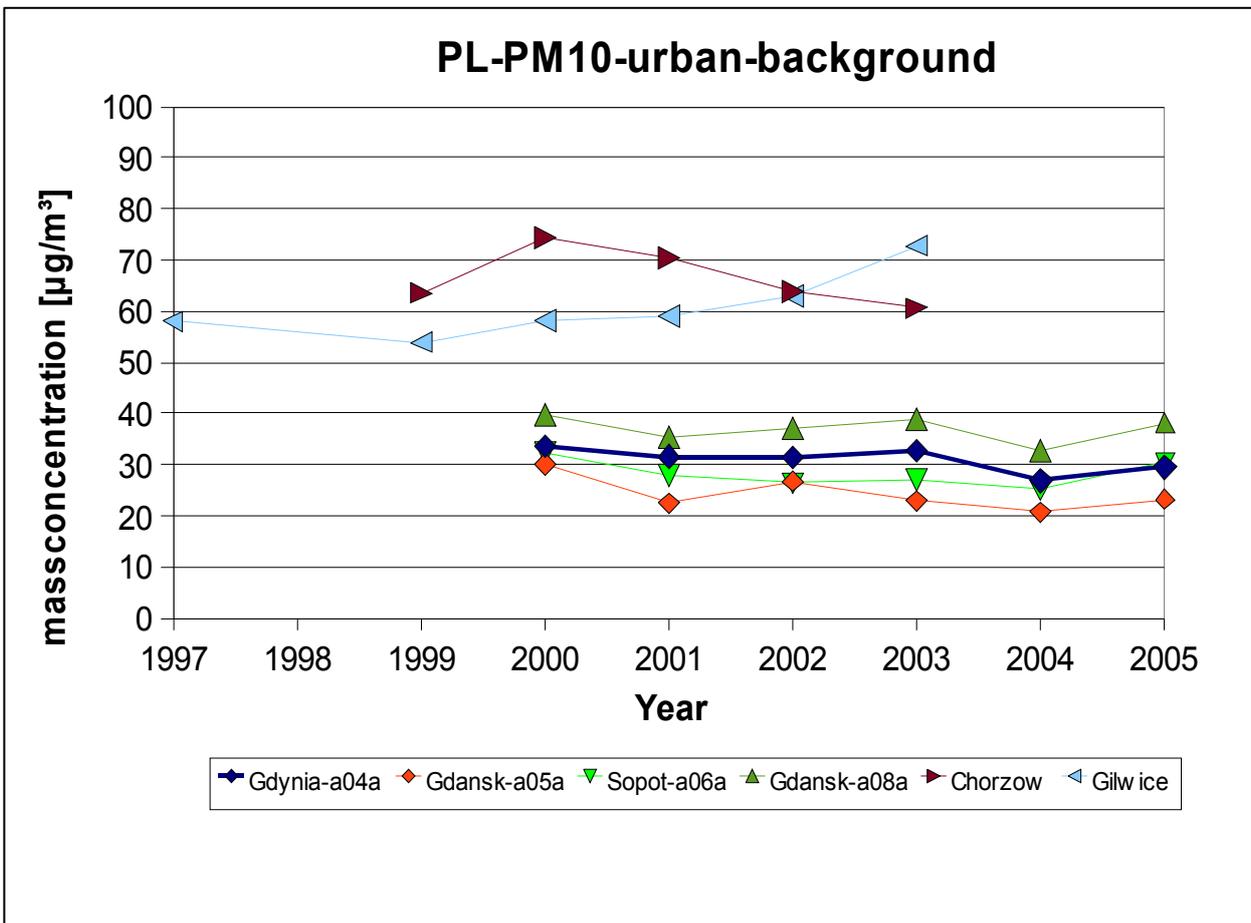
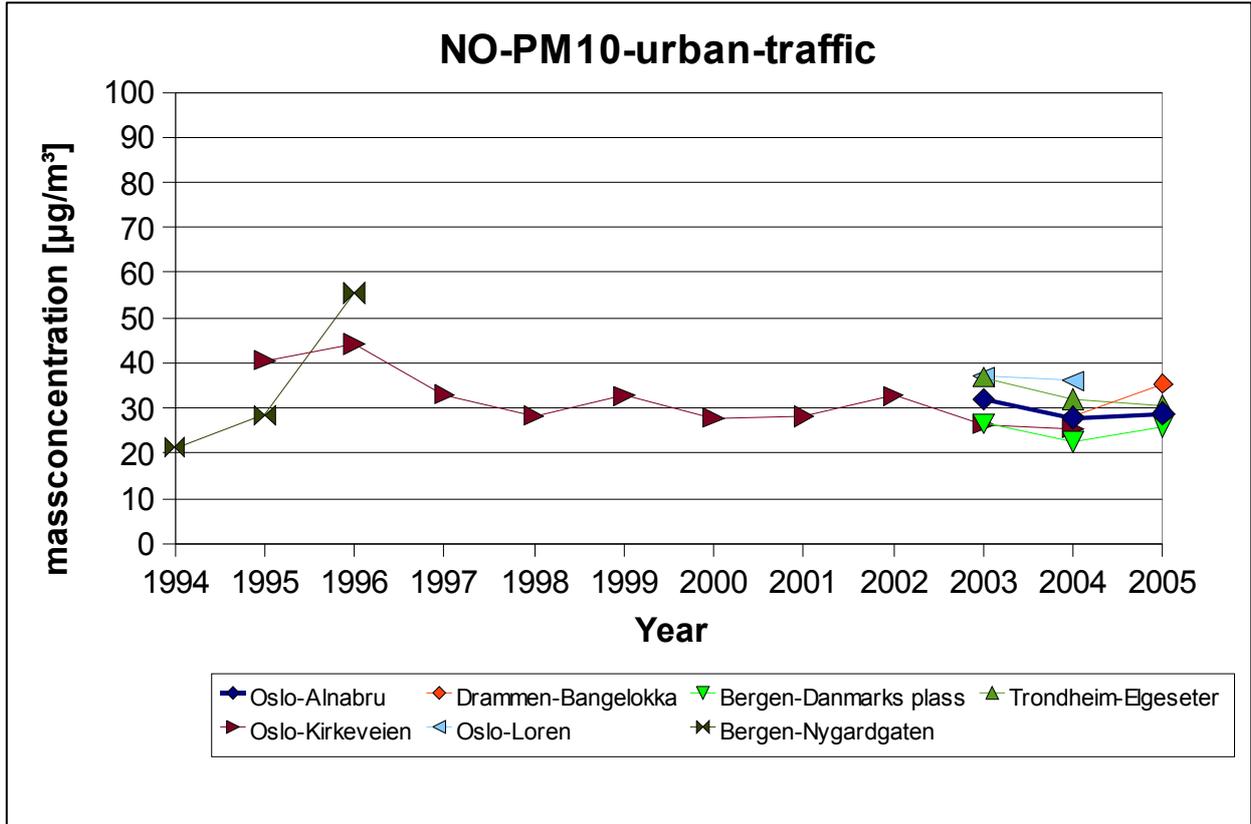


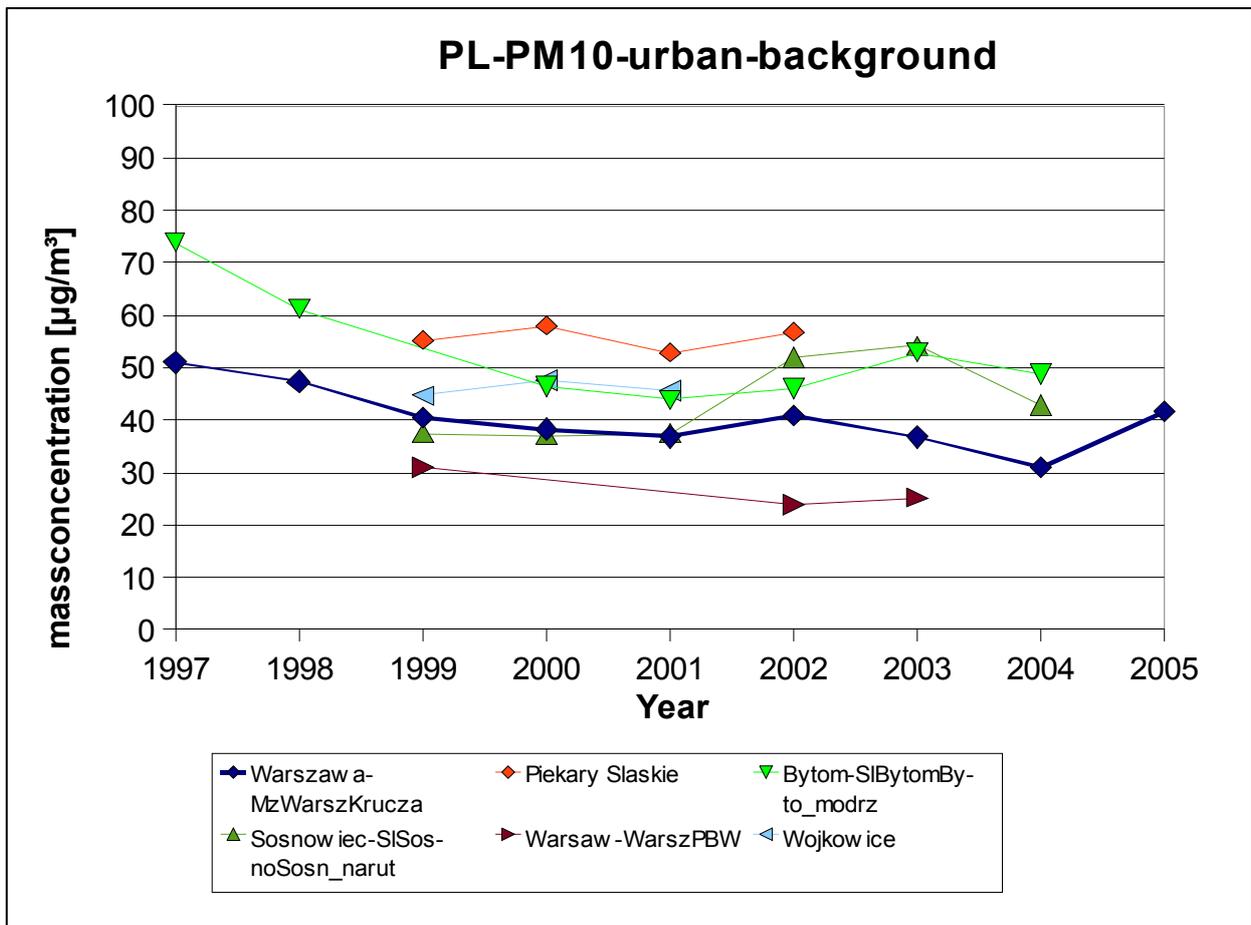
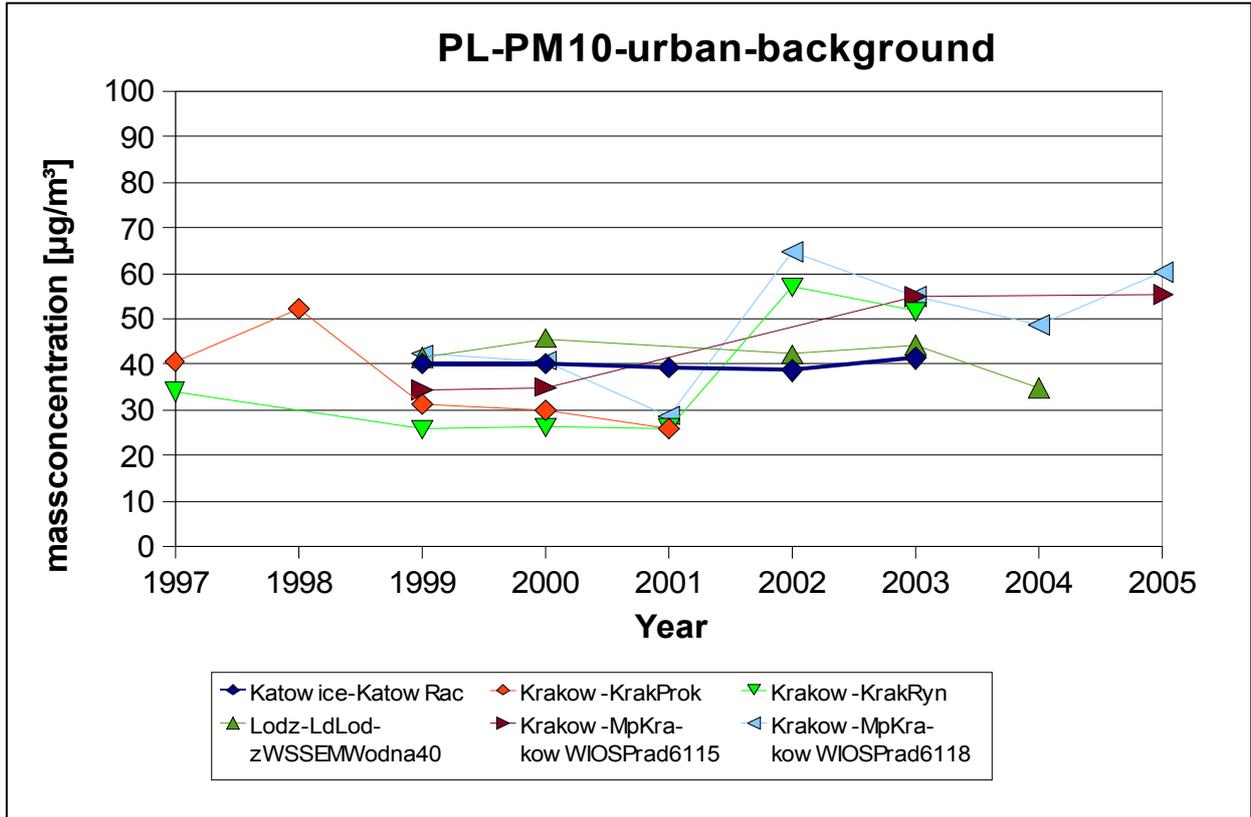


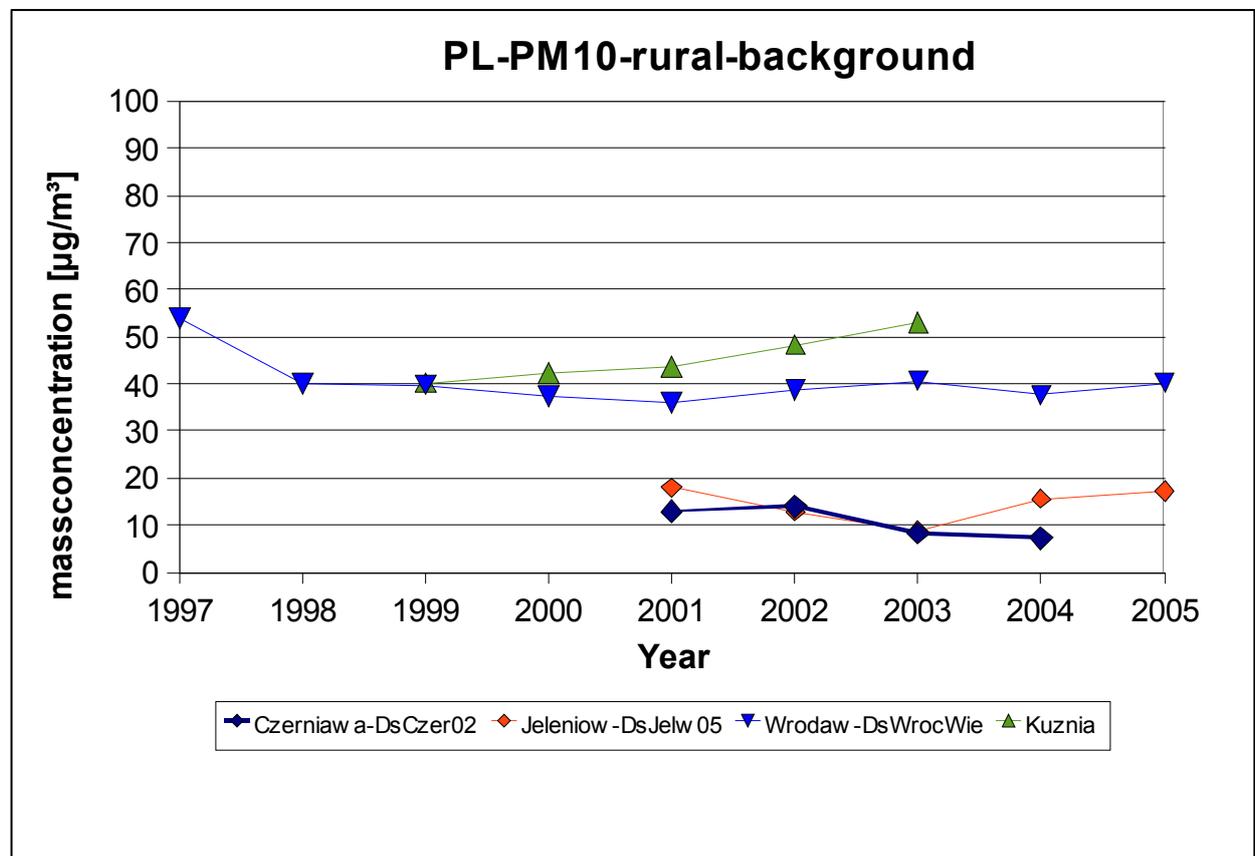
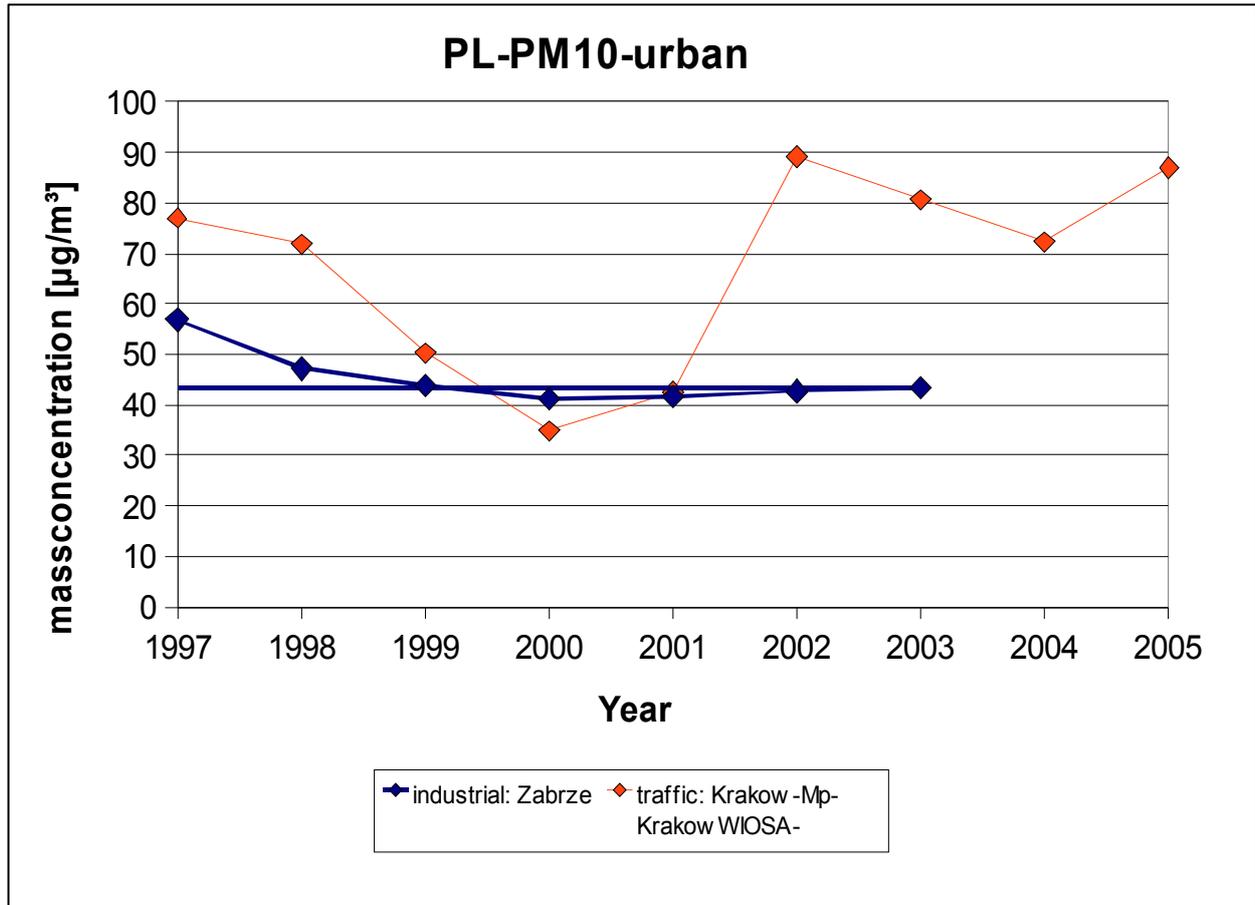


