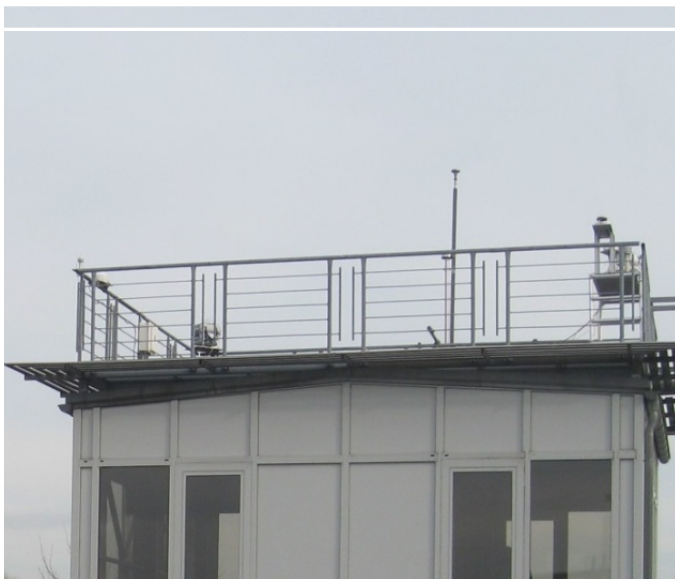


Aerosole zur Indikation der Luftqualität im Raum Leipzig

Schriftenreihe, Heft 7/2016



Korngrößendifferenzierte chemisch-physikalische Aerosolcharakterisierung als Indikator der Veränderung der Luftqualität gegenüber 2000 in Leipzig und Sachsen

Dominik van Pinxteren, Gerald Spindler, Konrad Müller, Khandeh Wadinga Fomba,
Yoshiteru Iinuma, Fabian Rasch, Kay Weinhold,
Wolfram Birmili, Alfred Wiedensohler, Hartmut Herrmann

1	Einleitung	14
1.1	Aufgabenstellung und Ziele	14
1.2	Grundlagen zu Aerosolpartikeln	15
1.2.1	Größenverteilung.....	15
1.2.2	Chemische Zusammensetzung	16
1.2.3	Quellbeiträge	16
1.2.4	Wirkungen	17
1.2.5	Langzeittrends.....	17
2	 Projektdurchführung und experimentelle Methoden	19
2.1	Probenahmestandorte.....	19
2.2	Probenahme.....	20
2.2.1	Massebestimmung und chemische Analysen.....	22
2.2.1.1	Massebestimmung	22
2.2.1.2	Ionen	22
2.2.1.3	Organischer und elementarer Kohlenstoff.....	22
2.2.1.4	Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff.....	23
2.2.1.5	Monosaccharide	23
2.2.1.6	Unpolare organische Einzelverbindungen	23
2.2.1.7	Metalle.....	24
2.2.2	Physikalische in-situ-Messungen	25
2.2.2.1	Rußmassenkonzentration.....	25
2.2.2.2	Partikelanzahlgrößenverteilung	25
2.2.3	Meteorologie und Spurengase	26
2.3	Messtage für chemische Aerosolcharakterisierung.....	26
2.4	Anströmungszuordnung	28
3	 Ergebnisse	29
3.1	Meteorologie und Spurengase	29
3.1.1	Meteorologische Bedingungen während der Kampagnen.....	29
3.1.2	Spurengaskonzentrationen während der Kampagnen.....	35
3.2	Partikelanzahlkonzentrationen	42
3.3	Konzentrationsvergleiche der PM-Inhaltsstoffe	54
3.3.1	Vorbemerkungen.....	54
3.3.2	Masse.....	55
3.3.3	Hauptionen	56
3.3.4	Spurenionen	58
3.3.5	Kohlenstoff	60
3.3.6	Monosaccharide	62
3.3.7	Alkane	64
3.3.8	PAK.....	67
3.3.9	Hopane.....	69
3.3.10	Metalle.....	71
3.3.11	Zusammenfassung Konzentrationsvergleiche an Stationen.....	75
3.4	Ost-West-Anströmung – Einfluss Ferntransport.....	76
3.4.1	Vorbemerkungen.....	76
3.4.2	Masse, Ionen, Kohlenstoff.....	76
3.4.3	Organische Verbindungen und Metalle	81
3.4.4	Zusammenfassung Vergleich Luftmassenherkunft.....	84
3.5	Quellbeiträge nach Lenschow	84
3.5.1	Vorbemerkungen.....	84

3.5.2	Masse.....	84
3.5.3	Hauptionen.....	85
3.5.4	Nebenionen.....	86
3.5.5	Kohlenstoff.....	88
3.5.6	Monosaccharide.....	90
3.5.7	Alkane.....	92
3.5.8	PAK.....	94
3.5.9	Hopane.....	96
3.5.10	Metalle.....	97
3.5.11	Zusammenfassung.....	101
3.6	Quellbeiträge aus Markerverbindungen.....	101
3.6.1	Vorbemerkungen.....	101
3.6.2	Bilanzierung Quellanteile Kohlenstoff.....	101
3.6.3	Markerverbindungen.....	109
3.6.4	Zusammenfassung.....	116
3.7	Quellbeiträge aus PMF.....	117
3.7.1	Vorbemerkungen.....	117
3.7.2	Datenvorbereitung.....	117
3.7.3	Anzahl der Faktoren.....	119
3.7.4	Übersicht über Faktoren und ihre Interpretation.....	120
3.7.5	Verkehrsemissionen.....	125
3.7.6	Weitere Verbrennungsemissionen.....	131
3.7.7	Sekundäres Aerosol.....	135
3.7.8	See- und Streusalz.....	140
3.7.9	Kochen.....	143
3.7.10	Primäres biologisches Material.....	145
3.7.11	Stadtstaub.....	146
3.7.12	Diskussion der PMF-Ergebnisse.....	148
3.7.13	Zusammenfassung PMF.....	154
3.8	Vergleich der Quellzuordnungsansätze.....	155
3.9	Einordnung in lange Zeitreihen.....	159
3.10	Veränderungen der PM-Belastung zum Jahr 2000.....	177
3.10.1	Vorbemerkungen.....	177
3.10.2	Masse.....	177
3.10.3	Ionen.....	178
3.10.4	Kohlenstoff.....	181
3.10.5	Alkane und PAK.....	183
3.10.6	Metalle.....	187
3.10.7	Zusammenfassung.....	192
3.11	Mögliche Maßnahmen zur weiteren Luftreinhaltung.....	192
4	Zusammenfassung.....	193
	Literaturverzeichnis.....	196

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Schematische Darstellung der Beiträge zur Partikelmassenkonzentration in einer Stadtregion (SCHEINHARDT et al. 2012 in Anlehnung an LENSCHOW et al. 2001)	16
Abbildung 2:	Jährliche Mittel der PM ₁₀ -Massenkonzentration, des Gehaltes wasserlöslicher Ionen (1993-2014) und von organischem (OC) und elementarem Kohlenstoff (EC) (2003-2014). Die Anzahl der realisierten Messtage pro Jahr sind unter den Jahreszahlen angegeben. Die Fehlerbalken zeigen die positive Standardabweichung der täglichen Messungen.....	18
Abbildung 3:	Fotos der vier Stationen TROPOS (TRO), Melpitz (MEL), Leipzig Mitte (LMI) und Eisenbahnstraße (EIB) (von links nach rechts und von oben nach unten).....	20
Abbildung 4:	Fünfstufiger BERNER-Niederdruckimpaktor (Querschnitt und Ansicht mit anisokinetischem Einlasskopf und Manometer).....	21
Abbildung 5:	Bruker S2 PICOFOX TXRF-Instrument (links); TXRF-Spektrum von Saharastaub (rechts)	25
Abbildung 6:	Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt.....	30
Abbildung 7:	Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt.....	33
Abbildung 8:	Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt.....	34
Abbildung 9:	Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt.....	36
Abbildung 10:	Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt.....	37
Abbildung 11:	Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt	39
Abbildung 12:	Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt	40
Abbildung 13:	Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt	40
Abbildung 14:	Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt	41
Abbildung 15:	Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl (N[20;110nm]) und Partikelmasse (M[40;110nm], M[110;330nm], M[330;800nm]). Gezeigt sind Tagesmittelwerte der verfügbaren Messdaten für den Zeitraum der Sommermessungen (15.06.–13.10.2013).....	43
Abbildung 16:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B1-B8.....	44
Abbildung 17:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B9-B16.....	45
Abbildung 18:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B17-B24.....	46
Abbildung 19:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B25-B32.....	47
Abbildung 20:	Abhängigkeit der Partikelanzahl (N[20;110nm], in cm ⁻³) und Partikelmasse (M[40;110nm], M[110;330nm], M[330;800nm], in µg m ⁻³) von der Windrichtung. Die Grafiken zeigen arithmetische Mittelwerte für den Sommerzeitraum 15.06.-13.10.2013.	48
Abbildung 21:	Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl (N[20;110nm]) und Partikelmasse (M[40;110nm], M[110;330nm], M[330;800nm]), Tagesmittelwerte, 01.12.2013–31.03.2014	49
Abbildung 22:	Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl (N[20;110nm]) und Partikelmasse (M[40;110nm], M[110;330nm], M[330;800nm]), Tagesmittelwerte, 01.12.2014–31.03.2015	50
Abbildung 23:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 14.12. und 17.12.2013.....	51
Abbildung 24:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 08.01. und 15.01.2014.....	51
Abbildung 25:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 23.01. und 25.01.2014.....	51
Abbildung 26:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 29.01. und 06.02.2014.....	52
Abbildung 27:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 17.02. und 24.02.2014.....	52
Abbildung 28:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 01.12. und 03.12.2014.....	52

Abbildung 29:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 21.01. und 30.01.2015.....	53
Abbildung 30:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 10.02. und 13.02.2015.....	53
Abbildung 31:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 15.02. und 19.02.2015.....	53
Abbildung 32:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 24.02. und 26.02.2015.....	54
Abbildung 33:	Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für den BERNER-Messtag 16.03.2015	54
Abbildung 34:	Mediane der größen aufgelösten Partikelmassekonzentration der Messperioden Sommer und Winter an allen vier Stationen.....	55
Abbildung 35:	Konzentration der Hauptionen (Median) an allen vier Standorten im Sommer 2013 und den Wintern 2013, 2014 und 2015	57
Abbildung 36:	Mediane der Konzentration der Spurenionen in den Sommer- und Wintermessungen an allen vier Messstandorten.....	59
Abbildung 37:	Mediane der OC-, EC-, TC- und WSOC-Konzentrationen auf den fünf Stufen des BERNER-Impaktors für die Sommer- und Wintertage der aktuellen Kampagne an den vier Standorten	61
Abbildung 38:	Mediane der Konzentration der Zucker und Anhydrozucker an allen Stationen in allen Größenklassen für die Sommer- bzw. Wintermessperioden	63
Abbildung 39:	Mediane der Konzentration der Alkane an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden.....	65
Abbildung 40:	Mediane der Konzentration der PAK an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden	67
Abbildung 41:	Mediane der Konzentration der Hopane an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden.....	70
Abbildung 42:	Größen aufgelöste Median-Konzentrationen der Summe der bestimmten Spurenmetalle für Sommer- und Winterkampagne	72
Abbildung 43:	Mediane der PM ₁₀ -Konzentration der Spurenmetalle an allen Messstandorten im Sommer bzw. im Winter.....	73
Abbildung 44:	Mediane der größen aufgelösten Konzentration für Partikelmasse, ionische Bestandteile OC, EC und WSOC unterschieden nach Station, Jahreszeit und Anströmung	77
Abbildung 45:	Konzentrationen der Summe der Einzelorganika innerhalb ihrer Stoffklasse und der Metalle, unterschieden nach Jahreszeit, Station und Anströmung	82
Abbildung 46:	Größen aufgelöste Mediane der Lenschow-Inkrementen für PM-Masse und Konzentration an der regionalen Hintergrundstation MEL.....	84
Abbildung 47:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Hauptionen im regionalen Hintergrund und Lenschow-Inkrementen für die Stadtstationen im Sommer und Winter.....	86
Abbildung 48:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Spurenionen im regionalen Hintergrund und der städtischen Lenschow-Inkrementen für Sommer und Winter.....	87
Abbildung 49:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Kohlenstoff-Parameter im regionalen Hintergrund und Lenschow-Inkrementen für die städtischen Messstandorte getrennt nach Winter- und Sommermessungen	89
Abbildung 50:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Monosaccharide (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter.....	91
Abbildung 51:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Alkane (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter.....	92
Abbildung 52:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der PAK (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter.....	94
Abbildung 53:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Hopane (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter.....	96
Abbildung 54:	Größen aufgelöste Mediane der Summenkonzentrationen der Spurenmetalle (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter.....	97
Abbildung 55:	Größen aufgelöste Mediane der Konzentrationen der Spurenmetalle (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen für Sommer und Winter	99
Abbildung 56:	Abgeleitete Anteile (absolut) am TC für OC und EC für Stufe 3 in LMI. Vergleich für die beiden Kampagnen (nur Tage mit Westanströmung oder nicht zugeordneter Anströmung). Der	

	Dieserverkehrsanteil wurde für beide Kampagnen zu 90 % von EC (Verkehr) angenommen. Es ist die „Wirkung“ der Verdopplung (oberes Bild) und des 1,7-Fachen (unteres Bild) der Mischungsschichthöhe im Sommer im Vergleich zum Winter gezeigt.....	104
Abbildung 57:	Mittelwerte für Stufe 2 bis 4 der absoluten EC- und OC-Anteile für Hausbrand, Verkehr und biologische Emissionen am TC. Vergleich der beiden Kampagnen unterschieden für Sommer (So) und Winter (Wi) und nach Hauptanströmung (W+N, West + nicht zugeordnet; O, Ost) für alle Messorte. Über den Säulen für Winter wurde der errechnete Hausbrandanteil relativ vom TC und als absolute Konzentration angegeben. Für Stufe 4 wurde die Abszisse 2-fach vergrößert.	106
Abbildung 58:	Mittlerer relativer Anteil des Hausbrandes an TC im Winter und absoluter Anteil des TC Hausbrandes für die Stufen 2, 3 und 4. Diagramme für die „Kampagne 2000“ mit nur West- und nicht zugeordneten Tagen, „Kampagne aktuell“ mit nur West- und nicht zugeordneten Tagen und mit nur Ost-Tagen. In der „Kampagne 2000“ erfolgten keine Messungen an der Station EIB.....	108
Abbildung 59:	Mittlere PM ₁₀ -Anreicherungsfaktoren der Spurenmetalle (bezogen auf den Titangehalt in der Erdkruste) für alle Stationen	113
Abbildung 60:	Anteile von Krustenmaterial an Gesamt-PM ₁₀ -Konzentrationen im Winter und Sommer an allen Stationen.....	115
Abbildung 61:	Mittlerer Beitrag des Bremsabriebes zum PM ₁₀ an allen Stationen im Winter und Sommer.....	116
Abbildung 62:	Chemische Profile der PMF-Faktoren in den 5 Partikelgrößebereichen des BERNER-Impaktors (Farbe) mit ihrer Zuordnung zu einer Quelle (rechts). Balken zeigen den Anteil der Spezies an der Gesamtfaktormasse (Σ über Spezies im Faktor = 1), Punkte zeigen den Anteil der Spezies an ihrer Gesamtkonzentration im Partikelgrößebereich (Σ über Faktoren für Spezies = 1).....	122
Abbildung 63:	Normierte Konzentrationen (Mittelwert im Faktor = 1) der mittels PMF den identifizierten Quellen zugeordneten PM-Masse in den 5 Partikelgrößebereichen des BERNER-Impaktors (Farbe) an allen 4 Standorten. Die Probennummern sind pro Station chronologisch sortiert, die schwarze Linie bei Probe Nr. 34 zeigt jeweils den Beginn der Wintermessungen.	124
Abbildung 64:	Chemische Profile der 3 Verkehrsquellen „ultrafeine Abgaspartikel“ (oben), „grobe Abgaspartikel“ (Mitte) und „Verkehr allgemein“ (unten); Masse- und Speziesanteile wie in Abbildung 62.....	126
Abbildung 65:	Konzentrations-„Zeitreihen“ der 3 Verkehrsquellen „ultrafeine Abgaspartikel“ (oben), „grobe Abgaspartikel“ (Mitte) und „Verkehr allgemein“ (unten) in versch. Partikelgrößebereichen (Farbe und rechts)	128
Abbildung 66:	Polardiagramme für die PM-Massekonzentrationen aus den 3 PMF-Faktoren „ultrafeine Abgaspartikel“, „grobe Abgaspartikel“ und „Verkehr allgemein“ für die Stationen Leipzig-Mitte, TROPOS und Melpitz. NO _x an Messtagen zum Vergleich. Farbskala gibt Konzentration in Windgeschwindigkeit/Windrichtungs-Bins wieder (nach Glättung). Unterschiedliche Skalen in versch. Diagrammen.....	129
Abbildung 67:	Korrelationen der PM-Konzentrationen aus den PMF-Verkehrsquellen mit NO _x an LMI, TRO und MEL.....	130
Abbildung 68:	Chemische Profile der 3 Verbrennungsquellen „Kohleverbrennung“ (oben), „lokale Kohleverbrennung“ (Mitte) und „Biomasseverbrennung“ (unten). Masse- und Speziesanteile wie Abbildung 62	132
Abbildung 69:	Konzentrations-„Zeitreihen“ der beiden Kohleverbrennungsquellen „ferntransportiert“ (oben) und „lokal“ (unten) in den Partikelgrößebereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden.....	133
Abbildung 70:	Konzentrations-„Zeitreihen“ der Quelle „Biomasseverbrennung“ in den Partikelgrößebereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden	134
Abbildung 71:	„Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Verbrennungsquellen Kohle und Biomasse für Akkumulationsmode-Partikel auf den Impaktorstufen 2 und 3. Graue Flächen sind Kontinente, die Farbskala gibt die mittlere Konzentration in MEL an, die für Luftmassen aus der jeweiligen Region gemessen (bzw. vom Modell zugeordnet) wurde.....	135
Abbildung 72:	Chemische Profile der 2 sekundären Quellen „sekundäres anorganisches Aerosol“ (oben) und „Photochemie“ (unten)	136
Abbildung 73:	Konzentrations-„Zeitreihen“ der 2 sekundären Quellen „sekundäres anorganisches Aerosol“ (oben) und „Photochemie“ (unten) in den Partikelgrößebereichen (Farben), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden	138

Abbildung 74:	Korrelationen der Quellbeiträge des Photochemie-Faktors (links, Impaktorstufen 1–3) und des SIA-Faktors (rechts, Impaktorstufen 2–4) mit Temperatur (Zeile 1), Globalstrahlung entlang der Rückwärtstrajektorie (Zeile 2), relativer Feuchte (Zeile 3), Ozon (Zeile 4), Schwefeldioxid (Zeile 5) und Stickoxiden (Zeile 6). Sommer- und Winterdaten farblich unterschieden. Alle Daten an der Station TRO.	139
Abbildung 75:	„Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Sekundärquellen „Photochemie“ (links) und „sekundäres anorganisches Aerosol“ (rechts) auf den Impaktorstufen 2 (oben) und 3 (unten) für MEL ...	140
Abbildung 76:	Chemische Profile der beiden Salzquellen „See- und Streusalz“ (oben) und „gealtertes Seesalz“ (unten).....	141
Abbildung 77:	Konzentrations-„Zeitreihen“ der beiden Salzquellen „See- und Straßensalz“ (oben) und „gealtertes Seesalz“ (unten) in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden	142
Abbildung 78:	„Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Salzquellen „Seesalz“ (links) und „gealtertes Seesalz“ (rechts) für Partikel der Impaktorstufe 4 in MEL	143
Abbildung 79:	Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „Kochaerosol“ in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie vom PMF-Modell aufgelöst wurden	144
Abbildung 80:	Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „primäres biologisches Material – Pilzsporen“	146
Abbildung 81:	Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „resuspendierter städtischer Staub“	147
Abbildung 82:	Mittlere Größenverteilungen (Mediane) der Konzentrationen aus den mittels PMF quantifizierten Quellgruppen.....	148
Abbildung 83:	Kumulative mittlere Konzentrationen (arithmetisches Mittel, s. Text) der mittels PMF quantifizierten Quellgruppen.....	151
Abbildung 84:	Kumulative mittlere Anteile (arithmetische Mittelwerte, s. Text) der Konzentrationen aus den Quellgruppen an der Gesamtmasse im betrachteten Partikelgrößenbereich (Impaktorstufen und PM ₁₀)	152
Abbildung 85:	PM ₁₀ -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes. Für den Sommer 2003 ist auf Grund einer zu geringen Zahl an Messtagen kein Sommerhalbjahresmittelwert gezeigt.	161
Abbildung 86:	PM _{2,5} -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.....	162
Abbildung 87:	PM ₁₀ Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit westlicher Anströmung. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.	163
Abbildung 88:	PM _{2,5} -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit westlicher Anströmung. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.	164
Abbildung 89:	PM ₁₀ -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit östlicher Anströmung. Für die „Kampagne 2000“ sind keine Messungen bei östlicher Anströmung vorhanden. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.	165
Abbildung 90:	PM _{2,5} -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit östlicher Anströmung. Für die „Kampagne 2000“ sind keine Messungen bei östlicher	

	Anströmung vorhanden. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.	166
Abbildung 91:	Mittelwerte der PM ₁₀ -Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM _{2,5} - und PM ₁₀ -Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für PM _{2,5} und PM ₁₀ (Kreise) in Bezug zur Temperatur	167
Abbildung 92:	Mittelwerte der PM ₁₀ -Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM _{2,5} - und PM ₁₀ -Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für PM _{2,5} und PM ₁₀ (Kreise) in Bezug zur Windgeschwindigkeit	168
Abbildung 93:	Mittelwerte der PM ₁₀ -Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM _{2,5} - und PM ₁₀ -Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für PM _{2,5} und PM ₁₀ (Kreise) in Bezug zur mittleren Globalstrahlung	169
Abbildung 94:	Vergleich der Mittelwerte der Partikelmassenkonzentrationen für PM ₁₀ und PM _{2,5} in Melpitz und Leipzig Mitte gemessen mit dem HV-Sammler an Tagen der „Kampagne 2000“ (Balken mit schwarzem Rahmen) und der „Kampagne aktuell“ (Balken ohne Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen Messungen und jeweils für Tage mit westlicher oder östlicher Anströmung gezeigt. In der Kampagne 1999/00 konnten keine Tage mit Ostanströmung beprobt werden. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes	170
Abbildung 95:	Black Carbon an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an.	171
Abbildung 96:	Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswindmesser 40–110 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an	172
Abbildung 97:	Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswindmesser 110–330 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an	173
Abbildung 98:	Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswindmesser 330–800 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an	174
Abbildung 99:	Partikelanzahlkonzentration (Mobilitätswindmesser 20–110 nm), aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an	175
Abbildung 100:	Partikelanzahlkonzentration (Mobilitätswindmesser 20–800 nm), aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler auf Basis von Tagesmittelwerten an	176
Abbildung 101:	Vergleich der größen aufgelösten Median-Massekonzentrationen, die jeweils bei Westanströmung in den Jahren 2000 bzw. 2013–2015 an den Stationen Leipzig Mitte, Leipzig TROPOS und Melpitz gesammelt wurden.	178
Abbildung 102:	Vergleich der Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkremente 2000 und im aktuellen Projekt	178
Abbildung 103:	Vergleich der Konzentration der ionischen Aerosolkomponenten der Messkampagnen 2000 und 2013–2015	179

Abbildung 104: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt.....	180
Abbildung 105: Median der Konzentration von OC, EC und TC auf den fünf Stufen des BERNER-Impaktors. Vergleich zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ für Sommer und Winter.....	181
Abbildung 106: Inkremente (Mediankonzentrationen nach dem Lenschow-Ansatz) von OC, EC und TC auf den fünf Stufen des BERNER-Impaktors. Vergleich zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ für Sommer und Winter	182
Abbildung 107: Vergleich der Konzentration der Alkane für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne	184
Abbildung 108: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt.....	185
Abbildung 109: Vergleich der Konzentration der PAK für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne	186
Abbildung 110: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt.....	187
Abbildung 111: Vergleich der Konzentration der Spurenmetalle für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne	188
Abbildung 112: Vergleich der Konzentration im regionalen Hintergrund und der Inkremente der Stadtstationen zwischen den Messkampagnen 2000 und 2013–2015 für Sommer und Winter	191
Abbildung 113: Relative Anteile der wichtigsten Quellgruppen für PM ₁₀ an der Station Leipzig-Mitte	194
Abbildung 114: Mittlere PM _{3,5} Konzentration von EC im regionalen Hintergrund und zusätzliche Inkremente im urbanen Hintergrund sowie durch Verkehr in den Jahren 2000 und 2013–2015	195

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Abscheidegrenzen für aerodynamischen Partikeldurchmesser ($D_{p_{aer}}$) im fünfstufigen BERNER-Kaskadenimpaktorimpaktor.....	21
Tabelle 2:	Leitsubstanzen für die Analyse auf organische Einzelverbindungen	24
Tabelle 3:	Übersicht über Messtage für diskontinuierliche Probenahme mit BERNER-Impaktor	27
Tabelle 4:	Mittelwerte (Summe für Niederschlag) meteorologischer Parameter für alle Messtage der Sommerkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar.....	31
Tabelle 5:	Mittelwerte (Summe für Niederschlag) meteorologischer Parameter für alle Messtage der Winterkampagnen 2013/14 und 2014/15; an Station EIB keine Daten verfügbar	35
Tabelle 6:	Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Sommerkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar	37
Tabelle 7:	Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Winterkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar	41
Tabelle 8:	Massenkonzentrationen (PM_{10}) (Median/Arithmetische Mittel [min-max]) während der Sommer- bzw. Wintermessperioden für Masse und Ionen in $\mu g m^{-3}$	55
Tabelle 9:	Partikelmassenkonzentration für Kohlenstoff PM_{10} (Summe der BERNER-Impaktorstufen) an den Messtationen, getrennt für Sommer- und Winterhalbjahr, angegeben als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in $\mu g m^{-3}$	62
Tabelle 10:	PM_{10} -Konzentrationen der Monosaccharide angegeben als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in $ng m^{-3}$	64
Tabelle 11:	PM_{10} -Konzentrationen (Median/Mittelwert [Min-Max]) der Alkane und aliphatischen Ketone in $ng m^{-3}$	66
Tabelle 12:	PM_{10} -Konzentrationen der PAK und oxy-PAK als Median/Mittelwert (Min – Max) in $ng m^{-3}$	68
Tabelle 13:	PM_{10} -Konzentrationen der Hopane als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in $ng m^{-3}$ für Sommer- und Wintermesskampagnen	71
Tabelle 14:	PM_{10} -Konzentrationen (Median/Mittelwert [Min-Max]) der Spurenmetalle in $ng m^{-3}$	74
Tabelle 15:	PM_{10} Masse- und Haptionenkonzentrationen (in $\mu g m^{-3}$) an allen Probenahmeorten in Hinblick auf die Jahreszeit und die Anströmung.....	78
Tabelle 16:	PM_{10} Konzentration (in $ng m^{-3}$) der Spurenionen an allen Messstationen in Hinblick auf die Jahreszeit und die Anströmung, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max).....	79
Tabelle 17:	Konzentrationen für Kohlenstoff PM_{10} an den Messstationen unterschieden nach Hauptanströmung und Jahreszeit, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max) in $\mu g m^{-3}$	80
Tabelle 18:	Stoffklassenkonzentrationen der organischen Verbindungen in PM_{10} (Summe der BERNER-Impaktorstufen) an den Messstationen unterschieden nach Hauptanströmung, getrennt für Sommer und Winter als Median/Mittelwert (Min – Max) in $ng m^{-3}$	83
Tabelle 19:	PM_{10} -Konzentrationen der Masse und der drei Haptionen ($\mu g m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und PM_{10} -Inkrementen des städtischen Hintergrundes (Urban) bzw. des Verkehrs, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)	85
Tabelle 20:	PM_{10} -Konzentrationen der Spurenionen ($ng m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Lenschow-Inkrementen im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max).....	88
Tabelle 21:	PM_{10} -Konzentrationen der Kohlenstoffparameter ($\mu g m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max).....	89
Tabelle 22:	PM_{10} -Konzentrationen der Monosaccharide ($ng m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max).....	91
Tabelle 23:	PM_{10} -Konzentrationen der Alkane und Alkanone ($ng m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)	93
Tabelle 24:	PM_{10} -Konzentrationen der PAK ($ng m^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkrementen der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)	95

Tabelle 25: PM ₁₀ -Konzentration der Hopane (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Minimum-Maximum).....	97
Tabelle 26: PM ₁₀ -Konzentrationen der Spurenmetalle (ng m ⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)	100
Tabelle 27: Mittlere OC/EC-Verhältnisse auf Stufe 1 an der Verkehrsstation LMI.....	103
Tabelle 28: Beiträge der Biomasseverbrennung zu PM ₁₀ , OC ₁₀ und EC ₁₀ in Sommer und Winter	111
Tabelle 29: Beitrag von Pilzsporen auf PM ₁₀ und OC ₁₀ in Sommer und Winter.....	112
Tabelle 30: Für die Rezeptormodellierung mittels PMF verwendete PM-Bestandteile mit ihrer Kategorisierung im EPA-PMF-Programm und ihren typischen Quellkategorien	118
Tabelle 31: Übersicht über mittels PMF identifizierte PM-Quellen, Partikelgrößenbereiche, in denen sie vom Modell aufgelöst wurden und ihre Hauptbestandteile sowie charakteristischen Marker.....	121
Tabelle 32: PM ₁₀ -Konzentrationen und -Massenanteile der mittels PMF zugeordneten Quellgruppen an allen Stationen. Werte angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)	153
Tabelle 33: Ergebnisse der verschiedenen Quellzuordnungsansätze für die Hauptquellgruppen Verbrennung und sekundäres Material. Gezeigt sind Median/Mittelwert für PM ₁₀ -Konzentration und -Anteil (in Klammern, bezogen auf Masse, OC oder EC) der Quellgruppe	156
Tabelle 34: Ergebnisvergleich der verschiedenen Quellzuordnungsansätze für weitere Quellen. Gezeigt sind Median/Mittelwert für Konzentration und Anteil (in Klammern) der Quellgruppe. Anteile beziehen sich immer auf den jeweiligen Parameter (Masse, OC oder EC).	157

Abkürzungsverzeichnis

BB	Biomasseverbrennung (engl. biomass burning)
BC	Schwarzer Kohlenstoff (engl. black carbon)
CPI	Kohlenstoff-Präferenz Index (engl. carbon preference index)
Dp _{aer}	Aerodynamischer Durchmesser
EC	Elementarer Kohlenstoff (engl. elemental carbon)
EIB	Messstation Leipzig-Einbahnstraße
GC	Gaschromatographie
HPAEC	Hochleistungs-Anionenaustauschchromatographie
HV	High-Volume (Sammler)
IC	Ionenchromatographie
KfZ	Kraftfahrzeug
LfULG	Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landesamt und Geologie
LMI	Messstation Leipzig-Mitte
MAAP	Multiwinkel-Absorptionsphotometer (engl. multi angle absorption photometer)
MEL	Messstation Melpitz
MEZ	Mitteleuropäische Zeit
MS	Massenspektrometrie
NN	Höhe über Normalnull
n.v.	nicht verfügbar
O	Ost
OC	Organischer Kohlenstoff (engl. organic carbon)
PAD	Gepulste amperometrische Detektion (engl. pulsed amperometric detection)
PAK	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe
PM ₁	Partikuläres Material mit aerodynamischem Durchmesser < 1 µm
PM _{2,5}	Partikuläres Material mit aerodynamischem Durchmesser < 2,5 µm
PM ₁₀	Partikuläres Material mit aerodynamischem Durchmesser < 10 µm
SIA	Sekundäres anorganisches Aerosol (engl. secondary inorganic aerosol)
SOA	Sekundäres organisches Aerosol
SS	Seesalz
TC	Gesamter Kohlenstoff (engl. total carbon)
TDMPMS	Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometer (engl. twin differential mobility particle sizer)
TRO	Messstation Leipzig-TROPOS
TSP	Gesamtes luftgetragenes partikuläres Material (engl. total suspended particles)
TXRF	Totalreflexions-Röntgenfluoreszenzanalyse (engl. total reflection X-ray fluorescence)
UFP	Ultrafeine Partikel (Ø≤100nm)
VDI	Verein Deutscher Ingenieure
W	West
WISC	Wasserunlöslicher Kohlenstoff (engl. water-insoluble carbon)
WSOC	Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff (engl. water-soluble organic carbon)

1 Einleitung

1.1 Aufgabenstellung und Ziele

Im Projekt „Korngrößendifferenzierte chemisch-physikalische Aerosolcharakterisierung als Indikator der Veränderung der Luftqualität gegenüber 2000 in Leipzig und Sachsen“ (Aerosol 2013) des Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) wurde mit Hilfe wissenschaftlicher Sondermessungen die Luftqualität an vier Standorten für 2013/2014/2015 charakterisiert und im Bezug zu Sondermessungen aus dem Jahr 2000 beurteilt.

Es handelte sich hierbei sowohl um diskontinuierliche größen aufgelöste chemische Partikelcharakterisierung des PM_{10} an ausgewählten Tagen in einer Sommer- und einer Winterkampagne als auch um ganzjährige kontinuierliche Messungen des Rußgehaltes im PM_{10} und der Partikelgrößenverteilung an folgenden vier Standorten: Leipzig-Mitte (LMI, verkehrsnah, lokaler Hotspot), Leipzig Eisenbahnstraße (EIB, verkehrsnah, lokaler Hotspot), Leipzig TROPOS (TRO, urbaner Hintergrund) und Melpitz TROPOS-Forschungsstation (MEL, regionaler Hintergrund).

Der Bezug zu 2000 wurde über Ergebnisse der kontinuierlichen Messungen PM_{10} aus dem Messnetz des LfULG, langfristiger täglicher PM_{10} -Messungen mit Quantifizierung der Inhaltsstoffe wasserlösliche Ionen und Kohlenstoff (OC, EC) an der TROPOS-Forschungsstation Melpitz (vgl. SPINDLER et al. 2013) und Ergebnissen von Sondermessungen aus 2000 hergestellt (BRÜGGEMANN et al. 2000; HERRMANN et al. 2006).

Ziel war, die Veränderung der Luftqualität in der letzten Dekade ergänzend zu den vom LfULG erhobenen gesetzlichen Messgrößen darzustellen, Hauptquellen für die Luftbelastung in Sachsen zu identifizieren, die Rolle der Biomasseverbrennung und des Schadstoff-Ferntransportes für die Hintergrundbelastung zu analysieren und Empfehlungen für Maßnahmen einer nachhaltigen Luftreinhaltepolitik abzuleiten.

In einem ersten Zwischenbericht wurden die Messergebnisse der Sommerkampagne 2013 dargestellt. Ebenfalls wurden in einem zweiten Zwischenbericht Daten aus den Winterhalbjahren 2013/14 und 2014/15 dargestellt. Ursprünglich waren 20 Messtage im Winter 2013/14 für die diskontinuierliche Probenahme geplant. Es zeigte sich jedoch, dass die Temperaturen im Winter 2013/14 außergewöhnlich mild waren und nur sehr selten Tage mit winterlichem Charakter auftraten. Daher wurden im Einvernehmen mit dem Auftraggeber 10 der geplanten 20 Messtage im Winter 2013/14 realisiert und die übrigen in den Winter 2014/15 verschoben. Somit erhoffte man eine bessere Chance im Projekt, mit dem Winterdatensatz auch tatsächlich winterliche Bedingungen zu charakterisieren.

Im vorliegenden Abschlussbericht wird nun der komplette Datensatz umfassend ausgewertet. Nach einleitenden Grundlagen zu Aerosolpartikeln (Kapitel 1) wird im Kapitel 2 die Projektdurchführung inklusive der verwendeten experimentellen Methoden erläutert. Kapitel 3 beginnt mit der Darstellung der meteorologischen Bedingungen während der Kampagnen und einer kurzen Diskussion der Spurengaskonzentrationen (Kapitel 3.1), bevor die Ergebnisse der physikalischen und chemischen Messungen dargestellt werden. Der Fokus liegt hier auf einer sehr umfassenden Auswertung der größen aufgelösten detaillierten chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel an den vier Projektstationen hinsichtlich der folgenden Gesichtspunkte:

- Vergleich der Jahreszeiten und Stationen (Kapitel 3.3)
- Vergleich der Anströmungsregime Ost – West (Kapitel 3.4)
- Ableitung von Quellbeiträgen nach Lenschow (Kapitel 3.5)
- Ableitung von Quellbeiträgen mittels Markerverbindungen (Kapitel 3.6)
- Ableitung von Quellbeiträgen mittels Positiver Matrixfaktorisierung (Kapitel 3.7)
- Vergleich der verschiedenen Quellzuordnungsansätze (Kapitel 3.8)
- Einordnung der aktuellen Konzentrationen in langjährige Messreihen (Kapitel 0)
- Veränderung der PM-Belastung zum Jahr 2000 (Kapitel 3.10)

Die Diskussionen basieren dabei auf den Konzentrationen der PM-Bestandteile in den Substanzgruppen Haptionen, Spurenenionen, Kohlenstoff, Monosaccharide, Alkane, PAK, Hopane und Metalle, die jeweils im Detail dargestellt werden. Die wichtigsten Befunde werden am Ende jedes Unterkapitels zusammengefasst.

Aus den Ergebnissen der Betrachtungen werden in Kapitel 3.11 mögliche Maßnahmen abgeleitet, die als Vorschläge für weiter verbesserte Luftreinhaltung bezüglich PM dienen sollen.

In Kapitel 4 schließlich werden die zentralen Ergebnisse des Projektes zusammengefasst.

1.2 Grundlagen zu Aerosolpartikeln

Aerosole in der Atmosphäre sind Dispersionen fester oder flüssiger Partikeln in der umgebenden Gasphase (Luft). Atmosphärische Aerosolpartikel können sowohl direkt in die Troposphäre emittiert werden (Primärpartikel) als auch in Folge chemischer Reaktionen gebildet und verändert werden (Sekundärpartikel). Auf Grund unterschiedlicher Quellen, einer unterschiedlichen Quellverteilung und chemischer Reaktionen (Gasphasen-, Multiphasenreaktionen und heterogener Reaktionen) während des Transportes haben troposphärische Partikel sehr unterschiedliche chemische (HERRMANN et al. 2006) und physikalische Eigenschaften (PASTUSZKA et al. 2003) und zeigen eine hochvariable Größenverteilung. Diese bedingt unterschiedliche Verweilzeiten und Transportdistanzen in der Atmosphäre (JAENICKE 1978; WARNECK 2000; ZENDER et al. 2003; SPINDLER et al. 2010; SPINDLER et al. 2012). Die vorherrschenden meteorologischen Bedingungen sind ein wichtiger Faktor, der den Langstreckentransport und damit die Variation von Spurengas- und Partikelmassekonzentrationen und die Größenverteilung der Partikel beeinflussen (z. B. NEUSÜß et al. 2000; LAMMEL et al. 2003; BARMPADIMOS et al. 2011; MIKKONEN et al. 2011; MUES et al. 2012).

1.2.1 Größenverteilung

Die Größenverteilung von atmosphärischen Partikeln bildet sich in unterschiedlichen Moden ab, dem Nukleationsmode, dem Akkumulationsmode und dem Coarse Mode (grobkörniger Mode). Partikel des Nukleationsmode (aerodynamischer Durchmesser $D_{p_{aer}} < 0,1 \mu\text{m}$, auch „ultrafeine Partikel“) können durch Koagulation und mittels Gas-zu-Partikel-Umwandlungsprozessen in den Akkumulationsmodes ($D_{p_{aer}}$ von $0,1$ bis $1 \mu\text{m}$) aufwachsen. Partikel dieser Klasse haben eine relativ lange Verweilzeit in der Troposphäre. Im Coarse Mode ($D_{p_{aer}} > 1 \mu\text{m}$) finden sich überwiegend primär emittierte Partikel (z. B. aus Hausbrand, Reemission von Straßenstaub, Krustenmaterial, Seesalz), deren Zusammensetzung jedoch durch chemische Prozesse in der Atmosphäre modifiziert sein kann. Die Partikel dieser Größenstufen werden durch trockene und nasse Deposition aus der Atmosphäre ausgeschieden.

1.2.2 Chemische Zusammensetzung

Die Hauptbestandteile des troposphärischen Aerosols sind anorganische Ionen (z. B. HILDEMANN et al. 1984; LAMMEL & LEIP 2005; PLESSOW et al. 2005; FISSEHA et al. 2006; SHARMA et al. 2007), organischer (OC) und elementarer Kohlenstoff (EC) (TRAN et al. 1997; TURPIN et al. 2000; YUE & FRASER 2004; VAN PINXTEREN et al. 2009; PIETROGRANDE et al. 2011; SPINDLER et al. 2012), unlösliches Krustenmaterial (MAENHAUT et al. 2005; CHEN et al. 2010) und Wasser (MCINNES et al. 1996; NEUSÜß et al. 2000; ENGELHART et al. 2011). Die Fraktion des OC besteht aus einer Vielzahl individueller organischer Verbindungen wie z. B. n-Alkanen, Hopanen, Fettsäuren, polycyclische Aromaten (PAK), Lignin-Pyrolyseprodukten, Dicarbonsäuren und weiteren Spezies des oxidativen Abbaus gasförmiger organischer Vorläuferverbindungen (SCHAUER & CASS 2000; SIMONEIT 2002a; ZHENG et al. 2002; ALVES et al. 2006; FUZZI et al. 2006; IINUMA et al. 2010; AVINO et al. 2011; MOHR et al. 2012).

1.2.3 Quellbeiträge

Die Partikelkonzentration in einer Stadtregion wird durch verschiedene anthropogene und natürliche Quellen, die in der Stadtregion selbst, im regionalen Umfeld und im entfernten Umland zu finden sind, verursacht (diffuse, stationäre und mobile Quellen). Nach LENSCHOW et al. 2001 wird die Partikelmassenkonzentration als eine Überlagerung unterschiedlicher Quellen innerhalb und außerhalb der Stadt erklärt (Abbildung 1). Die lokalen kleinräumigen Hotspots sind z. B. durch Verkehrsemissionen dominiert (stark befahrene Straßen oder Kreuzungsbereiche) und zeigen hoch variable PM-Konzentrationen. Aufgrund ihrer beschränkten räumlichen Ausdehnung sind sie wenig repräsentativ. Wichtig zur Charakterisierung der PM-Belastung sind demgegenüber Bereiche des urbanen Hintergrundes, weil sich in diesem Bereich große Teile der innerstädtischen Siedlungsflächen befinden. Die PM-Konzentration ist hier gleichmäßiger verteilt und ein gut ausgewählter Probenahmeort kann eine größere Fläche repräsentieren.

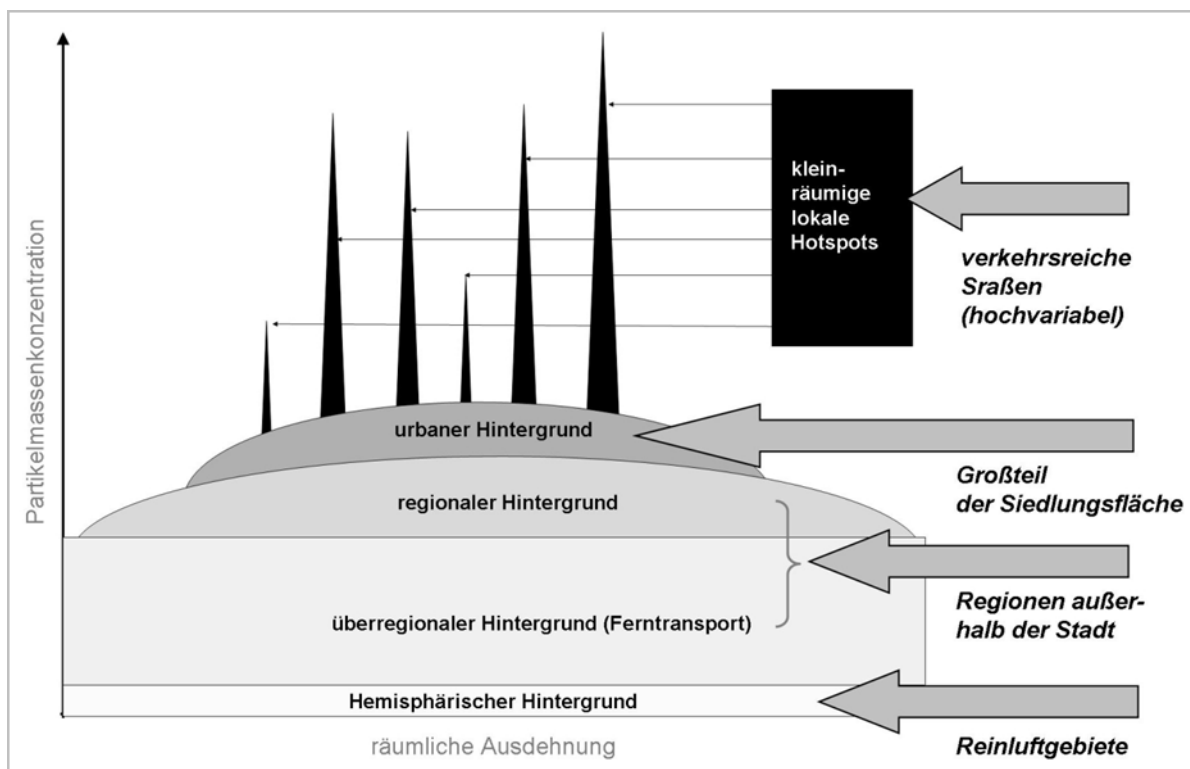


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Beiträge zur Partikelmassenkonzentration in einer Stadtregion (SCHEINHARDT et al. 2012 in Anlehnung an LENSCHOW et al. 2001)

Verschiedene Maßnahmen zur Senkung der PM₁₀-Partikelmassenkonzentration werden für städtische Bereiche in Luftreinhalteplänen festgeschrieben. Eine solche Maßnahme, die zusätzlich noch die Emission für EC senkt, ist eine Umweltzone. Die Stadt Leipzig hat sie 2011 eingeführt (LÖSCHAU et al. 2012). Der urbane Hintergrund in der Stadt kann je nach Anströmung und Jahreszeit zusätzlich durch Einträge aus dem regionalen Hintergrund und überregionalen Hintergrund beeinflusst werden. Für Langzeitmessungen eignet sich der regionale und überregionale Hintergrund, weil hier langfristige Veränderungen beobachtet werden können. Der hemisphärische Hintergrund gilt großräumig, er hat ein relativ niedriges Konzentrationsniveau und ist deshalb eher von untergeordneter Bedeutung. Er kann abgeschätzt werden, indem man eine zeitlich hochaufgelöst gemessene PM-Konzentration mit der Windgeschwindigkeit korreliert. Für halbstündliche PM₁₀-Konzentrationen an der Forschungsstation Melpitz des TROPOS ergeben sich hier je nach Jahreszeit Monatsmittelwerte zwischen 0,5 und 4 µg m⁻³ (vgl. SPINDLER et al. 2010).

1.2.4 Wirkungen

Atmosphärische Partikel beeinflussen das Klima (JACOB & WINNER 2009; JUDA-REZLER et al. 2012) durch den direkten Strahlungsantrieb einerseits (HAYWOOD & BOUCHER 2000) und über die Aktivierung zu Wolkentropfen (LOHMANN & FEICHTER 2005) andererseits. Klimaänderungen können andererseits auch direkt auf Partikelmassekonzentrationen rückwirken (SCHEINHARDT et al. 2013). Partikel unterschiedlicher Größe und chemischer Zusammensetzung haben Auswirkungen auf Ökosysteme (z. B. BÖHLMANN et al. 2005; JICKELLS et al. 2005) und Materialien (BAGDA & SPINDLER 2002) und beeinflussen auch die menschliche Gesundheit (z. B. HOEK et al. 2002; POPE et al. 2004; RÜCKERL et al. 2011). Speziell Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner 1 µm (PM₁), die in die Alveolen der Lunge eindringen können, sind hochwirksam (z. B. KAPPOS et al. 2004; PETERS 2009; POPE et al. 2009; FRANCK et al. 2011). Es wurde deshalb bereits im Jahr 1999 der seit 2005 gültige Grenzwert einer Massenkonzentration von 40 µg m⁻³ PM₁₀ (Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser < 10 µm) als Jahresmittelwert und mit einer erlaubten Anzahl von maximal 35 Überschreitungstagen im Jahr für ein Tagesmittel größer 50 µg m⁻³ festgelegt (EU-Kommission 1999). Seit 2008 ist auch ein Grenzwert für PM_{2,5} reguliert (EU-Kommission 2008).

1.2.5 Langzeittrends

Die Partikelmassenkonzentration PM₁₀ in der Atmosphäre über Europa nahm in den vergangenen drei Jahrzehnten viel weniger stark ab als die Summe der primären Partikelemissionen gesenkt werden konnte (Umweltbundesamt 2013). Dieser Effekt lässt sich nur durch eine stärkere Partikelmasseneubildung aus Vorläufergasen oder durch den Einfluss von Ferntransport erklären. In Deutschland ging in der Zeit zwischen 1985 und 1995 die Partikelmassenkonzentration in der Atmosphäre (TSP, total suspended particles) für Stationen im Tiefland um etwa 50 % zurück, während die Emissionen auf nur noch 15 % sanken. Allein im kurzen Zeitraum von 1989 bis 1992 halbierte sich die SO₂-Emission und die TSP-Emission sank auf ein Drittel (DÄMMGEN et al. 2012). Auch in den USA wurde ein ähnlicher Effekt beobachtet (WEST et al. 1999). Erwartungsgemäß ist dieser Effekt für Stationen im Bergland, die ohnehin geringere Immissionswerte registrierten und sich zeitweise oberhalb der Mischungsschichthöhe befinden, geringer ausgeprägt. Heute gehen die Partikelmassenkonzentrationen in Europa kaum noch weiter zurück (HARRISON et al. 2008; SPINDLER et al. 2013).

Abbildung 2 zeigt den Verlauf der mittleren jährlichen PM₁₀-Konzentration mit den Anteilen der wichtigsten wasserlöslichen Ionen und ab 2003 auch mit den Anteilen von OC und EC an der TROPOS-Forschungsstation Melpitz im regionalen Hintergrund Sachsens.

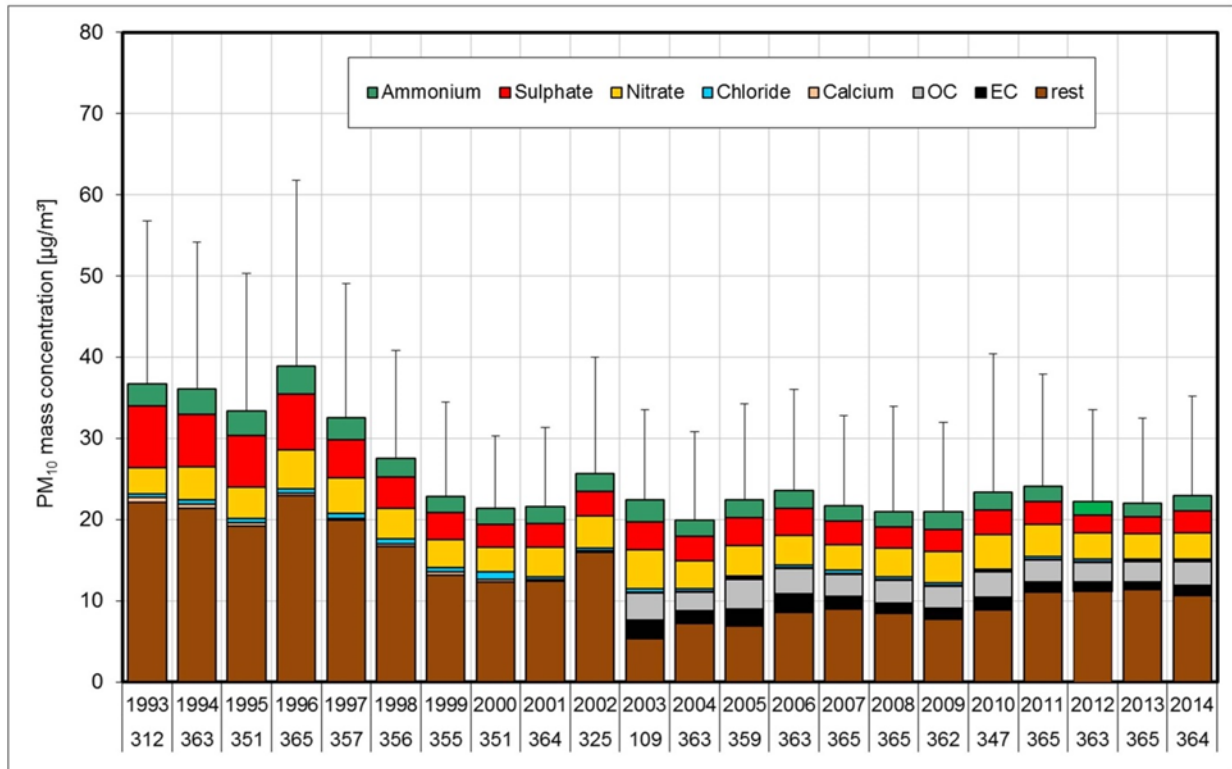


Abbildung 2: Jährliche Mittel der PM₁₀-Massenkonzentration, des Gehaltes wasserlöslicher Ionen (1993-2014) und von organischem (OC) und elementarem Kohlenstoff (EC) (2003-2014). Die Anzahl der realisierten Messtage pro Jahr sind unter den Jahreszahlen angegeben. Die Fehlerbalken zeigen die positive Standardabweichung der täglichen Messungen.

Aus dieser Abbildung wird auch ersichtlich, dass die jährliche mittlere Partikelmassenkonzentration von 1993 bis 1999 abnahm, danach bleibt sie mit einem Mittelwert von $22,3 \mu\text{g m}^{-3}$ in etwa konstant. Die absolute Schwankungsbreite zwischen den Jahren beträgt ab 2000 etwa $\pm 2,9 \mu\text{g m}^{-3}$, was etwa 13 % entspricht. Die fallenden PM₁₀-Konzentrationen zwischen 1993 und 1999 gehen einher mit sinkenden lokalen Primäremissionen von Feinstaub aus wenig effizienten und veralteten Kraftwerken in der Umgebung, die noch aus Zeiten der DDR vorhanden waren. Die abnehmende Bedeutung der individuellen Ofenheizung in den umliegenden Städten trug weiterhin zur Reduzierung primärer Staubemissionen bei. Damit gewann der relative Einfluss von Langstreckentransport und von sekundärer Bildung aus Partikelvorläufersubstanzen an Bedeutung. Heute ist der Ferntransport, insbesondere im Winter, die Hauptursache für hohe PM-Konzentrationen in großen Teilen Sachsens. Für die Jahre 2010 und 2011 ergaben sich wieder etwas höhere PM₁₀-Massenkonzentrationen als zuvor. Die Ursache dafür liegt in den relativ kalten Wintern mit höheren Emissionen von Feinstaub und Vorläufersubstanzen, verbunden mit dem Einfluss von Ferntransport anthropogen verschmutzter kontinentaler Luftmassen bei östlicher Anströmung. Es wird auch ersichtlich, dass bezüglich der PM₁₀-Konzentration seit 2000 kein gesicherter Trend für den regionalen Hintergrund in Sachsen festzustellen ist. Für einzelne Inhaltsstoffe zeigen sich jedoch Veränderungen, so nehmen die Sulfat- und EC-Konzentration leicht ab und die Konzentration von Nitrat bleibt in etwa konstant (SPINDLER et al. 2013).

Die Ursache für die im Verhältnis zur Emissionsreduzierung höheren Partikelmassenkonzentrationen ist in Deutschland nur durch sekundäre Partikelmassebildung und Importe über Langstreckentransport zu erklären. Den größten Anteil an der sekundären anorganischen Partikelmasse (secondary inorganic aerosol, SIA) haben die wasserlöslichen Hauptionen Sulfat, Nitrat und Ammonium (LAMMEL & LEIP 2005; KHODER & HASSAN 2008). Die sekundäre organische Partikelmassebildung (SOA) erklärt einen Teil des im PM₁₀ enthaltenen

Kohlenstoffs und macht einen weiteren bedeutenden Masseanteil an PM_{10} aus (HALLQUIST et al. 2009; POULAIN et al. 2011).

2 Projektdurchführung und experimentelle Methoden

2.1 Probenahmestandorte

Die Probenahme zur größen aufgelösten chemischen Charakterisierung von PM_{10} an ausgewählten Tagen und die kontinuierlichen Messungen für den Rußgehalt und die Partikelgrößenverteilung erfolgten an vier Stationen in Sachsen: einer vorhandenen Station des sächsischen Luftgütemessnetzes, die von der Betriebsgesellschaft für Umwelt und Landwirtschaft (BfUL) im Auftrag des LfULG betrieben wird, und drei Stationen des Leibniz-Instituts für Troposphärenforschung (TROPOS):

Leipzig Mitte (LMI)

Station im automatischen Luftgütemessnetz des Freistaates Sachsen (verkehrsnahe),

Charakter nach Lenschowansatz (LENSCHOW et al. 2001): lokaler Hotspot

Am Hallischen Tor, Kreuzung Willy-Brandt-Platz, Leipzig-Zentrum, nahe Hauptbahnhof, offene Bebauung, 110 m über NN

Leipzig Eisenbahnstraße (EIB)

Station des TROPOS in einer Straßenschlucht (verkehrsnahe),

Charakter nach Lenschowansatz: lokaler Hotspot

Eisenbahnstraße 81, Probenahme etwa 7 m über Straßenniveau, 130 m über NN

Leipzig TROPOS (TRO)

Station des TROPOS auf dem Institutsdach am Stadtrand,

Charakter nach Lenschowansatz: urbaner Hintergrund

Permoserstraße 15, im Norden von Leipzig im Wissenschaftspark auf dem Dach des dreistöckigen TROPOS-Hauptgebäudes, etwa 25 m über Grund und 130 m über NN

Melpitz (MEL)

Forschungsstation des TROPOS im nördlichen Tiefland Sachsens,

Charakter nach Lenschowansatz: regionaler Hintergrund

Die Station befindet sich ca. 51 km nordöstlich von Leipzig, nordwestlich von Dresden, $12^{\circ}56'$ OL, $51^{\circ}32'$ NB (ländlicher Charakter, Weideland), 87 m über NN

Abbildung 3 zeigt Fotos der oben beschriebenen Stationen.



Abbildung 3: Fotos der vier Stationen TROPOS (TRO), Melpitz (MEL), Leipzig Mitte (LMI) und Eisenbahnstraße (EIB) (von links nach rechts und von oben nach unten)

Die Stationen Leipzig Mitte (LMI), TROPOS (TRO) und Melpitz (MEL) waren im Forschungsvorhaben „Korngrößendifferenzierte Identifizierung der Anteile verschiedener Quellgruppen an der Feinstaubbelastung“ des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie, das im November 2000 abgeschlossen wurde, integriert. Somit ist ein Vergleich der hier zu erzielenden Ergebnisse mit denen von damals möglich.

2.2 Probenahme

Die größen aufgelöste Sammlung der Partikelproben erfolgte mit vier nahezu baugleichen fünfstufigen BERNER-Niederdruckimpaktoren (Hauke Ges.m.b.H & Co KG, Gmunden, Österreich; Gietl et al. 2008). Von zahlreichen Entwicklungen (MAY 1945; LODGE & CHAN 1986; MARPLE 2004) hat sich dieser Impaktor-Typ bewährt und sowohl am TROPOS als auch dem LfULG liegen umfangreiche praktische Erfahrungen für die Anwendung dieses Impaktors vor (PLEWKA et al. 2004a; BRÜGGEMANN et al. 2005; GNAUK et al. 2005; HERRMANN et al. 2006; VAN PINXTEREN et al. 2009; MÜLLER et al. 2010a; GNAUK et al. 2011; MÜLLER et al. 2012). Abbildung 4 zeigt den prinzipiellen Aufbau des Kaskadenimpaktors.

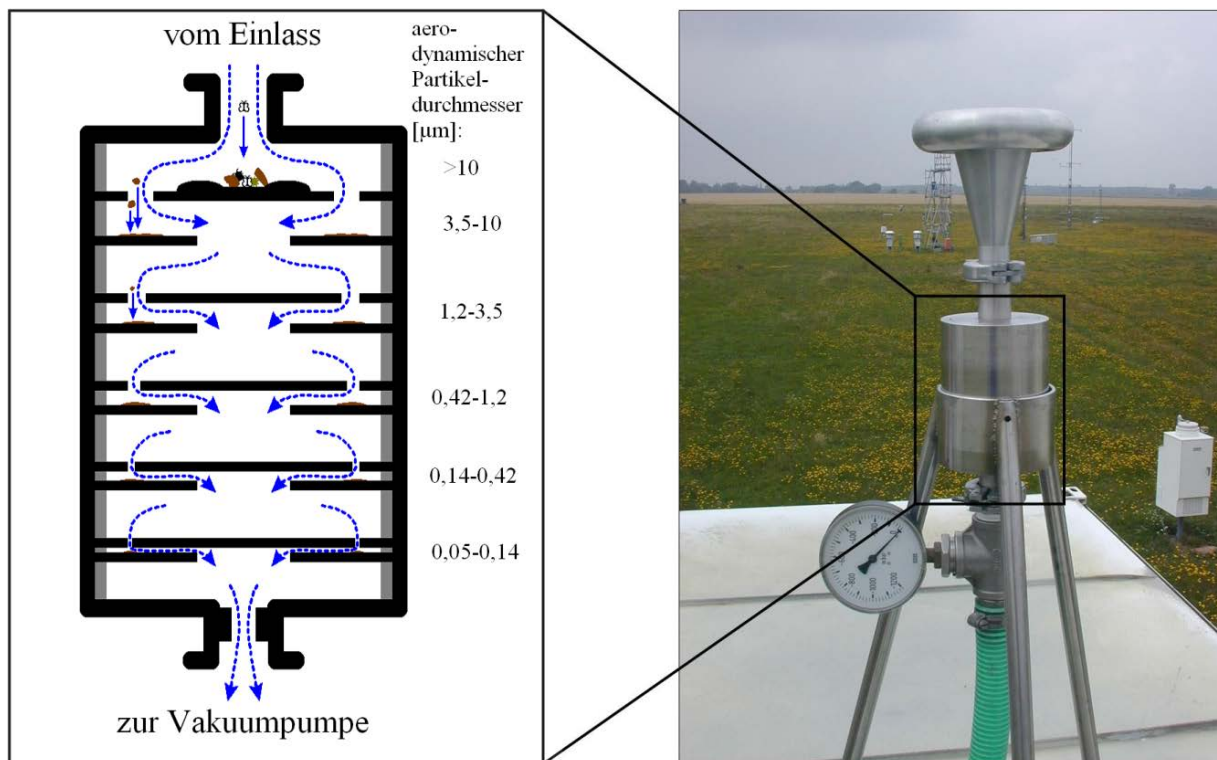


Abbildung 4: Fünfstufiger BERNER-Niederdruckimpaktor (Querschnitt und Ansicht mit anisokinetischem Einlasskopf und Manometer)

Auf den fünf Stufen des Kaskadenimpaktors werden Partikel nach Beschleunigung beim Durchtritt durch eine Düsenplatte mittels Trägheitsimpaktion auf dem Trägermaterial, das sich auf der darunter liegenden Prallplatte befindet, abgeschieden. Damit werden Partikel aus fünf Größenfraktionen (Stufen 1 bis 5) gesammelt. Der vom BERNER-Impaktor realisierte Größenbereich der Partikelprobenahme von 0,05 bis 10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser ($D_{p_{aer}}$) umfasst ultrafeine Partikel (Stufe 1), den Akkumulationsmode (Stufen 2+3) und den Coarse Mode (Stufen 4+5). Partikel, die größer als 10 µm sind, werden auf einem Vorabscheider aufgefangen. Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser $D_{p_{aer}} < 50$ nm können mit diesem Impaktor nicht erfasst werden. In Tabelle 1 sind die Abscheidegrenzen aufgelistet.

Tabelle 1: Abscheidegrenzen für aerodynamischen Partikeldurchmesser ($D_{p_{aer}}$) im fünfstufigen BERNER-Kaskadenimpaktor

Stufe	Abscheidegrenze, $D_{p_{aer}}$ [µm]
1	0,05 bis 0,14
2	0,14 bis 0,42
3	0,42 bis 1,2
4	1,2 bis 3,5
5	3,5 bis 10

Bei einer Anzahl von fünf Impaktorstufen innerhalb PM_{10} ist ein Kompromiss zwischen der Sammelzeit, die in diesem Vorhaben generell 24 Stunden beträgt, und der gesammelten Partikelmasse möglich. Der Impaktor hat einen Volumendurchfluss von 75 l min^{-1} , daraus resultiert ein Sammelvolumen von 108 m^3 in 24 Stunden. Die Abscheidung erfolgte in diesem Vorhaben auf Aluminiumfolien. Für die Metallbestimmung wurden zusätzlich Polycarbonat-Filtermaterial (Nuclepore®) zur Abscheidung einiger Spots sektoral aufgelegt (ca. 10 % der jeweiligen Impaktorfolienfläche).

Die gröÙenselektive Probenahme innerhalb PM₁₀ in fünf Stufen geht weit über die gegenwärtig gesetzlich geforderte Probenahme für PM₁₀ und PM_{2,5} hinaus (EU-Kommission 1999; EU-Kommission 2008). Die gröÙenaufgelöste Erfassung von Partikeln bis zum aerodynamischen Durchmesser von 10 µm hat weiterhin den Vorteil einer bedingten Vergleichbarkeit der in Summe aller Stufen erfassten Partikelmasse mit High-Volume-Sammlern (HV-Sammler, z. B. aus dem Messnetz des LfULG im Freistaat Sachsen, dem Umweltbundesamt oder von Forschungsstationen). Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass die Massenkonzentration PM₁₀, die formal durch Addition der Massenkonzentration auf den fünf Stufen des hier verwendeten Impaktors errechnet werden kann, typischerweise etwa 5 bis 15 % kleiner ist als die PM₁₀-Konzentration, die mit einem HV-Sammler (z. B. DIGITEL DHA-80, Walter Riemer Messtechnik, Deutschland) nach der Standardmethode (DIN EN 12341, 1998) gravimetrisch ermittelt wird. Für diese Abweichung gibt es verschiedene Gründe (NEUSÜß et al. 2002; WIEPRECHT et al. 2004): so schneiden die unterschiedlich konstruierten Einlässe die Größenverteilung unterschiedlich stark ab, Quarzfilter können im HV-Sammler einerseits mehr gasförmige Substanzen und Wasser binden, andererseits ist durch den Unterdruck im Impaktor die Flüchtigkeit von Ammoniumnitrat und organischen Bestandteilen etwas höher (CHANG et al. 2000). Weil diese Ursachen je nach physikalisch-chemischer Zusammensetzung des Aerosols unterschiedlich stark wirken, ist die Ableitung einer Korrektur nicht möglich. Es können deshalb die indirekt aus der Summe der fünf Stufen des Berner-Impaktors ermittelten PM₁₀-Massenkonzentrationen nicht zur Beurteilung gesetzlicher Grenzwerte herangezogen werden.

2.2.1 Massebestimmung und chemische Analysen

2.2.1.1 Massebestimmung

Die Berner-Impaktoren werden mit ringförmigen Aluminiumfolien bestückt, die zuvor für mindestens 2 h bei 350 °C ausgeglüht wurden. Diese Aluminiumfolien werden für mindestens 48 h bei 20 ± 1 °C und 50 ± 5 % relative Luftfeuchte in einer Box in einem klimatisierten und luftfeuchte-kontrollierten Wägeraum konditioniert und anschließend mit einer Präzisionswaage der Firma Mettler-Toledo (UMT 2) mit einer Ablesegenauigkeit von 0,1 µg und einer Standardabweichung von ca. 1 % gewogen. Nach der Beprobung werden die Filter erneut mindestens 48 h zu den gleichen Bedingungen konditioniert und gewogen. Die beprobten Impaktorfolien werden bei -18 °C bis zur Analyse aufbewahrt.

2.2.1.2 Ionen

Die Quantifizierung der Ionen erfolgt nach wässriger Extraktion in Reinstwasser (10 min Schütteln, 10 min Ultraschallbad, 10 min Schütteln) mittels Ionenchromatographie (Dionex ICS3000). Für die Trennung der Anionen werden AG18- und AS18-Säulen (2 mm) mit einem KOH-Eluenten und für die Trennung der Kationen werden CG16- und CS16-Säulen (3 mm) mit einem Methansulfonsäure-Eluenten verwendet. Es werden die Ionen Chlorid, Nitrat, Nitrit, Sulfat, Oxalat, Ammonium, Natrium, Kalium, Magnesium und Calcium bestimmt.

2.2.1.3 Organischer und elementarer Kohlenstoff

Die Bestimmung des organischen (OC) und elementaren (EC) partikulären Kohlenstoffs wird mit einer thermographischen Zweischritt-Methode in Anlehnung an die VDI-Richtlinie VDI 2465, Blatt 2, 1999 („Messen von Ruß [Immission] – Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffs nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffs“) durchgeführt. Dabei kommt ein Kohlenstoff-Analysator C-Mat 5500 (Ströhlein) zum Einsatz (NEUSÜß et al. 2002; PLEWKA et al. 2004b; HERRMANN et al. 2006; SPINDLER et al. 2012). Im ersten Schritt wird ein Teil der auf einer Aluminiumfolie gesammelten Partikelprobe unter Stickstoffatmosphäre auf 650 °C erhitzt. Die unter diesen Bedingungen volatilisierten Kohlenstoffanteile werden als OC definiert. Der Nachweis erfolgt in einem NDIR-Detektor (nicht dispersives Infrarot) nach vollständiger Oxidation zu CO₂ an einem CuO-Katalysator bei 850 °C. Im zweiten Schritt wird der verbliebene, nicht flüchtige Kohlenstoff unter Sauerstoffatmosphäre ebenfalls bei 650 °C zu CO₂ verbrannt und analog detektiert. Dieser Kohlenstoffanteil

wird als EC bezeichnet. Die Summe aus OC und EC bildet den Gesamtkohlenstoff (total carbon, TC). Kohlenstoff aus Carbonaten wird mit dieser Methode nicht erfasst. Das registrierte OC/EC-Verhältnis hängt von den angewandten Bedingungen für die OC/EC-Trennung ab. Es existieren zahlreiche Verfahren mit unterschiedlichsten Bedingungen und Temperaturprotokollen, die veröffentlichte Messwerte schwer vergleichbar machen (HITZENBERGER et al. 2006; YTTRI et al. 2007; CAVALLI et al. 2010). Für die Analyse auf den Aluminiumfolien des BERNER-Impaktors können keine Verfahren angewandt werden, die bei höheren Temperaturen als 650 °C ablaufen, weil sonst die Aluminiumfolien schmelzen (Schmelzpunkt: 660 °C). Damit scheidet hierfür auch das für Quarzfilter angewandte thermische Verfahren mit laseroptischer Korrektur aus, weil die angewandten Temperaturprotokolle EUSAAR-2, NIOSH und IMPROVE 660 °C überschreiten. Zudem kann der bei diesen Methoden zur Korrektur von Verkohlungsprozessen über Absorptions- oder Transmissionsmessung verwendete Lichtstrahl die Partikelspots auf Al-Folien nicht durchdringen und eine Ausrichtung des Lichtstrahls auf die diskreten, sehr kleinen Spots ist technisch nicht möglich. Für das VDI-Verfahren wurden vergleichbare Ergebnisse zu thermo-optischen Verfahren für den gesamten Kohlenstoffgehalt (TC) gefunden (SCHMID et al. 2001; TEN BRINK et al. 2004). Gegenüber einem thermo-optischen Verfahren mit Anwendung des EUSAAR-2 Temperaturprotokolls unterschätzt die VDI-Methode den Gehalt an organischem Kohlenstoff (OC) und überschätzt den Anteil elementaren Kohlenstoffs (EC), daraus ergibt sich ein kleineres OC/EC-Verhältnis (YTTRI et al. 2013). Darüber hinaus kann der TC-Gehalt wegen der höheren Endtemperatur von 850 °C beim thermo-optischen Verfahren etwas höher ausfallen als für das thermische VDI-Verfahren mit 650 °C. Diese messtechnisch bedingten, aber für die Einzelprobe nicht exakt quantifizierbaren Unterschiede sind bei Vergleichen von OC/EC Konzentrationen aus verschiedenen Messverfahren immer zu berücksichtigen.

2.2.1.4 Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff

Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff (engl. water-soluble organic carbon, WSOC) wurde nach wässriger Extraktion und Filtration des Extraktes mittels eines TOC-Analysators (Shimadzu TOC-VCPH) bestimmt. Hierbei wird durch Ansäuern mit 2 M Salzsäure und Spülen mit Helium anorganischer Kohlenstoff als CO₂ ausgetrieben und der gelöste organische Kohlenstoff anschließend bei 680 °C katalytisch zu CO₂ oxidiert. Dieses wird mittels nicht dispersiver IR-Spektroskopie quantitativ bestimmt.

2.2.1.5 Monosaccharide

Für die Analyse von Monosacchariden wird die Hochleistungs-Anionenaustauschchromatographie gekoppelt mit einem elektrochemischen Detektor (HPAEC-PAD) eingesetzt (Iinuma et al. 2009). Diese Technik eröffnet ein weites Feld von Trennungsmöglichkeiten und damit Nachweisen der verschiedenen Tracerverbindungen. Für die Holzverbrennung charakteristische Tracer sind hier Anhydrozucker mit Levoglucosan, Mannosan und Galactosan als den bedeutendsten Tracern für Celluloseverbrennung. Für biologische Aktivität des Bodens stehen Zucker wie z. B. Glucose und für den Einfluss von Pilzsporen Zuckeralkohole wie v. a. Arabitol (CASEIRO et al. 2007).

2.2.1.6 Unpolare organische Einzelverbindungen

Die Quantifizierung ausgewählter unpolarer semivolatiler organischer Einzelspezies aus den Stoffgruppen polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK), oxy-PAK, n-Alkane und Alkanone sowie Hopane erfolgt direkt von den Impaktorfolien mittels Curiepunkt-Pyrolyse Gaschromatographie-Massenspektrometrie (CPP-GC/MS). Dafür wird ein aliquoter Teil der Aluminiumfolie in eine Fe/Ni Curie-Punkt-Folie eingewickelt. Der Curiepunkt-Pyrolsator JPS-350 (Japan Analytical Industry, Ltd.) dient dann als schneller Thermodesorber. Die Probe wird im Curiepunkt-Pyrolsator in Heliumatmosphäre bei 510 °C verdampft, anschließend gaschromatographisch getrennt und anhand charakteristischer Massenspuren quantifiziert. Das verwendete GC-

MS-System ist ein AGILENT 6890 N GC/5973 MSD. Die Nachweisgrenzen liegen bei diesem Verfahren im Bereich 1-60 pg m⁻³.

Die in Tabelle 2 exemplarisch aufgeführten Leitsubstanzen können in den BERNER-Impaktorproben quantifiziert werden und sind für bestimmte Quellen charakteristisch bzw. weisen als individuelle PAK eine besondere toxikologische Relevanz auf (WANG et al. 2009; JUNG et al. 2010). Der Carbon-Präferenz-Index ist ein Indikator für biogene Emissionen durch Wachsabrieb an Blättern (Verhältnis der Summen von n-Alkanen mit ungerader C-Atomanzahl und n-Alkanen mit gerader C-Atomanzahl [z. B. SIMONEIT 2002B; YUE & FRASER 2004; PIETROGRANDE et al. 2011]) und für eine unvollständige Holzverbrennung (Iinuma et al. 2007; GONCALVES et al. 2010). Die individuellen Marker Reten und Benzonaphtho(1,2-d)thiophen entstehen bei der Verbrennung von Nadelholz (HOEK et al. 2002; MÜLLER et al. 2010b) bzw. Braunkohle (WISE et al. 1988; EU-Kommission 1999).

Tabelle 2: Leitsubstanzen für die Analyse auf organische Einzelverbindungen

Chemische Verbindung	Quellzuordnung bzw. Wirkung
Cyclo[c,d]pentapyren	Verkehrsemission
Benzo[b]naphthothiophen	Braunkohleverbrennung
Benzo[k]fluoranthren	kanzerogen
Benzo[a]pyren, Benzo[e]pyren	kanzerogen
Reten	Nadelholzverbrennung
Indeno[1,2,3-cd]pyren	kanzerogen
Hopane und Sterane	Öl- und Kohleverbrennung
n-Alkane (C20 – C34)	biogene bzw. anthropogene Quellen
Oxalat	Photochemie-Indikator
Arabitol	Pilzsporen
Levoglucosan	Biomasseverbrennung

2.2.1.7 Metalle

Für die Metallanalytik werden auf die Aluminiumfolien Teilstücke von ISOPORE Membranfiltern (Polycarbonat HTTP, Millipore) gelegt. Die Quantifizierung der Metalle erfolgt direkt aus den dort abgeschiedenen Spots mit Hilfe der Totalreflexions-Röntgenfluoreszenzanalyse (Total Reflection X-ray Fluorescence, TXRF). Am TROPOS wird dafür ein S2 Picofox von Bruker mit einer Mo-Röntgenquelle verwendet (EU-Kommission 2008; Umweltbundesamt 2013). Die TXRF ist eine Oberflächentechnik, die für die ultra-Spurenmetall-Analyse in Partikeln oder Verunreinigungen auf glatten Oberflächen verwendet werden kann. TXRF ist eine energiedispersive Technik. Ein einfallender Röntgenstrahl trifft auf ein poliertes Probensubstrat bei sehr kleinen Einfallswinkeln ($< 0.1^\circ$), um eine Totalreflexion des Strahls innerhalb der Probe zu erreichen, und die fluoreszierenden Photonen von der Probe werden detektiert. Dieser Aufbau erhöht die Effizienz der Anregung der Probe und verringert die Absorption und die Streuung des Strahls innerhalb der Probe, was zu einer höheren Empfindlichkeit führt. Mit der Mo-Röntgenquelle ist PICOFOX in der Lage, Elemente von Aluminium bis Bismut zu messen. TXRF kann für flüssige und feste Proben verwendet werden. Ein großer Vorteil des PICOFOX ist seine hohe Empfindlichkeit von etwa 0,1 ppb in Flüssigkeiten und die im Vergleich zu anderen Techniken sehr kleinen Probenmengen, die es benötigt (ng bis pg), um quantitative Ergebnisse innerhalb weniger Minuten zu liefern. Abbildung 5 zeigt das Gerät und ein TXRF-Spektrum als Beispiel.

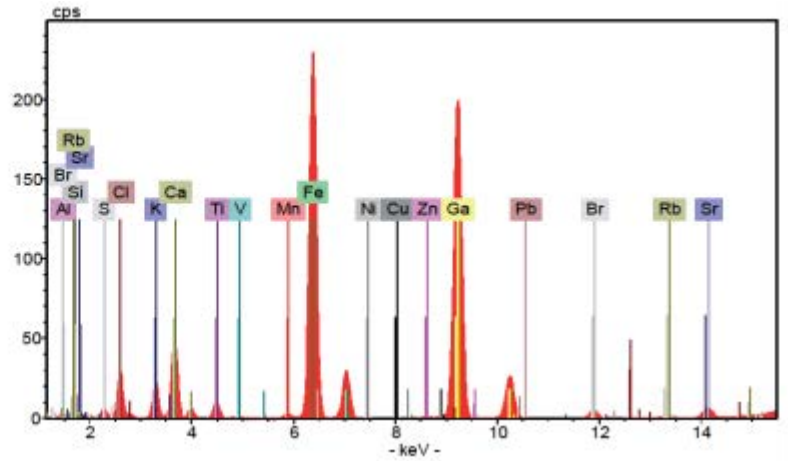


Abbildung 5: Bruker S2 PICOFOX TXRF-Instrument (links); TXRF-Spektrum von Saharastaub (rechts)

2.2.2 Physikalische in-situ-Messungen

2.2.2.1 Rußmassenkonzentration

An allen vier Messstationen sind Rußphotometer vom Typ MAAP (multi angle absorption photometer) im Einsatz. Dieses Instrument bestimmt den Lichtabsorptionskoeffizienten durch die Auswertung der gemessenen Lichttransmission und -streuung an Partikeln, die auf einem Filterband gesammelt werden (DÄMMGEN et al. 2012). Unter Verwendung eines Kalibrierfaktors ($6,6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$) wird die bei einer Wellenlänge von 637 nm bestimmte Absorption auf eine Massenkonzentration an schwarzem Kohlenstoff (BC, black carbon) umgerechnet. Die in dieser Arbeit vorgestellten Rußmassenkonzentrationen beziehen sich in der Regel auf den Größenbereich PM_{10} . Lediglich an der Station EIB bezieht sich die Rußmassenkonzentration aufgrund eines verwendeten Zyclons auf den Größenbereich PM_1 . Die Vergleichbarkeit der Ergebnisse der MAAP-Instrumente wird aufgrund von Vergleichsexperimenten mit 5 % abgeschätzt (WEST et al. 1999).

2.2.2.2 Partikelanzahlgrößenverteilung

An allen vier Messstationen sind Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometer (TDMPS; Twin Differential Mobility Particle Sizer, BIRMILI et al. 1999) im Einsatz. Alle Instrumente werden nach den EUSAAR/ACTRIS-Empfehlungen für atmosphärische Aerosolmessungen betrieben (WIEDENSOHLER et al. 2012). Diese Empfehlungen schreiben z. B. eine automatische Protokollierung der Durchflussraten, Temperaturen und relativen Feuchten in den Spektrometern vor, des Weiteren regelmäßige Qualitätssicherungsmaßnahmen. Die Rohmobilitätsgrößenverteilungen der Instrumente wurden durch eine Mehrfachladungsinversion (PFEIFER et al. 2014) und Korrekturen, die Partikelverluste durch Brownsche Diffusion berücksichtigen (WIEDENSOHLER et al. 2012) in Partikelanzahlgrößenverteilungen überführt. Eine Beschreibung des aktuellen Messbetriebs findet sich in MA & BIRMILI (2015).

Der Messbereich der Geräte reicht in der Regel von 3 bis 800 nm (im Mobilitätsdurchmesser), wobei aufgrund fundamentaler Messunsicherheiten im untersten Größenbereich nur der Bereich 5-800 nm wissenschaftlich ausgewertet wird. Für diesen Bericht wurde die integrale Partikelanzahlkonzentration über einen Größenbereich 20-110 nm ($N_{[20;110]}$) aufintegriert, der repräsentativ für frische, vom Straßenverkehr emittierte Rußpartikel ist (ROSE et al. 2006). Zusätzlich wurden aus den Partikelgrößenverteilungen die Partikelmassen für die Größenbereiche 40-110 nm, 110-330 nm und 330-800 nm abgeschätzt. Hierfür wurde eine Partikeldichte von $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ angenommen. Die genannten Mobilitätsdurchmesser entsprechen näherungsweise den mit dem Berner-Impaktor gemessenen Stufen, die sich auf die aerodynamischen Partikeldurchmesserbereiche

50-140 nm, 140-420 nm und 420-1.200 nm beziehen. Für die genannten Messwerte wird eine Vergleichbarkeit unterschiedlicher Instrumente innerhalb eines Fehlers von $\pm 10\%$ veranschlagt.

2.2.3 Meteorologie und Spurengase

Die meteorologischen Parameter Temperatur, relative Feuchte, Globalstrahlung, Windgeschwindigkeit, Windrichtung und Niederschlagsmenge wurden an den Stationen TRO und MEL gemessen. Für EIB gibt es diese Messungen nicht. Die Daten für LMI wurden vom LfULG übernommen. Die Registrierung der meteorologischen Parameter erfolgte am TROPOS mit einer Wetterstation der Firma THOSS (Intelligente Messtechnik und Automatisierung GmbH, Potsdam, Deutschland). An der Forschungsstation Melpitz kamen Sensoren zum Einsatz für die Temperaturmessung (HY-Cal 1000, Fa. Young, USA), relative Luftfeuchte (Sensirion SHT75, Campbell Scientific, USA), für die Globalstrahlung (CNR1 Net Radiometer, Kipp Zonen, Niederlande), die Windgeschwindigkeit und die Windrichtung (WindSonic, Gill Instruments, England) und für den Niederschlag (Tipping Bucket, Rain Gauge, Young, USA).

Die Spurengase NO_x (NO und NO_2) wurden an den Stationen TRO und MEL gemessen. Für EIB gibt es keine Messungen und die Daten für LMI wurden vom LfULG übernommen. Die Quantifizierung der Gase erfolgte mit Standardgasmonitoren nach dem Prinzip der UV-Adsorption für O_3 und der UV-Fluoreszenz für SO_2 . NO wird mit Hilfe der Chemilumineszenz quantifiziert und die Quantifizierung von NO_2 erfolgt nach Konvertierung (Mo-Konverter) zu NO . Am TRO kamen folgende Analysatoren in der Zeit dieses Vorhabens zum Einsatz: für SO_2 (TE43C-TL, Thermo Scientific, USA) und für NO_x (MLU200A, MLU, Deutschland). Für O_3 stand ein (TE49C, Thermo Scientific, USA) zur Verfügung. In MEL wurden entsprechend eingesetzt für O_3 ein APOA-350E, für SO_2 ein APSA-360A und für NO_x ein APNA-360, alle von der Firma Horiba, Deutschland. Für O_3 erfolgte die Kalibration gegenüber einem O_3 -Standard (TE49PS, Thermo Environment, USA). SO_2 wurde gegenüber Prüfgas (10 ppm SO_2 in N_2) und NO gegenüber Prüfgas (50 ppm NO in N_2) beide AirLiquide, Deutschland, quantifiziert. Für NO_2 stand eine Gasphasentitration (Ansyco SycosK/GPT, Ansyco, Deutschland) zur Verfügung.

2.3 Messtage für chemische Aerosolcharakterisierung

Tabelle 3 gibt einen Überblick über die Probenahmetage für die größen aufgelöste Sammlung von PM_{10} in den Sommermonaten 2013 sowie den Wintermesskampagnen 2013/14 und 2014/15. Die Auswahl der Sammeltage erfolgte mit Hilfe der Wettervorhersage ereignisbezogen. Vorrangig wurden Wochentage mit eindeutiger Anströmung aus einem breiten Sektor West oder Ost mit zu erwartenden maritim-kontinental bzw. kontinental geprägten Luftmassen beprobt. Dabei dürfen für 20 Probenahmetage innerhalb einer Jahreszeit bis zu zwei Wochenendtage hinzugezogen werden. Tage mit nennenswertem Niederschlag wurden ausgeschlossen.

Die ersten 11 Messtage der Sommerkampagne werden in diesem Bericht nicht berücksichtigt, weil aufgrund eines technischen Mangels an LMI keine verlässlichen BERNER-Messdaten vorliegen. Es wurden in der Sommerkampagne daher weitere 21 Tage beprobt, die hier ausschließlich ausgewertet werden.

Weiterhin wurden sowohl die Partikelanzahlgrößenverteilung feiner und ultrafeiner Partikel als auch der Gehalt an schwarzem Kohlenstoff (BC) im PM_{10} seit Beginn des Projektes im Juli 2013 kontinuierlich registriert.

Tabelle 3: Übersicht über Messtage für diskontinuierliche Probenahme mit BERNER-Impaktor

lfd. Nr.	Datum	Wochentag	Probe für MEL	TRO	EIB	LMI
--	19.06.13	Mittwoch	x	x	x	--
--	22.06.13	Freitag	x	x	x	--
--	28.06.13	Freitag	x	x	x	--
--	02.07.13	Dienstag	x	x	x	--
--	04.07.13	Donnerstag	x	x	x	--
--	10.07.13	Mittwoch	x	x	x	--
--	14.07.13	Sonntag	x	x	x	--
--	16.07.13	Dienstag	x	x	x	--
--	19.07.13	Freitag	x	x	x	--
--	31.07.13	Mittwoch	x	x	x	--
--	03.08.13	Samstag	x	x	x	--
1	06.08.13	Dienstag	x	x	x	x
2	11.08.13	Sonntag	x	x	x	x
3	16.08.13	Freitag	x	x	x	x
4	18.08.13	Sonntag	x	x	x	x
5	20.08.13	Dienstag	x	x	x	x
6	23.08.13	Freitag	x	x	x	x
7	25.08.13	Sonntag	x	x	x	x
8	27.08.13	Dienstag	x	x	x	x
9	29.08.13	Donnerstag	x	x	x	x
10	01.09.13	Sonntag	x	x	x	x
11	04.09.13	Mittwoch	x	x	x	x
12	06.09.13	Freitag	x	x	x	x
13	08.09.13	Sonntag	x	x	x	x
14	11.09.13	Mittwoch	x	x	x	x
15	14.09.13	Samstag	x	x	x	x
16	17.09.13	Dienstag	x	x	x	x
17	19.09.13	Donnerstag	x	x	x	x
18	23.09.13	Montag	x	x	x	x
19	25.09.13	Mittwoch	x	x	x	x
20	27.09.13	Freitag	x	x	x	x
21	01.10.13	Dienstag	x	x	x	x
22	14.12.2013	Samstag	x	x	x	x
23	17.12.2013	Dienstag	x	x	x	x
24	08.01.2014	Mittwoch	x	x	x	x
25	15.01.2014	Mittwoch	x	x	x	x
26	23.01.2014	Donnerstag	x	x	x	x
27	25.01.2014	Samstag	x	x	x	x
28	29.01.2014	Mittwoch	x	x	x	x
29	06.02.2014	Donnerstag	x	x	x	x
30	17.02.2014	Montag	x	x	x	x
31	24.02.2014	Montag	x	x	x	x
32	01.12.2014	Montag	x	x	x	x
33	03.12.2014	Mittwoch	x	x	x	x ^{a)}
34	21.01.2015	Mittwoch	x	x	x	x
35	30.01.2015	Freitag	x	x	x	x
36	10.02.2015	Dienstag	x	x	x	x
37	13.02.2015	Freitag	x	x	x	x
38	15.02.2015	Sonntag	x	x	x	x
39	19.02.2015	Donnerstag	x	x	x	x
40	24.02.2015	Dienstag	x	x	x	x
41	26.02.2015	Donnerstag	x	x	x	x

^{a)} aufgrund eines technischen Defekts zeitversetzt beprobt von 09:10 bis 09:10 MEZ

2.4 Anströmungszuordnung

Es wurde ein einfaches subjektives Verfahren angewandt, das nach Sommer (So) und Winter (Wi) und täglichen Anströmung aus einem breiten Sektor West (W) oder Ost (O) unterscheidet (SPINDLER et al. 2010, 2012 und 2013; SCHEINHARDT et al. 2012). Es ergeben sich damit vier Kategorien der Anströmung: SoW, SoO, WiW und WiO. Eine westliche Anströmung enthält Luftmassen maritimen und kontinentalen Ursprungs, bei der Ostanströmung werden überwiegend kontinentale Luftmassen herangeführt. Die Westanströmung ist im Mittel mit höheren Windgeschwindigkeiten und einer besseren turbulenten Mischung verbunden als die Ostanströmung, durch die Luftmassen mit im Mittel geringeren Windgeschwindigkeiten herangeführt werden. Durch dabei oft vorherrschenden Hochdruckeinfluss ist die Ostanströmung in der Regel mit weniger Niederschlag verbunden als die Westanströmung. Besonders bei winterlichen Hochdrucklagen sinkt die Grenzschicht stark ab und es resultieren bereits vor einer vollständigen Stagnation hohe Spurenstoffkonzentrationen, die mit der noch vorhandenen langsamen Ostanströmung herangeführt werden.

Die einzelnen Tage werden den Kategorien an Hand des Verlaufes von 96-Stundenrückwärtstrajektorien zugeordnet. Es wird der Verlauf der 10:00 Uhr und die 18:00 Uhr (Zeit MEZ) 96-Stundenrückwärtstrajektorien (Startpunkt Melpitz in 200, 500 und 1.500 m über Grund) betrachtet. Lassen sich die Trajektorien zu beiden Zeitpunkten in einen breiten Sektor für W (210°-320°) und O (35°-140°) zuordnen, wird dieser Tag unter Berücksichtigung von Sommer- und Winterhalbjahr zugeordnet, z. B. wird ein Sommertag mit westlicher Anströmung in die Kategorie SoW eingeordnet. Die Berechnung der NOAA Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectories erfolgt nach dem HYSPLIT-4-Model (<http://www.ready.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) (vgl. GIETL et al. 2008; DRAXLER & ROLPH 2003).

Das Verfahren wird für Melpitz seit 1992, teilweise unter Verwendung von Reanalysedaten, angewandt. Es können im Mittel 70 bis 73 % der Tage eines Jahres den vier Kategorien zugeordnet werden. Tage mit einem starken Wechsel der Anströmung, einer Anströmung außerhalb der beschriebenen Sektoren oder mit sehr geringen Windgeschwindigkeiten (überwiegend lokaler Quelleinfluss, im Winter z. B. Inversionswetterlagen) werden nicht berücksichtigt. Im Mittel seit 1992 können etwa 56 % der Tage eines Jahres der Westanströmung und 16 % der Tage der Ostanströmung zugeordnet werden. Diese Anteile schwanken zwischen den Jahren und haben Einfluss auf die mittlere jährliche Luftqualität. Im Mittel der Jahre besteht jedoch kein signifikanter Unterschied für den Anteil Ost- und Westanströmung zwischen dem Winter- und Sommerhalbjahren (SPINDLER et al. 2013). Das Verfahren ist prinzipiell vergleichbar mit anderen Methoden einer Anströmungszuordnung z. B. Trajektorien Cluster (HITZENBERGER et al. 2006; VAN PINXTEREN et al. 2010) oder Klassifizierung nach objektiven Wetterlagen OWTC des DWD (BISSOLLI & DITTMANN 2001). Es hat aber den Vorteil, in nur vier Kategorien zu unterscheiden und ist damit für die Einordnung spezieller Messungen, die nur an wenigen einzelnen Tagen stattfinden können, wie hier Messungen mit dem BERNER-Impaktor, besonders geeignet. In der Regel können die vier Kategorien mit einer ausreichenden Zahl an Messtagen belegt werden.

3 Ergebnisse

3.1 Meteorologie und Spurengase

3.1.1 Meteorologische Bedingungen während der Kampagnen

Sommerkampagne

Abbildung 6 zeigt am Beispiel von TRO die meteorologische Situation im Sommer 2013, in Tabelle 4 sind die Tagesmittel für alle Messtage für die Stationen LMI, TRO, MEL aufgelistet (EIB ohne zusätzliche Messung der meteorologischen Parameter). Zusätzlich ist hier die Anströmung mit aufgelistet (Ermittlung vgl. Kapitel 2.4).

Aufgrund der in diesem Sommer vorherrschenden westlichen Anströmung war es nur an einigen wenigen Tagen möglich, Anströmung aus östlicher Richtung zu vermessen. Durch die ereignisbezogene Auswahl der Messtage konnte die Anzahl von Tagen mit nicht zuordenbarer Anströmung auf drei Tage minimiert werden. Betrachtet man die 21 Tage für diese Sommermessungen, an denen an allen vier Stationen die Impaktoren liefen, so erfolgten Messungen an 13 Tagen mit westlicher und 6 Tagen mit östlicher Anströmung. 2 Tage hatten keine eindeutig zuordenbare Anströmung.

Betrachtet man die Tagesmitteltemperaturen an den Messtagen, so zeigt sich, dass sowohl kühle als auch heiße Sommertage etwa entsprechend ihrer Verteilung erfasst wurden. Insgesamt bilden die Messtage die mittlere meteorologische Situation des Sommers 2013 ab. Dieser Sommer war wesentlich durch westliche Anströmungen geprägt und nur selten gab es kontinentale Anströmungen aus Richtung Ost. Trotzdem war dieser Sommer in Mitteldeutschland insbesondere in der zweiten Juli- und ersten Augusthälfte recht warm und trocken. Es gab zahlreiche heitere und sonnige Tage; Zeiträume mit stärkerer Bewölkung traten Ende Juni und im September auf. Innerhalb des betrachteten Zeitraumes traten keine extremen Windgeschwindigkeiten auf. Die relative Luftfeuchte variierte im sommerlichen Normalbereich und unterschritt an einigen Strahlungstagen 40 %.

Für die mittleren Werte der Messtage fällt auf, dass die jeweils höchsten Tagesmitteltemperaturen im Stadtzentrum (LMI) gemessen wurden, die geringsten Mittel traten außerhalb des Ballungsraumes in MEL auf. Außerhalb des Ballungsraumes im flachen sächsischen Tiefland wurden jeweils die höchsten Windgeschwindigkeiten gemessen. Auch die Globalstrahlung war oftmals hier geringfügig höher. Niederschlag sollte an den auszuwählenden Messtagen nicht auftreten, in der Realität ließ sich das nicht ganz vermeiden. Die Mengen waren aber bis auf 11 mm an der Station LMI und 8,6 mm an der Station TRO am 6. August extrem gering.

Vergleicht man den Zeitabschnitt der Sommermessungen 2013 mit dem Zeitabschnitt im Jahr 2000, ergibt sich für den Standort MEL für 2013 eine durchschnittliche Temperatur von 16,76 °C und für 2010 eine um etwa 0,9 °C niedrigere mittlere Temperatur von 15,92 °C. Die mittlere Windgeschwindigkeit betrug 2013 2,4 m s⁻¹ und ist damit zu 2010 mit 2,3 m s⁻¹ vergleichbar.

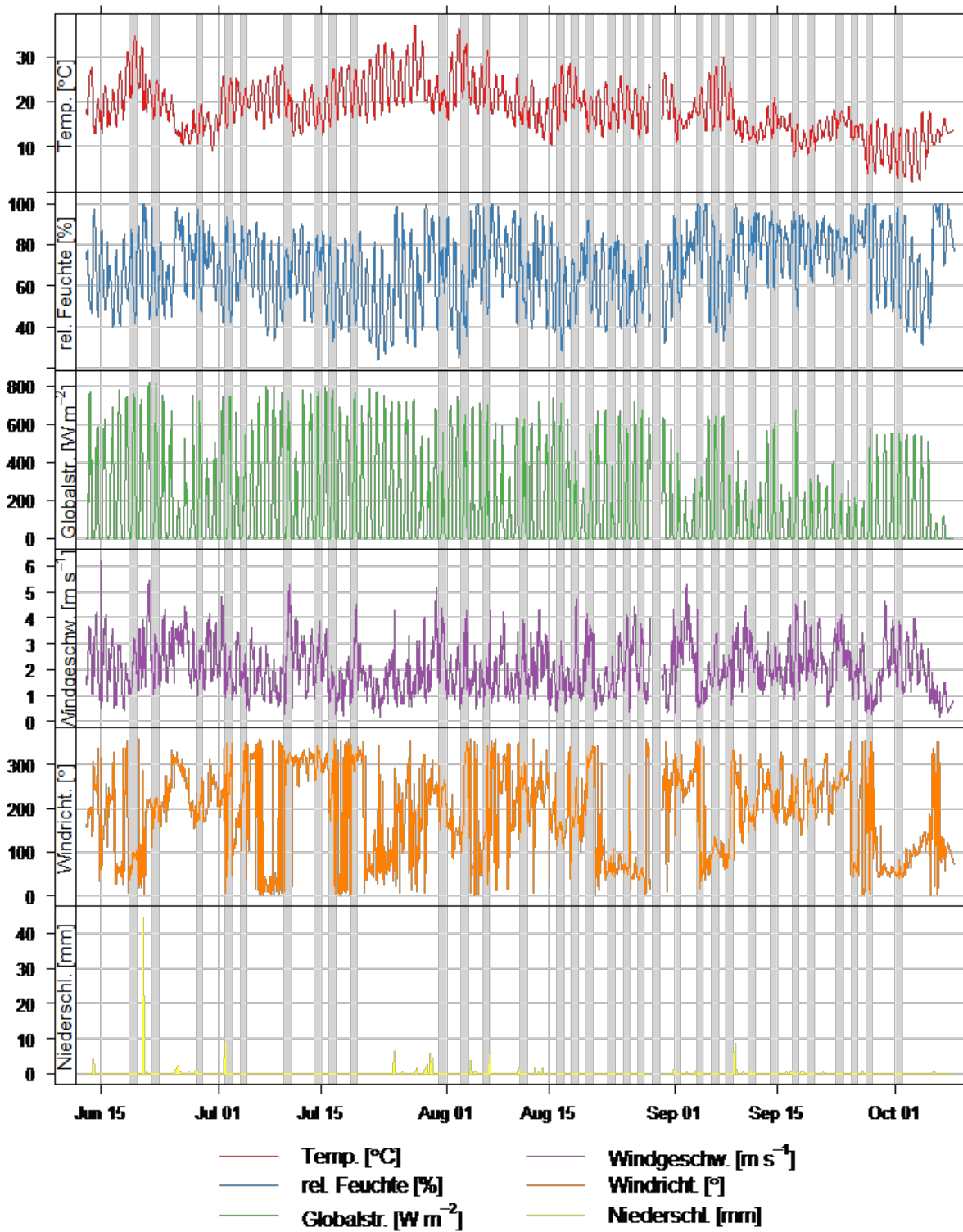


Abbildung 6: Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

Tabelle 4: Mittelwerte (Summe für Niederschlag) meteorologischer Parameter für alle Messtage der Sommerkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar

Nr.	Datum	Temp. [°C]			rel. Feuchte [%]			Globalstr. [W m ⁻²]			Windgeschw. [m s ⁻¹]			Niederschl. [mm]			Anstr.
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	
--	19/06/2013	29,2	28,5	26,9	62	64	73	296	290	338	1,5	2,1	2,6	0	0	0	n.v.
--	22/06/2013	21,7	20,9	19,4	56	59	73	287	268	325	2,1	2,4	2,6	0	0	0	W
--	28/06/2013	16,2	15,3	14,7	67	71	78	215	200	224	1,8	2	2	0,03	0	0	W
--	02/07/2013	20,9	19,7	18,6	61	67	77	300	266	333	1,4	1,8	1,9	0	0	0,7	W
--	04/07/2013	20,7	20,1	18,7	73	76	87	142	153	192	1,3	1,7	2,1	0,17	0	0	W
--	10/07/2013	19,9	19,2	17,9	64	68	76	248	261	286	2	3	3	0,18	0	0	W
--	14/07/2013	17,9	17,1	15,4	71	74	86	234	218	149	1,6	2,3	2,6	0	0	0	W
--	16/07/2013	22,1	21,4	18,5	52	55	69	275	283	318	1,1	1,2	1,4	0	0	0	W
--	19/07/2013	23,2	22,3	20,6	56	59	68	285	277	314	1,8	2,5	2,5	0	0	0	W
--	31/07/2013	20,9	20,4	19,2	68	70	79	119	105	119	2,5	2,8	3,5	1,7	0,1	1	W
--	03/08/2013	28,2	27	25,6	49	53	65	215	215	247	1,3	2,1	2,2	0	0	0	W
1	06/08/2013	25,4	24,4	23,9	66	70	77	195	193	216	1,2	1,7	1,7	11	8,6	0,1	W
2	11/08/2013	18,6	17,9	16,3	56	59	73	180	183	221	2	2,2	3,1	0	0	0,2	W
3	16/08/2013	22,7	21,3	20	46	52	59	248	248	279	1,1	1,7	1,6	0	0	0	W
4	18/08/2013	22,7	21,9	20,4	56	60	71	118	121	149	1,9	2,2	3,1	0,09	0	0	W
5	20/08/2013	18	17,1	16,4	65	69	76	162	159	192	1,8	2,9	3,2	0	0	1	W
6	23/08/2013	18,5	17,3	16	68	72	82	75	74	107	0,84	1,3	1,3	2,4	1	0	n.v.
7	25/08/2013	20,3	19,5	19,4	54	57	57	157	165	217	1,6	2,5	4,2	0	0	0	O
8	27/08/2013	18,1	17	15,2	57	61	72	173	186	174	1,5	2,2	2,5	0	0	0	O
9	29/08/2013	20	n.v.	16,2	58	n.v.	73	187	n.v.	210	0,9	n.v.	1,3	0	n.v.	0	O
10	01/09/2013	15,5	15	14,5	61	64	68	110	114	140	2,2	2,6	4	0	0	0	W
11	04/09/2013	20	19,2	17,9	79	85	90	101	100	100	0,74	0,96	1,2	0,09	0,6	0,2	W
12	06/09/2013	21,8	20,9	19,5	59	63	68	204	206	232	1,1	2,2	2,8	0	0	0	O
13	08/09/2013	19,7	19,2	19,1	65	67	70	80	86	140	1,4	2,1	2,8	0,29	0	0,4	O
14	11/09/2013	13,5	12,7	12,4	80	82	86	42	46	70	1,4	2,6	3,3	3,5	2,3	0,2	W
15	14/09/2013	17,1	16,4	15,4	77	80	85	124	150	187	1,5	1,9	2,4	0,15	0	0	W
16	17/09/2013	11,9	11,4	10,6	70	73	79	135	160	175	2,4	2,7	3,5	0	0,1	0	W
17	19/09/2013	12,3	11,7	11,1	75	77	83	78	83	104	2,1	2,4	3,6	0,86	0,3	0	W
18	23/09/2013	16,6	16,3	16	77	79	85	41	42	33	2,5	3	5,3	0	0	0	W
19	25/09/2013	14,3	13	12	80	86	92	57	52	50	1	1,6	2	0	0	0	W
20	27/09/2013	10,5	9,1	6,98	75	82	90	119	129	146	0,73	0,83	1,2	0	0	0	n.v.
21	01/10/2013	9,04	8,21	7,03	67	72	77	93	162	161	1,4	2,2	3	0	0	0	O

Wintermesskampagnen

Abbildung 7 zeigt am Beispiel von TRO die meteorologische Situation im Winter 2013/14, in Tabelle 5 sind die Tagesmittel für die 10 Messtage der Winterkampagne 2013/14 für die Stationen LMI, TRO, MEL aufgelistet (EIB ohne zusätzliche Messung der meteorologischen Parameter). Zusätzlich ist hier die Anströmung mit angegeben (Ermittlung vgl. 2.4).

Der Winter 2013/14 war, wie bereits auch der Sommer 2013, durch eine vorherrschende westliche Anströmung geprägt, womit auch nur wenige Frosttage auftraten (zweite Januarhälfte). An diesen kalten Tagen kam der Wind aus östlichen Richtungen. Im Verlauf des Winters ist der relativ frühe Anstieg der Temperaturen mit relativ hoher Sonneneinstrahlung und einsetzender Trockenheit mit Beginn der zweiten Hälfte des Februars auffällig. Durch dieses zeitige Einsetzen des „Frühjahrs“ und den insgesamt milden Charakter des Winters konnte die geplante Anzahl von 20 Messtagen für typische Winterverhältnisse nicht erreicht werden und es wurde beschlossen, die Vermessung von 10 weiteren Tagen in den Winter 2014/15 zu verlegen.

Durch die ereignisbezogene Auswahl der Messtage konnten von den realisierten 10 Tagen immerhin noch drei mit östlicher Anströmung beprobt werden. Nur diese wiesen überhaupt Frosttemperaturen auf. Sechs Messtage wurden bei westlicher Anströmung realisiert. Nur ein Messtag hatte keine eindeutig zuordenbare Anströmung (vgl. Tabelle 5). Für die mittleren Werte der Messtage fällt auf, dass die jeweils höchsten Tagesmitteltemperaturen mit Ausnahme des 17. Februars im Stadtzentrum (LMI) gemessen wurden, die geringsten Mittel traten außerhalb des Ballungsraumes in MEL auf.

Außerhalb des Ballungsraumes im flachen sächsischen Tiefland wurden jeweils die höchsten Windgeschwindigkeiten gemessen. Auch die Globalstrahlung war hier oftmals geringfügig höher. Niederschlag sollte an den auszuwählenden Messtagen nicht auftreten. In der Realität ließ sich das nicht ganz vermeiden, die Mengen waren aber extrem gering und überstiegen nur am 14. Dezember 2013 in LMI 1 mm.

Vergleicht man den Zeitabschnitt der Wintermessungen 2013/14 mit dem entsprechenden Zeitabschnitt für den Winter 1999/00, ergibt sich für den Standort MEL für den Winter 2013/14 eine durchschnittliche Temperatur von 4,4 °C und für den Winter 1999/00 eine um 1 °C niedrigere mittlere Temperatur von 3,4 °C. Die mittlere Windgeschwindigkeit betrug 2013/14 $3,25 \text{ ms}^{-1}$ und ist damit zu 1999/00 mit $3,83 \text{ ms}^{-1}$ etwas geringer. Es ist anzumerken, dass der Winter 1999/00 auch damals als ein recht milder Winter galt.

In Abbildung 8 ist die meteorologische Situation für den Winter 2014/15 am Beispiel TRO gezeigt. Tabelle 5 zeigt die Tagesmittel für den zweiten Teil der Wintermessungen im Winter 2014/15. Die Verlängerung der Wintermesskampagne auf den Winter 2014/15 erfolgte in der Absicht, mehr typische Wintertage zu vermessen. Dies war jedoch auch im erneut recht milden Winter 2014/15 schwierig. In diesem Winter gab es nur eine kleinere Kälteperiode um Weihnachten, bei der sich allerdings keine stabile Ostanströmung einstellte. Es konnten vier Messtage bei östlicher Anströmung realisiert werden, wovon allerdings nur zwei wirklich negative Temperaturen aufwiesen. Alle fünf Messtage bei westlicher Anströmung wiesen positive Temperaturen auf, mit Ausnahme des 21.01.15, wo die Temperatur am TROPOS um den Gefrierpunkt lag. Alle Messtage waren im Wesentlichen niederschlagsfrei, einzig am 30.01.15 traten bei westlicher Anströmung am TROPOS 2,3 mm und in Melpitz 1 mm Niederschlag als Schneeschauer auf.

2 der 11 Messtage im Winter 2014/15 konnten nach ihrer Realisierung keiner eindeutigen Anströmung zugeordnet werden. Auch im Winter 2014/15 wurden an den Messtagen die höheren Temperaturen in der Stadt gemessen.

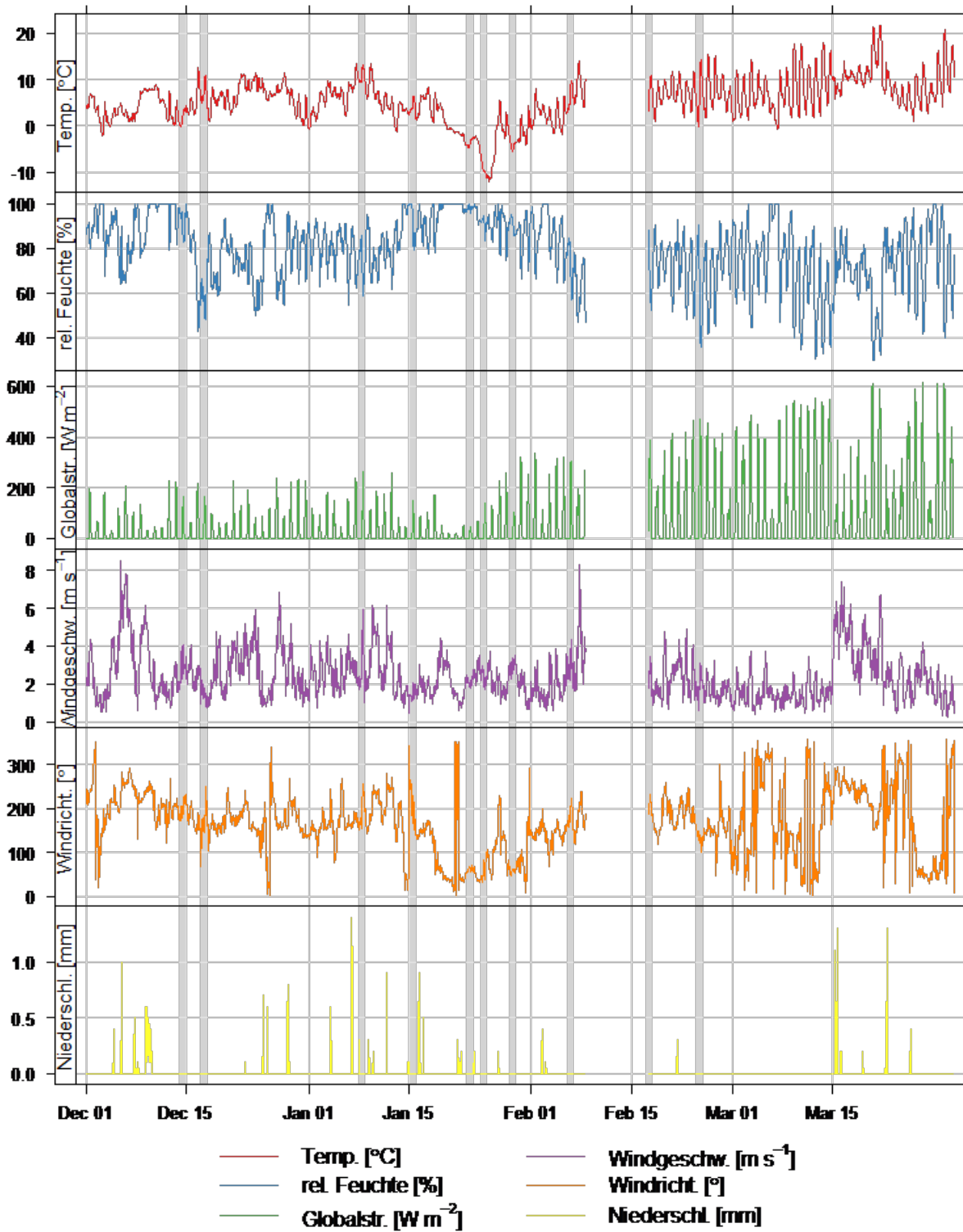


Abbildung 7: Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

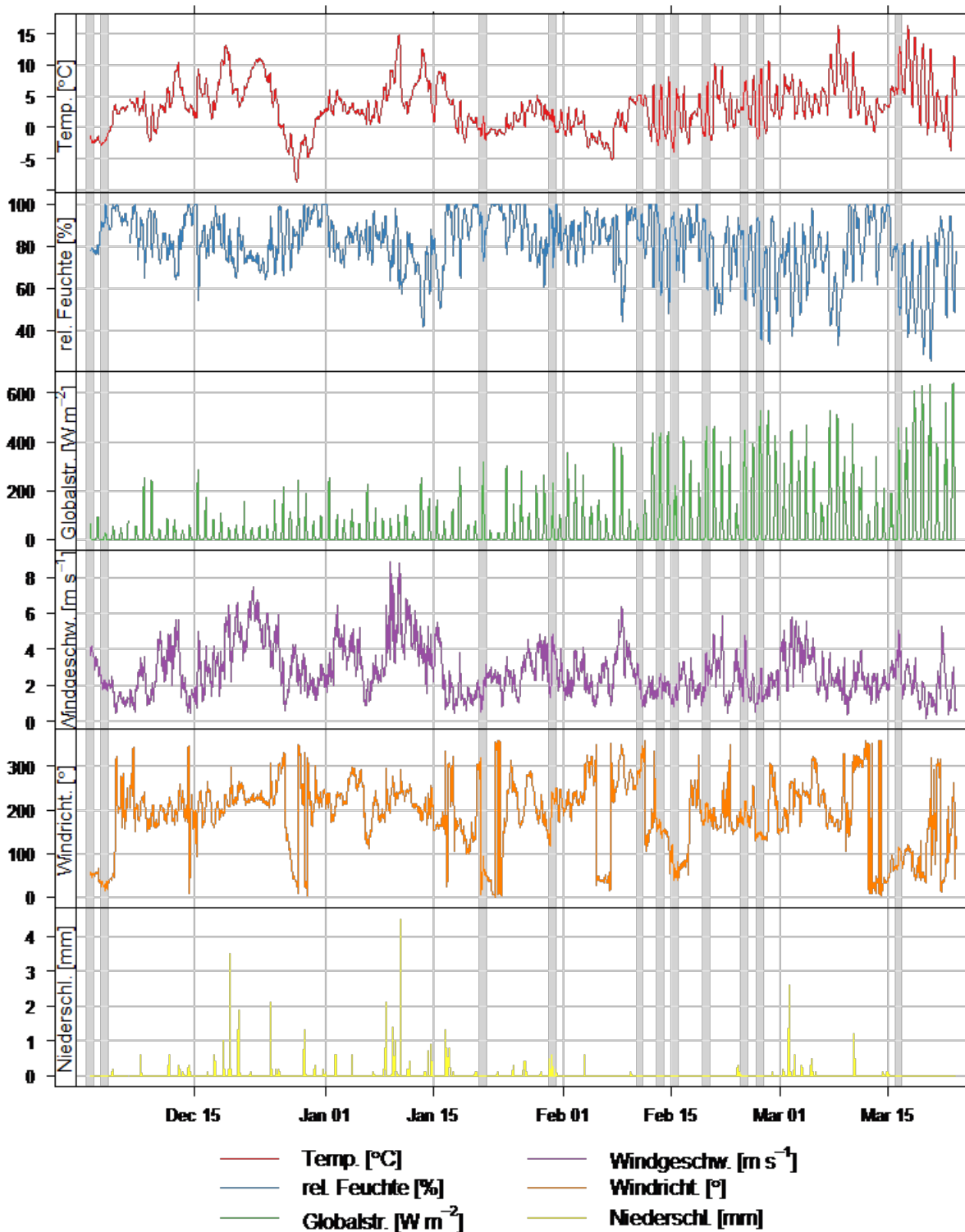


Abbildung 8: Meteorologische Parameter am Standort TRO für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

Tabelle 5: Mittelwerte (Summe für Niederschlag) meteorologischer Parameter für alle Messtage der Winterkampagnen 2013/14 und 2014/15; an Station EIB keine Daten verfügbar

Ifd. Nr.	Datum	Temp. [°C]			rel. Feuchte [%]			Globalstr. [W m ⁻²]			Windgeschw. [m s ⁻¹]			Niederschl. [mm]			Anstr.
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	
22	14/12/2013	2,6	2,2	1,5	88	91	94	16	28	39	2,7	2,9	4,2	1,1	0	0,1	W
23	17/12/2013	7,5	6,7	4,5	57	61	74	24	29	30	0,9	1,4	2,3	0,1	0	0	W
24	08/01/2014	10,8	10,4	9,4	73	75	82	26	37	42	2	2,7	4,3	0,4	0,3	0,3	W
25	15/01/2014	4,8	3,9	3,1	86	91	100	21	20	16	1,2	1,4	1,6	0,1	0	0,9	W
26	23/01/2014	-2,9	-3,6	-4,4	92	100	100	11	10	20	2,3	2,2	4,1	0,7	0,2	0	O
27	25/01/2014	-9	-9,8	-11,2	85	91	89	25	27	45	2,2	2,4	3,7	0,2	0	0	O
28	29/01/2014	-3,7	-4,3	-5,4	85	90	90	19	20	23	3	2,9	4,5	0	0	0	O
29	06/02/2014	6,7	6,2	5,4	70	73	79	38	65	75	2	2,8	4	0,03	0	0	W
30	17/02/2014	6,7	7,6	4,3	71	67	85	64	137	108	1,4	2,1	2,3	0	0	0	W
31	24/02/2014	7,9	6,7	5	58	63	70	94	123	136	1,2	1,9	2,2	0	0	0	n.v.
32	01/12/2014	-0,8	-2,0	-2,0	78	78	82	18	11	19	4,2	3,9	6,2	n.v.	0	0	O
33	03/12/2014	-0,8	-1,9	-1,3	88	92	90	5	5	8	1,8	2	3,2	n.v.	0	0	O
34	21/01/2015	0,7	-0,5	0,0	81	86	87	28	55	51	1,7	1,7	1,9	n.v.	0	0	W
35	30/01/2015	2,5	1,4	1,3	86	89	92	31	34	26	3	3,2	4,5	n.v.	2,3	1	W
36	10/02/2015	5,8	4,5	4,5	83	87	91	14	16	22	1,4	1,9	2,2	n.v.	0	0	W
37	13/02/2015	2,6	1,2	0,2	76	80	87	42	111	112	1	1,9	1,6	n.v.	0	0	n.v.
38	15/02/2015	2,6	1,3	1,6	79	83	85	36	51	48	1,4	1,5	2,6	n.v.	0	0	O
39	19/02/2015	2,3	1,3	1,1	78	80	85	65	114	115	2,2	2,5	3,8	n.v.	0	0	n.v.
40	24/02/2015	5,7	4,7	4	71	72	81	76	93	89	1,8	2,5	3,3	n.v.	0	0	W
41	26/02/2015	5,4	3,2	1,7	63	68	78	101	139	141	0,84	1,7	1,3	n.v.	0	0	W
42	16/03/2015	9,6	8,7	8,9	66	66	72	118	124	112	3,3	3,3	4,5	n.v.	0	0,1	O

3.1.2 Spurengaskonzentrationen während der Kampagnen

Sommerkampagne

In Abbildung 9 und Abbildung 10 sind die Spurengaskonzentrationen für NO_x, SO₂ und O₃ für MEL und LMI (für LMI ist O₃ nicht verfügbar) dargestellt. Tabelle 6 zeigt die Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Sommerkampagne (für EIB sind keine Spurengasmessungen vorhanden). Betrachtet man den Verlauf der Spurengaskonzentrationen, so zeigt sich ein deutlicher Unterschied zwischen LMI und MEL für NO_x. Die Konzentrationswerte im Stadtzentrum waren zwischen fünf und sieben Mal höher als im regionalen Hintergrund. Ursache dafür sind hauptsächlich Emissionen aus Kraftfahrzeugen. Betrachtet man die Tagesmittelwerte an den Messtagen im Vergleich aller drei Stationen für NO und NO₂, so ist neben der Konzentrationsabstufung LMI>TRO>MEL zu sehen, dass das Verhältnis NO/NO₂ für LMI bei etwa 1 : 1 lag und in Richtung MEL abnahm. Eine Erklärung dafür ist die Oxidation des aus Kraftfahrzeugen emittierten NO zu NO₂.

Die Konzentrationen für SO₂ lagen oft in Höhe der Nachweisgrenze von ca. 2 µg m⁻³ und zeigten einzelne Spikes mit Konzentrationen bis über 15 µg m⁻³. Einzelne Konzentrationsmuster traten synchron sowohl in LMI als auch MEL auf und können ein Hinweis auf Ferntransport von SO₂ sein. Spikes, die nur an einem Ort auftraten, dürften lokal verursacht gewesen sein. Ob die etwas höheren SO₂-Konzentrationen am Verkehrshotspot LMI auf Emissionen aus Kraftfahrzeugen stammen oder sonstigen Emissionen in der Stadt (z. B. Baumaschinen) zuzuordnen sind, kann nicht eindeutig belegt werden.

Der Verlauf der Ozonkonzentration in MEL zeigt den typischen Verlauf mit niedrigen Konzentrationen in der Nacht und höheren Konzentrationen am Tage. Besonders ausgeprägt war dieser Tagesgang an Strahlungstagen. Die Ozonwerte im regionalen Hintergrund (MEL) lagen etwas höher als im urbanen Hintergrund (TRO), was in Anbetracht der höheren NO_x -Werte im urbanen Hintergrund im Vergleich zum regionalen Hintergrund auch plausibel erscheint (vgl. Tabelle 6)

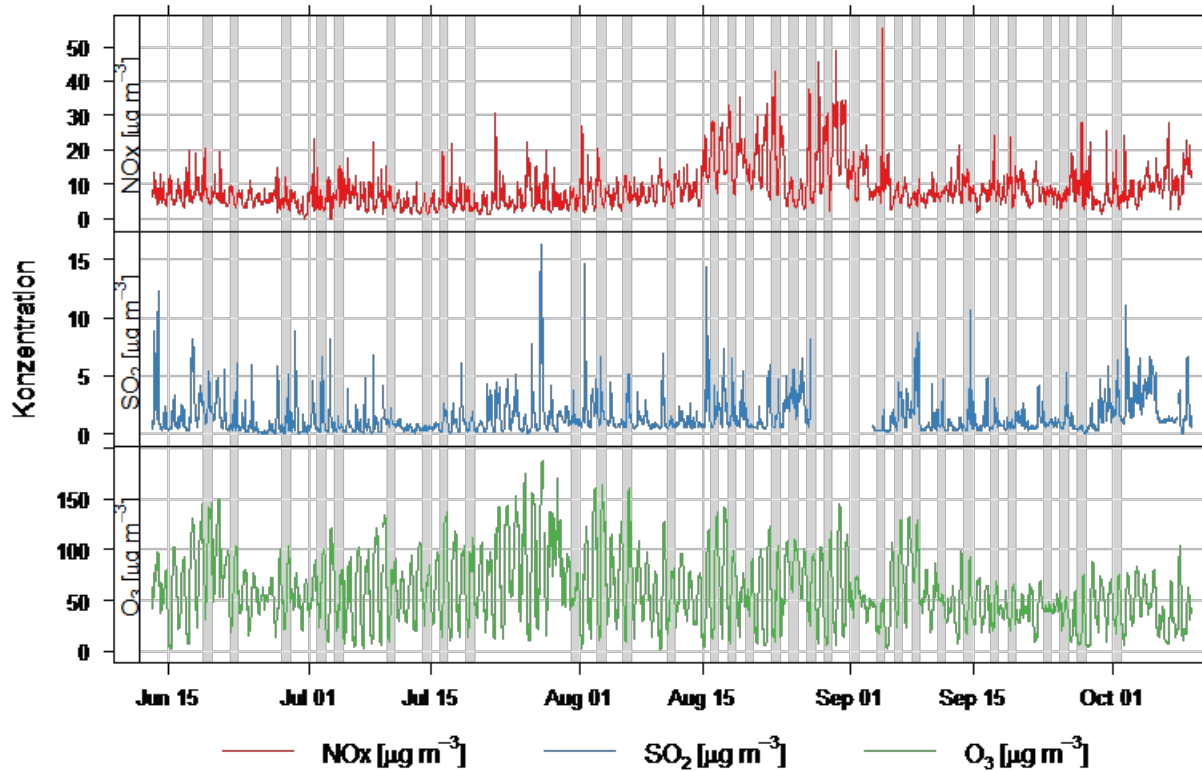


Abbildung 9: Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

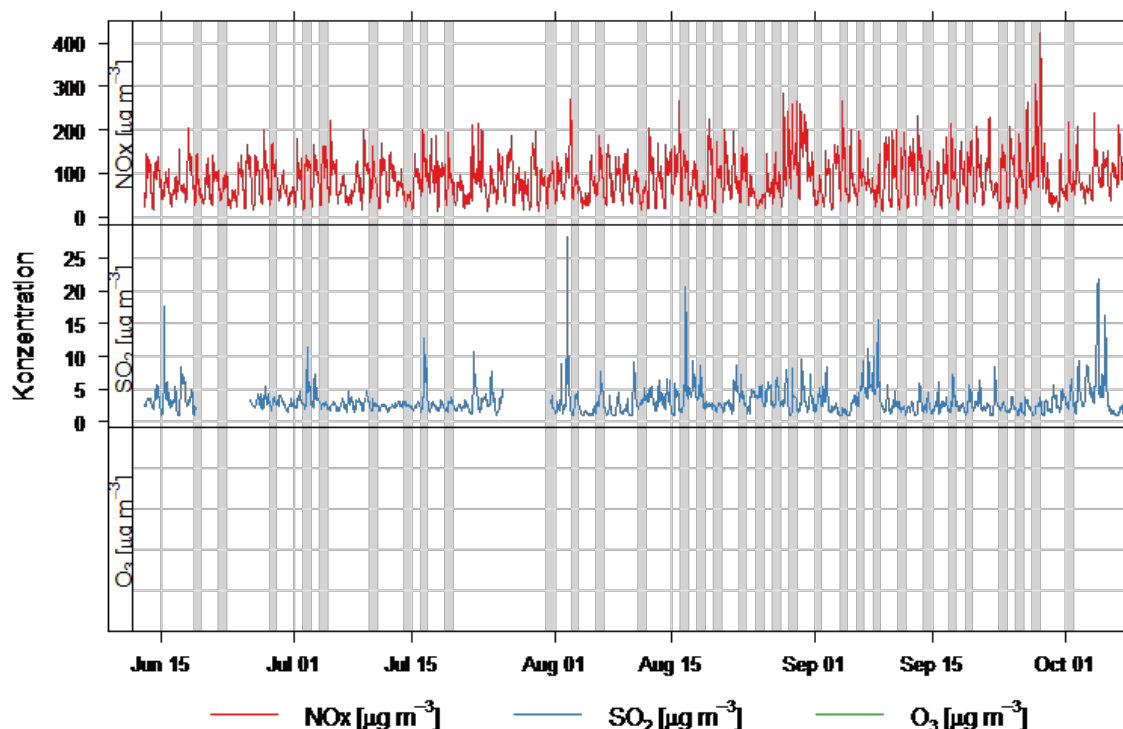


Abbildung 10: Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Sommerkampagne; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

Tabelle 6: Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Sommerkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar

Lfd. Nr.	Datum	NO [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO _x [$\mu\text{g m}^{-3}$]			SO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			O ₃ [$\mu\text{g m}^{-3}$]		
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL
--	19/06/2013	23	1,5	0,33	47	9,9	7	70	11	7,4	2,1	1,9	2,2	n.v.	80	97
--	22/06/2013	35	1,2	0,18	35	6,8	6	69	7,9	6,2	n.v.	2,2	1,1	n.v.	64	63
--	28/06/2013	57	2,5	0,56	44	11	4,9	101	14	5,5	2,9	2,5	1,1	n.v.	51	62
--	02/07/2013	45	2,4	1	45	12	3,3	90	14	4,3	4,2	3,2	1,2	n.v.	57	62
--	04/07/2013	58	2,5	2,3	45	12	5,8	104	14	8,1	2,6	1,2	0,59	n.v.	38	46
--	10/07/2013	42	2	1,3	41	11	3,9	82	13	5,2	2,4	2	0,96	n.v.	51	58
--	14/07/2013	19	1,5	0,62	22	7,5	2,8	41	9	3,4	2,5	1,2	0,46	n.v.	57	60
--	16/07/2013	49	3,6	1,5	63	21	5	112	25	6,5	5	2,8	1,1	n.v.	62	77
--	19/07/2013	43	2	0,88	42	10	3,3	85	12	4,2	2,7	0,79	0,79	n.v.	43	65
--	31/07/2013	43	2	0,82	39	11	4,8	81	13	5,7	2,5	0,6	1,3	n.v.	43	56
--	03/08/2013	25	1,6	0,42	45	14	7,8	70	15	8,2	2,8	n.v.	1,9	n.v.	90	93
1	06/08/2013	40	2,3	0,43	58	15	7,4	97	18	7,9	3,8	n.v.	2	n.v.	70	79
2	11/08/2013	21	1,8	0,14	27	9,5	7,6	48	11	7,7	3,3	n.v.	0,82	n.v.	66	55
3	16/08/2013	41	2,7	2	57	20	16	98	23	18	6,9	n.v.	1,8	n.v.	60	78
4	18/08/2013	19	1,8	1,2	32	13	15	50	15	17	3,9	n.v.	1,6	n.v.	48	61
5	20/08/2013	48	1,4	0,72	39	11	12	87	13	12	2,3	n.v.	0,7	n.v.	37	58
6	23/08/2013	42	2,4	1,9	61	21	18	102	23	20	3,4	n.v.	1,5	n.v.	29	52
7	25/08/2013	11	1,4	0,24	25	9	6	36	10	6,2	4,1	n.v.	3,3	n.v.	n.v.	86
8	27/08/2013	32	1,8	0,87	44	13	13	76	14	14	3,7	n.v.	2,1	n.v.	n.v.	65

Lfd. Nr.	Datum	NO [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO _x [$\mu\text{g m}^{-3}$]			SO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			O ₃ [$\mu\text{g m}^{-3}$]		
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL
9	29/08/2013	77	7,5	2,5	74	29	17	151	37	19	3,1	n.v.	n.v.	n.v.	n.v.	59
10	01/09/2013	26	1,6	0,65	26	7,7	11	52	9,3	11	3,4	0,17	n.v.	n.v.	n.v.	58
11	04/09/2013	60	6	2,7	41	15	8,6	102	21	11	1,4	0,0058	0,47	n.v.	18	31
12	06/09/2013	46	3,7	0,56	54	17	6,5	100	20	7,1	5	1,1	2,2	n.v.	56	77
13	08/09/2013	25	1,7	0,27	37	11	6,5	63	13	6,7	5,9	0,9	3,2	n.v.	59	84
14	11/09/2013	56	2,8	0,46	45	13	6,9	101	16	7,4	1,9	0	0,99	n.v.	27	46
15	14/09/2013	44	2,3	0,82	41	14	8,3	85	16	9,2	2,5	0,025	1,6	n.v.	25	46
16	17/09/2013	53	4	1,3	39	15	8,6	92	19	10	3,5	0,4	1	n.v.	35	42
17	19/09/2013	59	2,8	0,7	47	17	8,6	106	19	9,3	2,9	0,28	0,82	n.v.	33	42
18	23/09/2013	54	2,6	0,45	38	14	6,9	92	16	7,4	2,1	0,0017	0,95	n.v.	28	41
19	25/09/2013	53	2,5	0,46	38	13	5,7	91	15	6,2	1,7	0,03	1,5	n.v.	25	38
20	27/09/2013	133	18	2,7	65	25	8,8	198	43	12	2,2	0,32	0,36	n.v.	19	28
21	01/10/2013	47	2,4	0,66	39	9,6	6,7	86	12	7,3	3,5	0,42	2,4	n.v.	33	45

Vergleicht man den Zeitabschnitt der Sommermessungen 2013 mit dem gleichen Zeitabschnitt im Jahr 2000, ergibt sich für den Standort MEL für 2013 eine mittlere SO₂-Konzentration von 2,7 $\mu\text{g m}^{-3}$ im Vergleich dazu lag die mittlere SO₂-Konzentration für 2010 etwa dreimal so hoch bei 8,4 $\mu\text{g m}^{-3}$. Dies zeigt einen deutlichen Rückgang der mittleren SO₂-Konzentration im regionalen Hintergrund. Die mittleren NO- und NO₂-Konzentrationen betragen 2013 1,3 $\mu\text{g m}^{-3}$ und 14,6 $\mu\text{g m}^{-3}$ und sind ebenfalls im Vergleich zu 2000 mit NO 3,9 $\mu\text{g m}^{-3}$ und NO₂ 22,8 $\mu\text{g m}^{-3}$ deutlich zurückgegangen. Die Ozonkonzentration verbleibt mit 113,8 $\mu\text{g m}^{-3}$ für 2013 und 106 $\mu\text{g m}^{-3}$ für 2000 auf etwa vergleichbarem Niveau.

Wintermesskampagnen

In Abbildung 11 und Abbildung 12 sind die Spurengaskonzentrationen für NO_x, SO₂ und O₃ für MEL und LMI (für LMI ist O₃ nicht verfügbar) im Winter 2013/14 dargestellt. In Abbildung 13 und Abbildung 14 sind in gleicher Weise die Spurengasdaten für den Winter 2014/15 dargestellt. Tabelle 7 zeigt die Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Winterkampagne der Standorte LIM, TRO und MEL (für EIB sind keine Spurengasmessungen vorhanden).

Betrachtet man den Verlauf der Spurengaskonzentrationen, so zeigt sich ein deutlicher Unterschied zwischen LMI und MEL für NO_x. Die Konzentrationswerte im Stadtzentrum waren um ein Vielfaches höher als im regionalen Hintergrund. Ursache dafür sind hauptsächlich Emissionen aus Kraftfahrzeugen. Betrachtet man die Tagesmittelwerte an den Messtagen im Vergleich aller drei Stationen für NO und NO₂, so ist neben der Konzentrationsabstufung LMI>TRO≥MEL zu sehen, dass das Verhältnis NO/NO₂ für LMI im Mittel bei etwa 1,2 lag und in Richtung MEL stark bis zu einem mittleren Wert von 0,18 abnahm. Eine Erklärung dafür ist die Oxidation des aus Kraftfahrzeugen emittierten NO zu NO₂.

Die Konzentrationen für SO₂ lagen in beiden Wintern zwischen der Nachweisgrenze von ca. 2 $\mu\text{g m}^{-3}$ und Werten um 10 $\mu\text{g m}^{-3}$, sie zeigten einzelne Spikes mit Konzentrationen bis ca. 15 $\mu\text{g m}^{-3}$. Die erhöhten SO₂-Konzentrationen, verbunden mit der östlichen Anströmung und tieferen Temperaturen (Ende Januar-Anfang Februar), traten sowohl in MEL als auch in LMI auf. In MEL erreichten dabei die Spitzenkonzentrationen deutlich höhere Werte als in der Stadt Leipzig, was ein Hinweis auf Ferntransport von SO₂ aus anthropogenen Quellen (individuelle Kohleheizung in Polen und Tschechien) weit östlich von Melpitz sein kann. Dies bestätigt sich auch im Winter 2014/15, wo die SO₂-Konzentrationen in Melpitz zeitweise deutlich höhere Werte als in der Stadt (LMI) erreichten. Betrachtet man die Mittelwerte der einzelnen Tage in Tabelle 7, so zeigen sich relativ gut vergleichbare SO₂-Konzentrationen für alle drei Standorte mit SO₂-Messungen (eine Ausnahme ist

der 10.02.2015 mit höheren SO_2 -Konzentrationen in der Stadt [LMI] im Vergleich zu anderen Standorten). Die in der Fläche gut vergleichbaren SO_2 -Konzentrationen bestätigen, dass SO_2 nur noch sehr wenig im Ballungsraum Leipzig emittiert wurde und dessen Konzentration eher überregional, insbesondere bei östlicher Anströmung, durch Ferntransport bestimmt wurde (höhere Konzentrationen in MEL gegenüber der Stadt). Insgesamt waren die SO_2 -Konzentrationen bei westlicher Anströmung mit besserer Durchmischung der Atmosphäre geringer als bei östlicher Anströmung.

Der Verlauf der Ozonkonzentration in MEL zeigt den typischen Verlauf mit niedrigen Konzentrationen in der Nacht und höheren Konzentrationen tagsüber. Besonders ausgeprägt war dieser Tagesgang an Strahlungstagen. Die Ozonwerte im regionalen Hintergrund (MEL) lagen in den Wintern 2013/14 und 2014/15 etwas höher als im urbanen Hintergrund (TRO), was in Anbetracht der etwas höheren NO_x -Werte im urbanen Hintergrund im Vergleich zum regionalen Hintergrund plausibel erscheint (vgl. Tabelle 7).

Vergleicht man den Zeitabschnitt der Wintermessungen 2013/14 und 2014/15 mit dem gleichen Zeitabschnitt Dezember bis März im Winter 1999/2000, ergibt sich für den Standort MEL im Winter 2013/14 eine mittlere SO_2 -Konzentration von $3,0 \mu\text{g m}^{-3}$ und für den Winter 2014/15 eine mittlere SO_2 -Konzentration von $2,2 \mu\text{g m}^{-3}$. Im Vergleich dazu lag die mittlere SO_2 -Konzentration für den Winter 1999/00 etwa anderthalbmal bis doppelt so hoch bei $4,5 \mu\text{g m}^{-3}$. Dies zeigt einen Rückgang der mittleren SO_2 -Konzentration im regionalen Hintergrund. Die mittleren NO - und NO_2 -Konzentrationen betragen im Winter 2013/14 $2,3 \mu\text{g m}^{-3}$ und $13,9 \mu\text{g m}^{-3}$ und im Winter 2014/15 $1,5$ und $12,0 \mu\text{g m}^{-3}$. Sie sind für 1999/00 mit NO $2,0 \mu\text{g m}^{-3}$ und NO_2 $11,5 \mu\text{g m}^{-3}$ etwa vergleichbar. Die Ozonkonzentration war mit $58,8 \mu\text{g m}^{-3}$ für 2013/14 und mit $54,9 \mu\text{g m}^{-3}$ für 2014/15 im Vergleich zu $44,6 \mu\text{g m}^{-3}$ für 1999/00 höher. Die leicht erhöhten Werte 2013/14 können durch relativ viele sonnigen Tage verursacht sein.

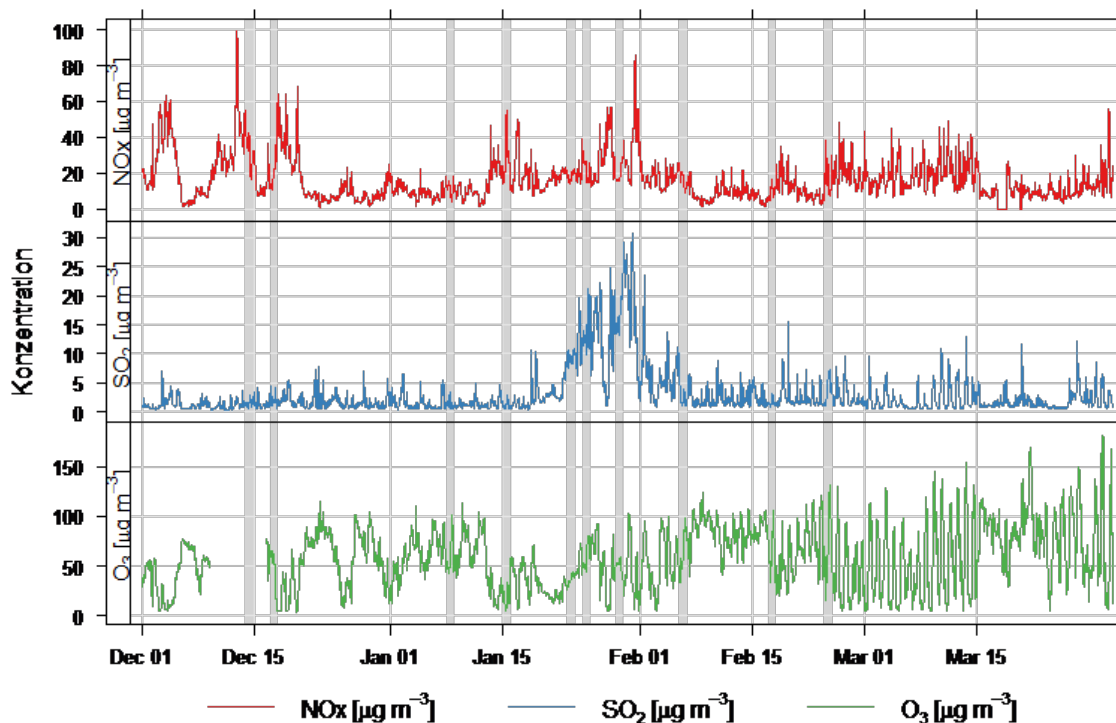


Abbildung 11: Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

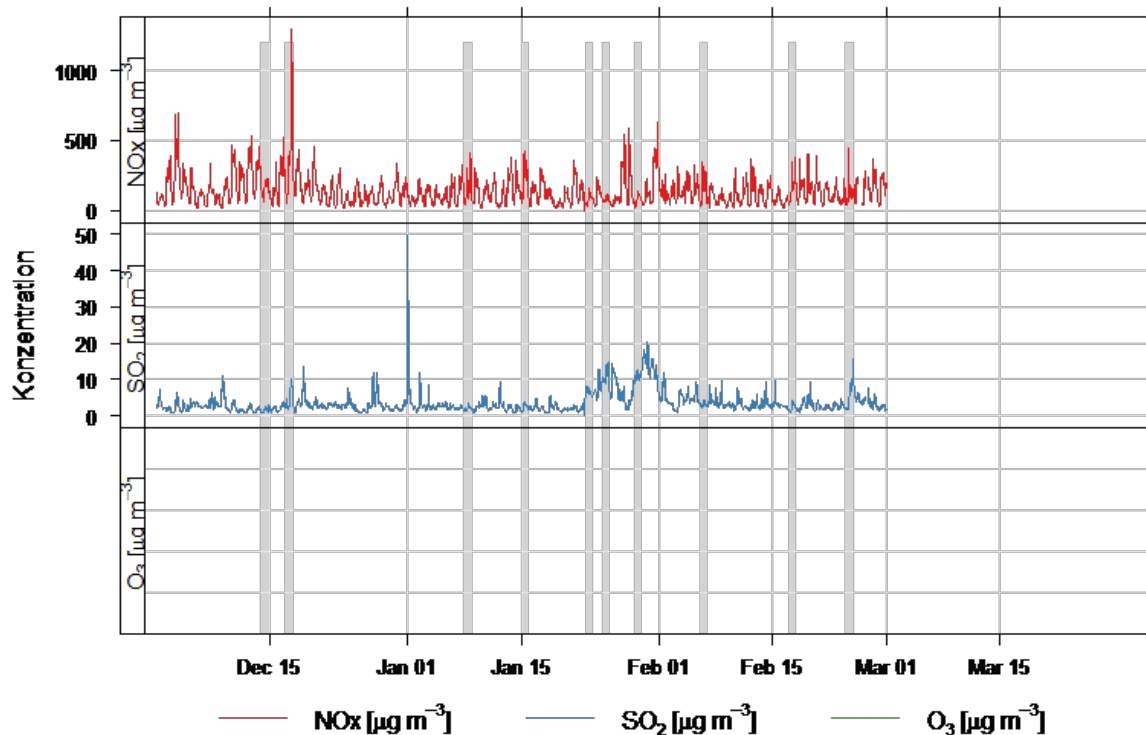


Abbildung 12: Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Winterkampagne 2013/14; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

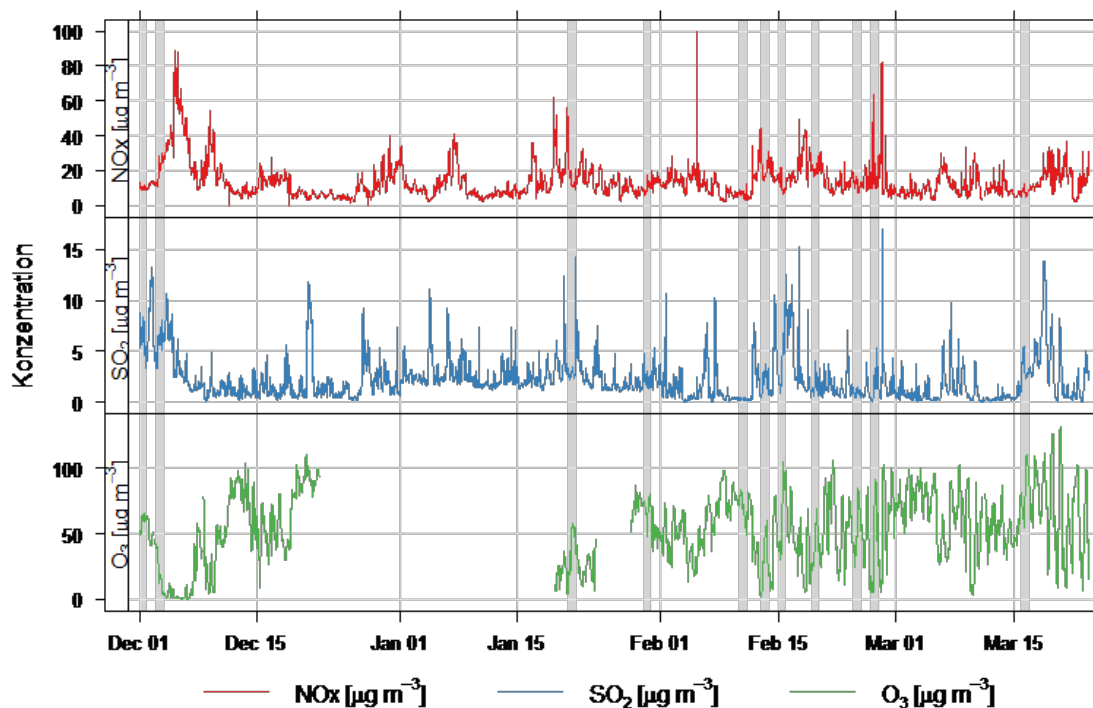


Abbildung 13: Spurengaskonzentrationen am Standort MEL für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

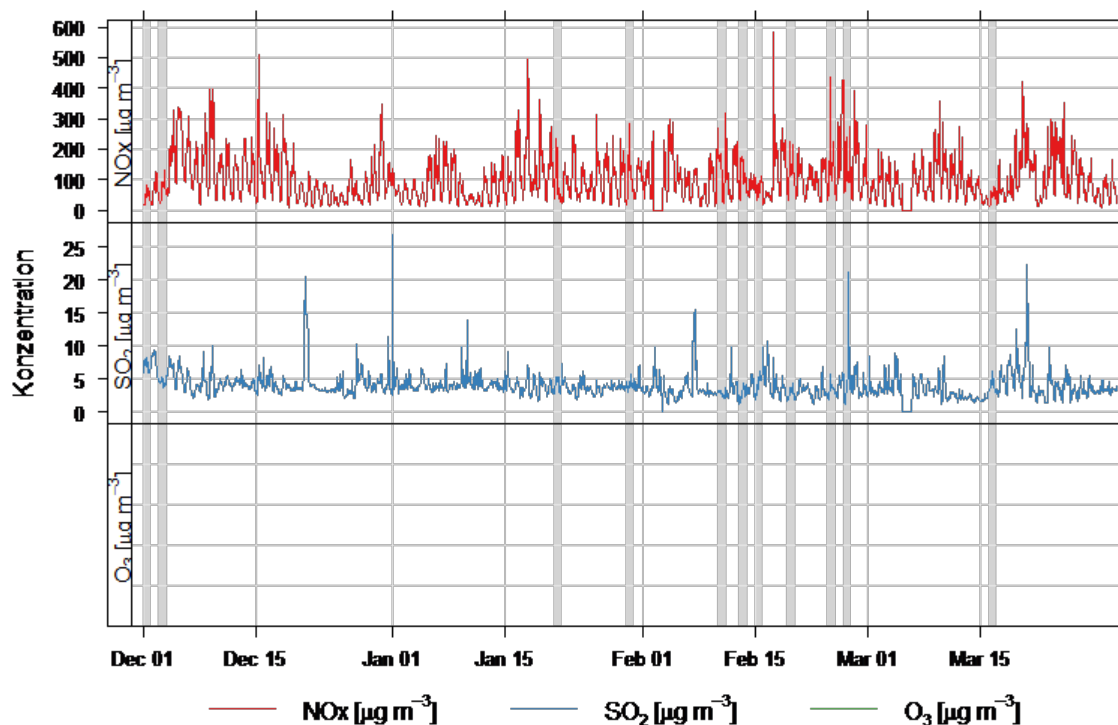


Abbildung 14: Spurengaskonzentrationen am Standort LMI für den Zeitraum der Winterkampagne 2014/15; Messtage mit BERNER-Impaktor-Probenahme sind grau hinterlegt

Tabelle 7: Mittelwerte der Spurengaskonzentrationen für alle Messtage der Winterkampagne; an Station EIB keine Daten verfügbar

Ifd. Nr.	Datum	NO [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO _x [$\mu\text{g m}^{-3}$]			SO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			O ₃ [$\mu\text{g m}^{-3}$]		
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL
22	14/12/2013	68	6,4	3,1	48	24	28	116	30	31	1,6	0,2	1,6	n.v.	9,8	n.v.
23	17/12/2013	189	21	6,2	88	36	19	277	57	25	4,4	3	1,6	n.v.	13	40
24	08/01/2014	69	2,6	0,7	53	19	10	122	21	11	2,1	3	1,4	n.v.	30	62
25	15/01/2014	103	11	5,8	54	25	22	157	36	27	2,2	3,9	1,1	n.v.	8,7	21
26	23/01/2014	29	2,8	1,6	31	16	16	60	19	18	6,4	8,5	9,4	n.v.	12	38
27	25/01/2014	25	2	1,5	35	17	19	60	19	20	11	12	13	n.v.	31	63
28	29/01/2014	23	1,7	1,5	33	15	19	56	16	20	12	13	18	n.v.	25	49
29	06/02/2014	64	2,7	1,1	50	18	14	114	20	15	3	3,6	2,2	n.v.	36	69
30	17/02/2014	76	4	1,3	57	18	8,5	133	22	9,8	2,3	2,8	1,6	n.v.	35	63
31	24/02/2014	55	3,5	2,4	53	19	15	108	23	17	6	5,4	4,1	n.v.	39	71
32	01/12/2014	18	2,4	0,2	25	7,9	9,9	43	10	10	6,9	4,5	5,9	n.v.	31	59
33	03/12/2014	40	5	1,9	28	14	20	67	19	21	4,5	3,2	5,8	n.v.	10	18
34	21/01/2015	43	9,1	0,7	40	28	15	83	39	16	4,1	1,6	3,6	n.v.	23	39
35	30/01/2015	58	2,4	0,3	45	20	10	103	24	10	4	0,6	2,2	n.v.	50	68
36	10/02/2015	81	0,9	0,1	57	20	5,5	138	25	5,6	2,8	0,6	0,3	n.v.	51	70
37	13/02/2015	60	5,9	1,9	45	28	19	105	34	21	2,7	1,8	2,1	n.v.	22	31
38	15/02/2015	26	1,3	0,5	41	23	12	67	25	13	4,7	4,2	4,7	n.v.	41	66

Ifd. Nr.	Datum	NO [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			NO _x [$\mu\text{g m}^{-3}$]			SO ₂ [$\mu\text{g m}^{-3}$]			O ₃ [$\mu\text{g m}^{-3}$]		
		LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL	LMI	TRO	MEL
39	19/02/2015	71	6,6	1,6	49	34	19	120	41	21	2,8	0,8	1,6	n,v,	24	41
40	24/02/2015	86	4,4	0,6	57	23	10	142	28	11	3,3	1,7	0,9	n,v,	45	58
41	26/02/2015	74	10	5,4	59	39	13	132	50	18	4,9	2	1,7	n,v,	27	44
42	16/03/2015	17	1,6	0,3	28	16	8,1	44	18	8,4	3,9	1,9	3,4	n,v,	61	83

3.2 Partikelanzahlkonzentrationen

Sommerkampagne

Für die aus den Partikelgrössenspektrometern abgeleitete Partikelanzahl und Partikelmasse wurden die Partikelgrössenverteilungen für bestimmte Partikelgrössenbereiche integriert: $N_{[20;110\text{nm}]}$, $M_{[40;110\text{nm}]}$, $M_{[110;330\text{nm}]}$, $M_{[330;800\text{nm}]}$. Zweck dieser Intervalleinteilung war einerseits die Berechnung einer Partikelanzahl für den Bereich ultrafeiner Partikel (20-110 nm), andererseits der Partikelmasse für drei Bereiche, die den ersten drei Stufen des BERNER-Impaktors entsprechen (0,05-0,14, 0,14-0,42, 0,42-1,2 μm aerodynamischer Durchmesser). Um von der Partikelgrössenverteilung auf eine Massenkonzentration zu gelangen, wurde Kugelform der Partikel und eine mittlere Partikeldichte von $1,5 \text{ g cm}^{-3}$ angenommen.

Abbildung 15 zeigt Tagesmittelwerte der verfügbaren kontinuierlichen Messdaten für den Zeitraum 15.06. bis 13.10.2013. Während die Messwerte an den Messstationen MEL und TRO oft große Ähnlichkeit aufwiesen, ist bei den verkehrsnahen Messstationen EIB und LMI ein deutliches Inkrement auszumachen. In erster Näherung wurde dieses Inkrement vom Verkehr an letzteren Stationen verursacht.

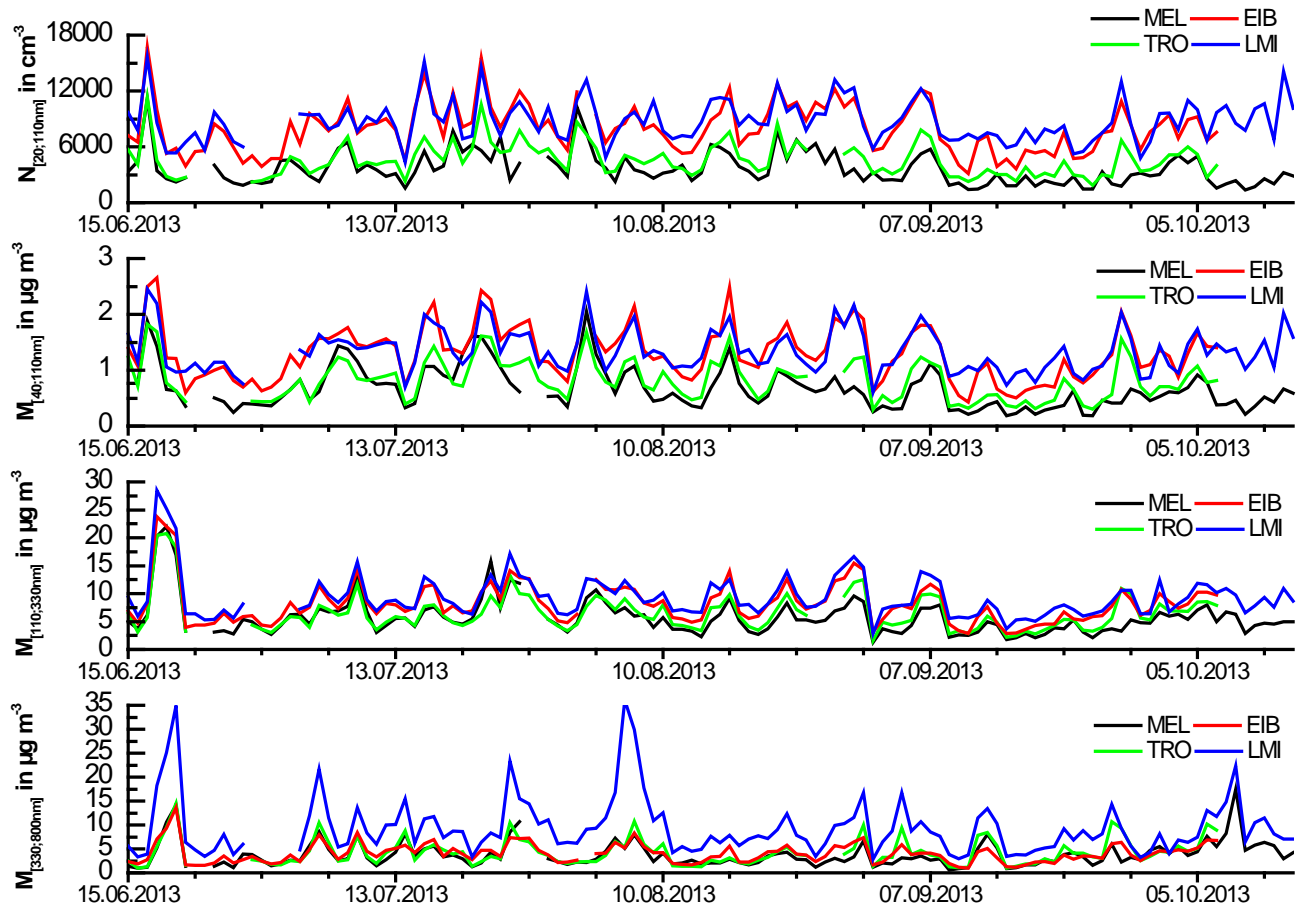


Abbildung 15: Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl ($N_{[20;110nm]}$) und Partikelmasse ($M_{[40;110nm]}$, $M_{[110;330nm]}$, $M_{[330;800nm]}$). Gezeigt sind Tagesmittelwerte der verfügbaren Messdaten für den Zeitraum der Sommermessungen (15.06.–13.10.2013).

Anzahlgrößenverteilungen

Im nächsten Schritt wurden mittlere Anzahlgrößenverteilungen für alle Messtage mit BERNER-Probenahme berechnet. In Abbildung 16 bis Abbildung 19 sind diese für alle Stationen mit verfügbaren Daten für die Sommerkampagne gezeigt.

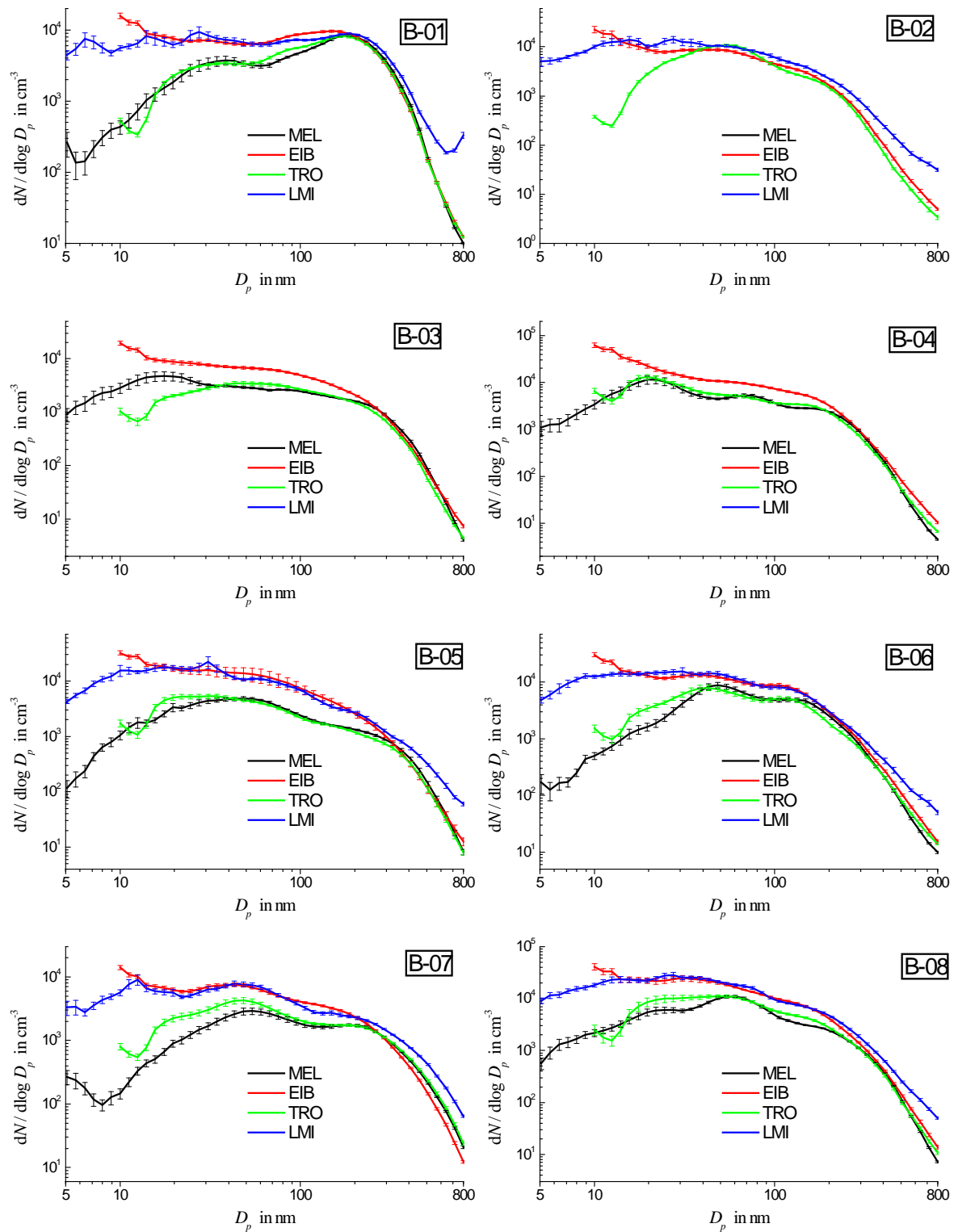


Abbildung 16: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B1-B8

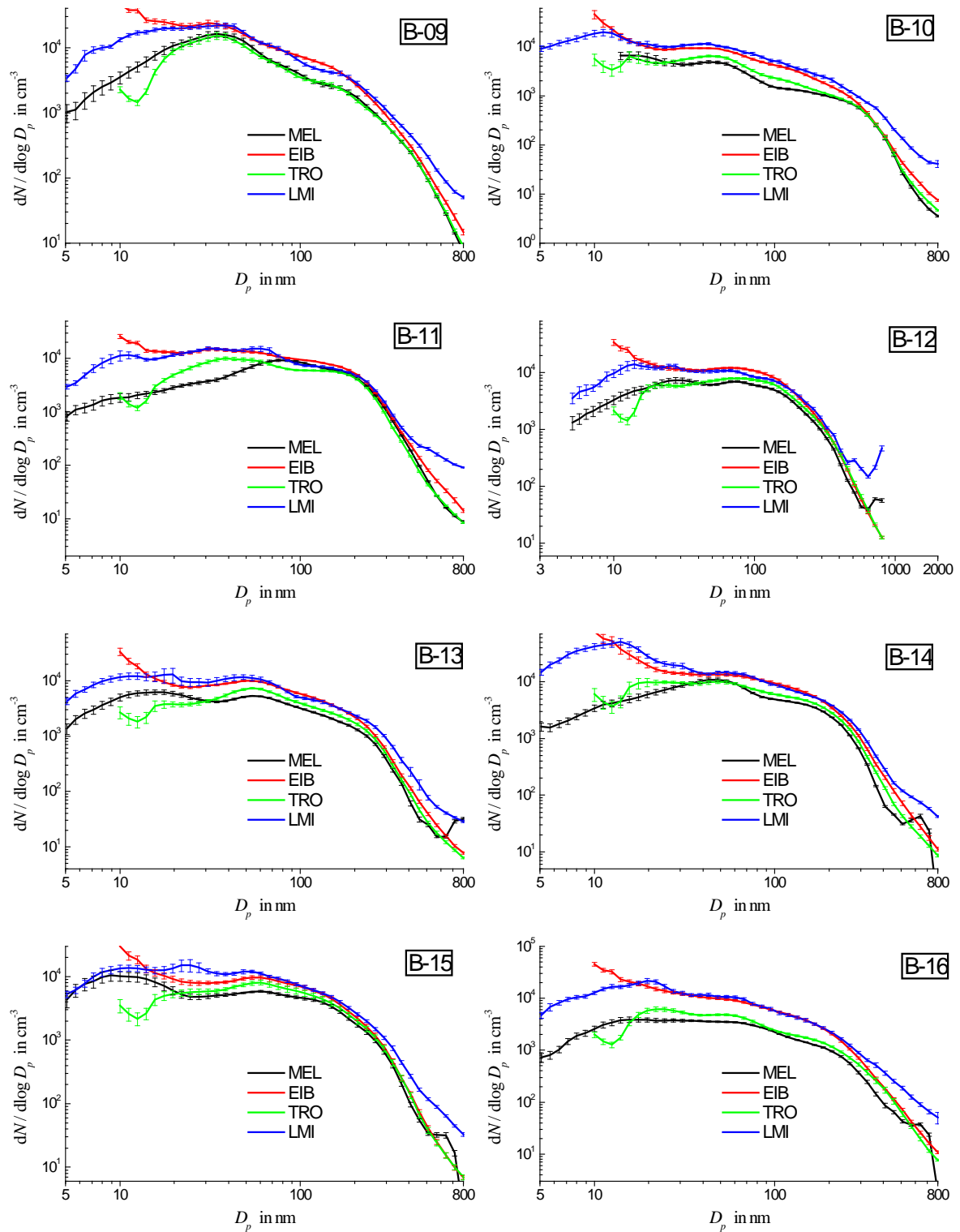


Abbildung 17: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B9-B16

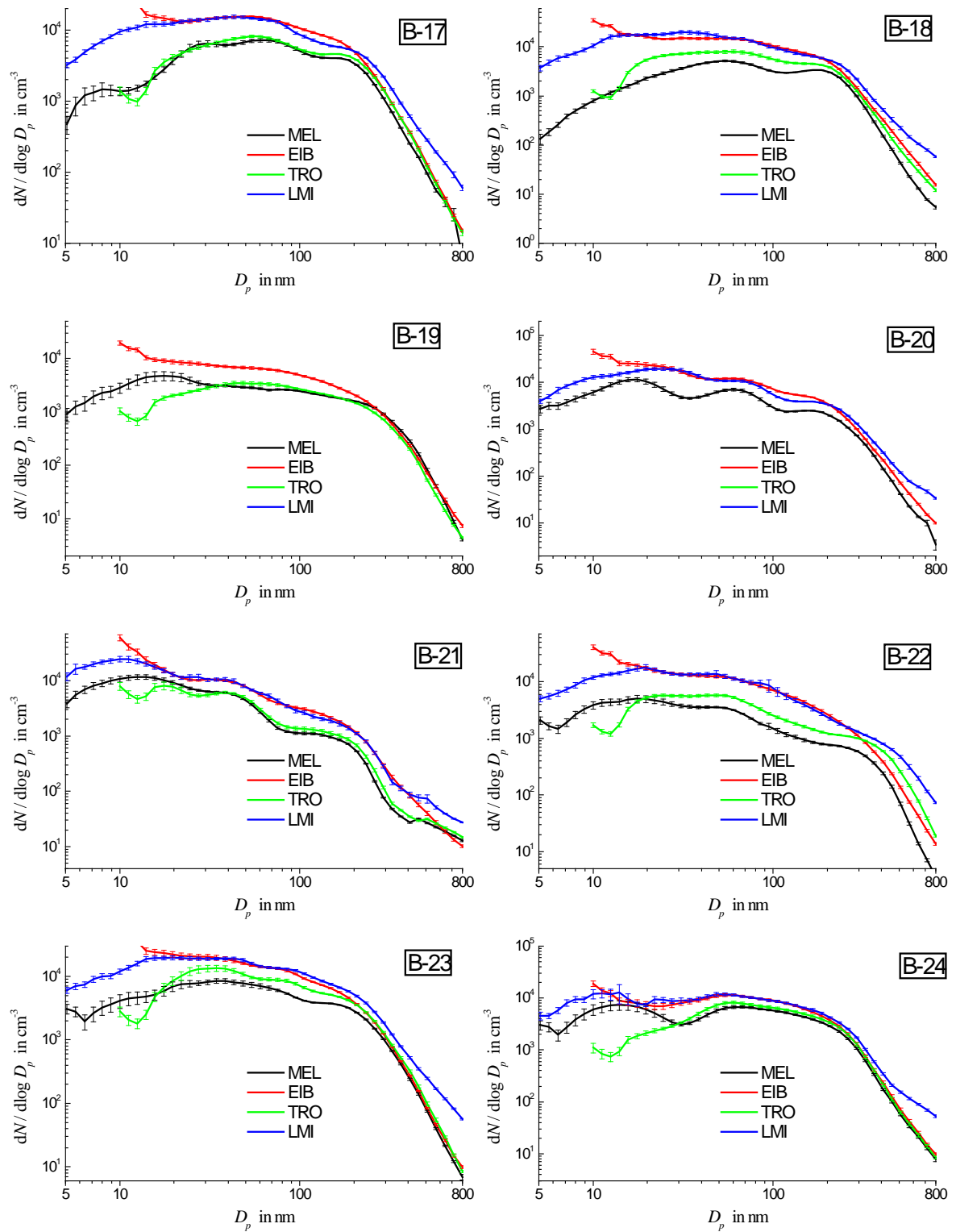


Abbildung 18: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B17-B24

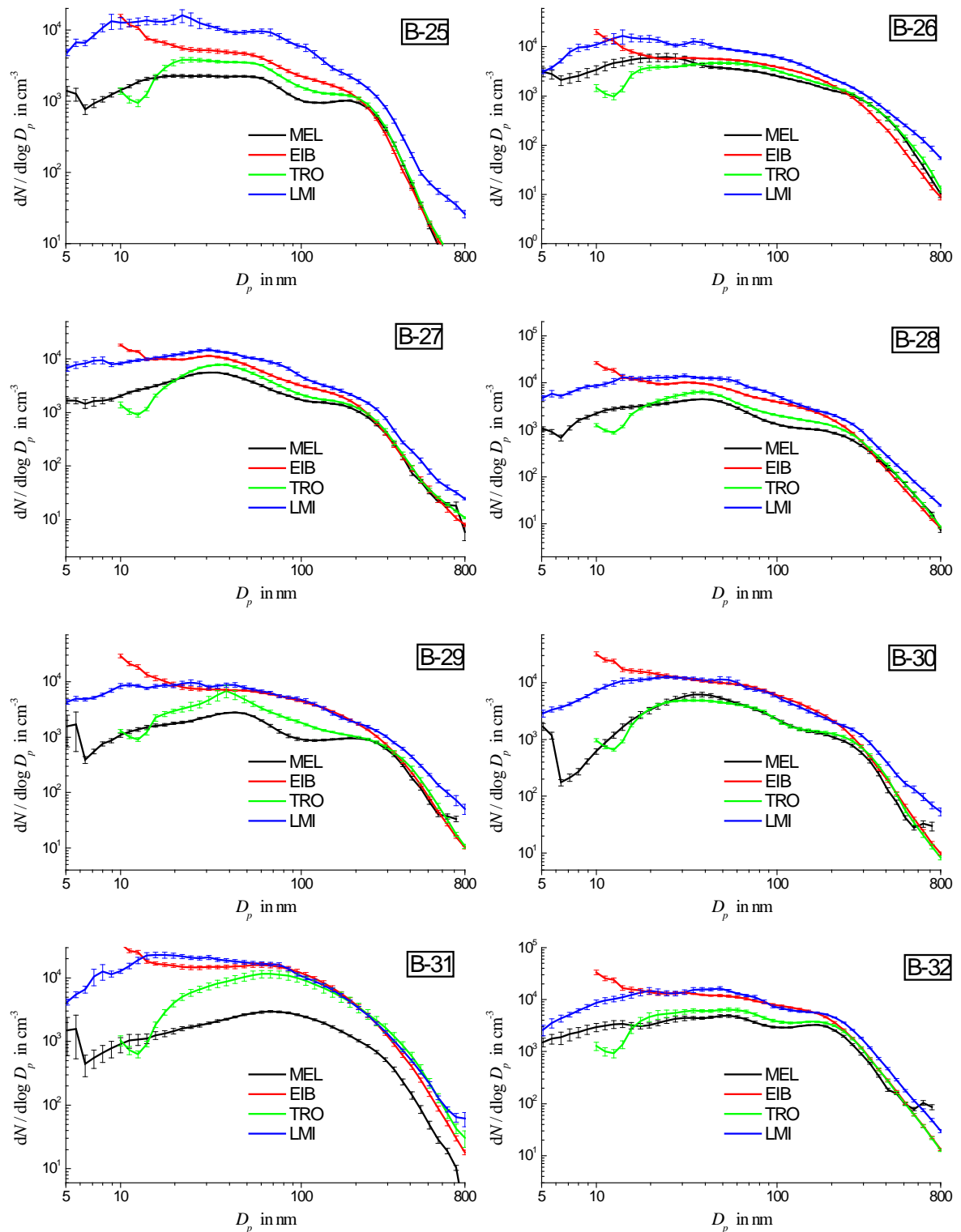


Abbildung 19: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Impaktor, Messtage B25-B32

Hier setzt sich der Trend fort, dass die Konzentrationen an Verkehrsstationen (LMI und EIB) höher als die im städtischen Hintergrund (TRO) sind und jene wiederum höher als im ländlichen atmosphärischen Hintergrund (MEL).