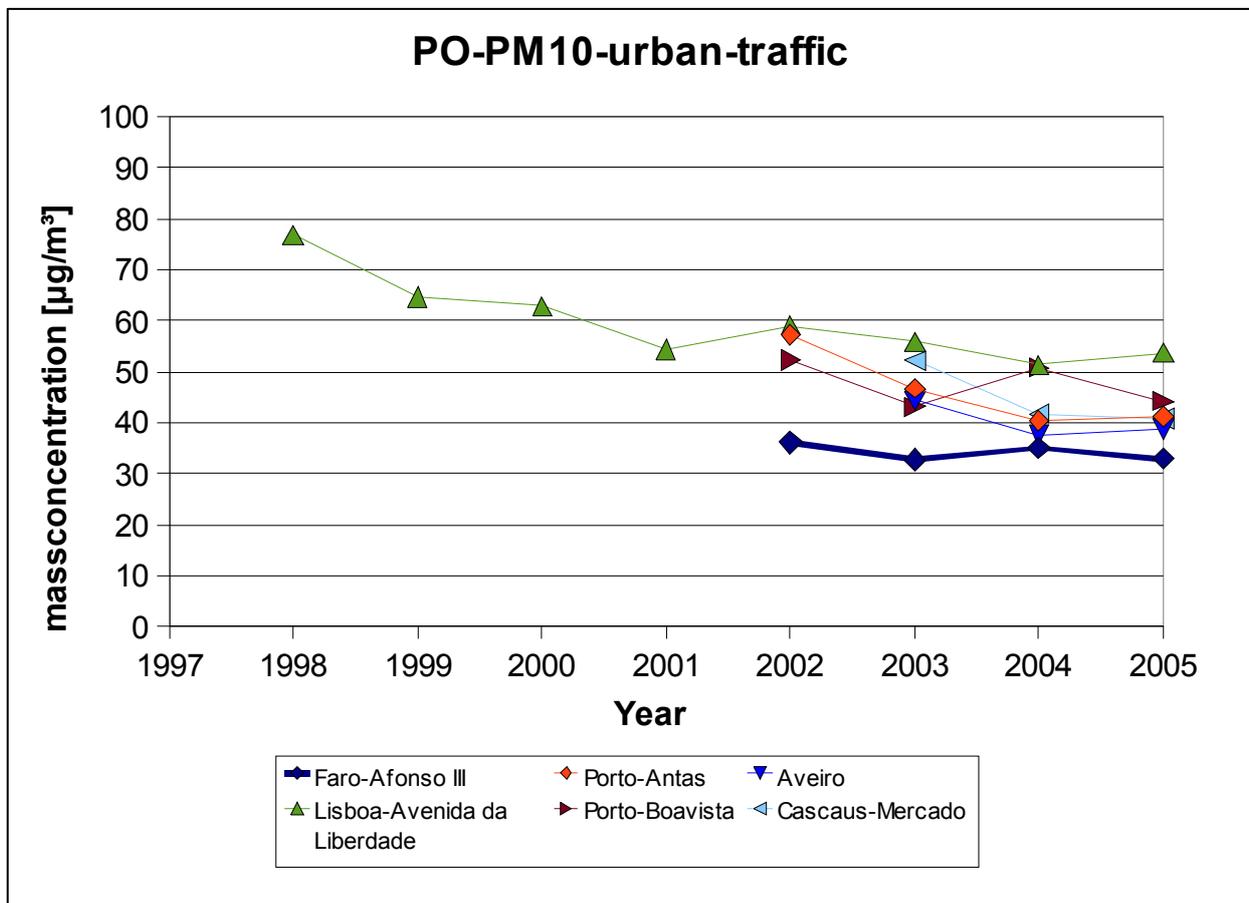
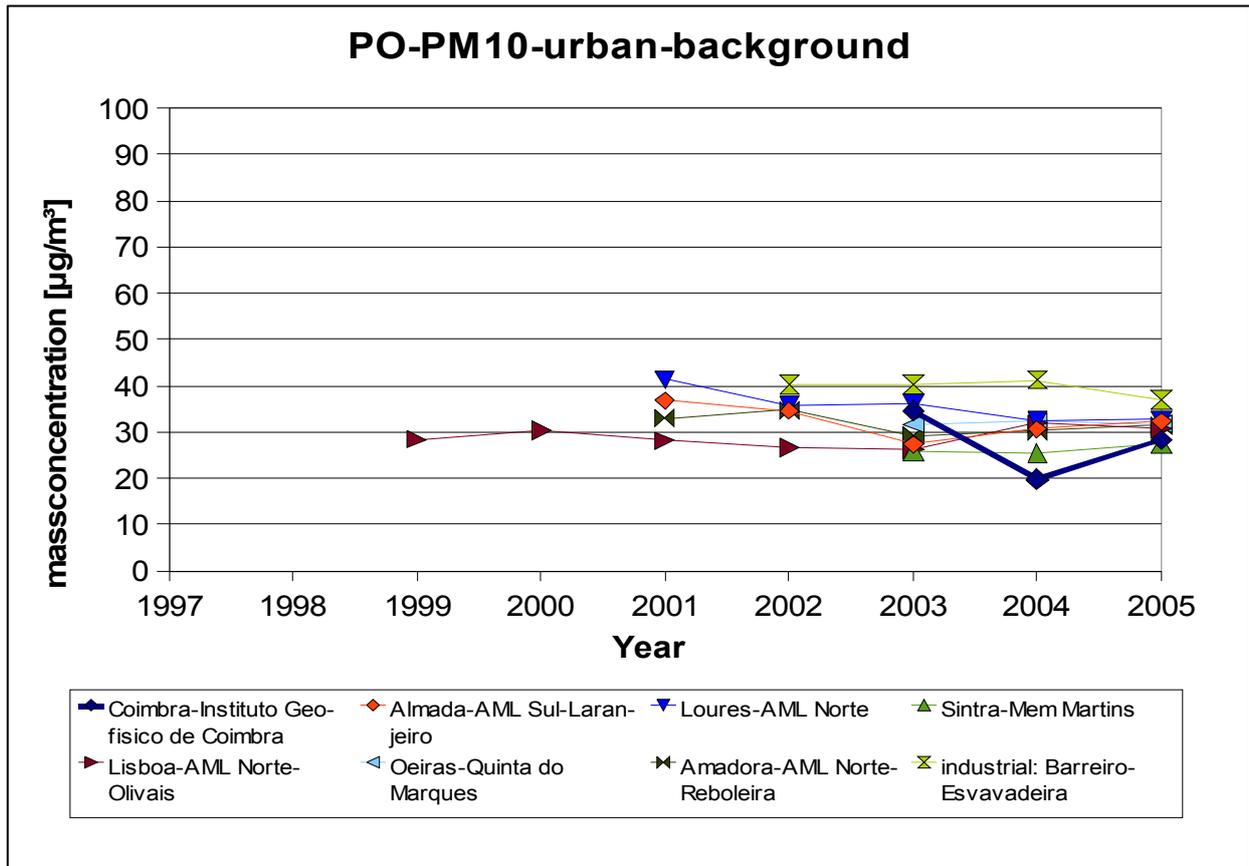


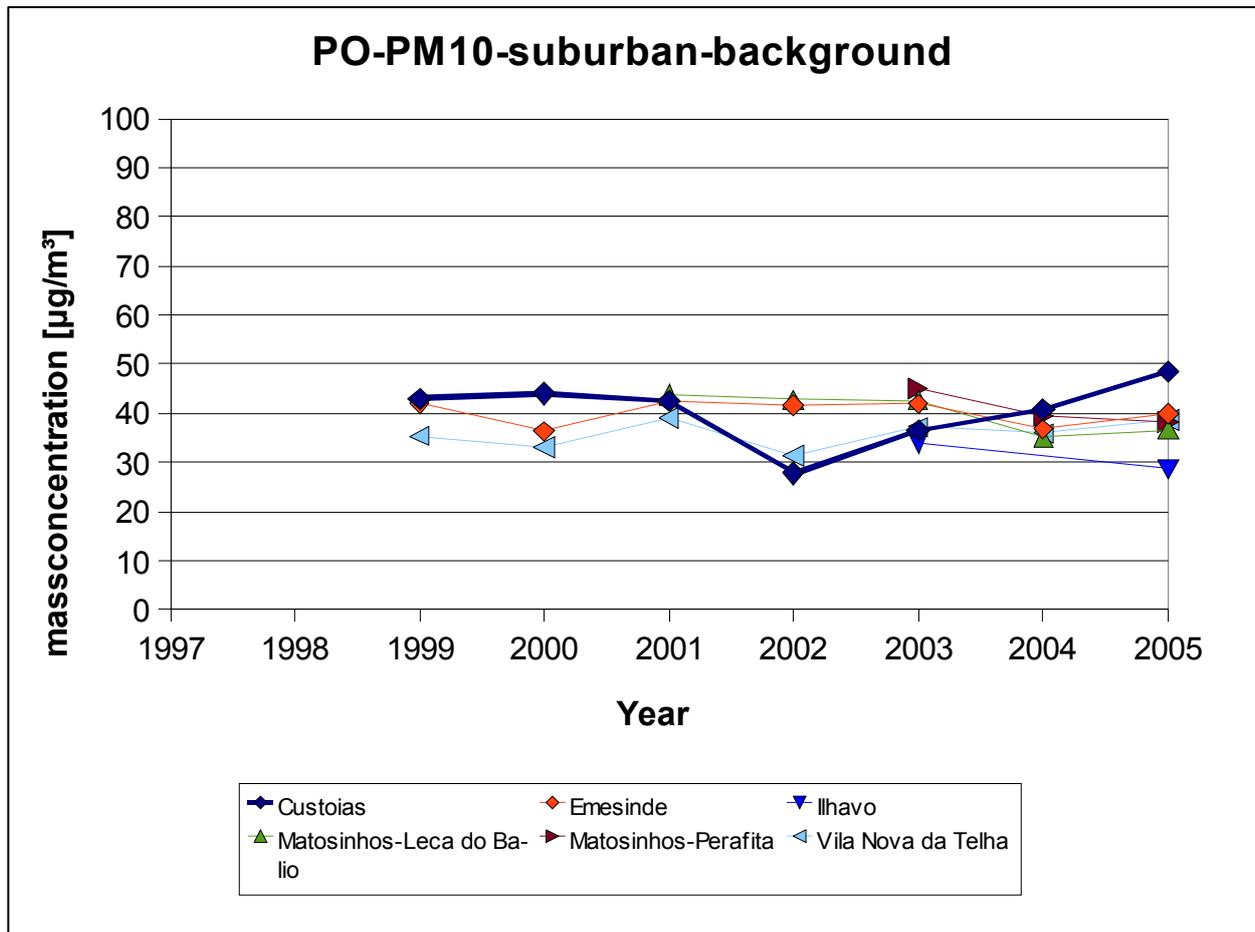
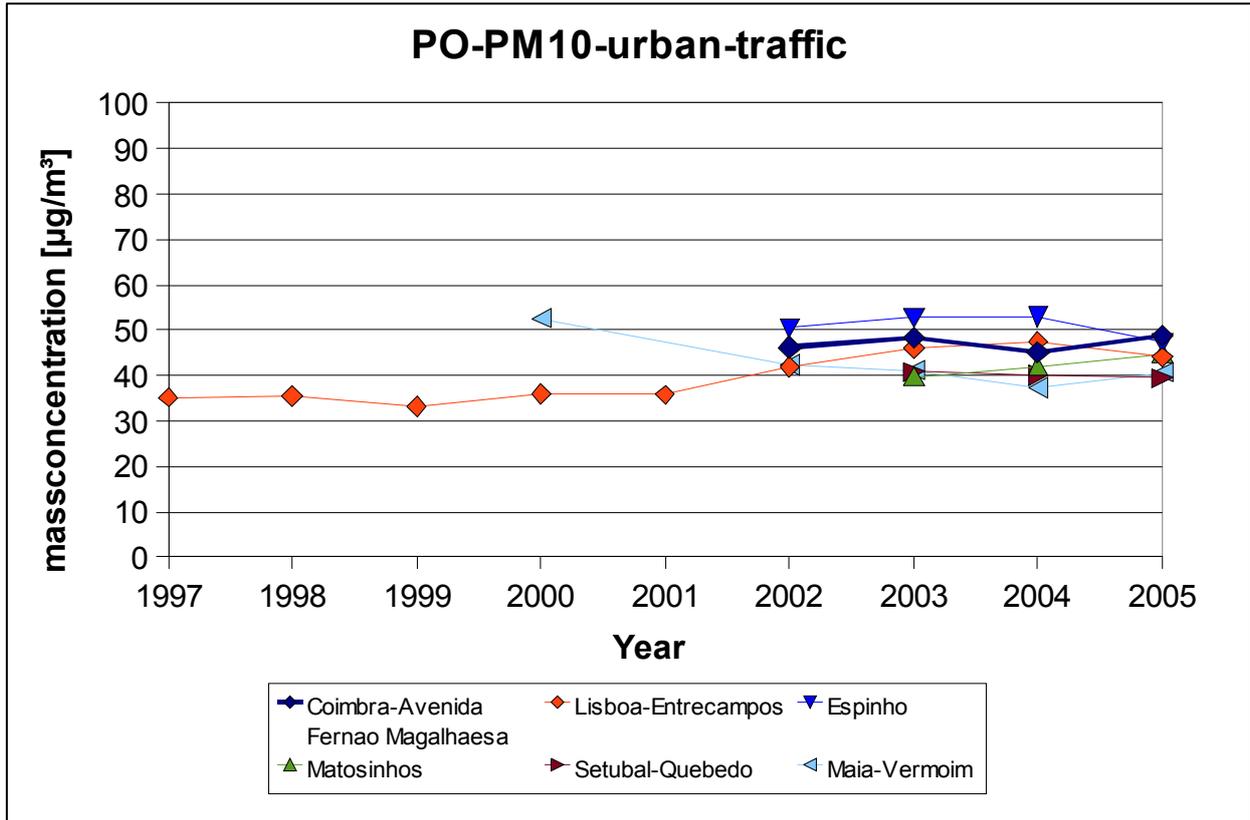


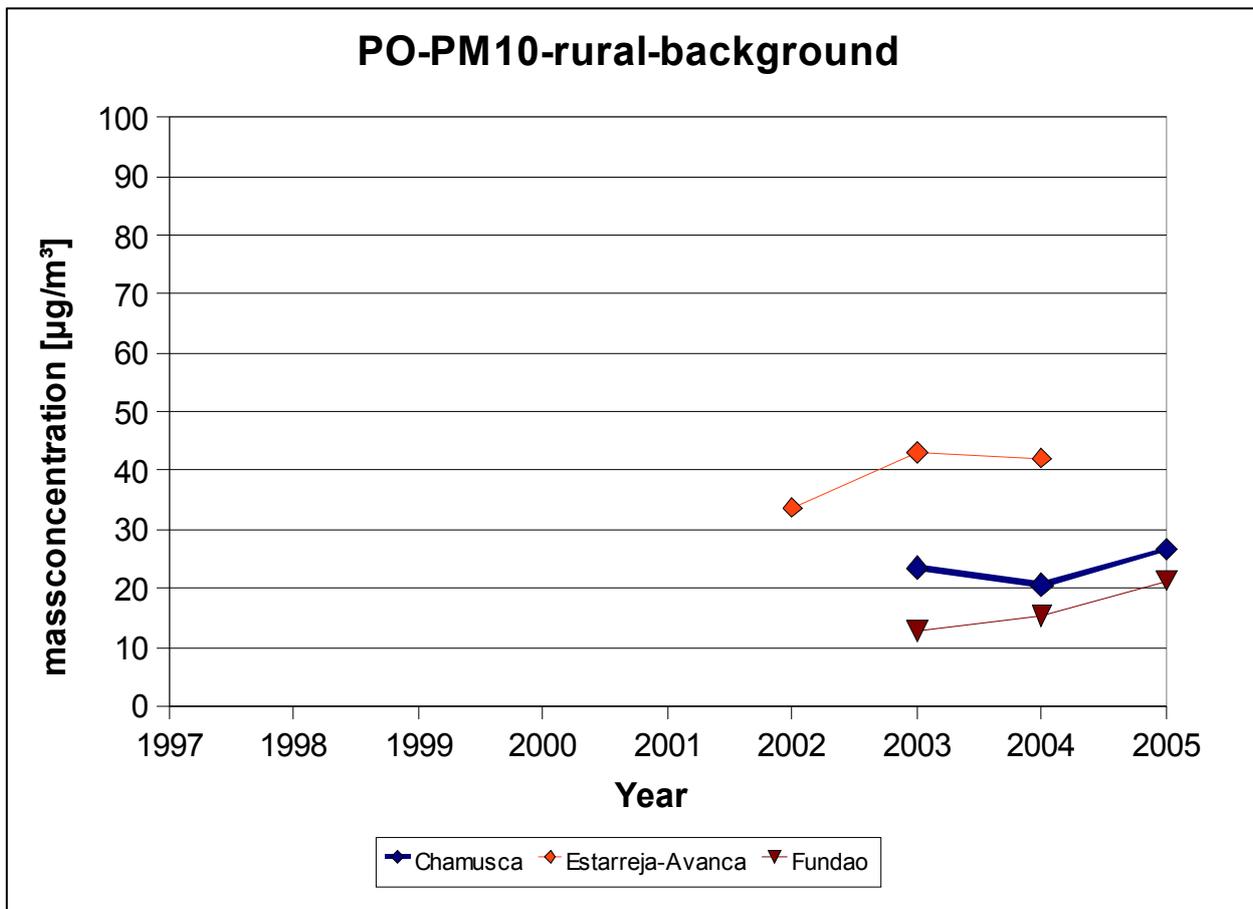
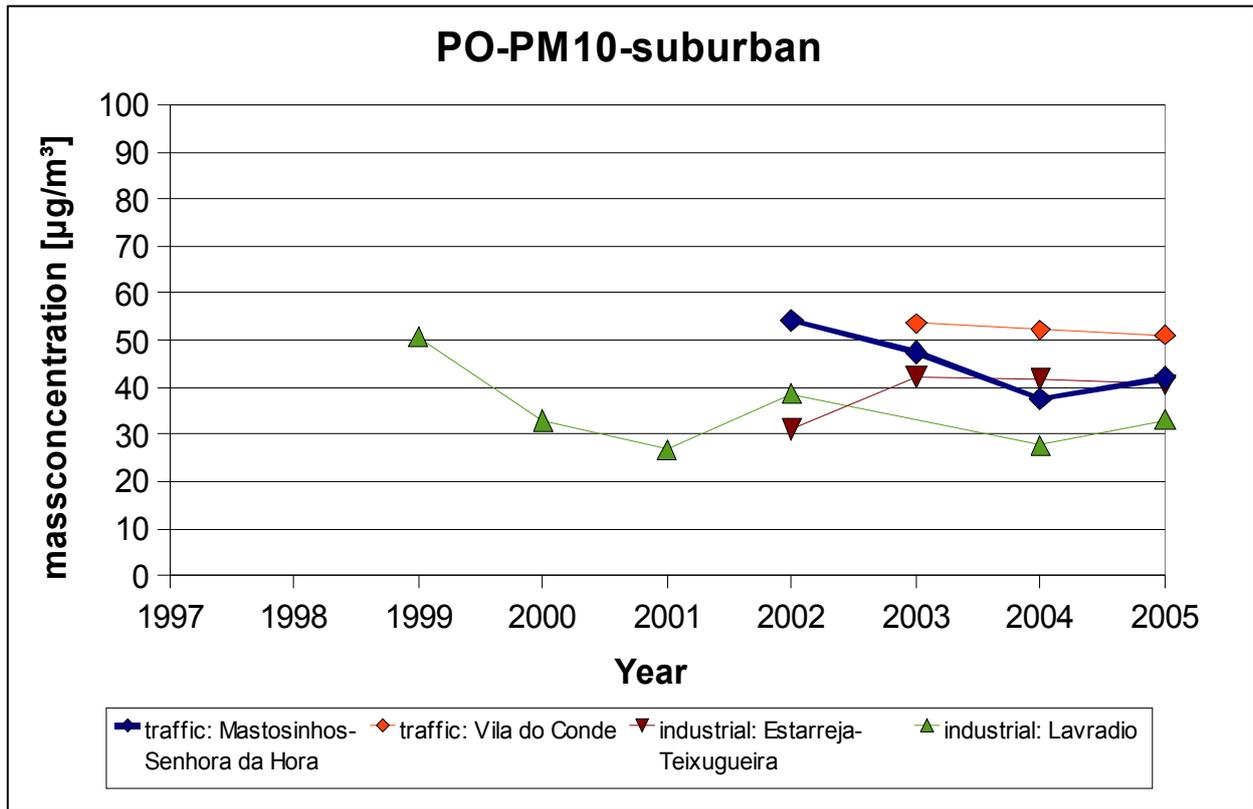


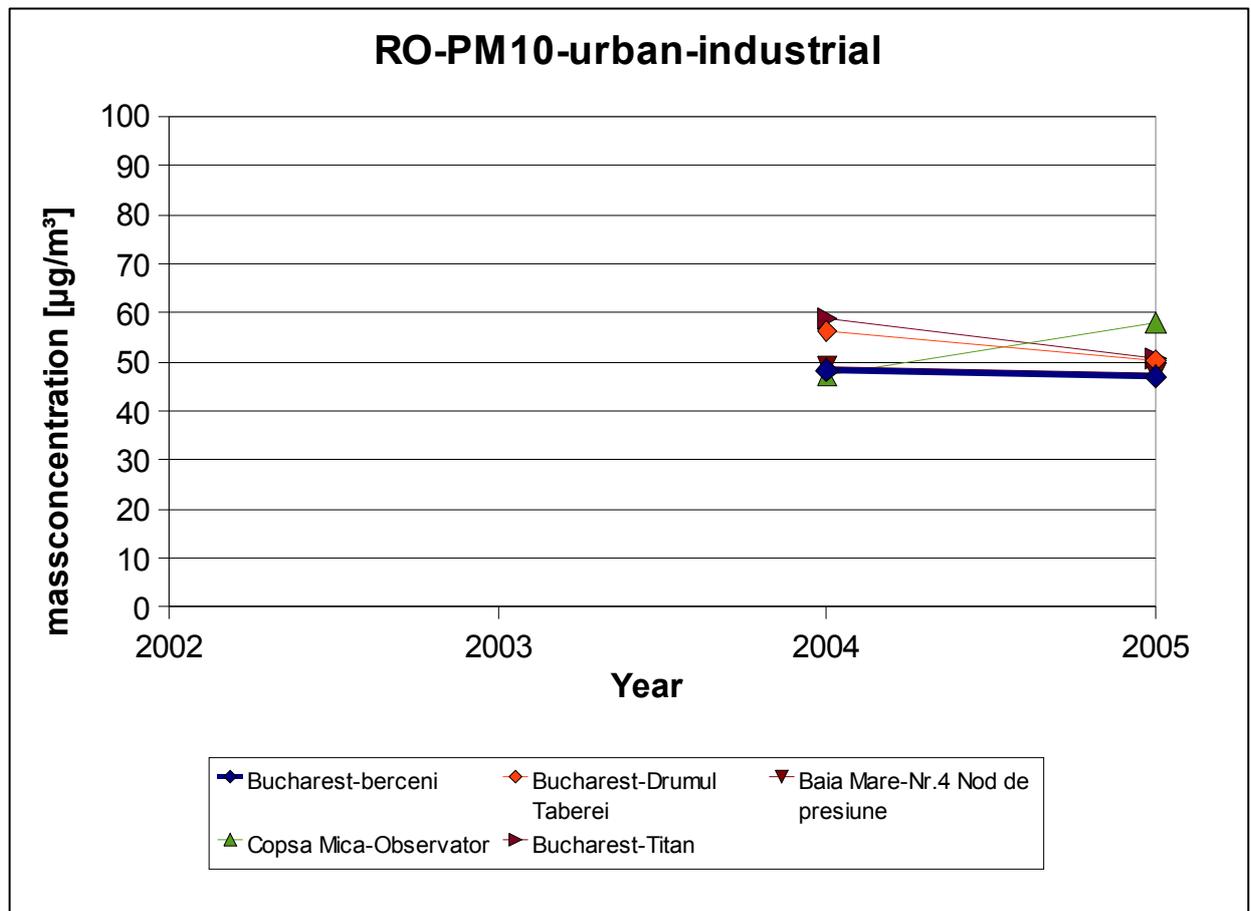
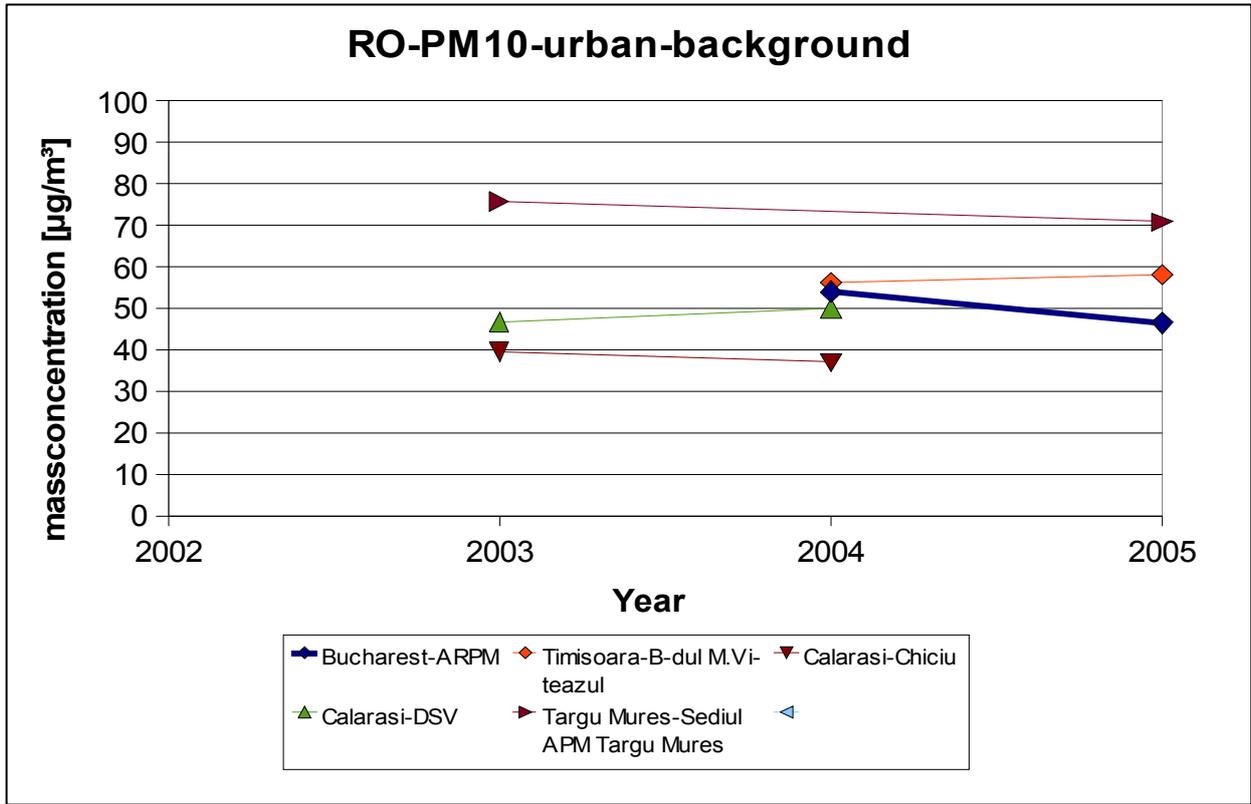


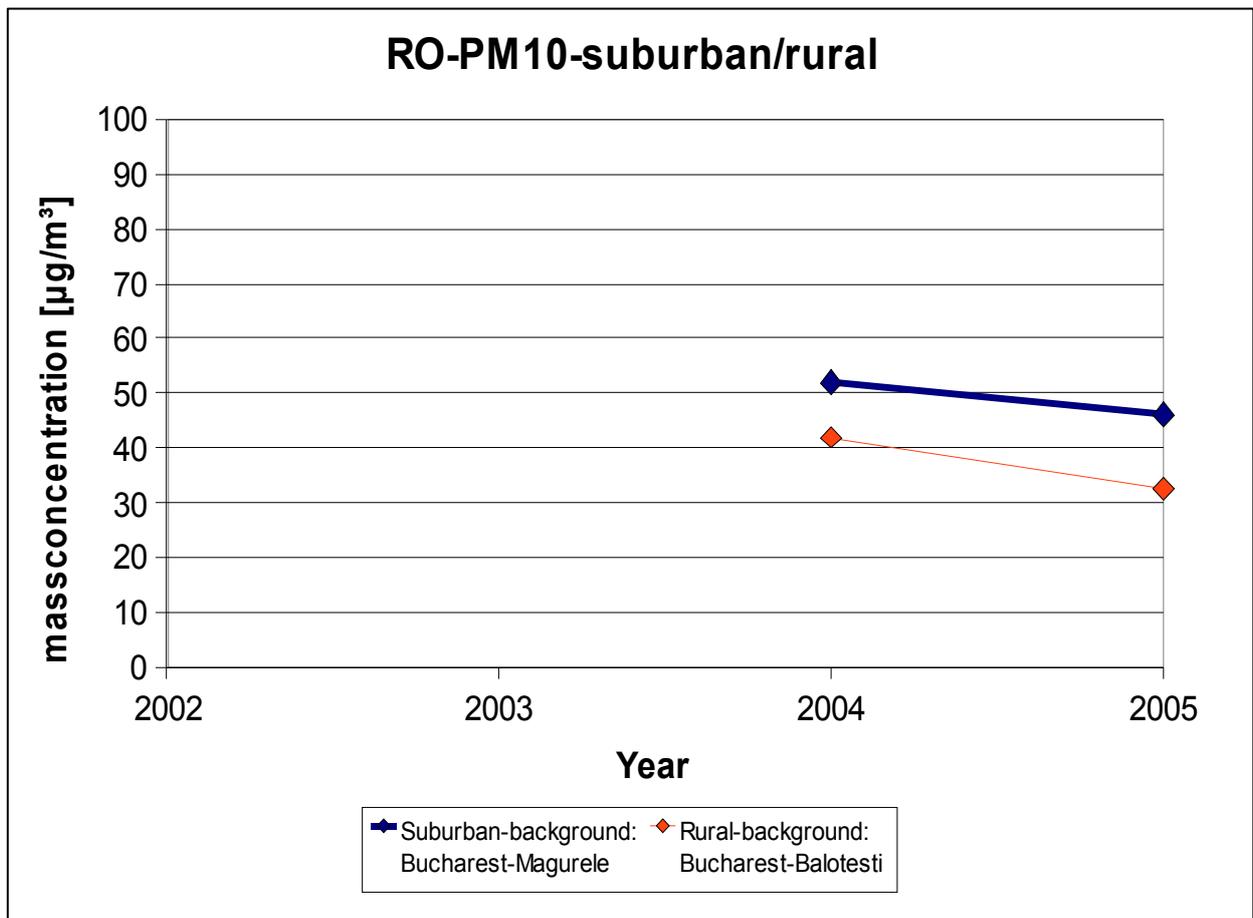
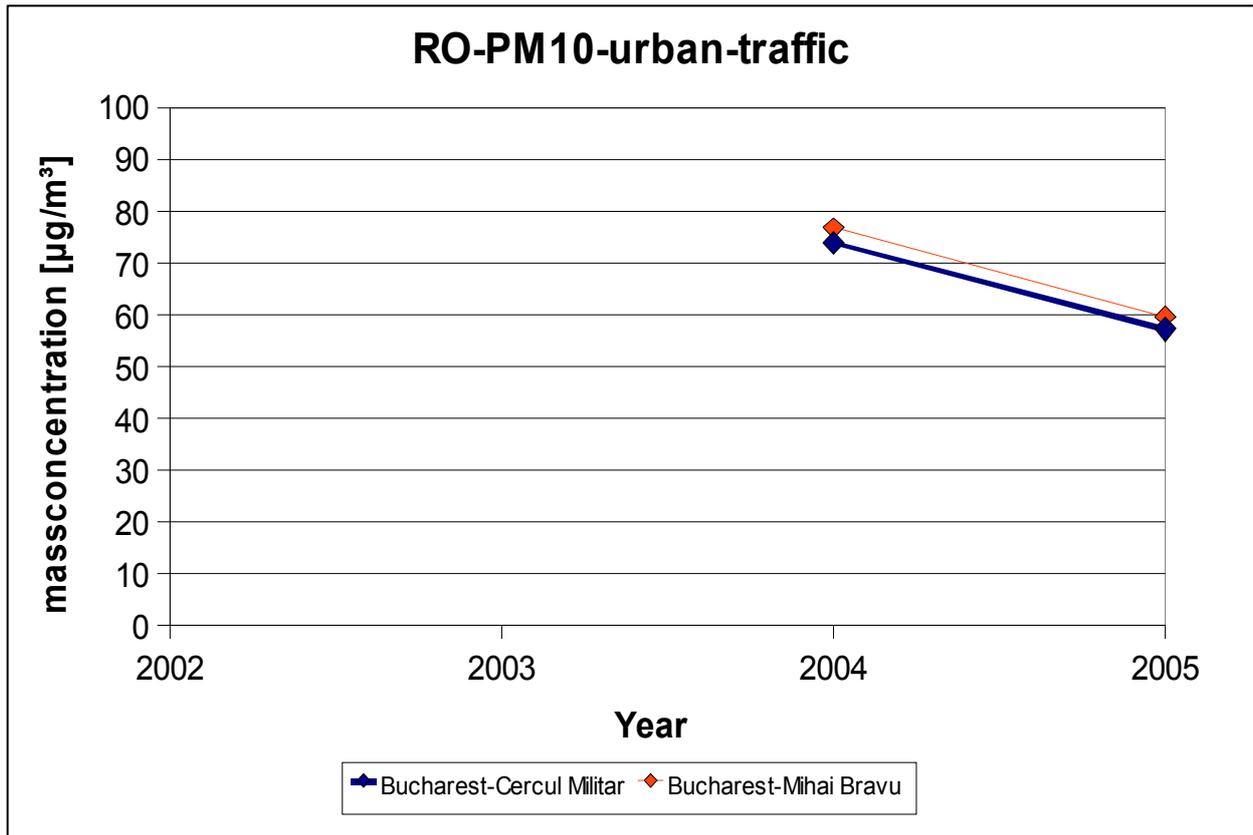


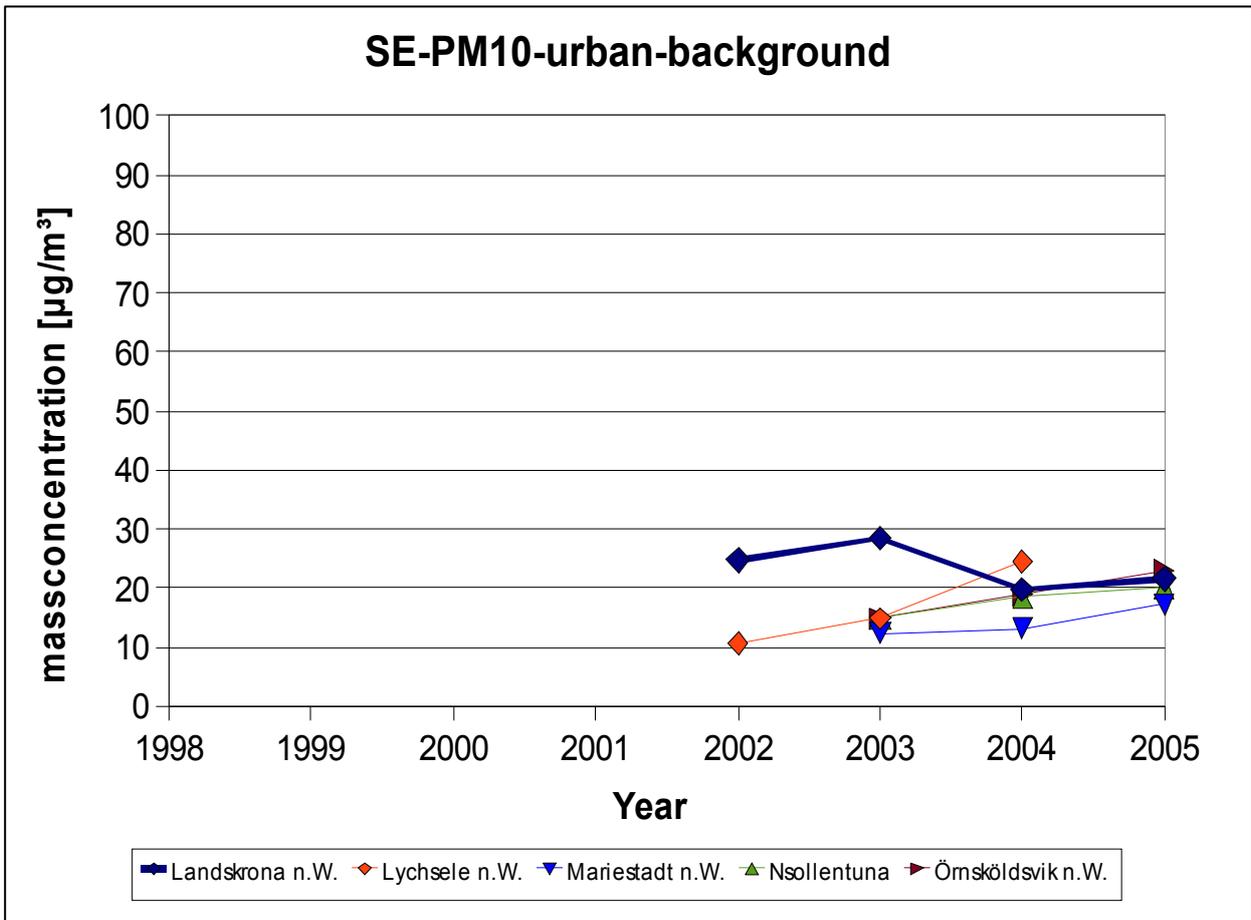
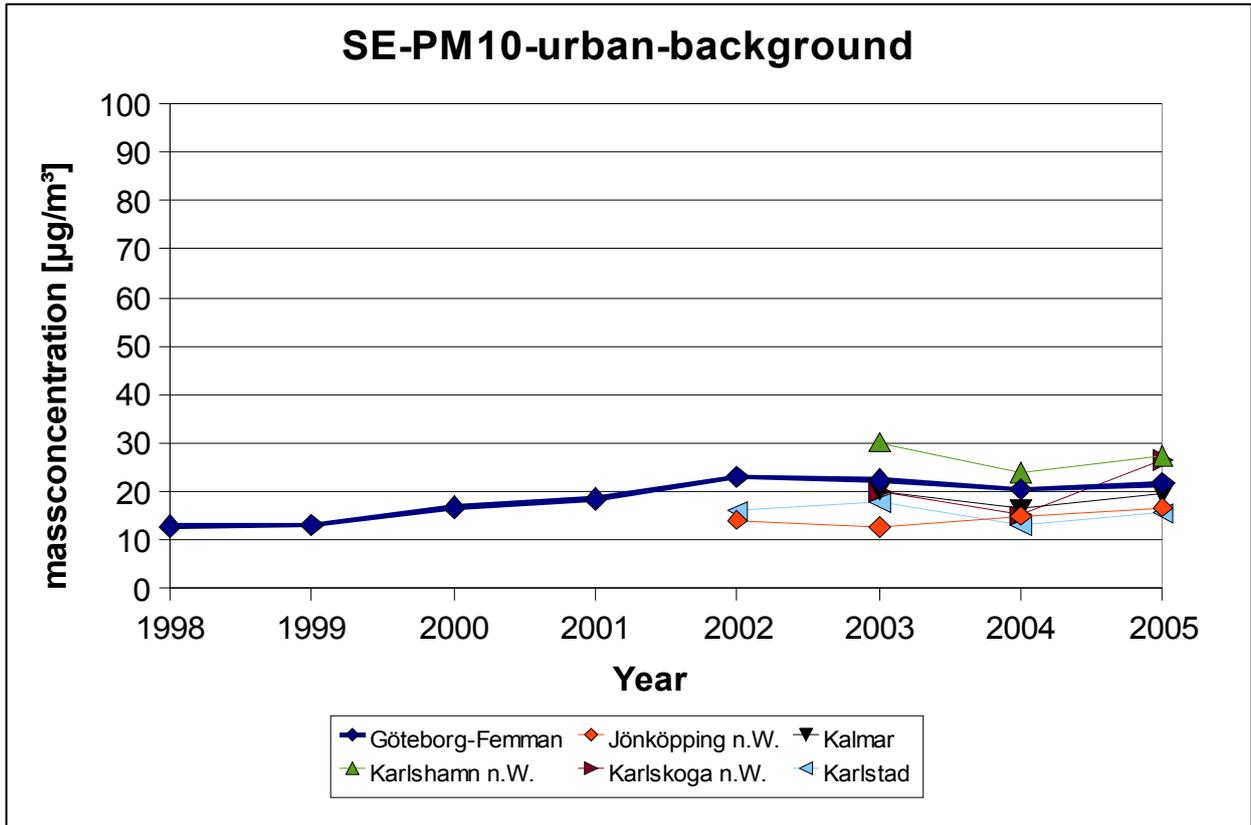


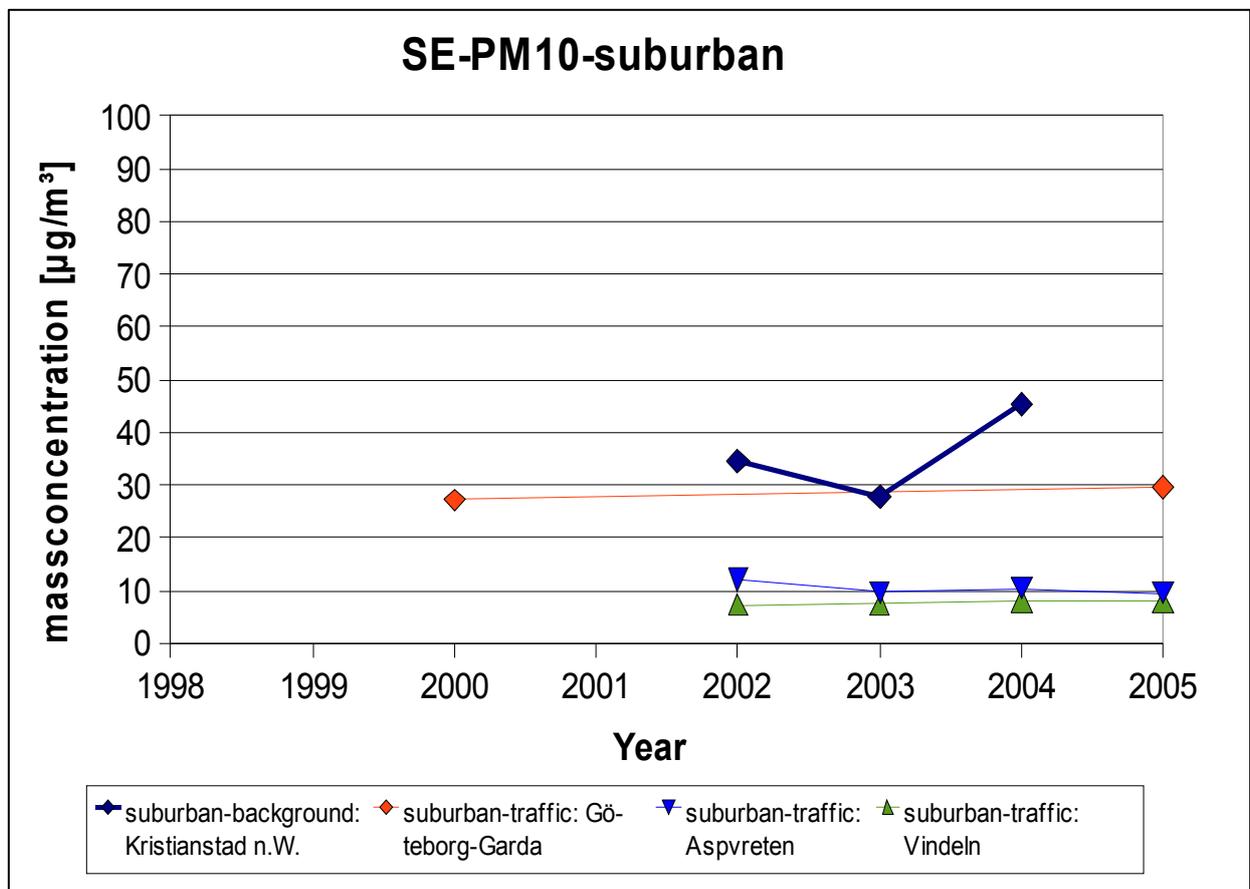
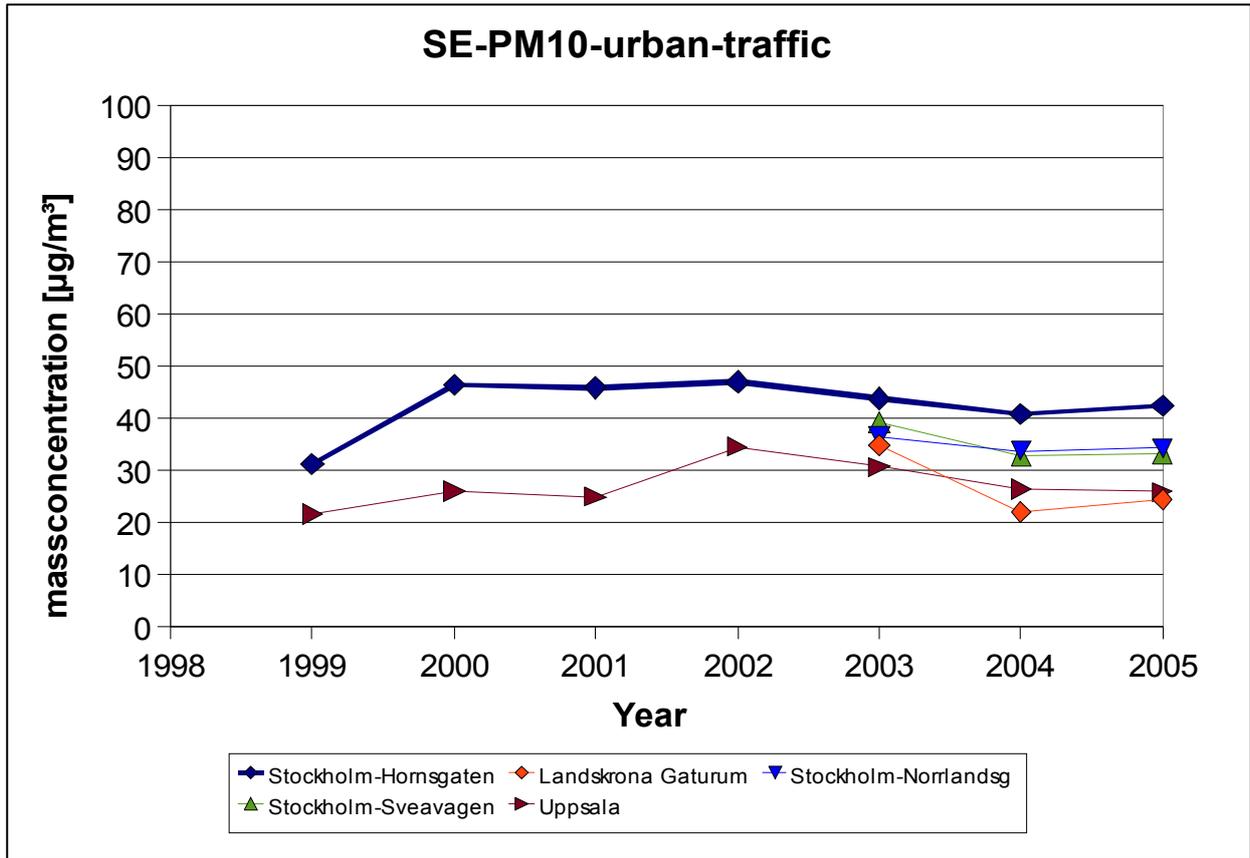