Windrichtungsabhängigkeit

Zur Untersuchung der Windrichtungsabhängigkeit der Partikelanzahlkonzentration wurden die Windrichtungsmesswerte in TRO als für Leipzig repräsentative Windrichtung ausgewählt und auf die Daten aller Stationen angewandt. Grund für diese Wahl war die hohe und ungestörte Lage der Windmessung auf dem Dach des TROPOS-Gebäudes. Ziel der Darstellung ist es, auf mögliche Einflüsse lokaler und regionaler Partikelquellen aufmerksam zu werden. Abbildung 20 zeigt die Abhängigkeit der Partikelanzahlkonzentration von der Windrichtung in verschiedenen Partikelgrößenbereichen.

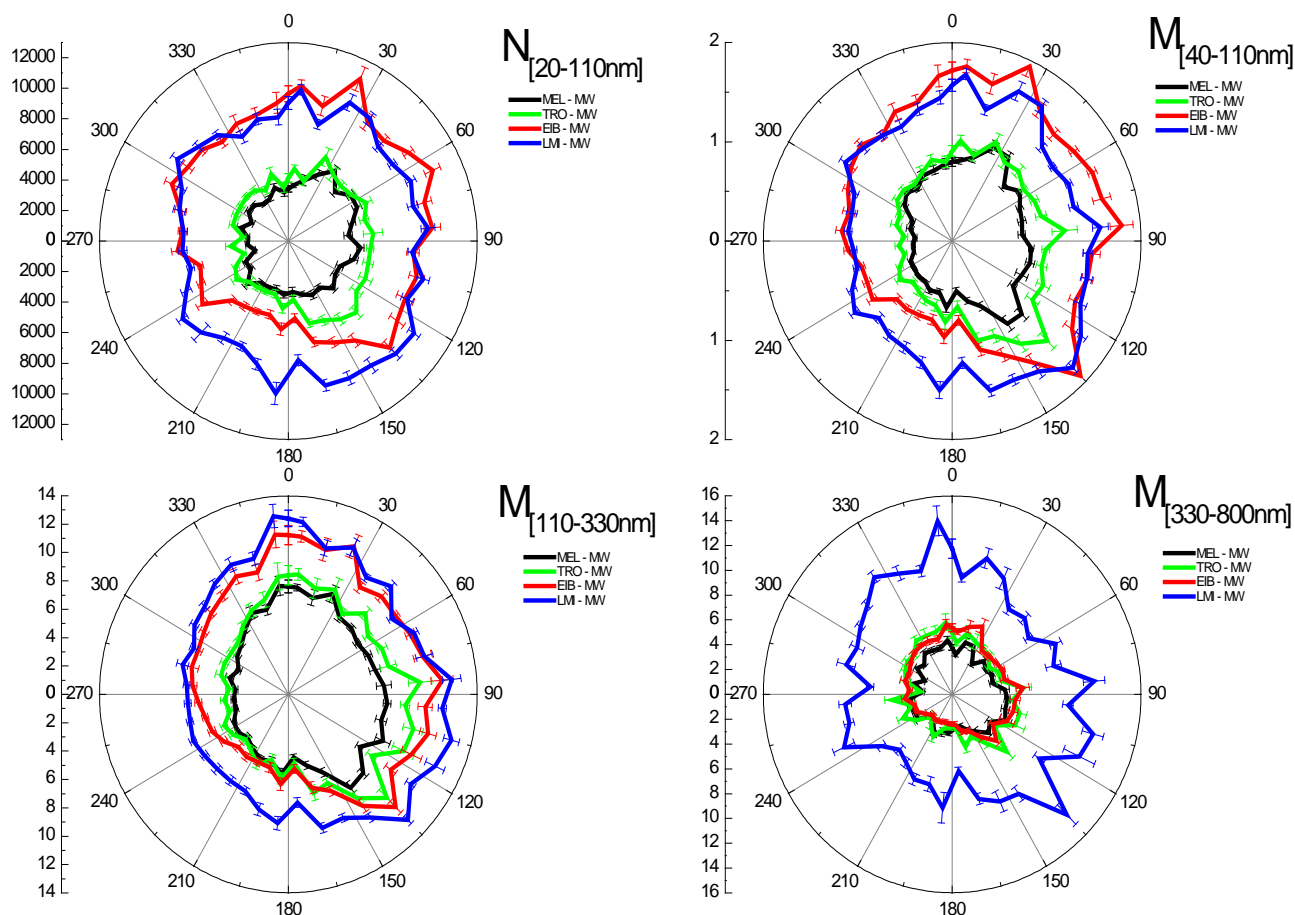


Abbildung 20: Abhängigkeit der Partikelanzahl ($N_{[20;110nm]}$, in cm^{-3}) und Partikelmasse ($M_{[40;110nm]}$, $M_{[110;330nm]}$, $M_{[330;800nm]}$, in $\mu g m^{-3}$) von der Windrichtung. Die Grafiken zeigen arithmetische Mittelwerte für den Sommerzeitraum 15.06.-13.10.2013.

Alle vier Teildiagramme bestärken die bereits bekannte Anordnung Verkehrsstation (LMI und EIB) > Städtischer Hintergrund (TRO) > ländlicher Hintergrund (MEL) bezüglich der gemessenen Konzentrationen. Diese Anordnung der Stationen ist Abbildung 20 zufolge im Wesentlichen für alle Windrichtungen gültig.

Ein bemerkenswerter Punkt sind die gegenüber LMI geringeren Partikelkonzentrationen in EIB aus südlicher Richtung. Diese geringeren Konzentrationen lassen sich durch die Lage der Messstelle EIB auf der nördlichen Seite der Straßenschlucht erklären: Bei Südwind wurde die Messstelle EIB vornehmlich durch abwärts zirkulierende Luft von oberhalb der Straßenschlucht belüftet. Dies führte zu geringeren Konzentrationen als bei Wind aus anderen Richtungen (VOIGTLÄNDER et al. 2006).

Winterkampagne

Wie für die Sommerkampagne wurden aus den Mobilitätsspektrometerdaten die Partikelanzahl- und Partikelmassenkonzentration für bestimmte Partikelgrößenbereiche aufintegriert: $N_{[20;110\text{nm}]}$, $M_{[40;110\text{nm}]}$, $M_{[110;330\text{nm}]}$, $M_{[330;800\text{nm}]}$. Zweck dieser Intervalleinteilung war erneut die Berechnung einer Partikelanzahl für den Bereich ultrafeiner Partikel (20-110 nm), andererseits der Partikelmasse für drei Bereiche, die den ersten drei Stufen des BERNER-Impaktors entsprechen (0,05-0,14 μm , 0,14-0,42 μm , 0,42-1,2 μm im aerodynamischen Durchmesser). Um aus der Partikelgrößenverteilung eine Massenkonzentration zu erlangen, wurde Kugelform der Partikel und eine mittlere Partikeldichte von $1,5 \text{ g cm}^{-3}$ angenommen. Abbildung 21 zeigt Tagesmittelwerte der verfügbaren kontinuierlichen Messdaten für den Zeitraum der ersten Wintermessungen (01.12.2013–31.3.2014).

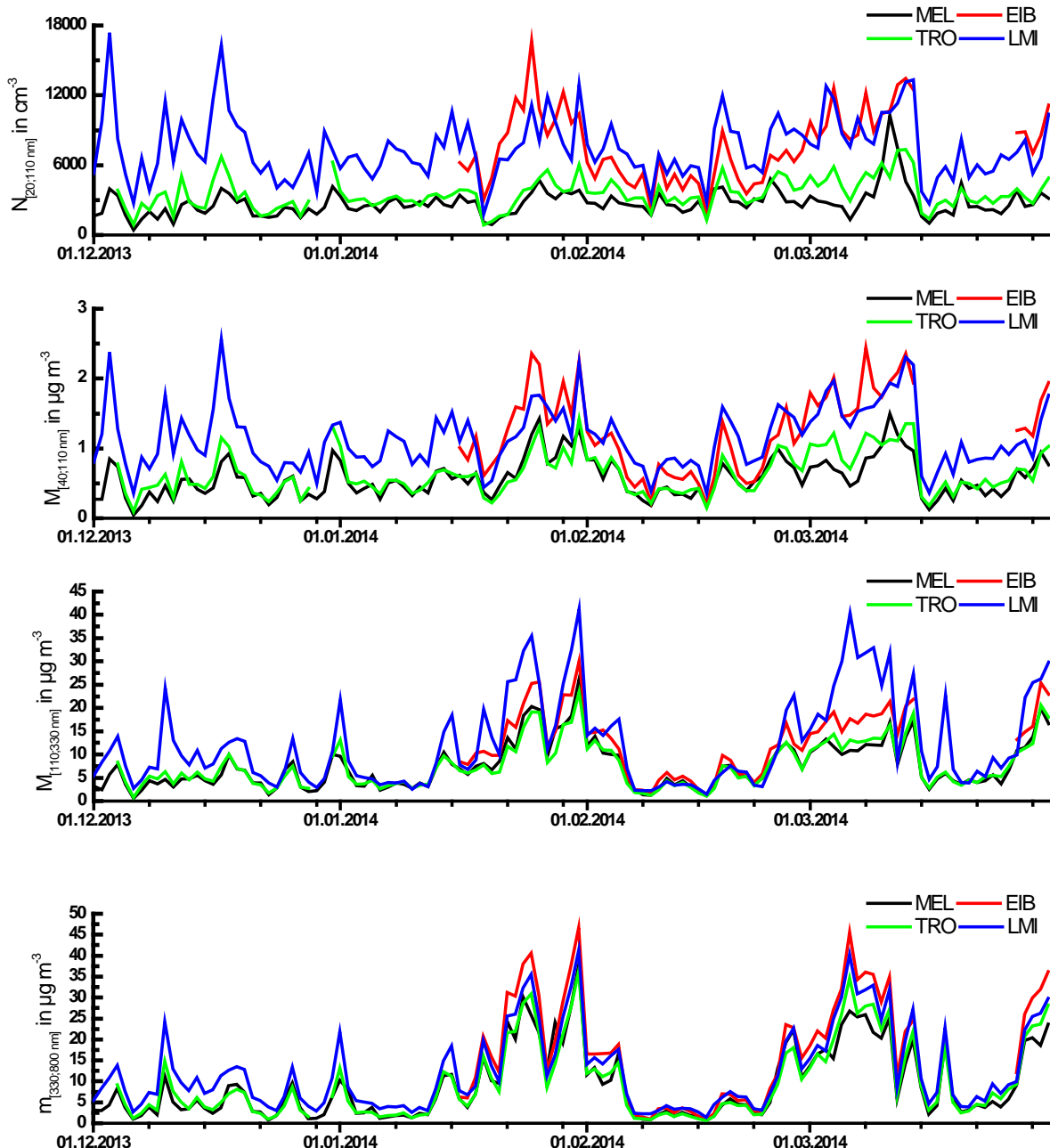


Abbildung 21: Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl ($N_{[20;110\text{nm}]}$) und Partikelmasse ($M_{[40;110\text{nm}]}$, $M_{[110;330\text{nm}]}$, $M_{[330;800\text{nm}]}$), Tagesmittelwerte, 01.12.2013–31.03.2014

Leider fiel das Messinstrument in EIB durch technische Probleme im Dezember aus. Es wurde im Anschluss an die Ausfallperiode durch ein neues Mobilitätspartikelgrößenpektrometer ersetzt. Die Partikelanzahl $N_{[20;110\text{nm}]}$ wies in EIB und LMI als Folge des anliegenden Straßenverkehrs deutlich erhöhte Werte auf (Abbildung 21). Ähnliches ist für $M_{[40;110\text{nm}]}$ und teilweise $M_{[110;330\text{nm}]}$ zu erkennen. Bei der Massenkonzentration der Akkumulationsmodepartikel $M_{[330;800\text{nm}]}$ hingegen sind die vier Zeitreihen sehr ähnlich. Grund hierfür ist die Langlebigkeit dieser Partikel, die mit einer hohen räumlichen Homogenität einhergeht. Lokale Emissionen können nur in geringem Maße zu erhöhten Werten von $M_{[330;800\text{nm}]}$ beitragen. Dieser Parameter ist hingegen, wie in Abbildung 21 deutlich wird, eine starke Funktion der großräumigen Wetterlage. Im Winter 2013/2014 waren lange Phasen durch mildes Wetter und entsprechend niedrige Partikelmassenkonzentrationen geprägt.

Abbildung 22 stellt die Tagesmittelwerte der verfügbaren Anzahl- und Masseparameter für den zweiten Winterzeitraum 2014/2015 dar. $N_{[20;110\text{nm}]}$ und $M_{[40;110\text{nm}]}$ stellen die bekannten Verhältnisse bei der Konzentration ultrafeiner Partikel dar, die durch die KfZ-Emissionen an den Straßen geprägt sind: (LMI; EIB) > (TRO; MEL). $M_{[110;330\text{nm}]}$ und $M_{[330;800\text{nm}]}$ zeigten sich hingegen weniger von lokalen als von regionalen Quellen beeinflusst. Für diese Massenkonzentrationen fielen die Unterschiede zwischen den Messstationen nur relativ gering aus. Hingegen erwiesen sich die Massenkonzentrationen als stark abhängig von der Zeit, d. h. von der vorherrschenden Wetterlage. Phasen geringer Massenkonzentrationen wechselten sich im Rhythmus mehrerer Tage mit entgegengesetzten Phasen hoher Massenkonzentrationen ab.

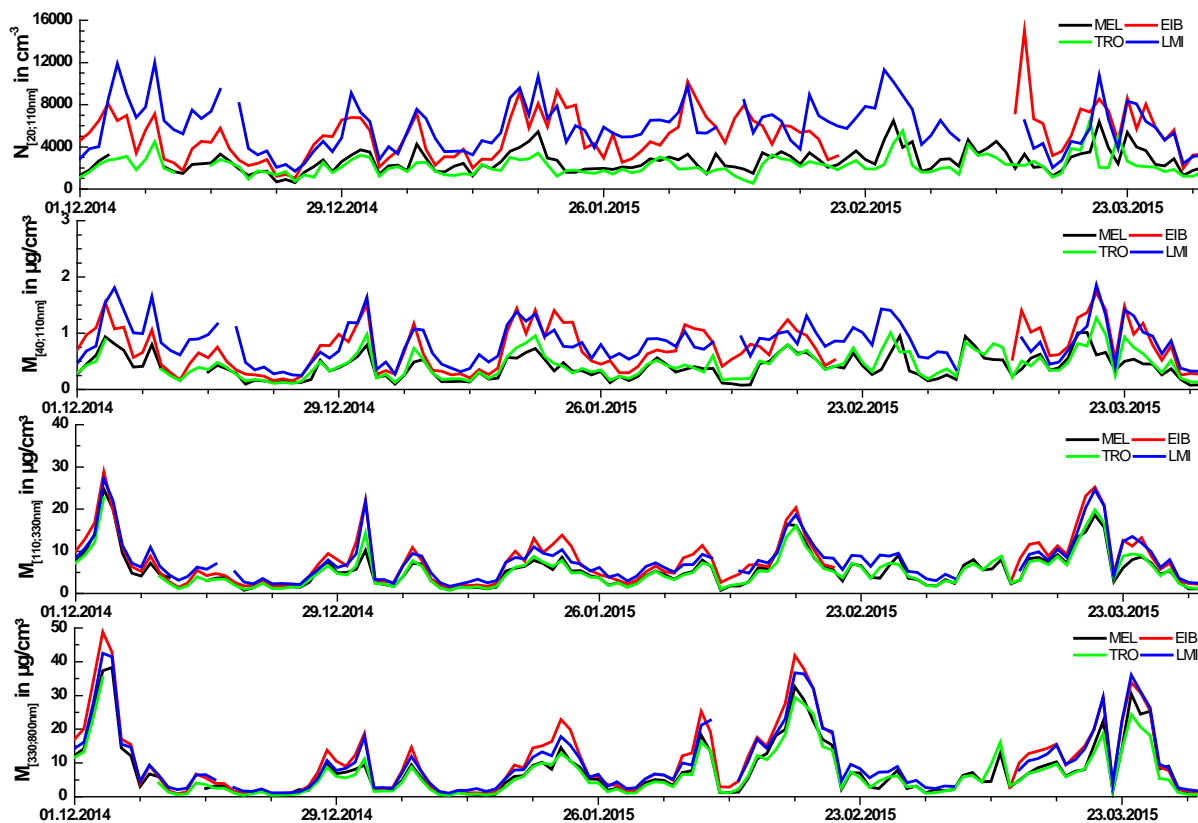


Abbildung 22: Zeitreihen der berechneten Partikelanzahl ($N_{[20;110\text{nm}]}$) und Partikelmasse ($M_{[40;110\text{nm}]}$, $M_{[110;330\text{nm}]}$, $M_{[330;800\text{nm}]}$), Tagesmittelwerte, 01.12.2014–31.03.2015

Anzahlgrößenverteilungen

Im nächsten Schritt wurden mittlere Anzahlgrößenverteilungen für alle Messtage mit BERNER-Probenahme im Winterzeitraum berechnet. In Abbildung 23 bis Abbildung 33 sind diese für alle Stationen mit verfügbaren Daten gezeigt. Der Einfluss städtischer Quellen wird vor allem im Größenbereich < 200 nm sichtbar. Oberhalb

200 nm findet man häufig eine Übereinstimmung aller vier Partikelanzahlgrößenverteilungen innerhalb von 10 bis 20 %.

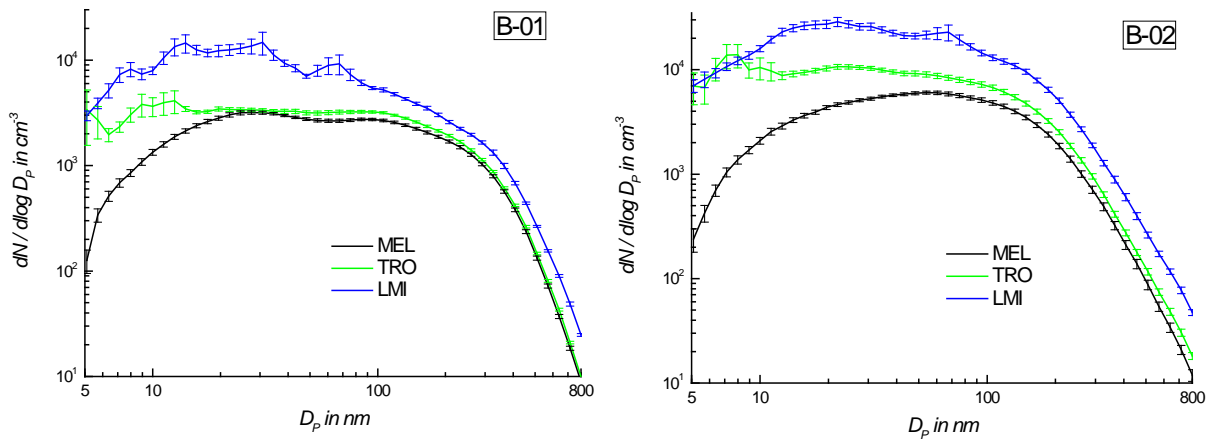


Abbildung 23: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 14.12. und 17.12.2013

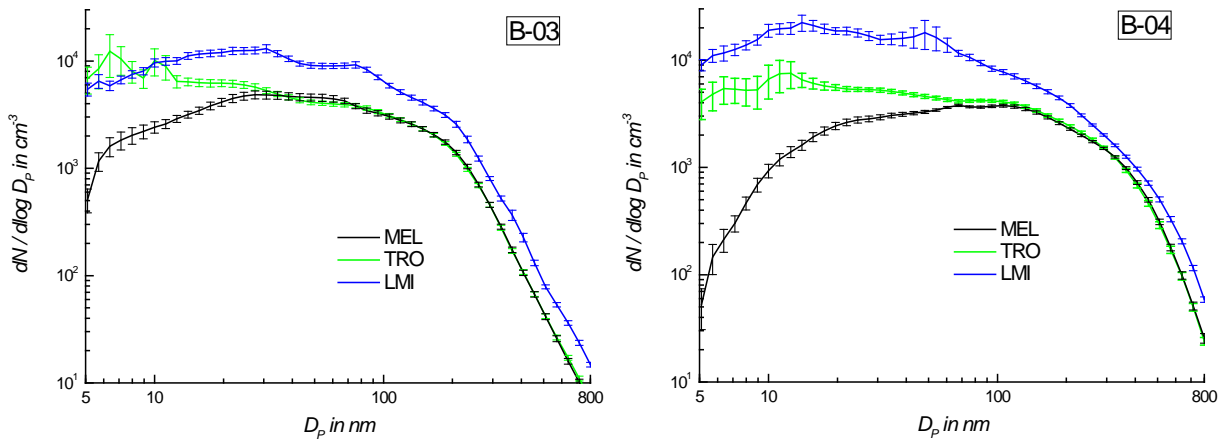


Abbildung 24: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 08.01. und 15.01.2014

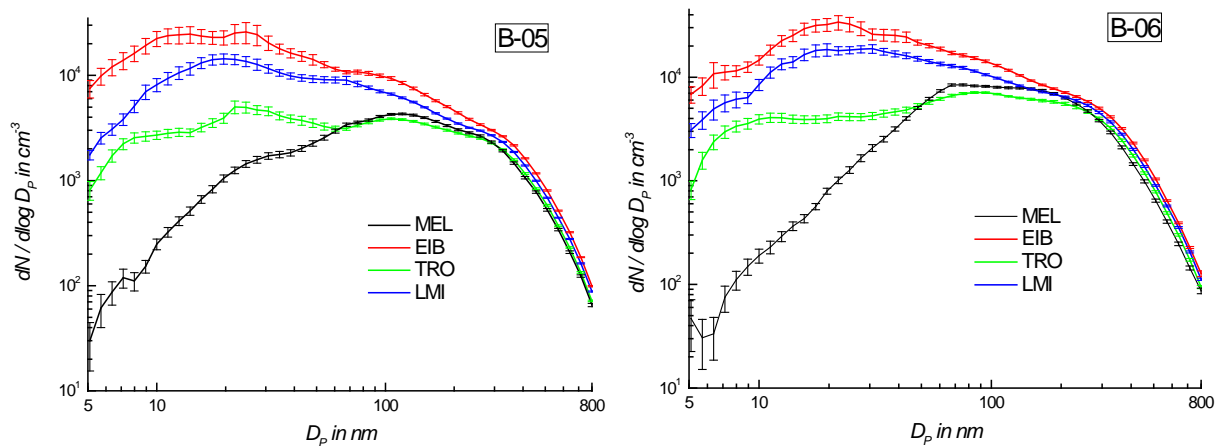


Abbildung 25: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 23.01. und 25.01.2014

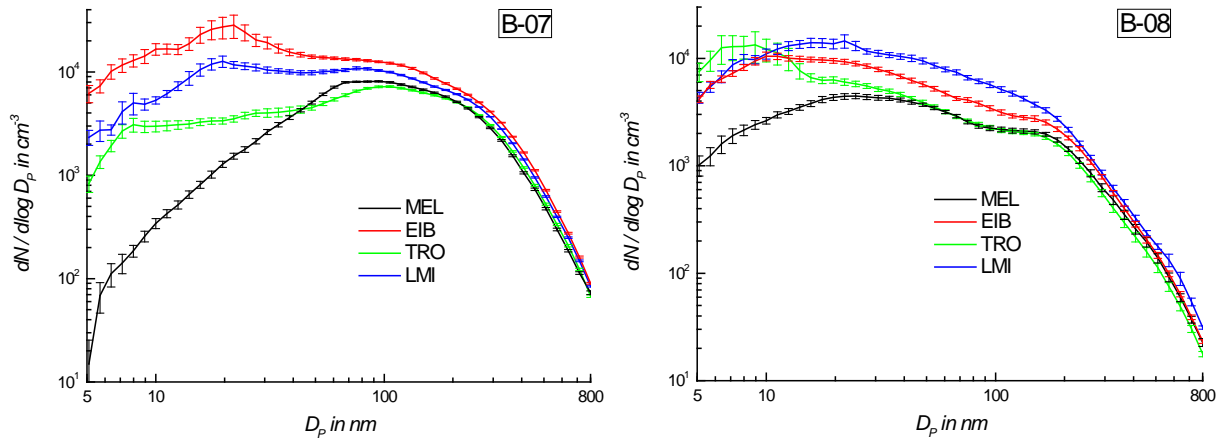


Abbildung 26: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 29.01. und 06.02.2014

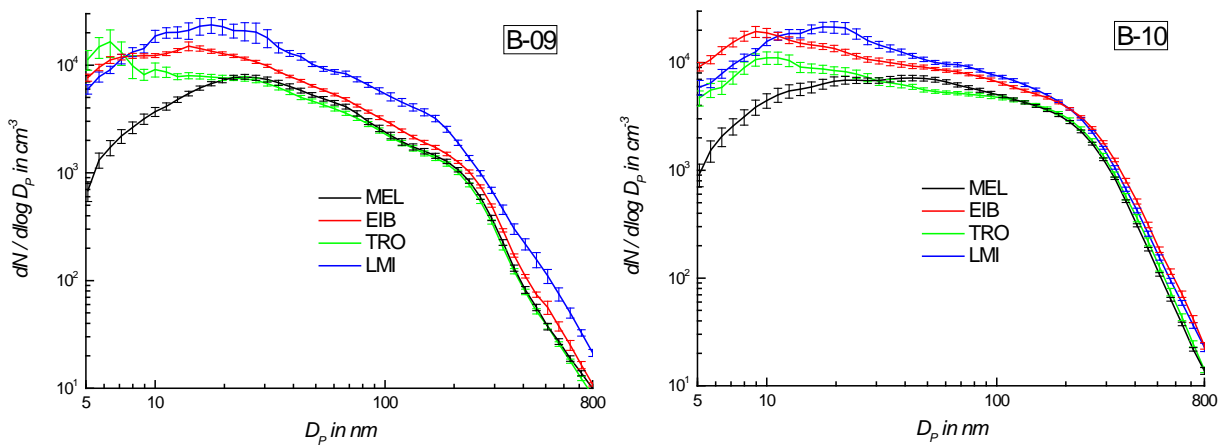


Abbildung 27: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 17.02. und 24.02.2014

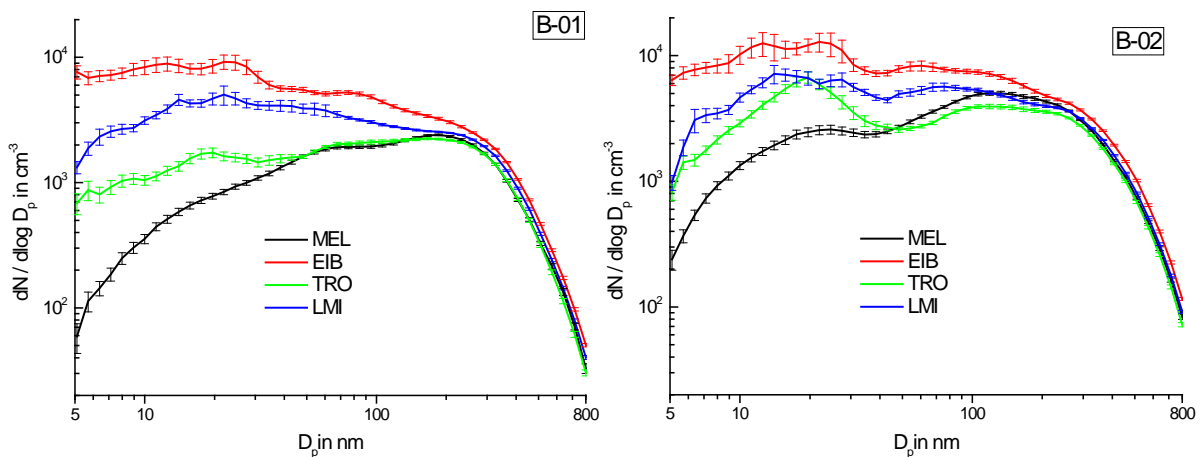


Abbildung 28: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 01.12. und 03.12.2014

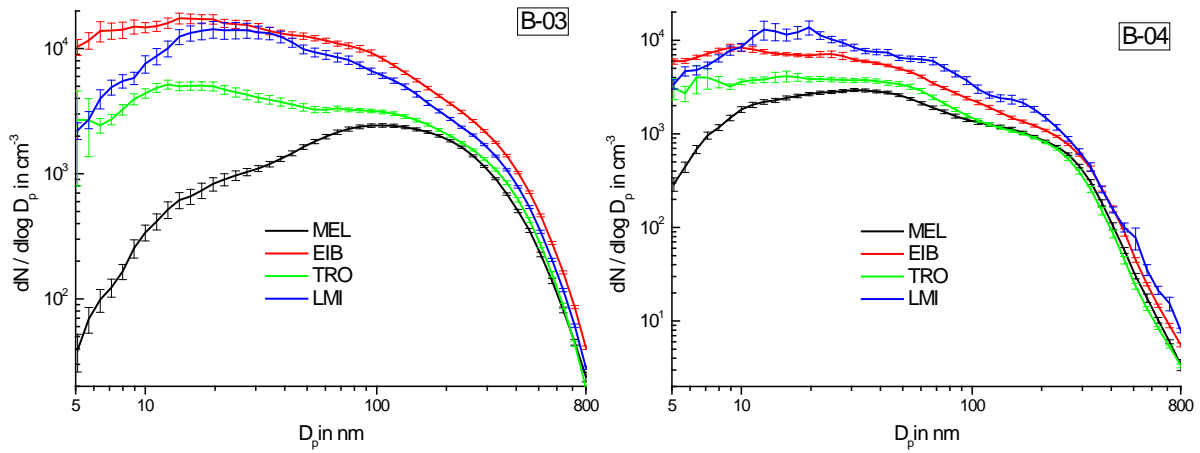


Abbildung 29: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 21.01. und 30.01.2015

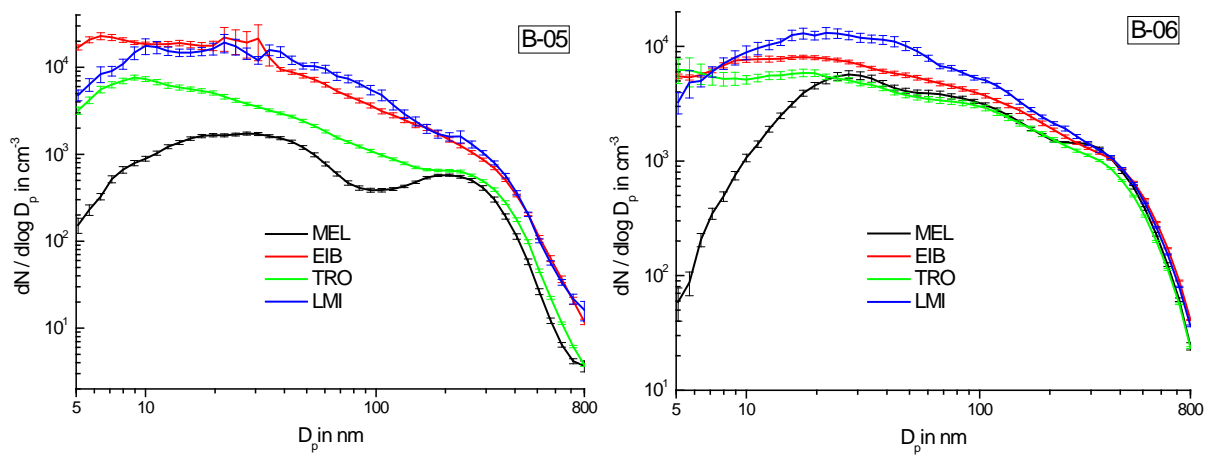


Abbildung 30: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 10.02. und 13.02.2015

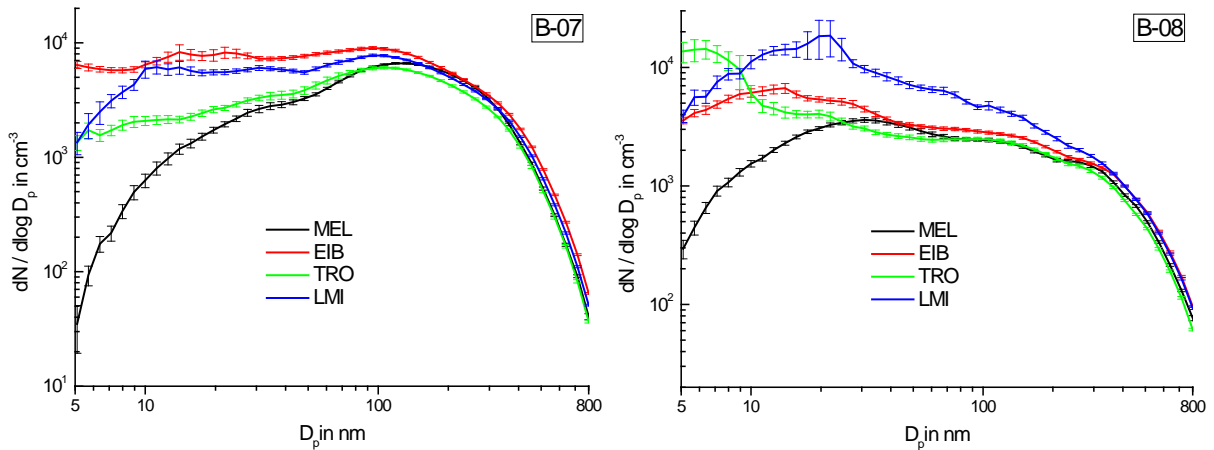


Abbildung 31: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 15.02. und 19.02.2015

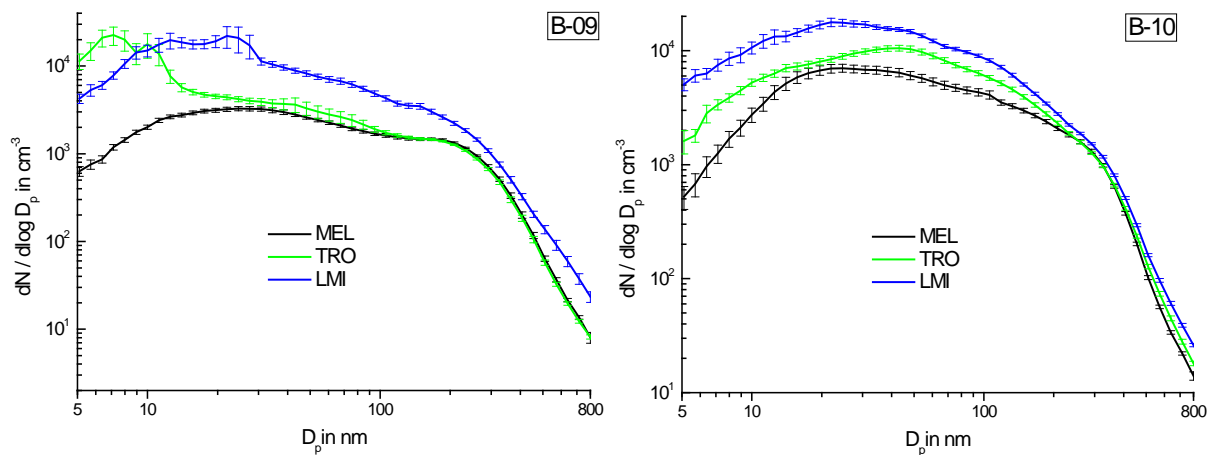


Abbildung 32: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für die BERNER-Messtage 24.02. und 26.02.2015

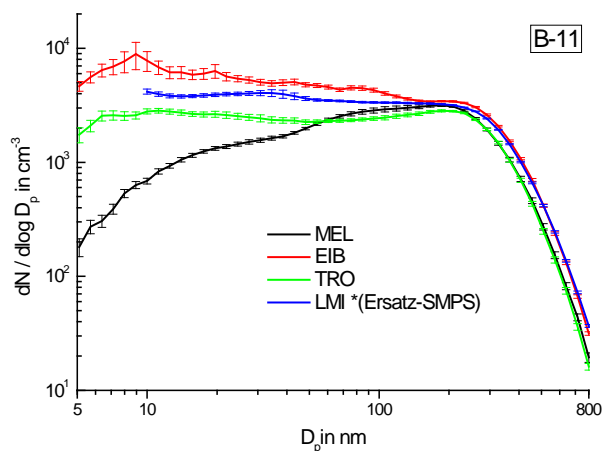


Abbildung 33: Mittlere Partikelanzahlgrößenverteilungen für den BERNER-Messtag 16.03.2015

3.3 Konzentrationsvergleiche der PM-Inhaltsstoffe

3.3.1 Vorbemerkungen

Im Folgenden werden die Konzentrationen der PM-Inhaltsstoffe im Vergleich der vier Messtationen und der beiden Jahreszeiten diskutiert. Gezeigt werden hier und in anderen Kapiteln des Berichtes mittlere Werte. Als Maß für den mittleren Trend der Konzentrationsverteilungen wird in der Regel der Median verwendet, der statistisch robuster und gerade bei relativ kleinen Datensätzen weniger stark durch einzelne Extremwerte beeinflusst ist.

Die Untersuchung der Partikelinhaltsstoffe dient der prinzipiellen Klärung der Zusammensetzung, aber auch der Identifizierung von Quellen. Die gröÙenselektive chemische Analyse erlaubt zusätzliche Möglichkeiten der Quellzuordnung, weil verschiedene Quellen in unterschiedlichen typischen Partikelgrößenbereichen emittieren.

3.3.2 Masse

Die Abbildung 34 zeigt die Mediane der Partikelmassen aller Stufen der Impaktorproben für die Sommer- bzw. Wintermesskampagne an allen vier Probenahmeorten. Die Masseverteilung der winterlichen Proben war einheitlich für alle Stationen. Die Partikel der Stufe 3 (0,42–1,2 µm) enthielten dabei $58 \pm 3 \%$ der Gesamtmasse. In der Folge stellten die Partikel der Stufen 2 ($22 \pm 2 \%$) und 4 (9–16 %) die massereichen Fraktionen, während die Stufen 1 und 5 für die Gesamtaerosolmasse nahezu keine Rolle spielten. Von Leipzig-Mitte über Leipzig-Eisenbahnstraße, Leipzig-TROPOS nach Melpitz fielen erwartungsgemäß die Massenkonzentrationen. Einzige Ausnahme bildete die Stufe 2, wo in Leipzig-Eisenbahnstraße minimal höhere Konzentrationen als in Leipzig-Mitte beobachtet wurden.

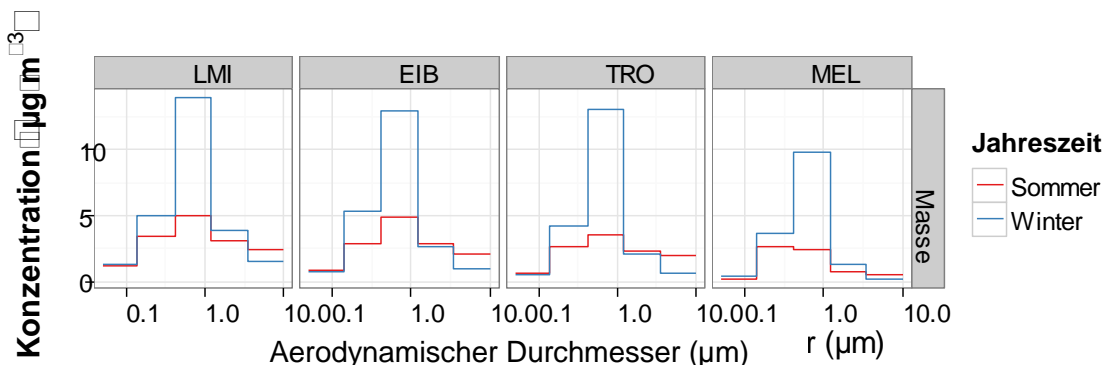


Abbildung 34: Mediane der größen aufgelösten Partikelmassekonzentration der Messperioden Sommer und Winter an allen vier Stationen

Die sommerliche Gesamtkonzentration lag überall deutlich unter der des Winters. Bei der stufenweisen Betrachtung fällt allerdings auf, dass die Grobstaubpartikel der Stufe 5 (vor allem Aufwirbelungen sind die Quelle) an allen vier Standorten im Sommer höhere Konzentrationen als im Winter aufwiesen. Die ultrafeinen Partikel der ersten Impaktorstufe wiesen nur sehr geringe Unterschiede für Sommer und Winter auf. Der Konzentrationsgradient von Leipzig-Mitte über Leipzig-Eisenbahnstraße und Leipzig-TROPOS nach Melpitz war in den ultrafeinen Partikeln sehr deutlich, was bedeutet, dass deren vorwiegende Quelle die direkte Verkehrsemission war. Die PM_{10} -Konzentrationen für Masse und Ionen sind in Tabelle 8 gezeigt.

Tabelle 8: Massenkonzentrationen (PM_{10}) (Median/Arithmetische Mittel [min-max]) während der Sommer- bzw. Wintermessperioden für Masse und Ionen in $\mu g m^{-3}$

		LMI	EIB	TRO	MEL
Masse	Sommer	15/18 (7,5-71)	14/15 (4,8-24)	11/12 (4,8-20)	6,5/7,4 (3,7-14)
	Winter	25/27 (7,8-63)	23/24 (5,5-56)	21/21 (5,9-47)	15/17 (3,8-44)
Nitrat	Sommer	1,2/1,4 (0,33-3,9)	1,5/1,4 (0,31-4,2)	1,1/1,1 (0,38-3,3)	0,51/0,58 (0,1-1,6)
	Winter	3,9/4,7 (0,72-13)	4,4/4,4 (0,9-11)	3,4/3,6 (0,65-11)	2,3/2,9 (0,26-11)
Sulfat	Sommer	1,4/1,3 (0,38-3,1)	1,3/1,3 (0,54-3,3)	1,2/1,2 (0,47-3)	1/0,99 (0,25-2,2)
	Winter	1,8/2,9 (0,2-8,2)	1,7/2,8 (0,35-7,6)	1/2,7 (0,34-6,6)	1,3/2,3 (0,19-6,1)
Ammonium	Sommer	0,76/0,75 (0,17-1,8)	0,66/0,8 (0,23-1,9)	0,61/0,75 (0,17-1,8)	0,56/0,54 (0,16-1)
	Winter	2/2,3 (0,16-5,7)	1,8/2,1 (0,25-5,6)	1,2/1,6 (0,013-4,9)	1,3/1,7 (0,13-5,3)
Natrium	Sommer	0,075/0,18 (0,0016-1,6)	0,088/0,2 (0,0078-2)	0,084/0,21 (0,0074-1,9)	0,011/0,053 (0-0,43)
	Winter	0,17/0,38 (0,042-3,3)	0,12/0,22 (0,042-0,75)	0,13/0,16 (0,037-0,67)	0,05/0,097 (0,0073-0,47)

		LMI	EIB	TRO	MEL
Kalium	Sommer	0,04/0,048 (0,009-0,22)	0,042/0,042 (0,007-0,073)	0,037/0,039 (0,0089-0,1)	0,011/0,018 (0,0039-0,075)
	Winter	0,13/0,15 (0,017-0,57)	0,12/0,14 (0,026-0,52)	0,082/0,12 (0,014-0,47)	0,08/0,094 (0,0068-0,32)
Magnesium	Sommer	0,028/0,035 (0,005-0,17)	0,03/0,035 (0,0072-0,2)	0,025/0,033 (0,0052-0,19)	0,0095/0,012 (0,0019-0,05)
	Winter	0,019/0,031 (0,0078-0,18)	0,012/0,021 (0,0062-0,061)	0,016/0,023 (0,0069-0,071)	0,0084/0,013 (0,0016-0,043)
Calcium	Sommer	0,39/0,46 (0,069-1,5)	0,38/0,38 (0,11-0,89)	0,2/0,31 (0,045-0,61)	0,18/0,21 (0,022-0,52)
	Winter	0,15/0,17 (0,05-0,56)	0,14/0,17 (0,049-0,47)	0,12/0,13 (0,036-0,33)	0,06/0,08 (0,0028-0,2)
Chlorid	Sommer	0,057/0,17 (0,0001-2,1)	0,06/0,21 (0,0007-2,7)	0,043/0,17 (0,0045-2,4)	0,0054/0,033 (0-0,45)
	Winter	0,31/0,67 (0,063-6,6)	0,27/0,37 (0,036-1,1)	0,12/0,22 (0,021-0,59)	0,057/0,12 (0,0046-0,46)
Nitrit	Sommer	0,002/0,002 (0,000027-0,0052)	0,0012/0,0014 (0,000013-0,0044)	0,0012/0,0014 (0,000013-0,0042)	0,0011/0,0012 (0,000068-0,0032)
	Winter	0,0039/0,0048 (0,0011-0,012)	0,0037/0,0042 (0,0011-0,012)	0,0049/0,0058 (0,00039-0,018)	0,0027/0,0029 (0-0,01)
Oxalat	Sommer	0,026/0,046 (0,001-0,15)	0,026/0,044 (0,001-0,13)	0,025/0,045 (0,0019-0,15)	0,034/0,043 (0,0017-0,15)
	Winter	0,011/0,089 (0-1,5)	0,015/0,086 (0-1,4)	0,012/0,088 (0,0007-0,85)	0,0039/0,2 (0-2,3)

3.3.3 Haptionen

Die Haptionen Sulfat, Nitrat und Ammonium (Tabelle 8 und Abbildung 35) erklärten etwa 90 % der ionischen Anteile des Aerosols. Für die Einhaltung der gesetzlichen Vorgaben zu PM₁₀ bzw. PM_{2,5} sind ihre Konzentrationen wichtig, weil sie mit bis zu 40 % zur Gesamtaerosolbelastung beitragen und damit masserelevante Aerosolbestandteile darstellen. In der Regel werden diese ionischen Aerosolkomponenten nicht primär emittiert, sondern in der Atmosphäre aus Vorläufergasen gebildet. Die primär emittierten Gase sind NO und NO₂ aus Verbrennungsprozessen und Verkehr, SO₂ aus der Verbrennung von Kohle und Öl und NH₃ aus landwirtschaftlichen und in geringem Maße aus Verkehrsemissionen.

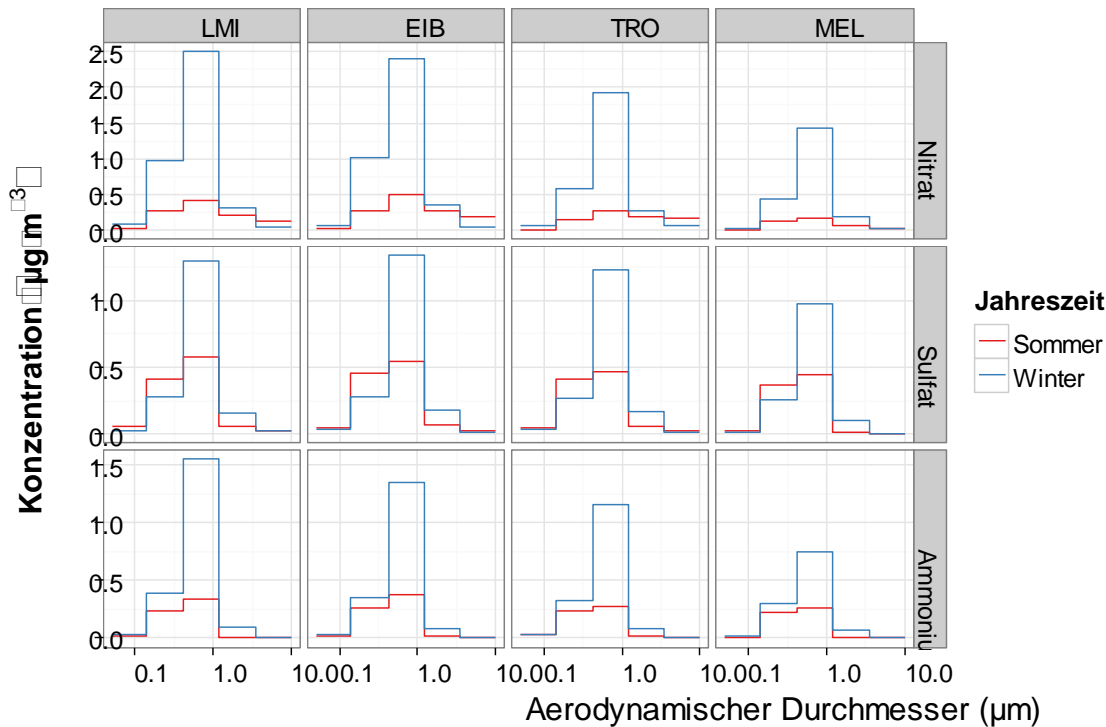


Abbildung 35: Konzentration der Hauptionen (Median) an allen vier Standorten im Sommer 2013 und den Wintern 2013, 2014 und 2015

Stationsvergleich (größenselektiv)

Nitrat: Die Größenverteilung des Nitrats war an allen vier Probenahmeorten vergleichbar. Die massereichste Stufe 3 der Impaktorproben enthielt auch die mit Abstand höchste Nitratkonzentration, gefolgt von Stufe 2, während auf den Stufen 1, 4 und 5 nur in Ausnahmen nennenswerte Nitratmengen gefunden wurden. Dieser Effekt war im Sommer jedoch nur schwach ausgeprägt, weil das Ammoniumnitrat thermisch instabil ist und unter sommerlichen Bedingungen leicht in seine gasförmigen Ausgangskomponenten Ammoniak und Salpetersäure zerfällt (SCHAAP et al. 2004). Der Konzentrationsgradient wurde auch für die Vorläuferkomponentenklasse NO_x genauso gefunden (keine Werte für Leipzig-Eisenbahnstraße).

Nitrat zeigte sowohl im Winter als auch im Sommer einen deutlichen Konzentrationsgradienten von den beiden Verkehrsstationen Leipzig-Mitte und Leipzig-Eisenbahnstraße über Leipzig-TROPOS nach Melpitz, was die Quelle Verkehr herausstreicht. NO_x aus dem Straßenverkehr war hier eindeutig die führende Quellkomponente, wobei der Einfluss des städtischen Hintergrundes speziell im Winter nicht zu vernachlässigen ist. Die Beeinflussung durch Heizungsemissionen war definitiv gegeben (Leipzig-Eisenbahnstraße: sehr dichte Wohnbebauung mit vereinzelt noch Kohlefeuerung in der nächsten Umgebung). Die Werte in der Eisenbahnstraße waren trotz deutlich geringerem Verkehrsaufkommens in der gleichen Größenordnung wie in Leipzig-Mitte. Die bessere Durchlüftung der Kreuzung am Hallischen Tor (Leipzig-Mitte) gegenüber der Messstation Leipzig-Eisenbahnstraße darf bei der Bewertung nicht außer Acht gelassen werden.

Sulfat: Beim Sulfat zeigte die Stufe 3 sowohl im Sommer als auch im Winter die höchsten Konzentrationen. Auf Stufe 4 wurden ebenfalls im Winter immer höhere Konzentrationen als im Sommer beobachtet, während auf den Stufen 1 und 2 im Sommer höhere Konzentrationen gefunden wurden. In den groben Partikeln der Stufe 5 gab es keine sichtbaren Unterschiede zwischen Sommer und Winter. Das beobachtete Konzentrationsminimum lag hier wie auch beim Ammonium im Winter an der städtischen Hintergrundstation Leipzig-TROPOS. Im Gegensatz zum Nitrat wurde hier kein überaus deutlicher Trend der Konzentrationen beobachtet.

tet. Das Vorläufergas Schwefeldioxid wurde zwar ebenfalls an der Verkehrsstation in Leipzig-Mitte mit den höchsten Konzentrationen bestimmt, aber die Differenzen zu den Konzentrationen im städtischen Hintergrund bzw. zu Melpitz waren gering. Hier gab es einen deutlichen Unterschied zum NO_x : bei östlicher Anströmung wurden deutlich höhere Werte beobachtet.

Ammonium: Das Verteilungsmuster von Ammonium entsprach dem von Nitrat. Nur im Grobstaub waren wie auch in den ultrafeinen Partikeln keine Unterschiede zwischen Sommer und Winter zu beobachten.

Vergleich Sommer – Winter

Auf Grund der sommerlichen Instabilität von Ammoniumnitrat waren die Winterwerte beider Ionen deutlich höher als die Sommerkonzentrationen, vor allem auf den Stufen 2 und 3 war dieser Effekt ausgeprägt, während bei den Nano-Partikeln der Stufe 1 nur ein sehr geringer Unterschied beobachtet wurde. In den Partikeln der Stufe 5 war der Nitratwert im Sommer sogar leicht höher als im Winter, was am Austausch von Chlorid durch gasförmige Salpetersäure in Seesalzpartikeln liegt.

Die in Tabelle 8 gezeigten Mediane der PM_{10} -Konzentrationen der Hauptionen bzw. in Abbildung 35 allen Größenklassen zeigt, dass der regionale Hintergrund (Ferntransporte) der entscheidende Faktor für die gemessene Konzentration war. Nimmt man die Stufen 2 und 3 zusammen, die das Ferntransportaerosol bilden, lieferten diese im Sommeraerosol in Melpitz 77 % und im Winter sogar 87 % der PM_{10} -Masse. Die beiden Verkehrsstationen Leipzig-Mitte und Leipzig-Eisenbahnstraße zeigen dabei jedoch deutlich, dass aus der Stadt selbst sowohl für die Gesamtmasse als auch für alle Ionen zusätzliche Beiträge zu den gemessenen Konzentrationen der Hintergrundstation Melpitz hinzukamen. In Leipzig-Mitte wurden im Sommer 59 % und im Winter 76 % der Gesamtmasse auf den Stufen 2 und 3 gemessen. Die saisonalen Konzentrationsunterschiede betrafen in erster Linie die Partikel in den Stufen 2 bis 4. Die Winterwerte überstiegen die sommerlichen Konzentrationen deutlich. Beim Sulfat war dies allerdings nicht für die Partikel der Stufe 2 zu beobachten, sondern nur in den Stufen 3 und 4. In den UFP der Stufe 1 waren für Nitrat und Ammonium die Winterwerte leicht erhöht, während bei Sulfat im Sommer höhere Werte gemessen wurden. In den groben Partikeln der Stufe 5 waren die Unterschiede nur in einer prozentualen Masseanteilsbetrachtung zu erkennen.

Die Verteilung der Ionen war saisonal betrachtet an allen Stationen gleich. Bei einer prozentualen Betrachtung ergeben sich zwischen Sommer- und Wintermessungen jedoch Verschiebungen. Sulfat wurde im Sommer in kleineren Partikeln zu deutlich erhöhten Anteilen gefunden, während es beim Nitrat zu eher erhöhten Winterwerten bei den kleinsten Partikeln kam. Die unter Winterbedingungen höhere Stabilität des Ammoniumnitrates ist hierfür die Ursache. Während an den Verkehrsstationen und in Melpitz die saisonalen Konzentrationsunterschiede aller Ionen deutlich waren, wurde im städtischen Hintergrund am TROPOS sowohl für Sulfat als auch für Ammonium nur ein geringer saisonaler Effekt beobachtet.

Betrachtet man die drei Hauptionen bezüglich ihres Anteils an der jeweiligen Stufenmasse, wird deutlich, dass die Ionen im Winter auf allen Stufen einen größeren Anteil als im Sommer beanspruchten. Hauptursache dafür waren neben den höheren Absolutmassen auch die deutlichen höheren Werte der von den Autoren nicht bestimmten Staubfraktion im Sommer, die durch Aufwirbelung von mehrheitlich trockenen Oberflächen im Sommer stattfindet.

3.3.4 Spurenionen

Die absoluten Konzentrationen dieser Ionen waren zumeist sehr gering, trotzdem gab es klare saisonale Unterschiede, wie in Abbildung 36 zu sehen ist.

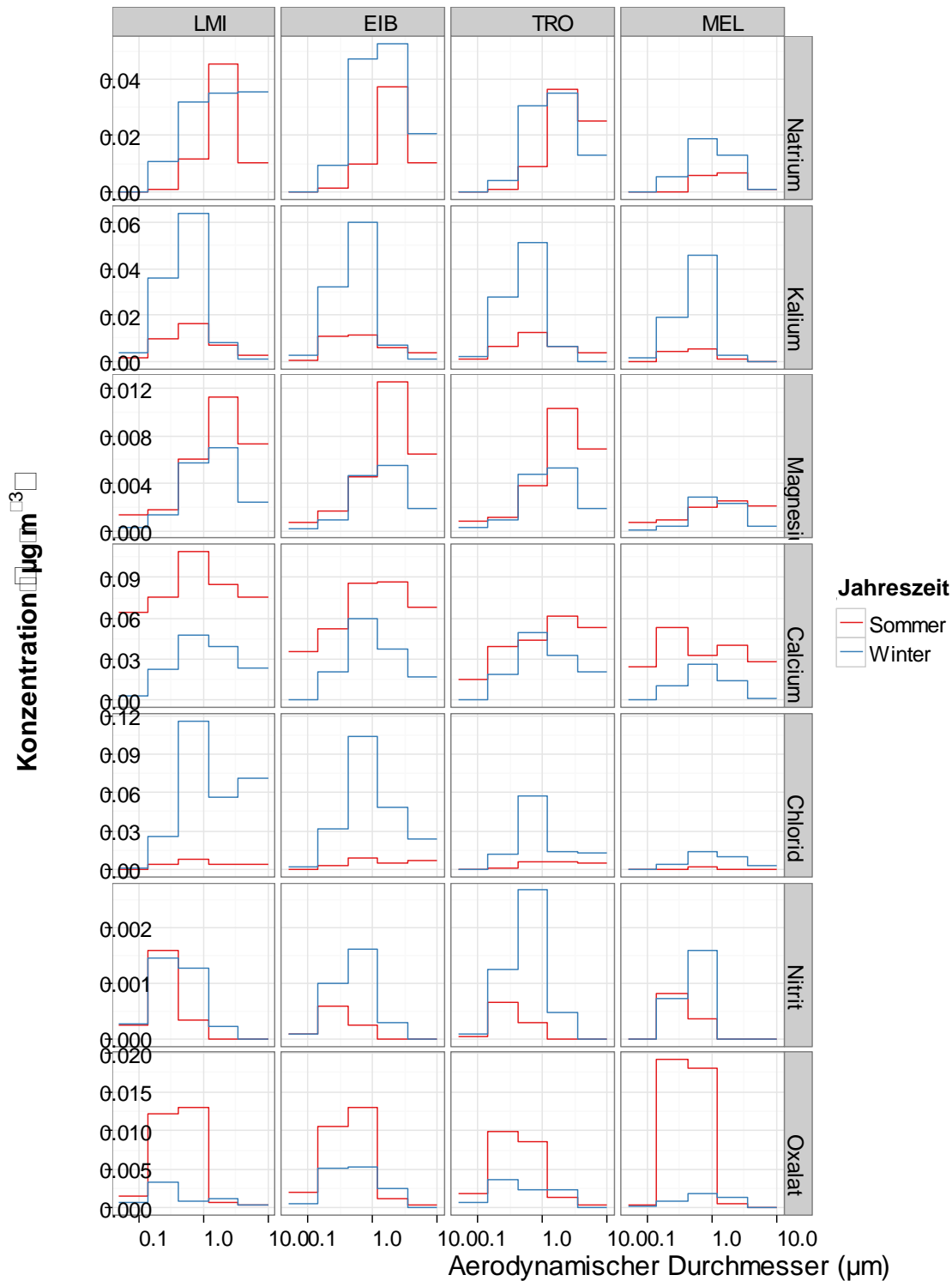


Abbildung 36: Mediane der Konzentration der Spurenionen in den Sommer- und Wintermessungen an allen vier Messstandorten

Während Kalium, Chlorid und Nitrit im Winter erhöht waren, waren es das Oxalat, Magnesium und Calcium im Sommer. Für Natrium war dieser Unterschied nicht so deutlich ausgeprägt, aber die Winterkonzentrationen überstiegen die des Sommers doch. Verbrennungsprozesse sind hier die Erklärung für erhöhte Kalium-, Natrium- und Chloridkonzentrationen. Die erhöhten Nitritkonzentrationen sind auf das im Winter weniger verfügbare Ozon und die deutlich erniedrigte photochemische Aktivität zurückzuführen. Während die sommerlich leicht

erhöhten Werte für Kalzium und Magnesium auf verstärkte Bodenerosion trockener Oberflächen zurückzuführen sind, wurde Oxalat im Sommer durch photochemische Sekundärbildung aus biogenen Vorläufersubstanzen in erhöhten Konzentrationen gefunden. Seesalz spielt in Leipzig und Melpitz keine wesentliche Rolle, jedoch war der Anteil in den winterlichen Grobstaubfraktionen erhöht. Als Quellen für Natriumchlorid gelten neben der Kohleverbrennung auch Seesalz und die winterliche Straßenabstumpfung (ROGULA-KOZLOWSKA et al. 2014). Kalium zeigte bei Ostanströmung erhöhte Werte, aber die Quellen dafür sind vor allem Biomasseverbrennung. Die beobachteten Effekte bei Kalium korrelieren sehr gut mit den gemessenen Levoglucosanwerten.

Bei den Spurenionen waren alle Effekte zwar auf einem sehr niedrigen Konzentrationsniveau zu beobachten, aber Vergleiche ließen hier ebenfalls Rückschlüsse auf die Quellen bzw. Verursacher zu. Natrium, Chlorid und Magnesium waren im Winter deutlich bzw. im Sommer minimal an den städtischen Stationen erhöht, was auf Seesalz bzw. Abstumpfungsmaßnahmen (letztere fanden an sechs Messtagen und dreimal am Vortag der Messungen in LMI und EIB statt) und Heizungsemissionen zurückgeführt werden kann. Die erhöhten Chloridkonzentrationen während winterlicher Ostanströmung auf der Impaktorstufe 3 sind vor allem auf Heizungsemissionen zurückzuführen.

Das Oxalat lieferte meist im Sommer höchste Konzentrationen bei der Ostanströmung, was einerseits der intensiveren Photochemie, andererseits dem Vorhandensein von Vorläuferquellen in östlichen Regionen geschuldet ist. Es gab nahezu keinen Effekt der Stadt oder des Verkehrs zu beobachten.

3.3.5 Kohlenstoff

Abbildung 37 gibt einen Überblick für die mittleren Partikelmassenkonzentrationen (Median) von OC, EC, TC und WSOC auf den einzelnen Stufen des BERNER-Impaktors an allen vier Probenahmestandorten im Vergleich zwischen Sommer und Winter.

Sowohl für OC und EC als auch der daraus resultierenden Summe EC nahmen die gemessenen mittleren Konzentrationen von MEL nach LMI und damit vom überregionalen/regionalen Hintergrund über den urbanen Hintergrund bis hin zur Verkehrsstation (lokaler Hotspot) auf Stufe 3 im Winter zu. Dies galt auch für WSOC.

Zwischen den beiden Stadtstationen war die Konzentrationszunahme klein. Im Sommer waren für die genannten Spezies die Konzentrationen geringer als im Winter und die Tendenz zur Zunahme in Richtung lokaler Hotspot war ebenfalls vorhanden, aber nicht so stark ausgeprägt. Manchmal waren die Konzentrationen auf Stufe 3 für die beiden Stadtstationen annähernd gleich und für WSOC gilt LMI < EIB. Im Winter lag das Maximum der Partikelmassenkonzentration aller fünf Stufen auf Stufe 3 und war grundsätzlich höher als im Sommer, dies ist ein Hinweis auf einen Einfluss von Ferntransport. Für OC nahm die Konzentration auf den Stufen 1 bis 2 im Sommer vom Hintergrund in Richtung zu den Verkehrsstationen moderat zu. Diese Zunahme war im Winter bei absolut höheren Konzentrationen stärker ausgeprägt. Dies ist ein Hinweis auf im Sommer gleichmäßiger über die Flächen verteilte Quellen (z. B. OC aus biogenen Quellen). Ein ähnliches Verhalten zeigte auch WSOC, das allerdings im Sommer eine etwas geringere Konzentration für LMI gegenüber EIB aufwies, was auf etwas hydrophobere Partikel am Verkehrshotspot hinweist und durch die dort vorhandenen höheren EC-Konzentrationen (Stufe 2) bestätigt wird.

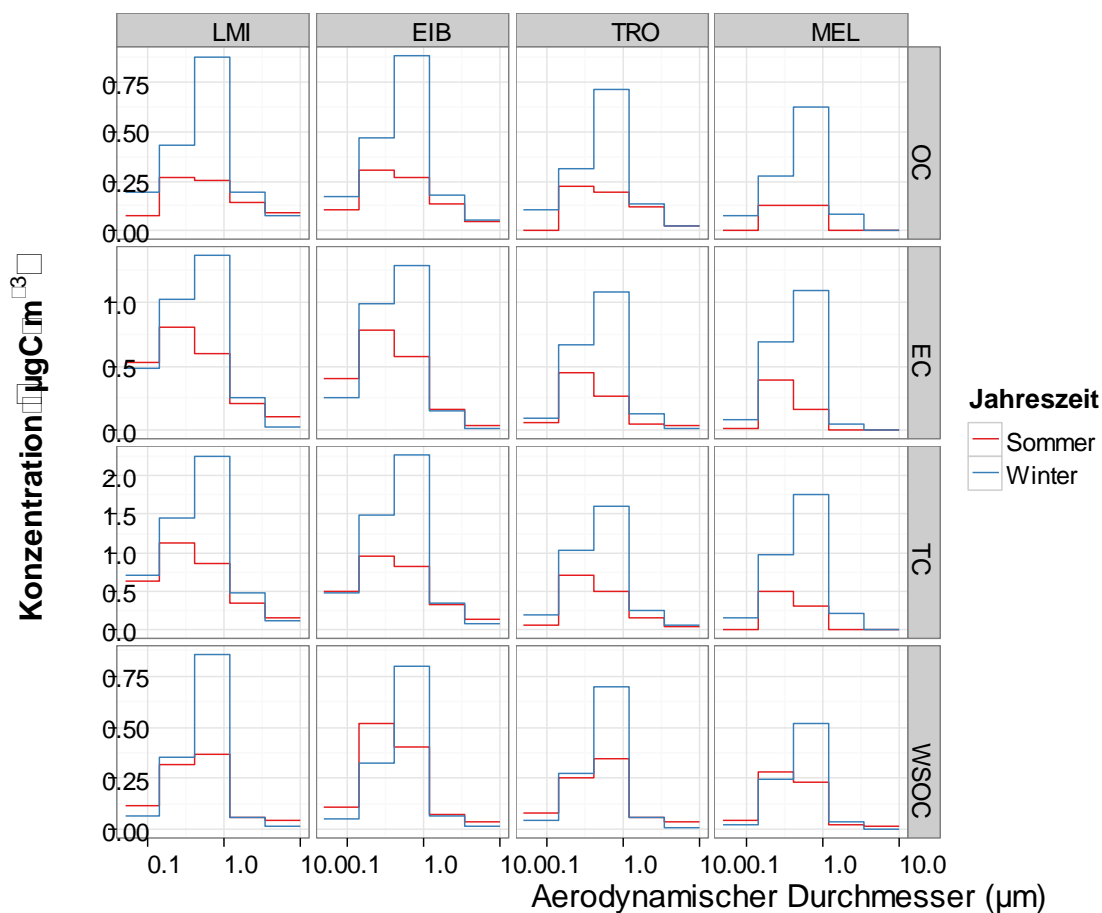


Abbildung 37: Mediane der OC-, EC-, TC- und WSOC-Konzentrationen auf den fünf Stufen des BER-NER-Impaktors für die Sommer- und Wintertage der aktuellen Kampagne an den vier Standorten

Im Vergleich zu OC stieg die Konzentration von EC in Richtung zu den verkehrsnahen Messstationen EIB und LMI im Sommer stärker an als die OC-Konzentration. Dies ist ein Hinweis auf Verkehrsemissionen, weil andere Verbrennungsprozesse im Sommer nur eine untergeordnete Rolle spielen.

Die Stufen 1 und 5 beinhalteten stark lokal geprägte Immissionen. Der Anteil von Kohlenstoff auf Stufe 5 war vernachlässigbar gering. Kleine Partikelmassenkonzentrationen wurden in der Stadt, besonders an den Verkehrsstationen gefunden. Hier ist Reifenabrieb für Kohlenstoff in Partikel auf Stufe 5 eine mögliche Quelle. Betrachtet man den Kohlenstoffgehalt der kleinsten Partikel auf Stufe 1, so nahm der für OC in Richtung zu den Verkehrsstationen zu. Der Gehalt an OC war dabei an allen Stationen im Winter höher als im Sommer, was auf zum Kfz-Verkehr zusätzlich auftretende Emissionen aus Verbrennungsprozessen zurückgeführt werden kann. Auch die TC- und die WSOC-Konzentrationen nahmen von Melpitz in Richtung Stadt hin zu den Verkehrsstationen zu. EC erreichte seine höchste Konzentration am Verkehrshotspot (LMI). Das ist ein Indiz für Emissionen hauptsächlich aus dem Kfz-Verkehr (Dieselruß). Diese Aussage wird auch dadurch unterstützt, dass auf Stufe 1 kaum ein Konzentrationsunterschied für EC zwischen Sommer und Winter bestand.

Tabelle 9 gibt einen zusammenfassenden Überblick für OC, EC, TC und WSOC in PM_{10} (hier als Summe der 5 Stufen des Impaktors) für alle vier Messstationen getrennt nach Sommer- und Winterhalbjahr.

Tabelle 9: Partikelmassenkonzentration für Kohlenstoff PM₁₀ (Summe der BERNER-Impaktorstufen) an den Messtationen, getrennt für Sommer- und Winterhalbjahr, angegeben als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in µg m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
OC	Sommer	0,85/0,91 (0,18-1,7)	0,98/0,92 (0,042-1,8)	0,61/0,61 (0,1-1,4)	0,29/0,48 (0,02-1,6)
	Winter	1,7/2 (0,68-3,9)	1,9/1,9 (0,67-3,8)	1,4/1,4 (0,36-3,3)	1,1/1,2 (0,3-3)
EC	Sommer	2,4/2,6 (0,71-5,1)	2,2/2,2 (0,5-4,8)	1/1,1 (0-2,5)	0,61/0,72 (0,012-1,9)
	Winter	3,2/4,5 (1,3-12)	3,1/3,9 (0,63-9,8)	2,4/2,9 (0,35-8,5)	1,8/2,8 (0,26-7,5)
TC	Sommer	3,2/3,5 (0,91-6,3)	3/3,1 (0,5-6,5)	1,6/1,7 (0,095-3,7)	0,94/1,2 (0,032-3,5)
	Winter	5,1/6,5 (2-16)	4,6/5,6 (1,3-13)	3,8/4,4 (0,85-12)	2,9/4 (0,57-10)
WSOC	Sommer	0,85/1 (0,22-2,1)	1,2/1,1 (0,29-2,5)	0,75/0,91 (0,22-2,2)	0,7/0,8 (0,16-2,2)
	Winter	1,2/1,8 (0,16-5,1)	1,3/1,7 (0,2-4,6)	1,1/1,5 (0,082-4)	0,71/1,3 (0,024-4,3)

Am PM₁₀ zeigten sich deutlich für OC und EC (TC) die in Richtung hin zu den Verkehrsstationen zunehmenden Konzentrationen. Insbesondere EC zeigte dort höhere Konzentrationen. Im regionalen Hintergrund war sowohl die OC- als auch die EC-Konzentration im Winter deutlich größer (MEL). Die Zuwächse der WSOC-Konzentration in Richtung vom regionalen Hintergrund zu den Verkehrsstationen und auch der Konzentrationsunterschiede zwischen Sommer- und Winterhalbjahr waren kleiner als bei OC und EC (TC). Dies ist typisch für eine Komponente in den Partikeln, die hauptsächlich durch Prozessierung in der Atmosphäre entsteht und im Wesentlichen durch Ferntransport großflächig verteilt ist.

3.3.6 Monosaccharide

Im Winter ergaben sich an allen Probenahmestellen erhöhte Konzentrationen der Anhydrozucker Levoglucosan, Mannosan, und Galactosan, die ihren Ursprung in der Biomasseverbrennung haben (Tabelle 10 und Abbildung 38). Die mittleren Konzentrationen (Mediane) in den Wintermessungen waren am höchsten an den Standorten LMI und EIB (209 ng m⁻³, Verkehrsstation), gefolgt von TRO und MEL. Die höchste PM₁₀-Konzentration des Biomasseverbrennungstracers Levoglucosan wurde mit 758 ng m⁻³ am Standort EIB ermittelt. Anhydrozucker befanden sich überwiegend in der submikronen Fraktion, mit dem höchsten Anteil auf Stufe 3 (0,42-1,2 µm), gefolgt von Stufe 2 (0,14-0,42 µm), und Stufe 1 (0,05-0,14 µm). Die Konzentrationen der Anhydrozucker im Raum Leipzig lagen niedriger als Konzentrationswerte, die im Jahr 2008 in einem stark durch Biomasseverbrennung beeinflussten Ort im Erzgebirge (Seiffen) ermittelt wurden (PM₁₀ Median: 300 ng m⁻³, min-max: 66-1400 ng m⁻³; BIRMILI et al. 2008).

Obwohl die Konzentrationen der Anhydrozucker in Leipzig geringer waren als die in der sächsischen Region, sind diese Konzentrationen dennoch ein Indiz für einen signifikanten Einfluss von Biomasseverbrennung. Levoglucosan machte über 80 % der Anhydrozucker aus. Das Verhältnis von Levoglucosan zu Mannosan war an allen Standorten etwa 6, was darauf hinweist, dass sie größtenteils aus der Verbrennung von Nadelholz und kaum aus der Verbrennung von Laubholz stammen, weil letzteres typischerweise ein Levoglucosan/Mannosan-Verhältnis von mehr als 10 ergibt (SCHMIDL et al. 2008). Diese Annahme über den Einfluss von Nadelholzverbrennung an allen vier Standorten wird weiterhin durch die Anwesenheit von Reten unterstützt: Reten ist ein PAK, das bei der thermischen Zersetzung von Harz in Weichholz entsteht (RAMDAHL 1983) und wird üblicherweise genutzt, um zwischen durch Laub- oder Nadelholz beeinflusstem Biomasseverbrennungsaerosol in der Umgebungsluft zu unterscheiden (SIMONEIT 2002a). Im Winter betrug die mittlere PM₁₀-Konzentration (Median) von Reten an allen Probeentnahmestellen etwa 0,7 ng m⁻³, wobei ähnliche Größenverteilungen wie bei den Anhydrozuckern vorlagen. Sowohl die Anhydrozucker- als auch die Retenkonzentrationen waren im Sommer signifikant niedriger als im Winter, was zeigt, dass Biomasseverbrennung an allen

Messstandorten in der Sommerzeit keine wesentliche Quelle von PM darstellte ($< 34 \text{ ng m}^{-3}$ mittlere Zuckers- anhydridkonzentration und $< 0,1 \text{ ng m}^{-3}$ mittlere Retenkonzentration). Allerdings waren an einem Messtag der Sommerkampagne erhöhte Konzentrationen von Levoglucosan zu beobachten ($>100 \text{ ng m}^{-3}$ am 29.08.2013), insbesondere am Standort EIB. Dies ist ein Indiz dafür, dass es lokale Quellen von Levoglucosan gibt, die nicht mit Holzheizungen in Haushalten in Verbindung stehen (z. B. Feuer in privaten Gärten oder Grillaktivitäten).

Im Sommer wurden erhöhte Konzentrationen von Arabitol beobachtet, das nachweislich aus Pilzsporen stammt (BAUER et al. 2008a). Im Winter hingegen zeigten die Messungen an allen vier Standorten nahezu kein Arabitol. Die mittleren Arabitolkonzentrationen (Median) im Sommer waren am höchsten am Standort TRO ($5,5 \text{ ng m}^{-3}$), gefolgt von EIB ($3,9 \text{ ng m}^{-3}$), LMI ($3,1 \text{ ng m}^{-3}$) und MEL ($0,53 \text{ ng m}^{-3}$). Pilzsporen wird ein gewisser Einfluss auf PM im städtischen Raum zugeschrieben (BAUER et al. 2008b). Dies spiegelt sich in den Konzentrationen von Arabitol an den vier Messstandorten wider, die an allen städtischen Stationen höher lagen als im regionalen Hintergrund.

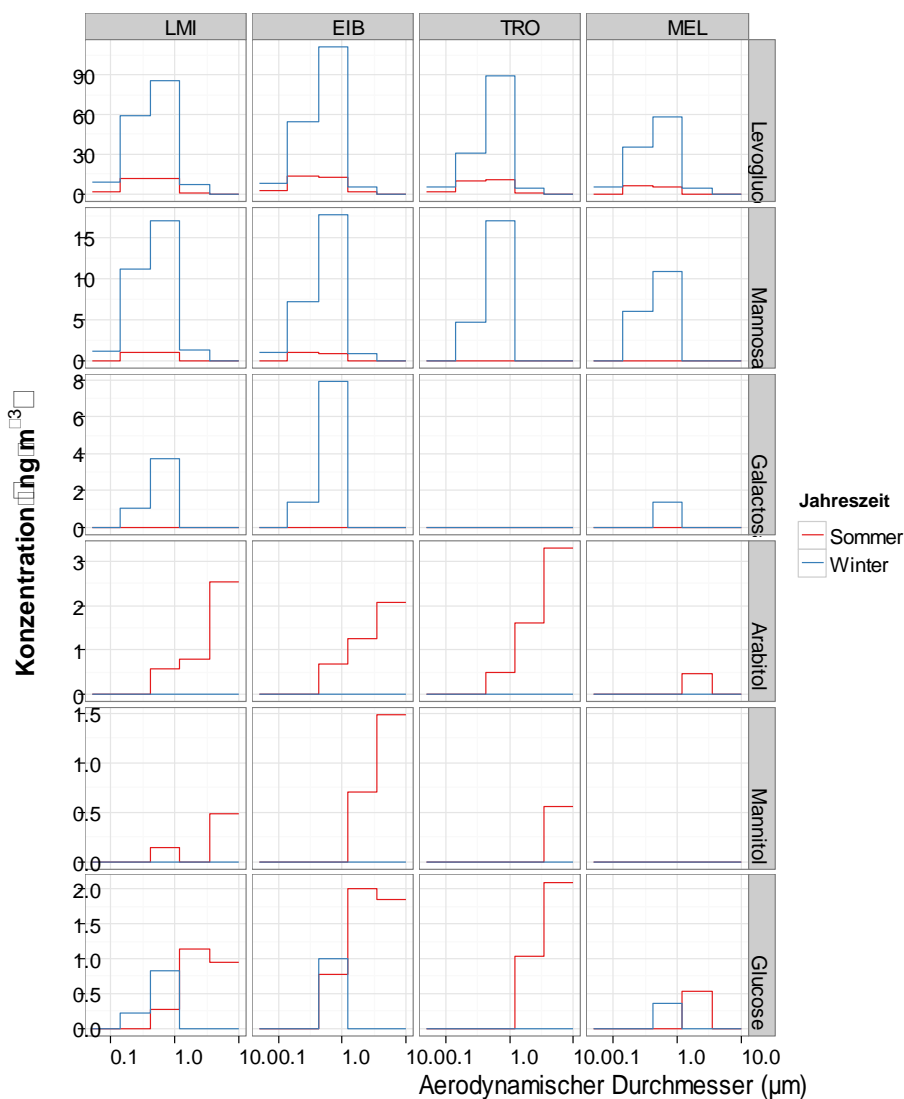


Abbildung 38: Mediane der Konzentration der Zucker und Anhydrosucker an allen Stationen in allen Größenklassen für die Sommer- bzw. Wintermessperioden

Tabelle 10: PM₁₀-Konzentrationen der Monosaccharide angegeben als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in ng m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
Levoglucosan	Sommer	27/37 (3,1-175)	31/50 (6-257)	22/35 (2,1-168)	11/14 (1,5-67)
	Winter	187/205 (17-503)	183/233 (32-758)	140/183 (20-483)	112/151 (6,3-610)
Mannosan	Sommer	2,1/4,4 (0-25)	1,7/6,8 (0-47)	0,84/4,1 (0-33)	0/0,99 (0-7,5)
	Winter	34/40 (2,2-125)	27/35 (1,5-107)	25/31 (2,8-70)	18/24 (0,55-86)
Galactosan	Sommer	0/0,23 (0-2)	0/0,67 (0-11)	0/0,49 (0-6,9)	0/0,00025 (0-0,0053)
	Winter	6,1/13 (0-58)	11/12 (0-32)	0/5,7 (0-35)	4,5/5,1 (0-18)
Arabitol	Sommer	3,1/5,4 (0,33-25)	3,9/6,5 (0-24)	5,5/7,9 (0,87-32)	0,53/4 (0-39)
	Winter	0/0,53 (0-3,6)	0/0,43 (0-2,9)	0,15/0,64 (0-3,7)	0,0017/0,38 (0-2,9)
Mannitol	Sommer	2,7/5,9 (0-36)	3,4/7,5 (0-35)	2,8/4,9 (0-30)	0,44/4,1 (0-53)
	Winter	0/0,026 (0-0,26)	0/0 (0-0)	0/0,04 (0-0,4)	0/0,038 (0-0,38)
Mannose	Sommer	0/0 (0-0)	0/0,29 (0-4,3)	0/0,023 (0-0,49)	0/0,073 (0-1,5)
	Winter	0/0 (0-0)	0/0,36 (0-7,7)	0/0,71 (0-7)	0/0,43 (0-6,7)
Glucose	Sommer	4,5/7,4 (0-46)	4/9 (0-53)	3,6/6,6 (0-45)	1,1/3,4 (0-44)
	Winter	1,3/3,9 (0-29)	1,4/2,9 (0-13)	0/2,8 (0-17)	0,73/2,4 (0-13)
Galactose	Sommer	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0,00021 (0-0,0044)
	Winter	0/0 (0-0)	0/0,26 (0-2,2)	0/0 (0-0)	0/0,091 (0-0,96)
Fructose	Sommer	0/0,41 (0-2,6)	0/0,4 (0-3,7)	0/0,099 (0-1,5)	0/0,063 (0-1,3)
	Winter	0/0,073 (0-0,79)	0/0,25 (0-2)	0/0,17 (0-1,8)	0/0,24 (0-2,6)

3.3.7 Alkane

n-Alkane können verschiedenen Quellen entstammen. n-Alkane bis C₂₅ stammen hauptsächlich aus anthropogenen Quellen, während n-Alkane ab C₂₅ überwiegend aus biologischen Quellen wie z. B. Pflanzenwachsen stammen. Längere n-Alkane können auch durch Biomasseverbrennung entstehen, besonders wenn sie sich in der submikronen Partikelfraktion befinden (Linuma et al. 2007). Die Quellen von n-Alkanen können durch den CPI (Carbon Preference Index) bestimmt werden, wobei ein CPI-Wert von nahe 1 allgemein auf eine anthropogene Quelle hinweist und ein CPI-Wert von über 1 auf eine biologische Quelle oder auf eine Quelle, die in der Biomasseverbrennung liegt. Die in dieser Studie aufgeführten CPI-Werte wurden wie folgt ermittelt:

$$\text{CPI} = 0.5 \times (\sum \text{C}_{21}\text{-C}_{33} / \sum \text{C}_{20}\text{-C}_{32} + \sum \text{C}_{21}\text{-C}_{33} / \sum \text{C}_{22}\text{-C}_{34}) \quad (\text{MARZI et al. 1993})$$

Im Gegensatz zu PAK und Hopanen bestanden bei den mittleren Konzentrationen (Median) der n-Alkane keine nennenswerten saisonalen Unterschiede (Tabelle 11 und Abbildung 39).