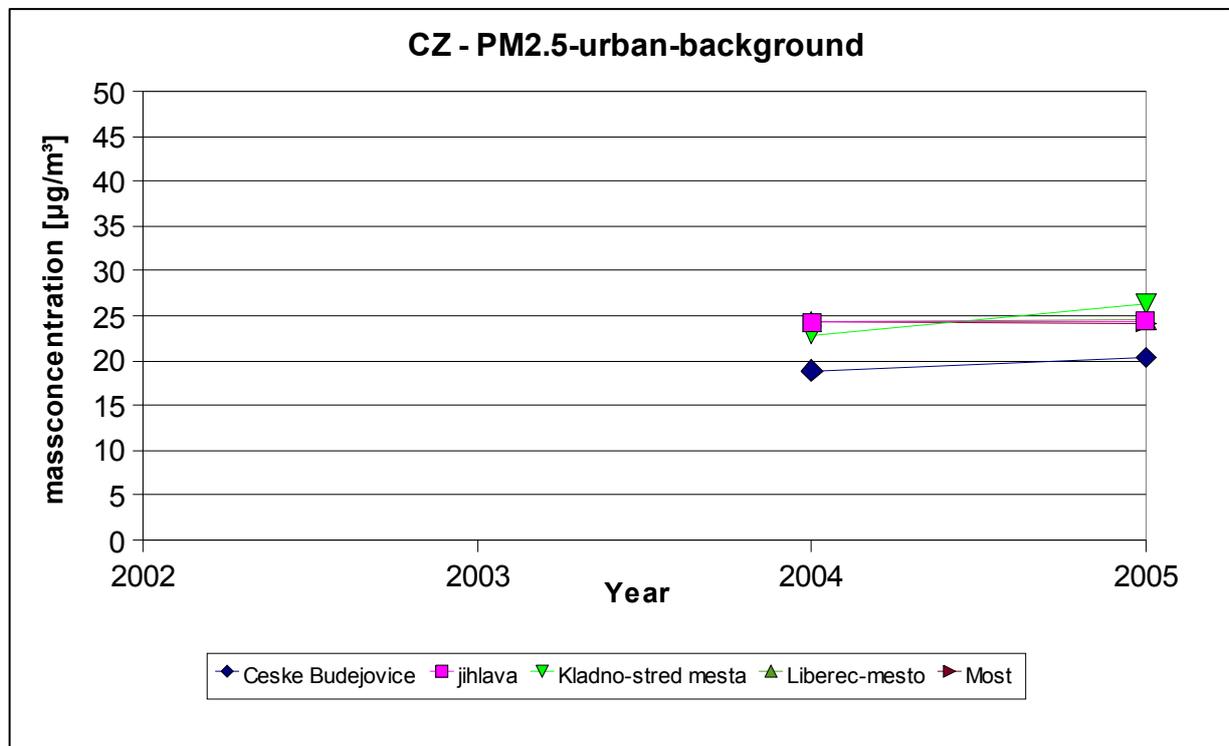
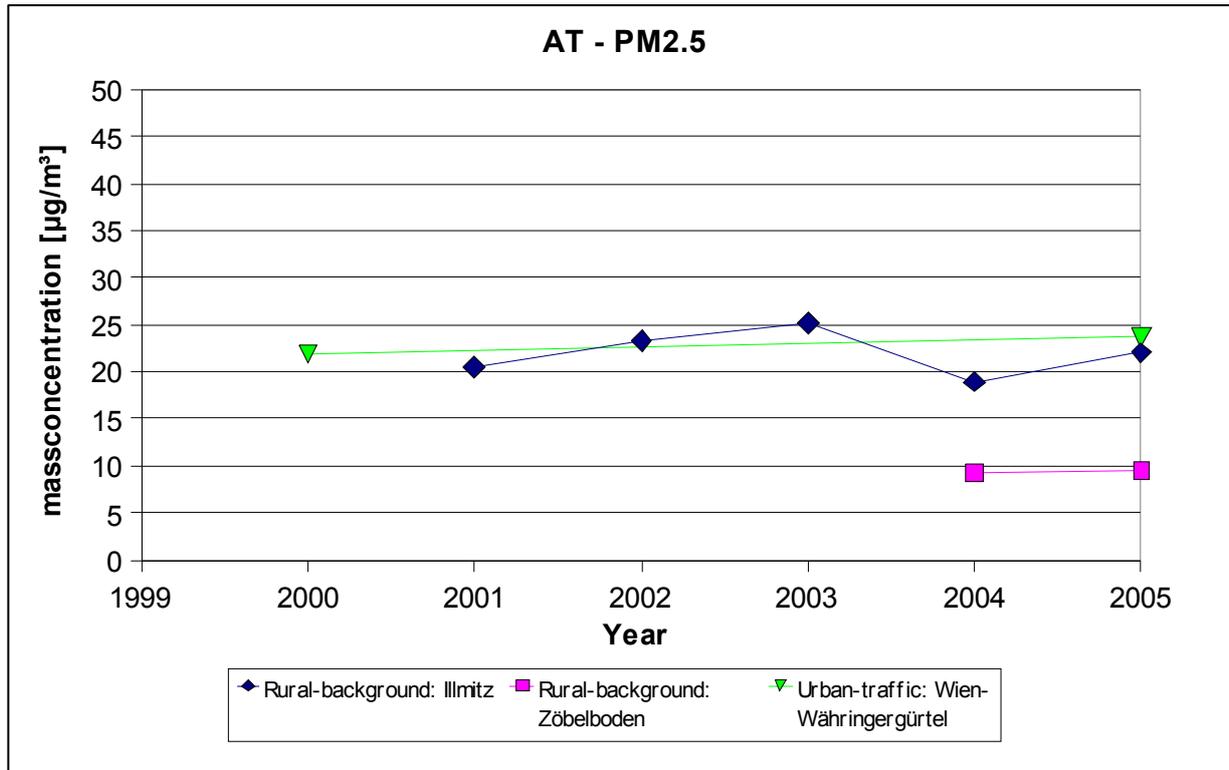


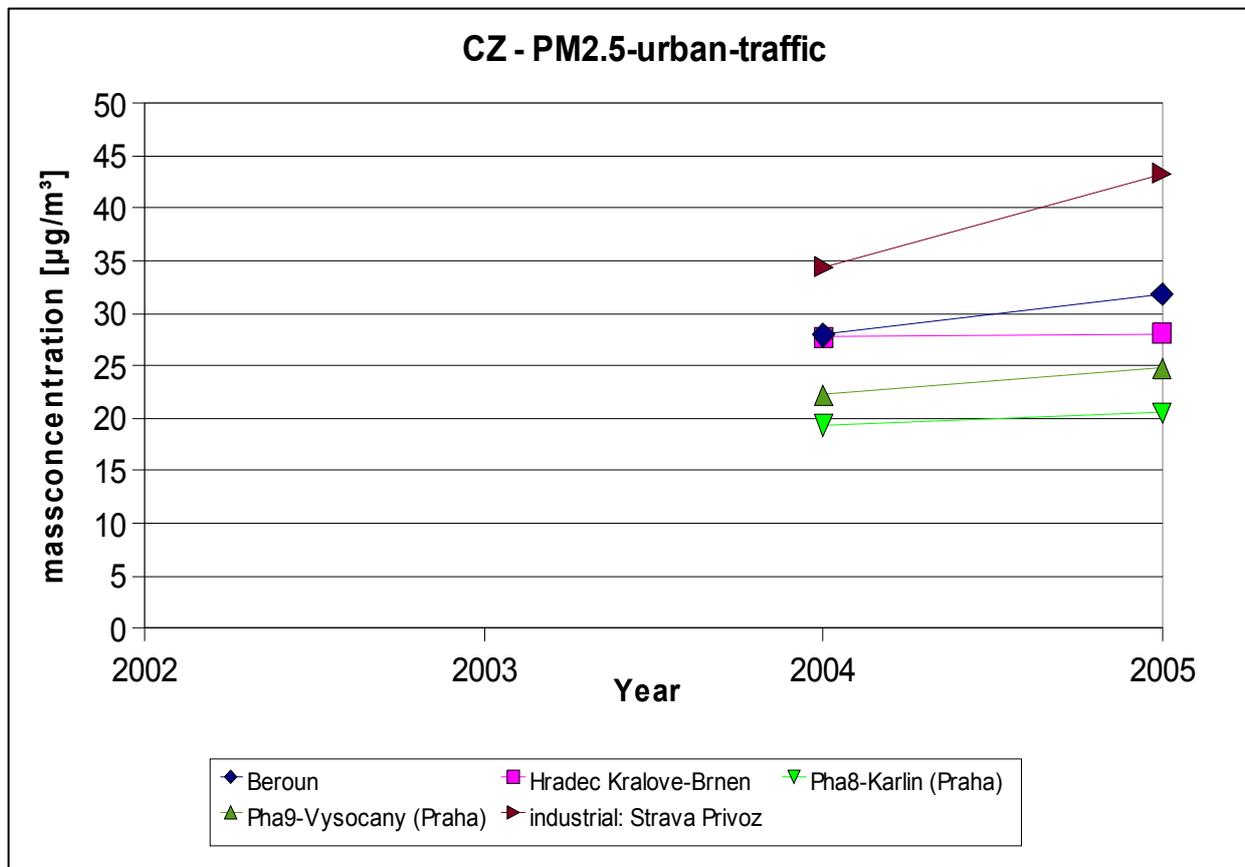
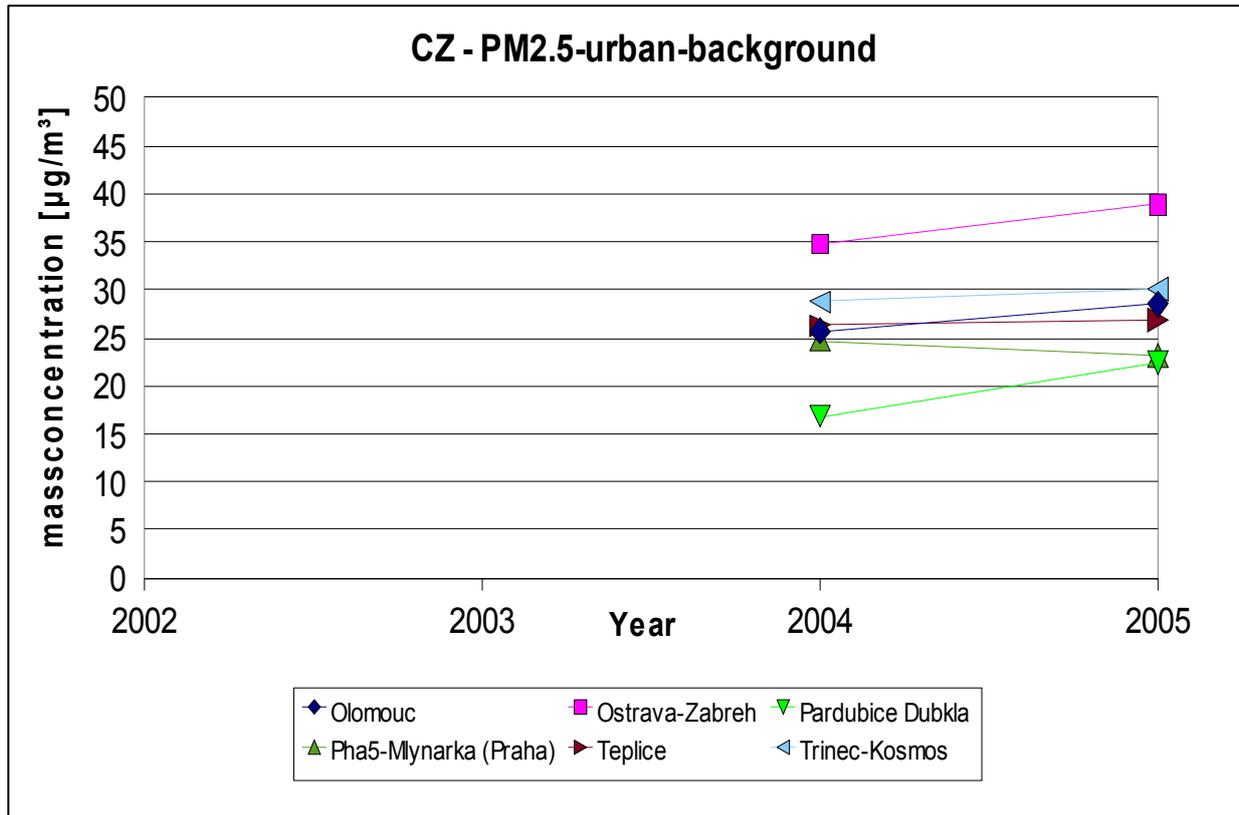


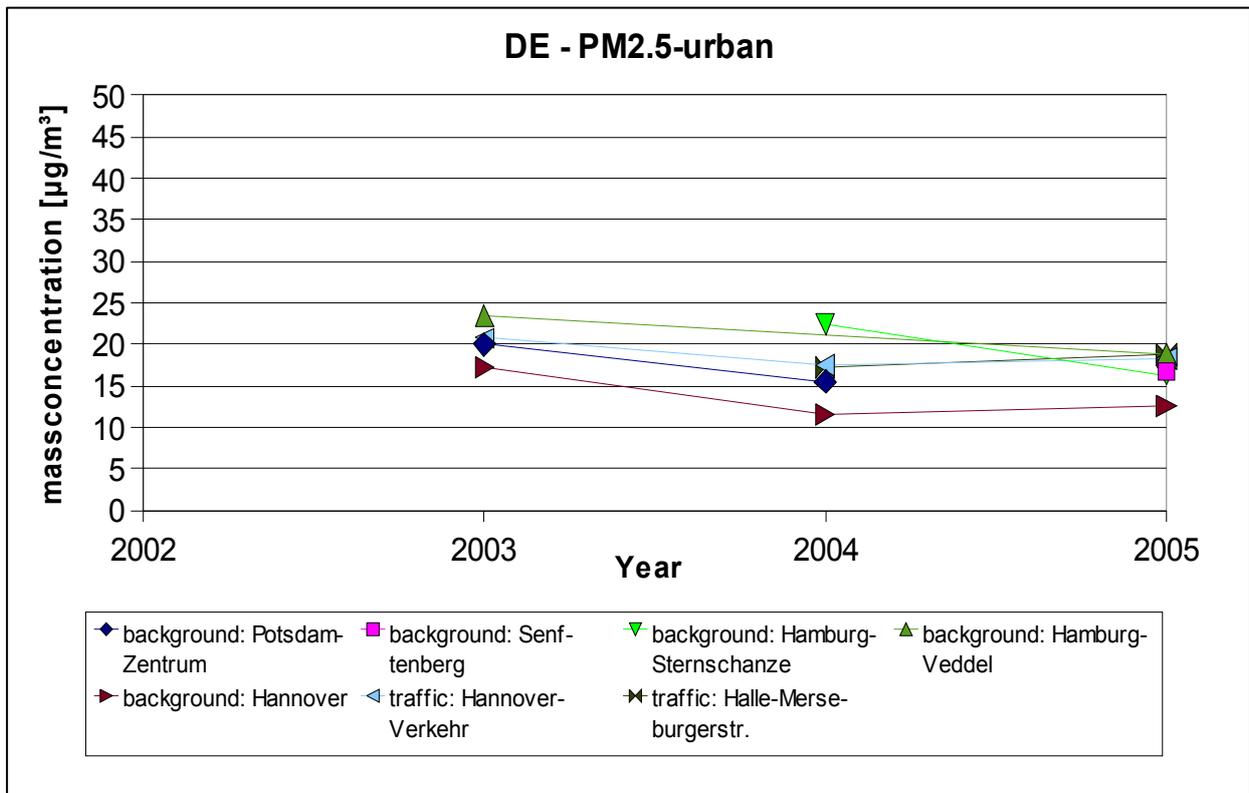
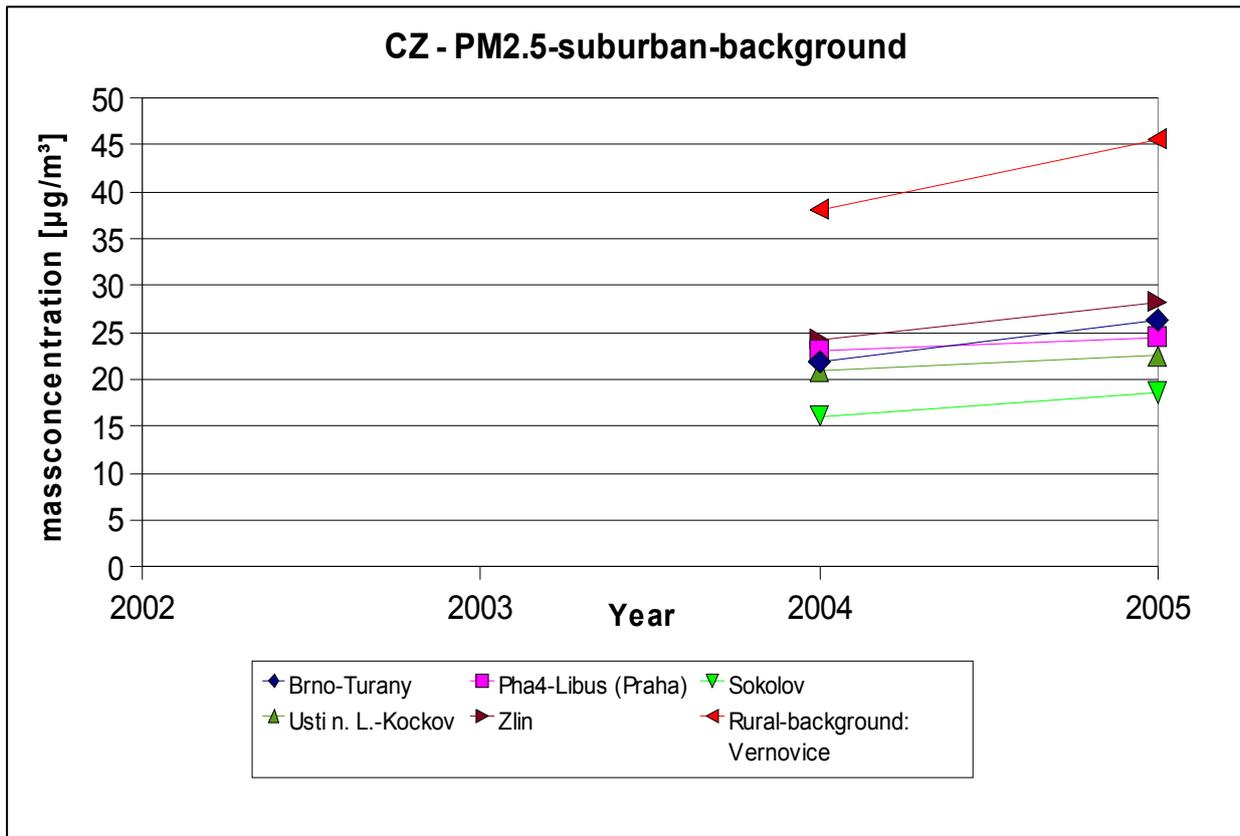


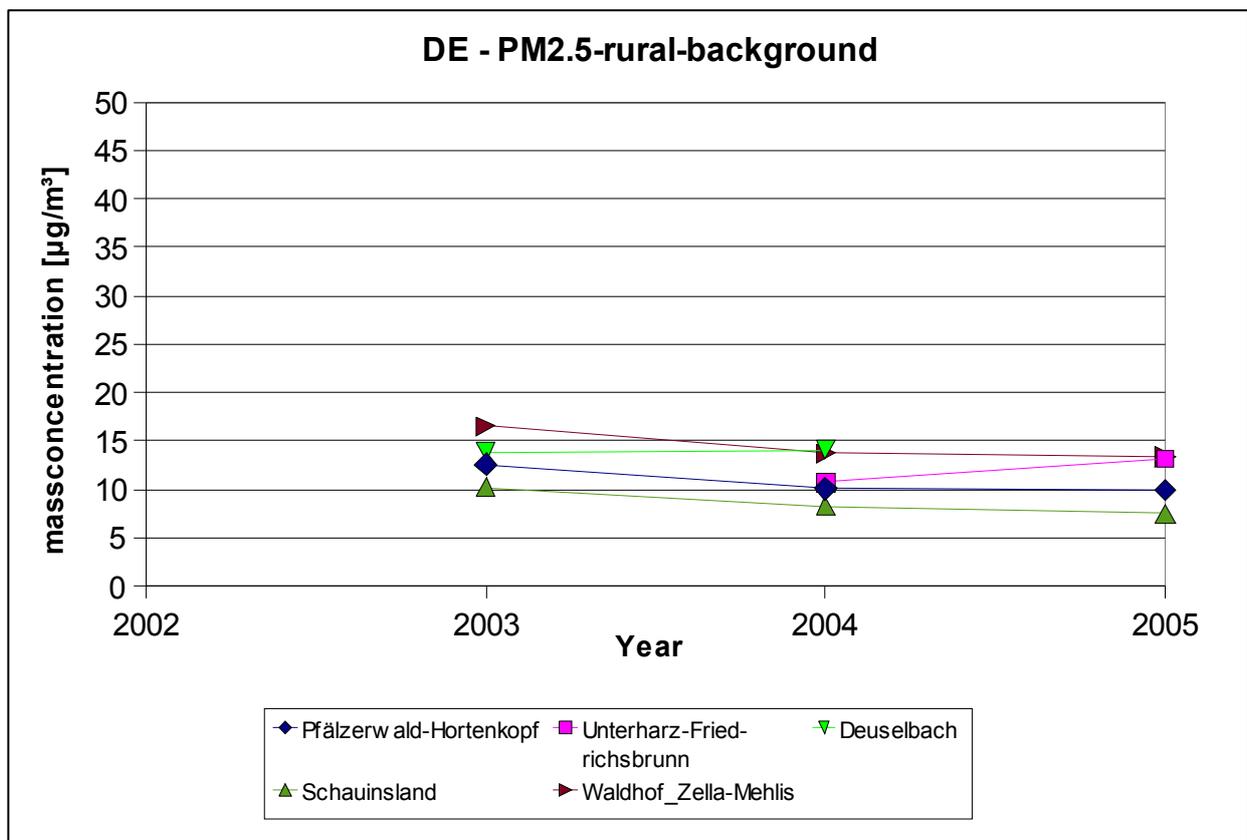
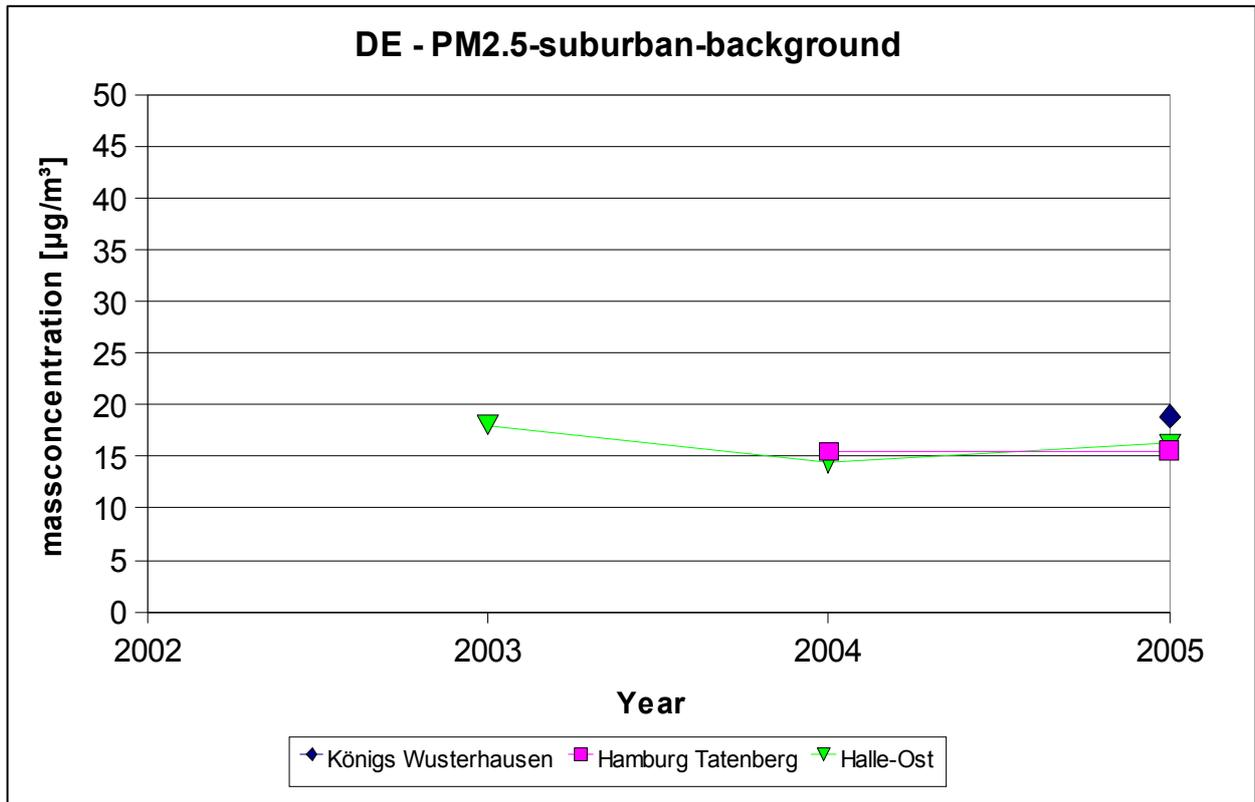