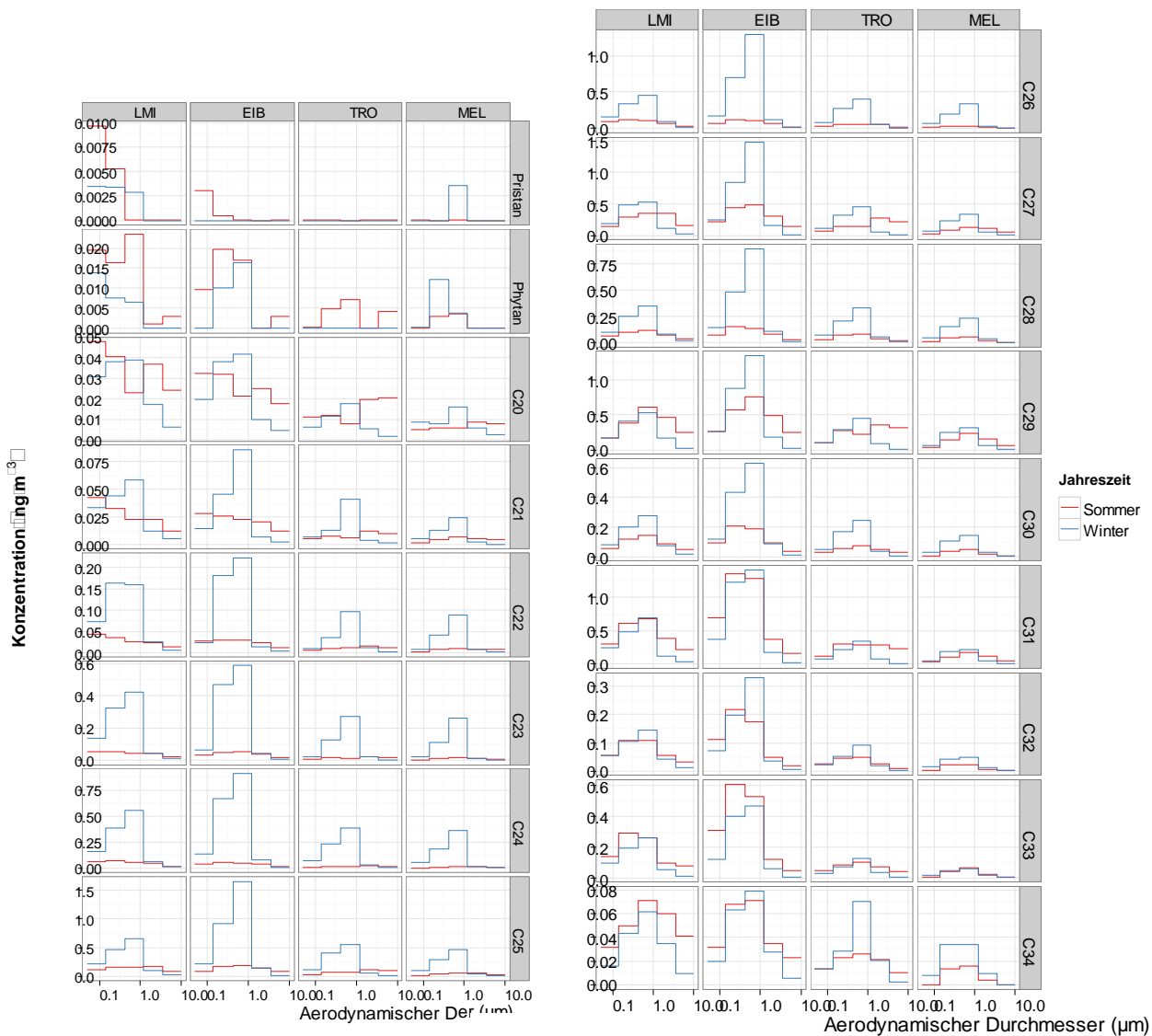


Abbildung 39: Mediane der Konzentration der Alkane an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden

Die Konzentrationswerte erstreckten sich im Sommer von 2,8 ng m⁻³ (MEL) bis zu 17 ng m⁻³ (EIB) und im Winter von 6,4 ng m⁻³ (MEL) bis zu 18 ng m⁻³ (EIB). Ähnlich den für PAK und Hopanen vorliegenden Werten ergaben sich die erhöhten Konzentrationen an den Standorten EIB und LMI. Während bei den n-Alkan-Konzentrationen keine nennenswerten saisonalen Unterschiede zu verzeichnen waren, so veränderten sich die CPI-Werte jedoch stark abhängig von der Jahreszeit. Im Sommer lag bei den CPI-Werten eine ausgeprägte Größenabhängigkeit vor, wobei kleinere Partikel ($D < 0,5 \mu\text{m}$) einen Wert von gegen 1 und größere Partikel ($D > 0,5 \mu\text{m}$) einen Wert von über 2 aufwiesen. Dies ist ein Indiz dafür, dass kleinere Partikel sich aus anthropogenen Quellen, sehr wahrscheinlich Verkehrsemissionen, und größere Partikel sich aus biologischen Quellen ergaben. Im Winter betrug CPI-Werte für alle Partikel nahezu 1, was darauf hinweist, dass n-Alkan-Konzentrationen im Winter nicht von biologischen Quellen beeinflusst waren.

Tabelle 11: PM₁₀-Konzentrationen (Median/Mittelwert [Min-Max]) der Alkane und aliphatischen Ketone in ng m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
Pristan	Sommer	0,027/0,04 (0-0,22)	0,011/0,017 (0-0,072)	0,0019/0,0084 (0-0,056)	0,003/0,0077 (0-0,045)
	Winter	0,016/0,033 (0-0,13)	0,0053/0,018 (0-0,15)	0,0021/0,011 (0-0,067)	0,014/0,017 (0-0,11)
Phytan	Sommer	0,076/0,12 (0,01-0,96)	0,053/0,066 (0,0037-0,16)	0,024/0,03 (0-0,085)	0,014/0,024 (0-0,16)
	Winter	0,033/0,065 (0-0,21)	0,028/0,059 (0-0,27)	0,0054/0,024 (0-0,089)	0,02/0,044 (0-0,2)
n-Eicosan C ₂₀	Sommer	0,19/0,21 (0,092-0,69)	0,15/0,15 (0,035-0,28)	0,08/0,089 (0,039-0,18)	0,04/0,042 (0,0055-0,1)
	Winter	0,15/0,28 (0,046-1,1)	0,095/0,23 (0,011-0,69)	0,049/0,099 (0,00038-0,34)	0,042/0,1 (0,00052-0,52)
n-Heneicosan C ₂₁	Sommer	0,13/0,16 (0,053-0,41)	0,11/0,13 (0,019-0,26)	0,057/0,064 (0,0073-0,16)	0,034/0,032 (0,0045-0,079)
	Winter	0,14/0,54 (0,076-3)	0,13/0,51 (0,027-2,1)	0,061/0,21 (0,0026-0,95)	0,043/0,2 (0,00035-1)
n-Docosan C ₂₂	Sommer	0,17/0,19 (0,076-0,52)	0,14/0,16 (0,024-0,44)	0,065/0,08 (0,014-0,2)	0,038/0,04 (0,0019-0,11)
	Winter	0,43/1,1 (0,14-5)	0,36/1,2 (0,047-4,6)	0,14/0,53 (0,0097-2,2)	0,15/0,5 (0,0057-2,8)
n-Tricosan C ₂₃	Sommer	0,23/0,3 (0,12-0,86)	0,22/0,26 (0,023-0,95)	0,097/0,12 (0,012-0,48)	0,058/0,058 (0,0025-0,19)
	Winter	0,93/1,8 (0,35-6,3)	1/2,2 (0,16-7,9)	0,38/0,99 (0,027-3,2)	0,39/0,93 (0,0097-5)
n-Tetracosan C ₂₄	Sommer	0,26/0,36 (0,11-1,1)	0,2/0,32 (0,03-1,4)	0,085/0,14 (0,014-0,73)	0,051/0,062 (0,0032-0,3)
	Winter	1,2/1,8 (0,42-5,7)	1,5/2,5 (0,37-7,9)	0,61/1,1 (0,083-3)	0,63/1 (0,035-4,7)
n-Pentacosan C ₂₅	Sommer	0,69/0,79 (0,41-1,5)	0,74/0,87 (0,22-2,2)	0,39/0,49 (0,18-1,2)	0,21/0,24 (0,065-0,62)
	Winter	1,4/2,2 (0,52-6,3)	2,4/3,3 (0,65-9,8)	1/1,5 (0,19-3,6)	0,92/1,3 (0,073-5,2)
n-Hexacosan C ₂₆	Sommer	0,41/0,5 (0,2-1,1)	0,4/0,56 (0,13-1,8)	0,22/0,28 (0,063-0,92)	0,11/0,13 (0,029-0,46)
	Winter	0,95/1,5 (0,37-4,3)	1,9/2,4 (0,53-6,8)	0,81/1,1 (0,19-2,8)	0,73/0,89 (0,076-3,3)
n-Heptacosan C ₂₇	Sommer	1,4/1,4 (0,72-2,3)	1,8/1,9 (0,52-3,6)	1,1/1,1 (0,39-2,4)	0,42/0,5 (0,12-1,1)
	Winter	1,4/1,9 (0,5-4,8)	2,7/3,3 (0,73-8,5)	1,1/1,3 (0,27-3,5)	0,89/1 (0,087-3,8)
n-Octacosan C ₂₈	Sommer	0,4/0,55 (0,15-2,1)	0,51/0,64 (0,13-1,9)	0,3/0,35 (0,068-0,83)	0,14/0,16 (0,048-0,33)
	Winter	0,84/1,1 (0,29-2,8)	1,7/2 (0,44-5,1)	0,7/0,88 (0,19-2,8)	0,58/0,66 (0,076-2,4)
n-Nonacosan C	Sommer	1,7/2,7 (0,98-9)	2,6/3,3 (0,62-11)	1,4/2,3 (0,49-9,2)	0,71/1,2 (0,23-7)
	Winter	1,6/1,8 (0,55-4,9)	2,8/3,4 (0,73-8,6)	1,2/1,2 (0,26-3,7)	0,9/0,97 (0,086-4)
n-Triacontan C	Sommer	0,55/0,58 (0,2-1,1)	0,7/0,8 (0,17-1,8)	0,3/0,34 (0,092-0,7)	0,12/0,14 (0,027-0,3)
	Winter	0,63/0,88 (0,26-2,6)	1,4/1,6 (0,38-4)	0,5/0,58 (0,14-2)	0,37/0,42 (0,051-1,5)
n-Hentriacontan C	Sommer	2,5/3,1 (0,9-8,5)	4,9/5,4 (0,82-14)	1,4/2,2 (0,38-8)	0,49/1 (0,15-6,8)
	Winter	1,6/1,9 (0,65-8)	2,9/3,9 (0,95-11)	0,91/1 (0,33-4,4)	0,6/0,66 (0,062-2,6)
n-Dotriacontan C	Sommer	0,39/0,44 (0,15-0,98)	0,63/0,74 (0,12-1,8)	0,19/0,2 (0,036-0,54)	0,066/0,074 (0,024-0,17)
	Winter	0,4/0,46 (0,16-1,4)	0,63/0,76 (0,22-2)	0,2/0,25 (0,085-0,72)	0,14/0,19 (0,031-0,71)
n-Triatriacontan C	Sommer	0,9/1,1 (0,33-2,1)	1,7/2,1 (0,3-4,9)	0,37/0,57 (0,087-1,8)	0,14/0,2 (0,043-0,8)
	Winter	0,64/0,75 (0,28-2,7)	0,96/1,3 (0,33-3,5)	0,3/0,35 (0,12-1,1)	0,18/0,24 (0,033-0,92)
n-Tetraatriacontan C	Sommer	0,27/0,29 (0,045-0,77)	0,26/0,27 (0,029-0,65)	0,12/0,14 (0,009-0,44)	0,032/0,044 (0,0046-0,16)
	Winter	0,18/0,22 (0,054-0,67)	0,19/0,34 (0,071-1,2)	0,12/0,15 (0,02-0,45)	0,088/0,12 (0-0,5)
2-Pentadecanon	Sommer	0,17/0,74 (0,031-3,9)	0,16/0,91 (0,0066-5,8)	0,095/0,83 (0,021-6,1)	0,06/0,39 (0,0083-3,6)
	Winter	0,095/0,14 (0-0,73)	0,13/0,16 (0-0,49)	0,032/0,074 (0-0,26)	0,047/0,091 (0-0,45)
2-Hexadecanon	Sommer	0,044/0,063 (0,0043-0,18)	0,043/0,063 (0,0029-0,21)	0,04/0,047 (0,0084-0,11)	0,02/0,029 (0-0,12)
	Winter	0,037/0,065 (0-0,36)	0,039/0,068 (0-0,22)	0,013/0,023 (0-0,13)	0,018/0,029 (0-0,14)
2-Heptadecanon	Sommer	0,41/1,3 (0,046-6,9)	0,39/1,6 (0,013-9,7)	0,24/1,5 (0,022-9,3)	0,08/0,63 (0,005-6,2)
	Winter	0,087/0,17 (0-1,2)	0,092/0,19 (0-0,75)	0,028/0,072 (0-0,31)	0,034/0,089 (0-0,54)
2-Octadecanon	Sommer	0,025/0,034 (0,0048-0,083)	0,024/0,038 (0,000095-0,15)	0,019/0,028 (0,003-0,073)	0,013/0,014 (0-0,047)
	Winter	0,016/0,035 (0-0,31)	0,025/0,042 (0-0,29)	0,0069/0,014 (0-0,099)	0,0023/0,0084 (0-0,037)
2-Nonadecanon	Sommer	0,11/0,16 (0,0098-0,53)	0,11/0,17 (0,0032-0,64)	0,086/0,12 (0,00023-0,41)	0,025/0,051 (0-0,3)
	Winter	0,041/0,084 (0-0,83)	0,066/0,12 (0-0,52)	0,0082/0,026 (0-0,15)	0,0041/0,031 (0-0,29)

3.3.8 PAK

PAK entstehen in erster Linie aus Verbrennungsprozessen. Die mittleren Konzentrationen (Median) der PAK lagen im Winter an allen Probenahmestellen um den Faktor 10 höher als im Sommer (Abbildung 40 und Tabelle 12).

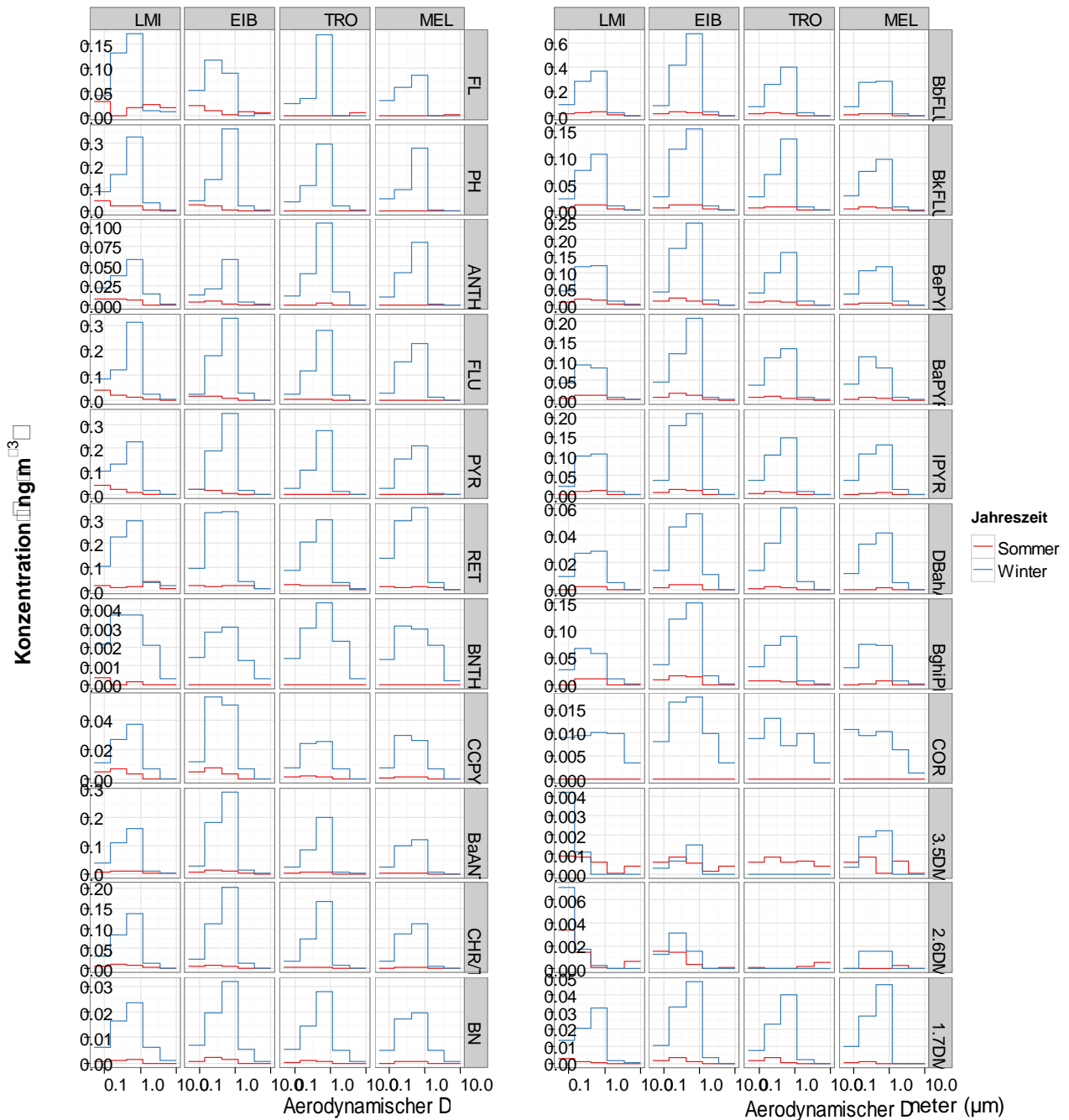


Abbildung 40: Mediane der Konzentration der PAK an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden

Tabelle 12: PM₁₀-Konzentrationen der PAK und oxy-PAK als Median/Mittelwert (Min – Max) in ng m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
Fluoren	Sommer	0,12/0,17 (0,0044-0,49)	0,1/0,13 (0-0,39)	0,024/0,06 (0-0,31)	0,017/0,023 (0-0,12)
	Winter	0,33/0,93 (0-3,3)	0,36/0,85 (0-3,6)	0,46/0,7 (0-2,5)	0,18/0,76 (0-5,5)
Phenanthren	Sommer	0,13/0,16 (0,0094-0,45)	0,075/0,099 (0,00052-0,35)	0,0055/0,04 (0-0,42)	0,00028/0,016 (0-0,2)
	Winter	0,78/2 (0,096-8,6)	0,53/1,5 (0-6,9)	0,74/1,5 (0-5,3)	0,36/1,6 (0-7)
Anthracen	Sommer	0,024/0,043 (0,0028-0,13)	0,02/0,034 (0,00018-0,11)	0,01/0,019 (0-0,11)	0,0033/0,0086 (0-0,057)
	Winter	0,21/0,41 (0,0054-1,5)	0,12/0,3 (0-0,93)	0,27/0,38 (0-1)	0,13/0,39 (0-1,8)
Fluoranthren	Sommer	0,088/0,11 (0,015-0,39)	0,047/0,068 (0,0066-0,36)	0,011/0,034 (0,00039-0,38)	0,0031/0,023 (0-0,3)
	Winter	0,5/2,3 (0,18-11)	0,52/2 (0,042-8,8)	0,56/1,6 (0,015-8,1)	0,4/1,5 (0,0035-6,7)
Pyren	Sommer	0,086/0,12 (0,017-0,36)	0,046/0,07 (0,0076-0,34)	0,0051/0,029 (0-0,34)	0,0017/0,02 (0-0,28)
	Winter	0,4/1,8 (0,19-8,2)	0,51/1,7 (0,043-7,3)	0,49/1,3 (0,015-6,8)	0,42/1,3 (0,0051-5,8)
Reten	Sommer	0,11/0,22 (0,012-0,95)	0,091/0,19 (0,016-1)	0,11/0,17 (0,016-1)	0,066/0,12 (0-0,71)
	Winter	0,67/1,7 (0,15-9)	0,73/1,8 (0,2-8,6)	0,68/1,2 (0,096-3,8)	0,77/1,5 (0,07-7,1)
Benzo(b)naphtha(1,2-d)thiophen	Sommer	0,00089/0,004 (0-0,018)	0,0012/0,0037 (0-0,016)	0,00033/0,0037 (0-0,019)	0,00056/0,0037 (0-0,034)
	Winter	0,014/0,057 (0,0011-0,41)	0,011/0,054 (0,0013-0,26)	0,012/0,044 (0,00045-0,2)	0,0098/0,047 (0,001-0,24)
Cyclopenta(cd)pyren	Sommer	0,014/0,024 (0,0013-0,11)	0,015/0,029 (0,0047-0,19)	0,0065/0,017 (0-0,19)	0,0041/0,0074 (0-0,074)
	Winter	0,071/0,21 (0,012-1)	0,12/0,28 (0,0094-0,98)	0,064/0,16 (0,008-0,69)	0,077/0,16 (0,0067-0,68)
Benz(a)anthracen	Sommer	0,027/0,055 (0,011-0,28)	0,03/0,064 (0,0071-0,47)	0,013/0,039 (0,0022-0,34)	0,0085/0,02 (0-0,23)
	Winter	0,3/0,99 (0,077-5,9)	0,49/1,1 (0,081-4,7)	0,31/0,79 (0,041-3,3)	0,27/0,8 (0,027-3,8)
Chrysene/Triphenylen	Sommer	0,026/0,043 (0,0083-0,19)	0,025/0,049 (0,0059-0,31)	0,011/0,027 (0-0,21)	0,0072/0,015 (0-0,15)
	Winter	0,27/0,76 (0,073-3,9)	0,35/0,81 (0,068-3,1)	0,27/0,58 (0,038-2,3)	0,23/0,57 (0,021-2,6)
2,2'-Binaphthyl	Sommer	0,0032/0,0063 (0-0,03)	0,006/0,0095 (0,00065-0,059)	0,0028/0,0062 (0-0,043)	0,0015/0,0029 (0-0,022)
	Winter	0,056/0,11 (0,019-0,56)	0,07/0,12 (0,019-0,46)	0,06/0,088 (0,016-0,27)	0,043/0,093 (0,01-0,37)
Benzo(b)fluoranthren	Sommer	0,088/0,13 (0,023-0,69)	0,089/0,18 (0,014-1,2)	0,069/0,13 (0,0099-0,9)	0,035/0,073 (0,006-0,62)
	Winter	0,82/1,8 (0,13-10)	1,2/2,1 (0,23-8,2)	0,78/1,5 (0,16-4,7)	0,7/1,5 (0,085-6,3)
Benzo(k)fluoranthren	Sommer	0,031/0,045 (0,009-0,21)	0,032/0,058 (0,009-0,37)	0,023/0,042 (0,0043-0,28)	0,016/0,026 (0,0024-0,19)
	Winter	0,21/0,55 (0,033-2,9)	0,34/0,62 (0,065-2,5)	0,24/0,45 (0,043-1,4)	0,19/0,43 (0,027-1,9)
Benz(e)pyren	Sommer	0,056/0,077 (0,017-0,3)	0,051/0,095 (0,010-0,57)	0,034/0,063 (0,0071-0,41)	0,021/0,036 (0,0046-0,26)
	Winter	0,3/0,66 (0,068-4,1)	0,51/0,81 (0,1-3,3)	0,37/0,55 (0,07-1,7)	0,28/0,56 (0,037-2,5)
Benz(a)pyren	Sommer	0,037/0,063 (0,011-0,33)	0,034/0,092 (0,014-0,65)	0,023/0,065 (0,0046-0,58)	0,013/0,033 (0,0029-0,33)
	Winter	0,22/0,67 (0,031-4,9)	0,54/0,85 (0,083-3,7)	0,32/0,58 (0,05-1,9)	0,23/0,59 (0,028-2,6)
Indeno(1,2,3-cd)pyren	Sommer	0,023/0,049 (0-0,36)	0,037/0,086 (0,004-0,63)	0,019/0,064 (0-0,52)	0,0088/0,034 (0-0,34)
	Winter	0,24/0,58 (0,029-4,2)	0,5/0,74 (0,11-3,2)	0,31/0,52 (0,064-1,4)	0,26/0,54 (0,046-2,2)
Dibenzo(ah)anthracen	Sommer	0,0066/0,01 (0-0,067)	0,0083/0,017 (0-0,1)	0,0041/0,012 (0-0,089)	0,0023/0,007 (0-0,067)
	Winter	0,07/0,16 (0,014-1,1)	0,15/0,22 (0,02-0,87)	0,12/0,15 (0,025-0,38)	0,08/0,16 (0,012-0,62)
Benzo(ghi)perylen	Sommer	0,027/0,048 (0-0,28)	0,034/0,075 (0,0051-0,5)	0,017/0,051 (0-0,41)	0,0083/0,026 (0-0,26)
	Winter	0,16/0,41 (0,036-3,1)	0,37/0,55 (0,069-2,4)	0,22/0,35 (0,051-0,95)	0,17/0,37 (0,039-1,6)
Coronen	Sommer	0/0,00024 (0-0,00051)	0/0,0015 (0-0,029)	0/0,00084 (0-0,014)	0/0,00018 (0-0,0039)
	Winter	0,04/0,089 (0,0099-0,34)	0,062/0,09 (0,0099-0,26)	0,04/0,062 (0,0098-0,25)	0,062/0,071 (0,0093-0,25)
3,5-Dimethylphenanthren	Sommer	0,0032/0,004 (0,0002-0,013)	0,0029/0,0033 (0-0,01)	0,0031/0,0022 (0-0,0056)	0,0026/0,002 (0-0,0078)
	Winter	0,0087/0,081 (0-0,5)	0,0048/0,068 (0-0,41)	0,012/0,058 (0-0,38)	0,0046/0,058 (0-0,28)
2,6-Dimethylphenanthren	Sommer	0,0066/0,0088 (0-0,029)	0,0052/0,0064 (0-0,022)	0,00061/0,0035 (0-0,014)	0,00029/0,0031 (0-0,013)
	Winter	0,014/0,098 (0-0,5)	0,0074/0,08 (0-0,47)	0,012/0,071 (0-0,54)	0,0028/0,068 (0-0,33)
1,7-Dimethylphenanthren	Sommer	0,0073/0,014 (0,00063-0,11)	0,0062/0,017 (0-0,11)	0,007/0,016 (0-0,11)	0,0029/0,008 (0-0,072)
	Winter	0,073/0,19 (0,018-1,2)	0,075/0,18 (0,013-0,8)	0,074/0,14 (0,0038-0,51)	0,082/0,17 (0,0017-1)
Total PAK	Sommer	0,95/1,4 (0,39-5,5)	0,7/1,4 (0,23-7,5)	0,45/0,89 (0,14-5,8)	0,27/0,5 (0,11-4,3)
	Winter	5,8/16 (1,8-80)	5,9/16 (0-61)	4,7/12 (0-47)	5/13 (0,56-56)
9H-Fluorenon	Sommer	0,091/0,1 (0,016-0,27)	0,052/0,2 (0,0055-2,8)	0,025/0,039 (0-0,21)	0,011/0,017 (0-0,094)
	Winter	0,48/0,85 (0,11-3,3)	0,46/0,77 (0,04-2,9)	0,5/0,7 (0,046-2,1)	0,31/0,7 (0,05-3,2)
9,10-Anthracendion	Sommer	0,058/0,073 (0-0,28)	0,044/0,065 (0-0,26)	0,021/0,036 (0-0,22)	0,0038/0,016 (0-0,16)
	Winter	0,49/1,6 (0,11-8,7)	0,5/1,5 (0,069-6,1)	0,48/1,2 (0,043-6,5)	0,31/1,1 (0,016-5,2)
1,2-Benzanthraquinon	Sommer	0/0,02 (0-0,19)	0,0027/0,029 (0-0,25)	0/0,02 (0-0,18)	0/0,0078 (0-0,13)
	Winter	0,27/0,44 (0,04-2)	0,31/0,49 (0,066-1,9)	0,28/0,41 (0,026-1,4)	0,25/0,39 (0,012-1,5)
Total oxyPAK	Sommer	0,16/0,2 (0,016-0,71)	0,11/0,29 (0,0055-2,9)	0,059/0,096 (0-0,6)	0,013/0,041 (0-0,38)
	Winter	1,4/2,9 (0,27-13)	1,2/2,6 (0-9,8)	1,2/2,1 (0-10)	0,9/2,2 (0,082-8,5)

An den Verkehrsstationen LMI und EIB wurden die höchsten mittleren Konzentrationen (Median) gemessen, obwohl Unterschiede zwischen den Messstandorten in den gemessenen Konzentrationen nicht so ausgeprägt sind wie dies bei den Konzentrationen der Hopane zu beobachten war (Winterkonzentrationen der Summe aller PAK: 5,8 ng m⁻³ am Standort LMI, 5,9 ng m⁻³ in EIB, 4,7 ng m⁻³ in TRO, und 5,0 ng m⁻³ in MEL; Sommerkonzentrationen: 0,95 ng m⁻³ in LMI, 0,7 ng m⁻³ in EIB, 0,45 ng m⁻³ in TRO, und 0,27 ng m⁻³ in MEL). Eine Erklärung für diesen Umstand liegt in den Unterschieden der jeweiligen Quellen: Während sowohl Hopane als auch PAK bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe entstehen können, ergeben sich PAK zusätzlich auch aus anderen Quellen wie z. B. der Biomasseverbrennung. Allerdings ähnelten die Muster in den mittleren Konzentrationen der PAK an allen Standorten eher denen der Anhydrozucker als denen der Hopane. Dies ist ein Hinweis darauf, dass Holzverbrennung eine wesentliche Quelle von PAK im regionalen PM darstellen könnte. Die

im Winter gemessenen maximalen PAK-Konzentrationen reichten von 47 ng m⁻³ (TRO) bis zu 80 ng m⁻³ (LMI), aber die Konzentrationen von Benzo(a)pyren, das bekanntermaßen sowohl ein Mutagen als auch ein Carcinogen ist, überschritt nicht den EU-Grenzwert von 1 ng m⁻³.

3.3.9 Hopane

Hopane sind eine Gruppe von Verbindungen, die üblicherweise als Markerverbindungen genutzt werden, um den Einfluss der Verbrennung fossiler Brennstoffe auf die örtliche Luftqualität zu bestimmen (SCHAUER et al. 1999). Alle Probenahmestellen wiesen unabhängig von der Jahreszeit sehr niedrige Hopankonzentrationen auf (Tabelle 13 und Abbildung 41); im Winter wurden jedoch erhöhte Werte vermerkt, mit mittleren PM₁₀-Konzentrationen (Median) von 0,12 ng m⁻³ in MEL, 0,15 ng m⁻³ in TRO, 0,28 ng m⁻³ in LMI und 0,62 ng m⁻³ in EIB. Eine Erklärung dafür ist, dass die Verbrennung fossiler Brennstoffe zu Heizungszwecken im Winter zu höheren Hopankonzentrationen beitragen kann, während hohe Sommertemperaturen zu niedrigeren Partikelphasenkonzentrationen führen können (RUEHL et al. 2011). In den im Sommer vorgenommenen Messungen an TRO und MEL waren die für Hopane ermittelten Werte sehr gering, die mittleren Konzentrationswerte (Median) für Hopane lagen unter 0,01 ng m⁻³. Die für die Standorte EIB und LMI im Sommer festgestellten mittleren Hopan-Konzentrationswerte (Median) sind jedoch nicht vernachlässigbar, obwohl die Werte mit 0,08 ng m⁻³ in EIB und 0,14 ng m⁻³ in LMI immer noch unter den im Winter gemessenen Werten lagen.

Betrachtet man die Messungen aller vier Standorte im Raum Leipzig, wird es ersichtlich, dass die Verkehrsstationen in der Innenstadt EIB und LMI am stärksten von Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe beeinflusst waren – die höchsten Konzentrationen wurden am Standort EIB vermerkt, gefolgt vom Standort LMI. Zur Unterscheidung, ob Hopane bei der Verbrennung von Mineralöl oder bei der Kohleverbrennung entstanden sind, wird oft der sogenannte Homohopan-Index verwendet. Er berechnet sich aus

$$(17\text{-}\alpha\text{(H)},21\text{-}\beta\text{(H)}\text{-}22\text{S}\text{-homohopane}) / (17\text{-}\alpha\text{(H)},21\text{-}\beta\text{(H)}\text{-}22\text{S}\text{-homohopane} + 17\text{-}\alpha\text{(H)},21\text{-}\beta\text{(H)}\text{-}22\text{R}\text{-homohopane})$$

und beträgt bei einem Ursprung in der Mineralölverbrennung typischerweise etwa 0,6, während ein Wert von etwa 0,1 darauf hinweist, dass Hopane überwiegend aus der Braunkohleverbrennung stammen (SCHNELLE-KREIS et al. 2007). An der Station EIB betrug der Homohopan-Index im Winter 0,09 für PM₁₀, wohingegen für die Station LMI ein Wert von 0,25 ermittelt wurde. Diese Werte legen nahe, dass die Werte am Standort EIB vorwiegend auf Braunkohleverbrennung zurückzuführen waren, während der Standort LMI sowohl von Braunkohleverbrennung als auch von verkehrsbedingter Verbrennung von Mineralöl beeinflusst war. An den Standorten TRO und MEL betrug der für den Winter ermittelte Homohopan-Index etwa 0,18 und 0,1, was darauf hinweist, dass auch an diesen Stationen Braunkohleverbrennung die dominierende Hopan-Quelle darstellte. Zu beachten ist hierbei jedoch, dass dies nicht zwangsläufig lokale Quellen sein müssen, sondern auch ferntransportierte Luftmassen eine große Rolle spielen können.

Im Sommer betrug der Homohopan-Index an den Standorten LMI und EIB über 0,4, was zeigt, dass die Emissionen aus Braunkohleverbrennung zu Heizzwecken im Sommer abnahmen. Hopane wurden überwiegend in der submikronen Größenfraktion gefunden, ähnlich den Markerverbindungen für Holzrauch. Geringere Konzentrationen von Hopanen im Sommer und ein höherer Homohopan-Index wurden auch für in Augsburg durchgeführten Messungen berichtet (SCHNELLE-KREIS et al. 2007). Die in Augsburg ermittelten Werte ähneln den Werten an den Leipziger Verkehrsstationen.

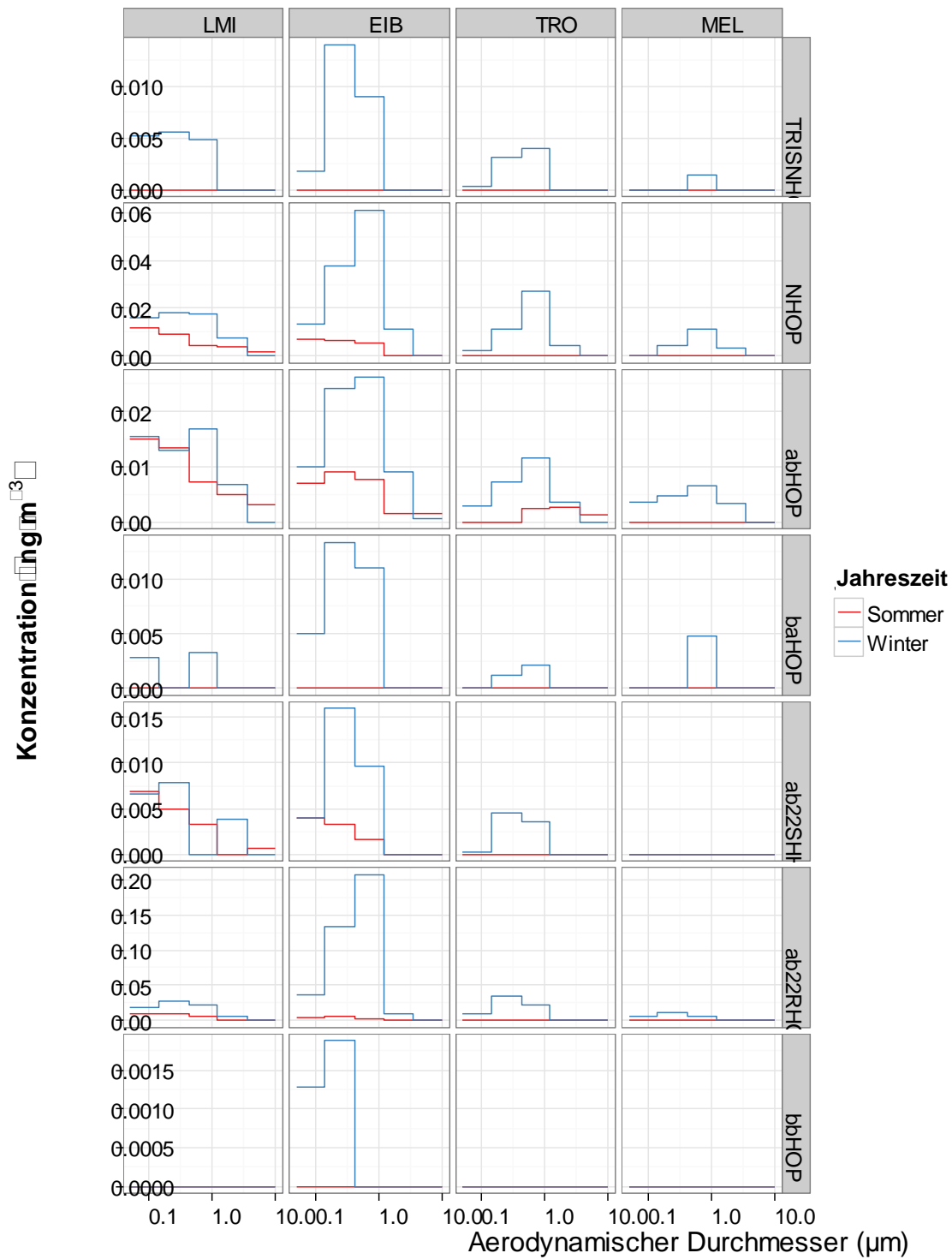


Abbildung 41: Mediane der Konzentration der Hopane an allen Messstandorten für alle Größenklassen in Sommer- bzw. Wintermessperioden

Tabelle 13: PM₁₀-Konzentrationen der Hopane als Median/Mittelwert (Minimum – Maximum) in ng m⁻³ für Sommer- und Wintermesskampagnen

		LMI	EIB	TRO	MEL
alpha, alpha, alpha-20R-Cholestan	Sommer	0/0,0011 (0-0,0066)	0/0,00023 (0-0,002)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
	Winter	0/0,0035 (0-0,04)	0/0,00032 (0-0,0064)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
17alpha(H)-22,29,30-Trisnorhopan	Sommer	0,0046/0,0066 (0-0,029)	0/0,0036 (0-0,017)	0/0,00094 (0-0,01)	0/0,00021 (0-0,0039)
	Winter	0,02/0,064 (0-0,37)	0,043/0,095 (0-0,47)	0,014/0,044 (0-0,29)	0,0014/0,043 (0-0,34)
17alpha(H),21beta(H)-30-Norhopan	Sommer	0,031/0,036 (0-0,099)	0,023/0,025 (0-0,058)	0,0062/0,0072 (0-0,024)	0/0,005 (0-0,037)
	Winter	0,069/0,13 (0-0,43)	0,13/0,19 (0-0,69)	0,046/0,1 (0-0,37)	0,027/0,082 (0-0,38)
17alpha(H),21beta(H)-Hopan	Sommer	0,041/0,047 (0-0,13)	0,028/0,033 (0-0,091)	0,0074/0,011 (0-0,041)	0,0014/0,0056 (0-0,039)
	Winter	0,056/0,11 (0-0,41)	0,08/0,15 (0-0,6)	0,031/0,068 (0-0,26)	0,019/0,068 (0-0,29)
17beta(H),21alpha(H)-Hopan	Sommer	0/0,0027 (0-0,012)	0,002/0,0026 (0-0,011)	0/0,00091 (0-0,009)	0/0,00069 (0-0,0061)
	Winter	0,006/0,043 (0-0,35)	0,054/0,091 (0-0,38)	0,0054/0,027 (0-0,13)	0,0099/0,035 (0-0,23)
17alpha(H),21beta(H),22S-Homohopan	Sommer	0,019/0,022 (0-0,064)	0,013/0,014 (0-0,041)	0/0,0043 (0-0,019)	0/0,002 (0-0,026)
	Winter	0,029/0,03 (0-0,093)	0,036/0,057 (0-0,23)	0,015/0,02 (0-0,076)	0,0044/0,022 (0-0,2)
17alpha(H),21beta(H),22R-Homohopan	Sommer	0,021/0,027 (0-0,077)	0,016/0,02 (0-0,051)	0/0,0069 (0-0,044)	0/0,003 (0-0,027)
	Winter	0,084/0,11 (0-0,31)	0,38/0,4 (0-1,3)	0,067/0,084 (0-0,25)	0,039/0,057 (0-0,25)
17beta(H),21beta(H)-Hopan	Sommer	0/0,00098 (0-0,0084)	0/0,00094 (0-0,0069)	0/0,00043 (0-0,0045)	0/0,00036 (0-0,0056)
	Winter	0/0,0023 (0-0,017)	0,0053/0,018 (0-0,068)	0/0,0019 (0-0,011)	0/0,0011 (0-0,015)
Hop-17(21)-en	Sommer	0/0,00029 (0-0,006)	0/0,00033 (0-0,0068)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
	Winter	0/0,00014 (0-0,0029)	0,0054/0,043 (0-0,19)	0/0,0012 (0-0,023)	0/0 (0-0)
Gesamt-Hopane	Sommer	0,14/0,14 (0-0,41)	0,087/0,1 (0-0,23)	0,014/0,031 (0-0,14)	0,0031/0,017 (0-0,14)
	Winter	0,28/0,49 (0-1,8)	0,62/1 (0-3,4)	0,15/0,31 (0-1,2)	0,12/0,31 (0-1,7)

3.3.10 Metalle

Die Konzentrationen der Spurenmetalle variierten stark abhängig von Standort, Jahreszeit und Größenfraktion. Abbildung 42 zeigt die saisonalen Trends der größen aufgelösten Spurenmetallkonzentrationen für den Zeitraum des Projekts. Höhere Konzentrationen traten an LMI auf, gefolgt von EIB, TRO und MEL. Dieser Trend veränderte sich nicht mit der Jahreszeit. Es waren jedoch an allen Probenahmestellen starke Konzentrationsveränderungen in Abhängigkeit von den Jahreszeiten zu beobachten, wobei im Winter höhere Spurenmetallkonzentrationen zu verzeichnen waren als im Sommer. Die Größenverteilung war ebenso jahreszeitabhängigen Variationen unterworfen: Besonders an den Standorten LMI, EIB und TRO wurden im Sommer mehr Spurenmetalle im groben Partikelmode verzeichnet als im Winter, während am MEL-Standort keine jahreszeitabhängigen Variationen in der Größenverteilung bestehen. Die mittleren PM₁₀-Spurenmetallkonzentrationen (Median) variierten zwischen Werten von 54 ng m⁻³ und etwa 743 ng m⁻³, wobei in groben Partikeln höhere Konzentrationen gemessen wurden. Die saisonalen Konzentrationsunterschiede sind wahrscheinlich auf unterschiedliche meteorologische Rahmenbedingungen, Luftmassenherkunft und Veränderungen in der lokalen anthropogenen Aktivität zurückzuführen. So steigt durch trockene Bodenoberflächen im Sommer die Wahrscheinlichkeit, dass Emissionen aus Krustenmaterial und Emissionen aus mechanischen Prozessen wie z. B. aus mit Verkehr verbundenen Abriebprozessen bestehen (Brems-, Reifen-, Straßenabrieb). Im Winter verstärkt sich allerdings der Einfluss von Verbrennungsprozessen zu Heizungszwecken, demzufolge war auch die Verlagerung der Konzentrationen der Spurenmetalle zu niedrigeren Partikelgrößen hin zu beobachten.

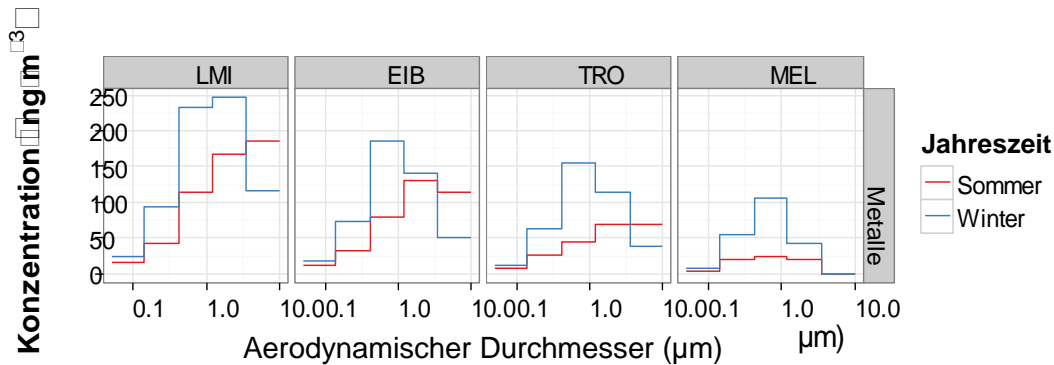


Abbildung 42: Größenaufgelöste Median-Konzentrationen der Summe der bestimmten Spurenmetalle für Sommer- und Winterkampagne

In Tabelle 14 und Abbildung 43 wird gezeigt, dass im Sommer Fe, Ca, K, Zn und Cu dominierten und im Winter Fe, K, Ca, Zn und Pb die vorherrschenden Spurenmetalle darstellten. Co, Rb, Sr, Ni und Se wiesen die niedrigsten Konzentrationswerte auf; Fe, Ca und K machten sowohl im Sommer als auch im Winter 80 % der gemessenen Spurenmetallkonzentrationen aus. Allerdings traten in den Konzentrationen starke Variationen auf, wie an der Spanne der Werte in Tabelle 14 zu sehen ist. K-Konzentrationen traten an allen Stationen im Winter um etwa den Faktor 2 höher auf als im Sommer. In der Größenverteilung jedoch waren an keinem Standort signifikante Veränderungen zu verzeichnen, wobei submikrone Partikel 50 % der Masse ausmachten. Dass K im Winter in höheren Konzentrationen auftrat, ist wahrscheinlich durch die im Winter vermehrt auftretenden Emissionen aus Verbrennungsprozessen zu erklären. Im Gegensatz zu K zeigten weder Ca noch Ti-Konzentrationen nennenswerte saisonale Unterschiede. Es ähnelten sich sowohl die saisonalen mittleren Konzentrationen (Median) als auch die Größenverteilungen, wobei sich etwa 75 % ihrer Masse in der groben Aerosolfraktion konzentriert. Die für V ermittelten Konzentrationswerte lagen im Sommer etwa 50 % höher als im Winter, ohne signifikante Veränderungen in der Größenverteilung. Hier konzentrierte sich etwa 75 % der Masse in den submikronen Partikelgrößenfraktionen, was darauf hinweist, dass sich die Quellen von V nicht im nennenswerten Maße abhängig von der Jahreszeit veränderten. Auch bestand für V-Konzentrationen keine nennenswerte Variation, abhängig vom jeweiligen Standort, was ein Indiz dafür ist, dass sich Ferntransporte signifikant auf die im Laufe dieses Experiments gemessenen V-Konzentrationen ausgewirkt haben könnten.

Konzentrationen von sowohl Cr als auch Mn und Fe unterlagen starken standortabhängigen Schwankungen, wobei an LMI und EIB höhere Konzentrationen bestimmt wurden als an TRO und MEL. Cr-Konzentrationen waren im Sommer und Winter ähnlich und konzentrierten sich in groben Partikeln. Dass die für Cr gemessenen Konzentrationen im groben Partikelmode an LMI und EIB höher lagen, ist ein Hinweis darauf, dass an diesen Stationen ein Einfluss durch örtlichen Verkehr bestand. Mn hingegen trat im Winter in einer 30 % höheren Konzentration auf als im Sommer, ohne dass nennenswerte Veränderungen in der Größenverteilung zu beobachten waren. Mn war überwiegend in der submikronen Partikelfraktion zu beobachten. Fe wurde in erster Linie in der groben Fraktion beobachtet und wies außer am Standort LMI keine signifikanten Unterschiede zwischen den im Winter und im Sommer gemessenen Konzentrationen auf. Fe ist ein wesentlicher Bestandteil von Mineralstaub, was die Anwesenheit von Eisen in groben Partikeln erklärt.

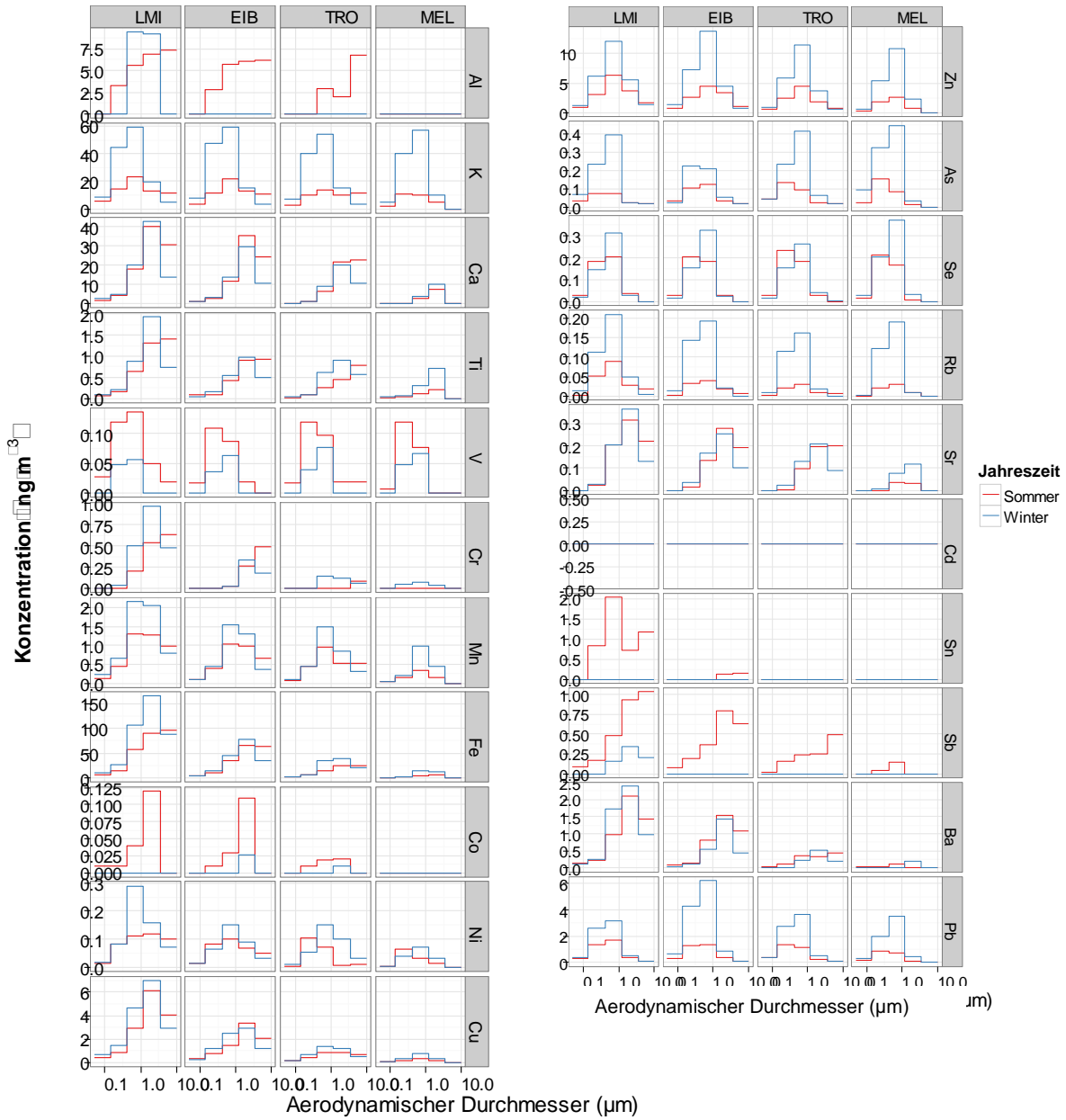


Abbildung 43: Mediane der PM_{10} -Konzentration der Spurenmetalle an allen Messstandorten im Sommer bzw. im Winter

Tabelle 14: PM₁₀-Konzentrationen (Median/Mittelwert [Min-Max]) der Spurenmetalle in ng m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
Al	Sommer	24/71 (2,3-864)	19/27 (0-80)	12/21 (0-107)	4,7/10 (0-63)
	Winter	28/34 (0-195)	14/17 (0-93)	6,3/20 (0-184)	0/10 (0-112)
K	Sommer	70/108 (23-725)	67/74 (8,7-138)	52/65 (21-134)	30/42 (12-127)
	Winter	145/153 (36-499)	153/146 (37-311)	128/138 (30-264)	118/133 (21-314)
Ca	Sommer	96/322 (23-4718)	78/87 (2,5-202)	50/61 (22-144)	12/24 (2,4-94)
	Winter	89/98 (32-283)	63/81 (15-285)	41/52 (14-156)	16/25 (5-112)
Ti	Sommer	3,8/6,8 (0,96-56)	2,7/3,1 (0,15-7,8)	1,8/2,3 (0,38-8,5)	0,59/0,88 (0,064-3,2)
	Winter	4/4,8 (1,7-14)	2,5/2,9 (0,79-7,6)	2,5/2,8 (0,78-12)	1,2/1,7 (0,099-8)
V	Sommer	0,4/0,69 (0,075-3,8)	0,25/0,3 (0-0,72)	0,27/0,28 (0-0,66)	0,24/0,24 (0,046-0,46)
	Winter	0,13/0,28 (0-1,3)	0,15/0,27 (0-1,5)	0,2/0,31 (0-1,4)	0,13/0,33 (0-2)
Cr	Sommer	1,4/1,9 (0-5,8)	0,75/1,2 (0-3,1)	0,18/0,34 (0-1,2)	0,0042/0,12 (0-1)
	Winter	2/2,5 (0,6-5,9)	0,68/1,1 (0,05-3,9)	0,57/0,88 (0,0079-4)	0,5/1 (0-4)
Mn	Sommer	4,8/6,7 (0,73-37)	3,4/4 (0,17-11)	2,7/3,4 (0,63-9,3)	0,77/1,2 (0,19-3,9)
	Winter	6,2/6,6 (3,1-13)	3,8/4,3 (1,5-8,6)	3,1/3,6 (1-7,3)	1,7/1,8 (0,34-4,3)
Fe	Sommer	299/393 (28-1540)	176/222 (4,1-520)	80/124 (20-457)	16/31 (4,3-222)
	Winter	417/440 (149-1194)	170/196 (46-376)	110/133 (31-371)	40/41 (9,4-131)
Co	Sommer	0,23/0,29 (0-1,2)	0,15/0,2 (0-0,63)	0,048/0,087 (0,0094-0,52)	0,0094/0,017 (0-0,059)
	Winter	0/0,016 (0-0,16)	0,03/0,042 (0-0,15)	0,01/0,024 (0-0,1)	0/0,0062 (0-0,069)
Ni	Sommer	0,53/0,65 (0,018-2,3)	0,27/0,41 (0,0037-0,96)	0,2/0,31 (0,067-0,79)	0,15/0,16 (0,057-0,37)
	Winter	0,63/0,68 (0,21-1,3)	0,41/0,42 (0,089-1,2)	0,36/0,59 (0,077-2,3)	0,18/0,24 (0,038-0,68)
Cu	Sommer	16/17 (0,61-49)	8,5/11 (0,14-24)	2,9/3,7 (0,62-9,9)	0,75/1,4 (0,2-11)
	Winter	17/18 (6,8-50)	7,8/8,9 (3,3-17)	3,7/4,9 (1,3-17)	1,9/1,9 (0,33-4,8)
Zn	Sommer	17/19 (2,6-45)	13/16 (1,1-41)	11/13 (2,7-27)	6,7/7,6 (1,9-17)
	Winter	29/38 (9,3-116)	28/42 (6,2-171)	24/32 (5,4-79)	21/25 (2,9-70)
As	Sommer	0,24/0,47 (0-2,5)	0,28/0,47 (0-2,3)	0,35/0,48 (0,049-2,4)	0,28/0,47 (0-1,4)
	Winter	0,63/1,5 (0,035-7,7)	0,37/1,4 (0,029-7)	0,86/1,7 (0,037-7,2)	0,9/1,6 (0,14-4,6)
Se	Sommer	0,48/0,53 (0,15-1,3)	0,48/0,53 (0,17-1,7)	0,49/0,56 (0,19-1,5)	0,42/0,45 (0,095-1,1)
	Winter	0,52/0,62 (0,14-1,8)	0,56/0,58 (0,15-1,3)	0,58/0,59 (0,14-1,3)	0,61/0,66 (0,13-1,4)
Rb	Sommer	0,21/0,33 (0,0017-2,5)	0,11/0,17 (0,042-0,49)	0,09/0,14 (0,0017-0,51)	0,064/0,13 (0,003-0,72)
	Winter	0,4/0,47 (0,061-1,8)	0,49/0,44 (0,049-1,1)	0,3/0,42 (0,035-1)	0,32/0,38 (0,04-1,1)
Sr	Sommer	0,75/2,2 (0,023-30)	0,66/0,71 (0-1,5)	0,51/0,55 (0,1-1,3)	0,085/0,18 (0-0,93)
	Winter	0,77/0,91 (0,3-2,8)	0,56/0,67 (0,28-1,8)	0,47/0,58 (0,19-1,9)	0,21/0,33 (0,054-1,2)
Cd	Sommer	0,06/0,5 (0-8,4)	0/0,095 (0-0,38)	0,03/0,096 (0-0,44)	0/0,007 (0-0,08)
	Winter	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
Sn	Sommer	7,1/12 (0-130)	0,41/1,1 (0-6,2)	0,059/0,16 (0-1,7)	0,048/0,46 (0-3,7)
	Winter	0,13/0,86 (0-4,4)	0/0,14 (0-2,4)	0/0,51 (0-7,1)	0/0,4 (0-7,4)
Sb	Sommer	2,7/7 (0-93)	2,1/2,5 (0-6,7)	1,2/1,4 (0-4,6)	0,33/0,49 (0-1,9)
	Winter	0,72/0,92 (0-2,7)	0,17/0,55 (0-3,7)	0/0,17 (0-1,1)	0/0,038 (0-0,21)
Ba	Sommer	4,8/6,2 (0,054-20)	3,9/4,4 (0,014-9,9)	1,4/1,7 (0,23-4,3)	0,19/0,44 (0,049-2)
	Winter	6,2/6 (1,9-18)	2,6/3,2 (0,96-12)	0,89/1,5 (0,29-5,1)	0,29/0,32 (0-1,2)
Pb	Sommer	4,4/4,8 (0,037-12)	3,2/4,4 (0,022-12)	3,3/4,4 (0,58-12)	1,9/4,1 (0,035-30)
	Winter	6,5/12 (2-42)	11/16 (2,9-48)	8,2/11 (1,6-30)	7,1/9,1 (0,59-25)

Die Konzentrationen von Co, Sn, und Cd waren sehr gering und konnten nicht in allen Messungen nachgewiesen werden. Co und Sn konnten vorwiegend an den Standorten LMI und EIB gemessen werden, wobei sie im Sommer in höheren Konzentrationen auftraten. Für Ni und Cu kann ein ähnlicher Rückgang der Konzentration von urbanem Hintergrund in Richtung regionalem Hintergrund festgestellt werden; auch hier war kein nennenswerter Unterschied zwischen den im Winter und im Sommer ermittelten Werten zu beobachten. Ni wurde überwiegend in submikronen, Cu jedoch in groben Partikeln gefunden, was darauf hinweist, dass sie wahrscheinlich aus verschiedenen Quellen stammten. Cu kann bei Bremsverschleiß ausgestoßen werden, während sich Ni hauptsächlich aus der Kraftstoffverbrennung ergibt.

Die für Zn, As, Se, Rb und Pb ermittelten Konzentrationen unterlagen zu beiden Jahreszeiten keinen signifikanten standortabhängigen Schwankungen. Eine Erklärung hierfür ist wahrscheinlich, wie schon oben erwähnt, der Einfluss von Ferntransport. Die Konzentrationen lagen an allen Probenahmestellen im Winter höher als im Sommer, mit der Ausnahme von Se, für das kein nennenswerter saisonaler Konzentrationsunterschied bestand. Die für Zn, As und Pb gemessenen Konzentrationen waren um etwa den Faktor 2 höher, während Rb-Konzentrationen um den Faktor 3 höher lagen. Die jeweiligen Größenverteilungen blieben dennoch über die Jahreszeiten hinweg ähnlich; hier konzentrierten sich etwa 80 % der Partikelmasse in der feinen Aerosolfraktion. Diese Größenverteilungen sind ein Indiz dafür, dass die Spurenmetalle durch anthropogene Aktivität und Ferntransporte bestimmt sind.

Die Konzentrationen von Sr, Sb, und Ba nahmen vom urbanen Hintergrund in Richtung regionalem Hintergrund ab. Hierbei waren für die für Sr und Ba ermittelten Werte keine saisonalen Konzentrationsunterschiede zu verzeichnen, während Sb im Sommer in um den Faktor 3 höheren Konzentrationen auftrat. Sowohl Sb als auch Sr und Ba traten im Sommer und im Winter überwiegend in groben Partikeln auf.

3.3.11 Zusammenfassung Konzentrationsvergleiche an Stationen

Insgesamt lässt sich festhalten, dass die oben ausführlich diskutierten Konzentrationsprofile der PM-Bestandteile an den verschiedenen Stationen des Projektes grundsätzlich konsistent mit dem Charakter der jeweiligen Messstation sind.

Typische primäre Verkehrstracer wie EC, Hopane, kürzerkettige n-Alkane (<C₂₅) und einzelne Metalle zeigten in ultrafeinen und feinen Partikelgrößenfraktionen an den Verkehrsstationen deutlich erhöhte Konzentrationen. Auch Bestandteile von groben Partikeln wie Calcium, Natrium oder Chlorid waren durch verstärkte Resuspension von bereits deponiertem Material an den Verkehrsstationen, aber auch im städtischen Hintergrund in höheren Konzentrationen als außerhalb der Stadt zu messen.

Auch die jahreszeitlichen Trends waren so, wie man sie aufgrund meteorologischer Bedingungen und typischer Emissionen auch für umfangreichere Datensätze erwarten würde. PM-Bestandteile aus Verbrennungsprozessen wie PAK, OC, EC, Anhydrozucker und verschiedene Metalle zeigten deutlich erhöhte Konzentrationen im Winter. Photochemisch gebildete Substanzen wie Oxalat oder Bestandteile grober Mineralstaubpartikel wie Calcium zeigten höhere Konzentrationen im Sommer, trotz der durch höhere Mischungsschichthöhen intensiveren Verdünnung der Aerosolpartikel in dieser Jahreszeit.

Die Konsistenz der beschriebenen Konzentrationstrends mit dem Wissen zu den chemischen PM-Bestandteilen belegt, dass der vorliegende Datensatz für genauere Quantifizierungen einzelner Quellgruppenbeiträge grundsätzlich gut geeignet ist.

Weil im Raum Leipzig neben Standort und Jahreszeit auch der Ferntransport einen wichtigen Einfluss hat, wird vor den quantitativen Quellzuordnungen im folgenden Kapitel die Abhängigkeit der Konzentrationen der Partikelbestandteile von der Luftmassenherkunft für den Datensatz des Projektes untersucht.

3.4 Ost-West-Anströmung – Einfluss Ferntransport

3.4.1 Vorbemerkungen

Eine separate Betrachtung der gemessenen Partikelinhaltsstoffe in Hinblick auf die Luftmassenherkunft ist ein wichtiges Hilfsmittel, um mögliche Quellen von Partikeln bzw. deren Vorläufergasen zu identifizieren. Während bei westlichen Anströmungsrichtungen üblicherweise höhere Windgeschwindigkeiten und damit eine bessere Durchmischung der bodennahen Troposphäre beobachtet wird, kommt es bei östlichen Anströmungen gelegentlich auch zu ausgeprägten Inversionswetterlagen, die eine Durchmischung der bodennahen Luftschichten verhindern. Westliche Anströmungen sind auf Grund des maritimen Charakters der Luftmassen auch häufig mit Niederschlägen verbunden, was bei östlicher Anströmung nur in Ausnahmefällen beobachtet wird. Für die Probenahmen wurden Tage ohne Niederschlag ausgewählt. Es ist jedoch bekannt, dass die Zahl der Vortage ohne Niederschlag ebenfalls Einfluss auf die Partikelkonzentration hat.

Aus westlicher Richtung wird der Raum Leipzig von marinen Luftmassen aus dem Nordatlantik bzw. der Nordsee erreicht, die jedoch mindestens 400 km über Deutschland und Westeuropa gezogen sind und so Verschmutzungen anthropogenen Ursprungs enthalten. Bei östlicher Anströmung wird die Region von kontinentalen Luftmassen erreicht, die nur in Ausnahmefällen marin (durch die Ostsee) beeinflusst sind, häufig aber über dicht besiedelte Gebiete im Süden Polens bzw. der Tschechischen Republik mit ebenfalls hohen industriellen Emissionen zu uns gelangen. Auch Quellgebiete in der Ukraine bzw. in Weißrussland oder Rußland können Auswirkungen auf die hier gemessene Aerosolzusammensetzung haben. Wie aus Veröffentlichungen zu Partikelmessungen in Polen und der Tschechischen Republik bekannt ist, ist vor allem die winterliche Partikelbelastung in diesen Gebieten sehr hoch (ROGULA-KOZLOWSKA et al. 2013; SRAM et al. 2013).

3.4.2 Masse, Ionen, Kohlenstoff

Abbildung 44 gibt einen Überblick über die mittleren Partikelmassenkonzentrationen (Median) von Partikelmasse, ionische Bestandteile, OC, EC und WSOC auf den einzelnen Stufen des BERNER-Impaktors an allen vier Probenahmestandorten im Vergleich zwischen Sommer und Winter mit Unterscheidung der Hauptanströmung West und Ost. Tage ohne Zuordnung zu den beiden Hauptanströmungen wurden nicht berücksichtigt.

Die Aerosolzusammensetzung und -konzentration hängte an allen vier Standorten auch von der Anströmungsrichtung ab, wobei im Sommer diese Effekte nur von geringer Bedeutung waren, im Winter jedoch eine sehr wichtige Rolle für die Beurteilung des regionalen Hintergrundaerosols spielten.

Die in Abbildung 44 gezeigte Anströmungsabhängigkeit der Partikelmassen zeigt deutlich, dass diese im Sommer nur sehr geringen Einfluss auf die Partikelmasse hatte, aber im Winter in den Ferntransportfraktionen (Stufen 2 und 3) erheblich größere Konzentrationen bei Ostanströmung beobachtet wurden. Mit östlicher Anströmung waren im Winter zumeist niedrigere Temperaturen und geringere Windgeschwindigkeiten verbunden. Ebenso kommen dann auch Inversionswetterlagen mit sehr niedrigen Mischungsschichthöhen vor allem bei Ostlagen vor, was auch zu höheren Aerosolkonzentrationen führen kann. Solche Tage deuten aber i. d. R. in ihren Rückwärtstrajektorien v. a. auf lokale Transportprozesse hin und wurden daher im aktuellen Projekt nicht bevorzugt als Messtage ausgewählt.

Die Impaktorstufen 2 und 3 enthielten vor allem Partikel aus dem Langstreckentransport, der bei östlicher Anströmung vorwiegend im Winter bereits in Melpitz auffällig hohe Konzentrationen zur Folge hatte, die in der Stadt durch lokale Emissionen noch verstärkt wurden. Ultrafeine und grobe Partikel wiesen im Winter kaum eine Konzentrationsabhängigkeit von der Anströmung auf. Im Sommer fand man auf den massereichen Stufen 2 und 3 bei östlicher Anströmung an allen Stationen die höchsten Werte, die aber deutlich unauffälliger als im Winter waren. Während Stufe 3 im Winter im regionalen Hintergrund 55 % der PM₁₀-Partikel lieferte, war ihr Anteil im Sommer nur 37 %. Auf den anderen Impaktorstufen spielten lokale Effekte eine bedeutendere Rolle, wie die Aufwirbelung durch den Straßenverkehr bzw. Direktmissionen aus den Fahrzeugen.

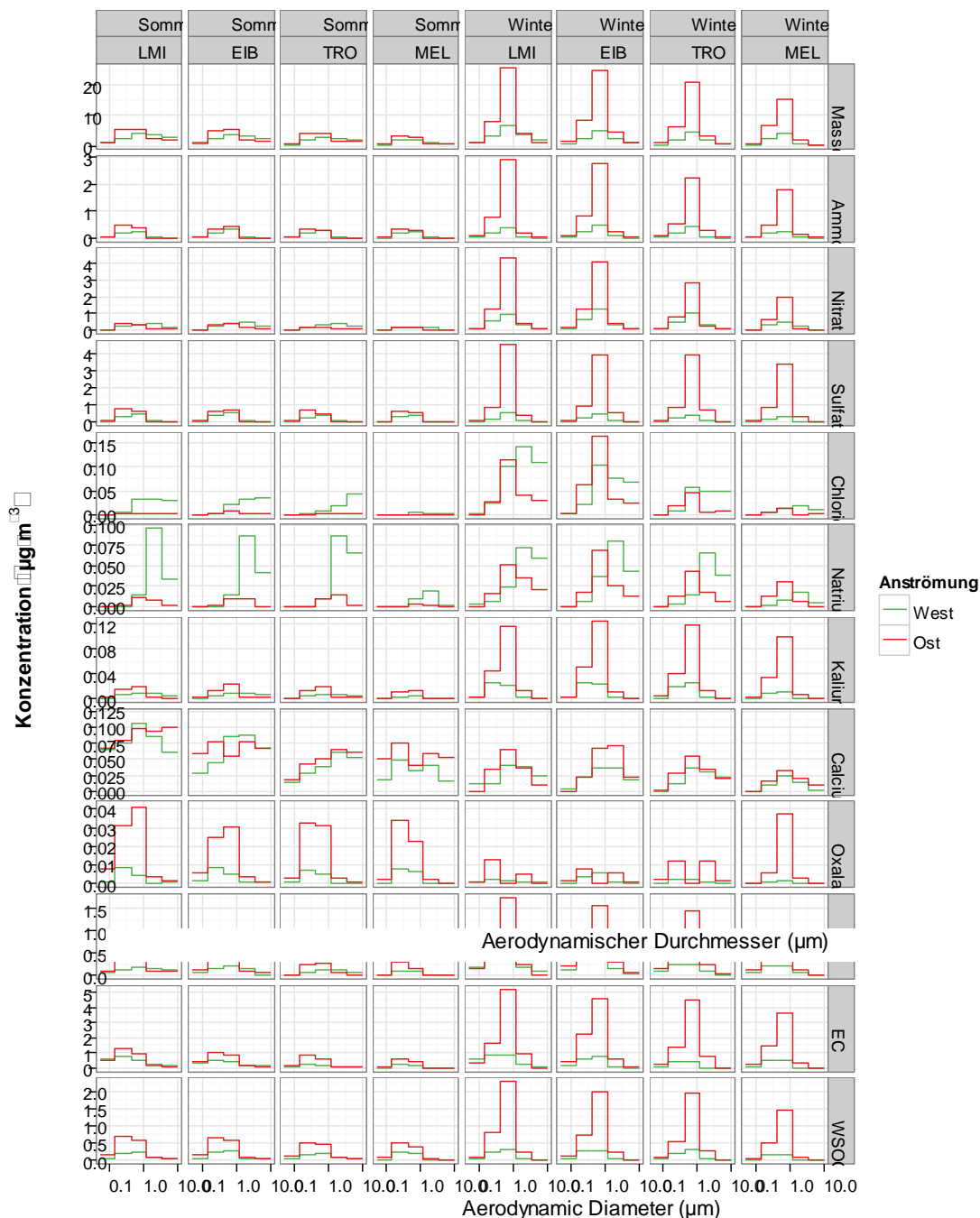


Abbildung 44: Mediane der größen aufgelösten Konzentration für Partikelmasse, ionische Bestandteile OC, EC und WSOC unterschieden nach Station, Jahreszeit und Anströmung

Der Anteil des Nitrats war bei westlicher Luftmassenherkunft im Sommer größer als bei östlicher Anströmung. Für Sulfat und Ammonium gab es im Sommer kaum Unterschiede, nur in MEL war Sulfat auf Stufe 2 und 3 bei östlicher Anströmung erhöht, was auf Ferntransporte zurückzuführen ist. Die Hintergrundstation MEL wurde dabei bei Westanströmung vom Ballungsraum Leipzig/Halle beeinflusst, während bei östlicher Luftmassenherkunft Emissionen aus den polnischen und tschechischen Industriegebieten sowie den sehr dicht bevölkerten Regionen im Süden Polens vor allem im Winter starke Einflüsse beim Sulfat und Ammonium zeigten.

TRO ist eine Messstation für den städtischen Hintergrund, wurde aber bei östlicher Anströmung weniger stark von städtischen Emissionen geprägt als vom Leipziger Umland. Die Inkremente für Sulfat und Ammonium waren dort fast null.

Die Probenahme in der recht engen Straßenschlucht der Leipziger Eisenbahnstraße ist für die Betrachtung der Anströmung nicht gut geeignet, weil hier viele andere, vorwiegend lokale Faktoren entscheidend sind. Die Messstation LMI wurde wesentlich durch die direkten und indirekten Verkehrsemissionen geprägt. Auf Grund der Lage der Messstation wurde sie vor allem bei westlicher Anströmung durch das Beschleunigen der Kfz nach der Ampel beeinflusst, was sich auch sehr deutlich im Nitrat und in den NO_x -Werten zeigte (Median Ost: $60 \mu\text{g m}^{-3}$, Median West: $132 \mu\text{g m}^{-3}$), während in Melpitz die Verhältnisse fast ausgeglichen waren, weil NO_x aus Leipzig schon in Nitrat umgewandelt war (Median Ost: $18 \mu\text{g m}^{-3}$, Median West: $15 \mu\text{g m}^{-3}$). Das winterliche Verhältnis NO_2/NO war für die Station Melpitz 6,5 bei Westanströmung, aber 14 bei Ostanströmung, was bedeutet, dass bei Ostanströmung stärker gealterte Luftmassen die Forschungsstation Melpitz erreichten. Gleichzeitig dürfen Verdünnungseffekte während des Transports nicht vernachlässigt werden, die aber nicht so stark das Verhältnis, sondern mehr die Konzentration beeinflusst haben sollten.

Tabelle 15: PM_{10} Masse- und Hauptionenkonzentrationen (in $\mu\text{g m}^{-3}$) an allen Probenahmeorten in Hinblick auf die Jahreszeit und die Anströmung

		LMI	EIB	TRO	MEL
Masse	SO WEST	15/19 (7,5-71)	13/14 (4,8-22)	10/11 (4,8-17)	6,3/6,9 (4-14)
	SO OST	16/17 (11-23)	15/16 (11-22)	12/12 (9,2-16)	7,8/8,2 (6,2-11)
	WI WEST	17/19 (7,8-29)	12/15 (5,5-29)	12/13 (5,9-23)	8,1/8,8 (3,8-16)
	WI OST	40/41 (24-63)	41/39 (23-56)	34/33 (22-47)	24/28 (17-44)
NO_3^-	SO WEST	1,3/1,4 (0,33-3,9)	1,6/1,6 (0,31-4,2)	1,3/1,2 (0,38-3,3)	0,59/0,71 (0,1-1,6)
	SO OST	0,98/0,92 (0,43-1,4)	0,85/0,96 (0,48-1,7)	0,69/0,7 (0,38-1,1)	0,34/0,34 (0,13-0,54)
	WI WEST	1,8/3,2 (0,72-9,3)	2/3,2 (0,9-8,1)	1,6/2,6 (0,65-6,1)	0,97/1,9 (0,26-4,5)
	WI OST	6,3/5,8 (1,8-9)	6,1/5,4 (1,3-8,5)	4,6/4,4 (1,5-7,4)	2,7/3,5 (0,67-8)
SO_4^{2-}	SO WEST	1,1/1,2 (0,38-2)	1,1/1,1 (0,54-2)	0,99/1,1 (0,64-2,3)	0,61/0,85 (0,52-1,4)
	SO OST	1,6/1,7 (1-3,1)	1,4/1,7 (1,2-3,3)	1,3/1,5 (0,92-3)	1,2/1,3 (0,83-2,2)
	WI WEST	0,86/1 (0,2-2,8)	0,92/1 (0,35-2,1)	0,83/0,94 (0,34-2)	0,47/0,68 (0,19-1,9)
	WI OST	6,5/6,2 (4,2-8,2)	6,1/5,7 (3,5-7,6)	6,2/6 (4,8-6,6)	4,4/4,7 (3,9-6,1)
NH_4^+	SO WEST	0,6/0,63 (0,17-1,7)	0,63/0,73 (0,23-1,8)	0,58/0,7 (0,17-1,5)	0,5/0,51 (0,16-0,77)
	SO OST	0,87/0,94 (0,42-1,8)	0,73/0,92 (0,53-1,9)	0,63/0,81 (0,56-1,8)	0,59/0,64 (0,47-1)
	WI WEST	0,56/1 (0,16-2,8)	0,72/0,98 (0,25-2,5)	0,7/0,94 (0,18-2,6)	0,36/0,69 (0,13-1,8)
	WI OST	4/4 (1,8-5,7)	3,7/3,6 (1,5-5,6)	3,4/3,1 (0,88-4,9)	2,3/2,8 (1,7-4,2)

Tabelle 16: PM10 Konzentration (in ng m⁻³) der Spurenionen an allen Messstationen in Hinblick auf die Jahreszeit und die Anströmung, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		LMI	EIB	TRO	MEL
Na ⁺	SO WEST	160/250 (1,6-1600)	180/290 (7,8-2000)	19/29 (8,7-1900)	29/78 (0-430)
	SO OST	24/34 (18-75)	23/37 (14-97)	31/43 (7,4-140)	5,6/9,6 (2,5-33)
	WI WEST	180/290 (43-790)	150/260 (42-630)	150/220 (44-670)	50/130 (7,3-470)
	WI OST	110/600 (42-3300)	130/220 (58-750)	120/110 (37-170)	67/82 (32-190)
K ⁺	SO WEST	29/49 (8,8-220)	30/35 (6,5-73)	24/30 (8,9-52)	9,6/16 (3,9-75)
	SO OST	43/45 (34-56)	49/49 (40-57)	37/45 (30-79)	29/25 (9,9-33)
	WI WEST	62/74 (17-150)	55/64 (26-130)	61/59 (14-160)	27/42 (6,8-100)
	WI OST	180/250 (120-570)	107/230 (130-520)	180/220 (110-470)	160/170 (66-320)
Mg ²⁺	SO WEST	35/43 (4,9-170)	32/44 (7,2-200)	27/41 (8-190)	12/15 (2,6-50)
	SO OST	17/19 (14-28)	15/17 (9,9-27)	15/16 (8,2-31)	8,5/8,2 (4,9-10)
	WI WEST	19/27 (10-75)	12/25 (6,2-61)	16/26 (7,4-71)	7,4/14 (2,5-43)
	WI OST	15/40 (7,8-180)	20/20 (8,8-34)	14/21 (6,9-56)	8,4/12 (3,3-24)
Ca ²⁺	SO WEST	390/450 (69-1500)	380/350 (110-540)	200/300 (45-570)	150/180 (22-390)
	SO OST	420/460 (250-740)	330/410 (150-890)	220/310 (120-610)	280/290 (100-520)
	WI WEST	140/150 (50-280)	130/140 (79-270)	99/120 (36-260)	54/67 (11-140)
	WI OST	150/200 (97-560)	180/210 (49-470)	140/160 (98-330)	120/100 (38-200)
Cl ⁻	SO WEST	98/250 (0,25-2100)	72/310 (0,67-2700)	69/260 (4,5-2400)	12/51 (0-450)
	SO OST	15/23 (0,14-60)	12/21 (4,4-60)	11/14 (7,5-25)	0,94/3,5 (0-15)
	WI WEST	330/490 (100-1300)	320/380 (44-810)	310/280 (30-590)	57/130 (18-460)
	WI OST	250/1100 (63-6600)	310/450 (36-1100)	69/180 (21-520)	22/13 (4,6-450)
NO ₂ ⁻	SO WEST	1,2/1,8 (0,027-5,2)	0,44/0,11 (0,013-4,4)	0,49/1,2 (0,013-4,2)	0,79/1,1 (0,068-3,2)
	SO OST	2,9/2,9 (1,4-4)	2,1/2,2 (1,2-3,6)	1,8/1,9 (0,39-2,6)	1,5/1,6 (1,1-2,2)
	WI WEST	2,7/3,6 (1,1-11)	2,7/2,9 (1,1-5,6)	2,6/4,2 (0,39-12)	0,6/1,8 (0-10)
	WI OST	6,5/6,8 (2,8-12)	6,7/6,7 (3,2-12)	7/8,2 (4,1-18)	4,7/4,8 (3-7,7)
Oxalat	SO WEST	14/30 (1-130)	16/30 (1-130)	13/27 (1,9-120)	16/31 (1,7-150)
	SO OST	85/84 (14-150)	66/72 (15-130)	0,074/0,071 (0,026-0,1)	62/63 (42-85)
	WI WEST	3,3/9,3 (0,15-31)	10/12 (0-44)	5,3/8 (0,7-33)	2,3/4,4 (0-18)
	WI OST	40/37 (0,54-93)	38/35 (5,9-89)	30/48 (13-130)	45/61 (1,9-170)

Die gemessenen Konzentrationen der Kohlenstoffparameter stiegen sowohl im Sommer als auch im Winter für beide Hauptanströmungen vom regionalen/überregionalen Hintergrund (MEL) in Richtung Verkehrshotspot (LMI) an. Die höchsten Konzentrationen wurden für OC, EC und WSOC im Winter gemessen, bei östlicher Anströmung waren sie dabei um ein Mehrfaches erhöht. Für EC auf Stufe 3 war die Konzentration je nach Standort um das 5- (Melpitz) bis 8-Fache (LMI) erhöht, für OC und WSOC betrug die Konzentrationserhöhung etwa das 3- bis 5-Fache an allen vier Standorten gegenüber der Westanströmung. Die starke Zunahme der Konzentrationen im Winter bei Ostanströmung zeigt den starken Einfluss des Ferntransportes von Emissionen aus Verbrennungsprozessen, die unterschiedlich weit entfernt östlich von Sachsen auftreten und nach Westen transportiert werden können. Im Sommer waren die Konzentrationen für alle drei Spezies kleiner als im Winter. Bei Ostanströmung im Sommer verdoppelten sie sich maximal. Auch zu dieser Jahreszeit nahm die Konzentration in Richtung zu den Verkehrsstationen zu. Der auffällige Unterschied der auftretenden Konzentrationen bei östlicher Anströmung auf Stufe 3 und teilweise auch Stufe 2 im Vergleich zwischen Winter und Sommer zeigt, dass es sich um Emissionen aus Verbrennungsprozessen handelte, die verstärkt im Winter auftreten und weist auf damit indirekt auf Kohleöfen hin. Die etwa vergleichbare Zunahme der Konzentrationen von MEL in Richtung LMI zu beiden Jahreszeiten und Anströmungen zeigt den Einfluss lokaler Emissionen bei einem stark untergeordneten Einfluss von Ferntransport für kohlenstoffhaltige Spezies aus Richtung Westen. Die Zunahme von EC hin zu den Verkehrsstationen wurde vom Straßenverkehr verursacht (Dieselruß). Die Tatsache, dass die Konzentrationen auf den Stufen 2 bis 4 bei östlicher Anströmung im Winter erheblich und

im Sommer nur moderat anstieg zeigt, dass ein erheblicher Anteil von OC und EC im Winter ferntransportiert wurde. Für WSOC trat dieser Effekt ebenfalls auf und weist damit zusätzlich auf eine Prozessierung zu stärker wasserlöslichen Kohlenstoffverbindungen während des Ferntransportes hin.

Die in etwa vergleichbar große Zunahme der Konzentration der Spezies OC, EC und WSOC von MEL in Richtung LMI im Winter und im Sommer und die etwa vergleichbaren Differenzen zwischen östlicher und westlicher Anströmung innerhalb der Jahreszeiten an den einzelnen Stationen zeigen den über eine größere Fläche um die Messstationen herum vergleichbar großen Einfluss durch Ferntransport auf Konzentration von OC und EC bei östlicher Anströmung.