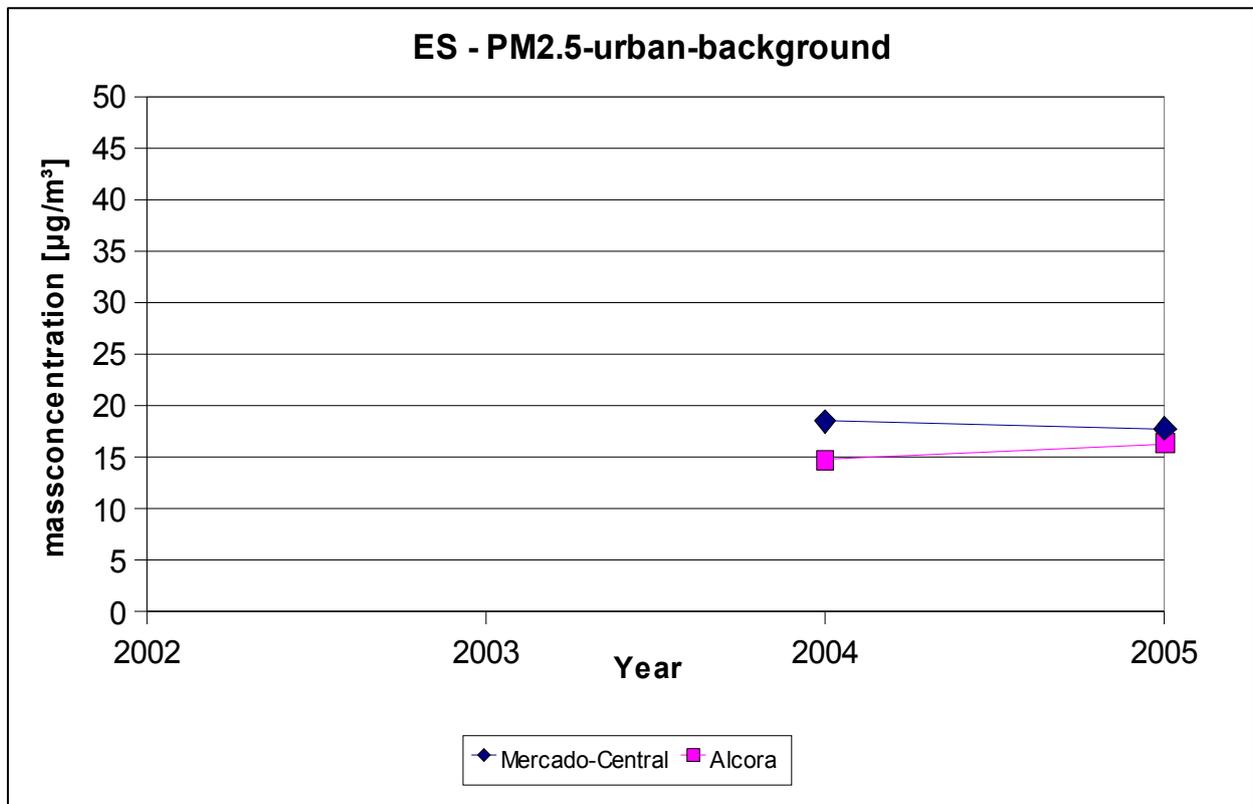
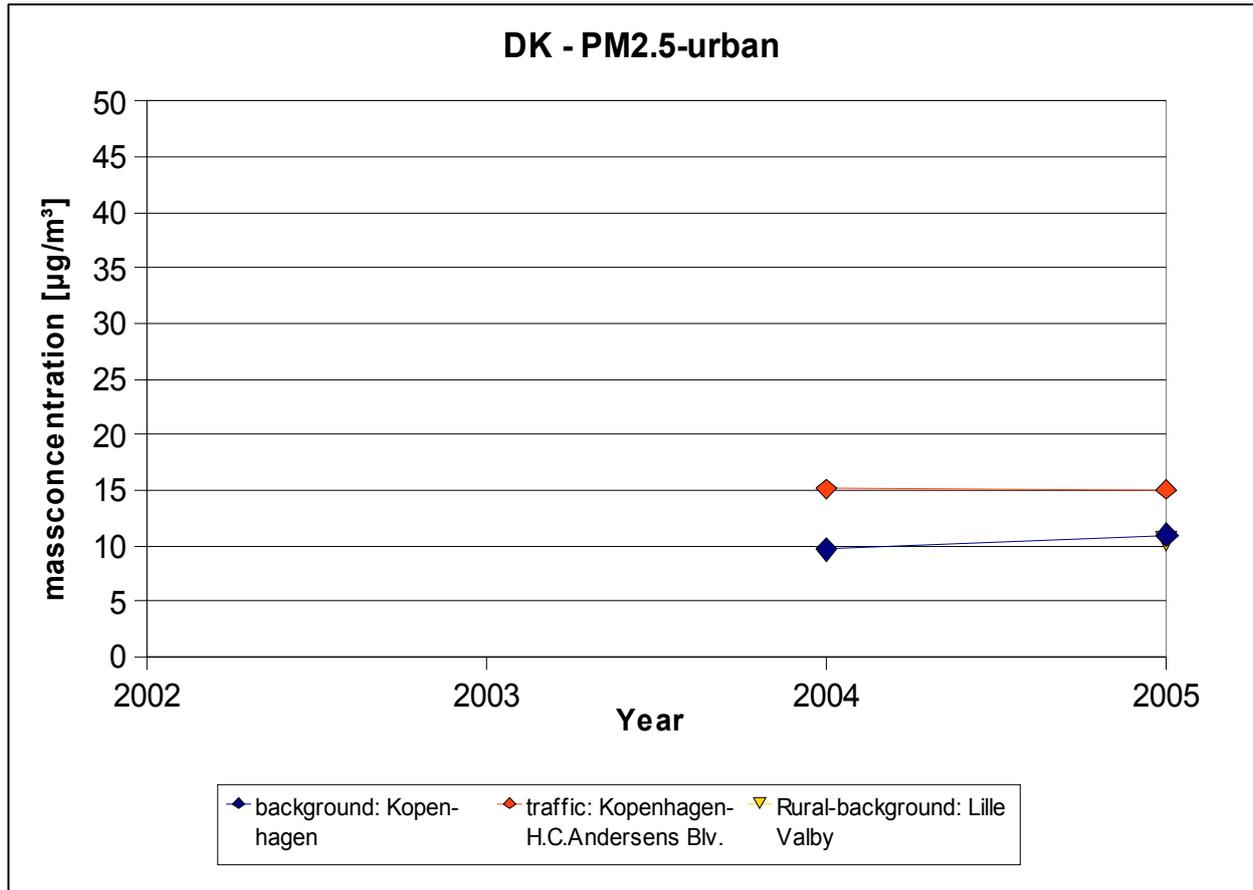
Anhang E

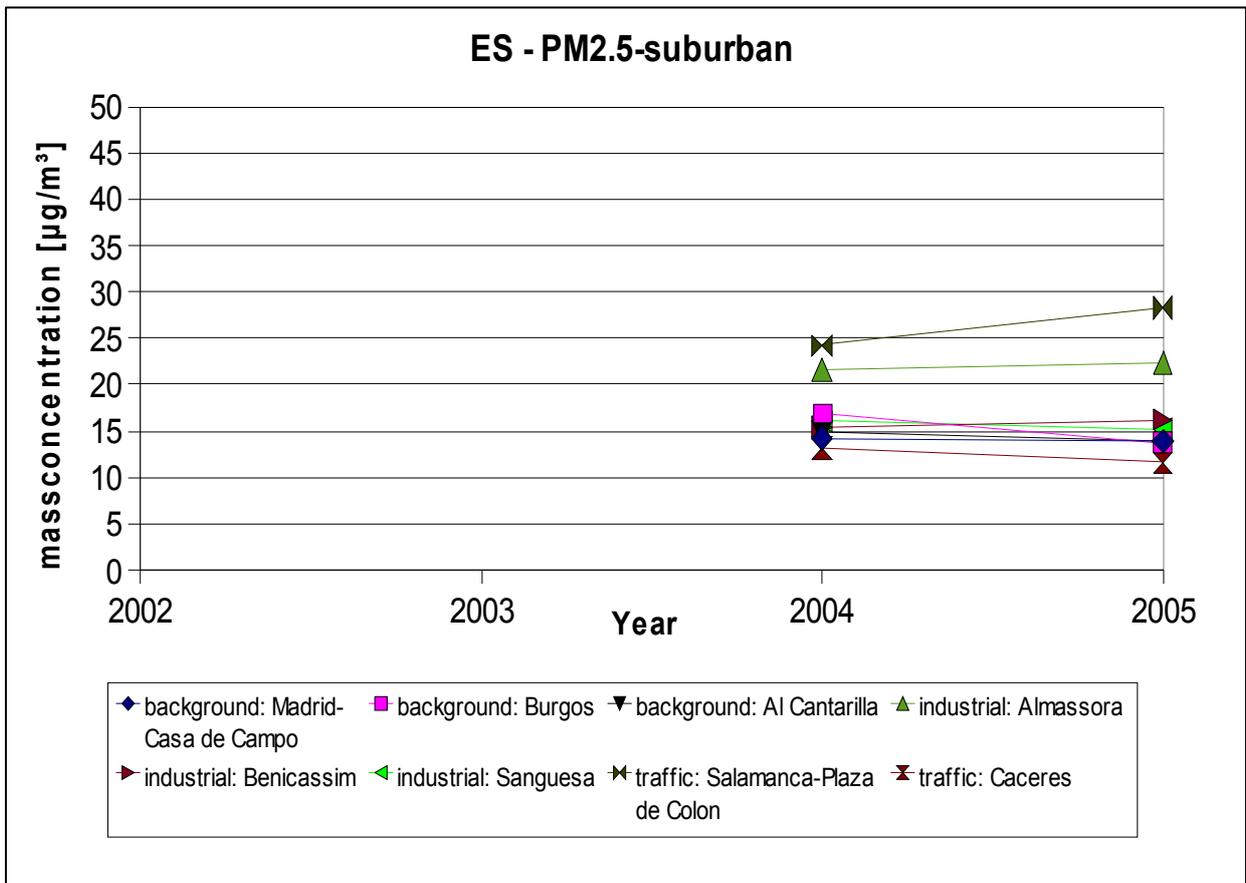
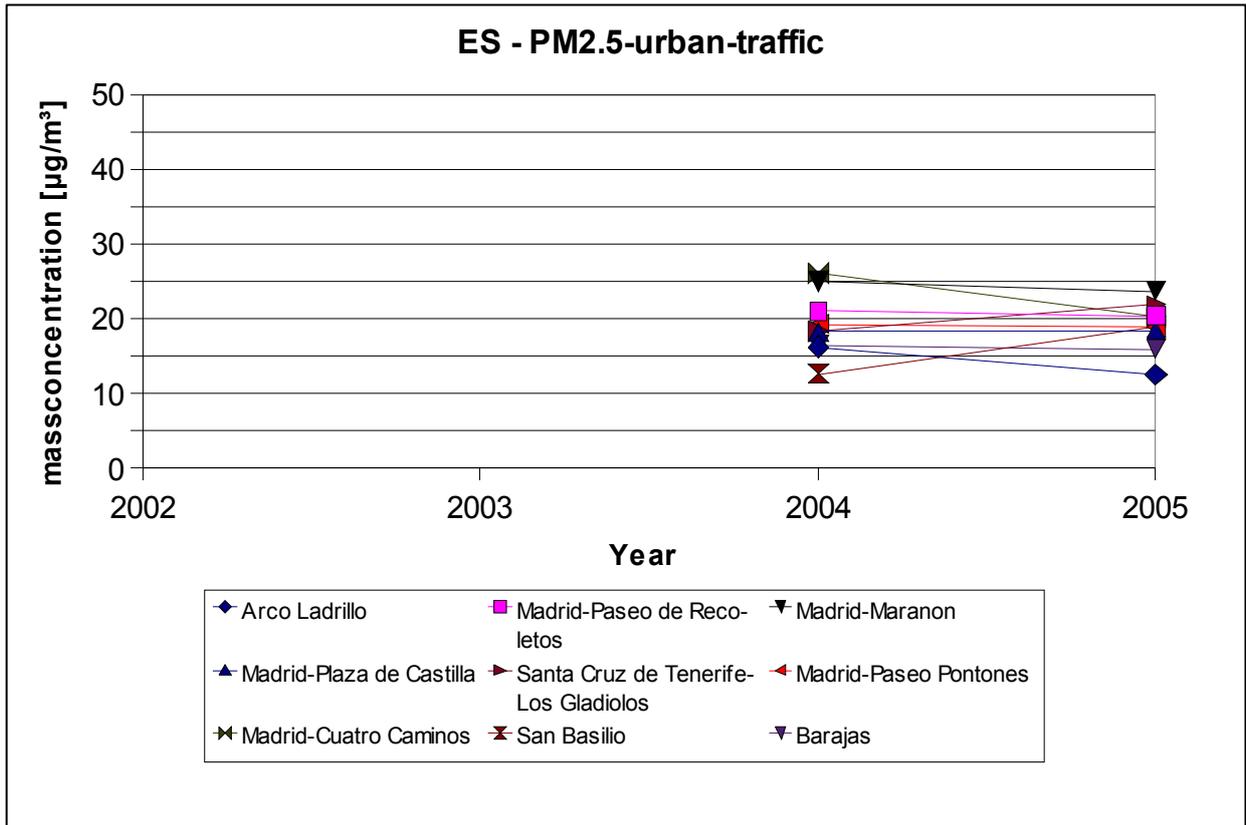


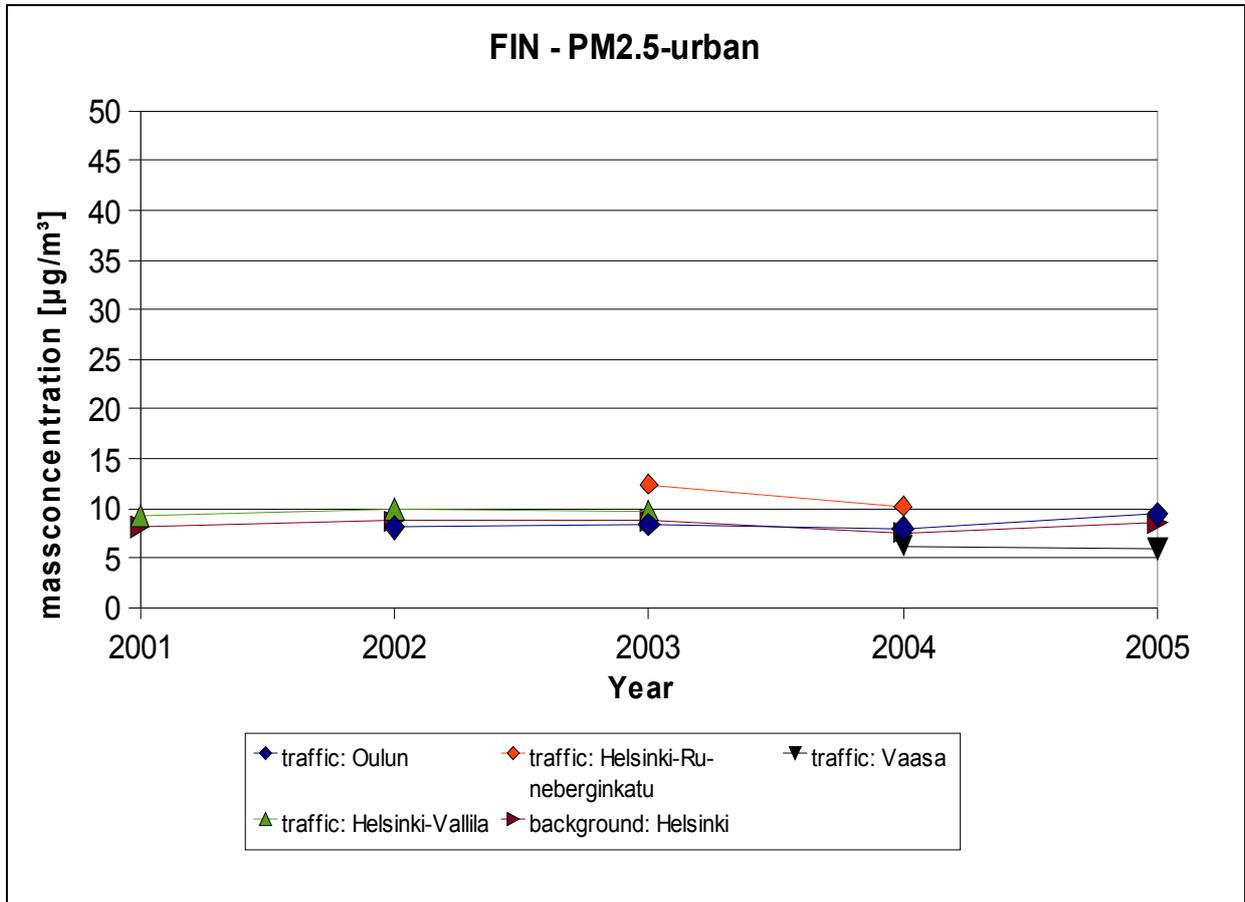
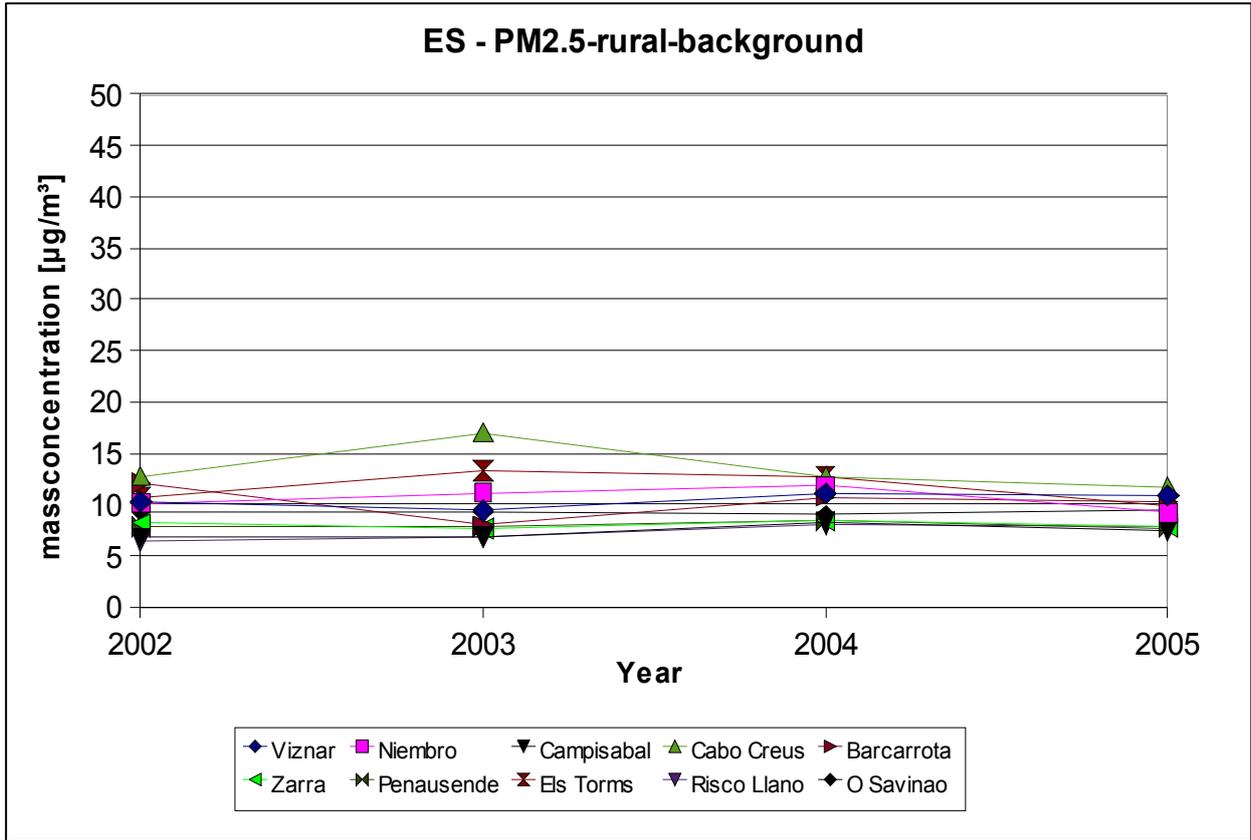


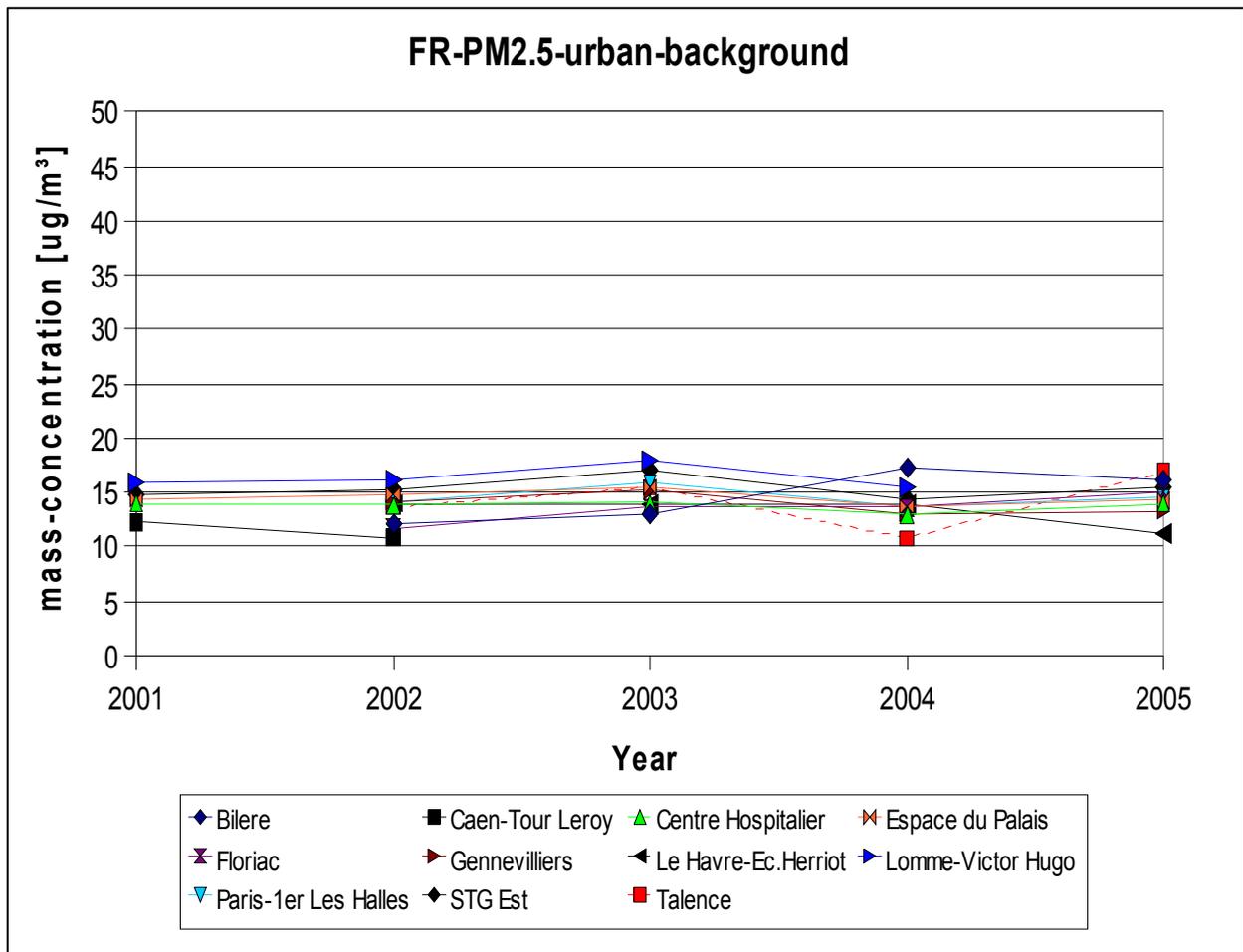
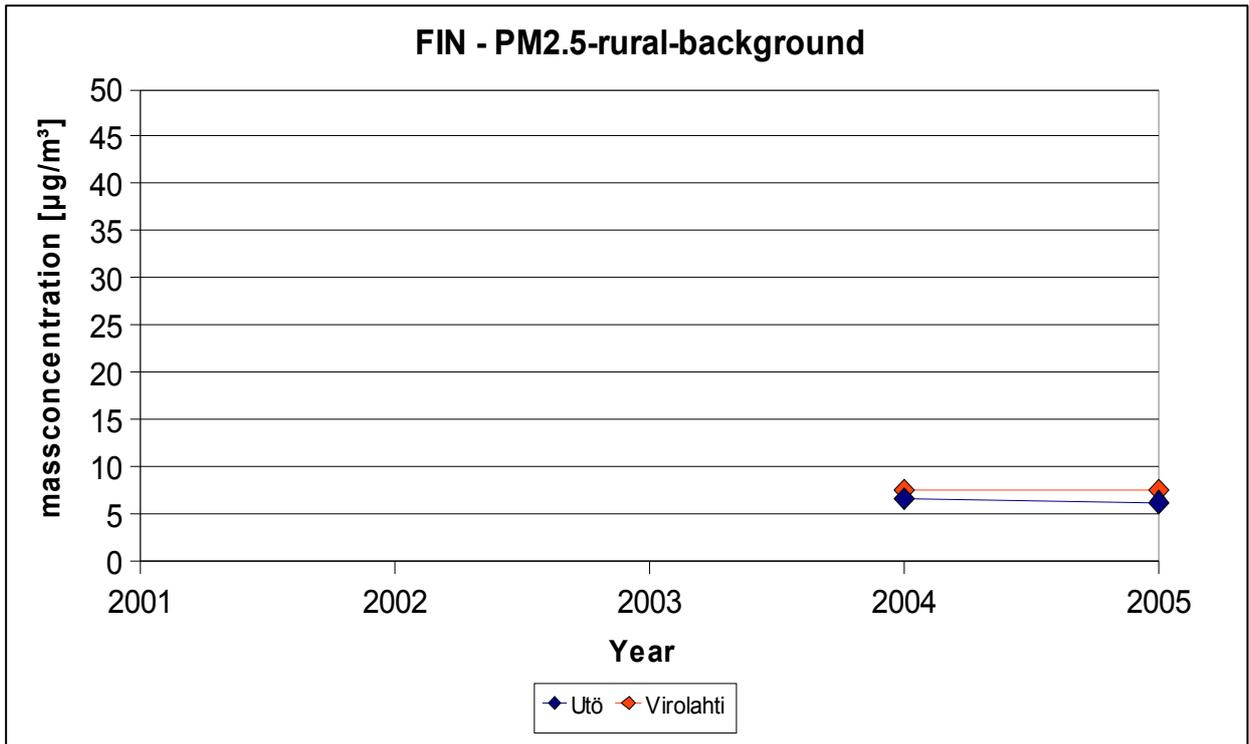