Tabelle 17 fasst EC und WSOC in PM₁₀ (hier als Summe der fünf Stufen des Impaktors) für alle vier Messstationen unterschieden nach westlicher oder östlicher Hauptanströmung für Sommer- und Winterhalbjahr zusammen.

Tabelle 17: Konzentrationen für Kohlenstoff PM₁₀ an den Messstationen unterschieden nach Hauptanströmung und Jahreszeit, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max) in µg m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
OC	SO WEST	0,61/0,78 (0,18-1,7)	0,58/0,71 (0,042-1,8)	0,39/0,5 (0,1-1,4)	0,23/0,4 (0,02-1,6)
	SO OST	1/1,1 (0,79-1,5)	0,98/1,1 (0,95-1,7)	0,7/0,67 (0,4-0,85)	0,51/0,56 (0,26-1,1)
	WI WEST	1,3/1,5 (0,68-2,8)	0,95/1,4 (0,67-2,4)	0,64/0,87 (0,36-1,6)	0,55/0,67 (0,3-1,2)
	WI OST	2,9/2,8 (1,6-3,9)	2,9/2,8 (1,4-3,8)	2,5/2,4 (1,4-3,3)	2/2 (1-3)
EC	SO WEST	2,3/2,2 (0,71-3,5)	1,4/1,6 (0,5-3,2)	0,61/0,73 (0-2,1)	0,35/0,51 (0,012-1,9)
	SO OST	2,9/2,8 (1,4-4,2)	2,3/2,7 (1,6-4,1)	1,5/1,5 (0,77-2,3)	1,1/1,1 (0,55-1,8)
	WI WEST	2,8/3 (1,3-6,1)	1,4/1,9 (0,63-3,5)	1,2/1,4 (0,35-3,1)	0,9/1,3 (0,26-4,1)
	WI OST	8/7,4 (3-12)	8,1/7,7 (3,2-9,8)	6,5/5,9 (3-8,5)	6/5,5 (3-7,5)
WSOC	SO WEST	0,7/0,76 (0,22-2,1)	0,75/0,85 (0,29-2,5)	0,55/0,69 (0,22-2,2)	0,53/0,65 (0,16-2,2)
	SO OST	1,5/1,5 (1,2-1,7)	1,5/1,6 (1,3-2)	1,2/1,2 (0,75-1,7)	1/1,1 (0,65-1,5)
	WI WEST	0,62/0,75 (0,16-1,4)	0,59/0,77 (0,2-1,4)	0,57/0,64 (0,082-1,4)	0,45/0,45 (0,024-1)
	WI OST	3,6/3,6 (1,7-5,1)	3/3,1 (1,2-4,6)	3,1/2,9 (1,6-4)	2,1/2,5 (1,4-4,3)

Auch hier am PM₁₀ zeigten sich deutlich für OC und EC die zu den Verkehrsstationen zunehmenden Konzentrationen. Insbesondere EC zeigte dort sowohl im Winter als auch im Sommer für beide Anströmungen in etwa vergleichbar große Konzentrationszuwächse, was im Wesentlichen auf eine jahreszeitlich unabhängige Quelle wie Verkehrsemissionen schließen lässt. Besonders die östliche Anströmung führte im Sommer und auch im Winter zu höheren Konzentrationen im regionalen Hintergrund (MEL). Besonders stark war dieser Unterschied für EC ausgeprägt und führte im Winter zu einer mehr als versechsfachten Konzentration im regionalen Hintergrund, was den starken Einfluss von anthropogenen Emissionen aus Verbrennungsprozessen, herangeführt über Ferntransport, zeigt. Im Sommer war die Konzentration für EC bei östlicher Anströmung im regionalen Hintergrund nur etwa dreimal höher als bei westlicher Anströmung. Dies ist ein Hinweis auf geringere Emissionen von EC. Der stark erhöhte EC Anteil bei östlicher Anströmung im regionalen Hintergrund im Winter kann nur durch Emissionen aus Verbrennungsprozessen erklärt werden, die besonders im Winter auftreten und lässt deshalb auf einen Beitrag aus der individuellen Kohleverbrennung schließen.

Sowohl die Zuwächse der WSOC-Konzentration in Richtung vom regionalen Hintergrund zu den Verkehrsstationen als auch die Konzentrationsunterschiede zwischen Sommer- und Winterhalbjahr bei Anströmungen aus Ost oder West waren wesentlich kleiner als bei EC. Dies ist typisch für WSOC in den Partikeln, das hauptsächlich durch Prozessierung in der Atmosphäre entsteht und im Wesentlichen durch Ferntransport großflächig verteilt wird. Aufgrund der unterschiedlichen Vorläufersubstanzen für die WSOC-Bildung (abhängig

hauptsächlich von der Anströmung) und deren unterschiedlicher Quellstärke und atmosphärenchemischen Prozessierung (abhängig von der Jahreszeit) resultierten unterschiedliche großräumige, aber innerhalb von Jahreszeit und Anströmung ähnliche WSOC-Konzentrationen in der Atmosphäre.

3.4.3 Organische Verbindungen und Metalle

Monosaccharide, Alkane, PAK, Hopane

Im Winter traten alle Monosaccharide, Alkane, PAK und Hopane bei östlicher Anströmung in erhöhten Konzentrationen auf (Tabelle 18 und Abbildung 45). Dies traf auf alle Standorte zu. Die mittleren Konzentrationen (Mediane) an LMI waren für Anhydrozucker um einen Faktor 4 höher, für PAK um einen Faktor 10, für Hopane um einen Faktor 5 und für n-Alkane um einen Faktor 3. Ähnliche Werte wurden für die anderen drei Standorte festgestellt. Dass diese Markerverbindungen bei östlicher Anströmung in höheren Konzentrationen auftraten, ist darauf zurückzuführen, dass sich im Winter starke anthropogene Emissionsquellen ausgewirkt haben. Für alle Markerverbindungen lagen die Höchstwerte in den Größenverteilungen auf Stufe 3 (0,42-1,2 μm), was auf den Einfluss von Ferntransporten auf die Konzentration der Markerverbindungen hinweist.

Im Sommer wurden keine nennenswerten Unterschiede zwischen Markerverbindungen, die sich aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe ergeben (PAK und Hopane), und Markerverbindungen, die bei Biomasseverbrennung entstehen, beobachtet – teilweise bedingt durch ihre geringen Konzentrationen.

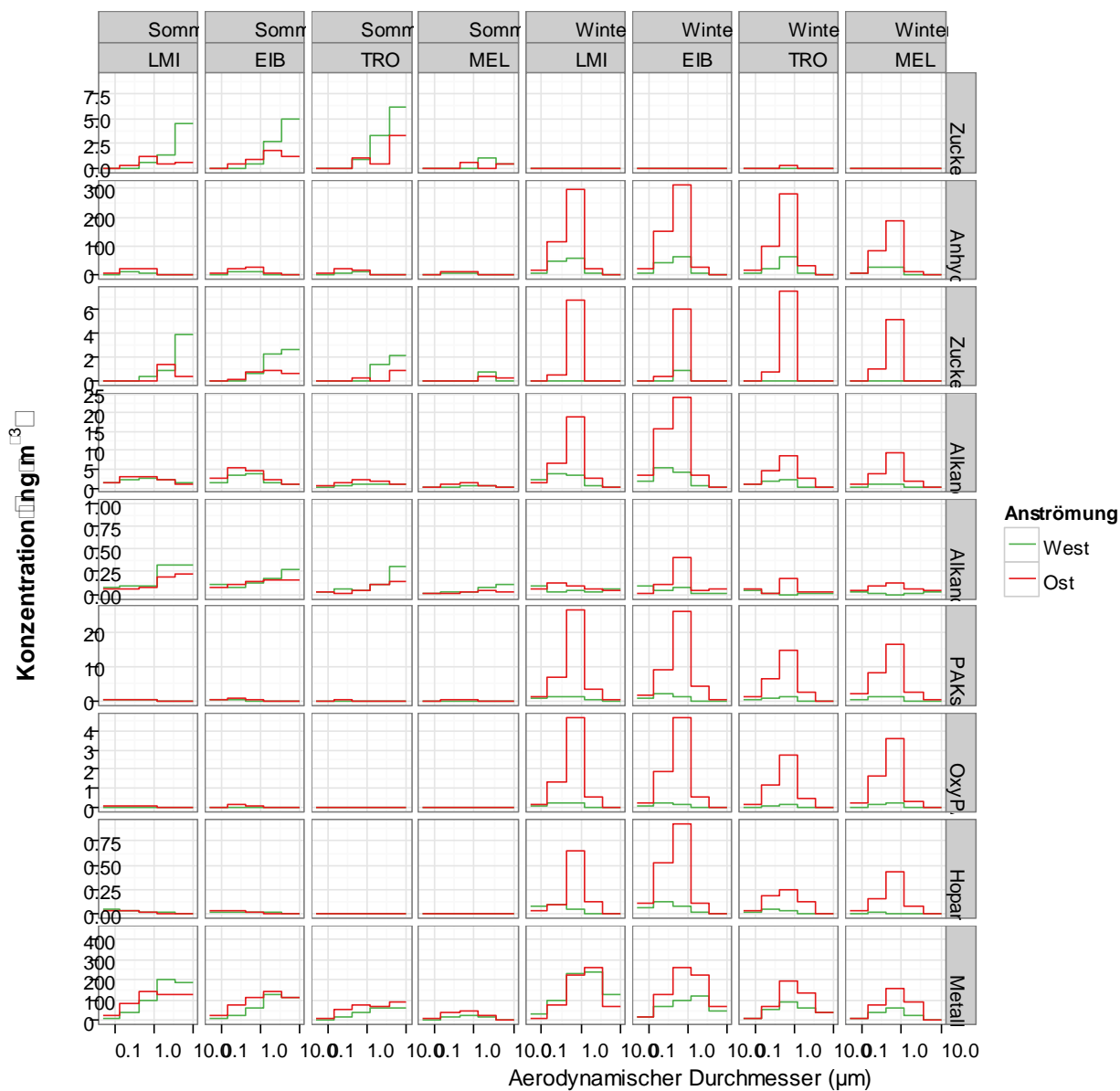


Abbildung 45: Konzentrationen der Summe der Einzelorganika innerhalb ihrer Stoffklasse und der Metalle, unterschieden nach Jahreszeit, Station und Anströmung

Tabelle 18: Stoffklassenkonzentrationen der organischen Verbindungen in PM₁₀ (Summe der BERNER-Impaktorstufen) an den Messstationen unterschieden nach Hauptanströmung, getrennt für Sommer und Winter als Median/Mittelwert (Min – Max) in ng m⁻³

		LMI	EIB	TRO	MEL
Summe Anyhdrozucker	Sommer West	14/18 (3,1-41)	17/26 (6,9-81)	17/20 (2,1-52)	11/9,9 (1,5-20)
	Sommer Ost	45/58 (29-136)	51/74 (32-146)	43/47 (17-100)	20/26 (5-74)
	Winter West	122/149 (19-322)	111/164 (35-412)	79/109 (0-363)	70/80 (6,9-246)
	Winter Ost	478/437 (155-640)	523/494 (193-898)	425/386 (156-551)	272/342 (171-696)
Summe Zuckerkalkohole	Sommer West	9,7/14 (0,78-61)	9,8/17 (0-59)	10/16 (0,87-47)	2,4/12 (0-93)
	Sommer Ost	4,2/4,5 (0,33-11)	4,1/6,5 (2,1-13)	5,3/5,6 (1,6-11)	1,6/2,6 (0-7,9)
	Winter West	0/0,34 (0-2,5)	0,19/0,4 (0-2,1)	0/0,25 (0-2,1)	0,35/0,24 (0-0,61)
	Winter Ost	0/1 (0-3,6)	0/0,53 (0-2,9)	0,63/1,3 (0-3,7)	0,36/0,79 (0-2,9)
Summe Zucker	Sommer West	5,5/10 (0-48)	3,8/12 (0-56)	3,6/7,5 (0-45)	1,1/4,8 (0-47)
	Sommer Ost	2,7/2,7 (0-4,7)	3,6/3,1 (0-5,3)	2/2,1 (0-4,8)	0,65/1,5 (0-3,9)
	Winter West	9,1/9,5 (0,44-29)	6,1/8,5 (1,2-18)	9,3/9,5 (4,1-18)	6,8/7,5 (2,9-19)
	Winter Ost	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
Summe Alkane	Sommer West	9,5/12 (4,8-27)	12/15 (3,2-40)	4,4/7,8 (2,2-22)	2,2/4,2 (0,93-17)
	Sommer Ost	11/12 (8,6-19)	18/19 (13-29)	8/8,4 (5,3-12)	4,3/4 (2,5-5)
	Winter West	10/13 (4,9-43)	12/21 (5,9-55)	3,6/6,4 (0-30)	2,8/3,9 (0,67-8)
	Winter Ost	30/30 (11-49)	47/48 (25-81)	17/18 (8,5-24)	17/19 (8,2-39)
Summe Alkanone	Sommer West	1/3,1 (0,14-11)	0,79/3,7 (0,055-16)	0,51/3,4 (0,085-16)	0,23/1,7 (0,022-10)
	Sommer Ost	0,64/0,73 (0,19-1,8)	0,63/1,2 (0,43-4,1)	0,39/0,57 (0,24-1,7)	0,15/0,17 (0,054-0,43)
	Winter West	0,32/0,55 (0,05-3,4)	0,23/0,44 (0-1,5)	0,033/0,13 (0-0,92)	0,075/0,11 (0-0,33)
	Winter Ost	0,42/0,46 (0,077-0,98)	0,81/0,88 (0,21-1,9)	0,33/0,34 (0,024-0,71)	0,28/0,54 (0,032-1,4)
Summe Hopane	Sommer West	0,14/0,14 (0,0061-0,32)	0,085/0,086 (0-0,19)	0,014/0,023 (0-0,06)	0,0031/0,018 (0-0,14)
	Sommer Ost	0,11/0,13 (0-0,41)	0,078/0,1 (0-0,23)	0,012/0,037 (0-0,11)	0/0,0083 (0-0,046)
	Winter West	0,26/0,31 (0-1,2)	0,3/0,66 (0-2,4)	0,07/0,14 (0-0,79)	0,031/0,06 (0-0,17)
	Winter Ost	1,1/0,88 (0-1,8)	1,8/1,9 (0,96-3,4)	0,68/0,66 (0,29-1,2)	0,7/0,78 (0,32-1,7)
Summe PAK	Sommer West	0,83/1 (0,39-3,2)	0,6/0,67 (0,23-1,5)	0,4/0,4 (0,14-0,68)	0,21/0,25 (0,11-0,63)
	Sommer Ost	0,89/1,6 (0,46-5,5)	1,1/1,9 (0,64-5,4)	0,48/1,2 (0,22-5)	0,4/1 (0,15-4,3)
	Winter West	3,8/4,7 (1,8-15)	3,8/5,7 (1,4-15)	2/3,4 (0-14)	2,9/3,5 (0,56-8,1)
	Winter Ost	38/40 (8,2-80)	41/38 (11-61)	29/27 (11-47)	32/32 (14-56)
Summe oxyPAK	Sommer West	0,15/0,14 (0,016-0,39)	0,082/0,082 (0,0055-0,17)	0,043/0,051 (0-0,12)	0,013/0,019 (0-0,054)
	Sommer Ost	0,2/0,26 (0,03-0,71)	0,24/0,7 (0,11-2,9)	0,065/0,15 (0,0099-0,6)	0,035/0,089 (0,0042-0,38)
	Winter West	0,67/0,89 (0,27-2,1)	0,46/0,78 (0,18-1,9)	0,23/0,55 (0-1,7)	0,36/0,49 (0,082-1,2)
	Winter Ost	6,5/6,8 (1,3-13)	7/6,4 (1,5-9,8)	4,7/4,9 (1,9-10)	6/5,4 (2,2-8,5)

Metalle

Für die Spurenmetallkonzentrationen ergaben sich ebenfalls Unterschiede bezüglich der Luftmassenherkunft. Wie in Abbildung 45 zu sehen ist, wurden besonders im Winter bei Ostanströmung höhere Spurenmetallkonzentrationen verzeichnet als bei Westanströmung. Eine Ausnahme stellte hier LMI dar, was auf die vorherrschende Quelle Verkehr deutet, der hier anströmungsunabhängig dominiert. Höhere Unterschiede in den Spurenmetallkonzentrationen wurden am Standort EIB verzeichnet, gefolgt von TRO und MEL. Der Anstieg der Konzentrationen für Spurenmetalle war sowohl in feinen als auch in groben Partikeln zu beobachten, mit einem etwas höheren Beitrag der feinen Partikelfraktion. Die höheren Konzentrationen ergaben sich überwiegend aus V, K, Ni, Zn, As, Se, Rb und Pb, wobei eine Zunahme um etwa den Faktor 3 für Spurenmetalle wie Pb, Rb, Se, As, Zn and V zwischen westlicher und östlicher Anströmung zu beobachten war. Diese Spurenmetalle stammten aus anthropogenen Quellen: Sie wurden bei der Verbrennung von fossilen Brennstoffen, z. B bei der Kohle- oder Ölverbrennung und durch Biomasseverbrennung ausgestoßen. Im Winter trug der Einfluss von Kohle- und Holzverbrennung zu Heizzwecken, besonders durch ferntransportierte Luftmassen aus dem Osten, zu den hohen Konzentrationen bei, die für diese Metalle gemessen wurden.

Im Sommer bestanden an den Messstandorten keine signifikanten Unterschiede abhängig von der Luftmassenherkunft.

3.4.4 Zusammenfassung Vergleich Luftmassenherkunft

Ähnlich wie in Kapitel 3.3 zeigte sich auch beim Vergleich der Konzentrationen hinsichtlich großräumiger Anströmung ein mit dem Wissen zu Emissionen und Transport von PM konsistentes Bild. Für fast alle Bestandteile wurden i. d. R. in allen Partikelgrößenbereichen und an allen Standorten bei Ostanströmung teilweise sehr deutlich höhere Konzentrationen gemessen, was mit dem höheren kontinentalen Charakter dieser Luftmassen und dem Transport über Regionen erhöhter Emissionen zu tun hat. Die Unterschiede waren vor allem im Winter besonders ausgeprägt, aber auch im Sommer oft gut zu beobachten. Ausnahmen hiervon waren im Prinzip nur bei Natrium und Chlorid aus Seesalz und einzelnen biogenen organischen Verbindungen (z. B. Zucker und Zuckeralkohole) zu beobachten.

Diese Beobachtungen legen nahe, dass es für genauere Betrachtungen von Quellbeiträgen im Raum Leipzig sinnvoll sein kann, neben Jahreszeit und Messstandort auch Luftmassenherkunft bzw. Anströmung als weitere Kategorie zu unterscheiden.

3.5 Quellbeiträge nach Lenschow

3.5.1 Vorbemerkungen

Der Lenschow-Ansatz (siehe Kapitel 1.2) ist eine anerkannte Methode zur Bestimmung von städtischen bzw. Hotspot-Beiträgen zum Gesamtaerosol. Dabei werden die ländlichen Aerosolkonzentrationen einer regionalen Hintergrundstation und die Inkremente der städtisch gemessenen Konzentration betrachtet. Der Zusatzbeitrag des städtischen Hintergrundes, in diesem Falle TRO, der Verkehrsmessstationen EIB und LMI wird bestimmt und den für die Stadt bzw. den Verkehrsstationen typischen Quellen zugeordnet. Diese Untersuchung wird ebenso für die Jahreszeiten Sommer und Winter durchgeführt.

3.5.2 Masse

In Abbildung 46 sind die größen aufgelösten Lenschow-Inkremente für die Partikelmasse gezeigt.

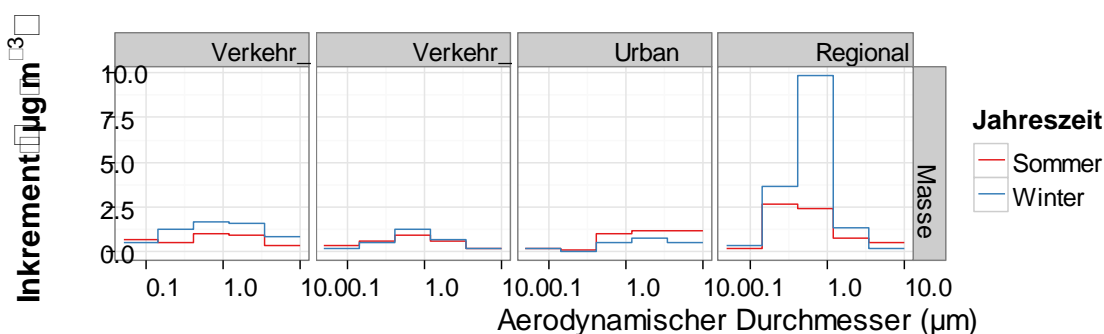


Abbildung 46: Größenaufgelöste Mediane der Lenschow-Inkremente für PM-Masse und Konzentration an der regionalen Hintergrundstation MEL

Es ist deutlich ersichtlich, dass der regionale Hintergrund für den größten Teil der Partikelmasse verantwortlich war. Im Sommer wurde im städtischen Hintergrund vor allem Grobstaub, der zumeist aus Aufwirbelungen stammt, zusätzlich gemessen, während die kleineren Partikel sich vorwiegend an den Verkehrsstationen in deutlich erhöhter Konzentration zeigten, aber auch supermikrone Partikel waren an beiden Verkehrsstationen

gegenüber dem städtischen Hintergrund erhöht, was ebenfalls auf verkehrsbedingte Aufwirbelungen zurückgeführt werden kann. Die Tabelle 19 zeigt, dass im Sommer in der Stadt deutliche Zuwächse gegenüber der im regionalen Hintergrund gesammelten Partikelmasse beobachtet wurden. Besonders an der Station Leipzig-Mitte wurde eine extreme Streuung beobachtet.

Tabelle 19: PM₁₀-Konzentrationen der Masse und der drei Hauptionen (µg m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und PM₁₀-Inkrementen des städtischen Hintergrundes (Urban) bzw. des Verkehrs, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Masse	Sommer	4,1/6,5 (0,87-61)	2,9/3,1 (-0,061-7)	4/4,6 (-0,58-10)	6,5/7,4 (3,7-14)
	Winter	6,2/6,5 (-15-20)	3,1/3,3 (-17-14)	2,4/4,1 (-2-19)	15/17 (3,8-44)
Nitrat	Sommer	0,23/0,24 (-0,15-0,9)	0,28/0,33 (-0,07-0,93)	0,37/0,54 (-0,15-2,4)	0,51/0,58 (0,1-1,6)
	Winter	145/153 (36-499)	0,45/0,8 (-0,48-3,4)	0,57/0,69 (-0,15-2,4)	2,3/2,9 (0,26-11)
Sulfat	Sommer	0,14/0,073 (-0,62-0,71)	0,06/0,065 (-0,6-0,68)	0,18/0,26 (-0,03-0,87)	1/0,99 (0,25-2,2)
	Winter	0,06/0,15 (-0,62-2,1)	0,13/-0,008 (-1,3-1,3)	0,37/0,52 (-1,8-2,6)	1,3/2,3 (0,19-6,1)
Ammonium	Sommer	0,01/-0,002 (-0,32-0,29)	2,7/3,1 (0,15-7,8)	0,061/0,21 (-0,07-1)	0,56/0,54 (0,16-1)
	Winter	0,088/0,3 (-0,37-1,8)	0,12/0,2 (-0,74-1,3)	0,22/0,17 (-2,5-1,6)	1,3/1,7 (0,13-5,3)

3.5.3 Hauptionen

Die sommerlichen Inkremente (Tabelle 19 und Abbildung 47) der Hauptionen Nitrat, Sulfat und Ammonium waren sowohl an der städtischen Hintergrundstation TROPOS als auch den Verkehrsstationen Leipzig-Eisenbahnstraße und Leipzig-Mitte klein, wobei für Nitrat auf sehr niedrigem Niveau zumindest ein deutlicher Trend in allen Größenklassen zu den Verkehrsstationen hin bestand. Bei den winterlichen Inkrementen zeigte sich ebenfalls, dass der Ferntransport bzw. die regionale Hintergrundbelastung eine wesentliche Komponente darstellte, aber die Absolutbeträge der Konzentration der drei Hauptionen waren erheblich größer als im Sommer, was den bereits diskutierten Eigenschaften des Ammoniumnitrats geschuldet ist. 70 % der Hauptionenkonzentration an den Verkehrsstationen und 83 % der im städtischen Hintergrund gemessenen winterlichen Konzentration stammten aus dem regionalen Hintergrund. Im Sommer lagen die Werte mit 66 % an der Verkehrsstation und 73 % im städtischen Hintergrund minimal niedriger als im Winter. Diese sekundär gebildeten ionischen Komponenten des Aerosols werden großräumig aus Vorläufergasen gebildet, die aus sehr unterschiedlichen Quellen stammen: NO_x aus dem Verkehr, SO₂ aus der Kohleverbrennung, aber kaum noch aus den Großkraftwerken, sondern in größerem Maße aus der individuellen Kohleverbrennung, die besonders außerhalb Deutschlands noch eine bedeutendere Quelle darstellt. Ammonium wird wesentlich durch die Ammoniakemissionen aus der Landwirtschaft gebildet, aber in geringem Maße liefert der Verkehr hierzu auch Anteile (CAPE et al. 2004).

In den ultrafeinen Partikeln der Impaktorstufe 1 sieht das jedoch ganz anders aus. Hier überstiegen die städtischen Werte die des regionalen Hintergrundes sehr deutlich. Im Sommer stammten nur 39 bzw. 45 % der Hauptionen aus dem regionalen Hintergrund, im Winter waren es dann 50 bzw. 56 %.

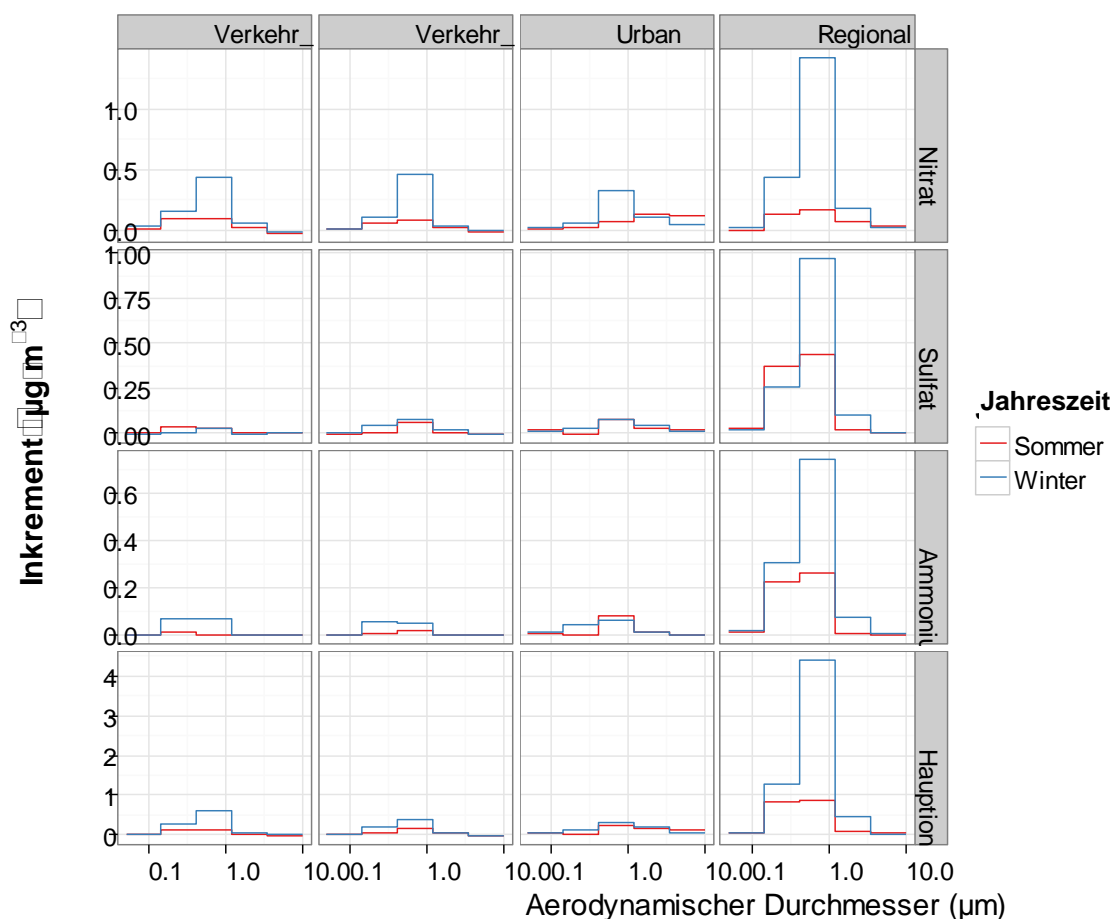


Abbildung 47: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Hauptionen im regionalen Hintergrund und Lenschow-Inkremente für die Stadtstationen im Sommer und Winter

3.5.4 Nebenionen

Während bei den Hauptionen der größte Anteil aus dem regionalen Hintergrund und Langstreckentransporten stammte, fällt bei den Spurenionen auf, dass auf sehr niedrigem Niveau der städtische Hintergrund und die Verkehrsstationen deutliche Inkremente aufwiesen, die für Magnesium, Calcium und Oxalat im Sommer stark ausgeprägt waren, was bei Magnesium und Calcium für Aufwirbelung von Straßenstaub, bei Oxalat aber für das größere Angebot von Vorläufersubstanzen spricht. Chlorid, Kalium, Natrium und Nitrit waren eher im Winter erhöht, was im Falle des Kaliums auf erhöhte Emissionen aus der Biomasseverbrennung zurückgeführt werden kann. Die erhöhten Konzentrationen von Chlorid und Natrium weisen auf zwei verschiedene mögliche Quellen hin: Kohleverbrennung und Straßenabstumpfung. Die Partikel aus der Kohleverbrennung sind eher im submikronen Partikelspektrum zu erwarten, während aus der Straßenabstumpfung eher supermikrone Partikel emittiert werden, was in der winterlichen Größenverteilung auch beides beobachtet wurde. Eine Anfrage bei der Leipziger Stadtreinigung hat bestätigt, dass an insgesamt sechs Messtagen und drei Vormesstagen Straßenabstumpfungsmaßnahmen in LMI und EIB stattfanden.

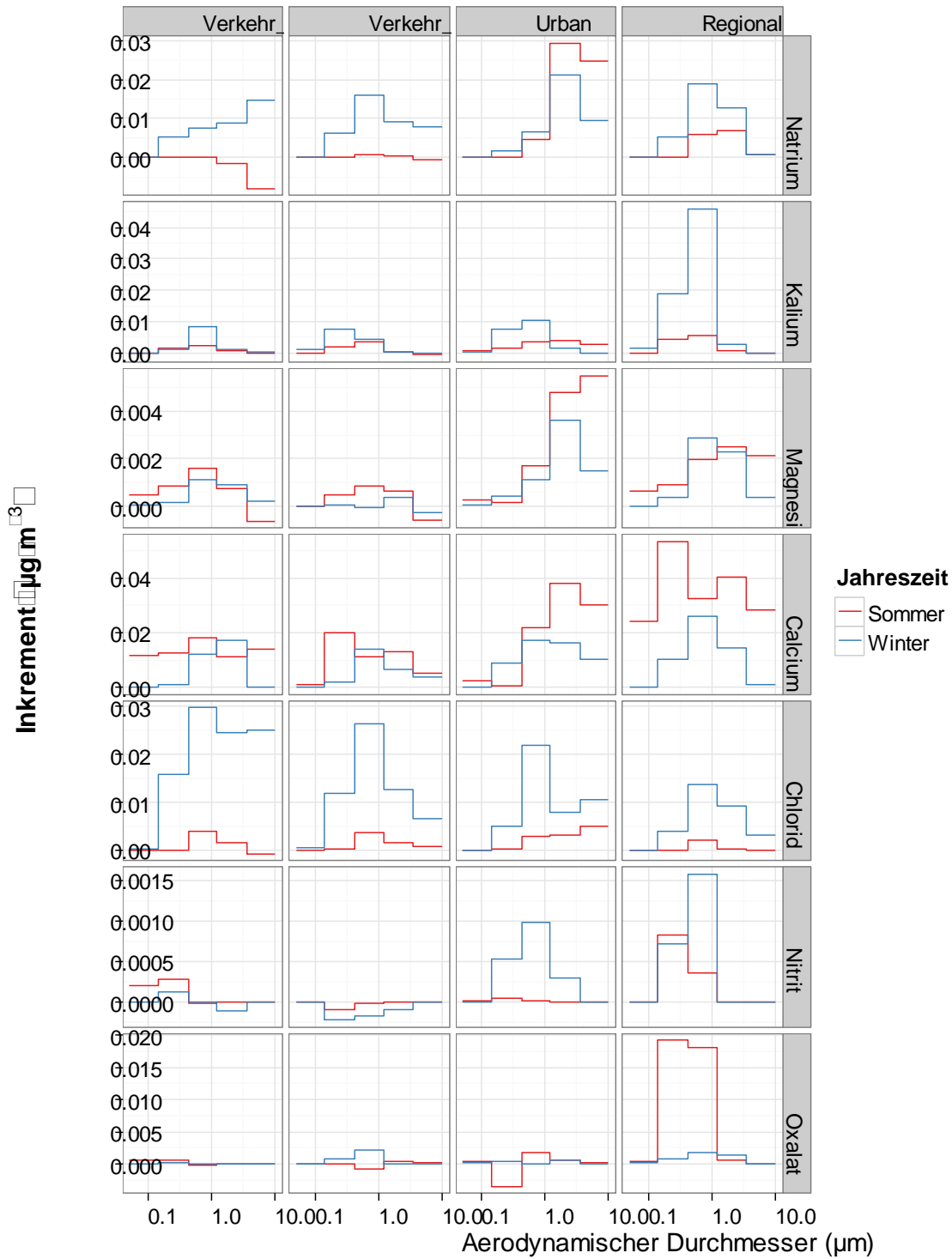


Abbildung 48: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Spurenionen im regionalen Hintergrund und der städtischen Lenschow-Inkremente für Sommer und Winter

Tabelle 20: PM₁₀-Konzentrationen der Spurenionen (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Lenschow-Inkrementen im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Na ⁺	SO	-13/-31 (-250-42)	-3,2/-6,4 (-78-78)	69/150 (2,3-1500)	11/53 (0-430)
	WI	26/230 (-130-3100)	31/82 (-62-570)	44/66 (-160-310)	50/97 (7,3-470)
K ⁺	SO	3,8/9,7 (-49-200)	6/2,8 (-41-35)	13/21 (-23-80)	11/18 (3,9-75)
	WI	19/25 (-30-95)	12/15 (-54-100)	21/29 (-22-150)	80/94 (6,8-320)
Mg ²⁺	SO	4,3/2,3 (-24-28)	2,5/2 (-7,4-16)	15/20 (2-140)	9,5/12 (1,9-50)
	WI	3,4/9,8 (-9,3-130)	2,4/0,049 (-25-27)	7,8/10 (-11-31)	8,4/13 (1,6-43)
Ca ²⁺	SO	82/150 (-93-1300)	68/67 (-170-620)	110/94 (-260-380)	180/210 (22-520)
	WI	45/38 (-210-230)	32/30 (-100-190)	55/53 (-12-120)	60/80 (2,8-200)
Cl ⁻	SO	6,9/-6,6 (-310-58)	7,3/30 (-22-270)	31/140 (3,5-2000)	5,4/33 (0-450)
	WI	100/450 (-130-6100)	47/150 (-110-1000)	51/97 (-37-290)	57/120 (4,6-460)
NO ₂ ⁻	SO	0,68/0,68 (-0,3-2,1)	-0,0078/-0,025 (-1,5-1)	0,085/0,19 (-0,96-1,4)	1,1/1,2 (0,068-3,2)
	WI	-0,28/-0,94 (-12-4)	-0,58/-1,5 (-1,1-4,6)	2,2/2,9 (-1,5-13)	2,7/2,9 (0-10)
Oxalat	SO	0,44/0,87 (-110-61)	0,93/-1,2 (-62-44)	0,7/2,2 (-27-45)	34/43 (1,7-150)
	WI	0,73/5,8 (-24-94)	3,5/4,1 (-13-54)	2,5/-3 (-53-16)	3,9/2,9 (0-170)

3.5.5 Kohlenstoff

Abbildung 49 zeigt neben der Konzentration im regionalen Hintergrund (Regional MEL) die Inkremente (als Median-Konzentrationen nach dem Lenschow-Ansatz) für die drei städtischen Stationen (Urban TRO, Verkehr EIB und LMI) unterschieden für Sommer und Winter. Die Inkremente sind für die Kohlenstoffspezies OC, EC (in Summe TC) und für WSOC gezeigt.

Für den regionalen Hintergrund an der Station MEL lagen für alle Spezies auf praktisch allen fünf Stufen des BERNER-Impaktors die Konzentrationen im Winter höher als im Sommer (Ausnahme Stufe 1 für WSOC). Der Unterschied zwischen Sommer und Winter war für alle Spezies auf Stufe 3 am größten und Stufe 3 zeigte im Winter die Konzentrationsmaxima aller Stufen. Dies charakterisiert einen im Winter stark durch anthropogene Emissionen und Ferntransport geprägten Hintergrund. Im Sommer waren die Hintergrundkonzentrationen in Melpitz gegenüber den anderen Inkrementen nur für WSOC auf den Stufen 2 und 3 höher. Die Inkrementkonzentrationen für die urbane Messstation (TRO-MEL) waren klein, erst in der Differenz in zu den Verkehrsstationen (EIB-TRO und LMI-TRO) wurden die Inkrementkonzentrationen größer. Während für OC der Massezuwachs etwa vergleichbar für Winter und Sommer ist, ist der Massezuwachs für EC gut zu erkennen und für den Sommer absolut größer als für den Winter (Stufen 1 und 2). Der Zuwachs für TRO-LMI war am größten und zeigt den hauptsächlich verkehrsbedingten Zuwachs. Für TRO-EIB war der Sommerzuwachs für EC größer als der im Winter, weil für die Station EIB im Winter neben dem Verkehr wahrscheinlich auch Hausbrandemissionen eine Rolle spielten. Für WSOC waren die Zuwächse vom regionalen Hintergrund über den urbanen Hintergrund hin zu den Verkehrsstationen auf unterschiedlichen Konzentrationsniveaus vergleichbar groß. Es zeigt für beide Spezies, dass diese ubiquitär über den Raum der Messungen verteilt sind.

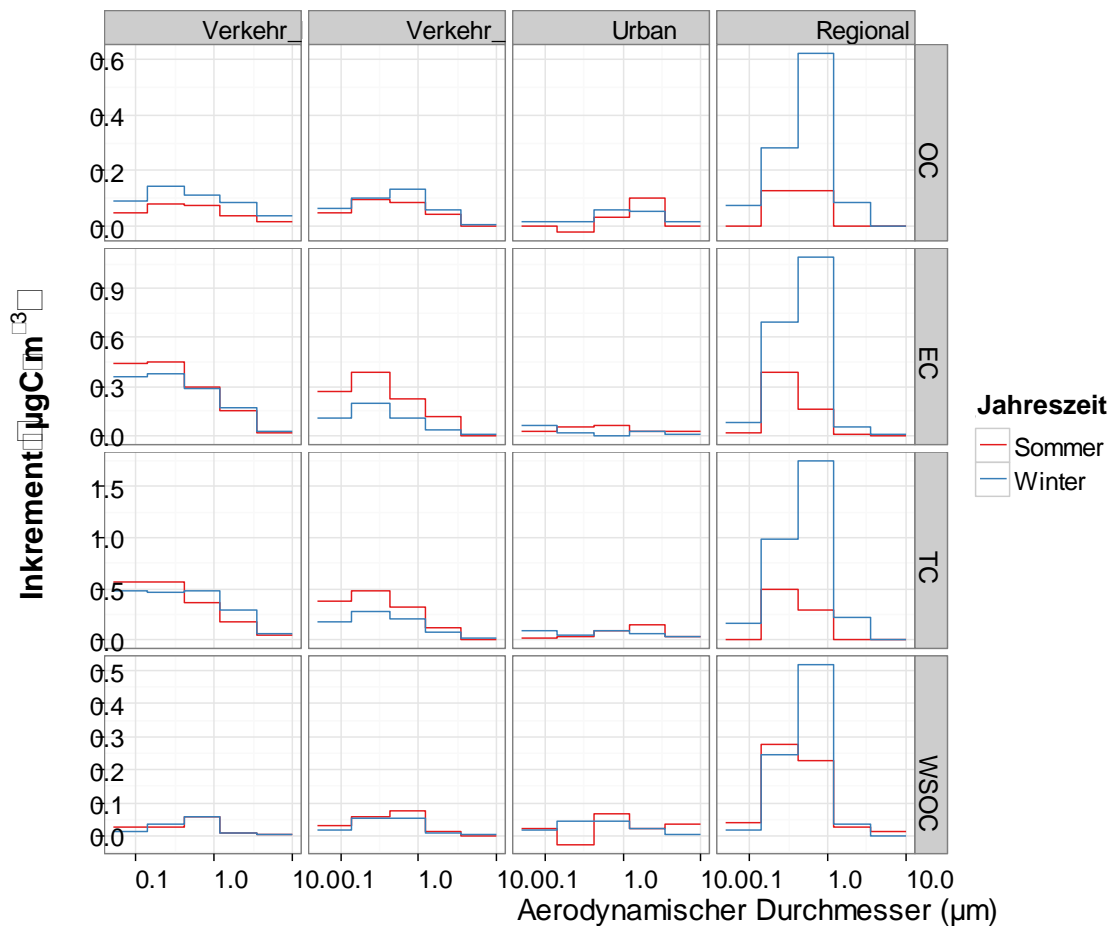


Abbildung 49: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Kohlenstoff-Parameter im regionalen Hintergrund und Lenschow-Inkremente für die städtischen Messstandorte getrennt nach Winter- und Sommermessungen

Tabelle 21 zeigt die Inkremente für Kohlenstoff in PM_{10} (Summe der BERNER-Impaktorstufen) zwischen Regional (MEL) und Urban (MEL-TRO) und Urban und Verkehr (TRO-EIB bzw. TRO-LMI) getrennt für Sommer- und Winterhalbjahr.

Tabelle 21: PM_{10} -Konzentrationen der Kohlenstoffparameter ($\mu\text{g m}^{-3}$) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr-LMI	Verkehr-EIB	Urban	Regional
OC	Sommer	0,28/0,3 (-0,056-1)	0,24/0,31 (-0,18-0,96)	0,16/0,14 (-0,61-0,76)	0,29/0,48 (0,02-1,6)
	Winter	0,55/0,5 (-0,27-1,3)	0,31/0,39 (-0,082-1,1)	0,18/0,27 (-0,12-1,3)	1,1/1,2 (0,3-3)
EC	Sommer	1,3/1,4 (0,33-2,6)	1,1/1,1 (0,17-2,4)	0,22/0,39 (-0,31-2,1)	0,61/0,72 (0,012-1,9)
	Winter	1,1/1,4 (-0,0059-5,3)	0,38/0,7 (-0,05-2,7)	0,05/0,21 (-1,5-1,8)	1,8/2,8 (0,26-7,5)
TC	Sommer	1,7/1,8 (0,28-3,3)	1,4/1,4 (0,08-3,2)	0,38/0,53 (-0,93-2,9)	0,94/1,2 (0,032-3,5)
	Winter	1,8/1,9 (-0,28-6,3)	1/1,2 (0,064-3,5)	0,3/0,49 (-0,98-3)	2,9/4 (0,57-10)
WSOC	Sommer	0,093/0,12 (-0,11-0,41)	0,22/0,23 (0,06-0,7)	0,1/0,14 (-0,12-0,6)	0,7/0,8 (0,16-2,2)
	Winter	0,15/0,3 (-0,021-1,8)	0,13/0,17 (-0,35-0,69)	0,13/0,23 (-0,32-1,3)	0,71/1,3 (0,024-4,3)

Für PM_{10} zeigten sich für OC und EC (TC) im Winter etwa dreimal so große Inkremente im regionalen Hintergrund als im Sommer. Das deutet auf Emissionen aus anthropogenen Verbrennungsprozessen hin. Die Zunahmen zum urbanen Hintergrund waren eher moderat. Es fällt auf, dass für EC im Winter vom regionalen zum urbanen Hintergrund nur eine sehr geringe Konzentrationszunahme auftrat. Hier zeigt sich wahrscheinlich der Einfluss der bereits hohen EC-Konzentration aus dem regionalen Hintergrund, die den urbanen Hintergrund im Winter stärker prägten als im Sommer. Für OC ist dieser Effekt nicht zu sehen, damit war ein Konzentrationszuwachs von OC auch im Winter hin zum urbanen Hintergrund gegeben, was auf zusätzliche Emissionen im urbanen Hintergrund deutet. Eine Konzentrationszunahme von EC vom urbanen Hintergrund zu den beiden Verkehrshotspots ist gut zu erkennen und war im Winter für LMI erheblich größer als für EIB. Dieser größere Unterschied deutet einerseits auf stärkere EC-Emissionen aus dem Straßenverkehr am Standort LMI hin, zeigt andererseits aber auch den Einfluss des höheren Mischungsvolumens (höhere Grenzschicht) im Sommer. Dadurch werden sich durch bessere turbulente Mischung die beiden Verkehrshotspots „ähnlicher“. Dieser Effekt trat weniger stark ausgeprägt auch für OC auf. Sonst zeigte OC für Winter und Sommer einen vergleichbaren Zuwachs hin zu den Verkehrshotspots.

Für WSOC zeigten sich vergleichbare Konzentrationen zwischen Winter und Sommer im regionalen Hintergrund, das lässt sich damit erklären, das WSOC sowohl aus biogenen OC-Emissionen (vorzugsweise im Sommer) als auch aus anthropogenen OC-Emissionen (vorzugsweise im Winter) entstammt oder aus diesen gebildet wird. Die Zunahme der Konzentration hin zum urbanen Hintergrund war im Winter und Sommer moderat aber vergleichbar groß. Hin zu den Verkehrsstationen gab es ebenfalls Konzentrationszunahmen, die durchaus unterschiedlich groß waren und sowohl durch zusätzliche Emissionen in der Stadt als auch durch unterschiedlich große Mischungsvolumina verursacht sein können.

3.5.6 Monosaccharide

Wie schon zuvor erörtert, zeigten die im Sommer durchgeführten Messungen weitaus geringere Zuckeranhydridkonzentrationen, während sich die gemessenen Konzentrationen nicht nennenswert nach Standort unterschieden. Im Winter allerdings konnten standortabhängige Unterschiede beobachtet werden. Ausgehend von den mittleren Konzentrationsunterschieden (Median) zwischen städtischen Stationen (LMI, EIB und TRO) und der Station im regionalen Hintergrund (MEL), kann der Beitrag von städtischer Biomasseverbrennung auf zwischen 10 und 40 % in Leipziger Wohngebieten abgeschätzt werden. Es ist jedoch anzumerken, dass deutliche Lenschow-Inkremente der Anhydrozucker v. a. an den Verkehrsstationen beobachtet wurden, was zu einem beträchtlichen Teil durch dort stark erhöhte Resuspension (Aufwirbelung) bereits deponierter Partikel verursacht sein könnte. Weiterhin zeigt die Tatsache, dass auch am Standort im regionalen Hintergrund (MEL) hohe Konzentrationen der Anhydrozucker gemessen wurden, dass die Quellen des Biomasseverbrennungsaerosols überwiegend regionaler Natur sind bzw. stark durch Ferntransport mitbestimmt werden. Für Zucker und Zuckeralkohole ergab sich kein klarer Trend bezüglich der Abnahme und Zunahme von Konzentration abhängig von urbanem oder regionalem Hintergrund.

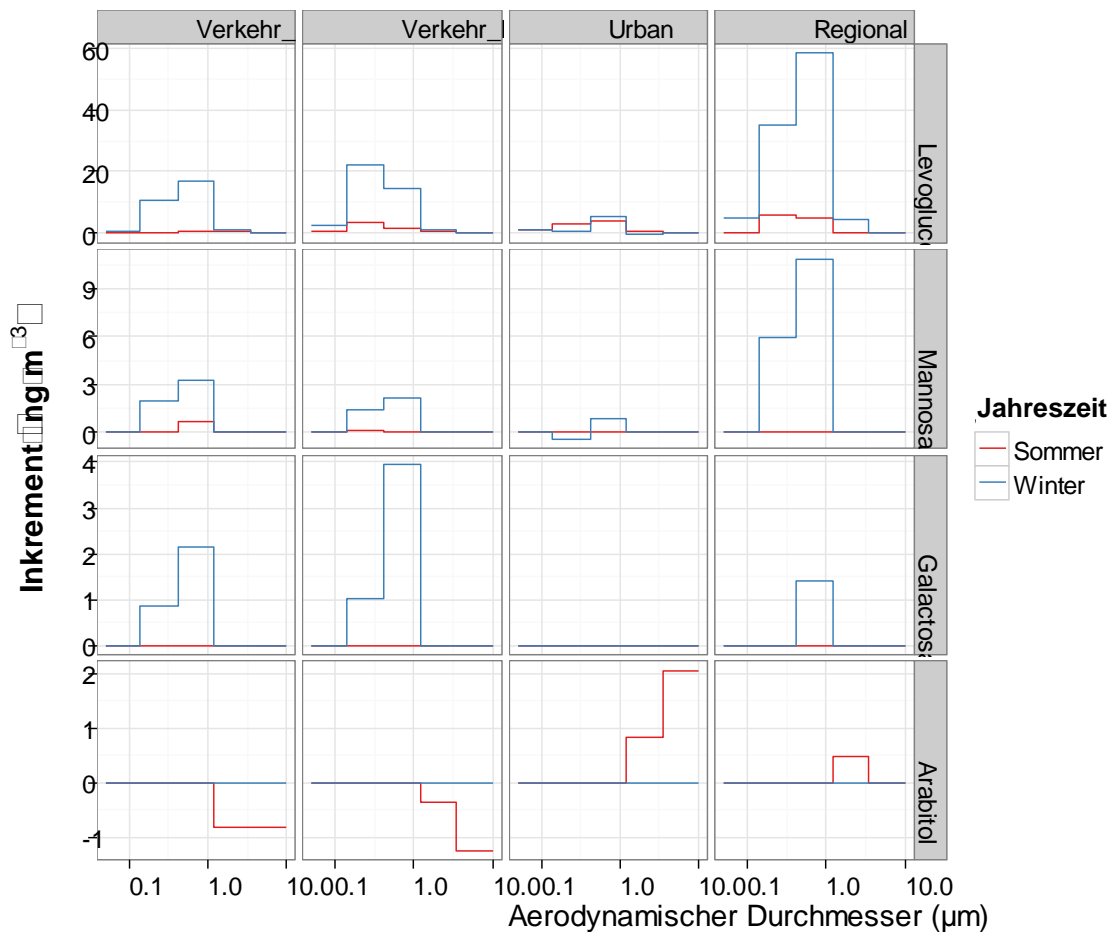


Abbildung 50: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Monosaccharide (ng m^{-3}) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

Tabelle 22: PM_{10} -Konzentrationen der Monosaccharide (ng m^{-3}) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente im städtischen Hintergrund (Urban) sowie an den Verkehrsstationen (EIB und LMI) für Sommer und Winter, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Levoglucosan	Sommer	0,55/2,2 (-13-32)	4,5/15 (-8,6-89)	10/20 (0,32-155)	11/14 (1,5-67)
	Winter	29/31 (-187-135)	36/61 (-71-275)	5,6/25 (-127-212)	112/151 (6,3-610)
Mannosan	Sommer	0,66/0,28 (-7,7-4,7)	0,53/2,7 (-4,4-14)	0/3,1 (-1,4-33)	0/0,99 (0-7,5)
	Winter	9,4/11 (-9,2-57)	4,6/6,1 (-17-39)	1,6/5,2 (-18-38)	18/24 (0,55-86)
Galactosan	Sommer	0/-0,27 (-4,9-0,36)	0/0,18 (-0,35-4,3)	0/0,49 (-0,0053-6,9)	0/0,00025 (0-0,0053)
	Winter	4,3/7,6 (-6,1-58)	6,7/6,5 (-18-32)	0/0,36 (-18-27)	4,5/5,1 (0-18)
Arabitool	Sommer	-2,1/-2,5 (-8,8-4,5)	-0,87/-1,4 (-7,4-5,6)	2,3/3,9 (-7,6-17)	0,53/4 (0-39)
	Winter	0/-0,086 (-2,1-3,6)	0/-0,18 (-2,8-2,1)	0/0,24 (-0,9-2,9)	0,0017/0,38 (0-2,9)

3.5.7 Alkane

Die für n-Alkane ermittelten Konzentrationen zeigten sowohl im Sommer als auch im Winter einen starken Einfluss anthropogener Emissionen an den Standorten LMI und EIB (Abbildung 51 und Tabelle 23).

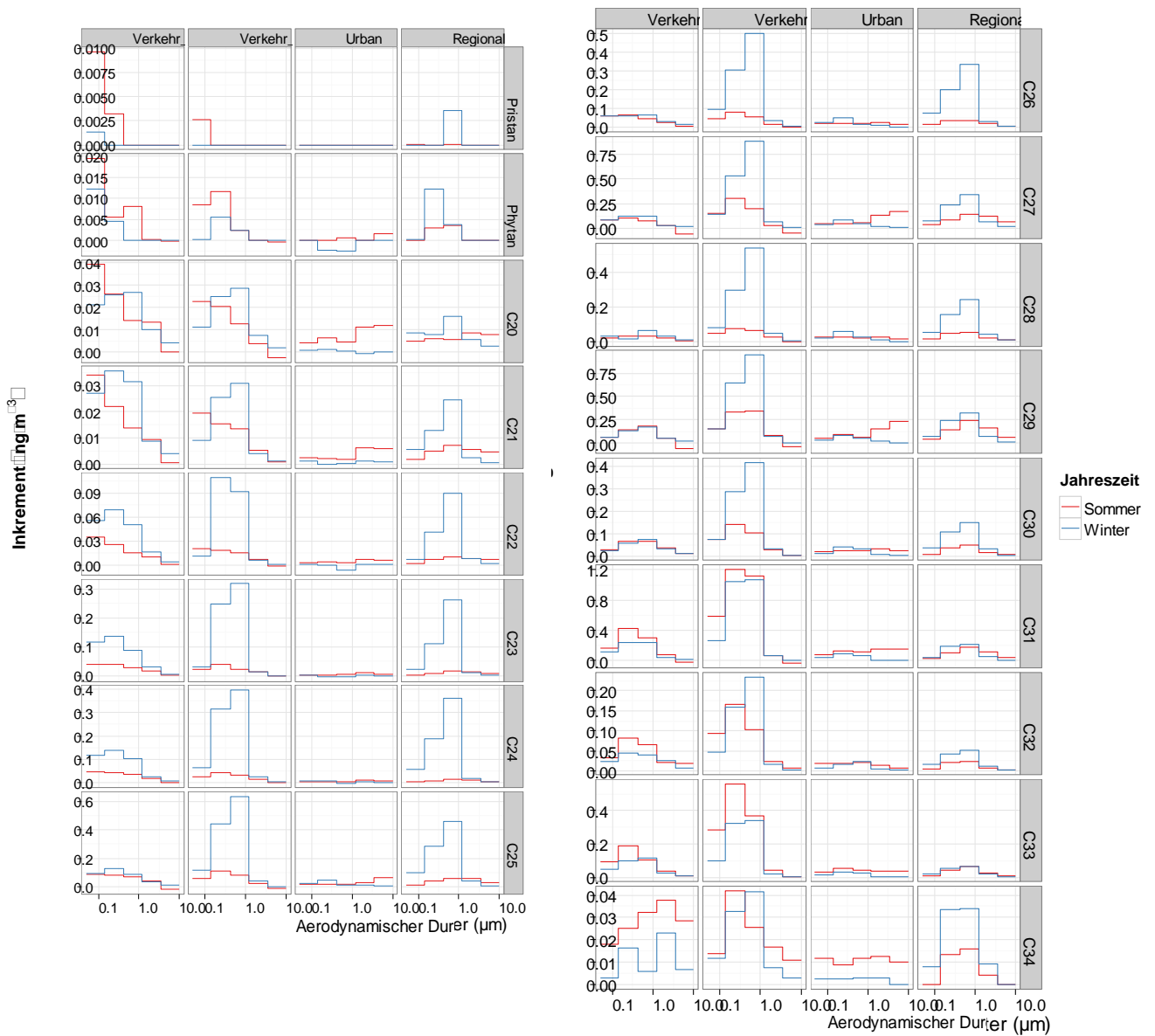


Abbildung 51: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Alkane (ng m^{-3}) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

An diesen beiden Standorten sind die Inkremente der n-Alkan-Konzentrationen deutlich positiv. Während sowohl LMI als auch EIB positive Inkremente gegenüber TRO zeigen, ist das Muster der Inkremente jedoch unterschiedlich in den Sommer- und Wintermessungen. Im Sommer war das höchste Inkrement an LMI und an EIB überwiegend auf der Stufe 1 oder Stufe 2 ($0,05\text{--}0,42 \mu\text{m}$) zu verzeichnen, was auf den Einfluss von frisch emittierten n-Alkanen auf das PM hinweist. Eine Ausnahme stellt das C_{34} -Alkan dar, für das erhöhte Inkremente auf Stufe 4 und 5 ($1,2\text{--}10 \mu\text{m}$) zu beobachten waren. Dies deutet auf einen Einfluss von biologischen n-Alkanen in LMI im Sommer hin.

Tabelle 23: PM₁₀-Konzentrationen der Alkane und Alkanone (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Pristan	Sommer	0,022/0,032 (0-0,21)	0,0028/0,0082 (-0,024-0,072)	0/0,00073 (-0,011-0,011)	0,003/0,0077 (0-0,045)
	Winter	0,01/0,025 (-0,018-0,11)	0/0,0099 (-0,023-0,13)	0/-0,0084 (-0,11-0,029)	0,014/0,017 (0-0,11)
Phytan	Sommer	0,044/0,092 (-0,0068-0,95)	0,03/0,036 (-0,011-0,14)	0,0037/0,0062 (-0,072-0,068)	0,014/0,024 (0-0,16)
	Winter	0,026/0,043 (-0,018-0,18)	0,014/0,037 (-0,0054-0,18)	-0,019/-0,024 (-0,2-0,047)	0,02/0,044 (0-0,2)
n-Eicosan C ₂₀	Sommer	0,093/0,12 (0,024-0,63)	0,063/0,063 (-0,052-0,17)	0,042/0,048 (0,0023-0,14)	0,04/0,042 (0,0055-0,1)
	Winter	0,096/0,18 (0,00022-0,85)	0,079/0,14 (0,00065-0,52)	0,00084/-0,012 (-0,35-0,17)	0,042/0,1 (0,00052-0,52)
n-Heneicosan C ₂₁	Sommer	0,084/0,099 (0,029-0,37)	0,057/0,064 (-0,0041-0,14)	0,02/0,032 (-0,0093-0,12)	0,034/0,032 (0,0045-0,079)
	Winter	0,1/0,36 (0,014-2,3)	0,16/0,33 (-0,0086-1,4)	0,0019/-0,0026 (-0,55-0,47)	0,043/0,2 (0,00035-1)
n-Docosan C ₂₂	Sommer	0,097/0,11 (0,0044-0,34)	0,067/0,076 (-0,015-0,24)	0,024/0,041 (-0,028-0,16)	0,038/0,04 (0,0019-0,11)
	Winter	0,22/0,63 (0,0032-3,5)	0,41/0,79 (0,016-3)	-0,0054/-0,0084 (-1,3-0,95)	0,15/0,5 (0,0057-2,8)
n-Tricosan C ₂₃	Sommer	0,15/0,17 (0,019-0,49)	0,12/0,14 (0,007-0,47)	0,035/0,064 (-0,057-0,42)	0,058/0,058 (0,0025-0,19)
	Winter	0,36/0,85 (0,0071-4)	0,82/1,4 (0,066-5)	-0,0069/-0,0064 (-2,1-1,4)	0,39/0,93 (0,0097-5)
n-Tetracosan C ₂₄	Sommer	0,17/0,21 (0,039-0,64)	0,12/0,18 (0,01-0,67)	0,032/0,082 (-0,078-0,64)	0,051/0,062 (0,0032-0,3)
	Winter	0,39/0,73 (0,0034-3)	1/1,5 (0,097-5,1)	0,017/0,048 (-1,9-2)	0,63/1 (0,035-4,7)
n-Pentacosan C ₂₅	Sommer	0,29/0,3 (-0,076-0,97)	0,32/0,37 (0,0094-1,2)	0,19/0,25 (-0,066-0,91)	0,21/0,24 (0,065-0,62)
	Winter	0,41/0,76 (0,066-3,1)	1,7/2,1 (0,11-6,6)	0,063/0,15 (-2-2,7)	0,92/1,3 (0,073-5,2)
n-Hexacosan C ₂₆	Sommer	0,19/0,22 (0,046-0,74)	0,21/0,28 (0,026-0,88)	0,11/0,15 (-0,04-0,73)	0,11/0,13 (0,029-0,46)
	Winter	0,26/0,48 (-0,0069-2,2)	1,3/1,5 (-0,033-4,7)	0,11/0,15 (-1,3-2)	0,73/0,89 (0,076-3,3)
n-Heptacosan C ₂₇	Sommer	0,24/0,29 (-0,38-1,2)	0,69/0,82 (-0,1-2,4)	0,5/0,58 (0,11-1,6)	0,42/0,5 (0,12-1,1)
	Winter	0,38/0,63 (-0,008-2,4)	2,3/2,1 (-0,043-6)	0,18/0,24 (-1,3-2,5)	0,89/1 (0,087-3,8)
n-Octacosan C ₂₈	Sommer	0,12/0,21 (-0,038-1,6)	0,24/0,29 (-0,074-1)	0,13/0,19 (-0,0014-0,69)	0,14/0,16 (0,048-0,33)
	Winter	0,19/0,28 (-0,24-1,4)	1,1/1,2 (-0,26-3,7)	0,11/0,2 (-0,94-2,1)	0,58/0,66 (0,076-2,4)
n-Nonacosan C ₂₉	Sommer	0,38/0,34 (-0,7-1,3)	1,1/1 (-1,2-2,7)	0,6/1,1 (0,13-5,8)	0,71/1,2 (0,23-7)
	Winter	0,51/0,62 (-0,067-2,2)	2,2/2,3 (-0,12-6,1)	0,17/0,25 (-1,5-2,6)	0,9/0,97 (0,086-4)
n-Triacontan C ₃₀	Sommer	0,23/0,24 (0,011-0,65)	0,39/0,46 (0,016-1,1)	0,16/0,2 (-0,0013-0,58)	0,12/0,14 (0,027-0,3)
	Winter	0,23/0,3 (-0,13-1,1)	1,1/1,1 (-0,18-3)	0,092/0,15 (-0,52-1,4)	0,37/0,42 (0,051-1,5)
n-Hentriacontan C ₃₁	Sommer	1/0,91 (-0,065-2,4)	2,9/3,2 (-0,25-7,1)	0,68/1,2 (-1-6,1)	0,49/1 (0,15-6,8)
	Winter	0,8/0,91 (0,17-3,6)	2,8/3 (0,072-7,2)	0,23/0,35 (-0,95-3,4)	0,6/0,66 (0,062-2,6)
n-Dotriacontan C ₃₂	Sommer	0,23/0,25 (-0,011-0,7)	0,45/0,54 (0,058-1,3)	0,091/0,12 (0,0093-0,47)	0,066/0,074 (0,024-0,17)
	Winter	0,16/0,21 (0,04-0,67)	0,49/0,55 (-0,044-1,5)	0,051/0,058 (-0,21-0,49)	0,14/0,19 (0,031-0,71)
n-Triatriacontan C ₃₃	Sommer	0,49/0,5 (0,092-1,3)	1,3/1,5 (0,22-3,6)	0,2/0,38 (-0,0097-1,7)	0,14/0,2 (0,043-0,8)
	Winter	0,35/0,41 (0,12-1,6)	0,93/1 (0,02-2,8)	0,053/0,096 (-0,25-0,88)	0,18/0,24 (0,033-0,92)
n-Tetraatriacontan C ₃₄	Sommer	0,11/0,16 (-0,018-0,58)	0,13/0,14 (-0,18-0,4)	0,064/0,091 (-0,0024-0,42)	0,032/0,044 (0,0046-0,16)
	Winter	0,064/0,072 (-0,19-0,34)	0,11/0,2 (-0,11-0,83)	0,018/0,026 (-0,17-0,27)	0,088/0,12 (0-0,5)
2-Pentadecanon	Sommer	0,039/-0,091 (-2,2-0,54)	0,029/0,077 (-1,9-2,4)	0,042/0,44 (-0,25-4,9)	0,06/0,39 (0,0083-3,6)
	Winter	0,042/0,064 (-0,23-0,47)	0,042/0,086 (-0,12-0,37)	0,003/-0,014 (-0,35-0,23)	0,047/0,091 (0-0,45)
2-Hexadecanon	Sommer	0,0088/0,016 (-0,029-0,12)	0,0083/0,016 (-0,037-0,11)	0,017/0,019 (-0,0032-0,063)	0,02/0,029 (0-0,12)
	Winter	0,011/0,042 (0-0,23)	0,021/0,043 (-0,021-0,2)	0/-0,0042 (-0,13-0,1)	0,018/0,029 (0-0,14)
2-Heptadecanon	Sommer	0,047/-0,14 (-2,7-0,56)	0,02/0,19 (-3,4-4,5)	0,14/0,83 (-0,43-7,5)	0,08/0,63 (0,005-6,2)
	Winter	0,048/0,11 (-0,08-0,9)	0,054/0,12 (-0,073-0,55)	0/-0,023 (-0,37-0,21)	0,034/0,089 (0-0,54)
2-Octadecanon	Sommer	0,0035/0,0064 (-0,014-0,048)	0,0048/0,01 (-0,034-0,074)	0,013/0,014 (-0,0057-0,048)	0,013/0,014 (0-0,047)
	Winter	0,0044/0,02 (-0,022-0,21)	0,0049/0,029 (-0,04-0,28)	0,00079/0,0048 (-0,021-0,085)	0,0023/0,0084 (0-0,037)
2-Nonadecanon	Sommer	0,027/0,039 (-0,17-0,45)	0,011/0,052 (-0,27-0,46)	0,057/0,067 (-0,066-0,21)	0,025/0,051 (0-0,3)
	Winter	0,016/0,063 (-0,05-0,71)	0,052/0,1 (-0,0082-0,48)	0/-0,008 (-0,24-0,12)	0,0041/0,031 (0-0,29)

Im Winter wurde das höchste Inkrement entweder auf Stufe 1 oder Stufe 2 (0,05-0,42 µm) an LMI festgestellt, wohingegen der höchste Zuwachs an EIB auf Stufe 3 (0,42-1,2 µm) zu beobachten war. Im Gegensatz zu LMI wurden hier positive Inkremente außerdem für längere n-Alkane berechnet. Diese Beobachtungen legen nahe, dass der EIB-Standort im Vergleich zur LMI-Station im Winter stärker durch andere anthropogene n-Alkan-Quellen, die ihre Ursprünge nicht im Verkehr haben, belastet war – wahrscheinlich Quellen, die sich aus der Beheizung von Wohnräumen durch Haushalte vor Ort ergeben.

3.5.8 PAK

PAK zeigten ähnliche Trends wie die n-Alkane. In Hinblick auf die Lenschow-Inkremente ergaben sich im Winter die ausgeprägtesten Werte für EIB, gefolgt von LMI (Tabelle 24 und Abbildung 52).

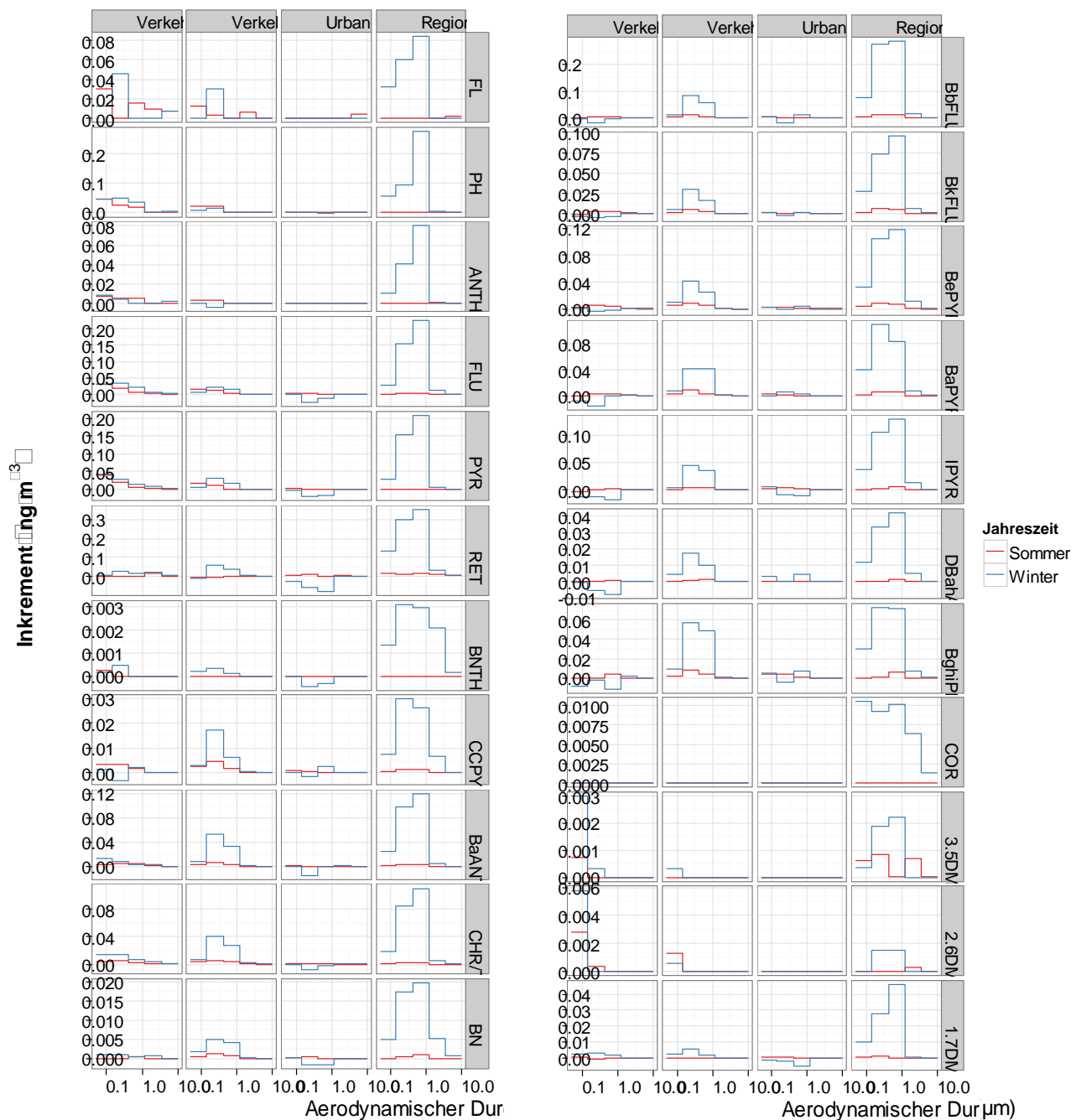


Abbildung 52: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der PAK (ng m^{-3}) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

Es bestanden keine signifikanten Unterschiede in den PAK-Konzentrationen an der TRO- und MEL-Station, ähnlich den für n-Alkan gemessenen Konzentrationen. Es ist anzumerken, dass die Muster der PAK-Konzentrationen nicht für alle gemessenen PAK gleich sind. Kleinere PAK wie Fluor, Phenanthren, Anthracen, Fluoranthren und Pyren zeigten deutliche Inkremente auf Stufe 1 am Standort LMI, wohingegen dies für größere PAK nicht beobachtet wurde. Demgegenüber wiesen an EIB größere PAK ausgeprägtere Inkremente auf

als kleinere PAK. Außerdem traten die maximalen Inkremente in EIB auf Stufe 2 auf. Weil Emissionsmuster von PAK stark durch die Art der Verbrennungsquellen und -bedingungen beeinflusst werden können, können die Unterschiede in den Inkrementmustern von PAK nicht als Indikator für eine bestimmte Quelle angesehen werden. Allerdings deuten die größenabhängigen Inkremente darauf hin, dass der LMI-Standort stärker durch frische Emissionsquellen wie Fahrzeugabgase beeinflusst war, während an EIB Heizungsemissionen eine übergeordnete Rolle spielten, wie dies auch für die n-Alkane festgestellt wurde.

Tabelle 24: PM₁₀-Konzentrationen der PAK (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Fluoren	Sommer	0,1/0,11 (-0,062-0,47)	0,039/0,074 (-0,066-0,34)	0,011/0,037 (-0,041-0,24)	0,017/0,023 (0-0,12)
	Winter	0,15/0,32 (-0,74-1,8)	0,088/0,2 (-0,21-1,2)	0/-0,13 (-3,1-0,81)	0,18/0,76 (0-5,5)
Phenanthren	Sommer	0,076/0,12 (0,0094-0,36)	0,051/0,059 (-0,07-0,24)	0/0,025 (-0,021-0,22)	0,00028/0,016 (0-0,2)
	Winter	0,17/0,62 (-1,4-4)	0,0028/0,042 (-1,3-1,6)	-0,0044/-0,22 (-3,8-2,3)	0,36/1,6 (0-7)
Anthracen	Sommer	0,016/0,025 (-0,011-0,072)	0,0064/0,015 (-0,045-0,096)	0,0036/0,01 (-0,0083-0,054)	0,0033/0,0086 (0-0,057)
	Winter	0,024/0,074 (-0,39-0,81)	0,0028/-0,06 (-0,56-0,24)	-0,00085/-0,051 (-1,1-0,74)	0,13/0,39 (0-1,8)
Fluoranthren	Sommer	0,056/0,073 (0,0065-0,24)	0,028/0,033 (-0,025-0,11)	0,002/0,011 (-0,023-0,093)	0,0031/0,023 (0-0,3)
	Winter	0,15/0,86 (-0,22-6,7)	0,056/0,51 (-0,3-3,4)	-0,045/-0,093 (-3,2-2,7)	0,4/1,5 (0,0035-6,7)
Pyren	Sommer	0,074/0,089 (0,013-0,25)	0,038/0,041 (-0,0029-0,15)	0,00043/0,0093 (-0,016-0,12)	0,0017/0,02 (0-0,28)
	Winter	0,15/0,63 (-0,16-4,9)	0,049/0,47 (-0,15-2,8)	-0,045/-0,087 (-2,7-2,1)	0,42/1,3 (0,0051-5,8)
Reten	Sommer	0,028/0,047 (-0,23-0,79)	-0,0053/0,018 (-0,12-0,33)	0,027/0,054 (-0,068-0,62)	0,066/0,12 (0-0,71)
	Winter	0,015/0,6 (-0,43-5,6)	0,075/0,73 (-0,16-5,2)	-0,14/-0,39 (-3,7-0,65)	0,77/1,5 (0,07-7,1)
Benzo(b)naphtha(1,2-d)thiophen	Sommer	0,0002/0,00035 (-0,0059-0,011)	0/-0,000013 (-0,018-0,014)	0/-0,000029 (-0,032-0,019)	0,00056/0,0037 (0-0,034)
	Winter	0,00064/0,018 (-0,052-0,29)	0,0014/0,013 (-0,023-0,13)	0/-0,007 (-0,12-0,031)	0,0098/0,047 (0,001-0,24)
Cyclopenta(cd)pyren	Sommer	0,0087/0,007 (-0,08-0,044)	0,0077/0,012 (-0,0062-0,042)	0,0012/0,0098 (-0,014-0,18)	0,0041/0,0074 (0-0,074)
	Winter	0,0091/0,063 (-0,19-0,84)	0,066/0,14 (-0,013-0,77)	0,0013/-0,0084 (-0,19-0,18)	0,077/0,16 (0,0067-0,68)
Benz(a)anthracen	Sommer	0,013/0,016 (-0,075-0,065)	0,015/0,024 (-0,004-0,13)	0,0042/0,019 (-0,0074-0,3)	0,0085/0,02 (0-0,23)
	Winter	0,038/0,28 (-0,63-3,6)	0,13/0,4 (-0,16-2,5)	-0,023/-0,071 (-1,6-0,72)	0,27/0,8 (0,027-3,8)
Chrysene/Triphenylen	Sommer	0,013/0,016 (-0,043-0,087)	0,017/0,021 (0,00061-0,098)	0,0038/0,013 (-0,011-0,19)	0,0072/0,015 (0-0,15)
	Winter	0,04/0,24 (-0,081-2,3)	0,09/0,28 (-0,086-1,5)	-0,019/-0,031 (-1,1-0,62)	0,23/0,57 (0,021-2,6)
2,2'-Binaphthyl	Sommer	0,0012/0,000086 (-0,013-0,0063)	0,0036/0,0033 (-0,011-0,016)	0,00093/0,0033 (-0,0031-0,037)	0,0015/0,0029 (0-0,022)
	Winter	0,0047/0,028 (-0,034-0,36)	0,023/0,043 (-0,022-0,25)	-0,002/-0,011 (-0,16-0,066)	0,043/0,093 (0,01-0,37)
Benzo(b)fluoranthren	Sommer	0,014/0,0075 (-0,34-0,11)	0,034/0,056 (-0,0054-0,34)	0,014/0,053 (-0,033-0,75)	0,035/0,073 (0,006-0,62)
	Winter	-0,0063/0,46 (-0,48-6,7)	0,33/0,74 (-0,32-4,3)	0,018/-0,089 (-2,5-0,95)	0,7/1,5 (0,085-6,3)
Benzo(k)fluoranthren	Sommer	0,0053/0,0038 (-0,1-0,066)	0,012/0,016 (-0,0042-0,097)	0,0054/0,016 (-0,011-0,22)	0,016/0,026 (0,0024-0,19)
	Winter	0,00081/0,15 (-0,19-1,7)	0,06/0,21 (-0,093-1,2)	0,0035/-0,004 (-0,81-0,28)	0,19/0,43 (0,027-1,9)
Benz(e)pyren	Sommer	0,012/0,014 (-0,12-0,1)	0,025/0,032 (-0,0029-0,15)	0,011/0,027 (-0,012-0,34)	0,021/0,036 (0,0046-0,26)
	Winter	0,0056/0,17 (-0,17-2,6)	0,16/0,31 (-0,096-1,8)	-0,0028/-0,037 (-0,99-0,4)	0,28/0,56 (0,037-2,5)
Benz(a)pyren	Sommer	0,0093/-0,0022 (-0,32-0,047)	0,013/0,026 (-0,0052-0,069)	0,0046/0,032 (-0,02-0,52)	0,013/0,033 (0,0029-0,33)
	Winter	-0,007/0,15 (-0,59-3,4)	0,21/0,33 (-0,17-2,3)	-0,0079/-0,04 (-1,1-0,68)	0,23/0,59 (0,028-2,6)
Indeno(1,2,3-cd)pyren	Sommer	0,0018/-0,015 (-0,32-0,022)	0,0064/0,022 (-0,022-0,11)	0,011/0,031 (-0,022-0,43)	0,0088/0,034 (0-0,34)
	Winter	-0,046/0,11 (-0,29-2,8)	0,099/0,27 (-0,15-1,8)	-0,023/-0,052 (-0,87-0,27)	0,26/0,54 (0,046-2,2)
Dibenzo(ah)anthracen	Sommer	0,00057/-0,0015 (-0,049-0,0054)	0,005/0,0055 (-0,0049-0,019)	0,0004/0,0045 (-0,0059-0,074)	0,0023/0,007 (0-0,067)
	Winter	-0,0084/0,019 (-0,27-0,82)	0,027/0,079 (-0,049-0,54)	0,0019/-0,015 (-0,28-0,092)	0,08/0,16 (0,012-0,62)
Benzo(ghi)perylen	Sommer	0,0084/-0,0029 (-0,19-0,022)	0,014/0,025 (-0,02-0,095)	0,0076/0,024 (-0,021-0,34)	0,0083/0,026 (0-0,26)
	Winter	-0,02/0,092 (-0,28-2,1)	0,096/0,23 (-0,099-1,4)	-0,0055/-0,035 (-0,64-0,18)	0,17/0,37 (0,039-1,6)
Coronen	Sommer	0/-0,0006 (-0,0091-0)	0/0,00066 (-0,00096-0,015)	0/0,00066 (-0,00038-0,014)	0/0,00018 (0-0,0039)
	Winter	0/0,0099 (-0,04-0,3)	0/0,015 (-0,04-0,22)	0/0,0076 (-0,048-0,19)	0,062/0,071 (0,0093-0,25)
3,5-Dimethylphenanthren	Sommer	0,00084/0,0019 (-0,0023-0,008)	0,000036/0,0011 (-0,005-0,006)	0/0,00011 (-0,0024-0,003)	0,0026/0,002 (0-0,0078)
	Winter	0,0067/0,031 (-0,013-0,28)	0,00034/0,015 (-0,016-0,14)	0/-0,006 (-0,17-0,15)	0,0046/0,058 (0-0,28)
2,6-Dimethylphenanthren	Sommer	0,0041/0,0053 (-0,00078-0,02)	0,0022/0,0029 (-0,0076-0,012)	0/0,00047 (-0,0034-0,0048)	0,00029/0,0031 (0-0,013)
	Winter	0,0087/0,035 (-0,034-0,28)	0,00028/0,014 (-0,06-0,14)	0/-0,0038 (-0,19-0,24)	0,0028/0,068 (0-0,33)
1,7-Dimethylphenanthren	Sommer	-0,000046/-0,0019 (-0,039-0,0086)	-0,00044/0,0013 (-0,023-0,03)	0,00042/0,0081 (-0,0066-0,065)	0,0029/0,008 (0-0,072)
	Winter	0,011/0,067 (-0,049-0,71)	0,013/0,054 (-0,047-0,36)	-0,0074/-0,041 (-0,58-0,08)	0,082/0,17 (0,0017-1)
9H-Fluorenon	Sommer	0,041/0,063 (-0,0039-0,24)	0,028/0,16 (-0,048-2,8)	0,01/0,022 (-0,0097-0,11)	0,011/0,017 (0-0,094)
	Winter	0,11/0,22 (-0,56-1,3)	0,012/0,12 (-0,44-0,94)	0,0016/-0,058 (-1,5-0,84)	0,31/0,7 (0,05-3,2)
9,10-Anthracendion	Sommer	0,033/0,037 (-0,0045-0,13)	0,013/0,028 (-0,0042-0,11)	0,011/0,021 (-0,0099-0,14)	0,0038/0,016 (0-0,16)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
	Winter	0,1/0,58 (-0,28-5,4)	0,05/0,39 (-0,64-2,8)	-0,027/-0,041 (-2,3-2,1)	0,31/1,1 (0,016-5,2)
1,2-Benzanthraquinon	Sommer	0/-0,00042 (-0,085-0,026)	0/0,009 (-0,0059-0,068)	0/0,013 (-0,0091-0,17)	0/0,0078 (0-0,13)
	Winter	0,0081/0,062 (-0,72-0,97)	0,068/0,11 (-0,5-0,89)	-0,031/-0,0068 (-0,49-0,35)	0,25/0,39 (0,012-1,5)

3.5.9 Hopane

Die für Hopane festgestellten Trends (Abbildung 53 und Tabelle 25) ähnelten den Trends von n-Alkanen und PAK. Die Inkremente am Standort EIB waren ausgeprägter als am Standort LMI und die größenabhängigen Inkremente zeigten dieselben Muster wie PAK. Dies ist mit den aus n-Alkanen und PAK abgeleiteten möglichen Emissionsquellen der Stationen konsistent.

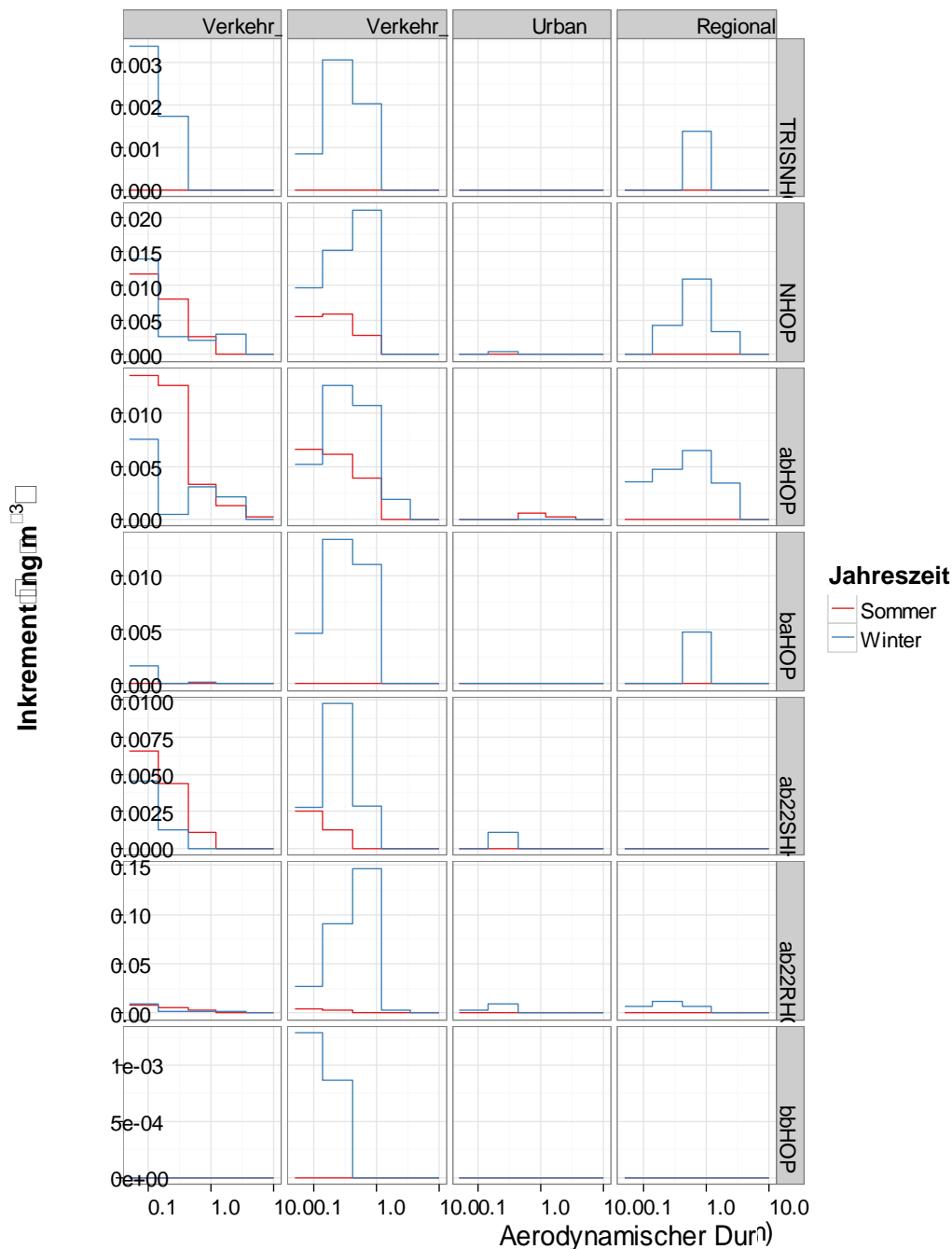


Abbildung 53: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Hopane (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

Tabelle 25: PM₁₀-Konzentration der Hopane (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Minimum-Maximum)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
alpha, alpha, alpha-20R-Cholestan	Sommer	0/0,0011 (0-0,0066)	0/0,00023 (0-0,002)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
	Winter	0/0,0039 (0-0,04)	0/0,00035 (0-0,0064)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
17alpha(H)-22,29,30-Trisnorhopan	Sommer	0,0035/0,0057 (0-0,029)	0/0,0026 (0-0,01)	0/0,00073 (-0,00051-0,0074)	0/0,00021 (0-0,0039)
	Winter	0,011/0,025 (-0,13-0,25)	0,027/0,058 (-0,073-0,34)	0/-0,0029 (-0,21-0,18)	0,0014/0,043 (0-0,34)
17alpha(H),21beta(H)-30-Norhopan	Sommer	0,024/0,029 (-0,0049-0,079)	0,016/0,018 (-0,00059-0,058)	0,0025/0,0022 (-0,032-0,024)	0/0,005 (0-0,037)
	Winter	0,027/0,034 (-0,14-0,16)	0,071/0,095 (-0,018-0,41)	0,0038/0,011 (-0,11-0,15)	0,027/0,082 (0-0,38)
17alpha(H),21beta(H)-Hopan	Sommer	0,031/0,036 (0-0,091)	0,014/0,022 (-0,0015-0,069)	0,0024/0,005 (-0,02-0,041)	0,0014/0,0056 (0-0,039)
	Winter	0,032/0,052 (-0,076-0,21)	0,047/0,093 (0-0,34)	0/-0,0074 (-0,13-0,095)	0,019/0,068 (0-0,29)
17beta(H),21alpha(H)-Hopan	Sommer	0/0,0018 (0-0,012)	0,0016/0,0017 (0-0,005)	0/0,00022 (-0,0039-0,0081)	0/0,00069 (0-0,0061)
	Winter	0,0017/0,02 (-0,02-0,22)	0,053/0,072 (0-0,24)	-0,0053/-0,012 (-0,1-0,054)	0,0099/0,035 (0-0,23)
17alpha(H),21beta(H),22S-Homohopan	Sommer	0,013/0,018 (0-0,047)	0,0076/0,0097 (-0,00019-0,037)	0/0,0023 (-0,023-0,019)	0/0,002 (0-0,026)
	Winter	0,01/0,011 (-0,076-0,051)	0,019/0,042 (0-0,16)	0/-0,0048 (-0,13-0,024)	0,0044/0,022 (0-0,2)
17alpha(H),21beta(H),22R-Homohopan	Sommer	0,015/0,02 (0-0,06)	0,012/0,013 (-0,0016-0,044)	0/0,0039 (-0,024-0,037)	0/0,003 (0-0,027)
	Winter	0,022/0,024 (-0,099-0,24)	0,33/0,34 (-0,032-1,2)	0,02/0,024 (-0,14-0,18)	0,039/0,057 (0-0,25)
17beta(H),21beta(H)-Hopan	Sommer	0/0,00055 (-0,0031-0,0084)	0/0,00051 (-0,0031-0,0069)	0/0,000076 (-0,0025-0,0045)	0/0,00036 (0-0,0056)
	Winter	0/0,00065 (-0,011-0,0088)	0,0053/0,018 (-0,01-0,063)	0/0,00072 (-0,0052-0,011)	0/0,0011 (0-0,015)
Hop-17(21)-en	Sommer	0/0,00029 (0-0,006)	0/0,00033 (0-0,0068)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
	Winter	0/-0,001 (-0,023-0,0029)	0,018/0,046 (0-0,19)	0/0,0012 (0-0,023)	0/0 (0-0)

3.5.10 Metalle

In Abbildung 54 sind die größen aufgelösten Konzentrationsinkremente für die Summe der bestimmten Spurenmetalle für jeden Messstandort gezeigt.

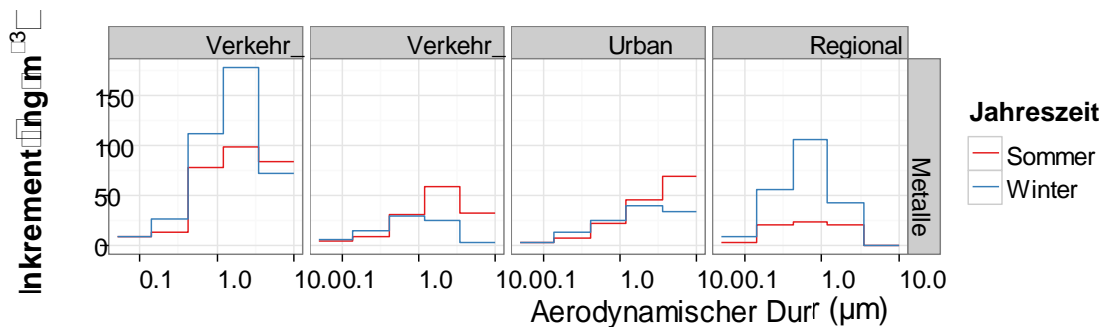


Abbildung 54: Größenaufgelöste Mediane der Summenkonzentrationen der Spurenmetalle (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

Es zu sehen, dass Verkehr signifikant zu den in LMI und EIB gemessenen Spurenmetallkonzentrationen beigetragen hat, wie dies von den meisten Spurenmetallen, die in groben Partikeln gefunden werden, zu erwarten ist.

An LMI wurden im Winter höhere Konzentrationen beobachtet als im Sommer, während an EIB im Sommer geringfügig höhere Konzentrationen im Winter als im Sommer auftraten. Im urbanen Hintergrund traten im Sommer höhere Inkremente als im Winter auf. Abbildung 55 zeigt die größen aufgelösten Inkremente der einzelnen Metalle im Sommer und im Winter. Aus Abbildung 55 ergibt sich, dass Fe und Ca die Spurenelemente mit den höchsten Inkrementen darstellten und den überwiegenden Teil (etwa 70 %) zu den an den Verkehrs-

stationen (LMI, EIB) und am Standort im urbanen Hintergrund (TRO) beobachteten höheren Inkrementen beitragen.

Aluminium wurde an den Verkehrsstationen und an der Station im urbanen Hintergrund angereichert, wobei im Sommer höhere Konzentrationen gemessen wurden, wahrscheinlich bedingt durch die günstigen Bedingungen für Aufwirbelung von Straßenstaub.

Die höheren Konzentrationen wurden vorwiegend in den groben Partikeln beobachtet, was die Annahme bestätigt, dass sie sich wahrscheinlich aus Krustenmaterial ergaben. K hingegen zeigte im Winter im Gegensatz zum Sommer sehr geringe urbane Inkremente. Die geringen Inkremente im urbanen Hintergrund und an den Verkehrsstationen weisen darauf hin, dass sowohl regionale Aktivität als auch Ferntransport und andere Verbrennungsprozesse in höherem Maße zur gemessenen Konzentration beitragen.

Ähnlich den für Al gemessenen Konzentrationen wurden die Konzentrationen für Ca, Ti, Mn, Co, Sr und Fe sowohl an den Standorten im urbanen Hintergrund als auch an den Verkehrsstationen angereichert, wobei im Sommer höhere Inkremente festgestellt wurden als im Winter; mit Ausnahme der LMI-Verkehrsstation, an der im Winter höhere Inkremente von Fe und Mn zu beobachten waren als im Sommer.

Fe zeigte die höchste Anreicherung, wobei im Sommer und auch im Winter urbane Aktivität etwa 20 % und mit Verkehr verbundene Aktivität etwa 70 % der gemessenen Fe-Konzentrationen ausmachten. Die höchste Anreicherung von Fe wurde in der groben Partikelfraktion gefunden, was darauf hindeutet, dass es sich bei letzteren wahrscheinlich um Fe-Partikel handelt, die aus mechanischen Prozessen stammen, wie z. B. aus Straßen- oder Bodenstaub und auch Bremsbelagverschleiß (MORENO et al. 2011; AMATO et al. 2011). Ca-, Sr- und Ti-Anreicherungen waren durch Verkehr bestimmt, der zu beiden Jahreszeiten einen Anteil von etwa 50 % zu ihrer Konzentration beitrug. Urbane Aktivität trug im Sommer einen Teil von etwa 35 % zu ihrer Konzentration bei, im Winter einen Teil von etwa 25 %. Zu den Mn-Konzentrationen trug Verkehr im Winter einen Teil von etwa 50 % bei, im Sommer von etwa 35 %; urbane Aktivitäten trugen im Winter einen Teil von 20 % und im Sommer einen Teil von 45 % zu den Mn-Konzentrationen bei. Co-Konzentrationen ergaben sich vorwiegend aus urbaner Aktivität und Verkehrsaktivität, wobei Verkehr im Sommer einen größeren Teil ausmachte. Regionale Aktivitäten trugen einen Teil von weniger als 25 % zu den für diese Spurenmetalle gemessenen Konzentrationen bei und ähnlich den Fe-Konzentrationen ergab sich die verstärkte Zunahme aus groben Partikeln, was weiterhin darauf hindeutet, dass hier Emissionen vorwiegend aus mechanischen Prozessen stammen.

Auch für Ba, Cu, Sb und Sn ergaben sich höhere Konzentrationen eher aus urbaner Aktivität und Verkehrsaktivität als aus regionaler Aktivität. Urbane und verkehrsbezogene Aktivität machten etwa 95 % der Emissionen dieser Metalle aus. Verkehrsaktivität trug zu beiden Jahreszeiten einen Teil von durchschnittlich 75 % zu den gemessenen Konzentrationen bei, während urbane Aktivität einen Teil von weniger als 20 % beitrug, wobei im Sommer ein vergleichsweise höherer Beitrag von urbaner Aktivität bestand als im Winter. Diese Metalle wurden überwiegend in groben Partikeln beobachtet, was darauf hinweist, dass sie sich in erster Linie aus mechanischen Prozessen ergaben. Für die erhöhten Konzentrationen dieser Spurenmetalle an Verkehrsstationen ist Bremsverschleiß wahrscheinlich (MORENO et al. 2011; PANT & HARRISON 2013).

Auch für die Ni- und Cr-Konzentrationen kann ein wesentlicher Beitrag durch urbane und verkehrsbezogene Aktivität abgeleitet werden. Etwa 85 % der Cr-Konzentrationen und 65 % der Ni-Konzentrationen konnten durch diese Faktoren erklärt werden, wobei Verkehrsaktivität ein höherer Beitrag als urbaner Aktivität zugeschrieben werden kann. Diese Metalle sind in der groben PM-Fraktion angereichert. Metallurgische, industriell-

le Prozesse (MINGUILLON et al. 2007 und 2014; MORENO et al. 2011) und auch Abrieb von Straßenbahnen könnten für ihre höheren Konzentrationen an den Verkehrsstationen und am Standort im urbanen Hintergrund verantwortlich sein.

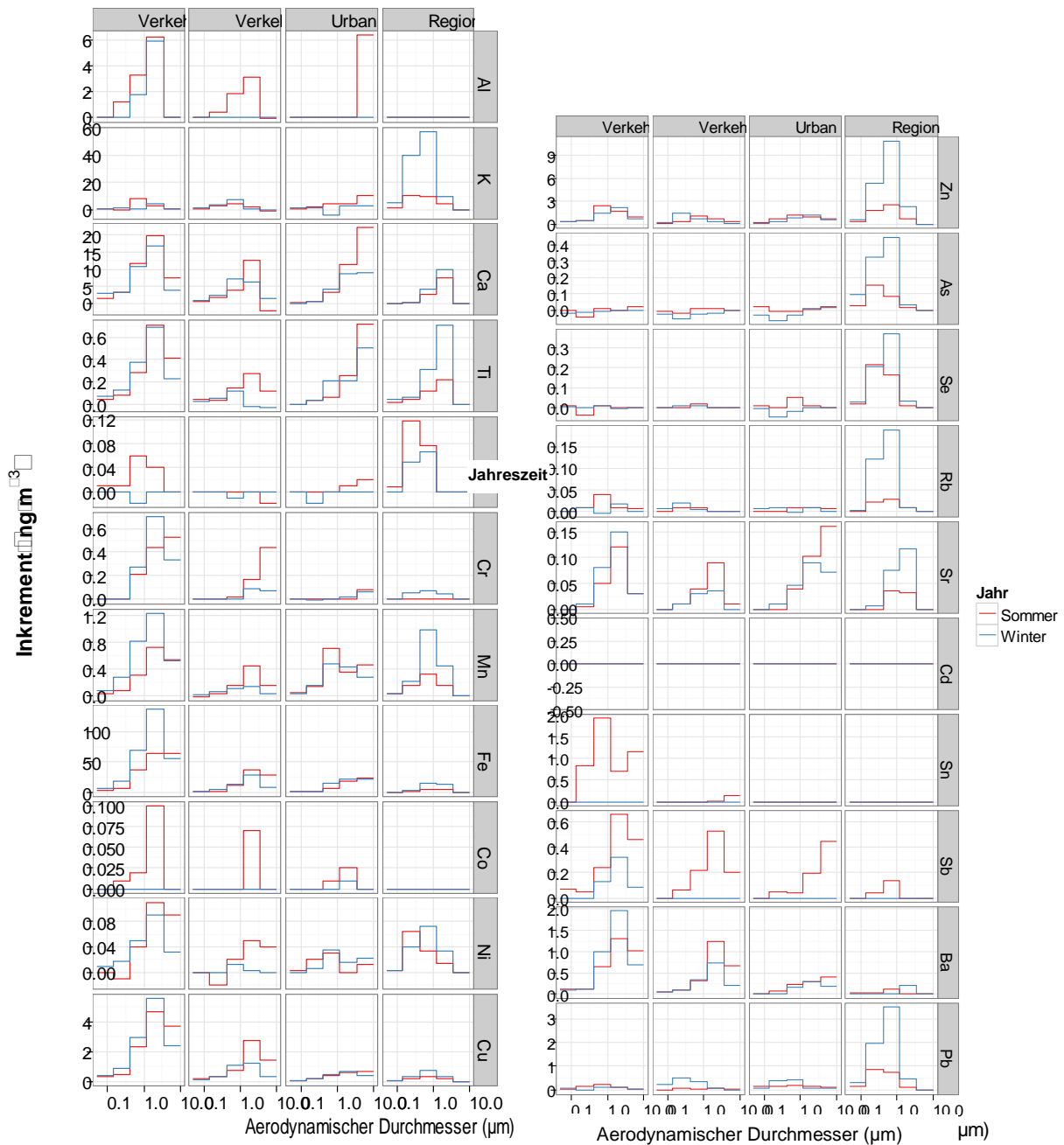


Abbildung 55: Größenaufgelöste Mediane der Konzentrationen der Spurenmetalle (ng m^{-3}) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen für Sommer und Winter

Tabelle 26: PM₁₀-Konzentrationen der Spurenmetalle (ng m⁻³) im regionalen Hintergrund (MEL) und Inkremente der städtischen Stationen, angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

		Verkehr_LMI	Verkehr_EIB	Urban	Regional
Al	Sommer	9,2/51 (-56-857)	4,6/6 (-26-33)	8/11 (-55-75)	4,7/10 (0-63)
	Winter	11/15 (-15-65)	0/-3 (-91-37)	4,2/9,5 (-2,6-73)	0/10 (0-112)
K	Sommer	18/43 (-42-686)	8/9,3 (-44-45)	20/23 (-33-108)	30/42 (12-127)
	Winter	11/15 (-74-237)	7,3/8,2 (-60-47)	2,3/5,1 (-58-77)	118/133 (21-314)
Ca	Sommer	44/260 (-74-4691)	25/25 (-69-75)	34/38 (-2,1-130)	12/24 (2,4-94)
	Winter	42/46 (5,3-127)	23/29 (-6,4-129)	24/27 (-5-97)	16/25 (5-112)
Ti	Sommer	1,4/4,5 (-2,9-55)	0,43/0,74 (-2,1-4,9)	1/1,5 (-1,1-1,6)	0,59/0,88 (0,06-3,2)
	Winter	1,6/2 (-0,45-5,6)	0,01/0,02 (-4-2,3)	0,86/1,1 (-0,57-3,5)	1,2/1,7 (0,1-1,8)
V	Sommer	0,14/0,41 (-0,01-3,6)	-0,01/0,01 (-0,15-0,51)	0,05/0,05 (-0,05-0,2)	0,24/0,24 (0,05-0,46)
	Winter	-0,03/-0,03 (-0,21-0,19)	-0,03/-0,04 (-0,21-0,13)	-0,01/-0,02 (-0,56-0,17)	0,13/0,33 (0-2)
Cr	Sommer	0,96/1,5 (-0,51-4,6)	0,68/0,84 (-0,28-2,3)	0,12/0,23 (-0,81-1,2)	0,004/0,12 (0-1)
	Winter	1,7/1,6 (0-4,8)	0,21/0,18 (-1,1-1,6)	0,16/-0,13 (-2,6-2,5)	0,5/1 (0-4)
Mn	Sommer	1,2/3,4 (-2,3-35)	0,55/0,68 (-2,8-3,4)	1,7/2,3 (-0,23-8,6)	0,77/1,2 (0,19-3,9)
	Winter	3,2/3 (0,4-5,9)	0,38/0,68 (-0,51-4,4)	1,4/1,8 (-0,91-6)	1,7/1,8 (0,34-4,3)
Fe	Sommer	215/269 (-103-1490)	88/97 (-119-292)	58/98 (-99-446)	16/31 (4,3-222)
	Winter	324/307 (26-836)	45/63 (-18-196)	64/92 (21-350)	40/41 (9,4-131)
Co	Sommer	0,16/0,2 (-0,17-0,71)	0,07/0,11 (-0,18-0,49)	0,03/0,07 (-0,03-0,5)	0,01/0,02 (0-0,06)
	Winter	0/-0,01 (-0,07-0,06)	0,02/0,02 (-0,04-0,1)	0,01/0,02 (-0,02-0,1)	0/0,01 (0-0,07)
Ni	Sommer	0,23/0,33 (-0,27-1,9)	0,11/0,09 (-0,35-0,47)	0,07/0,17 (-0,10-0,64)	0,15/0,16 (0,06-0,37)
	Winter	0,22/0,09 (-1,7-0,67)	0,012/-0,17 (-1,9-0,38)	0,09/0,35 (-0,16-2,1)	0,18/0,24 (0,04-0,68)
Cu	Sommer	14/13 (-3,2-40)	5,3/6,9 (-3,7-17)	1,6/2,4 (-6,7-9,4)	0,75/1,4 (0,2-11)
	Winter	13/13 (1,7-38)	2,8/4,1 (-0,01-10)	1,8/3 (-0,054-16)	1,9/1,9 (0,33-4,8)
Zn	Sommer	6,3/6,8 (-14-21)	2,9/2,9 (-16-14)	4,1/5,6 (-5-22)	6,7/7,6 (1,9-17)
	Winter	3,9/5,8 (-7,2-50)	0,81/10 (-10-106)	3,2/6,6 (-11-24)	21/25 (2,9-70)
As	Sommer	-0,03/-0,02 (-0,8-0,47)	0,03/-0,012 (-0,8-0,44)	-0,04/0,03 (-0,53-1,3)	0,28/0,47 (0-1,4)
	Winter	-0,09/-0,14 (-1,1-1,4)	-0,16/-0,26 (-0,97-0,47)	-0,09/0,13 (-0,58-3,5)	0,9/1,6 (0,14-4,6)
Se	Sommer	0,02/-0,03 (-1,1-0,65)	0,02/-0,03 (-1,1-0,17)	0,04/0,12 (-0,2-1,1)	0,42/0,45 (0,095-1,1)
	Winter	0,007/0,03 (-0,16-0,49)	0,01/-0,01 (-0,23-0,23)	-0,09/-0,07 (-0,51-0,34)	0,61/0,66 (0,13-1,4)
Rb	Sommer	0,06/0,19 (-0,09-2,4)	0,02/0,03 (-0,02-0,12)	0,04/0,03 (-0,48-0,25)	0,06/0,13 (0,003-0,72)
	Winter	0,03/0,05 (-0,33-0,81)	0,04/0,02 (-0,24-0,26)	-0,002/0,04 (-0,13-0,46)	0,32/0,38 (0,04-1,1)
Sr	Sommer	0,22/1,6 (-0,56-30)	0,16/0,17 (-0,43-0,54)	0,3/0,32 (0,05-0,63)	0,09/0,18 (0-0,93)
	Winter	0,33/0,32 (-0,14-1)	0,05/0,08 (-0,11-0,34)	0,22/0,25 (0,027-0,66)	0,21/0,33 (0,05-1,2)
Cd	Sommer	0,03/0,41 (-0,42-8,4)	0/-0,01 (-0,42-0,29)	0,05/0,09 (-0,08-0,44)	0/0,007 (0-0,08)
	Winter	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)	0/0 (0-0)
Sn	Sommer	6,9/12 (0-130)	0,32/0,91 (-1,6-6,2)	0/-0,3 (-2,4-0,18)	0,05/0,46 (0-3,7)
	Winter	0/0,35 (-5,8-4,4)	0/-0,36 (-4,6-0,38)	0/0,11 (-0,56-1,2)	0/0,4 (0-7,4)
Sb	Sommer	1,3/5,6 (-2,3-92)	0,9/1,1 (-2-3)	0,81/0,98 (-0,34-4,1)	0,33/0,49 (0-1,9)
	Winter	0,49/0,76 (0-2,4)	0,13/0,38 (-0,45-3,6)	0/0,13 (-0,18-1)	0/0,038 (0-0,21)
Ba	Sommer	3,3/4,5 (-1,8-19)	2,1/2,7 (-1,6-6,7)	1,2/1,3 (-1-4,2)	0,19/0,44 (0,05-2)
	Winter	4,2/4,6 (1,1-13)	1,3/1,7 (0,02-7)	0,72/1,2 (-0,002-4,9)	0,29/0,32 (0-1,2)
Pb	Sommer	0,3/0,45 (-5,7-9,1)	0,21/-0,01 (-5,8-3,5)	1,1/0,52 (-28-9,9)	1,9/4,1 (0,04-30)
	Winter	0,33/0,94 (-2,8-20)	1,3/4,8 (-2,6-39)	0,9/1,9 (-2,7-10)	7,1/9,1 (0,59-25)

Verkehr trug im Sommer einen Teil von etwa 35 % und im Winter einen Anteil von etwa 10 % zu den für Zn, K und Rb ermittelten Konzentrationen bei, während urbane Aktivität etwa 25 % im Sommer und weniger als 5 % im Winter ausmachte. Regionale Aktivität trug zu den für diese Metalle gemessenen Konzentrationen einen Teil von über 40 % im Sommer und 70 % im Winter bei.

Diese Metalle waren sowohl in der feinen als auch in der groben Partikelfraktion angereichert, was ein Indiz dafür ist, dass eine Kombination aus verschiedenen Quellen, wie Biomasseverbrennung und Resuspension/Aufwirbelung von Straßenstaub oder Reifenverschleiß, zu den Emissionen beitrug. Demgegenüber trug regionale Aktivität zu beiden Jahreszeiten einen Anteil von über 85 % der für Pb, As, Se, und V ermittelten Konzentrationen bei, während weniger als 5 % auf Verkehr und etwa 10 % auf urbane Aktivität zurückgeführt werden kann. Am häufigsten wurde die Konzentrationszunahme im feinen Partikelmode beobachtet, was darauf hindeutet, dass ihre Quellen wahrscheinlich in Verbrennungsprozessen liegen. V stellt einen guten Indikator für Ölverbrennung als Quelle dar, während As, Se und Pb oft bei der Kohleverbrennung ausgestoßen werden (PACYNA & PACYNA 2001; XIE et al. 2006).

3.5.11 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Quellbeiträge mittels des Lenschow-Ansatzes berechnet und damit die sich aus den Stationsvergleichen schon abzeichnenden Konzentrationsunterschiede genauer untersucht. Die Ergebnisse untermauern die in Kapitel 3.3 gemachten Aussagen und quantifizieren die Beiträge aus Emissionen des urbanen Hintergrundes und Verkehrsemissionen. Von besonderem Interesse sind hier die Verkehrsbeiträge an LMI und EIB, die für die PM₁₀-Partikelmasse im Mittel (Median) bei ca. 3–4 µg m⁻³ im Sommer und ca. 3–6 µg m⁻³ im Winter lagen. Für den gesundheitlich besonders bedenklichen Ruß (EC) lagen diese Werte bei ca. 1 µg m⁻³ in beiden Jahreszeiten.

Die Ergebnisse des Lenschow-Ansatzes werden in Kapitel 3.8 mit denen anderer Quellzuordnungsansätze verglichen.

3.6 Quellbeiträge aus Markerverbindungen

3.6.1 Vorbemerkungen

Im folgenden Abschnitt wird zunächst ein einfaches Verfahren der Kohlenstoffbilanzierung auf den Datensatz des Projektes angewendet, das in der Projektauswertung des Jahres 2000 ebenfalls zur Anwendung kam (BRÜGGEMANN et al. 2000). Es erlaubt daher einen Vergleich mit den damaligen Ergebnissen.

Anschließend werden die Beiträge verschiedener Quellgruppen zur PM-Konzentration aus chemischen Markerverbindungen abgeleitet. Hierzu gibt es etablierte Verfahren zum Biomasseverbrennungsanteil, zu primärem biologischem Material aus Pilzsporen, zur Berechnung des Krustenmaterials und zur Abschätzung der Emissionen aus Bremsabrieb, die mit den im Projekt analysierten Verbindungen umgesetzt werden können.

3.6.2 Bilanzierung Quellanteile Kohlenstoff

Im Folgenden sollen die vorliegenden BERNER-Impaktor-Messungen der „Kampagne aktuell“ zur Abschätzung des Anteils von Verkehrs-, Hausbrand- und biogenen Emissionen am TC-Gehalt der Partikelprobe im Sommer und Winter an den vier Standorten für die Stufen 2, 3 und 4 des Impaktors verwendet werden. Dabei wird bei der Berechnung der Quellanteile von Kohlenstoff exakt so vorgegangen wie bei der vorliegenden Auswertung für die „Kampagne 2000“ (BRÜGGEMANN et al. 2000; HERRMANN et al. 2006). Die Ergebnisse für

beide Kampagnen werden gegenübergestellt und für die „Kampagne aktuell“ der unterschiedliche Einfluss der Hauptanströmungen gezeigt.

Es sind folgende Informationen für OC und EC (in Summe TC) verfügbar:

- die größen aufgelöste Konzentrationsverteilung auf den fünf Stufen
- die saisonalen Konzentrationen für Winter- und Sommerhalbjahr
- die Konzentrationen bei westlicher und östlicher Anströmung im Sommer- und Winterhalbjahr
- die Konzentrationen an vier verschiedenen Stationen (Verkehr, urbaner und regionaler Hintergrund)

Der angewandte Algorithmus (BRÜGGEMANN et al. 2000; HERRMANN et al. 2006) mit seinen konkreten Anpassungen auf den Datensatz der „Kampagne aktuell“ soll hier nochmals kurz erläutert werden. Für das einfache Verfahren sind keine komplexen Modellberechnungen, keine Emissionskataster oder multivariate statistische Verfahren notwendig. Der Ansatz basiert nur auf den Messwerten und einer Reihe möglichst plausibler Annahmen:

1. Die Kohlenstoff-Emissionen des Straßenverkehrs werden über das Jahr als konstant angenommen und sind damit für Winter und Sommer vergleichbar.
2. Der partikuläre Kohlenstoff auf der kleinsten Stufe des BERNER-Impaktors an der Verkehrsstation Leipzig Mitte (LMI), direkt am mehrspurigen Innenstadtring, wird nur vom Straßenverkehr erzeugt. Deshalb sollte quellnah das OC/EC-Verhältnis klein und typisch für Verkehr im Raum Leipzig sein und mit der Jahreszeit nicht stark schwanken. Die hier für die Berechnungen verwendeten mittleren Werte aus Sommer und Winter sind in Tabelle 27 gelistet.
3. Industrielle Kohlenstoffemissionen waren in der Region Leipzig in der „Kampagne 2000“ durch großflächige Stilllegung von Industriestandorten nach der Wiedervereinigung nicht mehr relevant (HERRMANN et al. 2006). In der „Kampagne aktuell“ spielen sie für die größtenteils neu errichteten oder umfassend modernisierten Anlagen nur eine sehr untergeordnete Rolle und werden vernachlässigt.
4. Biogene OC-Emissionen existieren nur im Sommer. Hausbrandemissionen gibt es nur im Winter. Es wird deshalb angenommen, dass der Kohlenstoff auf den größeren Stufen 2, 3 und 4 des Impaktors sich wie folgt zusammensetzt:
 - (i) im Winter: $EC \triangleq$ gealtertes Verkehrsaerosol + Hausbrandanteil
 $OC \triangleq$ gealtertes Verkehrsaerosol + Hausbrandanteil
 - (ii) im Sommer $EC \triangleq$ gealtertes Verkehrsaerosol
 $OC \triangleq$ gealtertes Verkehrsaerosol + Anteil biogene Emissionen

Für die „Kampagne 2000“ wurde angenommen, dass Dieselfahrzeuge für etwa 90 % der Partikelemission aus dem Straßenverkehr verantwortlich sind (vgl. BRÜGGEMANN et al. 2000; HERRMANN et al. 2006 und dort aufgeführte Zitate). Diese Annahme trifft wahrscheinlich heute nicht mehr zu und neuere verlässliche Angaben sind nicht verfügbar. Es wird deshalb für die „Kampagne aktuell“ mit dem damals angenommenen Anteil für Diesel nur für Vergleichszwecke mit „Kampagne 2000“ (vgl. Abbildung 56) gerechnet. Alle weiteren Berechnungen erfolgen ohne die proportionale Unterteilung in Emissionen aus Diesel- und Benzinfahrzeugen und für die abgeschätzten Verkehrsemissionen werden EC (Verkehr) und OC (Verkehr) angegeben. Eine „Korrektur“ über die Annahme eines etwa doppelten Mischungsvolumens im Sommer wie bei der „Kampagne 2000“, bei der nur Tage mit westlicher und nicht zugeordneter Anströmung auftraten, erfolgt für die „Kampagne aktuell“ nicht. Dies hat im Wesentlichen zwei Gründe: zum Einen traten mit der Verdoppelung des Mischungsvolumens im Sommer bereits in der „Kampagne 2000“ negative Anteile für den Anteil EC (Hausbrand) für Stufe 1, 2 oder 4

auf, aber auch für die „Kampagne aktuell“ können Hausbrandanteile dann geringfügig negativ ausgewiesen werden (vgl. Abbildung 56). Zum Anderen war es schon auf Grund der stark unterschiedlichen Konzentrationsverhältnisse unbedingt notwendig, für die „Kampagne aktuell“ nach Tagen mit Ostanströmung und auch, um hier mit der „Kampagne 2000“ vergleichbar zu bleiben, nach Tagen mit westlicher Anströmung und Tagen mit nicht zugeordneter Anströmung zu unterscheiden. Auf Grund der unterschiedlichen meteorologischen Situation bei östlicher oder westlicher Anströmung müssten zwangsläufig für beide Fälle unterschiedliche Mischungsvolumina für den Sommer angenommen werden, was nicht ohne weiteres sinnvoll möglich erscheint und eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse erschweren würde.

Die Abschätzung der Quellanteile für die „Kampagne aktuell“ für OC (Hausbrand, Bio und Verkehr) und für EC (Hausbrand und Verkehr) erfolgt unterschieden für Sommer- und Winterhalbjahr und jetzt zusätzlich für Messstage mit östlicher und Messtage mit westlicher und nicht zugeordneter Anströmung. Unter der Voraussetzung eines in etwa vergleichbaren OC/EC-Verhältnisses zwischen Winter und Sommer auf Stufe 1 an der Verkehrsstation LMI (Tabelle 27) lassen sich die einzelnen Anteile des OC und EC für Sommer und Winter sowie separat für West- und Ostanströmung für die Stufen 2, 3 und 4 an allen Messorten berechnen. In Tabelle 27 ist zu sehen, dass die Annahme etwa gleicher OC/EC-Verhältnisse für Sommer und Winter in der Praxis nur annähernd erfüllt wird:

Tabelle 27: Mittlere OC/EC-Verhältnisse auf Stufe 1 an der Verkehrsstation LMI

Mess-Kampagne	WINTER OC/EC	SOMMER OC/EC	Mittelwert OC/EC
	0,43		
Kampagne 2000 (Tage mit Westanströmung und nicht zugeordnete Tage)		0,25	0,34
Kampagne aktuell (Tage mit Westanströmung und nicht zugeordnete Tage)	0,30	0,13	0,21
Kampagne aktuell (Tage mit Ostanströmung)	0,55	0,21	0,38

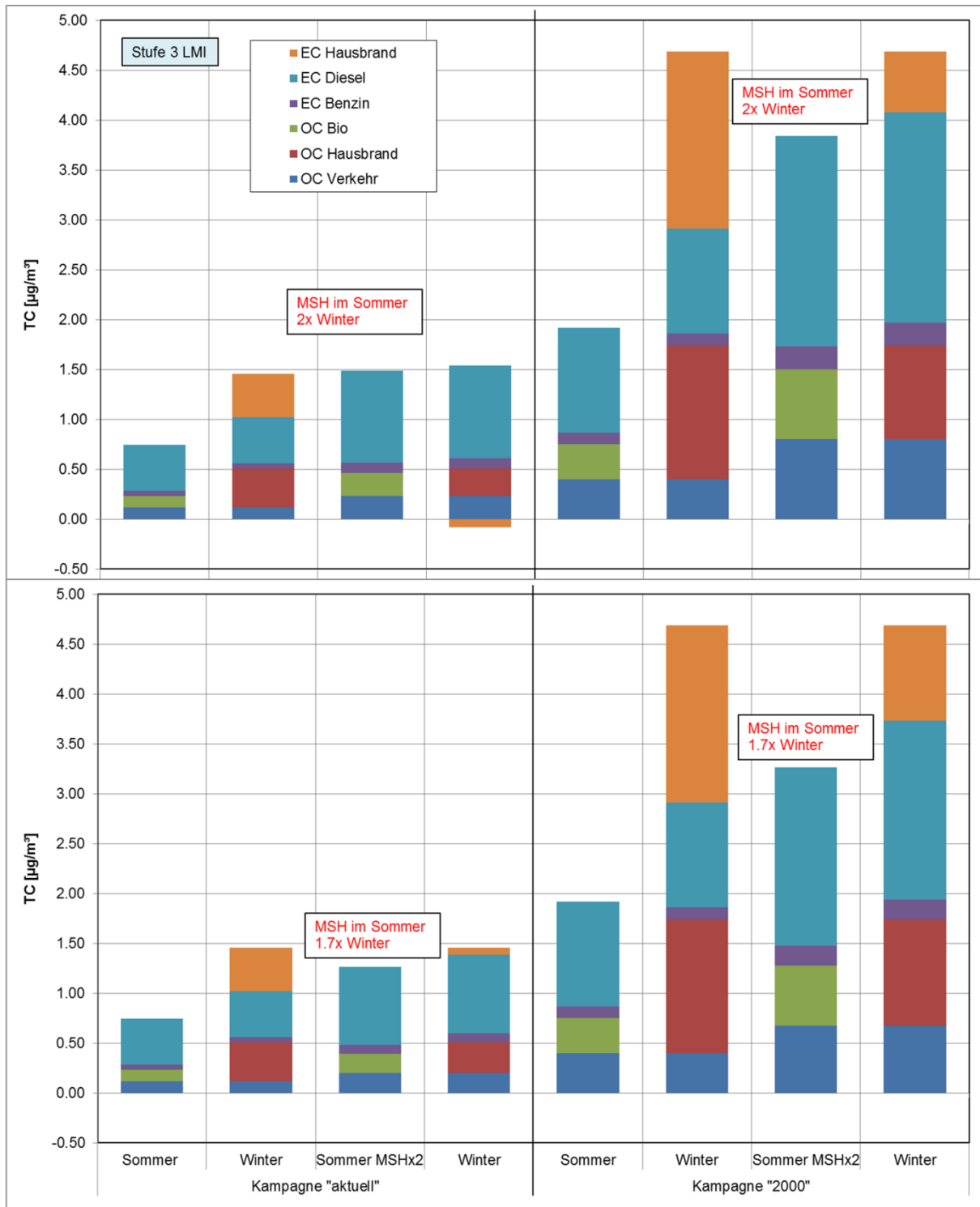


Abbildung 56: Abgeleitete Anteile (absolut) am TC für OC und EC für Stufe 3 in LMI. Vergleich für die beiden Kampagnen (nur Tage mit Westanströmung oder nicht zugeordneter Anströmung). Der Dieselverkehrsanteil wurde für beide Kampagnen zu 90 % von EC (Verkehr) angenommen. Es ist die „Wirkung“ der Verdopplung (oberes Bild) und des 1,7-Fachen (unteres Bild) der Mischungsschichthöhe im Sommer im Vergleich zum Winter gezeigt.

Der EC Hausbrand, der in diesem Ansatz nur im Winter auftritt, ergibt sich aus der Differenz zwischen dem im Winter und im Sommer gemessenen EC. Der EC Verkehr entspricht dem im Sommer gemessenen EC.

Der OC Verkehr, der für Sommer und Winter gleich sein soll, berechnet sich als Produkt aus im Sommer gemessenen EC und dem an der Verkehrsstation auf Stufe 1 ermittelten mittleren OC/EC-Verhältnis (vgl. Tabelle 27). Der OC Hausbrand, der hier nur im Winter auftritt, ergibt sich als Differenz von OC gemessen minus OC Verkehr. Weil auch der OC-Verkehrsanteil auf den Stufen 2, 3 und 4 in diesem einfachen Ansatz als gleich groß angesehen wird, ergibt sich der biogene OC im Sommer (OC Bio) durch Abzug des OC Verkehr vom gemessenen OC-Wert.

Die aus diesen Abschätzungen abgeleiteten Anteile sind für Stufe 3 in LMI in Abbildung 56 als Vergleich für die beiden Kampagnen gezeigt. Es wurden, um vergleichbar zu bleiben, für die „Kampagne aktuell“ nur Tage mit Westanströmung oder nicht zugeordneter Anströmung gemittelt. Es zeigt sich ein großer Konzentrationsunterschied für TC zwischen beiden Kampagnen. In der „Kampagne 2000“ war die TC-Konzentration im Sommer etwa mehr als doppelt so groß und im Winter etwa mehr als dreimal so groß wie in der „Kampagne aktuell“. Der Dieselverkehrsanteil wurde hier, wie für die „Kampagne 2000“, zu 90 % von EC (Verkehr) angenommen. Es wird in Abbildung 56 auch der Einfluss der Verdopplung der Mischungsschichthöhe im Sommer im Vergleich zum Winter gezeigt, der zu einem geringeren Anteil von OC (Hausbrand) und EC (Hausbrand) führt. Allerdings zeigt sich für die „Kampagne aktuell“ bereits eine Überkompensation hin zu „negativen Anteilen“ EC (Hausbrand). Es wird deshalb im unteren Diagramm von Abbildung 56 auch das Ergebnis für eine 1,7-fach erhöhte Mischungsschicht gezeigt, wodurch alle Hausbrandanteile zwar kleiner als ohne Berücksichtigung des Mischungsvolumens, aber positiv angezeigt werden.

In Abbildung 57 werden die Mittelwerte der absoluten EC- und OC-Anteile für Hausbrand, Verkehr und biologische Emissionen im Vergleich der beiden Kampagnen unterschieden für Sommer und Winter und nach der Hauptanströmung für Stufe 2, 3 und 4 für alle Messorte gezeigt.

Vergleicht man zuerst das gesamte TC zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ (nur Mittelwert von Tagen mit westlicher und nicht zugeordneter Anströmung), so zeigt sich ein Rückgang der absoluten Konzentration besonders stark im Winter und geringer ausgeprägt auch im Sommer auf Stufe 3, gefolgt von Stufe 4 und Stufe 2 (lediglich Stufe 2 in MEL im Sommer zeigt eine Zunahme). Der Rückgang von TC im Sommer ist mit einem Rückgang aller Anteile EC, OC (Verkehr) und OC (Bio) verbunden. Der oft geringfügige Rückgang für OC (Bio) lässt sich nicht logisch erklären, dies könnte ein Zeichen dafür sein, dass in der „Kampagne 2000“ noch diffuse anthropogene Emissionen für OC besonders im Sommer auftraten, die in diesem Ansatz zur Selektion der TC-Anteile aber nicht separat berücksichtigt sind und somit als OC (Bio) ausgewiesen werden. Der deutlichere Rückgang von EC und OC (Verkehr) im Sommer (besonders auf Stufe 3) zeigt, wenn man von einer etwa konstant gebliebenen Fahrleistung ausgeht, dass die EC- und OC-Verkehrsemissionen zurückgegangen sind. Dies lässt sich für OC durch geringeren Kraftstoffverbrauch moderner Benzin- und Dieselmotoren – der Anteil letzterer in der PKW-Flotte hat zugenommen – und bessere und weiter verbreitete 3-Wege-Katalysatoren (für EC auch durch den Einsatz von Rußpartikelfilter in Dieselfahrzeugen) erklären. Der starke Rückgang für TC im Winter (besonders auf Stufe 3) zeigt den Einfluss der geringer gewordenen Emissionen von OC und EC (Hausbrand) an allen Messorten.

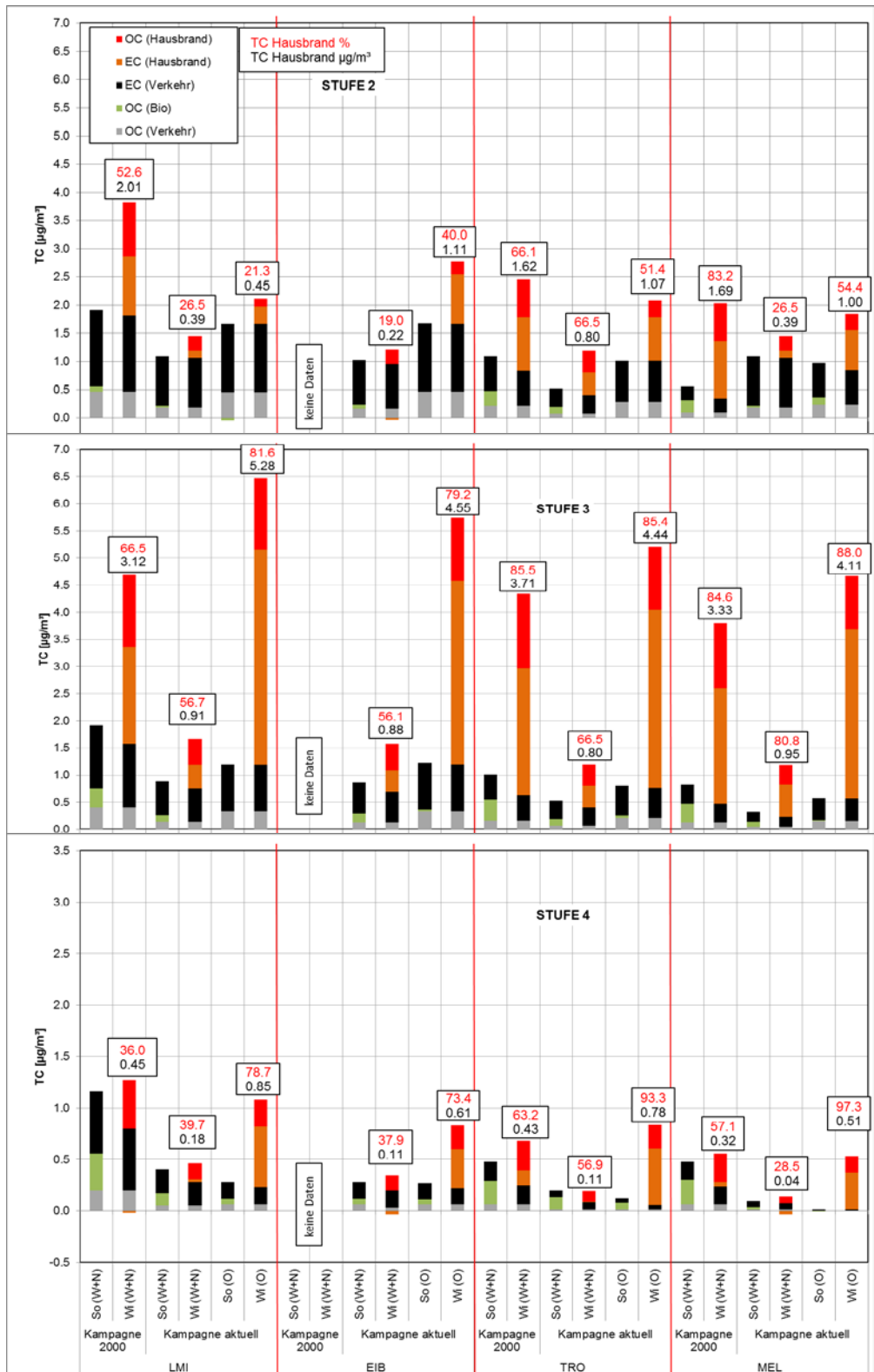


Abbildung 57: Mittelwerte für Stufe 2 bis 4 der absoluten EC- und OC-Anteile für Hausbrand, Verkehr und biologische Emissionen am TC. Vergleich der beiden Kampagnen unterschieden für Sommer (So) und Winter (Wi) und nach Hauptanströmung (W+N, West + nicht zugeordnet; O, Ost) für alle Messorte. Über den Säulen für Winter wurde der errechnete Hausbrandanteil relativ vom TC und als absolute Konzentration angegeben. Für Stufe 4 wurde die Abszisse 2-fach vergrößert.

Betrachtet man für die „Kampagne aktuell“ den Unterschied zwischen den beiden Hauptanströmungen, so fallen die hohen TC-Konzentrationen an Tagen mit östlicher Anströmung besonders im Winter an allen Stationen auf und der Unterschied ist für Stufe 3 am deutlichsten ausgeprägt. Hier zeigt sich der starke Einfluss von ferntransportierten anthropogenen Emissionen im Winter (OC und EC Hausbrand). Für den Sommer zeigte sich mit östlicher Anströmung in fast allen Fällen (Ausnahmen Stufe 4 und MEL Stufe 2) auch eine leichte Konzentrationserhöhung. Für diese Konzentrationserhöhung bei östlicher Anströmung wird meist EC (Verkehr) ausgewiesen. Weil die Verkehrsemissionen östlich vom Raum Leipzig sich aber in etwa mit denen westlich davon vergleichen lassen, könnte sich hier der Einfluss von in diesem Ansatz nicht berücksichtigten geringfügigen sommerlichen anthropogenen Emissionen aus Verbrennungsprozessen weit östlich des Leipziger Raumes (Vegetationsbrände, Emissionen aus zeitweiser Holz- und Kohleverbrennung) zeigen.

Im Folgenden sollen, ausgehend von den Ergebnissen aus Abbildung 57, der errechnete relative und absolute Anteil des TC (Hausbrand) im Winter für die „Kampagne 2000“ im Vergleich zur „Kampagne aktuell“ (nur Tage mit westlicher Anströmung und nicht zugeordnete Tage) und die Ergebnisse der „Kampagne aktuell“ für beide Hauptanströmungen diskutiert werden. Abbildung 58 zeigt den mittleren berechneten relativen Anteil des Hausbrandes im Winter in Prozent und den absoluten Anteil am TC für alle Messorte, getrennt für die Stufen 2, 3 und 4 jeweils für die „Kampagne 2000“ und die „Kampagne aktuell“. In der „Kampagne aktuell“ wurde zwischen den beiden Hauptanströmungen unterschieden.

Vergleicht man die Ergebnisse zwischen „Kampagne 2000“ und „Kampagne aktuell“ (nur Tage mit westlicher und nicht zugeordneter Anströmung), so zeigten sich für die Stufen 2, 3 und 4 an allen Standorten geringere absolute Konzentrationen für TC (Hausbrand). Dieser Unterschied betrug ca. 70 bis 80 % je nach Messort und Stufe. Auf Stufe 2 war dabei die absolute TC-Konzentration in beiden Kampagnen wesentlich kleiner als auf den Stufen 3 und 4, die am stärksten vom Hausbrand geprägt waren. Vergleicht man nun für den relativen Anteil von TC (Hausbrand), so zeigt sich für Stufe 3 für LMI ein Rückgang um 10 %, für TRO um 20 % und für MEL kein Rückgang des relativen Anteils TC (Hausbrand). Für Stufe 2 ergeben sich Rückgänge um ca. 50 % für LMI und 45 % für MEL. TRO zeigte praktisch keinen Rückgang des relativen Anteils. Für Stufe 4 wurde nur in MEL ein Rückgang des relativen Anteils um 30 % registriert. Die Rückgänge für die einzelnen Messorte sind damit etwas unterschiedlich und variieren zusätzlich auf den Stufen 2 bis 4. Das kann unterschiedliche messtechnische Ursachen haben und zeigt einerseits, dass die Standorte eventuell von unterschiedlich großen Partikeln, die OC- und EC-Hausbrandanteile enthielten, erreicht wurden, andererseits sind die Quellen für Hausbrandanteile grundsätzlich unterschiedlich und nicht homogen in der Fläche verteilt.

Um eine grobe Abschätzung für den Rückgang des Hausbrandanteils im Raum Leipzig bei vorwiegend westlicher Anströmung von 2000 bis jetzt zu erhalten, wird der absolute mittlere Rückgang für alle drei in der „Kampagne 2000“ und in der „Kampagne aktuell“ beprobten Stationen LMI, TRO und MEL über die beiden am stärksten vom Hausbrand geprägten Impaktorstufen 2 und 3 berechnet. Der Mittelwert des TC-Anteils Hausbrand am Gesamt TC für die „Kampagne 2000“ beträgt demnach $2,58 \mu\text{g m}^{-3}$, was einem mittleren relativen Anteil am TC von 73 % entspricht. Der entsprechend berechnete Mittelwert für TC (Hausbrand) für die „Kampagne aktuell“ beträgt $0,71 \mu\text{g m}^{-3}$, was einem relativen mittleren Anteil am TC von 54 % entspricht. Damit lässt sich abschätzen, dass die Hausbrandemission in den vergangenen 13 bis 14 Jahren im Raum Leipzig absolut auf etwa 1/3 zurückgegangen ist. Bezogen auf den relativen Anteil am TC, ist die Hausbrandemission überproportional von 73 auf 54 % im Raum Leipzig zurückgegangen (gilt nur bei westlicher Anströmung).

Vergleicht man nun die Ergebnisse innerhalb der „Kampagne aktuell“ für die beiden Hauptanströmungen, so zeigten sich im Vergleich für Stufe 2, 3 und 4 im Sommer etwas zunehmende (mit Ausnahme Stufe 4) und im Winter stark zunehmende absolute TC-Konzentrationen bei östlicher Anströmung verglichen mit den Tagen

mit westlicher Anströmung und nicht zugeordneter Anströmung (vgl. Abbildung 57). Im Sommer war die Zunahme durch EC-Verkehr geprägt (Stufen 2 und 3).

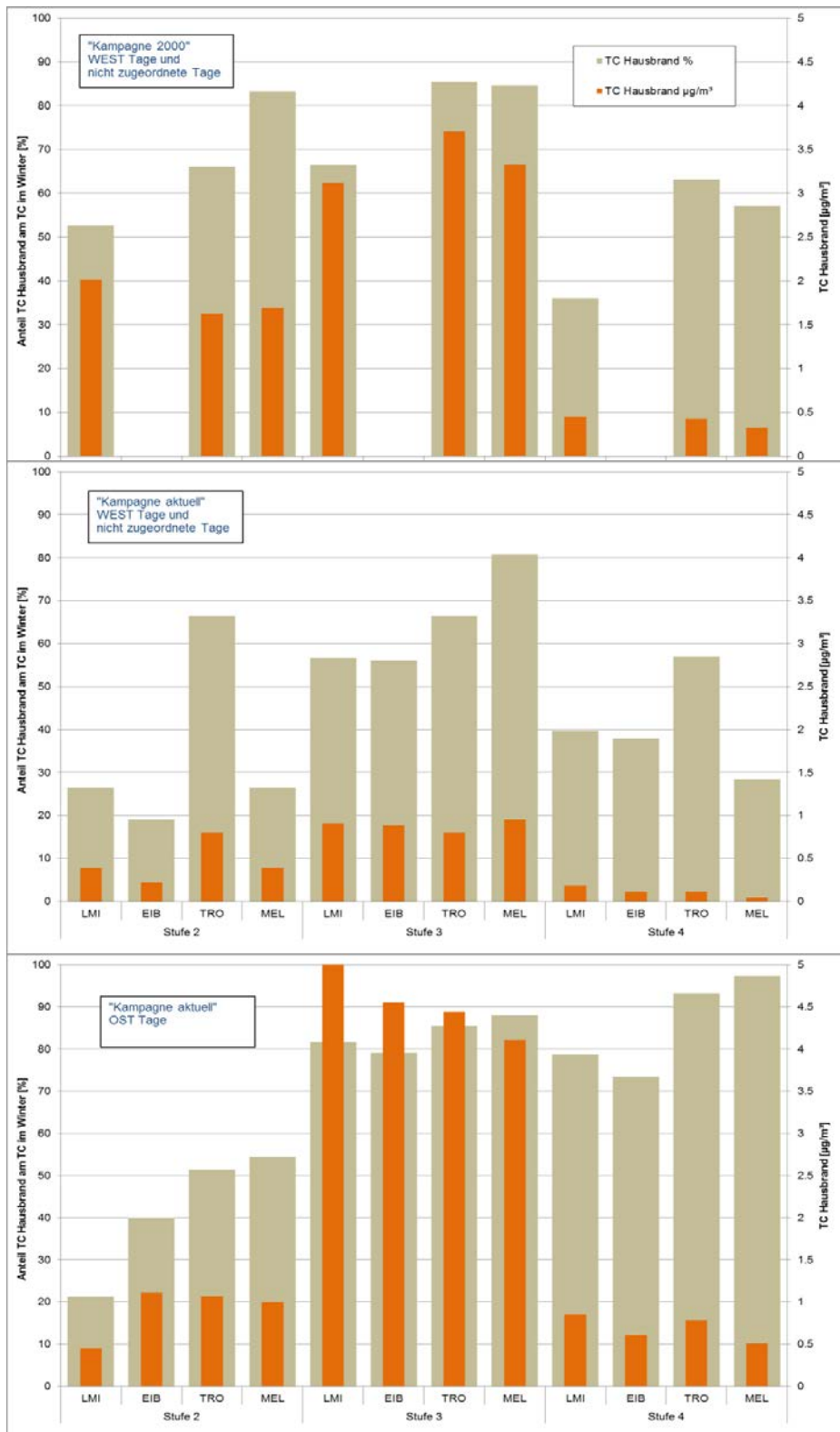


Abbildung 58: Mittlerer relativer Anteil des Hausbrandes an TC im Winter und absoluter Anteil des TC Hausbrandes für die Stufen 2, 3 und 4. Diagramme für die „Kampagne 2000“ mit nur West- und nicht zugeordneten Tagen, „Kampagne aktuell“ mit nur West- und nicht zugeordneten Tagen und mit nur Ost-Tagen. In der „Kampagne 2000“ erfolgten keine Messungen an der Station EIB.

Dieser vermeintlich erhöhte Anteil EC-Verkehr könnte von sommerlichen anthropogenen Emissionen aus Verbrennungsprozessen weit östlich des Leipziger Raumes (Vegetationsbrände, Emissionen aus zeitweiser Holz- und Kohleverbrennung) herrühren, weil diese in diesem einfachen Modellansatz nicht explizit berücksichtigt sind. Im Winter war die starke Zunahme bei östlicher Anströmung durch den Hausbrandanteil, insbesondere dem von EC (Hausbrand), geprägt. Es gibt dafür zwei Ursachen: Zum einen werden über Langstreckentransport primär emittierte oder prozessierte Partikel mit OC- und EC-Hausbrandanteil von den Emissionsgebieten weit östlich von Melpitz nach Westen in den Leipziger Raum transportiert. Zum anderen erhöhen sich bei kälterem Wetter, das in der Regel mit winterlichen Ostanströmungen verbunden ist, auch die lokalen Emissionen von OC und EC Hausbrand.

Abbildung 58 zeigt im mittleren und unteren Diagramm die absoluten und relativen Anteile von TC Hausbrand. Mit östlicher Anströmung erhöhten sich die absoluten Konzentrationen im Vergleich zur westlichen Hauptanströmung. Mit Abstand am größten war mit etwa einer Verfünffachung der absoluten Konzentration von TC Hausbrand dieser Effekt auf Stufe 3, wobei der relative Anteil sich etwa nur um 10 bis 20 % erhöht.

Um hier eine grobe Abschätzung für den Anteil des Hausbrandes im Raum Leipzig bei vorwiegend östlicher Anströmung (verglichen mit vorwiegend westlicher Anströmung) zu erhalten, wird die absolute mittlere Veränderung für alle vier in der „Kampagne aktuell“ beprobten Stationen über die beiden am stärksten vom Hausbrand geprägten Impaktorstufen 2 und 3 berechnet. Der entsprechende Mittelwert für TC Hausbrand für die „Kampagne aktuell“ bei westlicher Anströmung wurde schon weiter oben berechnet, muss hier aber über alle vier Stationen berechnet werden und beträgt nun $0,67 \mu\text{g m}^{-3}$, was einem relativen mittleren Anteil am TC von 50 % entspricht. Der entsprechende Mittelwert für die Tage mit Ostanströmung beträgt hier $2,75 \mu\text{g m}^{-3}$, was einem relativen Anteil von 63 % entspricht. Damit zeigt sich, dass heute mit einem Wechsel auf die östliche Anströmung im Winter der absolute Beitrag des TC Hausbrand auf etwa das Vierfache steigt, der relative Anteil am TC Hausbrand nimmt um 13 % zu.

Mit dieser Betrachtung der Anteile von Verkehrs- und Hausbrand- sowie biogenen Emissionen am TC-Gehalt konnten die Aussagen der „Kampagne 2000“ mit der „Kampagne aktuell“ verglichen und um den Einfluss des Wechsels der Hauptanströmung erweitert werden. Die absolute Konzentration von TC Hausbrand von „heute“ bei östlicher Anströmung ist damit in der Größenordnung in etwa mit der in Tagen mit westlicher und nicht zugeordneter Anströmung von „Kampagne 2000“ vergleichbar.

3.6.3 Markerverbindungen

Biomasseverbrennung aus Levoglucosan

Eine gebräuchliche Methode, um den Biomasseverbrennungsanteil an PM_{10} und OC abzuschätzen, ist die Makrotracermethode. Diese Methode basiert auf Emissionsfaktoren von Levoglucosan, OC und PM und ihren relativen Verhältnissen zueinander, die in Laborexperimenten zu Biomasseverbrennung gewonnen wurden. Obwohl die in der Literatur vorgestellten Emissionsfaktoren stark in Abhängigkeit von Baumarten und Verbrennungsbedingungen variieren, kann diese Methode genutzt werden, um eine zumindest grobe Abschätzung zu erreichen. Im Rahmen dieser Studie werden die von SCHMIDL et al. (2008) publizierten Emissionsfaktoren verwendet, um den Beitrag von Biomasseverbrennung zu OC, EC und PM_{10} zu beurteilen. Diese Autoren bestimmten Emissionsfaktoren für Levoglucosan, OC und PM aus der Verbrennung von Holzarten, die üblicherweise in mitteleuropäischen alpinen Regionen zu Heizzwecken verwendet werden (Buche, Eiche, Fichte, Lärche und Brikett) in einem Kachelofen.

SCHMIDL et al. 2008 führen zwei mögliche Faktoren auf, um aus Levoglucosankonzentrationen OC-, EC- und PM-Konzentrationen abzuleiten. Der erste Faktor ist aus Informationen über Nutzholz in österreichischen Wäldern abgeleitet, der zweite aus einer realistischeren Mischung von Holzarten (z. B. ohne Lärche und Eiche, deren Verbrennung in Österreich nicht üblich ist). Weil sich diese Faktoren nicht nennenswert unterschieden, wurde in dieser Studie der Durchschnitt der beiden Werte als Faktor genutzt. Die Abschätzungen erfolgen dann wie folgt:

■ $PM_{bb} [\mu\text{g m}^{-3}] = 10,95 \times \text{Levoglucosan} [\mu\text{g m}^{-3}]$

■ $OC_{bb} [\mu\text{g m}^{-3}] = 6,8 \times \text{Levoglucosan} [\mu\text{g m}^{-3}]$

■ $EC_{bb} [\mu\text{g m}^{-3}] = 2,7 \times \text{Levoglucosan} [\mu\text{g m}^{-3}]$

Auf Grundlage dieser Faktoren und den an den Messstationen bestimmten Levoglucosankonzentrationen, werden Beiträge von Biomasseverbrennung zu PM_{10} , OC, und EC für die Winter- und Sommermessungen in Tabelle 10 abgeschätzt. Wie erwartet war der Beitrag von Biomasseverbrennung an allen Messstandorten im Sommer geringer als im Winter. In einigen Messungen überstieg der Beitrag von Biomasseverbrennung zu OC einen Wert von 100 %. Die Tage, an denen diese Messungen durchgeführt wurden, waren dadurch charakterisiert, dass der Anteil von Levoglucosan-Kohlenstoff 6,5 % der OC-Konzentration überschritt, was auf einen starken Einfluss von Biomasseverbrennung hinweist. Der Grund für die unrealistische Überschätzung ist wahrscheinlich die zur OC/EC-Bestimmung verwendete VDI-Methode. Mit dieser können OC-Konzentrationen für stark von Biomasseverbrennung beeinflusste Proben deutlich unterschätzt werden (Iinuma et al. 2007), was im Wesentlichen auf unvermeidbare und nicht zu korrigierende Verkohlungeffekte zurückzuführen ist. Außerdem geht mit der Schätzung des Beitrags von Biomasseverbrennung zu OC und EC eine größere Unsicherheit einher als mit der Schätzung von PM_{10} , weil die von SCHMIDL et al. (2008) berichteten OC/EC-Werte mit einer anderen Methode bestimmt wurden. Demzufolge stellen die geschätzten Beiträge von Biomasseverbrennung zu OC wahrscheinlich obere Grenzwerte dar. Die mittleren Beiträge (Median) von Biomasseverbrennung zu PM_{10} reichten an den Stationen im Sommer von 1,6 bis 2,8 %, im Winter von 7,6 bis 9,7 %. Die mittleren Beiträge (Median) von Biomasseverbrennung zu OC reichten im Sommer von 20,2 bis 31,9 % und im Winter von 58,7 bis 73,7 %. Trotz der mit der Abschätzung verbundenen hohen Unsicherheit legen diese Werte nahe, dass der Beitrag von Biomasseverbrennung auch im Sommer nicht unerheblich gewesen sein könnte. In der Tat betragen die mittleren Werte (Median) von Levoglucosan-Kohlenstoff in OC 1,3 % am Standort LMI, 1,8 % in EIB, 2,1 % in TRO und 1,7 % in MEL, was darauf hindeutet, dass aus der Biomasseverbrennung stammender Kohlenstoff wesentlich zu den OC-Konzentrationen beigetragen hat.

Während Heizung in der Sommerkampagne vermutlich keine Quelle darstellte, können jedoch Warmwasserbereitung, Gartenabfallverbrennung oder Grillaktivitäten mit Holz oder Holzkohle Levoglucosan emittieren.

Im Winter reichten die mittleren Levoglucosan-C-Beiträge zu OC von 3,8 % am Standort LMI bis zu 4,8 % in EIB. Diese Werte zeigen, dass Heizungsemissionen eine bedeutende zusätzliche Quelle von OC im Raum Leipzig darstellen. Zu beachten ist jedoch, dass die Biomasseverbrennungsbeiträge im urbanen und regionalen Hintergrund (TRO und MEL) ähnlich hoch lagen wie an den innerstädtischen Stationen. Es ist daher davon auszugehen, dass Ferntransport bei den Biomasseverbrennungsemissionen eine dominierende Rolle spielte.

Die Beiträge von Biomasseverbrennung zu EC waren im Vergleich zu OC sowohl im Winter als auch im Sommer an allen Messstandorten geringer, obwohl auch diese Werte besonders im Winter nicht vernachlässigbar klein waren.

Tabelle 28: Beiträge der Biomasseverbrennung zu PM₁₀, OC₁₀ und EC₁₀ in Sommer und Winter

	Sommer			Winter		
LMI	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀
Min	0,2%	3,0%	0,6%	1,7%	12,8%	2,3%
Mittelwert	2,4%	26,4%	3,5%	7,6%	64,2%	11,9%
Median	1,6%	20,2%	3,2%	7,6%	58,7%	13,4%
Max	9,7%	100,2%	9,9%	12,9%	109,6%	18,2%
EIB	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀
Min	0,6%	4,0%	0,9%	3,9%	30,2%	10,2%
Mittelwert	3,4%	41,9%	5,4%	9,9%	78,9%	18,7%
Median	2,8%	28,1%	5,8%	9,7%	73,7%	18,8%
Max	15,3%	198,7%	14,3%	15,7%	137,2%	29,3%
TRO	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀
Min	0,2%	5,0%	1,4%	3,5%	26,0%	11,0%
Mittelwert	3,2%	38,5%	8,3%	8,8%	74,8%	16,6%
Median	2,6%	31,9%	8,6%	9,1%	71,6%	16,0%
Max	14,0%	116,8%	18,2%	14,5%	119,3%	29,5%
MEL	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀	BB/PM ₁₀	BB/OC ₁₀	BB/EC ₁₀
Min	0,3%	2,5%	0,8%	1,8%	14,1%	3,4%
Mittelwert	2,2%	28,1%	9,2%	8,7%	75,7%	14,9%
Median	1,8%	26,8%	5,7%	8,2%	72,6%	14,1%
Max	10,1%	61,9%	48,7%	15,1%	140,4%	33,2%

OC biogen: Sporen aus Arabitol

Arabitol, das aus Pilzsporen stammt, kann genutzt werden, um den Beitrag von Pilzsporen als primäres biologisches Material zu OC und PM abzuschätzen. BAUER et al. (2008a; 2008b) schätzten den durchschnittlichen Arabitolgehalt einer Spore auf 1,2 pg, wobei jede Spore 13 pg OC enthält und insgesamt eine Masse von 33 pg hat. Durch die Verwendung dieser Umrechnungsfaktoren kann der Beitrag von Pilzsporen zu PM₁₀ und OC auf Grundlage der bestimmten Arabitolkonzentrationen abgeschätzt werden. Im Winter war der Beitrag von Pilzsporen zu PM₁₀ und OC an allen vier Probenahmestellen vernachlässigbar klein. Im Sommer hingegen stellten Pilzsporen eine bedeutende Quelle von OC dar, die von 2,9 % OC in MEL zu 11,1 % in TRO (Median) reichte. Der Beitrag von Pilzsporen zu PM₁₀ war allerdings erwartbar klein – die Werte reichten von 0,3 % in MEL bis 1,1 % in TRO (Median).

Tabelle 29: Beitrag von Pilzsporen auf PM₁₀ und OC₁₀ in Sommer und Winter

	Sommer		Winter	
LMI	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀
Min	0,3%	0,1%	0,0%	0,0%
Mittelwert	7,1%	1,0%	0,3%	0,0%
Median	5,7%	0,5%	0,0%	0,0%
Max	22,8%	3,6%	1,5%	0,3%
EIB	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀
Min	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
Mittelwert	8,3%	1,2%	0,3%	0,1%
Median	7,3%	0,8%	0,0%	0,0%
Max	33,1%	4,0%	2,6%	0,8%
TRO	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀
Min	1,0%	0,2%	0,0%	0,0%
Mittelwert	17,3%	1,8%	0,4%	0,1%
Median	11,1%	1,1%	0,0%	0,0%
Max	57,4%	5,7%	1,6%	0,3%
MEL	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀	Sporen-OC/OC ₁₀	Sporenmasse/PM ₁₀
Min	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
Mittelwert	7,3%	1,0%	0,4%	0,1%
Median	2,9%	0,3%	0,0%	0,0%
Max	27,8%	7,5%	2,2%	0,4%

Krustenmaterial

Bei der Schätzung des Beitrags von Krustenmaterial zu den gemessenen Spurenmetallkonzentrationen wurde eine Analyse des Anreicherungsfaktors (enrichment factor, ERF) typischer Krustenelemente mit Ti als konservativem Tracer für Krustenmaterial verwendet.

$$ERF = (Z/Ti)_{\text{Probe}} / (Z/Ti)_{\text{Kruste}}$$

mit Z = Element und

$(Z/Ti)_{\text{Kruste}}$ = mittleres Verhältnis des Elements zu Titan in oberer Erdkruste nach WEDEPOHL (1995)

Abbildung 59 zeigt die durchschnittlichen Anreicherungsfaktoren der bestimmten Elemente bezüglich Ti an allen vier Messstandorten. Prinzipiell bestanden keine großen Unterschiede zwischen den im Sommer und im Winter ermittelten Werten. Für Elemente wie As, Zn und Pb wurde im Winter eine leicht höhere Anreicherung im Vergleich zum Sommer beobachtet, aber dieser Unterschied betrug weniger als 25 %. Teilt man die Spurenmetalle entsprechend ihrer Anreicherungsfaktoren in Gruppen ein, so besteht die erste Gruppe aus Ca und Sr, die Anreicherungsweite von weniger als 3 aufwiesen, was darauf hindeutet, dass sie überwiegend aus Krustenmaterial stammten. Die zweite Gruppe besteht aus Rb, K, Ba, Fe und Mn. Die für diese Spurenmetalle festgestellten Anreicherungsfaktoren lagen an allen Messstandorten bei unter 10, mit der Ausnahme von K und Mn, für die am Standort MEL geringfügig höhere Werte beobachtet wurden. Die geringere Anreicherung lässt auf einen moderaten anthropogenen Einfluss auf die Konzentrationswerte schließen. Die besonders am Standort MEL geringfügig höhere Anreicherung von Rb und K könnte auf Biomasseverbrennung zurückzuführen sein (ARTAXO & HANSSON 1995; BEDDOWS et al. 2004).

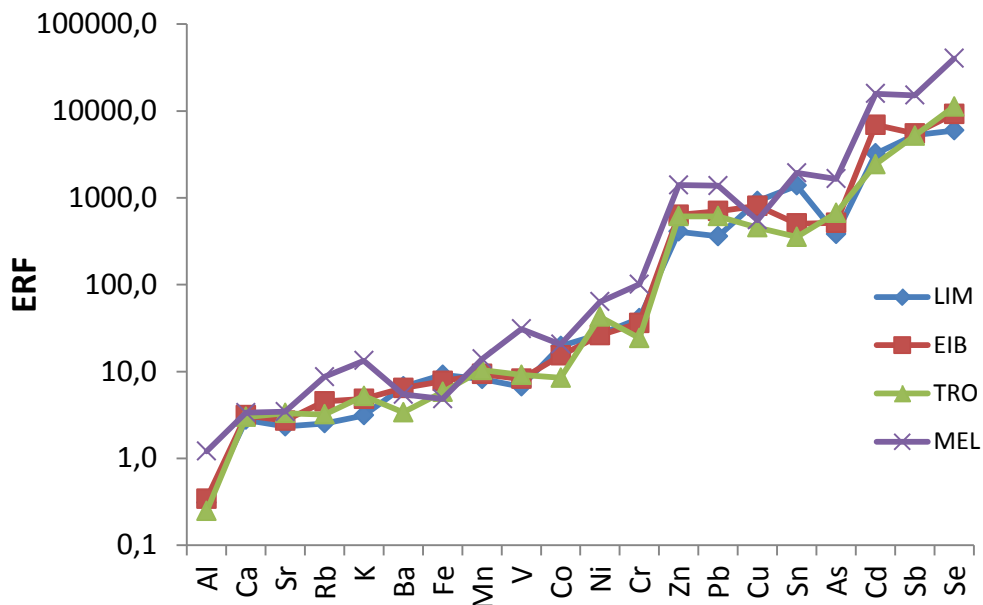


Abbildung 59: Mittlere PM₁₀-Anreicherungs-faktoren der Spurenmetalle (bezogen auf den Titangehalt in der Erdkruste) für alle Stationen

Die Tatsache, dass die für Ba und Fe gemessenen Werte an den Verkehrsstationen LMI und EIB erhöht waren, lässt auf einen zusätzlichen Beitrag von verkehrsbezogenen Quellen wie Bremsverschleiß schließen (GIETL et al. 2010). Eisenoxide werden in Bremsbelägen als Abrasivstoff verwendet (CHAN & STACHOWIAK 2004), während Bremsscheiben aus Gusseisen gefertigt sind. Das durchschnittliche Fe/Ba-Verhältnis an den Verkehrsstationen LMI und EIB betrug 65 und glich damit den in anderen Studien ermittelten Werten (GIETL et al. 2010), was den zusätzlichen Beitrag von Verkehr zu den gemessenen Konzentrationen bestätigt. Die erhöhten Werte für Mn können auf die Aufwirbelung von Straßenstaub zurückzuführen sein.

V, Co, Ni und Cr wiesen Anreicherungs-faktoren von weniger als 100 auf. Diese Elemente waren überwiegend anthropogenen Ursprungs. Co wird als Zusatzstoff bei in der Fahrbahnmarkierung verwendeten Farben gebraucht (SONG & GAO 2011), wodurch auch hier die Aufwirbelung von Straßenstaub für ihre erhöhten Konzentrationen verantwortlich sein könnten. Ni und V traten überwiegend in submikronen Partikeln auf, was ein Hinweis auf anthropogene Quellen wie die Verbrennung fossiler Brennstoffe darstellt (PACZYNA & PACZYNA 2001). Allerdings können Ni und Cr auch bei industriellen metallurgischen Prozessen und beim Abrieb von Straßenbahnschienen entstehen.

Die Anreicherungs-faktoren von Zn, Cu, Sn, Pb und As betragen weniger als 1.000. Zn, Cu und Sn sind u. a. mit Verkehrsemissionen zusammenhängende Metalle. Cu und Sn ergeben sich hauptsächlich aus Bremsverschleiß (FABRETTI et al. 2009; PEREZ et al. 2010), was den Abrieb von Bremsbelagmaterial und Bremsscheiben einschließt und überwiegend zu groben Partikeln führt sowie durch die Verdampfung und Re-Kondensation von Bremsbelagmaterial, was zu submikronen Partikeln führt.

Verkehrsaktivität könnte über 80 % der gemessenen Konzentrationen erklären. Cu ist ein Tracer für Bremsverschleiß (PANT & HARRISON 2013) in von Verkehrsemissionen dominiertem Aerosol und auch Sb. Cu-Sb-Verhältnisse wurden verwendet (AMATO et al. 2011), um den Anteil von Verkehrsemissionen an den gemessenen Konzentrationen zu schätzen. Allerdings variieren Cu-Sb-Verhältnisse stark abhängig von Fahrzeug- und Bremsentyp. Das mittlere Cu-Sb-Verhältnis (Median) am Standort LMI betrug 8,8, was in

einem ähnlichen Bereich wie für andere für verkehrsdominierte Stationen publizierte Werte liegt: Barcelona/Spanien 8,0 und 9 (PEY et al. 2010; AMATO et al. 2011); Nizza/Frankreich 7,0 (FABRETTI et al. 2009).

Sowohl Zn als auch Pb werden jeweils durch Reifenverschleiß und direkt in Abgasen emittiert (PANT & HARRISON 2013). Obwohl Zn ein Bestandteil von Reifen ist (SÖRME et al. 2001), ändert sich die Zusammensetzung auch nach Reifentyp und Hersteller. Zn und Pb können auch bei industriellen metallurgischen Prozessen ausgestoßen werden (AMATO et al. 2009) und bei der Verbrennung von Benzin und Motoröl (HUANG et al. 1994). Pb und As werden auch bei Kohleverbrennungsprozessen ausgestoßen. Arsen wurde in anderen Studien als Tracer für Kohleverbrennung verwendet (HARRISON et al. 1996; CHOW & WATSON 2002) und sein hoher Anreicherungsfaktor ist ein starkes Indiz für einen anthropogenen Ursprung. Die Anreicherungsfaktoren von Cd, Se und Sb lagen bei mehr als 1.000. Diese Metalle wurden auch im feinen Größenbereich angereichert und können aus ferntransportierten Luftmassen stammen. Sie werden ebenfalls bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe emittiert (PACZYNA et al. 2001).

Allgemein waren Krustenmaterial, Biomasseverbrennung, die Verbrennung fossiler Brennstoffe, Brems- und Reifenabrieb sowie Ferntransport die Quellen der bestimmten Spurenmetalle.

Der Beitrag von Krustenmaterial zu PM_{10} kann abgeschätzt werden, indem man annimmt, dass alle für Ca und Ti gemessenen Konzentrationen ausschließlich aus Krustenmaterial stammen (MAENHAUT et al. 2005):

$$[\text{Krustenmaterial}] = 1,16 (1,90 [\text{Al}] + 2,15 [\text{Si}] + 1,41 [\text{Ca}] + 2,09 [\text{Fe}] + 1,67 [\text{Ti}])$$

mit [X] = Konzentration des jew. Elementes

Weil die Wiederfindung von Al bei der TXRF niedrig ist und Fe auch aus anderen Quellen neben Krustenmaterial stammen kann, wurden in dieser Arbeit die mittleren Verhältnisse der Elemente zu Ca in der oberen Erdkruste nach WEDEPOHL (1995) verwendet, um den Beitrag von Krustenmaterial zu PM_{10} abzuschätzen:

- Fe/Ca = 1,05
- Al/Ca = 2,63
- Si/Ca = 10,3

Die Konzentration von Krustenmaterial kann dann alleine aus Ti und Ca berechnet werden:

$$[\text{Krustenmaterial}] = 1,16 (30,75 [\text{Ca}] + 1,67 [\text{Ti}])$$

Abbildung 60 zeigt den relativen Beitrag von Krustenmaterial zu PM_{10} für Winter und Sommer. Krustenmaterial könnte im Sommer 10 bis 23 % des PM und im Winter 6 bis 14 % ausmachen. Höhere Beiträge wurden an LMI beobachtet, gefolgt von EIB, TRO und MEL, wobei an allen Messstandorten höhere Beiträge im Sommer als im Winter beobachtet wurden. Der Beitrag war auch größenabhängig, wobei erwartungsgemäß ein höherer Beitrag in groben Partikeln bestand.

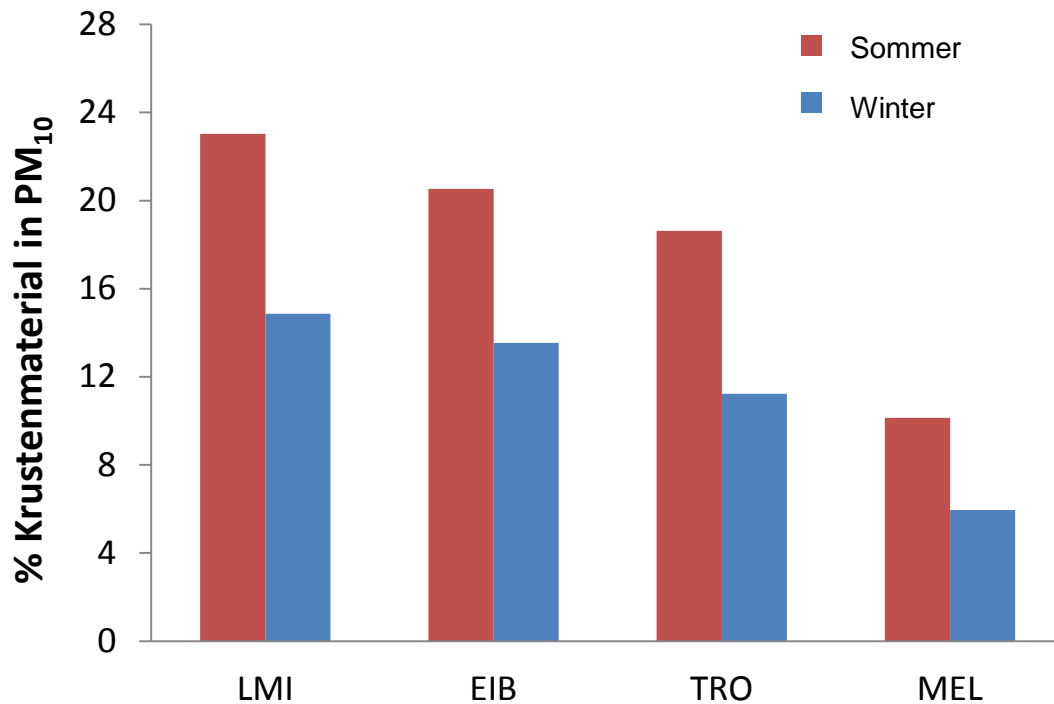


Abbildung 60: Anteile von Krustenmaterial an Gesamt-PM₁₀-Konzentrationen im Winter und Sommer an allen Stationen

Abschätzung des Bremsabriebbeitrages zu PM₁₀

Die Abschätzung des Anteils vom Bremsabrieb zur PM₁₀-Masse ist mit einer hohen Variabilität verbunden, die von zahlreichen technischen Faktoren sowie dem Fahrverhalten und gesetzlichen Regelungen abhängt. Nach Untersuchungen von DENIER VAN DER GON et al. (2007) stammen in Westeuropa 50–75 % der Cu-Emissionen in die Atmosphäre vom Bremsabrieb der Kraftfahrzeuge. Aus den hochindustrialisierten Ländern wie Deutschland, Frankreich, Großbritannien und Italien stammen die höchsten Emissionen. Bremsbeläge enthalten etwa 5–10 % Cu (USA 5 %, Europa 10 %).

Unter Berücksichtigung der Annahmen, dass 10 % des Bremsabriebes in Europa Cu sind und 75 % des in der Atmosphäre gemessenen Cu von Bremsen stammen, ergibt sich für das Untersuchungsgebiet der in Abbildung 61 dargestellte Anteil für das PM₁₀-Aerosol.

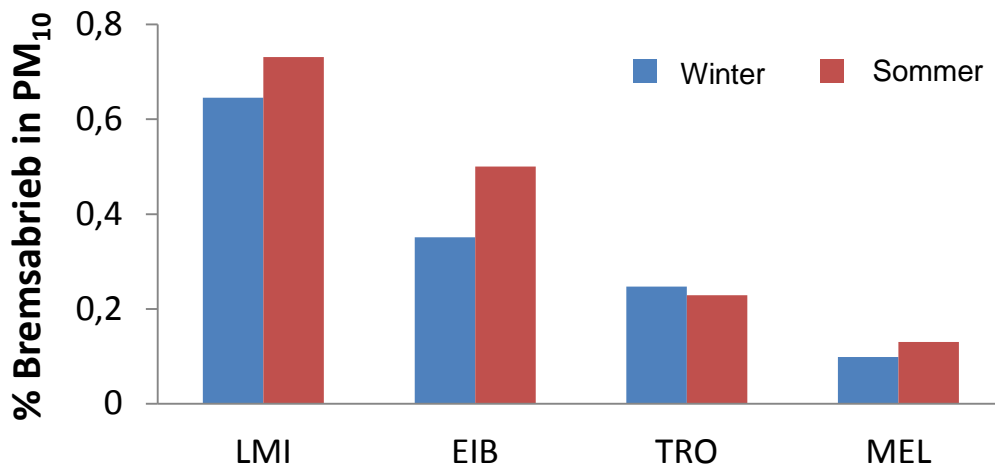


Abbildung 61: Mittlerer Beitrag des Bremsabriebes zum PM₁₀ an allen Stationen im Winter und Sommer

Der absolute Beitrag des Bremsabriebes zur Aerosolmasse steigt erwartetermaßen von MEL (0,1 %) über TRO, EIB nach LMI (0,75 %) an. Im Winter wurden dabei vor allem an den Verkehrsstationen niedrigere Werte bestimmt, die das saisonbedingte Fahrverhalten widerspiegeln bzw. auch die gegenüber dem Sommer reduzierte Re-emission von feuchten oder schneebedeckten Oberflächen. Mehr als 60 % der PM-Emissionen waren dabei Grobstaub. GIET et al. (2010) publizierten einen Zusammenhang zwischen Barium aus Bremsbelägen und dem Aerosol. Unter Verwendung dieses Ansatzes ergab sich für die Verkehrsstationen ein um Faktor 3 höherer Anteil des Bremsabriebes am städtischen Aerosol. Dieser Unterschied zeigt deutlich, dass diese Abschätzungen mit einer erheblichen Unsicherheit verbunden sind, weil die Daten an anderen Orten unter anderen Bedingungen bestimmt wurden. Die Abschätzung mit Cu als Bezugsэлеment ist nach Ansicht der Autoren konservativer, weil außer dem Bremsabrieb auch andere Quellen einbezogen werden. Eine Studie zum Aerosol in Knittelfeld, Österreich (BAUER et al. 2009) kam zu dem Ergebnis, dass der Kfz-Abrieb zu etwa 2 % am Gesamtaerosol beteiligt ist, was mit dieser Untersuchung übereinstimmt.