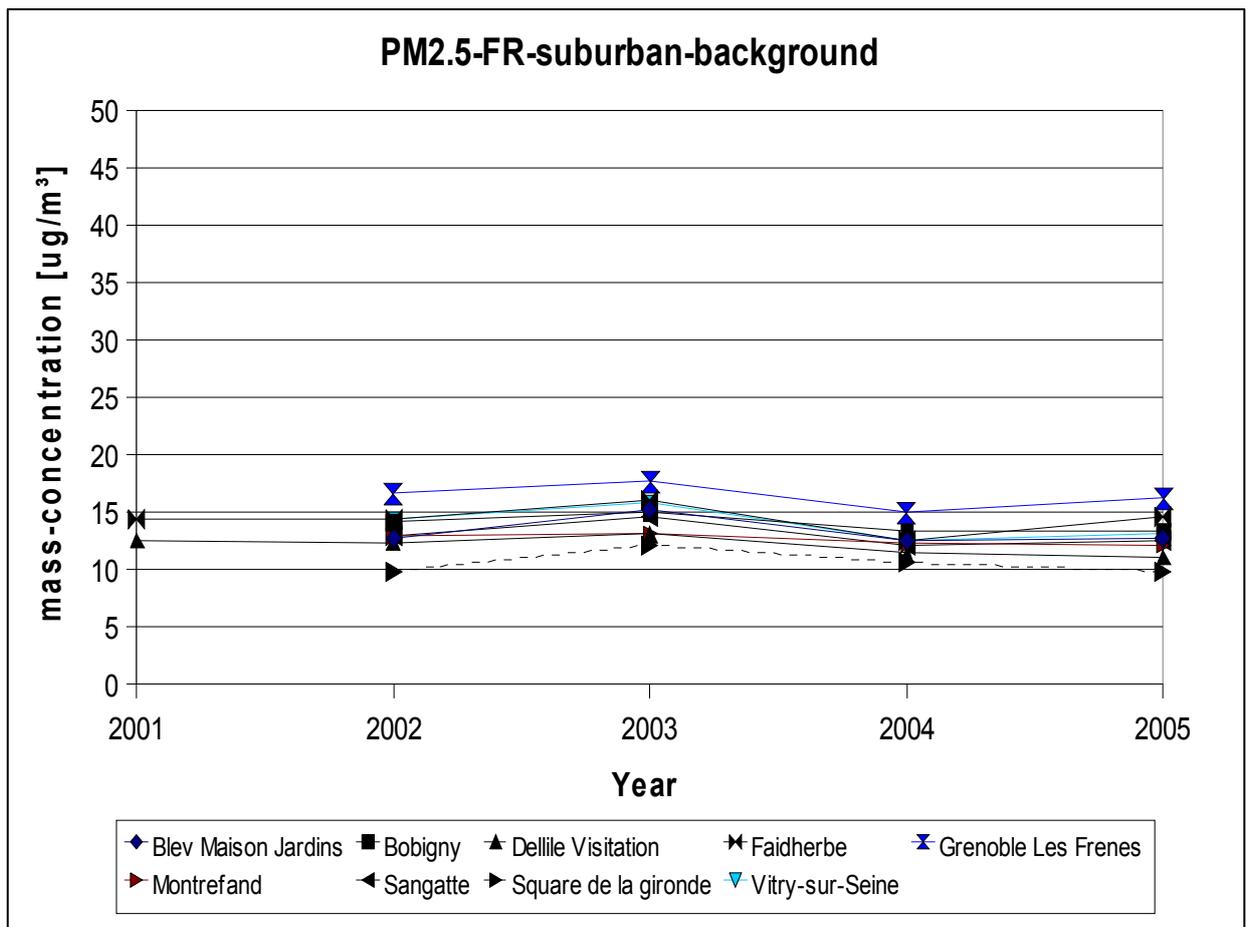
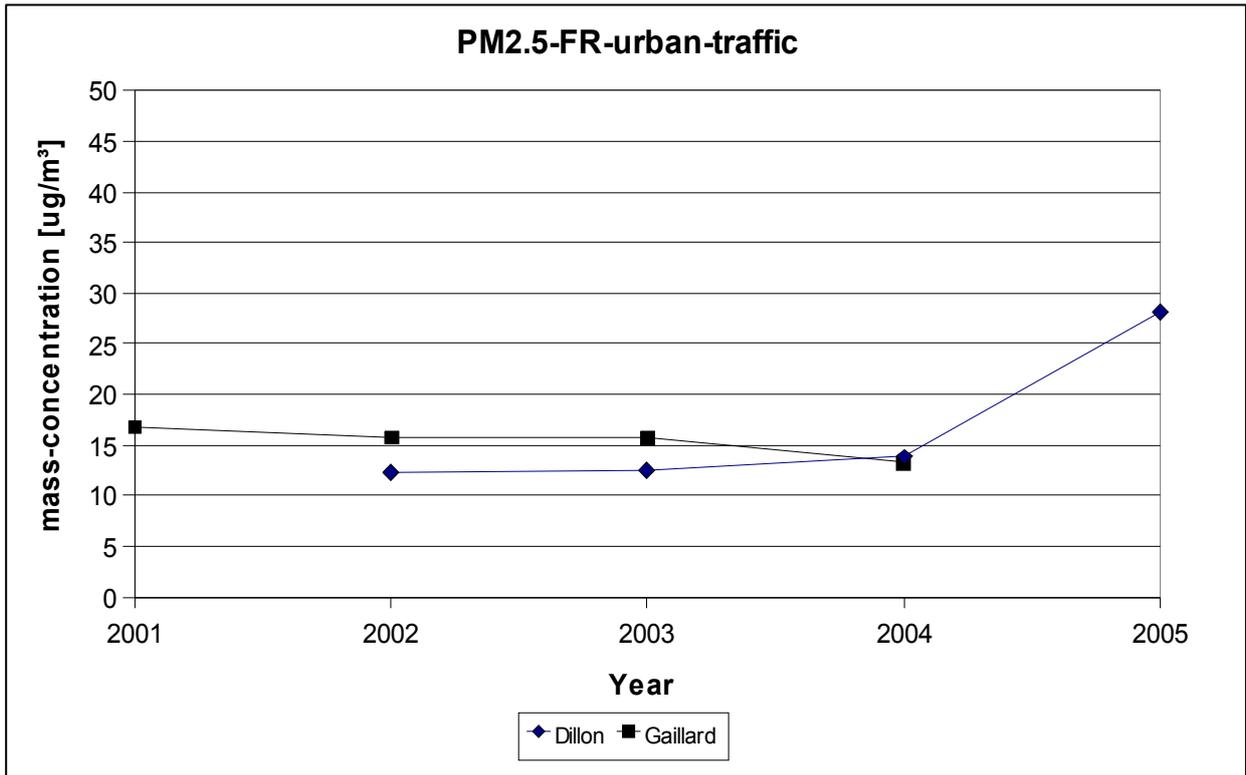


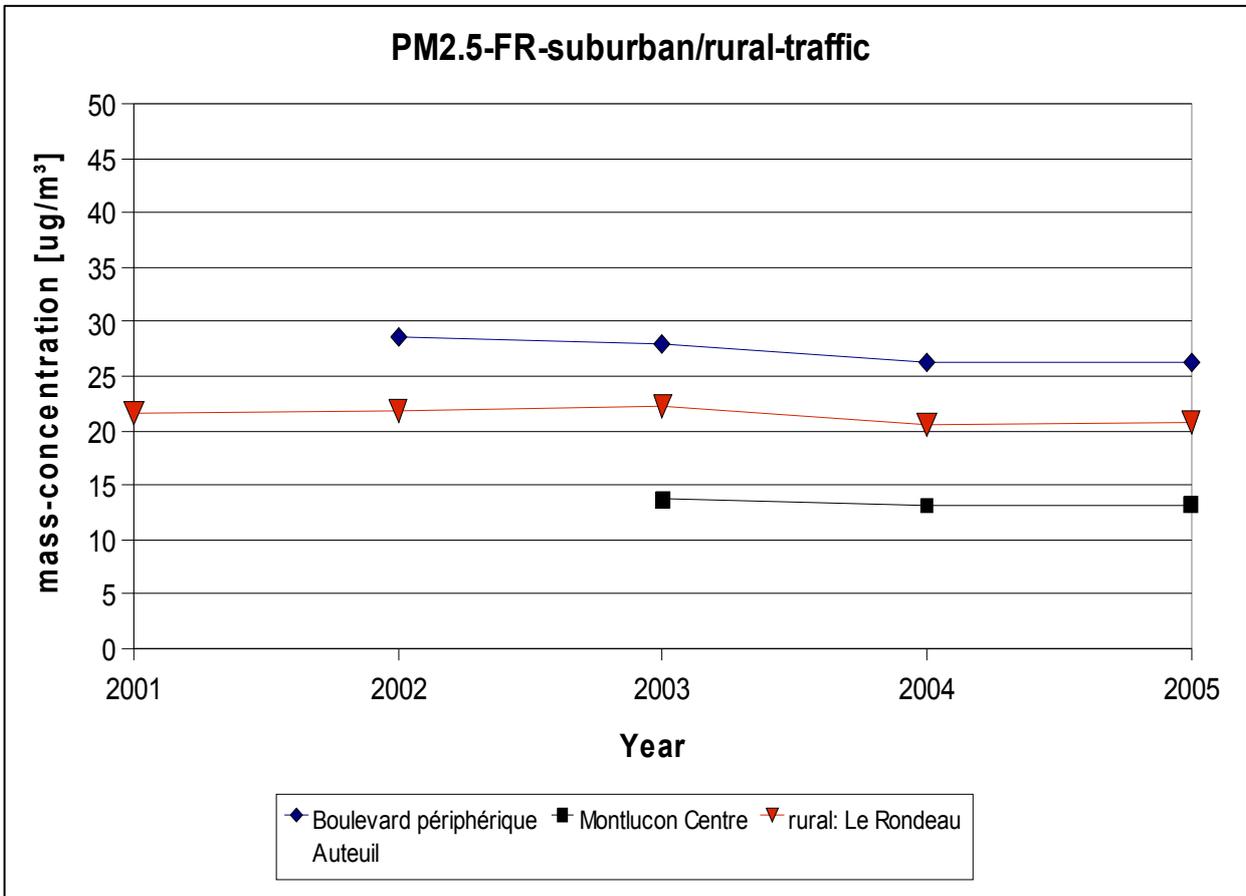
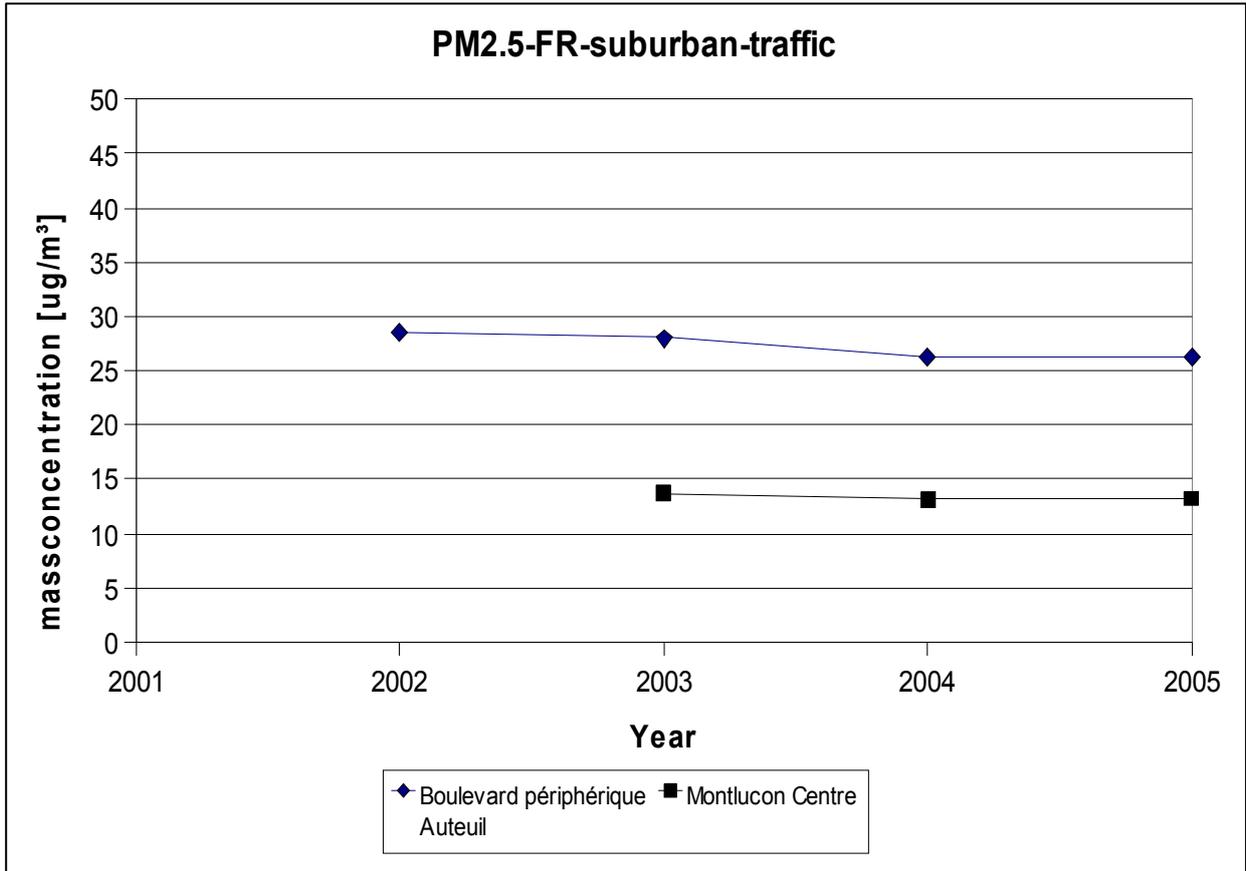


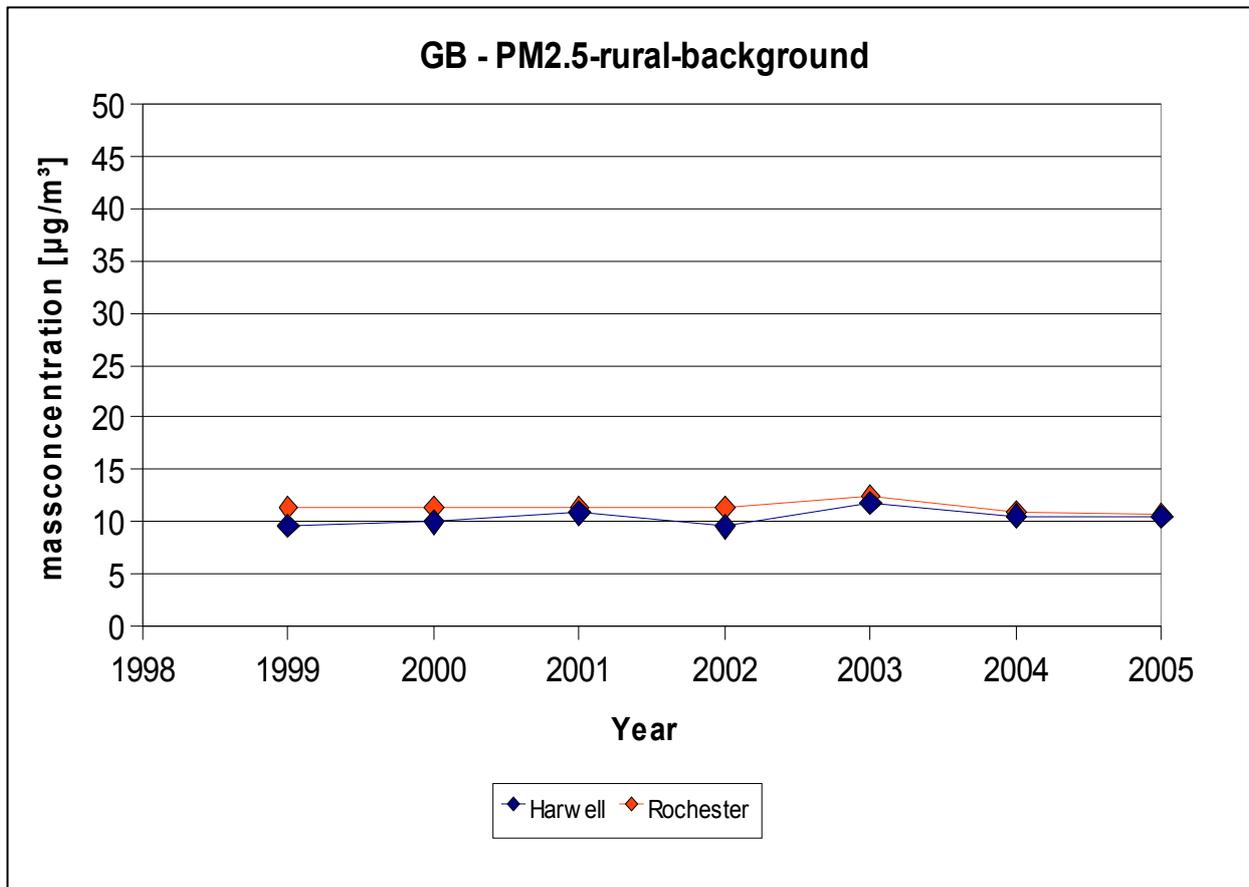
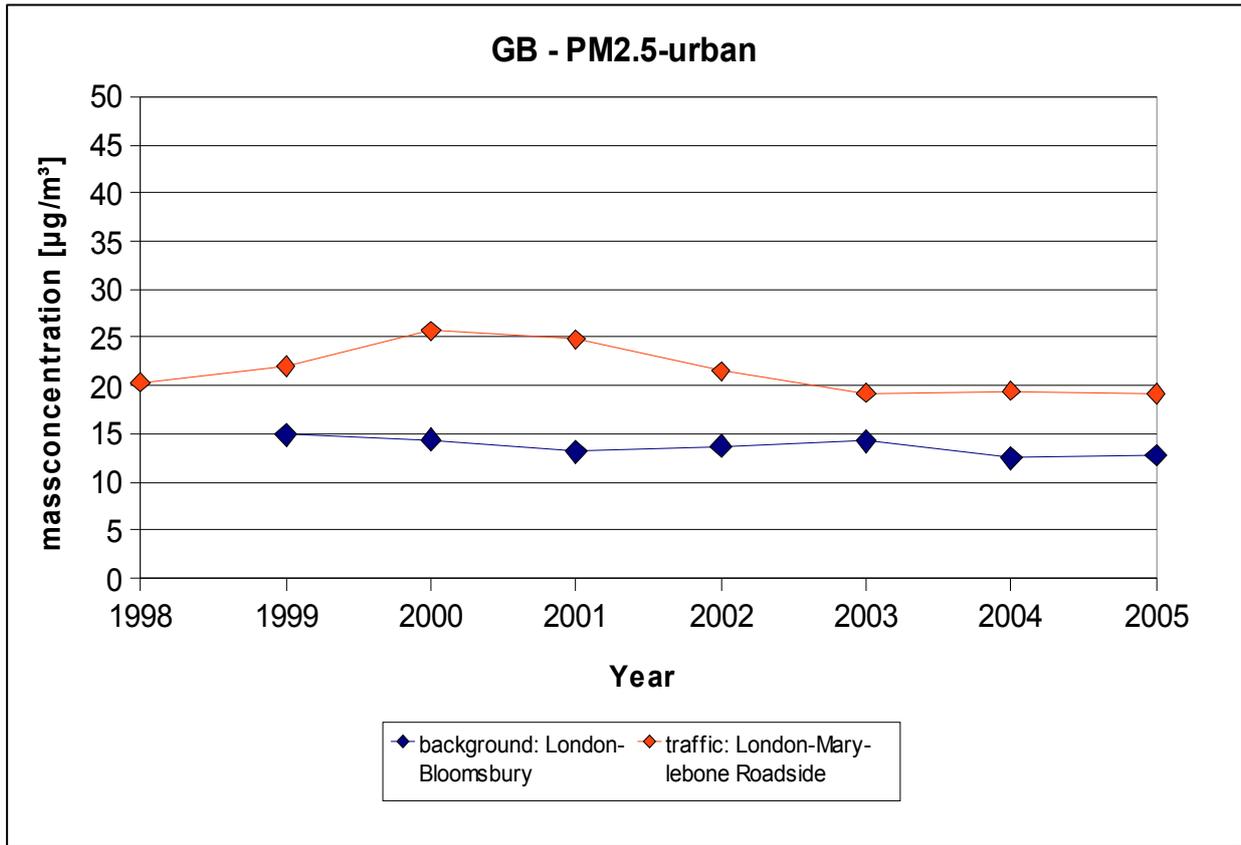