3.6.4 Zusammenfassung

Es wurden Quellbeiträge mit einem einfachen Verfahren der Kohlenstoffbilanzierung und über etablierte Makrotracerverfahren abgeschätzt. Dabei zeigte sich, dass die Konzentration von aus Verbrennungsprozessen emittiertem TC (Hausbrand) im Vergleich zu Messungen aus dem Jahr 2000 auf etwa 1/3 der damaligen Werte gesunken ist. Dies gilt jedoch nur für Wetterlagen mit Westanströmung. Bei Ostanströmung sind die heutigen TC(Hausbrand)-Konzentrationen ungefähr vergleichbar hoch wie die damaligen bei Westanströmung.

Die mittleren Beiträge (Median) von Biomasseverbrennung zu PM₁₀-Massekonzentrationen betragen je nach Station im Sommer ca. 1,5–3 % und im Winter ca. 7,5–10 % und stellten somit v. a. im Winter eine nicht zu vernachlässigende Quelle von PM dar. Ebenfalls bedeutende Anteile ergaben sich für Krustenmaterial, das im Sommer ca. 10–23 % (Mediane der Stationen) und im Winter ca. 6–14 % der PM₁₀-Masse erklärt. Hinsichtlich der Massekonzentrationen eher unbedeutend sind Pilzsporen und Material aus Bremsverschleiß, für die über die entsprechenden Markerverbindungen mittlere PM₁₀-Anteile von maximal bis zu 1 % ermittelt wurden.

Die Ergebnisse der hier verwendeten Methoden werden in Kapitel 3.8 mit denen aus anderen Quellzuordnungsansätzen verglichen.

3.7 Quellbeiträge aus PMF

3.7.1 Vorbemerkungen

Im Folgenden wird eine Zuordnung der Quellen der PM-Belastung an den Standorten des Projektes mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) vorgenommen. Die PMF stellt ein weitverbreitete Methode der multivariaten Faktoranalyse dar, mit der basierend auf den Messungen zur chemischen Zusammensetzung der Partikel eine Reihe von Faktoren extrahiert werden kann, die als PM-Quellen interpretiert werden können. Für jeden dieser Faktoren kann die Massekonzentration angegeben werden, die (im PMF-Modell) von der jeweils zugeordneten Quelle verursacht wird. Für Details zur Methode wird auf entsprechende Literatur verwiesen (PAATERO & TAPPER 1994; BELIS et al. 2014; NORRIS et al. 2014; PAATERO et al. 2014).

Zur Umsetzung wurde die Software „EPA PMF Version 5“ verwendet, die von der US-amerikanischen Umweltbehörde EPA frei zugänglich erhältlich ist (<http://www2.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses>). Dieser liegt die sogenannte „Multilinear Engine 2“ (ME-2) zugrunde, die die eigentlichen mathematischen Operationen ausführt. Die finalen Ergebnisse (chemische Profile der Faktoren, Zeitreihen der Quellbeiträge, Korrelationen mit anderen Parametern) wurden anschließend extern aufbereitet.

3.7.2 Datenvorbereitung

Die PMF wurde für jede der fünf Impaktorstufen separat berechnet, um auch Quellen aufzulösen, deren Beiträge nur in bestimmten Partikelgrößenbereichen relevant sind. Hierfür wird neben den Konzentrationen der bestimmten Partikelbestandteile auch eine Matrix ihrer jeweiligen Unsicherheiten benötigt, die als Wichtungsfaktoren mit in die PMF eingehen, um den Einfluss von Messwerten mit hoher Unsicherheit, z. B. nahe der Nachweisgrenze, abzuschwächen. Die Unsicherheit eines Messwertes wurde aus drei Komponenten bestimmt:

- Unsicherheit der Nachweisgrenze (definiert als 5/6 der NWG, BELIS et al. [2014])
- Unsicherheit der analytischen Konzentrationsbestimmung (definiert als Standardabweichung von Wiederholmessungen)
- Unsicherheit des Feldblindwertes (definiert als 3 x Standardabweichung des FBW)

Die Gesamtunsicherheit wurde nach Gaußscher Fehlerfortpflanzung als Wurzel aus der Quadratsumme der einzelnen Unsicherheiten berechnet und in der Unsicherheitsmatrix in $\mu\text{g m}^{-3}$ für jedes Element der Konzentrationsmatrix angegeben. Messwerte nahe der analytischen Nachweisgrenze oder nahe dem bestimmten Feldblindwert besitzen somit eine deutlich höhere Unsicherheit und ein entsprechend geringeres Gewicht in der PMF-Lösung.

Weil Nullwerte in der Konzentrationsmatrix nicht erlaubt sind, wurden Messwerte ohne analytisches Signal (z. B. kein Peak in der Ionenchromatographie) ersetzt durch 0.5 x NWG der jeweiligen Verbindung (BELIS et al. 2014). Fehlende Messwerte einzelner Verbindungen (z. B. aufgrund von Gerätefehlern bei einzelnen Messungen) wurden ersetzt durch den Median der Verbindung innerhalb der jeweiligen Standort/Jahreszeit-Kategorie (z. B. Median Chlorid an LMI im Sommer). Ihre Unsicherheit wurde auf 4 x Median der Konzentration gesetzt, wodurch sie keinen Einfluss auf die PMF-Lösung mehr besitzen (NORRIS et al. 2014). Geringfügig negative Konzentrationen (z. B. durch den Abzug des mittleren Feldblindwertes) sind bei der PMF erlaubt und wurden beibehalten, weil ihr Ersetzen durch einen konstanten positiven Wert die Variabilität des Datensatzes unnötig reduziert (BELIS et al. 2014). Es wurde überprüft und sichergestellt, dass die Unsicherheiten negativer Konzentrationen immer auch den Nullwert mit einschließen.

Verwendete PM-Bestandteile

Partikelbestandteile mit sehr geringer Datendichte (nur einzelne Proben > NWG) wurden für die PMF nicht berücksichtigt. Um die Übersichtlichkeit der Ergebnisse zu verbessern, wurden weiterhin in der Gruppe der organischen Einzelverbindungen nicht alle Alkane, PAK und Hopane berücksichtigt. Bei der Auswahl wurde jedoch darauf geachtet, möglichst keine Variabilität im Datensatz zu verlieren, d. h. nur Verbindungen zu streichen, die sehr stark mit anderen korreliert sind. In Tabelle 30 sind die verwendeten Partikelbestandteile und ihre charakteristischen Quellkategorien wiedergegeben.

Tabelle 30: Für die Rezeptormodellierung mittels PMF verwendete PM-Bestandteile mit ihrer Kategorisierung im EPA-PMF-Programm und ihren typischen Quellkategorien

Spezies	Kategorie in EPA PMF	Typische Quellkategorien
Masse	"weak" auf allen Stufen	Gesamtvariable
Ammonium		NH ₃ , Verbrennungsprozesse, Landwirtschaft
Nitrat		NO _x , Verbrennungsprozesse
Sulfat		SO ₂ , Verbrennungsprozesse, Photochemie
WSOC		Biomasseverbrennung, Photochemie
WISC		Verbrennungsprozesse, primäres biologisches Material
Natrium	"weak" auf St. 5, "bad" auf St. 1,2,3	Seesalz, Krustenmaterial
Magnesium	"bad" auf St. 1,2,3	Seesalz, Krustenmaterial
Chlorid	"weak" auf St. 3, "bad" auf St. 1	Seesalz, Verbrennungsprozesse
Oxalat		Photochemie
Levoglucosan		Biomasseverbrennung
Arabitol	"bad" auf St.1,2,3	primäres biologisches Material
Alkane C22-C34		primäres biologisches Material, Verbrennungsprozesse
FLU	"bad" auf St. 5	
PYR	"bad" auf St. 5	
RET	"bad" auf St. 5	
BNTHIO	"bad" auf St. 5	
CCPYR	"bad" auf St. 5	Verbrennungsprozesse
BkFLU		
BePYR		
BaPYR		
BghiPER	"bad" auf St. 5	
NHOP	"bad" auf St. 4,5	
abHOP	"weak" auf St. 4,5	Verbrennungsprozesse (Verkehr und Kohle)
ab22SHHOP	"bad" auf St. 4,5	
ab22RHOP	"bad" auf St. 4,5	
K		
Ca		
Ti		
Mn		
Fe		
Cu		
Zn		
As		Verbrennungsprozesse, Krustenmaterial, industrielle Emissionen
Se	"bad" auf St. 5	
Ba		
Pb		
Ni	"bad" auf St.1,3	
Cr		
Sr	"bad" auf St.1,2,3	
Sn	"weak" auf St. 1,2,4	

Manche der Verbindungen konnten aufgrund zu geringer Datendichte (zu wenige Konzentrationen über ihrer jeweiligen Unsicherheit, d. h. zu schlechtes Signal-zu-Rausch-Verhältnis) oder eines negativen Einflusses auf das PMF-Ergebnis (keine befriedigende Modellierung der Messwerte möglich) auf manchen Impaktorstufen nicht für die PMF-Berechnungen verwendet werden und wurden in der EPA-PMF-Software als „bad“ (schlecht, nicht zu verwenden) kategorisiert. Einzelne Verbindungen wurden auf manchen Stufen aus ähnlichen Gründen abgewertet und als „weak“ kategorisiert (ihre Unsicherheit wird verdreifacht in EPA PMF). Die Masse als erklärende Gesamtvariable wird grundsätzlich als „weak“ kategorisiert, um ihren Einfluss auf das Ergebnis gering zu halten (NORRIS et al. 2014).

Aufgrund der Problematik von Verkohlungsprozessen bei der OC/EC-Bestimmung und der damit verbundenen Unsicherheit dieser Messwerte von Berner-Folien (keine Korrektur des „charring“ durch optische Verfahren möglich) wurde für die PMF der wasserlösliche organische Kohlenstoff (water-soluble organic carbon, WSOC) und der wasserunlösliche Kohlenstoff (water-insoluble carbon, WISC) verwendet. WSOC ist eine Teilmenge von OC, die aufgrund ihrer Definition („wasserlöslich“) artefaktfrei bestimmt werden kann. WISC ist dann der gesamte übrige Kohlenstoff und wurde berechnet aus der Differenz von TC (= OC + EC) und WSOC. WISC enthält im Wesentlichen Ruß sowie sehr unpolare und damit nicht wasserlösliche organische Stoffe. WISC kann als ganz überwiegend primär emittiert angesehen werden, während WSOC im Sommer überwiegend sekundär gebildet wird, im Winter jedoch in beträchtlichem Maße auch aus der Biomasseverbrennung stammen kann.

Verwendete Proben

Für die PMF wurden zunächst alle Proben des aktuellen Projektes verwendet, die auch in den übrigen Kapiteln des Berichtes ausgewertet wurden (d. h. ohne die ersten 11 Sommerproben, bei denen es Probleme mit der Pumpe an LMI gab). Hierbei wurden die Proben der vier Standorte „gepoolt“, d. h. gemeinsam als Input für die PMF verwendet, um eine statistisch ausreichend große Menge von Beobachtungen zu generieren (174 statt nur 43 oder 44 bei separater Betrachtung der Stationen). Dieses Vorgehen wird für Datensätze mit relativ geringer Anzahl von Beobachtungen, aber paralleler Beprobung an verschiedenen Standorten empfohlen (BELIS et al. 2014). Quellen, die nur an einzelnen der Standorte aktiv sind, konnten dennoch vom Modell aufgelöst werden, wie unten gezeigt wird.

In den finalen Lösungen wurde die Probe vom 25.09.2013 an Station LMI nicht berücksichtigt, weil sie für einzelne Metalle und für die Massekonzentration extrem hohe Werte zeigte, die im Modell nicht angemessen durch eine Quelle abgebildet werden konnten und einen negativen Einfluss auf die Profile der identifizierten Quellen hatte. Vermutlich wurden diese Ausreißerkonzentrationen durch lokale Baumaßnahmen verursacht, die von Quarzfaserfiltern bestimmte PM₁₀-Massekonzentration an LMI betrug an diesem Tag 153 µg m⁻³, während sie an anderen Stationen des LfULG-Messnetzes sehr viel geringer war.

3.7.3 Anzahl der Faktoren

Ein wichtiger Punkt bei der PMF ist die Anzahl der Faktoren (d. h. Quellen), die zur Beschreibung des Datensatzes verwendet werden sollen. Diese muss vom Anwender vorgegeben werden, objektive Kriterien für diese Festlegung existieren nicht. Es gibt verschiedene mathematische und physikalische Kriterien, die in die Entscheidung über die Anzahl der Faktoren mit einfließen (BELIS et al. 2014):

- Q/Qexp: Gibt an, wie weit die Lösung vom theoretisch erwartbaren Q-Wert (Q_{expected}) entfernt ist. Nimmt grundsätzlich mit zunehmender Anzahl Faktoren ab. Wenn es ab einer bestimmten Anzahl nur noch kleine Änderungen gibt, kann dies ein Hinweis auf die optimale Anzahl von Faktoren sein.

- Verteilung der normierten Residuen: Die mit der jeweiligen Unsicherheit gewichteten und normierten Residuen der einzelnen Elemente (Bestandteil i der Probe j) sollten möglichst innerhalb ± 3 annähernd normal verteilt sein.
- Die Lösung sollte die Gesamtvariable Masse gut abbilden (d. h. gute Korrelation zwischen berechneter und beobachteter Masse).
- Auch die Variabilität der einzelnen Bestandteile sollte in der Lösung gut wiedergegeben werden (Korrelation, Zeitreihe berechnet vs. beobachtet). Hier kann es für einzelne Bestandteile zu deutlichen, aber akzeptablen Abweichungen kommen, wenn z. B. für ein Metall nicht alle Quellen vom Modell aufgelöst werden können und die berechneten Konzentrationen daher durchgängig oder an bestimmten Standorten/Zeiten unter den beobachteten bleiben.
- Die chemischen Profile der Faktoren müssen physikalisch interpretierbar sein, d. h. man muss dem Profil eine plausible Quelle zuordnen können. Bei zu hoher Anzahl von Faktoren ist dies nicht mehr gegeben.
- Die Beiträge des Faktors zur Gesamtvariablen (Massekonzentration des Faktors) müssen an den jeweiligen Standorten und in den verschiedenen Jahreszeiten plausible Profile (zeitliche Verläufe) ergeben (z. B. Konzentrationsverlauf von Verkehrs- zu Hintergrundstation oder Saisonalität der Quellkonzentration). Weiterhin sollten sie – wo möglich – sinnvoll mit externen Parametern korreliert sein.

Unter Berücksichtigung dieser Vorgaben wurde in dieser Arbeit eine Vielzahl von PMF-Lösungen mit i. d. R. drei bis zwölf Faktoren und unter Variation der Kategorisierung („weak“ oder „bad“) einzelner kritischer Bestandteile miteinander verglichen. Die exakte Festlegung auf die Anzahl der Faktoren unterliegt bei der PMF und ähnlichen Methoden grundsätzlich einer gewissen Subjektivität. In dieser Arbeit wurde die Anzahl von Faktoren als zu gering eingeschätzt, wenn sich eine nur mäßig gute Beschreibung der Massekonzentration bzw. einzelner (charakteristischer) Markerverbindungen damit erzielen ließ, selbst wenn die Faktoren schon (groben) Quellkategorien zugeordnet werden konnten.

Als zu hoch wurde die Anzahl von Faktoren eingeschätzt, wenn nicht mehr alle Faktoren physikalisch sinnvoll interpretiert werden konnten, selbst wenn sich die Beschreibung der Variabilität von Masse oder einzelnen Markerverbindungen noch etwas verbesserte.

3.7.4 Übersicht über Faktoren und ihre Interpretation

In den verschiedenen Partikelgrößenbereichen konnten mittels PMF insgesamt 13 Quellen anhand ihrer chemischen Profile und ihrer Konzentrationszeitreihen (Saisonalität, Anströmung) an den vier Standorten des Projektes identifiziert werden. Die Anzahl der Faktoren auf den einzelnen Impaktorstufen liegt bei 7 bis 9 (Stufe 1 bis 3: 7, Stufe 4: 9, Stufe 5: 8), weil nicht alle 14 Quellen in allen Partikelgrößenbereichen vorhanden sind (bzw. in manchen Fällen nicht vom Modell aufgelöst werden konnten). In Tabelle 31 sind diese Quellen angegeben, zusammen mit den Partikelgrößenbereichen, in denen sie gefunden wurden, ihren Hauptbestandteilen (bezogen auf Masse), sowie charakteristischen chemischen Spezies im Profil, die für die Interpretation hauptsächlich verwendet wurden (neben den Zeitreihenprofilen an den Standorten).

Tabelle 31: Übersicht über mittels PMF identifizierte PM-Quellen, Partikelgrößenbereiche, in denen sie vom Modell aufgelöst wurden und ihre Hauptbestandteile sowie charakteristischen Marker

Quelle	Abk.	Größenbereiche	Hauptbestandteile	Weitere Marker	Anmerk.
Verkehrsabgase ultrafein	Abg.UFP	0,05-0,14 µm	WISC	Hopane, n-Alkane kurzkettig	direkte Auspuffemissionen, ultrafeine Partikel
Verkehrsabgase grob	Abg.grob	1,2-3,5 µm 3,5-10 µm	WISC	Hopane, n-Alkane geradzahlig	Auspuffemissionen, grobe Partikel
Verkehr allgemein	Verkehr	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm 1,2-3,5 µm 3,5-10µm	WISC, (Fe)	Cu, Ba	v.a. indirekte Emissionen (Abrieb + Aufwirbelung)
Kochaktivitäten	Kochen	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm	WISC	n-Alkane ungeradzahlig	Emissionen aus Braten, Frittieren etc.
Photochemische Bildungsprozesse	Ph.chem.	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm	Sulfat, WSOC	Oxalat	
Kohleverbrennung Ferntransport	Kohle	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm 1,2-3,5 µm 3,5-10µm	WISC, Sulfat	PAKs, As	eher Ferntransport als lokal
Kohleverbrennung lokal	lok.Kohle	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm	WISC	Hopane	v. a. an EIB
Biomasseverbrennung	BB	0,05-0,14 µm 0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm 1,2-3,5 µm 3,5-10µm	WISC,WSOC	Levoglucosan, K	
Sekundäres anorganisches Aerosol	SIA	0,14-0,42 µm 0,42-1,2 µm 1,2-3,5 µm	Nitrat, Ammonium, Sulfat		
Aufwirbelung von städtischem Staub	Staub	1,2-3,5 µm 3,5-10 µm	Nitrat, WSOC	n-Alkane ungeradzahlig, Mg ²⁺ , Ca, Oxalat	
Pilzsporen	Sporen	1,2-3,5 µm 3,5-10 µm	WISC, WSOC	Arabitol	
See- und Streusalz	Seesalz	1,2-3,5 µm 3,5-10 µm	Cl ⁻ , Na ⁺	Mg ²⁺	
Gealtertes Seesalz	Sees.gealt.	1,2-3,5 µm 3,5-10 µm	Nitrat	Na ⁺ , Mg ²⁺	

In Abbildung 62 sind die chemischen Profile der 13 Quellen für alle Stufen zusammengefasst. Die Balken geben hierbei den anteiligen Beitrag der jeweiligen Spezies zur Gesamtfaktormasse wieder (Konzentration der Spezies im Faktor/Summe der Konzentrationen aller Spezies im Faktor; berechnet ohne Gesamtvariable „Masse“). An ihnen lässt sich erkennen, woraus die Partikel der Quelle massenmäßig überwiegend bestehen.

Die Punkte geben den anteiligen Beitrag der jeweiligen Spezies zu seiner Gesamtmasse (Konzentration der Spezies im Faktor/Summe der Konzentrationen dieser Spezies über alle Faktoren) wieder. Sie zeigen, in welchem Faktor sich charakteristische Marker v. a. wiederfinden.

Die fünf untersuchten Partikelgrößenbereiche sind farblich unterschieden und die dem Profil zugeordnete Quelle am rechten Rand mit ihrer Abkürzung (s. Tabelle 31) angegeben.

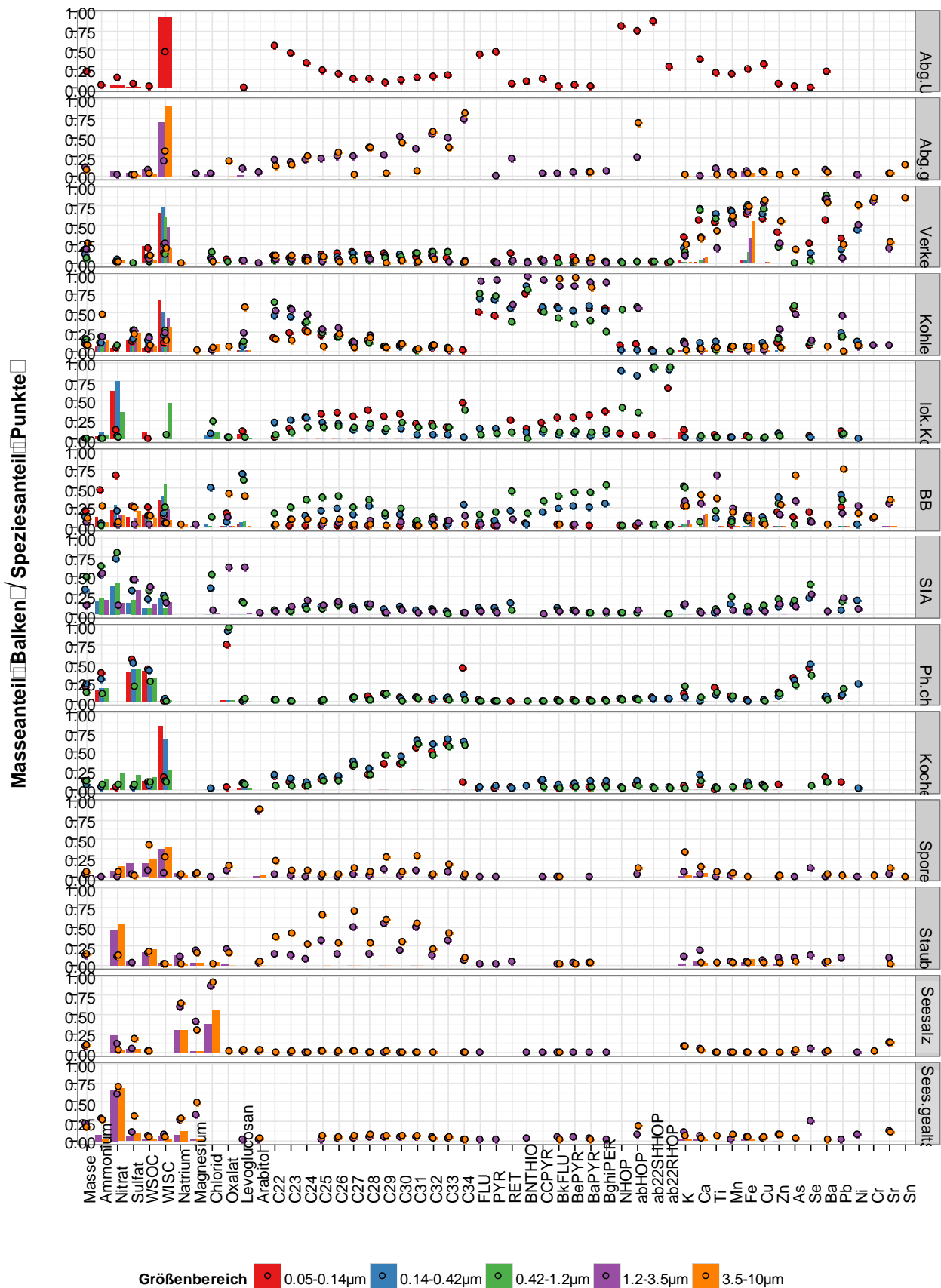


Abbildung 62: Chemische Profile der PMF-Faktoren in den 5 Partikelgrößebereichen des BERNER-Impaktors (Farbe) mit ihrer Zuordnung zu einer Quelle (rechts). Balken zeigen den Anteil der Spezies an der Gesamtfaktormasse (Σ über Spezies im Faktor = 1), Punkte zeigen den Anteil der Spezies an ihrer Gesamtkonzentration im Partikelgrößebereich (Σ über Faktoren für Spezies = 1).

Es ist erkennbar, dass sich die Profile einer Quelle grundsätzlich in den verschiedenen Partikelgrößenbereichen sehr ähnlich sind, d. h. die Zuordnung der Faktoren zu den jeweiligen Quellen konsistent ist. In manchen Fällen kann es in den konkreten anteiligen Beiträgen jedoch auch deutliche Abweichungen geben, die verschiedene Ursachen haben können. Massebeiträge können sich unterscheiden, wenn die Quelle auf den verschiedenen Impaktorstufen unterschiedlich gut aufgelöst ist (d. h. getrennt von anderen, ähnlichen Quellen). Speziesbeiträge können sich unterscheiden, wenn sich ein und dieselbe Verbindung in verschiedenen Partikelgrößenbereichen auf eine unterschiedlich große Anzahl von Quellen verteilt.

In Abbildung 63 werden die Konzentrationen bzw. Quellbeiträge der verschiedenen Faktoren als „Zeitreihe“ (chronologisch sortierte Proben, jedoch stark heterogene zeitliche Abstände zwischen einzelnen Werten aufgrund der diskontinuierlichen Probenahme im Projekt) an den vier Standorten gezeigt. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden die Quellbeiträge in den verschiedenen Partikelgrößenbereichen (versch. Farben) normiert (Mittelwert aller Quellbeiträge = 1). Die tatsächlichen Quellbeiträge sind weiter unten in den näheren Diskussionen der Quellen gezeigt.

In Abbildung 63 lässt sich erkennen, dass die Quellbeiträge i. d. R. sehr ähnliche zeitliche Verläufe in den verschiedenen Partikelgrößenbereichen aufweisen, was wiederum die Quellzuordnung der einzelnen Faktoren bestätigt. Ähnlich wie bei den Faktorprofilen kann es auch bei den normierten Quellbeiträgen zu gewissen Abweichungen kommen, die jedoch insgesamt als unkritisch angesehen werden.

Im Folgenden wird die Zuordnung der Faktoren zu den genannten 13 Quellen basierend auf chemischen Profilen, Konzentrations-Zeitreihen und weiterer Daten (Meteorologie, Rückwärtstrajektorien, Spurengase) begründet. Die Quellen werden hierzu in vier Quellkategorien sortiert: Verkehrsemissionen, (weitere) Verbrennungsemissionen, sekundäre Bildung und primäre natürliche Quellen.

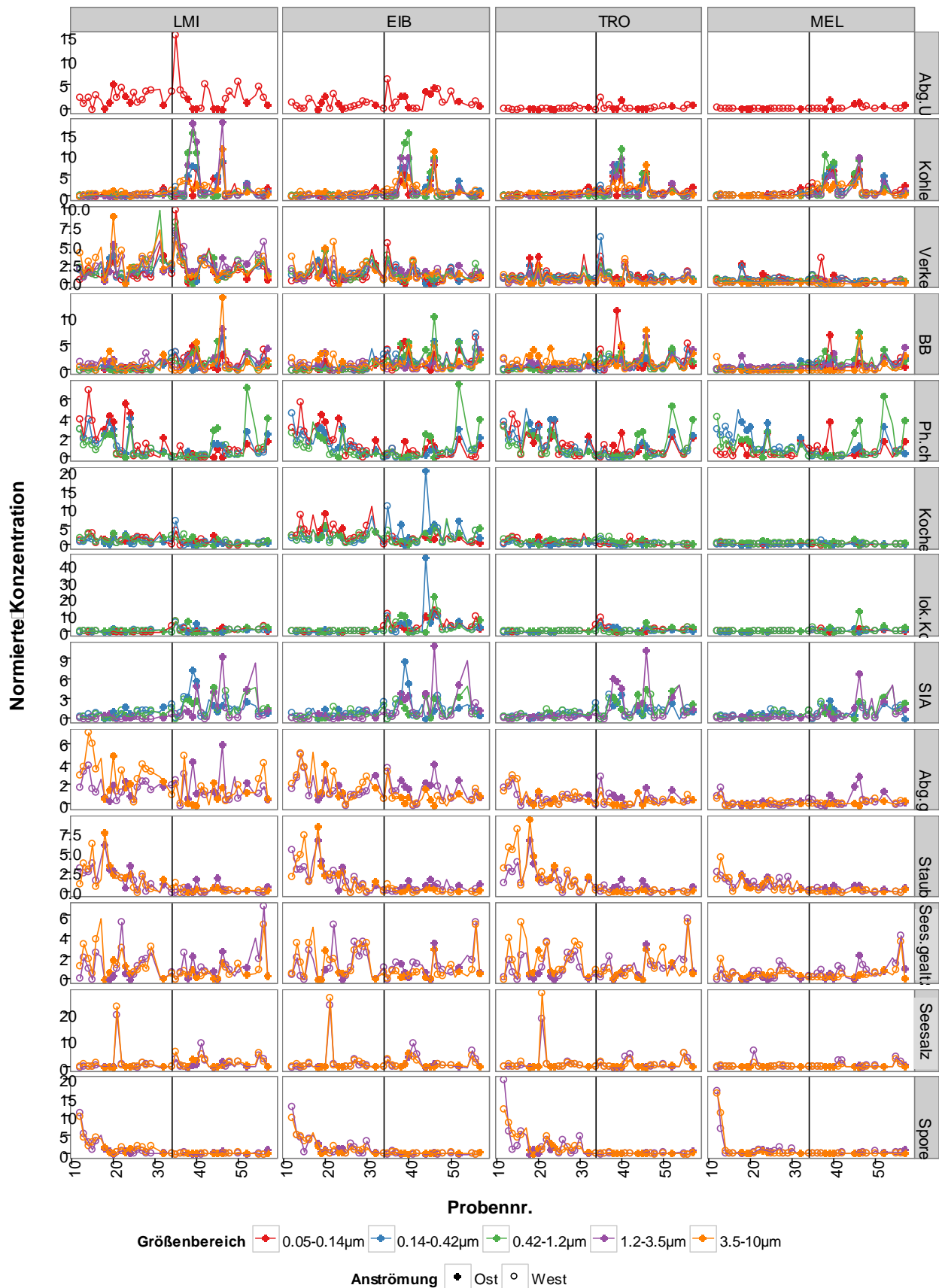


Abbildung 63: Normierte Konzentrationen (Mittelwert im Faktor = 1) der mittels PMF den identifizierten Quellen zugeordneten PM-Masse in den 5 Partikelgrößenbereichen des BERNER-Impaktors (Farbe) an allen 4 Standorten. Die Probennummern sind pro Station chronologisch sortiert, die schwarze Linie bei Probe Nr. 34 zeigt jeweils den Beginn der Wintermessungen.

3.7.5 Verkehrsemissionen

In Abbildung 64 sind die chemischen Profile der drei verkehrsbezogenen Quellen „ultrafeine Abgaspartikel“, „grobe Abgaspartikel“ und „Verkehrspartikel allgemein“ gezeigt. Deutlich erkennbar ist, dass diese in fast allen Größenbereichen überwiegend aus wasserunlöslichem Kohlenstoff bestehen (WISC, d. h. EC + unpolare Kohlenwasserstoffe). In besonderem Maße gilt dies für die beiden direkten Emissionsquellen, bei denen der WISC-Anteil an der gesamten Faktormasse bei > 70 % lag.

Die ultrafeine Abgasquelle ist zudem gekennzeichnet durch hohe Speziesbeiträge der Hopane (> 75 %, d. h. Hopane auf Impaktorstufe 1 sind ganz überwiegend dieser Quelle zugeordnet) und zunehmende Speziesbeiträge mit abnehmender Kettenlänge bei den n-Alkanen. Der Homohopanindex ($\frac{\text{ab22SHHOP}}{\text{ab22SHHOP} + \text{ab22RHOP}}$) für diese Quelle ist 0,47 und damit deutlich näher am typischen Verhältnis für Mineralölverbrennung (ca. 0,6) als an dem für Braunkohleverbrennung (ca. 0,1 [SCHNELLE-KREIS et al. 2007]). Der CPI (berechnet aus C22-C34) liegt mit 1,6 ebenfalls nahe an typischen Werten fossiler Brennstoffe (Werte nahe 1).

Die groben Abgaspartikel sind neben dem hohen WISC-Gehalt charakterisiert durch zunehmende Speziesbeiträge mit zunehmender n-Alkankettenlänge (CPI 2,2 auf Stufe 4 und 0,7 auf Stufe 5) und deutlichen Speziesbeiträgen (ca. 25 und 70 %) des einzigen Hopans, das in den groben Partikelgrößenbereichen für die PMF verwendet werden konnte (abHOP). Rußpartikel im groben Größenbereich entstammen im Gegensatz zu ultrafeinen Partikeln nicht direkt dem Verbrennungsprozess im Motor, sondern werden durch Ablagerung kleinerer Partikel im Verbrennungskolben oder Abgassystem und anschließender Re-Emission gebildet (KITTELSON 1998). Es scheint daher plausibel, dass ihr n-Alkanmuster sich von dem der direkt emittierten ultrafeinen Rußpartikel unterscheidet. Typischerweise beträgt der Masseanteil supermikroner Partikel am Gesamtdieseluß 5 bis 20 %, während das Maximum der Massegrößenverteilung bei ca. 0,1 bis 0,3 µm liegt (KITTELSON 1998).

In der allgemeinen Verkehrsquelle ist deutlich ein Trend abnehmender WISC-Masseanteile und zunehmender Eisen-Masseanteile mit zunehmender Partikelgröße zu erkennen. Dies kann herrühren von unterschiedlich hohen Beiträgen verschiedener direkter und indirekter Verkehrsemissionen zum Faktor (Bremsabrieb, Reifenabrieb, Straßenabrieb, Resuspension von Straßenstaub etc.), verschiedener chemischer Zusammensetzung der Partikel einer konkreten Quelle (z. B. kleine vs. große Bremsabriebpartikel) oder der teilweisen Vermischung von Abgas- und Nicht-Abgasemissionen im Faktor. Auf den Impaktorstufen 2 und 3 konnte auch in PMF-Lösungen mit sehr hoher Anzahl von Faktoren keine direkte Abgasquelle vom Modell aufgelöst werden, obwohl eine solche durchaus zu erwarten sein könnte. Es wird daher davon ausgegangen, dass die Quelle zum Teil auch direkte Abgasemissionen beschreibt.

Neben Eisen sind im allgemeinen Verkehrsfaktor auch die Anteile weiterer Metalle, speziell Barium und Kupfer zu ihrer jeweiligen Gesamtkonzentration (Speziesbeitrag) sehr hoch (> 50 %). Eisen ist mit ca. 1 bis 54 % (Masse) der Hauptbestandteil von Partikeln aus Bremsabrieb, Barium und Kupfer können ebenfalls bedeutende Bestandteile mit Anteilen bis zu 7,5 bzw. 3,9 % sein (THORPE & HARRISON 2008). Bremsbeläge können auch hohe Mengen kohlenstoffhaltiges Material enthalten (Gummi, Klebemittel, Additive, Kohlefasern etc.). Bremsabrieb generiert Partikel in einem weiten Größenbereich (einige hundert nm bis größer 10 µm [THORPE & HARRISON 2008]), ihr Masseanteil kann je nach Studie jedoch selbst im ultrafeinen Partikelgrößenbereich beträchtlich sein (8 bis 33 % [THORPE & HARRISON 2008]).

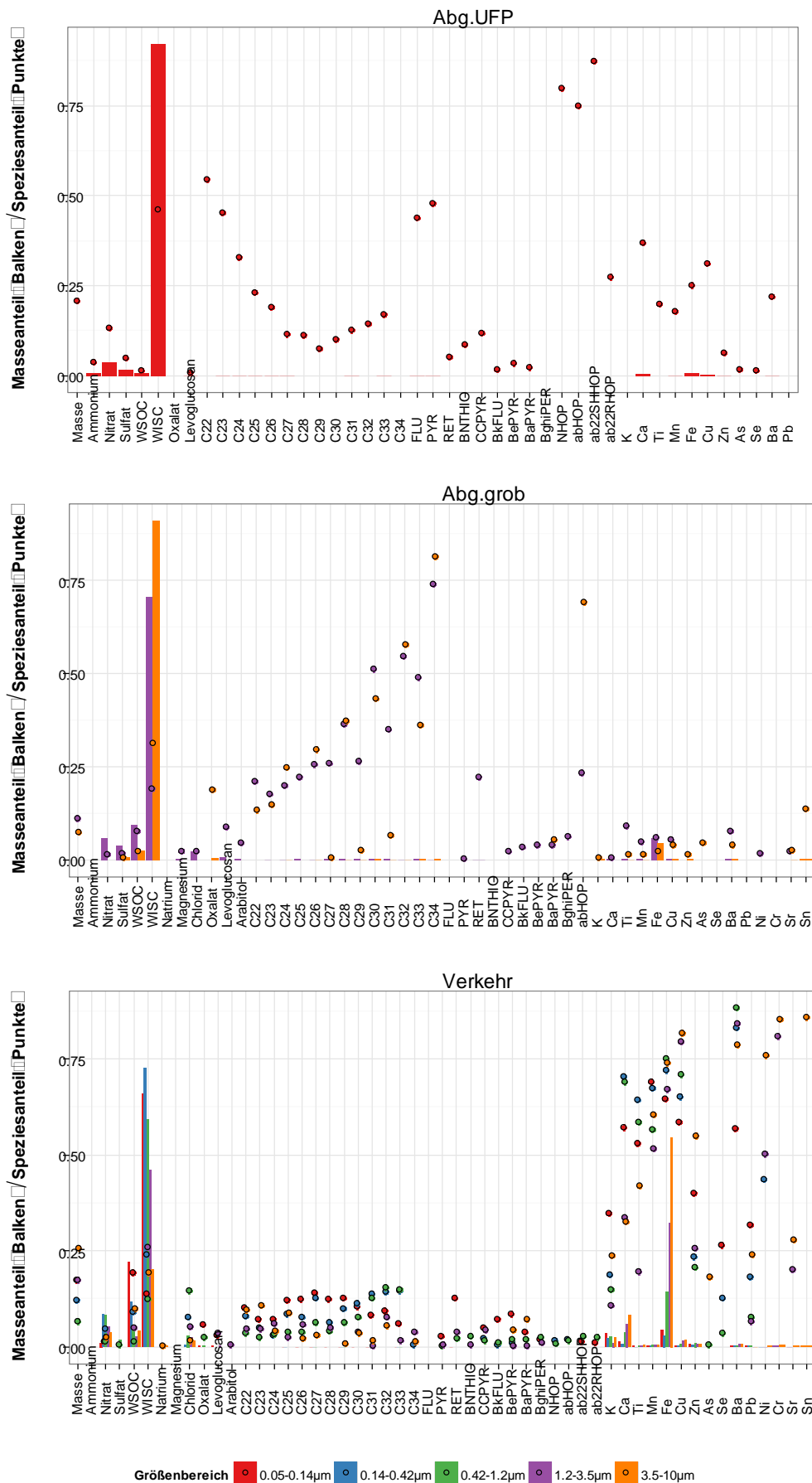


Abbildung 64: Chemische Profile der 3 Verkehrsquellen „ultrafeine Abgaspartikel“ (oben), „grobe Abgaspartikel“ (Mitte) und „Verkehr allgemein“ (unten); Masse- und Speziesanteile wie in Abbildung 62

Auch Reifenabrieb kann zu den hohen WISC-Masseanteilen im Faktor beitragen. Zink ist ein häufig verwendetes Markerelement für Reifenabrieb (PANT & HARRISON 2013), weil es mit bis zu 1 Masseprozent in solchen Partikeln gefunden wurde (THORPE & HARRISON 2008) und zeigt im Faktor erhöhte Speziesbeiträge von ca. 25 bis 55 %. In Laboruntersuchungen zu Reifenemissionen wurden Partikel im Größenbereich < 100 nm bis > 30 μ m gemessen, wobei davon ausgegangen wird, dass feine und ultrafeine Partikel sich v. a. aus der Volatilisierung und Rekondensation flüchtiger Reifenbestandteile bilden, während der mechanische Abrieb hauptsächlich grobe Partikel bildet (THORPE & HARRISON 2008; KUMAR et al. 2013).

Die auf den Impaktorstufen 1 und 2 überraschend hohen WSOC-Massebeiträge im Faktor könnten auf ein Messartefakt zurückzuführen sein. Der wässrige Partikelextrakt wird vor der WSOC-Bestimmung durch Spritzenfilter mit einem Porendurchmesser von $0,45$ μ m filtriert. Sehr kleine Rußpartikel (oberer cut-off Stufe 2 ist $0,42$ μ m) können diesen möglicherweise zum Teil passieren, wodurch sie fälschlicherweise als WSOC mitbestimmt werden. Die Verwendung von Spritzenfiltern mit kleineren Porengrößen ($0,2$ μ m) war im Projekt nicht möglich, weil bislang noch kein Fabrikat solcher Filter gefunden wurde, das in Testreihen ähnlich niedrige Blindwerte (v. a. von WSOC und Ionen) zeigt wie die verwendeten $0,45$ μ m-Filter. Massebeiträge von Calcium von bis zu ca. 10 % in den größten Partikeln sind ein Indiz, dass auch Resuspension von Straßenstaub in diesem Faktor eine Rolle spielt. Neben den chemischen Profilen deuten die in Abbildung 65 gezeigten Konzentrations-Zeitprofile an den vier Stationen deutlich auf Verkehr als dominierende Quelle dieser Faktoren hin.

Ultrafeine Abgasemissionen zeigten schon im urbanen Hintergrund (TRO) kaum mehr messbare Konzentrationen. Grobe Abgaspartikel und allgemeine Verkehrsemissionen zeigten einen deutlichen Konzentrationsgradienten von den beiden Verkehrsstationen über den urbanen hin zum regionalen Hintergrund. Eine Saisonalität der Verkehrsimmissionen ist in den meisten Partikelgrößenbereichen nicht zu erkennen. Einzig auf Stufe 5 ($3,5$ – 10 μ m) waren die Konzentrationen im Winter tendenziell geringer, was durch reduzierte Aufwirbelung aufgrund nasserer Straßen begründet sein könnte. Ebenso ist keine Abhängigkeit von der großräumigen Anströmung erkennbar, Peak-Konzentrationen wurden sowohl bei West- als auch bei Ostlagen beobachtet. Diese drei Beobachtungen sind grundsätzlich konsistent mit einer stark lokal geprägten Quelle, deren Emissionsstärke im Jahresverlauf gleich bleibt.

Dennoch waren zwischen den Messtagen des Projektes teilweise deutlich unterschiedliche Konzentrationen der verkehrsbedingten Partikel zu beobachten. Eine Unterscheidung nach Werk- und Wochenendtagen (d. h. unterschiedlich hoher Verkehrsdichte an LMI und EIB) konnte dies nicht erklären (nicht gezeigt). Stattdessen war vermutlich lokale Anströmung an die Sammelgeräte die Ursache hierfür. In Abbildung 66 sind Polardiagramme gezeigt, in denen die gemessenen (bzw. vom Modell zugeordneten) Konzentrationen in Abhängigkeit von Windgeschwindigkeit und vektoriell gemittelter Windrichtung (Tagesmittel) für LMI, TRO und MEL dargestellt sind (meteorologische Daten an EIB nicht verfügbar). Als Vergleich ist jeweils auch ein Polardiagramm für NO_x (Tagesmittelwerte an den Messtagen des Projektes) gezeigt. In LMI und TRO sind sehr deutliche Ähnlichkeiten in der Windrichtungsabhängigkeit zwischen den PM-Konzentrationen aus den Verkehrsquellen und NO_x erkennbar. In LMI dominierten Verkehrsemissionen bei lokal westlicher Anströmung, während die entsprechenden Immissionen an TRO meist bei lokal südlichen Windrichtungen erhöht waren (eventuell durch Nähe zu Permoserstr.). In MEL ist ein direkter Zusammenhang zwischen NO_x und PM-Verkehrsemissionen nicht mehr zu erkennen, weil hier vermutlich andere Quellen das windrichtungsabhängige Muster von NO_x dominierten. Die Polardiagramme der Verkehrsquellen in MEL zeigten erhöhte Immissionswerte bei lokal nordöstlicher Windrichtung (allerdings wie in Abbildung 65 zu sehen auf vergleichsweise sehr niedrigem Niveau). Sowohl der Ort Melpitz (ca. $0,5$ km Luftlinie nordöstlich vom Standort) als auch die Stadt Torgau (ca. $5,5$ km Luftlinie nordöstlich) kommen als Verursacher hier in Frage.

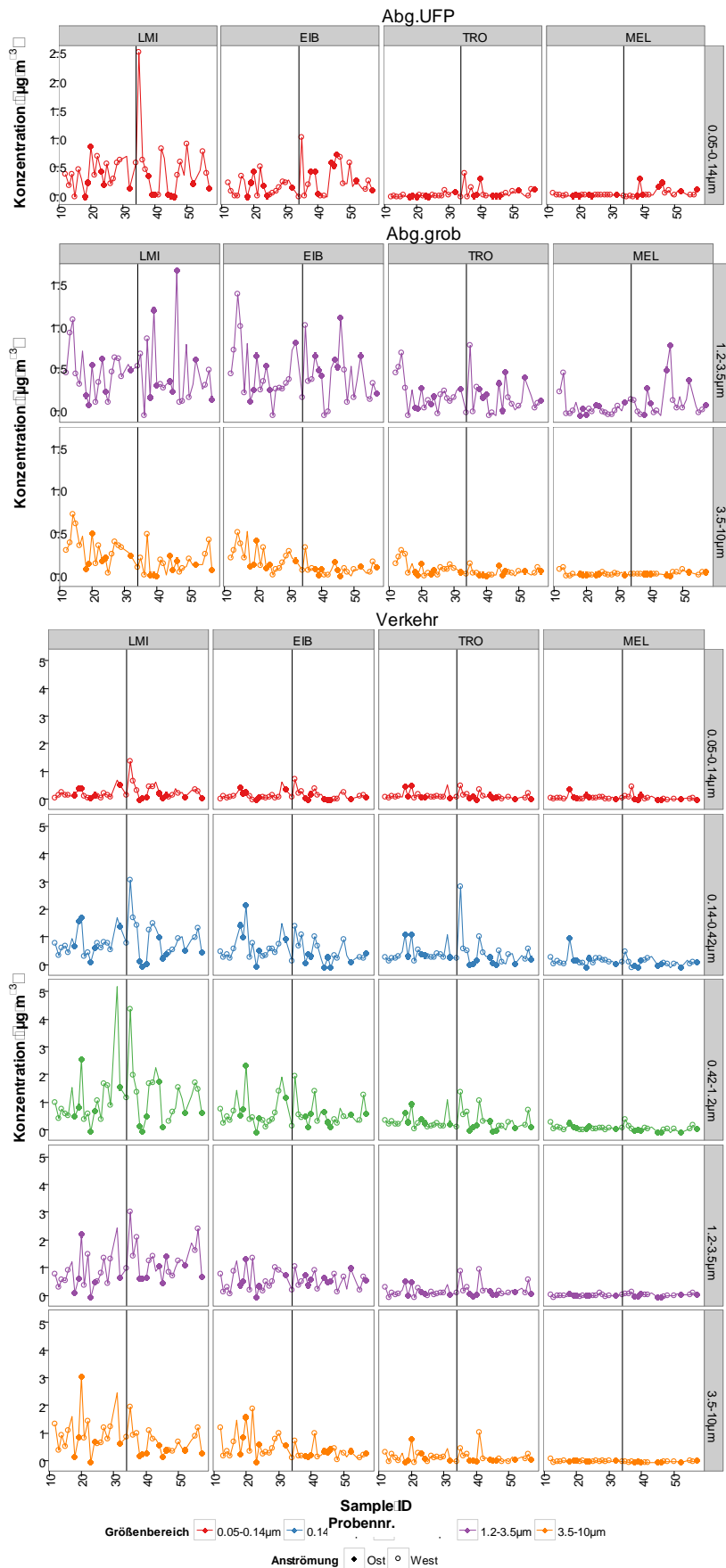


Abbildung 65: Konzentrations-„Zeitreihen“ der 3 Verkehrsquellen „ultrafeine Abgaspartikel“ (oben), „grobe Abgaspartikel“ (Mitte) und „Verkehr allgemein“ (unten) in versch. Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts)

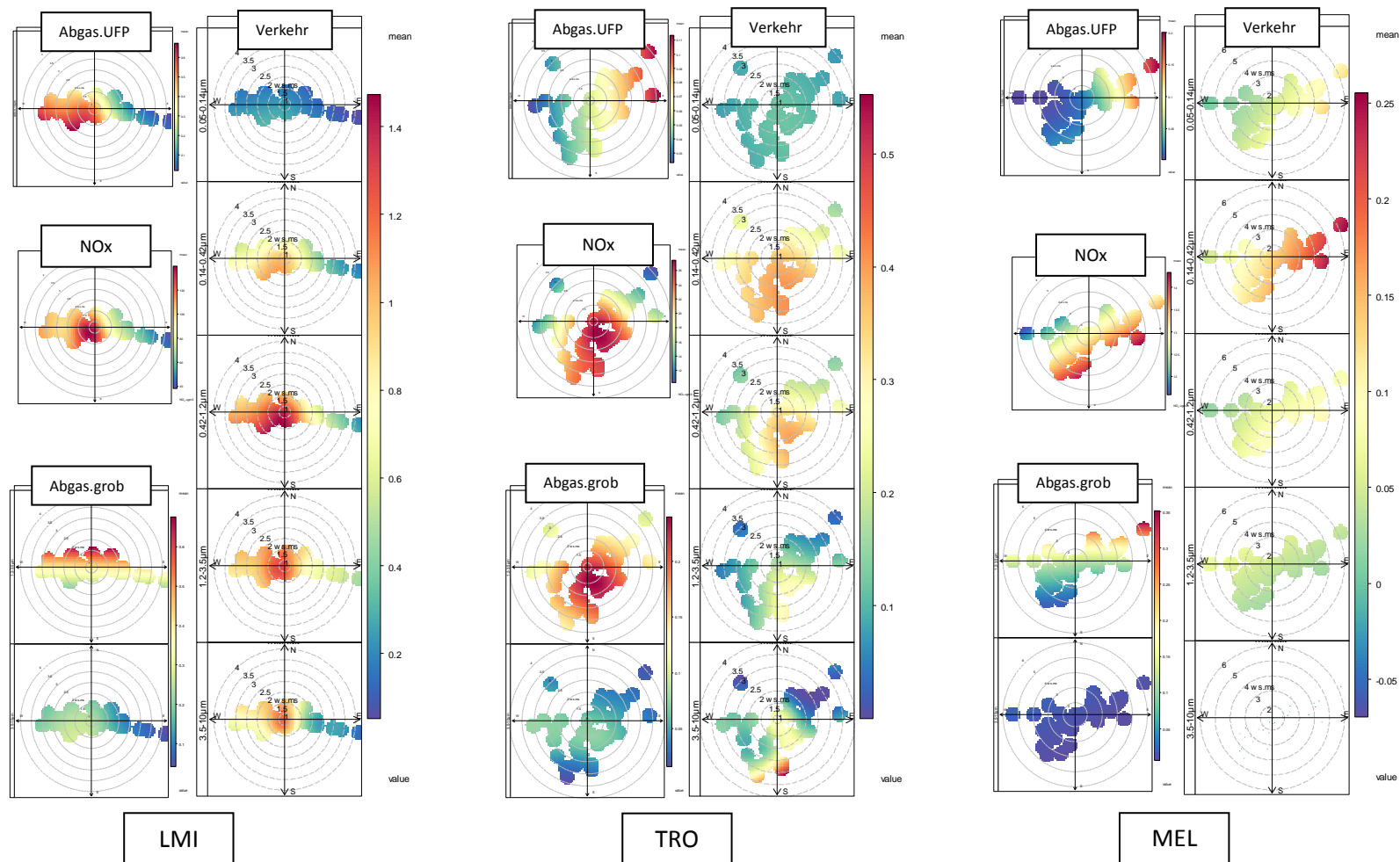


Abbildung 66: Polardiagramme für die PM-Massekonzentrationen aus den 3 PMF-Faktoren „ultrafeine Abgaspartikel“, „grobe Abgaspartikel“ und „Verkehr allgemein“ für die Stationen Leipzig-Mitte, TROPOS und Melpitz. NO_x an Messtagen zum Vergleich. Farbskala gibt Konzentration in Windgeschwindigkeit/Windrichtungs-Bins wieder (nach Glättung). Unterschiedliche Skalen in versch. Diagrammen.

Die in Abbildung 67 gezeigten Korrelationen mit NO_x zeigen einen ähnlichen Trend wie die Polardiagramme. In LMI existieren deutliche Zusammenhänge mit den PM-Konzentrationen der drei Verkehrsquellen (mit Abstrichen bei den groben Abgaspartikeln, für die neben der Verkehrsdichte bzw. Anströmung sicherlich auf das Maß an Resuspension schon deponierter Partikel eine Rolle spielte), an TRO gilt dies nur bedingt und an MEL überwiegen andere NO_x -Quellen und Korrelationen mit NO_x sind nicht mehr gegeben.

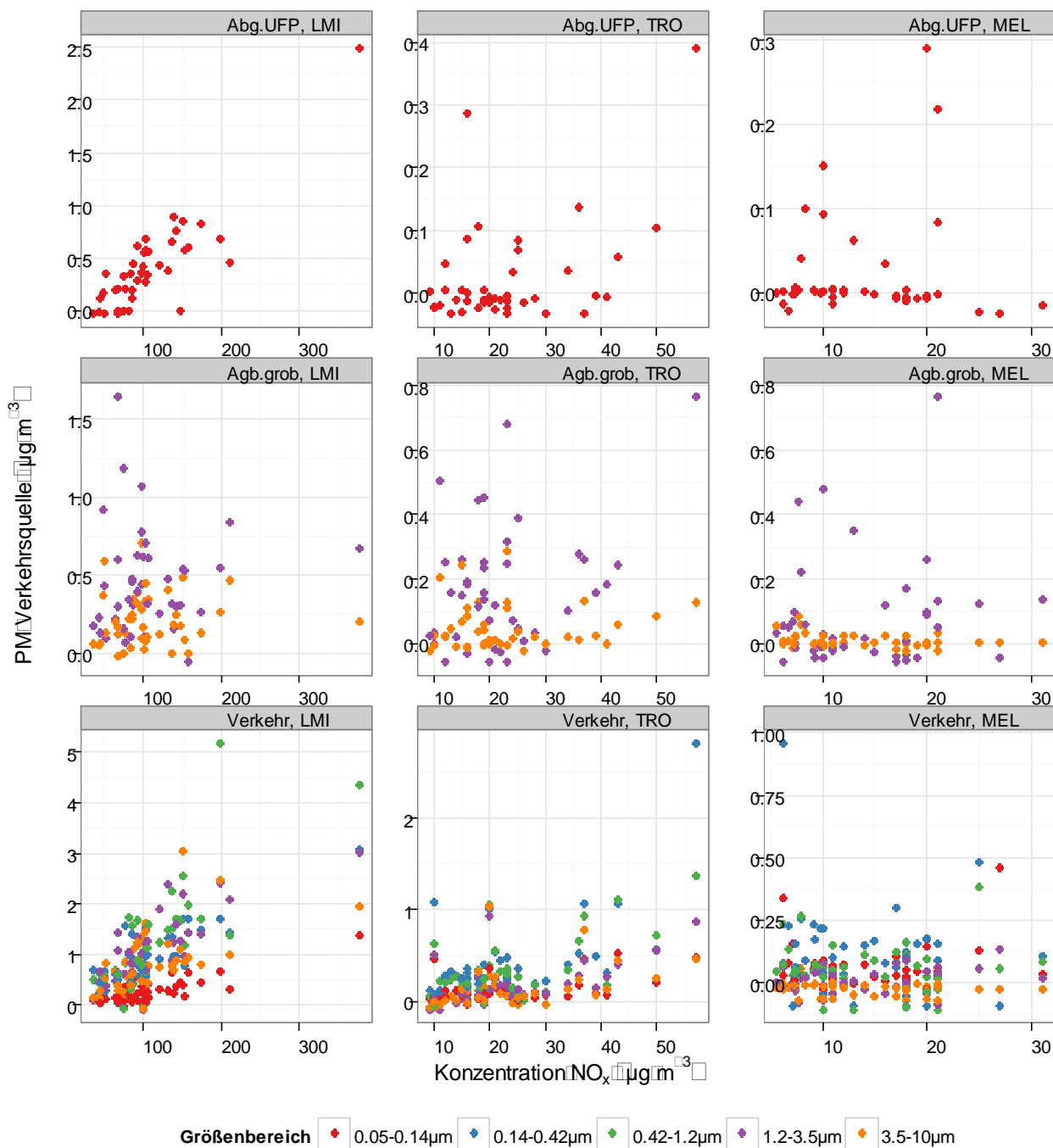


Abbildung 67: Korrelationen der PM-Konzentrationen aus den PMF-Verkehrsquellen mit NO_x an LMI, TRO und MEL

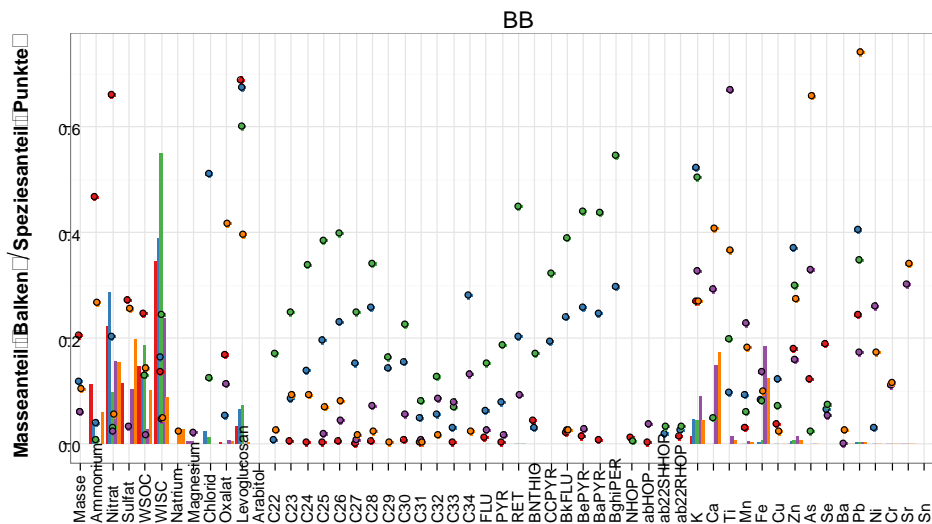
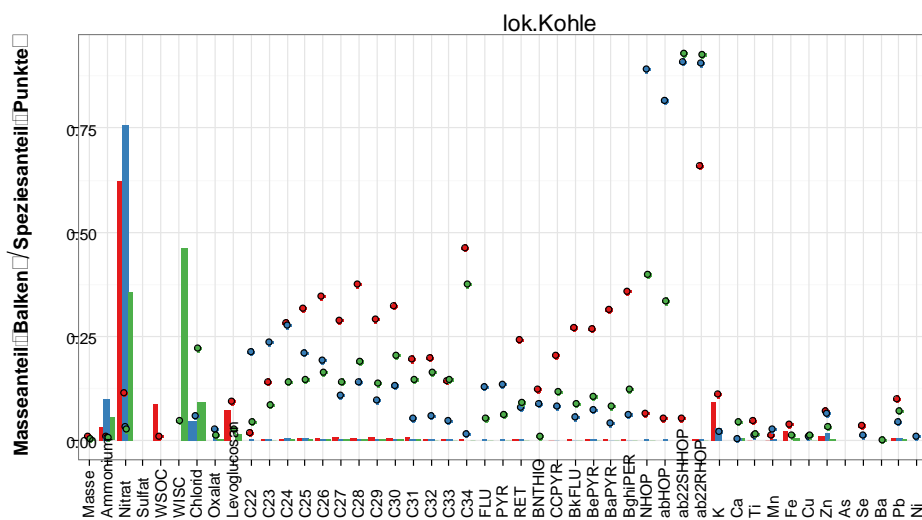
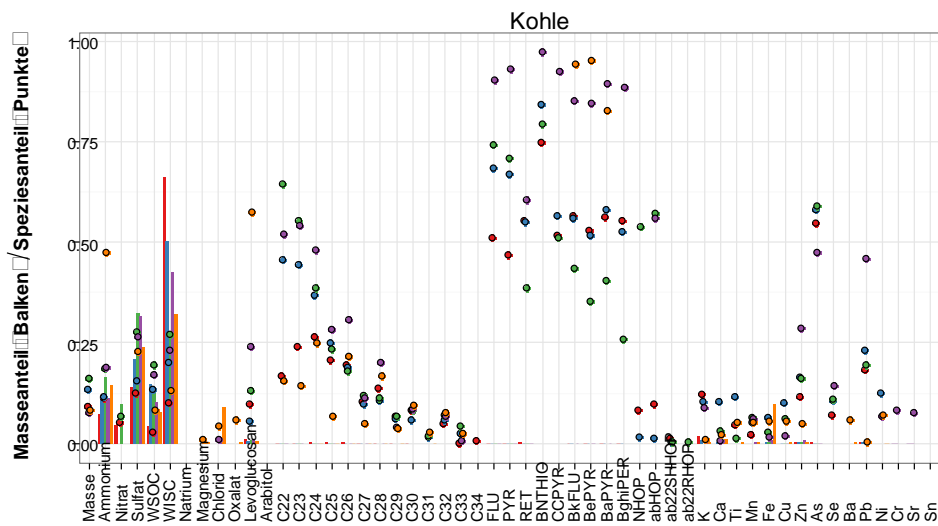
Insgesamt erscheint die Zuordnung der drei diskutierten Faktoren zu den jeweiligen verkehrsbedingten Quellen schlüssig.

3.7.6 Weitere Verbrennungsemissionen

In Abbildung 68 sind die chemischen Profile der drei weiteren Verbrennungsaerosolquellen gezeigt, die als „ferntransportierte Kohleverbrennung“, „lokale Kohleverbrennung“ und „Biomasseverbrennung“ interpretiert werden. Die ferntransportierten Kohleverbrennungspartikel bestehen im Wesentlichen aus wasserunlöslichem Kohlenstoff (WISC), Ammonium, Sulfat und WSOC und wurden in allen fünf untersuchten Partikelgrößebereichen vom Modell aufgelöst. Ihre charakteristischen Markerverbindungen sind PAK mit Speziesanteilen von i. d. R. > 50 % und v. a. Arsen mit Speziesanteilen von ca. 50 %. Die Interpretation des Faktors als Kohle-dominierte Verbrennungsquelle basiert stark auf letzteren Werten, weil Arsen ein wichtiger Marker für Kohleverbrennungsaerosol sein kann (HARRISON et al. 1996; CHOW & WATSON 2002), auch wenn der Arsengehalt je nach verwendeter Kohle sehr verschieden sein kann (manche Emissionsprofile der US-EPA SPECIATE Datenbank und des europäischen SPECISEUROPE Pendants weisen nur sehr niedrige bis nicht existente Arsenanteile in Kohleaerosol auf). Ein weiterer Hinweis sind die im Vergleich zum unten diskutierten Biomasseverbrennungsfaktor niedrigen Anteile der Biomasseverbrennungstracer Levoglucosan und Kalium (sowohl Masse- als auch Speziesanteile). Die CPI-Werte der n-Alkane liegen auf allen fünf Stufen zwischen 1,0 und 1,2 (und damit im Bereich der fossilen Brennstoffverbrennung), der Homohopanindex ist nur für Stufe 3 zu berechnen (aufgrund fehlender Konzentrationen des ab22RHOP in den Profilen der übrigen Partikelgrößebereichen) und liegt hier bei 0,24 (nahe dem in SCHNELLE-KREIS et al. [2007] angegebenen Wert von 0,1 für Braunkohleverbrennung). Die hohen Masseanteile sekundären Sulfats und v. a. WSOC können der langen Aufenthaltsdauer der Abgasfahne während des Ferntransportes und entsprechender Umsetzungen von SO₂ und VOC zugerechnet werden.

Dass es sich bei diesem Faktor um ferntransportiertes Aerosol handelt, ist aus Abbildung 69 zu erkennen, in der die Konzentrations-Zeitreihen der beiden Kohleverbrennungsquellen gezeigt sind. Im Gegensatz zu den oben diskutierten lokalen Verkehrsquellen ist hier kein Stationsgradient in den Konzentrationen zu erkennen. Der im Projekt verfolgte Ansatz paralleler Messungen an verschiedenen Standorten stellt sich hier als sehr hilfreich bei der Quellzuordnung heraus. Neben den ähnlichen Konzentrationen an allen Stationen ist in der Abbildung ebenfalls gut zu erkennen, dass die Quelle nur an einzelnen Tagen „aktiv“ war, an denen jeweils Ostanströmung herrschte.

Im Kontrast hierzu stehen die Konzentrations-„Zeitreihen“ der lokalen Kohleverbrennung, deren Einfluss an der Station EIB deutlich höher war als an den anderen Stationen. Dies ist konsistent mit dem Charakter der Station in einem dicht bebauten Wohnviertel, in dem zudem der Anteil noch unsanierter Wohnungen (oft mit Kohleheizung) innerhalb Leipzigs mit am höchsten sein dürfte. Das chemische Profil der lokalen Kohleverbrennung wird dominiert von hohen Nitrat-Masseanteilen und sehr hohen Speziesanteilen der Hopane. Grundsätzlich könnte dies auch auf eine Verkehrsquelle hindeuten, was jedoch aufgrund des fehlenden Einflusses der Quelle an LMI unwahrscheinlich erscheint. Der Homohopanindex lag bei 0,02 für Stufe 1 und 0,24–0,25 für die Stufen 2 und 3, was wiederum ein Indiz für einen starken Kohleeeinfluss ist. Arsen ist in diesem Faktor nicht enthalten. Dies liegt möglicherweise daran, dass die lokalen Kohleverbrennungsemissionen nur äußerst geringe Konzentrationen aufwiesen (max. ca. 0,5 µg m⁻³ im Vergleich zu bis zu 20 µg m⁻³ im ferntransportierten Kohlefaktor) und im Modell daher alle Variabilität in den Arsenkonzentrationen dem Ferntransportfaktor zugeordnet ist. Umgekehrt waren die Hopankonzentrationen in den frischen, lokalen Emissionen möglicherweise deutlich höher als in den stark prozessierten ferntransportierten Abgasfahnen (Abbau von Hopanen vs. Stabilität der Metalle inkl. As).



Größenbereich ■ 0.05-0.14µm ■ 0.14-0.42µm ■ 0.42-1.2µm ■ 1.2-3.5µm ■ 3.5-10µm

Abbildung 68: Chemische Profile der 3 Verbrennungsquellen „Kohleverbrennung“ (oben), „lokale Kohleverbrennung“ (Mitte) und „Biomasseverbrennung“ (unten). Masse- und Speziesanteile wie Abbildung 62

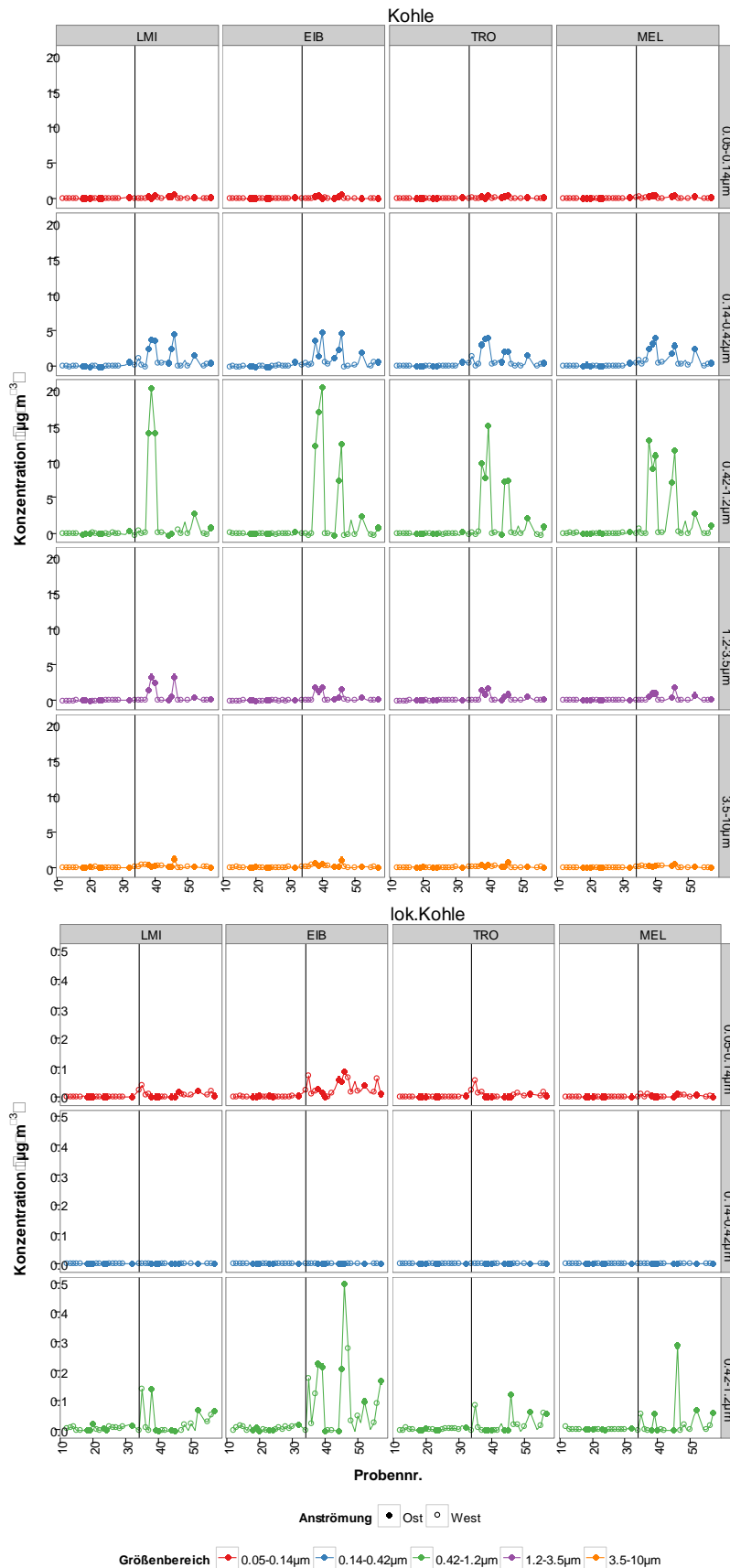


Abbildung 69: Konzentrations-„Zeitreihen“ der beiden Kohleverbrennungsquellen „ferntransportiert“ (oben) und „lokal“ (unten) in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden

Im chemischen Profil des Biomasseverbrennungsfaktor dominieren WISC, WSOC und teilweise Ammoniumnitrat/-sulfat die Partikelmasse. Die Masseanteile der klassischen Biomasseverbrennungsmarker Levoglucosan und Kalium sind mit bis zu ca. 10 % vergleichsweise sehr hoch. Andererseits deuten jedoch CPI-Werte

von 0,9 bis 1,4 und Homohopanindices von 0,20 und 0,25 auch auf einen Einfluss fossiler Brennstoffe in diesem Faktor hin.

Die in Abbildung 70 gezeigten „Zeitreihen“ weisen eine gewisse Korrelation mit denen des ferntransportierten Kohlefaktors auf (s. auch Abbildung 63), sodass diese Quellen offenbar nicht ganz sauber vom Modell voneinander getrennt sind (möglicherweise auch aufgrund der erwartbaren Korrelation von Heizungsemissionen aus diesen beiden Quellen). Andererseits fanden sich Konzentrationspeaks des Biomasseverbrennungsfaktors nicht nur bei Ostlagen, die Konzentrationen begannen schon mit den letzten beiden Proben der Sommerkampagne zu steigen (27.09. und 01.10. mit Tagesmitteltemperaturen < 10 °C an TRO) und die Variabilität der Konzentrationen im Winter war nicht so extrem wie im Kohlefaktor. Eine Interpretation des Faktors als biomassedominiertes Verbrennungsaerosol erscheint daher gerechtfertigt.

Auch in diesem Faktor ist kein deutlicher Konzentrationsgradient zwischen den Stationen zu erkennen, allenfalls eine etwas erhöhte Häufigkeit kleinerer Konzentrationspeaks am Standort EIB.

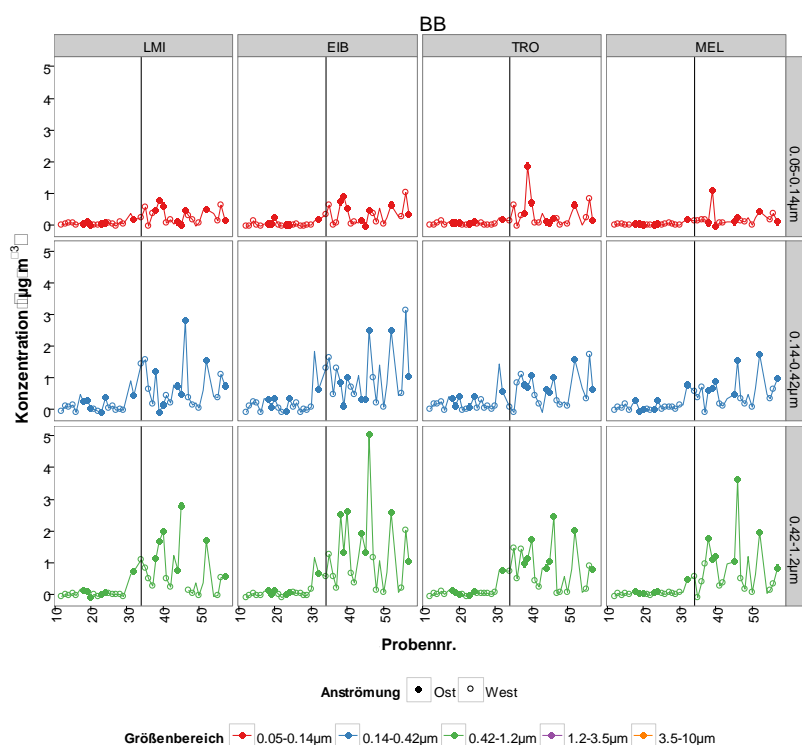


Abbildung 70: Konzentrations-„Zeitreihen“ der Quelle „Biomasseverbrennung“ in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden

Aufgrund der regionalen Charakteristik des Kohle- und Biomasseverbrennungsfaktors sind in Abbildung 71 statt der für die Verkehrsfaktoren gezeigten Polardiagramme die Ergebnisse von Rückwärtstrajektorienanalysen gezeigt. Die Trajektorien wurden für 96 h bei einer Starthöhe von 500 m stündlich innerhalb der Probenahmezeiträume mit HYSPLIT gerechnet und anschließend zusammen mit den Konzentrationen der beiden Faktoren mit der sog. „Concentration-weighted trajectory“-Methode (SEIBERT et al. 1994) ausgewertet. Hierbei werden die am Rezeptor gemessenen (in diesem Fall von der PMF zugeordneten) Konzentrationen von PM (oder einzelnen Bestandteilen) entlang der Trajektorien im Sammelzeitraum verteilt und geografischen „bins“ zugeordnet. Je mehr Trajektorien mit hohen Rezeptorkonzentrationen einen solchen „bin“ passieren, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass diese Region eine Quelle für die untersuchten Bestandteile (bzw. hier Quellbeiträge der Faktoren) ist. Hohe Werte der Farbskala in Abbildung 71 bedeuten daher, dass Trajektorien,

die diese Gitterzellen passieren, im Mittel mit hohen Konzentrationen am Rezeptor einhergehen. Gezeigt sind die Ergebnisse der beiden Partikelgrößenbereiche im Akkumulationsmode (langlebigste Partikel und höchste Konzentrationen) für Melpitz (kein lokaler Einfluss und ungehinderte Anströmung). Die Abbildungen für die übrigen Stufen sehen denen der Stufe 2 (0,14–0,42 μm) sehr ähnlich. Es ist zu erkennen, dass hohe Konzentrationen der Quellbeiträge für Kohleverbrennung in Melpitz ganz überwiegend mit Anströmung aus südosteuropäischen Regionen einhergingen. Maximalwerte wurden für die Länder Rumänien, Moldawien und Ukraine erhalten. Im Vergleich zur Kohleverbrennung sind beim Biomasseverbrennungsaerosol erhöhte Konzentrationen verstärkt auch bei Anströmung über südwesteuropäischen Regionen zu erkennen, wobei die Maximalwerte über ähnlichen südosteuropäischen Regionen wie bei der Kohleverbrennung zu finden sind.

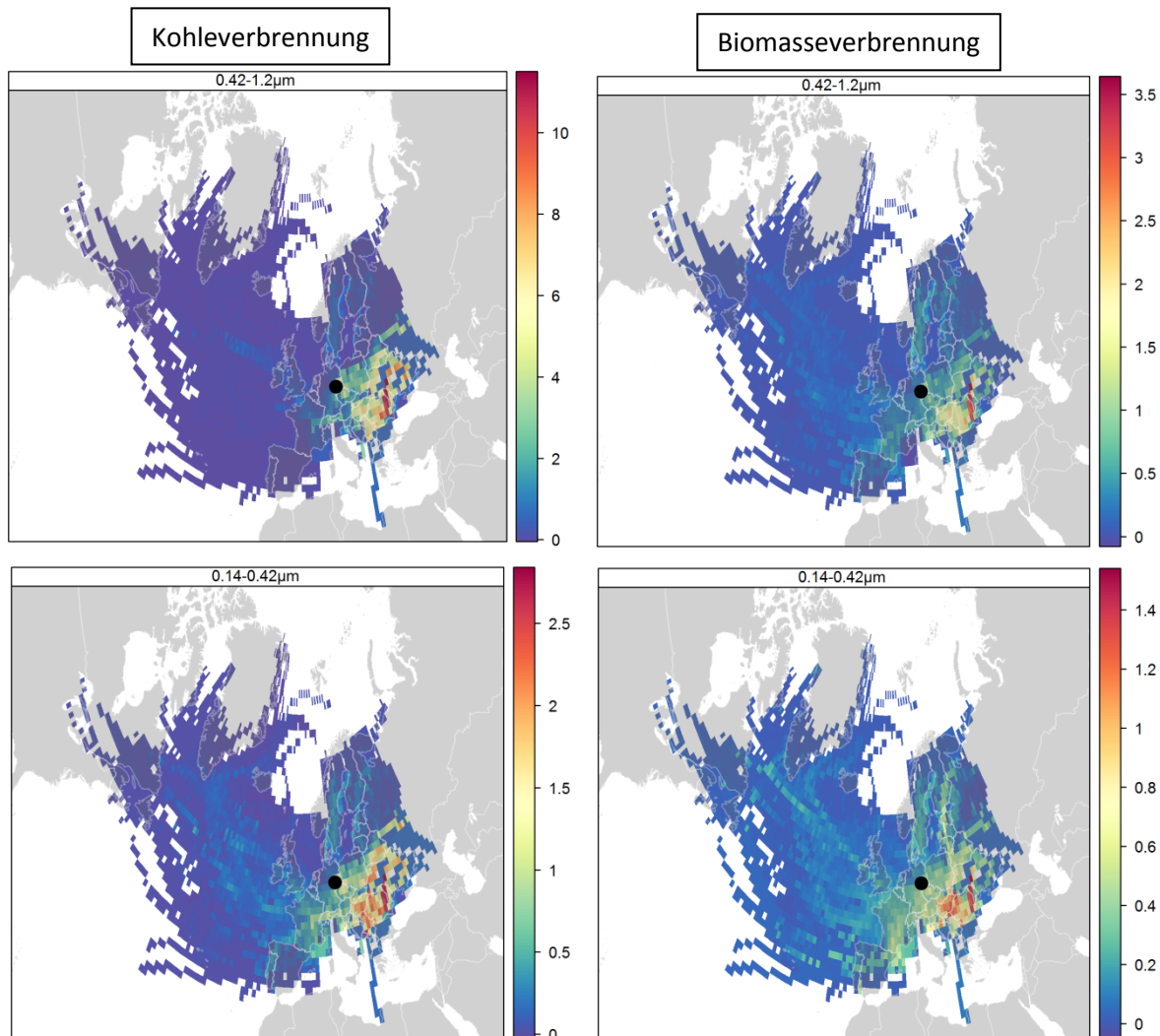


Abbildung 71: „Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Verbrennungsquellen Kohle und Biomasse für Akkumulationsmode-Partikel auf den Impaktorstufen 2 und 3. Graue Flächen sind Kontinente, die Farbskala gibt die mittlere Konzentration in MEL an, die für Luftmassen aus der jeweiligen Region gemessen (bzw. vom Modell zugeordnet) wurde.

3.7.7 Sekundäres Aerosol

Die chemischen Profile der beiden sekundären Quellen „sekundäres anorganisches Aerosol (SIA)“ und „Photochemie“ sind in Abbildung 72 gezeigt. SIA wurde auf den Impaktorstufen 2 bis 4 vom Modell aufgelöst, Photochemie auf den Stufen 1 bis 3.

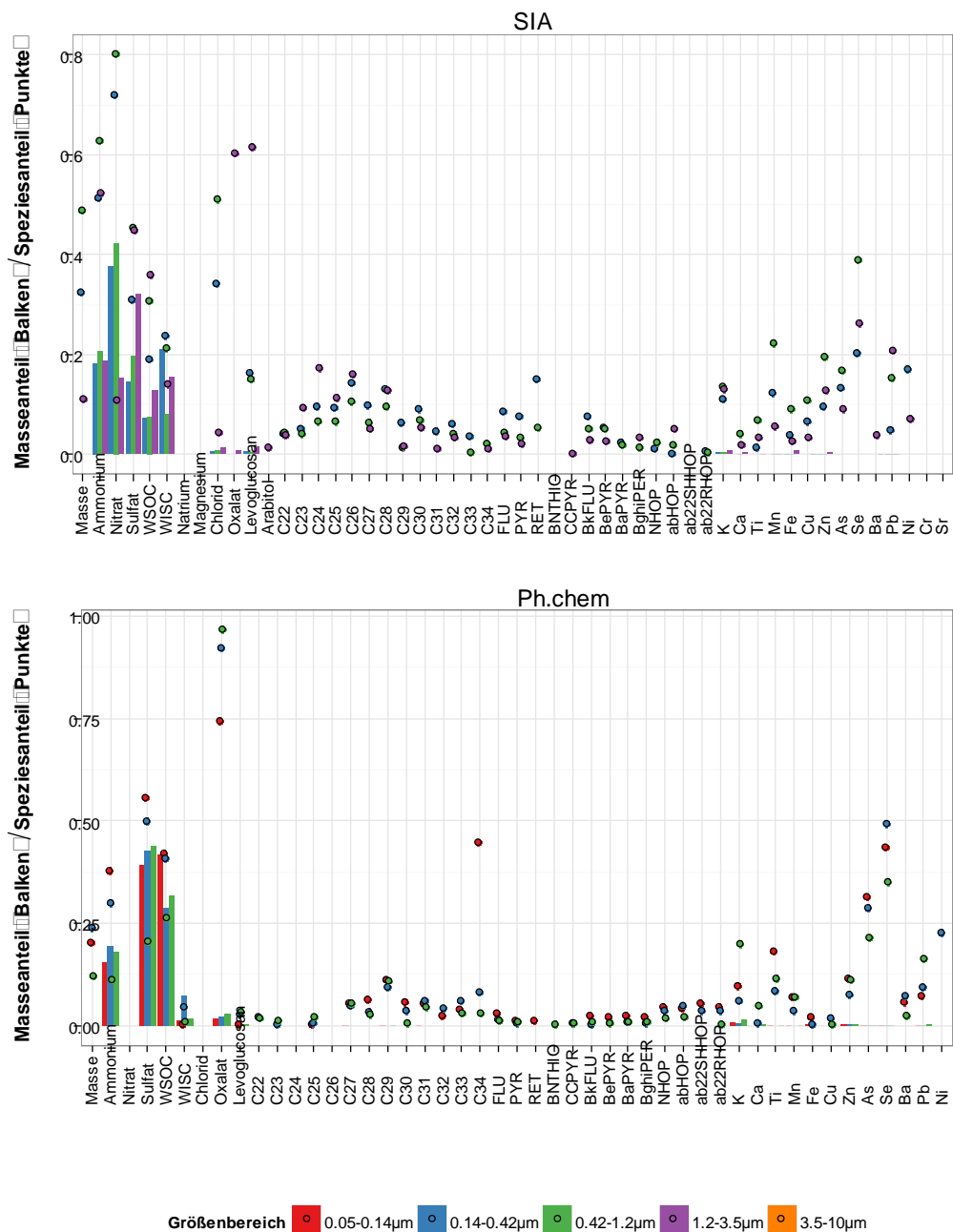


Abbildung 72: Chemische Profile der 2 sekundären Quellen „sekundäres anorganisches Aerosol“ (oben) und „Photochemie“ (unten)

Das sekundäre anorganische Aerosol besteht zu ca. 80 % aus Ammoniumnitrat und Ammoniumsulfat, die restlichen ca. 20 % sind WSOC und WISC. In der Photochemie-Quelle dominiert Ammoniumsulfat die Masse (ca. 60 %), WSOC liegt bei ca. 30 % und Nitrat ist nicht enthalten. Hohe Speziesanteile zeigen Selen in beiden Faktoren (ca. 20–50 %) und Oxalat im Photochemiefaktor (ca. 75–95 %) sowie auf Stufe 4 im SIA-Faktor (ca. 60 %). Beiden Faktoren sind auch gewisse Anteile typischer Verbrennungstracer zugeordnet (Arsen in Photochemie ca. 20–30 %, Levoglucosan in SIA ca. 15–60 %). Der CPI-Wert der n-Alkane liegt bei 0,7–1,3 für SIA (anthropogen) und bei 4,2–12,4 (biogen) für Photochemie.