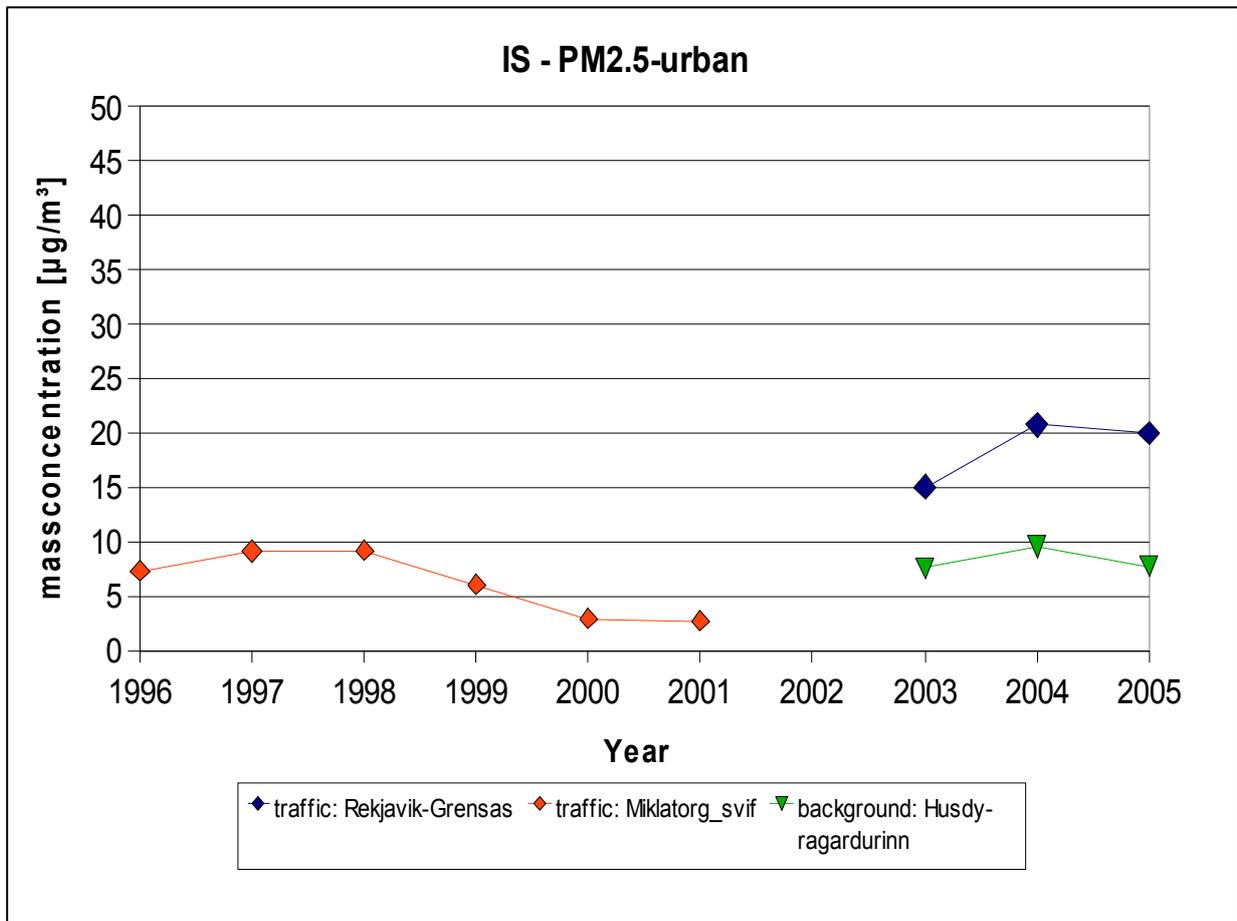
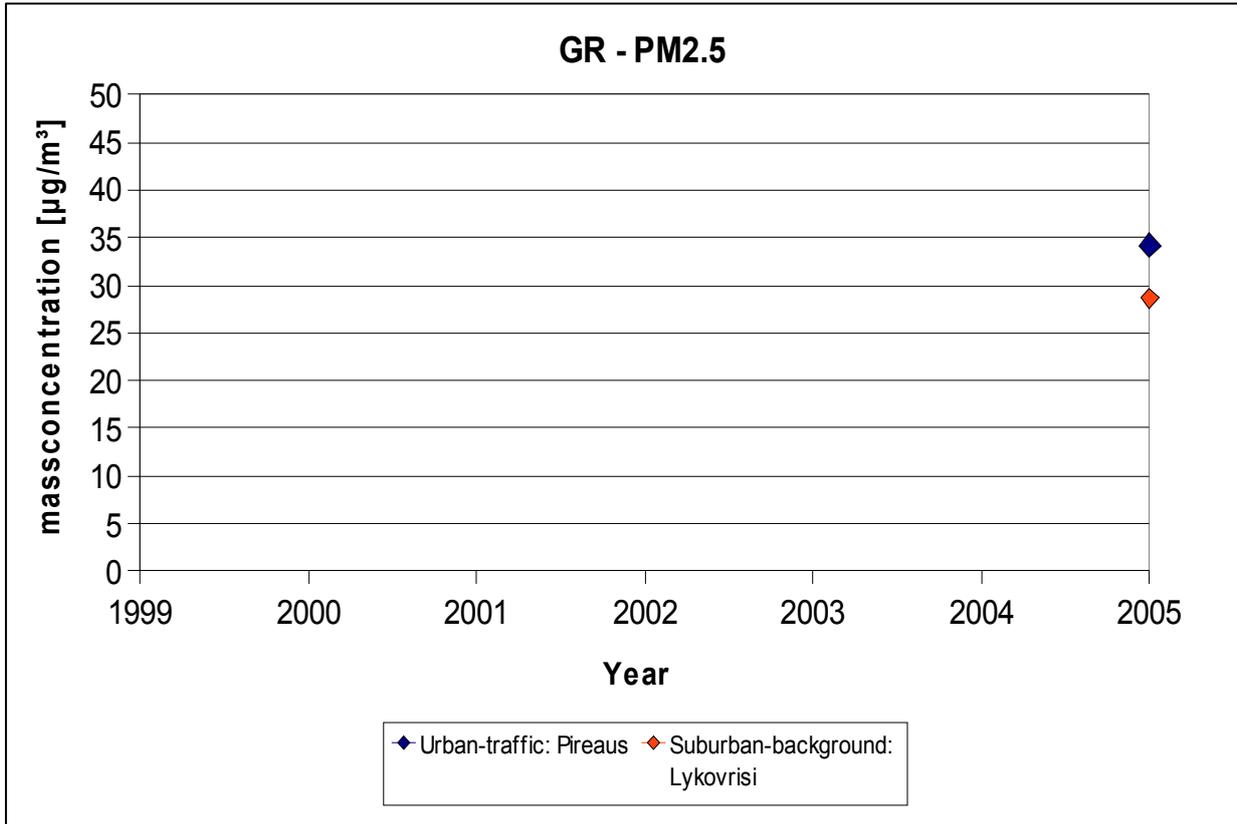


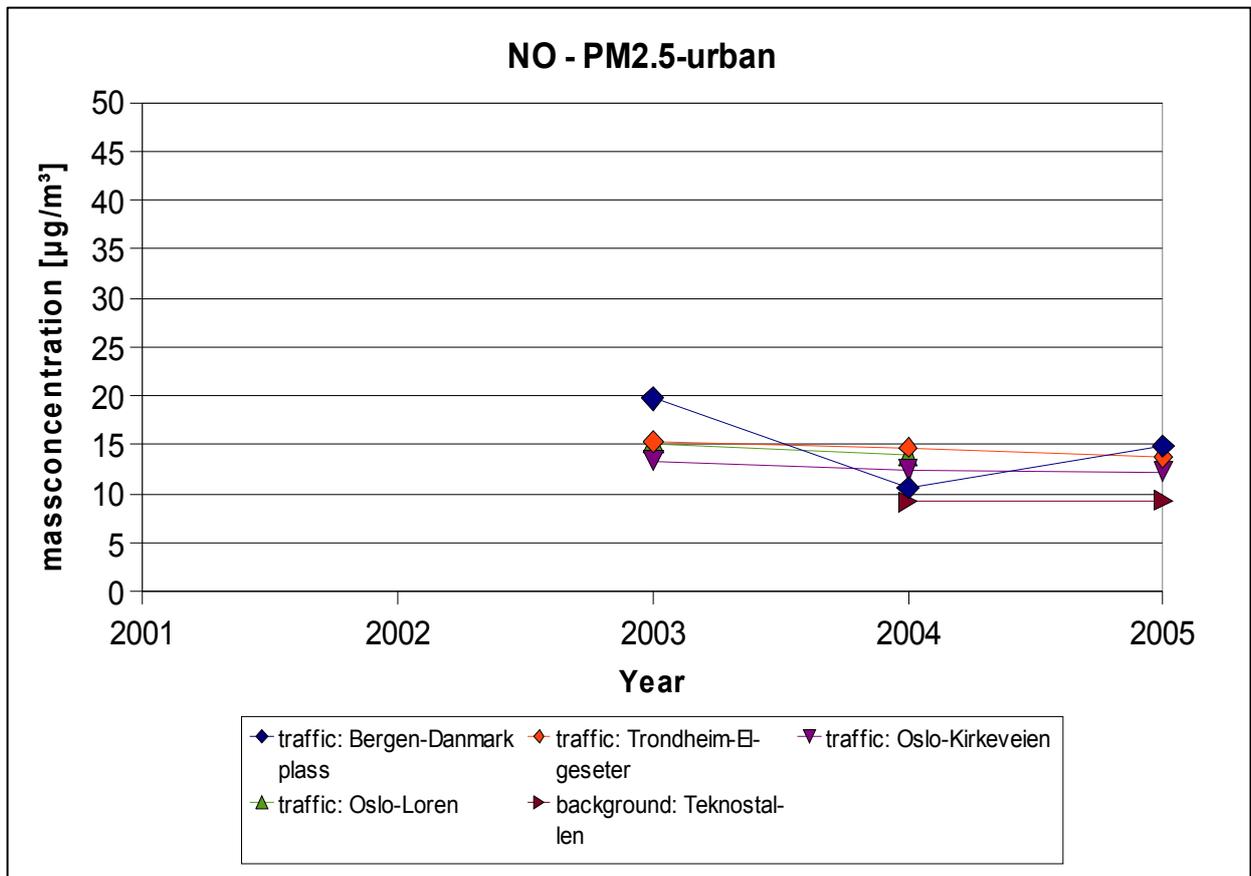
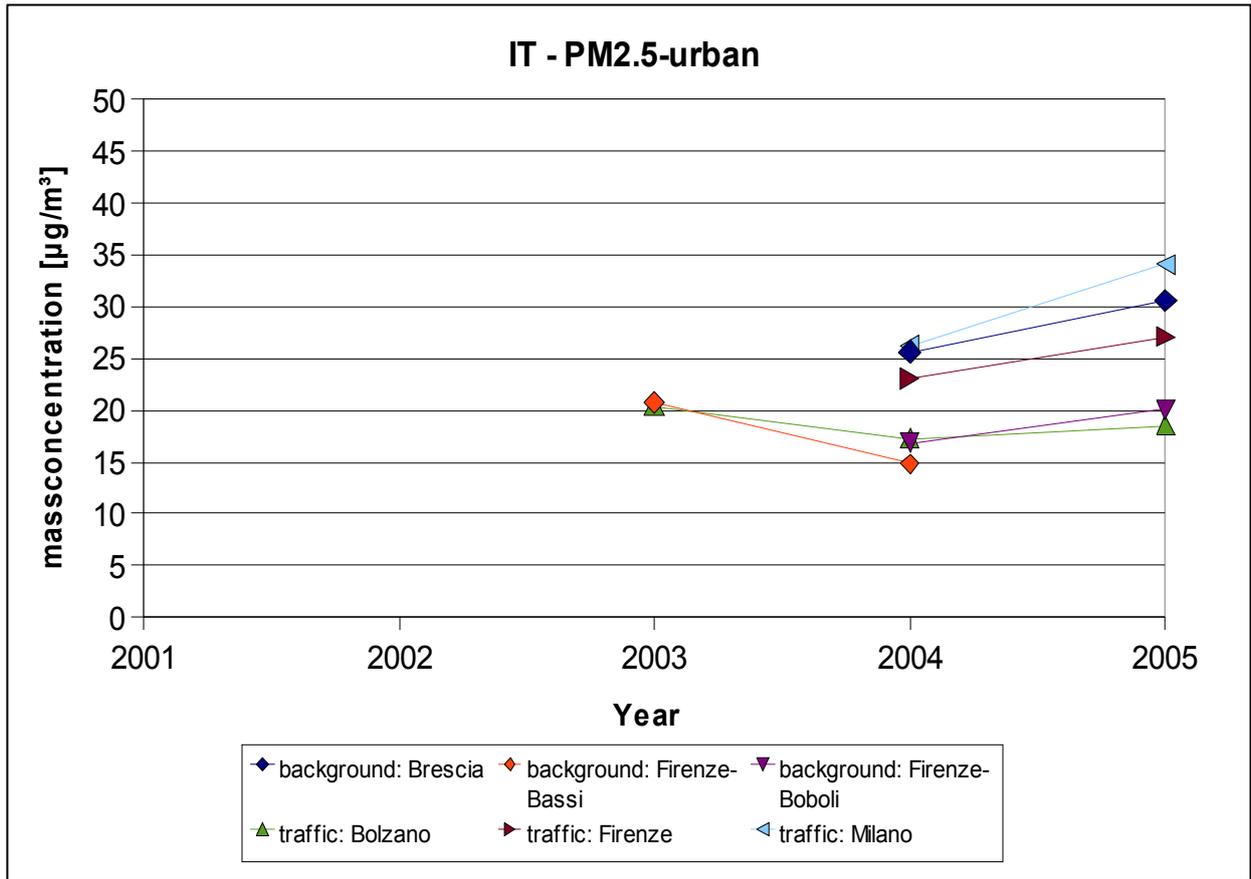


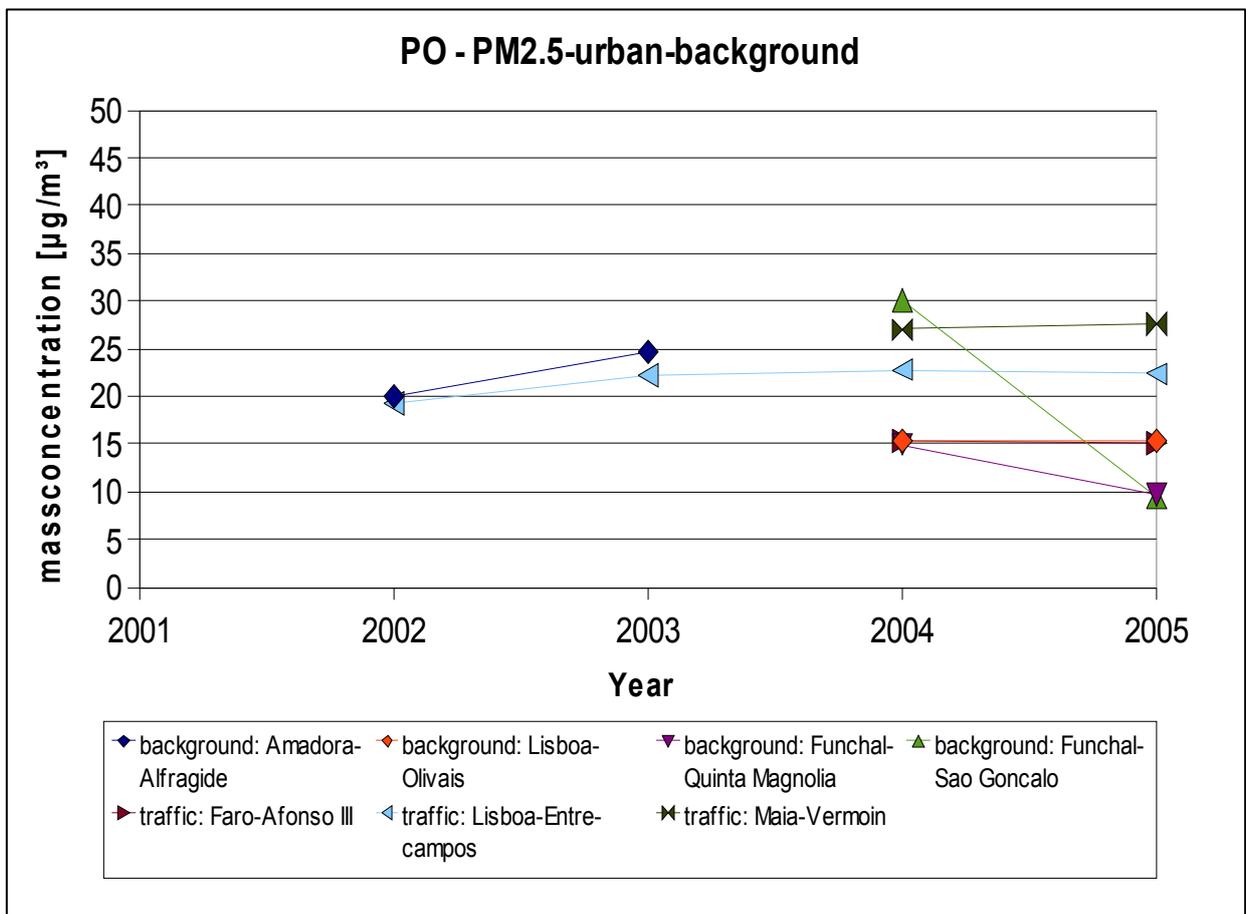
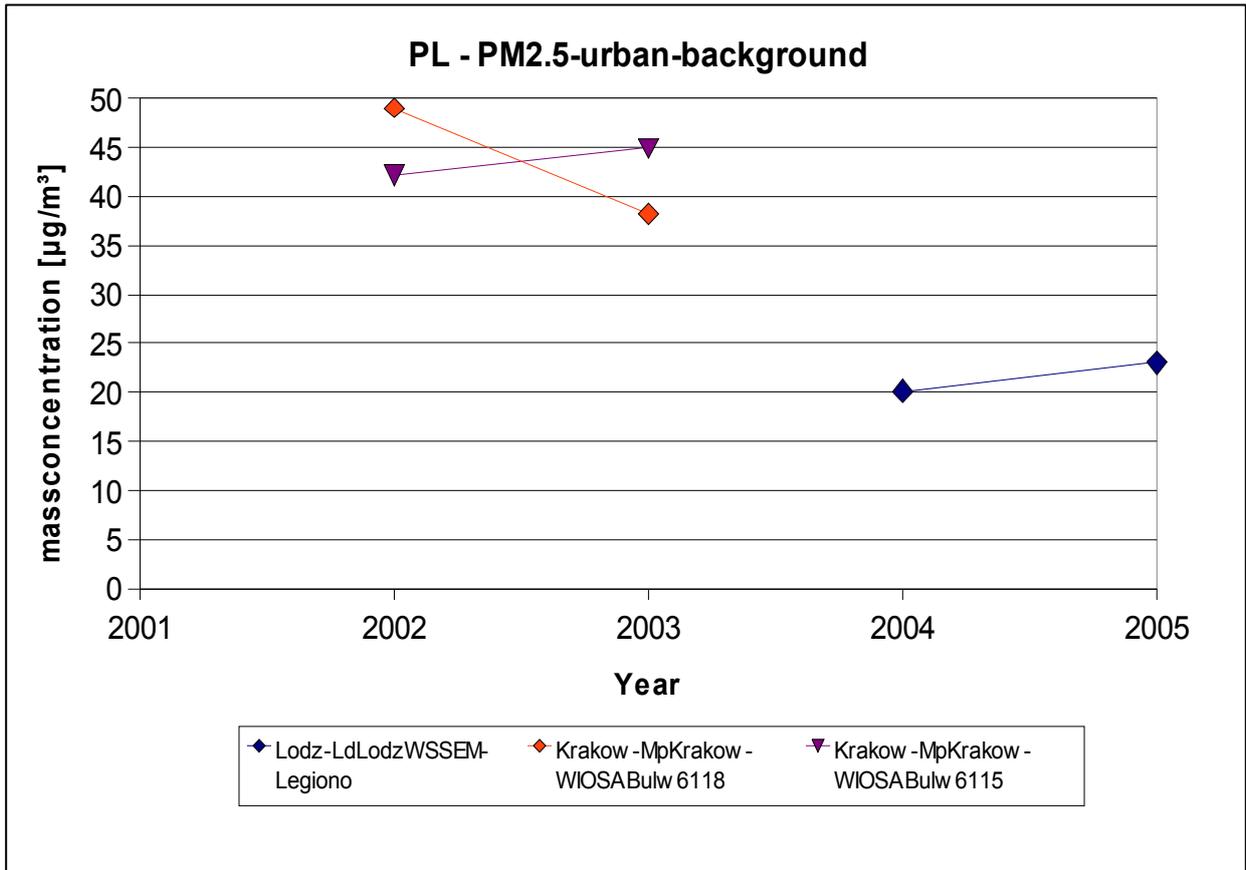


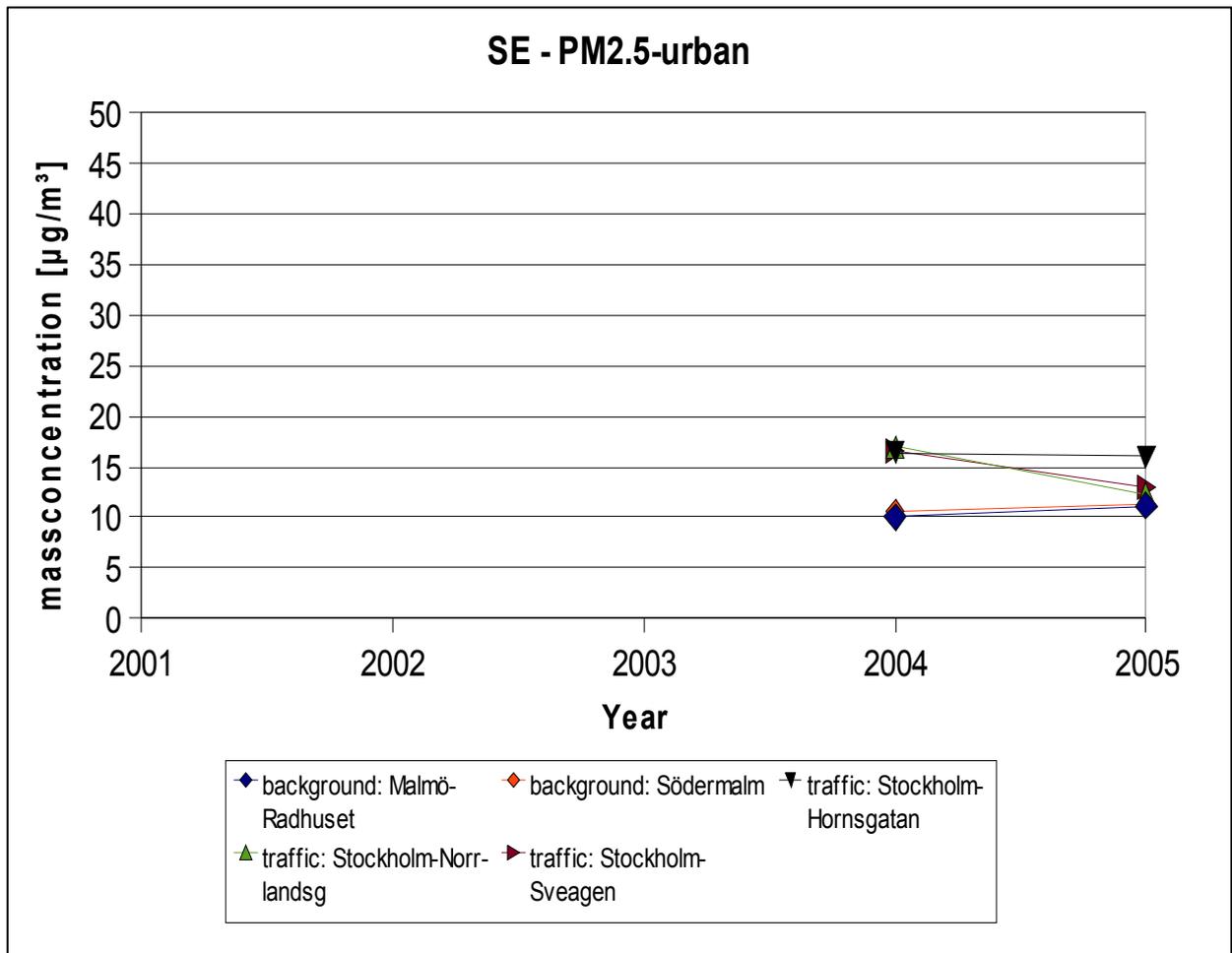
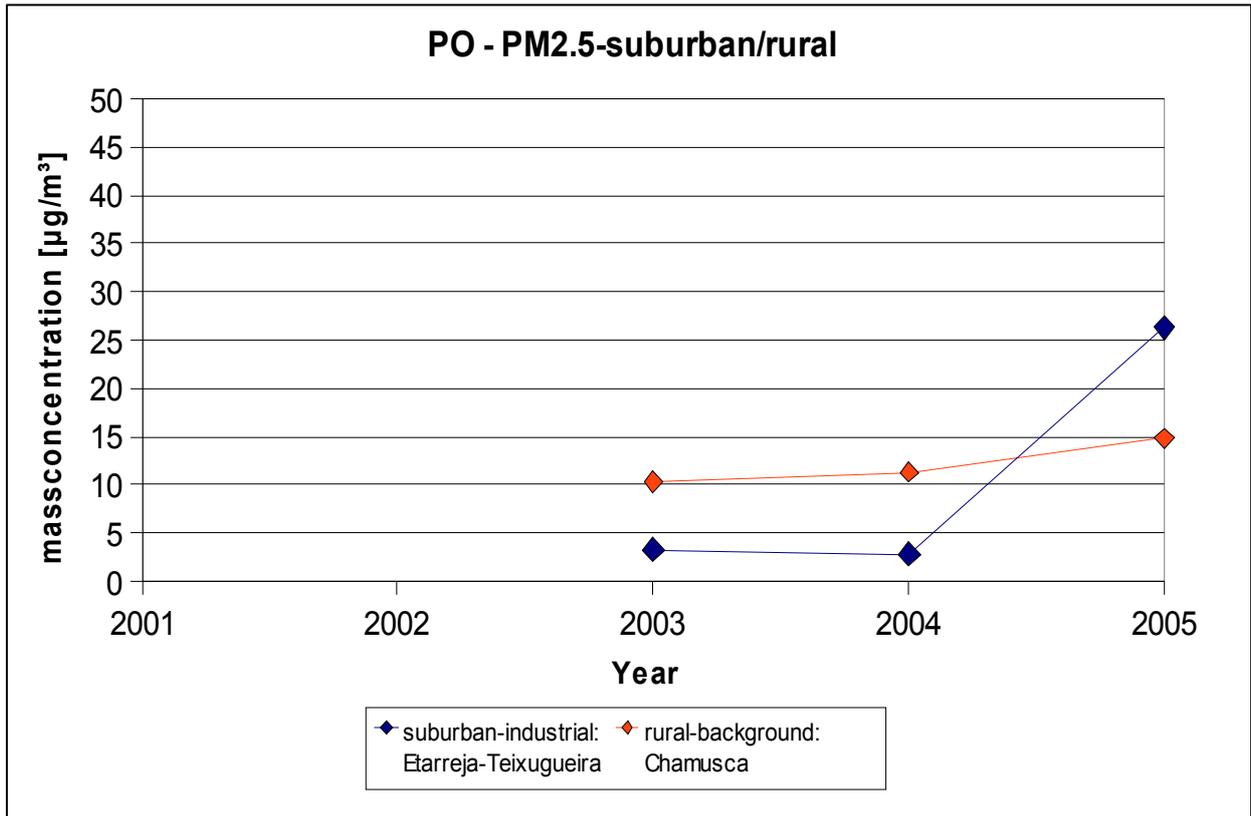


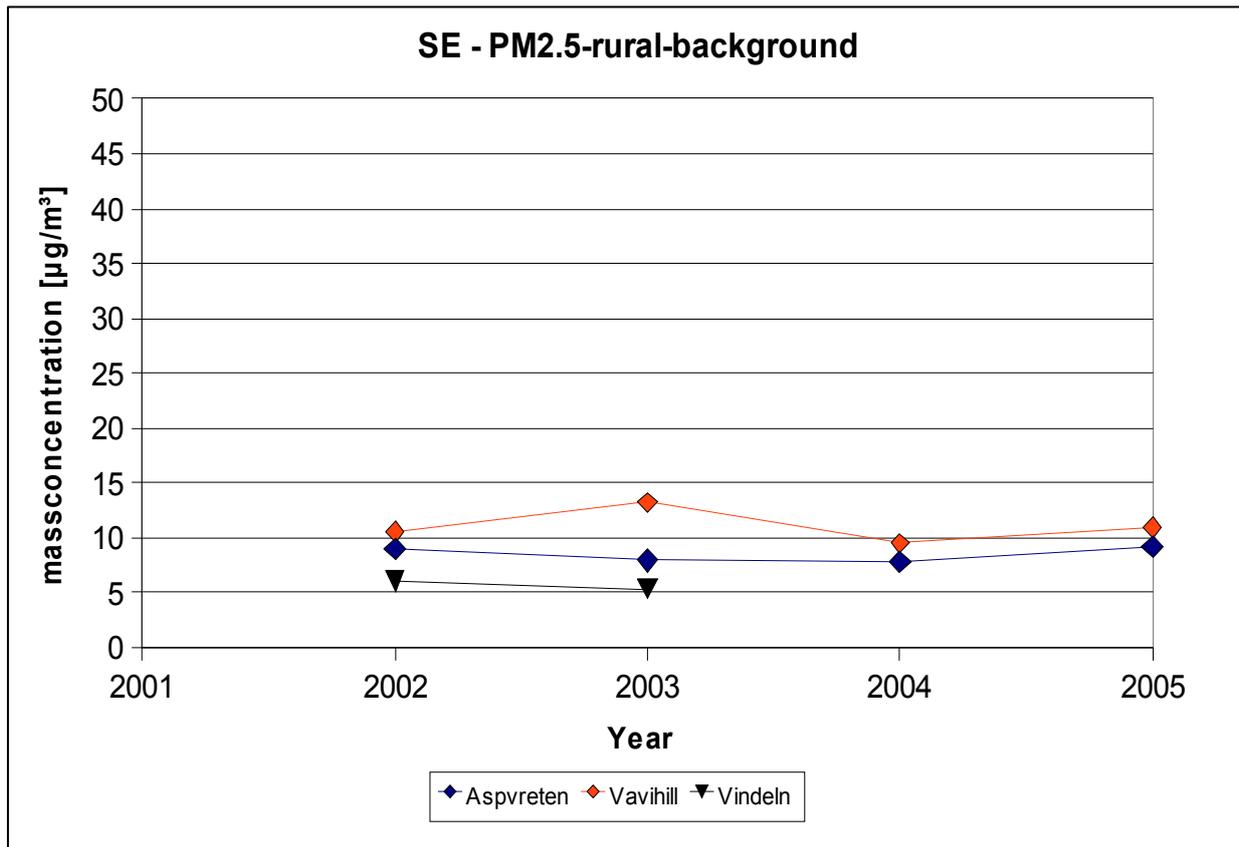












Literaturverzeichnis

Ackerman, A.S., Toon, O.B., Stevens D.E., Heymsfield, A.J., Ramanathan, V., Welton, E.J. Reduction of tropical cloudiness by soot. *Science* 288, 1042-1047, 2000

Anderson, H.R. Air pollution and mortality: A history. *Atmospheric Environment* 43, 142-152, 2009

Bell, M.L., Davis, D.L., Fletcher, T. A Retrospective Assessment of Mortality from the London Smog Episode of 1952 : The Role of Influenza and Pollution. *Environmental Health Perspectives* 112, Nr. 1, 2004

Bohren, C.F., Huffman, D.R. Absorption and Scattering of Light by Small Particles. John Wiley and Sons, 1983

Bond, T.C., Bergstrom, R.W. Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review. *Aerosol Science and Technology* 40, 27-67, 2006

Brimblecombe, P. The Big Smoke, A History of Air Pollution in London Since Medieval Times, Methuen, London, 1987

Brown, A.S., Yardley, R.E., Quincey, P.G., Butterfield, D.M. Studies of the effect of humidity and other factors on some different filter materials used for gravimetric measurements of ambient particulate matter. *Atmospheric Environment* 40, 4670-4678, 2006

Burtscher, H. Measurement and characteristics of combustion aerosols with special consideration of photoelectric charging and charging by flame ions. *Journal of Aerosol Science* 23, 549-595, 1992

Bussemer, M. Ruß in verschiedenen atmosphärischen Reservoiren und seine Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. Dissertation, Fakultät für Physik und Geowissenschaften der Universität Leipzig, 1998

Cachier, H., Bremond, M.P., Buat-Menard, P. Thermal Separation of Soot Carbon. *Aerosol Science and Technology* 10, 358-364, 1989

Cohen, A.J., Anderson, R., Ostro, B., Pandey, K.D., Krzyzanowski, M., Kunzli, N., gutschmidt, K., Pope, A., Romieu, I., Samet, J.M., Smith K. The global burden of disease due to outdoor air pollution. *Journal of Toxicologic and Environmental Health A68*, 1301, 2005

Cooke, W.F., Wilson, J.J.N. A global black carbon aerosol model. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 101, No. D14, 19.395-19.400, August 27, 1996

Edwards, J.D., Ogren, J.A., Weiss, R.E., Charlson, R.J. Particulate air pollutants-a comparison of British 'smoke' with optical absorption coefficient and elemental carbon concentration. *Atmospheric Environment* 17, 2337-2341, 1983

Erdmann, A., Israel, G.W., Ulrich, E. Vergleich des Black-Smoke-Verfahrens mit Absolutmessungen der atmosphärischen Russimmission. *Staubreinhaltung der Luft* 53, 187-191, 1993

Fenger, J. Air pollution in the last 50 years – From local to global. *Atmospheric Environment* 43, 13-22, 2009

Fischer, P., Ameling, C., Marra, M., Cassee, F.R. Absence of trends in relative risk estimates for the association between Black Smoke and daily mortality over a 34 years period in The Netherlands. *Atmospheric Environment* 43, 481-485, 2009

Goldberg, M.S., Burnett, R.T., Yale, J.-F., Valois, M.-F., Brook, J.R. Association between ambient air pollution and daily mortality among persons with diabetes and cardiovascular disease. *Environmental Research* 100, 255-267, 2006

Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., Nazarenko, L., Lacis, A., Schmidt, et al. Efficacy of climate forcings. *Journal of geophysical research (Atmosphere)* 110(D18), Art.Nr. D18104, 2005

Harrison, R.G. Urban smoke concentrations at Kew, London, 1989-2004. *Atmospheric Environment* 40, 3327-3332, 2006

Heal, M. R., Hibbs, L.R., Agius, R.M., Beverland, I.J. Interpretation of variations in fine, coarse and black smoke particulate matter concentrations in a northern European city, *Atmospheric Environment* 39, 3711-3718, 2005

Hinds, W.C. *Aerosol Technology- Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles*. John Wiley und Sons, Inc., 1999

Highwood, E.J., Kinnersley, R.P. When smoke gets in your eyes: the multiple impacts of atmospheric black carbon on climate, air quality and health. *Environmental International* 32, 560- 566. 2006

Hitzenberger, R. Absorption coefficients and mass concentrations of urban aerosol of Vienna, Austria, during the years 1985 and 1986. *Water, Air and Soil* 71, 131-153, 1993

Hitzenberger, R. Puxbaum, H. Comparison of the Measured and Calculated Specific Absorption Coefficients for the Urban Aerosol Samples in Vienna. *Aerosol Science and Technology* 18, 323-345, 1993

Hitzenberger, R., Dusek, U., Berner, A. Black carbon measurements using an integrating sphere. *Journal of Geophysical Research* 101, No. D14, 19.601-19.606, 1996

Hitzenberger, R., Berner, A., Giebl, H., Drobesch, K., Kasper-Giebl, A., Loefflund, M. Urban, H., Puxbaum, H. Black carbon (BC) in alpine aerosols and cloud water- concentrations and scavenging efficiencies. *Atmospheric Environment* 35, 5135-5141, 2001

Hitzenberger, R., Tohno, S. Comparison of black carbon (BC) aerosols in two urban areas – concentrations and size distributions. *Atmospheric Environment* 35, 2153-2167, 2001

Hitzenberger, R., Ctyroky, P., Berner, A., Tursic, J., Podkrajsek, B., Grgic, I. Size distribution of black (BC) and total carbon (TC) in Vienna and Ljubljana. *Chemosphere* 65, 2106- 2113, 2006

Hoek, G., Forsberg, B., Borowska, M., Hlawiczka, S., Vaskövi, E., Welinder, H., Branis, M., Benes, I., Kotesovec, F., Otto Hagen, L., Cyrys, J., Jantunen, M., Roemer, W., Brunekreef, B. Wintertime PM₁₀ and Black Smoke concentrations across Europe: Results from the PEACE study. *Atmospheric Environment* 31, 3609-32622, 1997

Iorga, G., Hitzenberger, R., Kasper-Giebl, A., Puxbaum, H. Direct radiative effect modeled for regional aerosols in central Europe including the effect of relative humidity. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 112, No. D01204, January 13, 2007

Janssen, N.A.H., van Vliet, P.H.N., Aarts, F., Harssema, H., Brunekreef, B. Assessment of exposure to traffic related air pollution of children attending schools near motorways. *Atmospheric Environment* 35, 3875-3884, 2001

Jeong, C.-H., Hopke, P.K., Kim, E., Lee, D.-W. The comparison between thermal-optical transmittance elemental carbon and Aethalometer black carbon measured at multiple monitoring sites. *Atmospheric Environment* 38, 5193-5204, 2004

Johnson, B., Shine, K., Forster, P. The semi-direct aerosol effect : impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus. *Q J R Meteorol. Soc.* 130, 1407, 2004

Kampa, M., Castanas, E., Human health effects of air pollution. *Environmental Pollution* 151, 362-367, 2008

Kirchstetter, T.W., Aguiar, J., Tonse, S., Fairley, D., Novakov, T. Black carbon concentrations and diesel vehicle emission factors derived from coefficient of haze measurements in California: 1967-2003. *Atmospheric Environment* 42, 480-491, 2008

Kleefeld, S., Hoffer, A., Krivácsy, Z., Jennings, S.G. Importance of organic and black carbon in atmospheric aerosols at Mace Head, on the West Coast of Ireland. *Atmospheric Environment* 36, 4479-4490, 2002

Koren, I., Kaufman, J., Remer, L., Martins, J. Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation. *Science* 303, 1342-1345, 2004

Liu, L., Mishchenko, M.I., Menon, S., Macke, A., Lacis, A.A., The effect of black carbon on scattering and absorption of solar radiation by cloud droplets. *Journal of Quantitative Spectroscopy und Radiative Transfer* 74, 195-204, 2002

Madhavi Latha, K., Badarinath, K.V.S. Black carbon aerosols over tropical urban environment - a case study. *Atmospheric Environment* 69, 125-133, 2003

Martins, J.V., Artaxo, P., Liousse, C., Reid, J.S., Hobbs, P.V., Kaufman, Y.J. Effects of black carbon content, particle size and mix in on light absorption by aerosols from biomass burning in Brazil. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 103, No. D4, 32.041-32.050, 1998

McCartney, E.J. *Optics of the Atmosphere – Scattering by Molecules and Particles*. John Wiley and Sons, 1976

McMurry, P. A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmospheric Environment* 34, 1959-1999, 2000

Muir, D. Black Smoke as a surrogate for PM10 in health studies? *Atmospheric Environment* 29, 959-962, 1994

Muir, D. New Directions: The suitability of tapered element oscillating microbalances (TEOMs) for PM10 monitoring in Europe. The use of PM10 data as measured by TEOM for compliance with the European Air Quality Standard. *Atmospheric Environment* 34, 3209-3211, 2000

Niemi, J.V., Tervahattu, H., Vehkamäki, H., Kulmala, M., Koskentalo, T., Sillanpää, M., Rantamäki, M., Characterization and source identification of a fine particle episode in Finland. *Atmospheric Environment* 38, 5003-50012, 2004

Novakov, T., Hansen, J.E. Black carbon emissions in the United Kingdom during the past four decades: an empirical analysis. *Atmospheric Environment* 38, 4155-4163, 2004

Pakkanen, T.A., Kerminen, V.-M., Ojanen, C.H., Hillamo, R.E., Aarnio, P., Koskentalo, T. Atmospheric black carbon in Helsinki. *Atmospheric Environment* 34, 1497-1506, 1999

Penner, J.E., Eddleman, H., Novakov, T. Towards the development of a global inventory for black carbon emissions. *Atmospheric Environment* 27A, 1277-1295, 1993

Penner, J.E., Zhang, S.Y., Chuang, C.C., Soot and smoke aerosol may not warm climate. *Journal of Geophysical Research* 108 [art no. 4657], 2003

Petzold, A., Niessner, R. Method comparison on soot-selective techniques. *Mikrochimica Acta* 117, 215-237, 1995

Pope, C., Dockery, D.W. Epidemiology of Particle Effects. *Air Pollution and Health*, 673-705, 1999

Pöschl, U. Atmosphärische Aerosole: Zusammensetzung, Transformation, Klima und Gesundheitseffekte. *Angewandte Chemie* 117, 7690-7712, 2005

Püschel, R.F. Stratospheric Aerosols: Formation, Properties, Effects. *Journal of Aerosol Science* 27, 383-402, 1996

Puxbaum, H., Gomiscek, B., Kalina, M., Bauer, H., Salam, A., Stopper, S., Preining, O., Hauck, H. A dual site study of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosol chemistry in the larger region of Vienna, Austria. *Atmospheric Environment* 38, 3949-3958, 2004

Querol, X., Alastuey, A., Ruiz, C.R., Artinano, B., Hansson, H.C., Harrison, R.M., Buringh, E., ten Brin, H.M., Lutz, M., Bruckmann, P., Straehl, P., Schneider, J. Speciation and origin of PM₁₀ and PM_{2.5} in selected European cities. *Atmospheric Environment* 38, 6547-6555, 2004

Quincey, P., A relationship between Black Smoke Index and Black Carbon concentration. *Atmospheric Environment* 41, 7964-7968, 2007

Ruellan, S., Cachier, H. Characterisation of fresh particulate vehicular exhausts near a Paris high flow road. *Atmospheric Environment* 35, 453-468, 2000

Schaap, M., Denier van der Gon, H.A.C. On the variability of Black Smoke and carbonaceous aerosols in the Netherlands. *Atmospheric Environment* 41, 5908-5920, 2007

Spoelstra, H., Hollander, J.C.T., Verhagen, H.L.M., Wesseling, J.P., Teeuwisse, S.D. HEAVEN project: report on the TNO measuring and modelling results in 2000 and 2001 for use of the development of a new atmospheric dispersion model, TNO report R2002/377, TNO-MEP, Apeldoorn (Netherlands), 2002

Tanner, R.L., Miguel, A.H. Carbonaceous aerosol sources in Rio de Janeiro. *Aerosol Science and Technology* 10, 311-325, 1989

Venkataraman C., Lyons, J.M., Friedlander, S.K. Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon. 1. Sampling, measurement methods, and source characterization. *Environmental Science and Technology* 28, 555-562, 1994

Visser, H., Buringh, E., van Breugel, P.B. Composition and Origin of Airborne Particulate Matter in the Netherlands. RIVM report 650010 029, 2001

Wedding, J.B., Weigand, M.A. The Wedding ambient aerosol sampling inlet ($D_{50} = 10\mu\text{m}$) for the high volume sampler. *Atmospheric Environment* 19, 535, 1985

Wehner, B., Birmili, W., Gnauk, T., Wiedensohler, A. Particle number size distribution in a street canyon and their transformation into the urban-air background: measurements and a simple model study. *Atmospheric Environment* 36, 2215-2223, 2002

Weimer, S., Mohr, C., Richter, R., Keller, J., Mohr, M., Prévôt, A.S.H., Baltensperger, U. Mobile measurements of aerosol number and volume size distributions in an Alpine valley: Influence of traffic versus wood burning. *Atmospheric Environment* 43, 624-630, 2008

Whitby, K.J. The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment* 12, 135-159, 1978

WHO (World Health Organisation). Health aspects of air pollution with particulate matter, ozone and nitrogen dioxide. Bonn: WHO Press; 2003

Willeke, K., Baron, P.A. *Aerosol Measurements: Principles, Techniques, and Applications*. Van Nostrand Reinhold, New York, 1993

Internetreferenzen

(1) Wikipedia: Mie-streuung

http://de.wikipedia.org/wiki/Datei:3D_Miestreuung_an_2um_Kugel.jpg

(Letzter Zugriff: 1.7.2009)

(2) Oregon Medical Laser Center: Mie Scattering Calculator:

http://omlc.ogi.edu/calc/mie_calc.html

(Letzter Zugriff: 1.7.2009)

(3) IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). Climate Change 2007: Synthesis Report.

<http://www.ipcc.ch/ipccreports/ar4-syr.htm>

(Letzter Zugriff: 30.6.2009)

(4) APHEA-Studie (Air Pollution and Health - A European Approach):

<http://ec.europa.eu/research/success/en/env/0267e.html>

(Letzter Zugriff: 29.6.2009)

(5) NILU (Norwegian Institute für Air Research). Measurement of PM10 Particles:

http://tarantula.nilu.no/projects/ccc/manual/documents/03_15-Measurement%20of%20pm10%20particles.htm

(Letzter Zugriff: 30.6.2009)

(6) WHO (World Health Organisation). Selected methods of measuring air pollutants, 1976:

http://whqlibdoc.who.int/offset/WHO_OFFSET_24.pdf

(Letzter Zugriff: 29.6.2009)

(7) ten Brink, H.M., Keuken, M.P. Ultrafine particles and carbon from road traffic emissions. ECN/TNO-C—00-037, 2000:

<http://www.ecn.nl/docs/library/report/2000/c00037.pdf>

(Letzter Zugriff: 29.6.2009)

(8) EU-Richtlinien 96/62/EG: (Kap.5)

http://eur-lex.europa.eu/smartapi/cgi/sga_doc?smartapi!celexplus!prod!DocNumber&lg=de&type_doc=Directive&an_doc=1996&nu_doc=62

(Letzter Zugriff: 1.7.2009)

(9) EU-Richtlinie 1999/30/EG:

http://eur-lex.europa.eu/smartapi/cgi/sga_doc?smartapi!celexplus!prod!DocNumber&lg=de&type_doc=Directive&an_doc=1999&nu_doc=30

(Letzter Zugriff: 1.7.2009)

(10) Airbase - Datenbank der European Environment Agency (EEA):

<http://www.eea.europa.eu/themes/air/airbase>

(Letzter Zugriff: 29.6.2009)

(11) UK-airquality-archiv

<http://www.airquality.co.uk/archive/smsites.php>

(Letzter Zugriff: 29.6.2009)

(12) Umweltbundesamt Österreich:

http://www.umweltbundesamt.at/umweltschutz/luft/luftguete_aktuell/grenzwerte/

(Letzter Zugriff: 30.6.2009)

Lebenslauf

Name: Hannes Subera
Geburtsdatum: 24.12.1982
Geburtsort: Wien
Familienstand: ledig
Wohnsitz: Wilhelmstraße 44/1/15,
1120 Wien
Email: subera.h@gmx.net
Telefon: 0699/12291014

AUSBILDUNG

2002 – 2009 Studium der Physik an der Universität Wien
2001 – 2002 Grundwehrdienst (Panzerbatallion 33, Zwölfaxing)
Juni 2001 Matura am BG Wien 14, Astgasse 3 (in welchen Fächern hast du maturiert?)
1993 – 2001 BG-Wien 14, Astgasse 3. Gymnasium mit Schwerpunkt Sport

PRAKTIKA UND FERIALJOBS

2003 – 2009 „Lebenshilfe Wien“: Inventarisierungstätigkeiten
2002 „Fundraising International Inc.-Manfred Ringhofer“: Spendensammlung
2001 Markt- und Meinungsforschungsinstitut „Integral“: Telefon- und Straßenbefragungen