Aus den Konzentrations-„Zeitreihen“ in Abbildung 73 lässt sich erkennen, dass die SIA-Quelle vor allem (jedoch nicht ausschließlich) im Winter aktiv war und eine gewisse zeitliche Korrelation mit den Verbrennungsquellen existiert (s. auch Abbildung 63). Die Photochemie-Quelle zeigte verstärkt erhöhte Quellbeiträge im

Sommer (v. a. in der ersten Kampagnenhälfte) und an einzelnen Tagen mit Ostanströmung im Winter. Eindeutig erkennbar ist zudem, dass es sich um eine regionale Quelle mit ähnlicher Intensität an allen Stationen handelte.

Sowohl aus den chemischen Profilen wie auch aus den „Zeitreihen“ lässt sich schließen, dass eine scharfe Trennung verschiedener sekundärer Quellen oder Bildungswege im vorliegenden Datensatz nicht möglich war. Offensichtlich erfolgt eine gewisse „Vermischung“ typischer hochsommerlicher photochemischer Oxidationen, getrieben durch hohe Strahlungsintensitäten und damit verbunden hoher Konzentrationen von HO_x , sowie eher winterlicher sekundärer Bildungswege (z. B. Nitradikalchemie oder nicht radikalische Oxidationsreaktionen). Dies ist sicherlich der Tatsache geschuldet, dass die im Projekt bestimmten Marker für sekundäre Bildungsreaktionen eine solche klare Unterscheidung nicht zulassen, weil Nitrat, Sulfat und Oxalat auf verschiedensten Wegen sowohl im Sommer als auch im Winter aus NO_x und SO_2 sowie biogenen und anthropogenen VOC gebildet werden können (SEINFELD & PANDIS 2006; VAN PINXTEREN et al. 2014).

Dass es sich bei den beiden Faktoren jedoch grundsätzlich um zwei verschiedene (grobe) Sekundärquellen handelt, wird auch aus den in Abbildung 74 gezeigten Korrelationen mit anderen Parametern ersichtlich (an TRO, andere Stationen ähnlich). Der Photochemie-Faktor zeigt (zumindest im Sommer) positive Korrelationen mit Temperatur, Strahlungsfluss entlang der Rückwärtstrajektorie (aus Trajektorienanalysen, lokal gemessene Globalstrahlung zeigt etwas mehr Streuung) und Ozon (als photochemisch gebildetes Spurengas). Der SIA-Faktor hingegen zeigt negative Zusammenhänge mit diesen Indikatoren für Photochemie und ist stattdessen positiv korreliert mit der relativen Feuchte (möglicherweise jedoch einzig aufgrund des inversen Zusammenhangs zwischen Temperatur und relativer Feuchte) und dem Vorhandensein anthropogen verschmutzter Luftmassen (SO_2 und v. a. NO_x -Konzentrationen).

In Abbildung 75 sind die CWT-Plots der beiden Faktoren für die Partikelgrößenbereiche $0,14\text{--}0,42\ \mu\text{m}$ und $0,42\text{--}1,2\ \mu\text{m}$ gezeigt. Bei Anströmung aus südosteuropäischen Regionen waren auch hier die Konzentrationen oft am höchsten (gezeigt für MEL). Allerdings ist erkennbar, dass erhöhte Immissionen sekundärgebildeter Partikel grundsätzlich auch bei vielen anderen Anströmungen möglich sind.

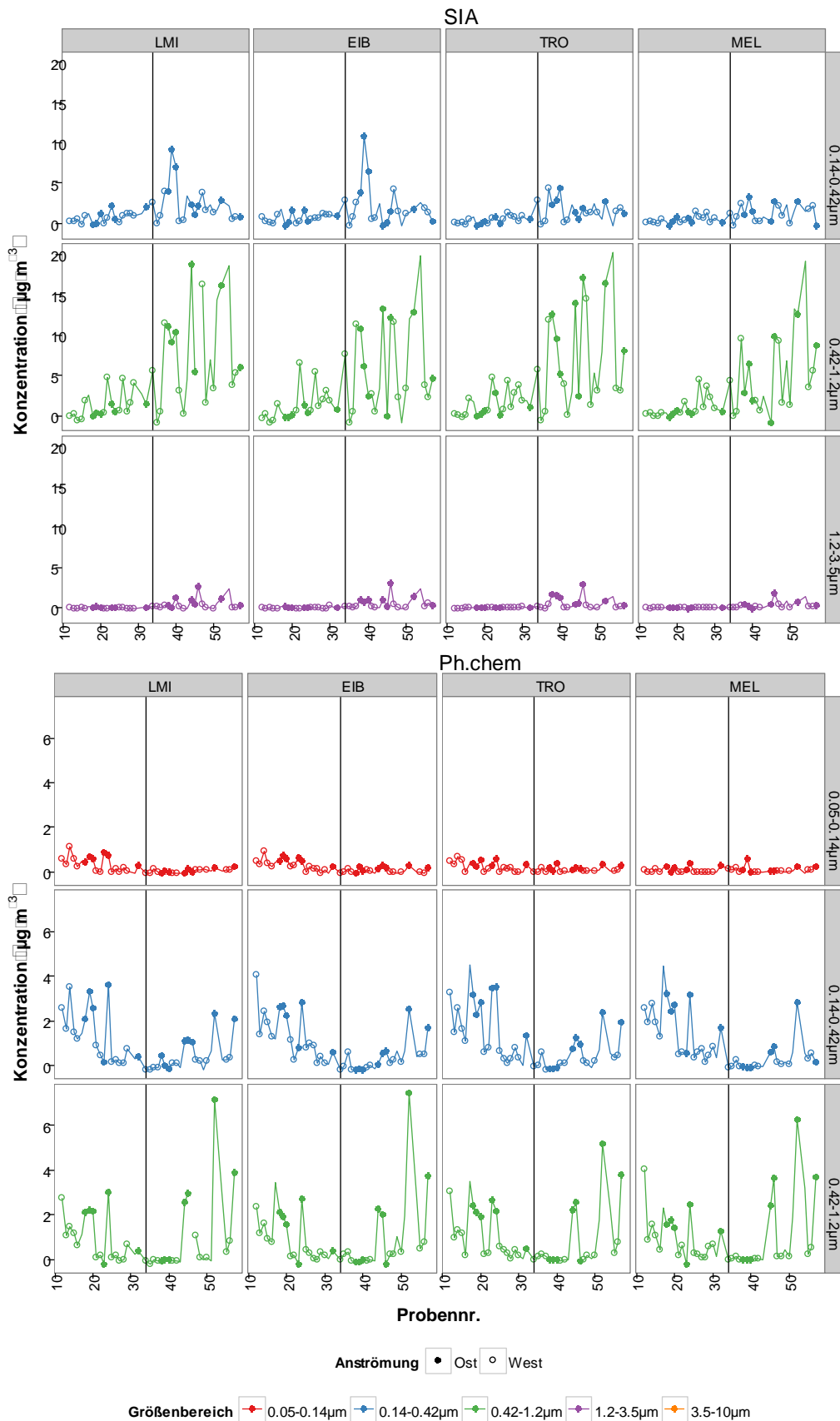


Abbildung 73: Konzentrations-„Zeitreihen“ der 2 sekundären Quellen „sekundäres anorganisches Aerosol“ (oben) und „Photochemie“ (unten) in den Partikelgrößenbereichen (Farben), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden

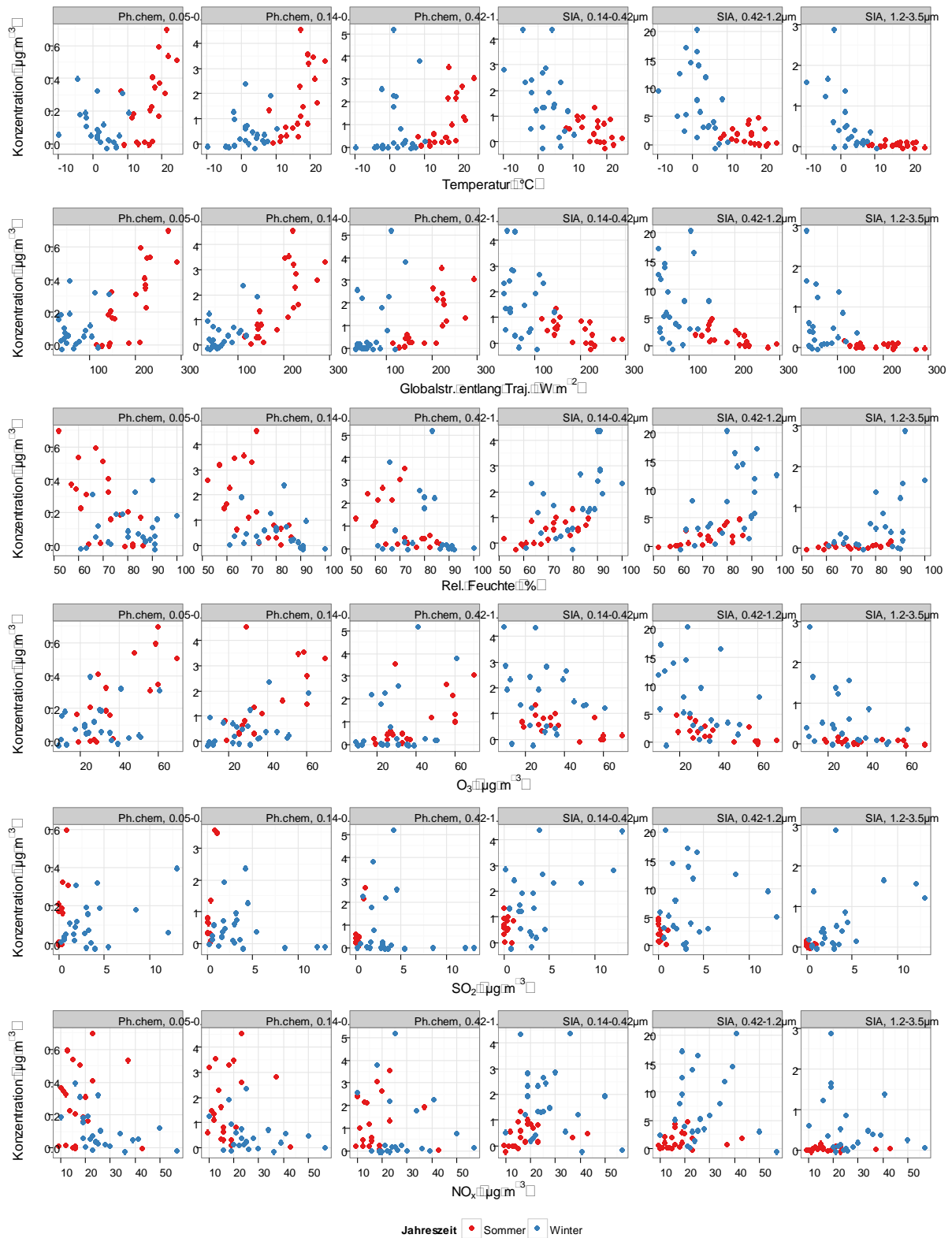


Abbildung 74: Korrelationen der Quellbeiträge des Photochemie-Faktors (links, Impaktorstufen 1–3) und des SIA-Faktors (rechts, Impaktorstufen 2–4) mit Temperatur (Zeile 1), Globalstrahlung entlang der Rückwärtstrajektorie (Zeile 2), relativer Feuchte (Zeile 3), Ozon (Zeile 4), Schwefeldioxid (Zeile 5) und Stickoxiden (Zeile 6). Sommer- und Winterdaten farblich unterschieden. Alle Daten an der Station TRO.

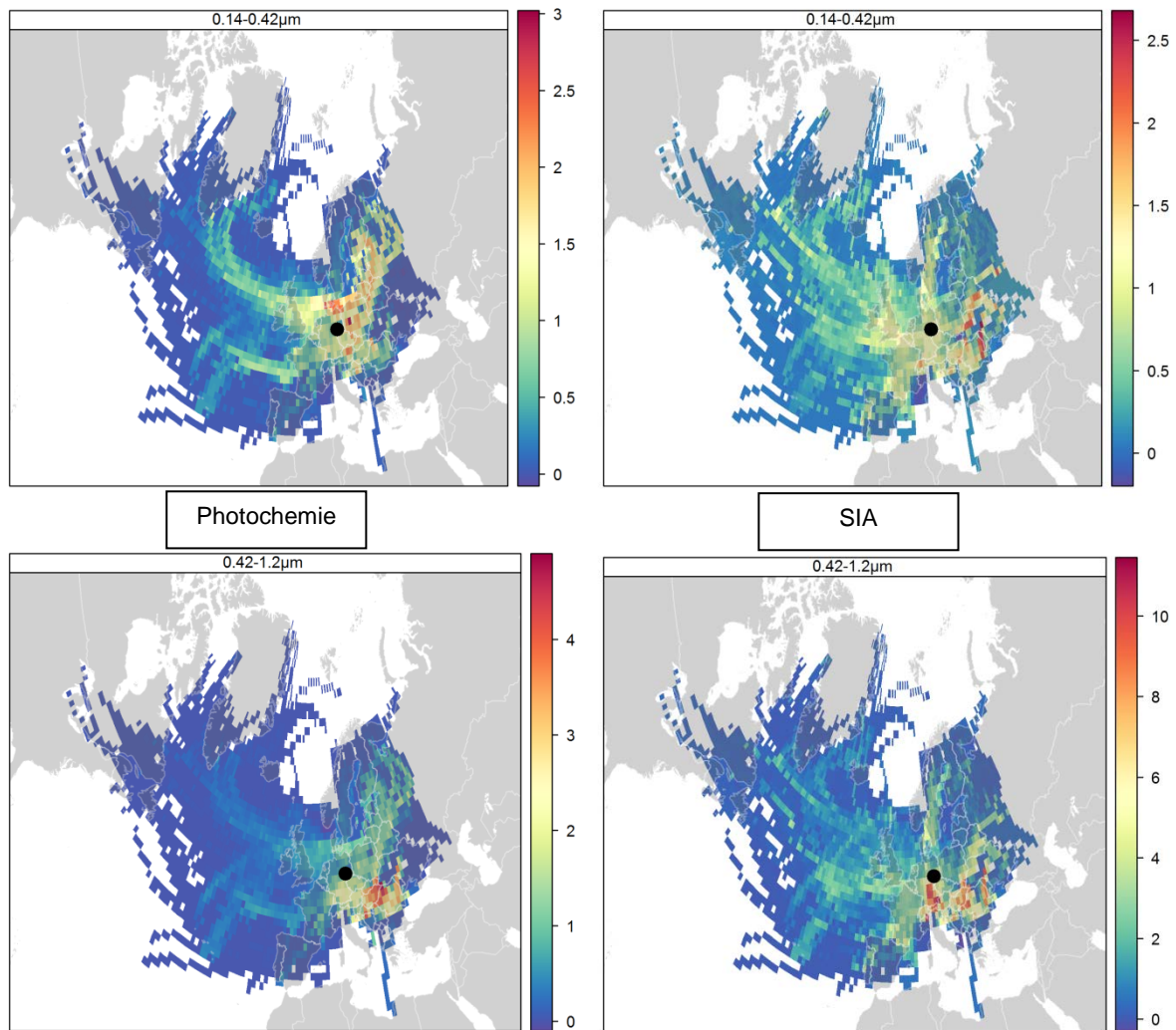
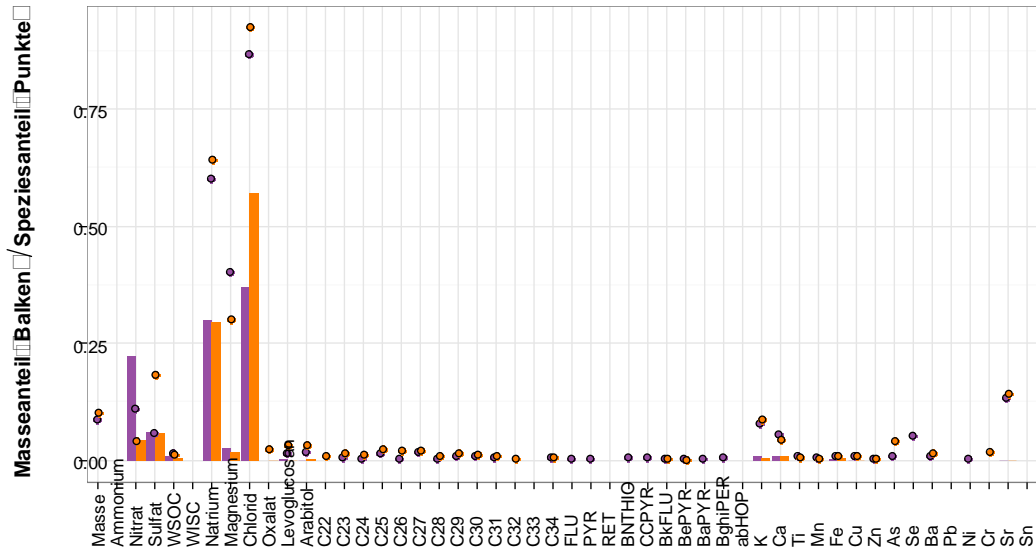


Abbildung 75: „Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Sekundärquellen „Photochemie“ (links) und „sekundäres anorganisches Aerosol“ (rechts) auf den Impaktorstufen 2 (oben) und 3 (unten) für MEL

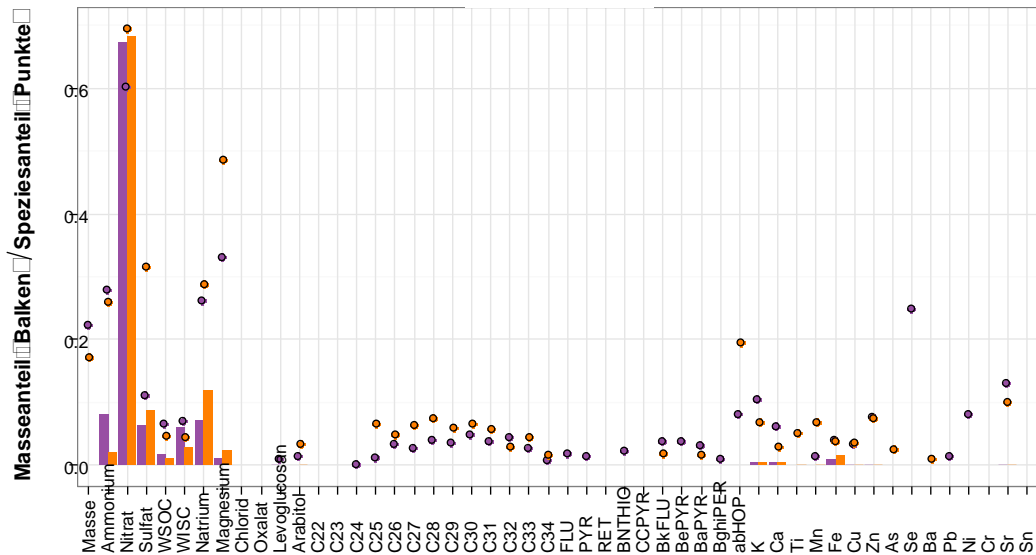
3.7.8 See- und Streusalz

Die beiden vom PMF-Modell aufgelösten Salzquellen unterscheiden sich v. a. in ihrem Gehalt an Chlorid und Nitrat, wie in den chemischen Profilen in Abbildung 76 zu sehen ist. Frisches Seesalz und Streusalz im Winter enthält hohe Masseanteile an Chlorid (ca. 40–60 %) im Faktor, wohingegen in gealtertem Seesalz Chlorid überwiegend gegen Nitrat ausgetauscht ist (Masseanteil von ca. 70 %). Das Na^+/Cl^- -Verhältnis liegt im Seesalzfaktor mit 0,81 (Stufe 4) und 0,51 (Stufe 5) nahe dem Wert von Meerwasser (0,56; SEINFELD & PANDIS [2006]). Im gealterten Seesalzfaktor ist kein Chlorid enthalten. Das $\text{Na}^+/\text{Mg}^{2+}$ -Verhältnis liegt hier mit 6,1 (Stufe 4) und 4,9 (Stufe 5) jedoch auch relativ nahe dem Meerwasserwert von 8,3.

Seesalz



Sees. gealt.



Größenbereich ◻ 0.05-0.14µm ◻ 0.14-0.42µm ◻ 0.42-1.2µm ◻ 1.2-3.5µm ◻ 3.5-10µm

Abbildung 76: Chemische Profile der beiden Salzquellen „See- und Streusalz“ (oben) und „gealtertes Seesalz“ (unten)

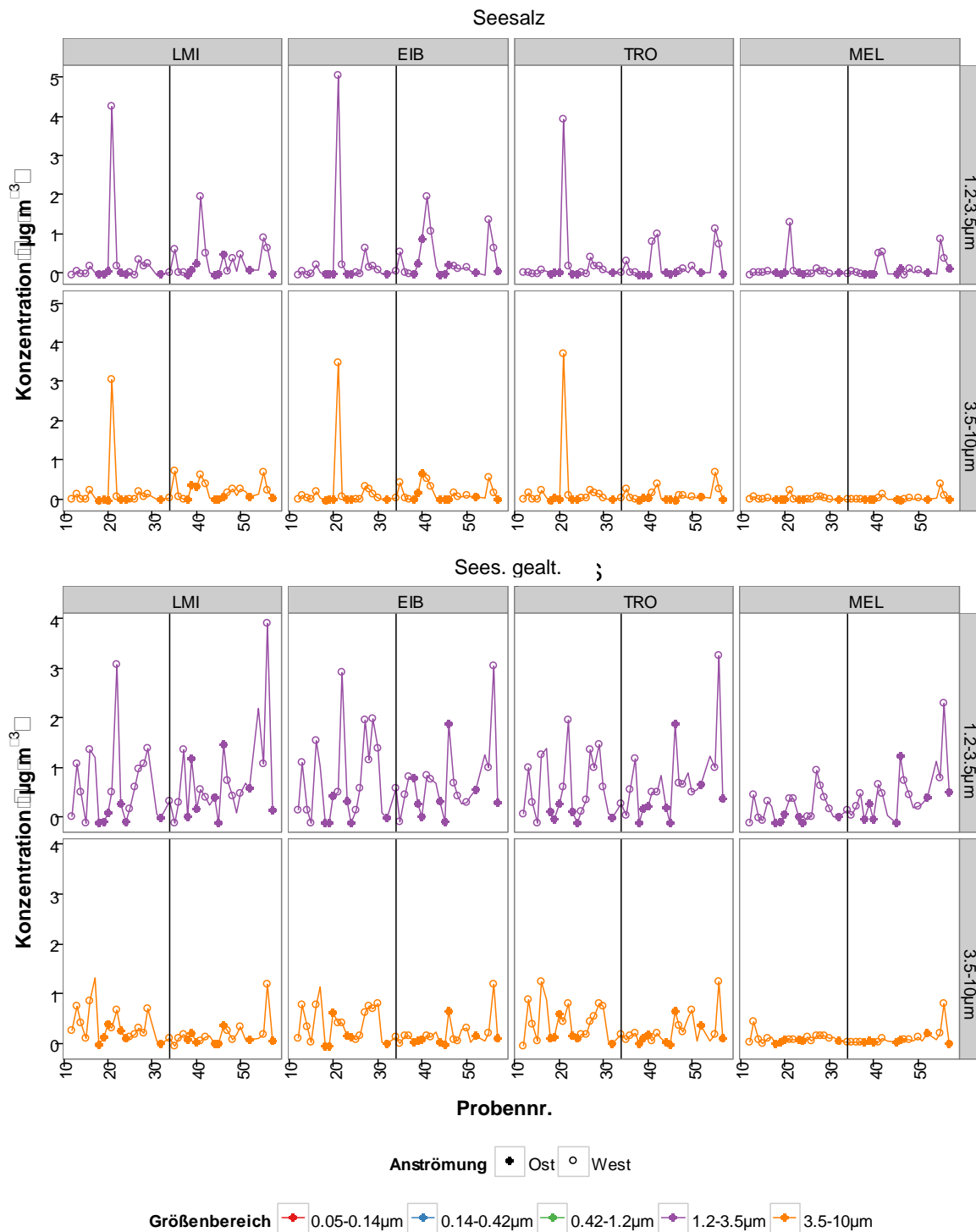


Abbildung 77: Konzentrations-„Zeitreihen“ der beiden Salzquellen „See- und Straßensalz“ (oben) und „gealtertes Seesalz“ (unten) in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie durch das PMF-Modell aufgelöst wurden

Die Konzentrations-„Zeitreihen“ in Abbildung 77 zeigen deutliche Maxima ganz überwiegend bei Westanströmung. Einzelne Peaks bei Ostanströmung deuten jedoch – ähnlich wie die nicht exakt mit Meerwasserwerten identischen Verhältnisse in den chemischen Profilen – auf eine geringe Einmischung anderer Quellen in den Faktor hin.

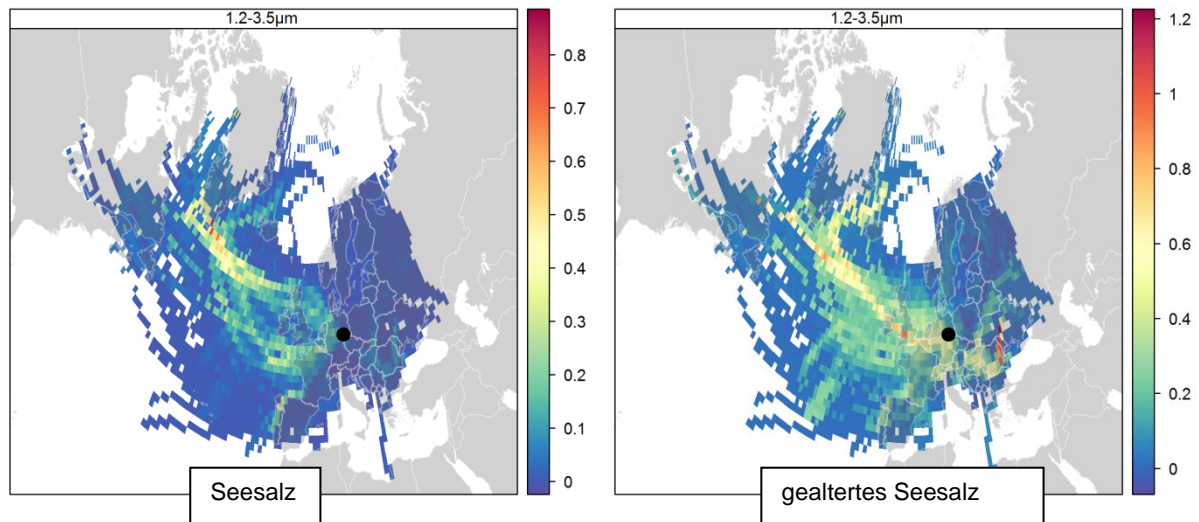


Abbildung 78: „Concentration-weighted trajectory plots“ der beiden Salzquellen „Seesalz“ (links) und „gealtertes Seesalz“ (rechts) für Partikel der Impaktorstufe 4 in MEL

Die CWT-Plots für Impaktorstufe 4 in MEL in Abbildung 78 zeigen ebenfalls v. a. für gealtertes Seesalz einen Einfluss aus südosteuropäischen kontinentalen Regionen, der eher mit Verbrennungs- oder sekundärem Aerosol in Verbindung zu bringen ist als mit Seesalz. Es ist jedoch auch zu erkennen, dass ansonsten die Quellregionen der Salzfaktoren eindeutig über dem Nordatlantik lagen.

3.7.9 Kochen

Das in Abbildung 79 gezeigte chemische Profil des Kochfaktors zeigt v. a. in kleineren Partikelgrößenbereichen dominante Masseanteile von wasserunlöslichem Kohlenstoff (WISC ca. 65–85 %), auf Impaktorstufe 3 sind ihm auch Anteile sekundärer anorganischer Salze von ca. 15–20 % zugeordnet. Markerverbindungen sind hier v. a. die in Ölen und Fetten enthaltenen n-Alkane mit CPI-Werten zwischen 3,5 und 4,0 (biogen).

Die Konzentrations-„Zeitreihen“ in Abbildung 79 zeigen ein für städtische Emissionen typisches Profil. Der höchste Einfluss des Faktors wird an EIB beobachtet, was aufgrund der Vielzahl von Imbissen in unmittelbarer Umgebung der Messstelle plausibel erscheint.

Die Zuordnung dieses Faktors erscheint etwas weniger eindeutig als bei den bisher beschriebenen. Spezifische Marker für Kochemissionen (z. B. Cholesterol) waren im Messprogramm nicht enthalten. Weil der Faktor massenmäßig durchaus eine gewisse Relevanz besitzt, erscheint es sinnvoll, für eindeutigere Zuordnungen in zukünftigen Quellzuordnungsstudien im Raum Leipzig auch solche Marker mit zu analysieren.

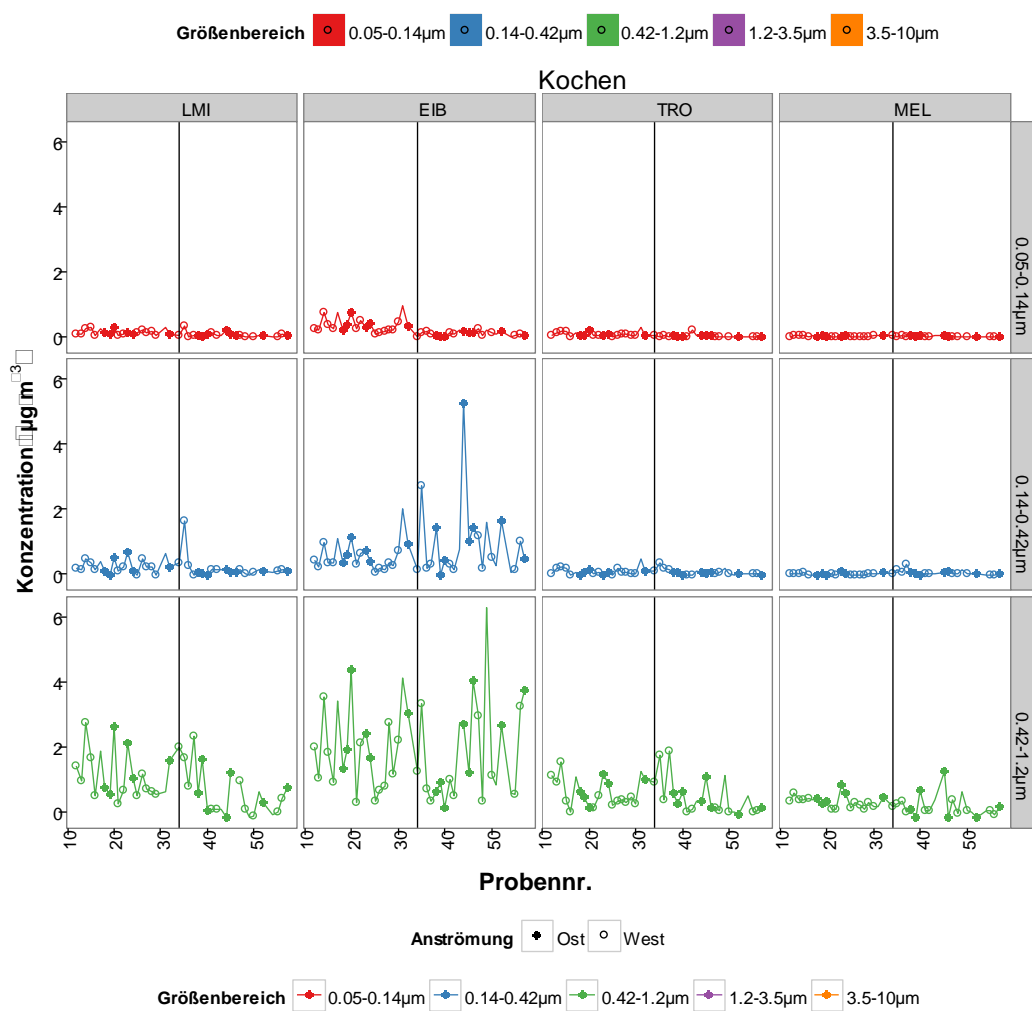
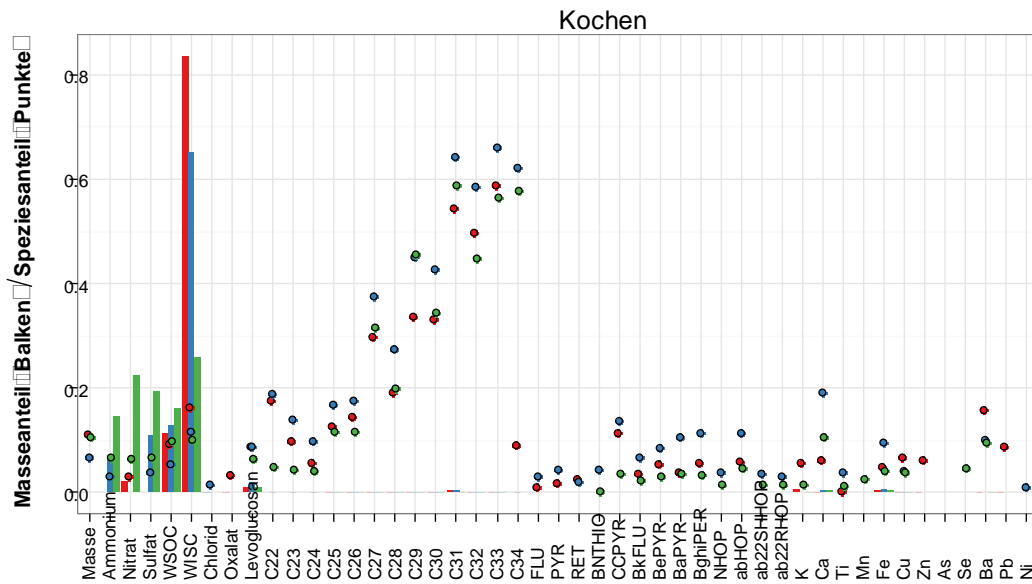


Abbildung 79: Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „Kochaerosol“ in den Partikelgrößenbereichen (Farbe und rechts), in denen sie vom PMF-Modell aufgelöst wurden

3.7.10 Primäres biologisches Material

Der Faktor „primäres biologisches Material“ wird aufgrund der hohen Speziesanteile von Arabitol (ca. 90 %) v. a. Pilzsporen zugeschrieben. Das chemische Profil in Abbildung 80 zeigt eine Zusammensetzung aus überwiegend organischem Material (ca. 40 % WISC, ca. 20 – 25 % WSOC), jedoch sind auch teilweise deutliche Masseanteile von Nitrat und Sulfat zugeordnet. Der CPI der n-Alkane liegt mit 11,8 (Stufe 4) und 12,4 (Stufe 5) sehr weit im biogenen Bereich, die Dominanz ungeradzahligter n-Alkane ist auch an ihren Speziesanteilen gut erkennbar.

Die Konzentrations-„Zeitreihen“ in Abbildung 80 zeigen eine ausschließlich sommerliche Aktivität der Quelle, die schon hin zu den Messtagen im September (2. Hälfte der Sommerkampagne) teilweise deutlich nachließ.

Die Quelle wurde ausschließlich in groben Partikeln gefunden, konsistent mit dem typischen Größenbereich von Pilzsporen.

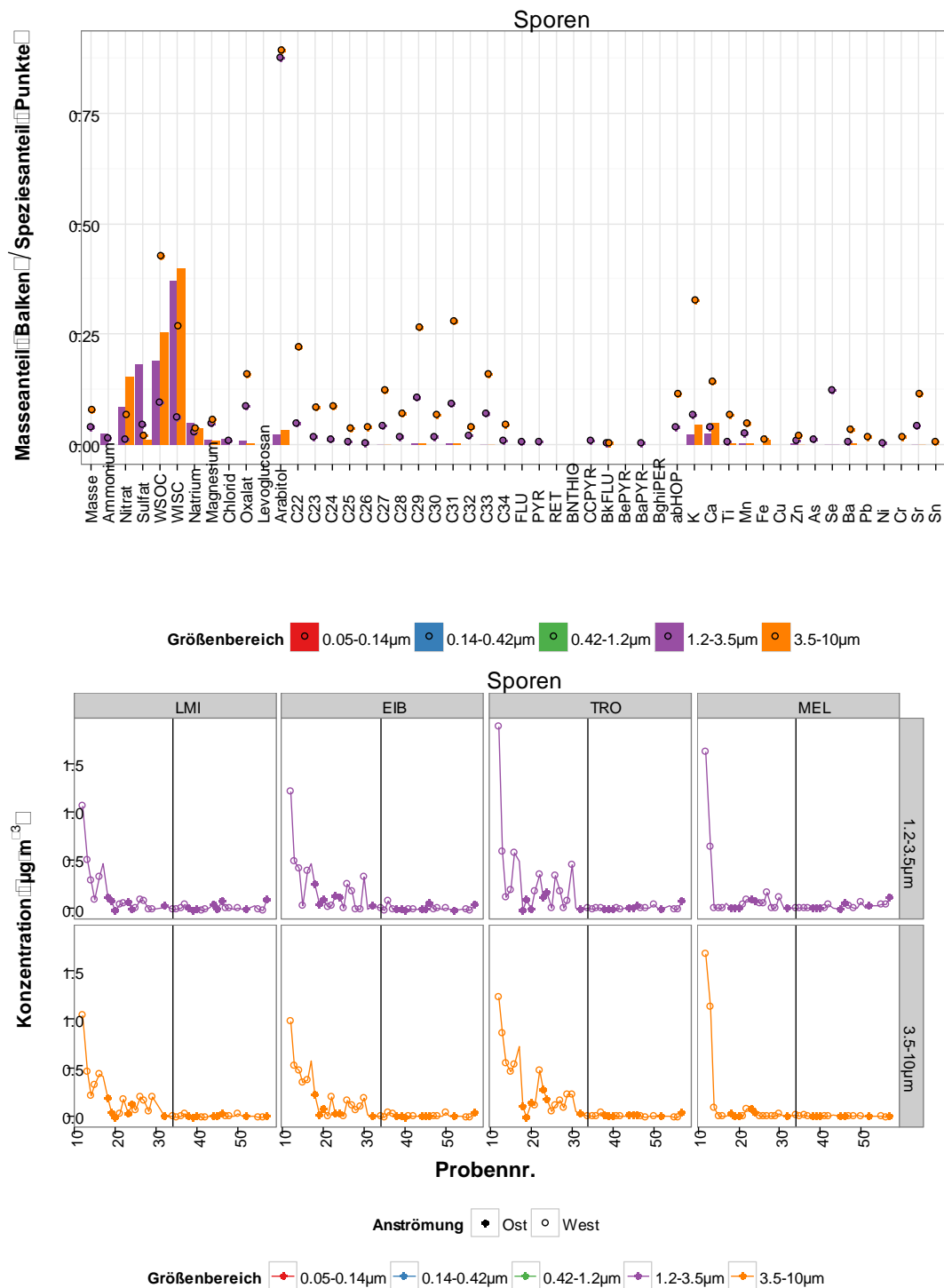


Abbildung 80: Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „primäres biologisches Material – Pilzsporen“

3.7.11 Stadtstaub

Dieser Faktor besteht massenmäßig v. a. aus Nitrat und WSOC (Abbildung 81). Die CPI-Werte liegen bei 0,7 auf Stufe 4 und 1,9 auf Stufe 5 mit teilweise sehr hohen Speziesbeiträgen ungeradzahliger n-Alkane. Das Ca/Fe-Verhältnis liegt für Stufe 4 bei 0,8 und für Stufe 5 bei 1,4 und damit nahe dem Verhältnis der mittleren Zusammensetzung der oberen Erdkruste (0,95; WEDEPOHL [1995]). Er wurde nur im groben Partikelbereich gefunden und zeigte die höchsten Konzentrationen im Sommer (Abbildung 81), wobei die Konzentrationen an den drei Stadtstationen ähnlich und in MEL etwas niedriger waren. Aufgrund dieser Charakteristika wird er als

Staub interpretiert, der verschiedenes Material enthält (auch biologische Anteile, z. B. aus Pflanzenwachspartikeln) und generell im Stadtgebiet verstärkt aufgewirbelt wird (jedoch ohne direkten Zusammenhang mit Verkehr).

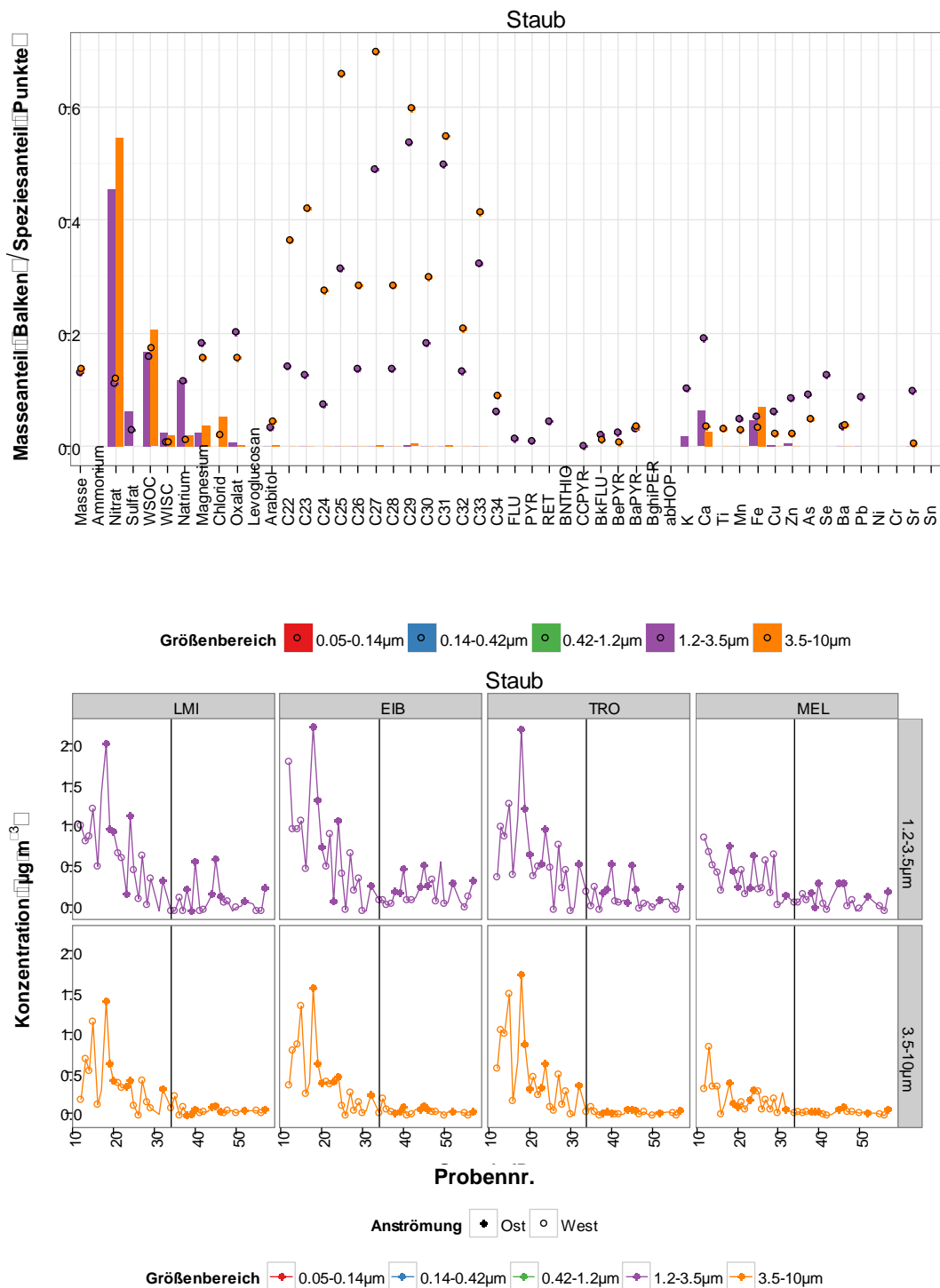


Abbildung 81: Chemisches Profil (oben) und Konzentrations-„Zeitreihen“ (unten) des Faktors „resuspendierter städtischer Staub“

3.7.12 Diskussion der PMF-Ergebnisse

In Abbildung 82 sind die mittleren Größenverteilungen (Mediane) der aus der PMF erhaltenen Quellgruppen in einer Übersicht gezeigt. Neben Station und Jahreszeit wird auch zwischen Ost- und Westanströmung unterschieden, weil es sich hier atmosphärenchemisch um zwei sehr verschiedene Regime handelt. Um auch in Kategorien mit niedriger Anzahl von Proben (Ost) eine gute Vergleichbarkeit zwischen den Stationen zu gewährleisten, wurden in die Mittelung nur Messtage einbezogen, für die an allen Stationen Werte vorhanden waren (ausgeschlossen wurden der 25.09.2013 und 03.12.2013, die in der PMF nicht vollständig enthalten sind, s. oben).

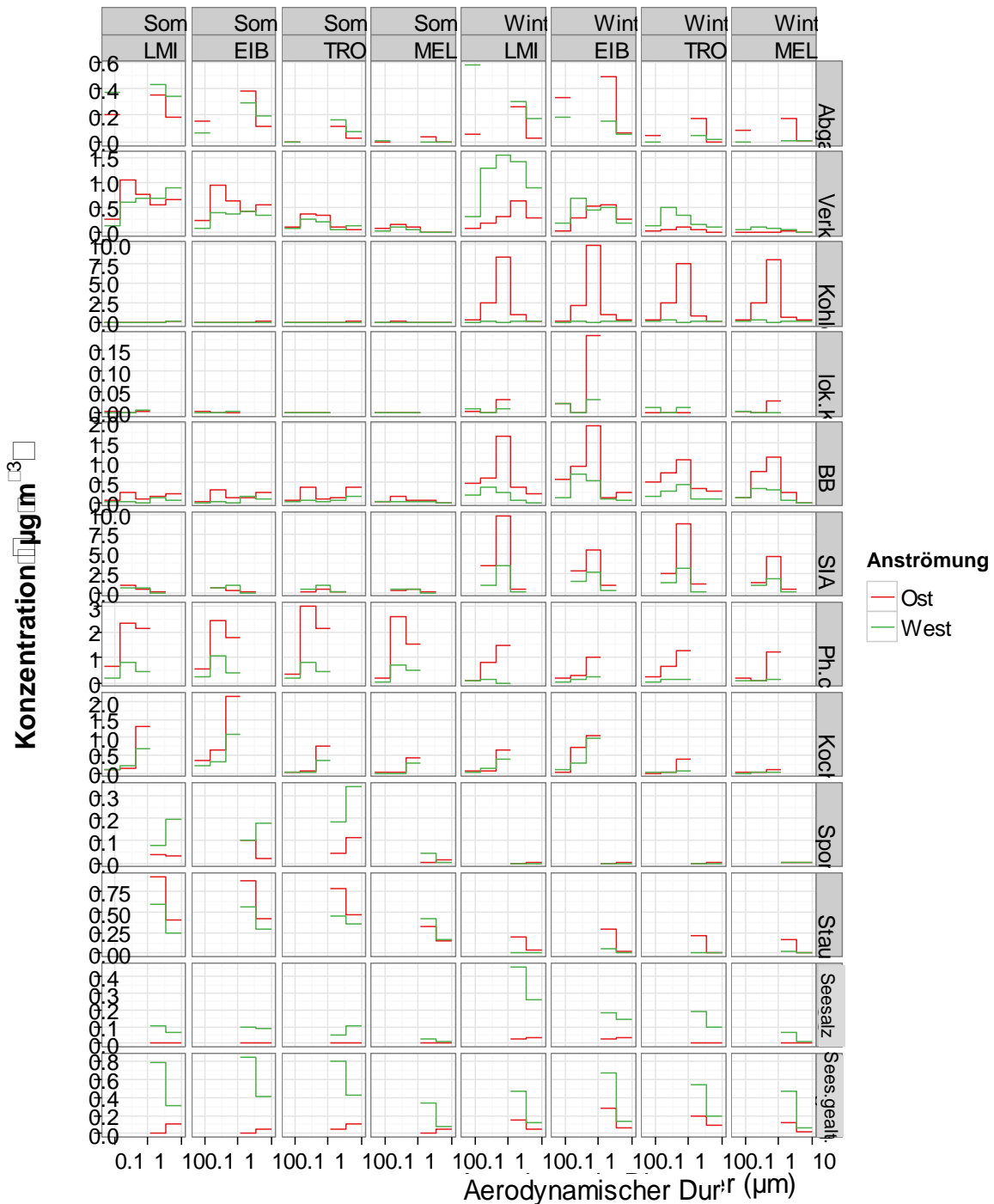


Abbildung 82: Mittlere Größenverteilungen (Mediane) der Konzentrationen aus den mittels PMF quantifizierten Quellgruppen

Zu erkennen sind die typischen Charakteristika, die schon oben bei den einzelnen Quellen diskutiert wurden:

- Verkehrsemissionen waren an den Verkehrsstationen am höchsten und es gab v. a. im Winter an LMI eine deutliche Windrichtungsabhängigkeit.
- Kohleverbrennung war als signifikante PM-Quelle ausschließlich in Winter Ost vorhanden.
- Biomasseverbrennung lieferte auch im Sommer geringe Konzentrationen und war im Winter bei Ostlagen deutlich erhöht.
- Sekundäre Quellen waren je nach ihrem Typus (Photochemie bzw. SIA-Faktor) im Sommer bzw. im Winter erhöht und meist bei Ostlagen höher als bei Westanströmungen.
- Kochoaerosol war an den beiden innerstädtischen Stationen erhöht.
- Pilzsporen waren nur im Sommer und v. a. an städtischen Stationen eine PM-Quelle, allerdings mit sehr geringen Konzentrationen.
- Aufwirbelung von städtischem Staub war v. a. im Sommer als PM-Quelle relevant.
- Frisches und gealtertes Seesalz war bei Westlagen stark erhöht, im Winter gibt es einen gewissen Einfluss von Streusalz.

Darüber hinaus lassen sich an den Größenverteilungen folgende Merkmale erkennen:

- Die Konzentrationen direkter Abgasemissionen (Ruß) waren in ultrafeinen Partikeln (Impaktorstufe 1) oft ähnlich hoch wie in den beiden groben Partikelgrößenbereichen (Stufen 4 und 5), in Winter West an LMI sogar deutlich höher. Konzentrationen direkter Abgaspartikel im Akkumulationsmode (Stufen 2 und 3) waren wie oben beschrieben nicht separat aufgelöst, sondern im allgemeinen Verkehrsfaktor mit enthalten.
- Die mittleren Konzentrationen aus der Kohleverbrennung waren an allen Standorten i. d. R. sehr ähnlich hoch. Einzige Ausnahme war Impaktorstufe 3 in EIB, die knapp $2 \mu\text{g m}^{-3}$ über den an den übrigen Stationen gemessenen Konzentrationen lag. Dies könnte darauf hindeuten, dass der vom Modell ebenfalls aufgelöste lokale Kohleverbrennungsfaktor die tatsächlichen lokalen Emissionen etwas unterschätzt, weil sie nicht exakt von ferntransportierten Konzentrationen unterschieden werden können. Dagegen spricht, dass bei Westanströmung eine Zunahme des Kohleverbrennungsfaktors an EIB nicht zu erkennen ist. Um den lokalen Einfluss der Kohleverbrennung an der Station EIB genauer zu quantifizieren, wären weitere Untersuchungen mit höherer Anzahl von Messtagen bei winterlichen Ostlagen (hier $n = 6$) notwendig.
- Für den Faktor Biomasseverbrennung zeigt sich ein ähnliches Bild. Hier lagen die Konzentrationen an EIB auf den Impaktorstufen 2 und 3 etwas höher als im urbanen und regionalen Hintergrund. Dies war sowohl bei Ost- als auch bei Westlagen zu beobachten, was auf höhere Emissionen aus Biomasseverbrennung in den umliegenden Wohngebieten hindeutet. Allerdings waren die Konzentrationsunterschiede auf eher niedrigem Niveau, sodass auch hier für eine genauere Quantifizierung eine höhere Anzahl von Proben notwendig wäre.

In Abbildung 83 und Abbildung 84 werden die Ergebnisse der Quellzuordnungsanalyse mittels PMF zusammengefasst, indem Konzentrationen (Abbildung 83) und Massenanteile (Abbildung 84) der verschiedenen Quellgruppen aufsummiert in Balkendiagrammen dargestellt werden. Im Unterschied zu vielen anderen Darstellungen sind hier nicht Mediane, sondern arithmetische Mittelwerte gezeigt, weil nur diese sich linear verhalten, d. h. die Summe der Mittelwerte der Quellkonzentrationen und -anteile auch dem Mittelwert der Summe der entsprechenden Elemente entspricht. Für Mediane ergäben sich bei den Massenanteilen oft Summen deutlich kleiner 1 (Balkenhöhe oft nur bei 0,7–0,8), was mathematisch zwar korrekt, physikalisch aber schwie-

rig zu interpretieren ist. Zu beachten ist weiterhin, dass es sich hierbei um die von der PMF zugeordneten Konzentrationen handelt, die zwar sehr ähnlich, aber nicht exakt identisch mit den tatsächlich gemessenen Konzentrationen sind. Unterschieden wird wieder nach Station, Jahreszeit und Partikelgrößenbereich. Zusätzlich zu den bisherigen Darstellungen wird PM₁₀ als Gesamtparameter gezeigt (unterste Zeile). Eine detaillierte numerische Zusammenfassung dieser PM₁₀-Konzentrationen und Anteile (Median, Mittelwert, Minimum, Maximum) findet sich in Tabelle 32.

Zusätzlich zu den Kategorien aus Jahreszeit und Anströmung (Sommer West, Sommer Ost, Winter West, Winter Ost) wird in Abbildung 83 und Abbildung 84 sowie in Tabelle 32 die Kategorie „Überschreitungstage“ eingeführt. Insgesamt gab es sechs Messtage im Projekt, an denen die offiziellen Tagesmittelkonzentrationen an LMI (LfULG-Messwerte von Filterproben) über 50 µg m⁻³ lagen. An einem Tag (25.09.2013) ist die Überschreitung vermutlich einzig auf lokale Baumaßnahmen zurückzuführen (PM₁₀-Konzentration von 153 µg m⁻³), weshalb dieser bei der PMF nicht berücksichtigt wurde (s. oben). Die übrigen fünf Überschreitungstage lagen alle in der Winterkampagne, an einem Tag herrschte West- und an vier Tagen Ostanströmung. Die mittleren (Median)-Konzentrationen und Anteile an diesen Tagen geben Hinweise auf Hauptquellen der PM-Belastung an Tagen, an denen aufgrund der gesetzlichen Regelungen der höchste Handlungsbedarf besteht.

An den Konzentrationen in Abbildung 83 lässt sich erkennen, dass die PM-Belastungssituation im Raum Leipzig bei winterlichen Ostlagen sehr deutlich am höchsten war, ähnlich wie dies auch in langjährigen Messreihen immer wieder gezeigt wurde (SPINDLER et al. 2010, 2012 und 2013). Die Konzentrationen an Überschreitungstagen sind denen der winterlichen Ostlagen generell sehr ähnlich, sowohl in Summe als auch in den einzelnen Quellgruppen in allen Partikelgrößenbereichen. Einzig die Konzentrationen der Verkehrsquellen (Abgase und Verkehr allgemein) waren an Überschreitungstagen deutlich höher als in Winter Ost. Dies gilt in besonders hohem Maße an LMI (aufgrund der dort beobachteten Windrichtungsabhängigkeit des Transportes der Verkehrsemissionen zur Messstelle), ist jedoch auch deutlich an den übrigen städtischen Stationen zu erkennen. Dieser Effekt ist auf einen starken Einfluss des West-Überschreitungstages zurückzuführen, an dem die durch die PMF zugeordneten Konzentrationen in den Verkehrsquellen deutlich über denen der Osttage lagen (an allen Stationen mind. einen Faktor 3, oft deutlich mehr). Dementsprechend ist der Unterschied in den Medianen der Verkehrskonzentrationen (s. Tabelle 32) zwar auch zu erkennen, aber viel weniger stark ausgeprägt, weil der eine Westtag im Median nicht so stark ins Gewicht fällt wie im arithmetischen Mittel.

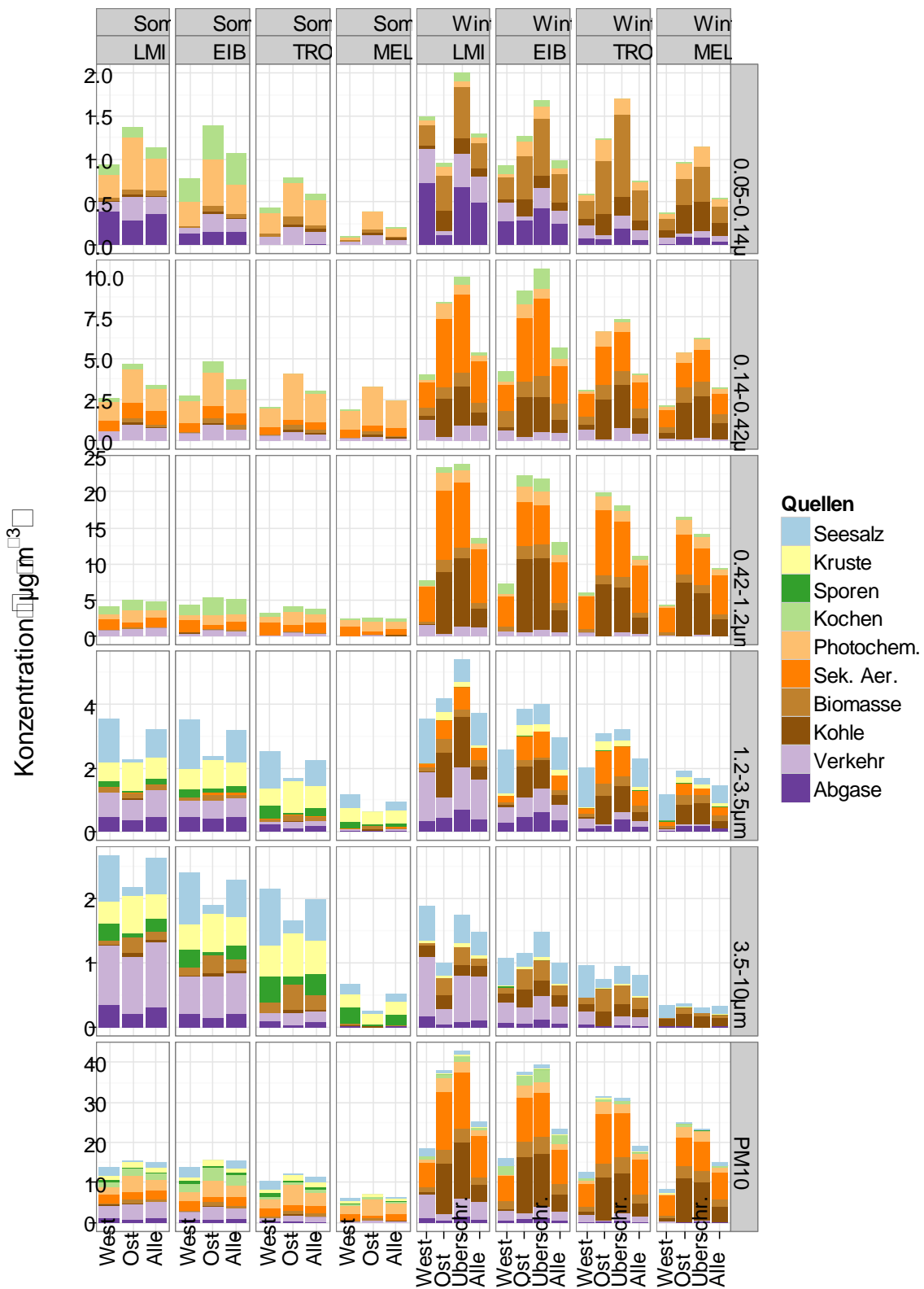


Abbildung 83: Kumulative mittlere Konzentrationen (arithmetisches Mittel, s. Text) der mittels PMF quantifizierten Quellgruppen

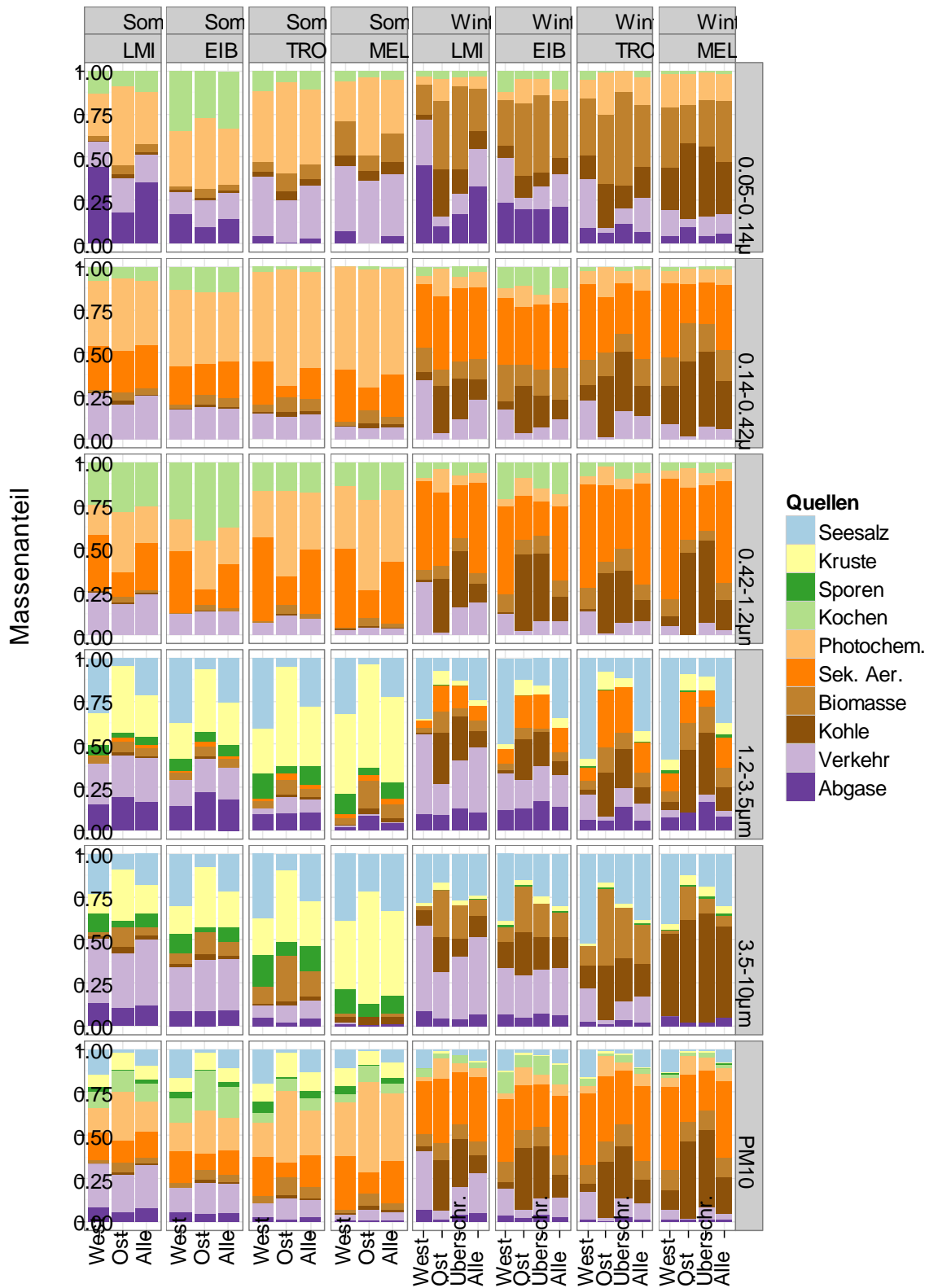


Abbildung 84: Kumulative mittlere Anteile (arithmetische Mittelwerte, s. Text) der Konzentrationen aus den Quellgruppen an der Gesamtmasse im betrachteten Partikelgrößenbereich (Impaktorstufen und PM₁₀)

Tabelle 32: PM₁₀-Konzentrationen und -Massenanteile der mittels PMF zugeordneten Quellgruppen an allen Stationen. Werte angegeben als Median/Mittelwert (Min – Max)

Quellgruppe	LMI		EIB		TRO		MEL	
	Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)		Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)		Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)		Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)	
Abgase	So West	1,2/1,2 (0,57-2,1) 8,3/8,9 (4,2-13)	0,75/0,79 (<0,01-1,9) 4,8/5,4 (0,08-12)	0,28/0,33 (<0,01-0,97) 2,8/3 (<0,01-7,8)		0,004/0,08 (0-0,53) 0,11/0,86 (0-5,8)		
	So Ost	0,71/0,85 (0,23-1,9) 4,6/5,5 (1,9-12)	0,67/0,74 (0,2-1,5) 4,8/4,7 (1,3-7,9)	0,15/0,18 (0,02-0,39) 1,2/1,5 (0,23-3,4)		0,04/0,04 (0-0,1) 0,46/0,71 (0-1,8)		
	Wi West	1,2/1,2 (0,48-3,4) 6,1/7 (1,7-12)	0,39/0,63 (0-2,3) 2,9/3,7 (0-11)	0,12/0,23 (0-1,3) 0,93/1,6 (0-8,9)		0,034/0,07 (0-0,18) 0,22/1,2 (0-3,6)		
	Wi Ost	0,49/0,75 (0,27-1,8) 1,5/2,2 (0,64-6,3)	1/0,96 (0,36-1,8) 2,2/2,5 (1,1-5)	0,26/0,31 (0-0,51) 1,1/0,87 (0-1,3)		0,44/0,41 (<0,01-1) 1,2/1,5 (0,01-3,6)		
	Überschr.	1,2/1,5 (0,3-3,4) 2,2/4,7 (0,64-12)	1/1,3 (0,5-2,3) 2,2/3,9 (1,1-11)	0,5/0,59 (0,16-1,3) 1,2/2,6 (0,51-8,9)		0,44/0,44 (0,09-1) 2/1,7 (0,37-3)		
	Alle	1,1/1,1 (0,23-3,4) 6,3/6,2 (0,64-13)	0,72/0,77 (0-2,3) 3,8/4,2 (0-12)	0,19/0,26 (0-1,3) 1,2/1,8 (0-8,9)		0,031/0,13 (0-0,99) 0,49/1 (0-5,8)		
Verkehr	So West	3,1/3,2 (1,6-5,2) 22/25 (13-46)	1,5/2 (0,9-4,4) 15/15 (7,7-22)	0,72/0,77 (0,2-1,5) 7,6/7,7 (1,7-12)		0,18/0,24 (0,05-0,63) 3,6/3,7 (1,2-8,1)		
	So Ost	3,4/3,9 (0,14-9,9) 23/22 (1,4-40)	3,1/3,2 (0-7,5) 20/18 (0-30)	0,99/1,6 (0,52-3,7) 7,9/12 (5,3-27)		0,3/0,48 (0,09-1,6) 4,8/6,3 (1,2-17)		
	Wi West	5,7/5,8 (2,1-14) 35/34 (7,2-55)	2/2,4 (0,63-5,8) 11/16 (3,9-31)	1,2/1,9 (0,34-6) 10/16 (3,9-41)		0,31/0,34 (0,065-1) 3,4/5,7 (0,68-25)		
	Wi Ost	1,5/1,6 (0,94-2,7) 4,5/5,1 (1,7-9,7)	1,5/1,5 (0,98-2) 3,9/4,3 (1,7-8,1)	0,21/0,24 (0,12-0,43) 0,67/0,81 (0,27-2)		0,03/0,08 (0-0,36) 0,08/0,35 (0-1,5)		
	Überschr.	2,3/4,2 (0,94-14) 6/14 (1,7-50)	1,8/2,3 (0,98-5,8) 3,9/8,1 (1,7-29)	0,29/1,4 (0,12-6) 0,74/8,8 (0,27-41)		0,03/0,29 (<0,01-1) 0,08/5,3 (0,02-25)		
	Alle	3,8/4,1 (0,14-14) 22/24 (1,4-56)	1,9/2,3 (0-7,5) 11/13 (0-31)	0,79/1,2 (0,12-6) 7,1/9,6 (0,27-41)		0,21/0,28 (0-1,6) 3,3/4 (0-25)		
Kohle	So West	0,06/0,06 (0,02-0,12) 0,43/0,47 (0,19-0,9)	0,04/0,04 (<0,01-0,14) 0,24/0,32 (<0,01-1,2)	0,03/0,03 (0-0,08) 0,26/0,33 (0-0,97)		0,03/0,03 (<0,01-0,05) 0,53/0,51 (0,05-1,3)		
	So Ost	0,09/0,27 (0,03-1,2) 0,72/1,7 (0,17-7,6)	0,07/0,22 (0,03-1) 0,39/1,4 (0,2-6,5)	0,07/0,23 (0,01-1,1) 0,61/2,3 (0,07-11)		0,04/0,18 (0,02-0,83) 0,8/2,6 (0,33-12)		
	Wi West	0,5/0,56 (0,099-1,8) 1,8/3 (0,76-7,4)	0,54/0,5 (0,07-0,89) 3/3,3 (0,55-7,2)	0,53/0,56 (0,09-1,9) 2,7/4,8 (0,84-15)		0,69/0,7 (0,1-1,8) 7,1/12 (1,1-44)		
	Wi Ost	9,5/12 (1,5-27) 33/30 (7,2-51)	19/15 (1,6-27) 42/36 (7,1-58)	11/11 (1,6-21) 40/33 (7,4-54)		14/11 (1,9-17) 49/44 (9,6-70)		
	Überschr.	9,5/13 (1,8-27) 33/29 (6,7-51)	20/15 (0,85-27) 36/31 (4,2-58)	11/10 (1,9-21) 26/29 (12-54)		14/11 (1,8-17) 44/43 (17-69)		
	Alle	0,18/2,4 (0,02-27) 1,1/6,9 (0,17-51)	0,25/2,8 (<0,01-27) 1,5/7,7 (<0,01-58)	0,15/2,1 (0-21) 1,8/8 (0-54)		0,29/2,3 (<0,01-17) 3,3/12 (0,05-70)		
Biomasse	So West	0,29/0,27 (0,01-0,64) 1,8/2,1 (0,07-5,4)	0,35/0,34 (0,1-0,68) 2,2/2,7 (0,78-6,4)	0,33/0,37 (0,03-0,8) 3,8/3,7 (0,28-8,4)		0,11/0,13 (0,01-0,38) 1,7/2 (0,27-5,7)		
	So Ost	0,71/0,86 (0,032-2) 5,3/5,6 (0,32-13)	0,79/0,97 (0,01-2) 5,3/5,7 (0,1-13)	1,0/1,1 (0,72-1,9) 8/9,7 (4,8-20)		0,32/0,51 (0,09-1,4) 4/6,8 (1,4-20)		
	Wi West	0,96/1,3 (0,16-2,9) 6/6,9 (1,2-15)	1,5/2,1 (0,33-6,6) 9,5/12 (2,8-26)	1/1,4 (0,32-3,9) 8,7/11 (3,8-22)		0,77/0,86 (0,13-1,6) 10/12 (5,2-26)		
	Wi Ost	3,8/3,8 (2,2-6,4) 10/12 (5-22)	4,4/4,6 (2,1-8,9) 10/11 (5,6-15)	4,1/3,8 (2,3-5,7) 12/11 (7,6-13)		3/3,5 (1,7-6,8) 11/12 (9,8-15)		
	Überschr.	3,9/4,1 (2,7-6,4) 10/11 (5-22)	4,9/5,2 (2,5-8,9) 13/13 (5,6-18)	4,5/4,3 (2,3-5,7) 13/13 (11-16)		3/3,5 (0,55-6,8) 12/12 (11-15)		
	Alle	0,84/1,4 (0,01-6,4) 5/6,1 (0,07-22)	1,1/1,8 (0,01-8,9) 6,6/8,1 (0,1-26)	1/1,5 (0,03-5,7) 8,1/8,8 (0,28-22)		0,56/1,1 (0,01-6,8) 7,7/7,9 (0,27-26)		
Sek. Aer.	So West	1,3/2,2 (0,04-5,6) 12/16 (0,29-44)	1,5/2,3 (0-6,9) 17/18 (0-51)	1,7/2,2 (0,12-5,7) 27/23 (1,1-57)		1,3/1,8 (0-5,3) 27/31 (0-73)		
	So Ost	1,2/1,7 (0,11-3,6) 6,4/13 (0,95-36)	1,3/1,3 (0,13-3) 6,6/9,6 (0,83-31)	0,64/1,1 (<0,01-3,7) 5/9 (0,031-25)		0,57/0,7 (0,05-1,5) 8,6/12 (0,58-31)		
	Wi West	4,4/6,3 (0,15-21) 28/31 (0,55-72)	4,3/6 (0,18-16) 40/36 (0,9-65)	4,5/5,9 (0,06-17) 48/41 (0,4-80)		2,5/4,7 (0,01-12) 53/48 (0,31-77)		
	Wi Ost	15/13 (4,9-20) 34/34 (17-46)	16/12 (0,37-18) 28/26 (1,7-40)	14/14 (3,5-22) 45/40 (16-51)		9,1/8,2 (0,74-16) 31/27 (4,2-47)		
	Überschr.	18/12 (0,15-20) 34/28 (0,55-46)	16/12 (0,18-18) 28/25 (0,9-40)	14/13 (0,06-22) 44/34 (0,4-51)		9,9/8,7 (0,01-16) 31/25 (0,31-43)		
	Alle	3,9/6,2 (0,04-23) 25/26 (0,29-72)	3,1/5,5 (0-25) 21/25 (0-75)	3,7/5,8 (<0,01-22) 29/32 (0,031-80)		2,1/4,5 (0-22) 34/35 (0-77)		
Photochem.	So West	1,2/2,1 (0,13-6,1) 8,2/14 (0,98-36)	1,5/2,3 (0,28-6,9) 15/17 (2,3-36)	1,3/2,1 (0,53-6,8) 13/20 (6,3-46)		1,2/2 (0,28-6,7) 24/32 (4-70)		
	So Ost	5/4,3 (1,1-7,4) 30/28 (6,9-48)	4,8/3,9 (1,3-6) 26/25 (8,1-43)	5,6/5,1 (2,1-6,4) 42/41 (22-56)		4,3/3,9 (0,66-6,1) 58/53 (17-69)		
	Wi West	0,16/0,42 (0-1,4) 1,3/2,3 (0-5,3)	0,38/0,47 (0-1,3) 1,3/3,8 (0-13)	0,24/0,42 (<0,01-1,4) 2,6/4,4 (0,06-16)		0,25/0,34 (<0,01-1,2) 2,9/4,7 (0,02-12)		
	Wi Ost	1/3,1 (0-9,7) 3,7/11 (0-30)	0,81/2,8 (0-10) 1,4/8,9 (0-24)	1,1/2,8 (0,06-7,9) 2,5/10 (0,18-28)		3/3,1 (<0,01-9,3) 9,9/11 (0,02-25)		

Quellgruppe	LMI		EIB		TRO		MEL	
	Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$	(Anteil %)	Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$	(Anteil %)	Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$	(Anteil %)	Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$	(Anteil %)
Überschr.	0,05/2,2 (0-9,7)		0,24/2,3 (0,06-10)		0,39/1,9 (0,06-7,9)		0,57/2,9 (<0,01-9,3)	
	0,09/5,1 (0-22)		1,1/5,1 (0,12-23)		1,1/5 (0,18-20)		2,9/7,9 (0,02-25)	
Alle	0,86/2 (0-9,7)		1,3/2,1 (0-10)		1,2/2,3 (<0,01-8,5)		0,84/2,1 (0-9,3)	
	4,8/11 (0-48)		9,1/12 (0-43)		9,3/16 (0,06-56)		14/22 (0-71)	
Kochen	So West	1/1,3 (0,34-3,4)	1,5/2,1 (0,47-5,3)	0,52/0,64 (<0,01-1,9)	0,29/0,28 (0,07-0,6)			
		8,9/9,4 (2,5-18)	12/14 (5,2-30)	5,2/5,9 (0,07-16)	3,9/4,7 (1,1-11)			
	So Ost	1,5/1,8 (0,57-3,4)	3,1/3,5 (1,9-6,2)	0,83/0,81 (0,42-1,2)	0,46/0,52 (0,27-0,94)			
		9,7/12 (3,8-28)	22/23 (12-35)	6,7/6,9 (3-11)	5,9/8,7 (4,4-25)			
	Wi West	0,6/1,1 (0,048-3,7)	1,4/2,1 (0,54-6,1)	0,13/0,56 (0,0047-2,1)	0,04/0,16 (0-0,38)			
		2,4/4,9 (0,37-13)	9,3/12 (3,2-30)	2/4,1 (0,04-14)	1,2/2,3 (0-8,6)			
	Wi Ost	0,68/0,71 (0,07-1,6)	2,3/2,9 (0,53-5,6)	0,25/0,42 (0,02-1,1)	0,13/0,33 (0-1,3)			
		1,7/2,3 (0,16-5,9)	9,5/8 (1,1-18)	0,79/1,5 (0,043-5,1)	0,56/1,7 (0-7,3)			
	Überschr.	0,37/1,2 (0,08-3,7)	4,5/3,5 (0,53-6,1)	0,25/0,63 (0,02-2,1)	0,07/0,22 (0-0,66)			
		0,84/3,6 (0,16-13)	9,5/10 (1,1-30)	0,79/3,4 (0,04-14)	0,16/2,3 (0-8,6)			
Alle	0,95/1,1 (0-3,7)	2,2/2,7 (0,47-8,1)	0,52/0,64 (0-2,1)	0,28/0,29 (0-1,3)				
	5,1/6,6 (0-28)	12/15 (1,1-42)	4,3/4,9 (0-17)	2,8/3,9 (0-25)				
Sporen	So West	0,26/0,48 (0,05-2,1)	0,33/0,52 (<0,01-2,2)	0,55/0,77 (0,05-3,1)	0,05/0,47 (0-3,3)			
		2/3,3 (0,41-13)	3/3,5 (0,023-11)	4,9/6,7 (0,95-21)	1,2/4,6 (0-25)			
	So Ost	0,095/0,11 (0-0,31)	0,14/0,16 (0,03-0,47)	0,11/0,18 (0,03-0,38)	0,016/0,05 (0-0,16)			
		0,75/0,85 (0-2,6)	0,8/1,1 (0-2,3)	0,96/1,4 (0,26-2,9)	0,18/0,94 (0-4,1)			
	Wi West	0/<0,01 (0-0,052)	0/0,02 (0-0,11)	<0,01/<0,01 (0-0,034)	0,01/0,02 (<0,01-0,063)			
		0/0,04 (0-0,22)	0/0,16 (0-1,4)	<0,01/0,06 (0-0,41)	0,18/0,43 (0,02-2,5)			
	Wi Ost	<0,01/0,028 (0-0,1)	<0,01/0,02 (0-0,08)	<0,01/0,02 (0-0,11)	<0,01/0,03 (<0,01-0,11)			
		<0,01/0,12 (0-0,45)	<0,01/0,06 (0-0,33)	0,01/0,09 (0-0,5)	0,03/0,12 (<0,01-0,58)			
	Überschr.	0/0,02 (0-0,1)	0/0,01 (0-0,05)	0/<0,01 (0-0,03)	<0,01/0,02 (<0,01-0,05)			
		0/0,07 (0-0,35)	0/0,02 (0-0,08)	0/0,02 (0-0,07)	0,07/0,07 (<0,01-0,12)			
Alle	0,04/0,18 (0-2,1)	0,03/0,21 (0-2,2)	0,03/0,28 (0-3,1)	0,02/0,15 (0-3,3)				
	0,2/1,2 (0-13)	0,1/1,3 (0-11)	0,33/2,3 (0-21)	0,12/1,6 (0-25)				
Kruste	So West	0,95/0,91 (0,07-2,3)	0,88/1,1 (0-2,4)	0,75/1 (0,02-2,7)	0,63/0,62 (0,18-1,5)			
		7,1/6,8 (0,56-19)	7/7,9 (0-21)	6,6/10 (0,22-28)	13/10 (2,8-16)			
	So Ost	1,4/1,5 (0,46-3,4)	1,3/1,5 (0,44-3,7)	1,2/1,7 (0,82-3,9)	0,46/0,57 (0,17-1,1)			
		7,6/10 (3,8-28)	7,6/9,9 (3-24)	11/14 (5,6-26)	9,3/8 (2,4-12)			
	Wi West	0,04/0,06 (0-0,21)	0,06/0,09 (<0,01-0,32)	0,04/0,06 (0-0,25)	0,02/0,04 (0-0,14)			
		0,22/0,32 (0-1)	0,42/0,55 (<0,01-1,2)	0,46/0,7 (0-3,8)	0,4/0,69 (0-2,9)			
	Wi Ost	0,2/0,27 (0-0,66)	0,29/0,33 (0,17-0,58)	0,22/0,28 (0,07-0,53)	0,21/0,21 (0,01-0,35)			
		0,51/0,94 (0-3)	0,62/1 (0,39-2,7)	0,66/0,96 (0,18-2,4)	0,75/0,84 (0,05-1,8)			
	Überschr.	0,12/0,2 (0-0,58)	0,28/0,3 (0,18-0,51)	0,21/0,22 (0,07-0,51)	0,12/0,17 (0,01-0,35)			
		0,43/0,52 (0-1,2)	0,62/0,75 (0,4-1,2)	0,51/0,63 (0,18-1,3)	0,75/0,75 (0,05-1,4)			
Alle	0,21/0,57 (0-3,4)	0,32/0,66 (0-3,7)	0,25/0,64 (0-3,9)	0,19/0,33 (0-1,5)				
	1,1/3,9 (0-28)	1,3/4,3 (0-24)	1,4/5,5 (0-28)	2,1/4,8 (0-16)				
Seesalz	So West	1,7/2,1 (0,1-8,1)	2,2/2,4 (0,02-9,4)	2/2,1 (0,05-8,7)	0,45/0,56 (<0,01-1,9)			
		13/15 (0,8-60)	17/17 (0,2-62)	20/20 (0,46-74)	10/11 (0,03-51)			
	So Ost	0,11/0,21 (0-0,52)	0,06/0,27 (0-1)	0,17/0,27 (<0,01-0,89)	0,057/0,057 (0-0,12)			
		0,73/1,5 (0-5,2)	0,4/1,6 (0-4,6)	1,4/2 (0,05-6,4)	0,73/0,94 (0-2,1)			
	Wi West	1,4/1,9 (0,43-6)	0,96/1,8 (0,63-5)	1,4/1,7 (0,46-5,5)	0,65/1 (0,08-3,6)			
		12/11 (2,2-24)	8/12 (3,7-30)	13/16 (3,6-36)	14/13 (1,9-30)			
	Wi Ost	0,74/0,84 (0-2,3)	0,77/1 (0-2,7)	0,4/0,67 (0-2,5)	0,3/0,43 (0,01-1,4)			
		1,6/2,3 (0-8,1)	1,8/2,1 (0-4,6)	1/1,8 (0-5,7)	1,1/1,3 (0,05-3,2)			
	Überschr.	1,3/1,4 (0,74-2,3)	0,96/1,4 (0,69-2,7)	0,68/0,98 (0,25-2,5)	0,3/0,48 (0,01-1,4)			
		3,4/3,9 (1,6-8,1)	3,5/3,2 (1,6-4,7)	2,7/3 (0,78-5,7)	1,6/1,5 (0,05-3,1)			
Alle	0,99/1,4 (0-8,1)	0,82/1,5 (0-9,4)	0,93/1,4 (0-8,7)	0,3/0,56 (0-3,6)				
	4,8/8,3 (0-60)	4,5/9,3 (0-62)	5,6/11 (0-74)	3/7,4 (0-51)				

3.7.13 Zusammenfassung PMF

Mittels PMF konnten Beiträge der wichtigsten und auch einiger untergeordneter PM-Quellgruppen identifiziert und quantifiziert werden. Im Sommer stellte der Verkehr mit mittleren PM₁₀-Masseanteilen von ca. 5 % für Abgasemissionen in ultrafeinen und groben Partikeln und ca. 20 % für Verkehrsemissionen allgemein eine wichtige Quelle dar. Im städtischen Hintergrund lagen die Anteile bei ca. einem Drittel der Werte der Verkehrsstationen. Im Winter waren die Verkehrsanteile stark abhängig von der generellen Partikelbelastung. Bei nur mäßig hohen Belastungen bei Westanströmung lagen die mittleren PM₁₀-Anteile bei ca. 10–35 %, je nach städtischer Station. Bei den während Ostlagen auftretenden sehr hohen PM-Konzentrationen sanken die mittleren Verkehrsanteile auf ca. 4–5 % an den Verkehrsstationen und < 1 % im städtischen Hintergrund.

Die hohen Konzentrationen bei Ostanströmung im Winter wurden v. a. durch ferntransportierte Emissionen aus Verbrennung von Kohle und Biomasse verursacht. Die mittleren PM₁₀-Masseanteile für Kohleverbrennung lagen in „Winter Ost“ an allen vier Stationen des Projektes (inklusive des regionalen Hintergrundes in MEL) bei ca. 30–50 %, während sie in „Winter West“ auf Werte von maximal ca. 7 % (in MEL) sanken. Weniger stark ausgeprägt war dieser Unterschied in der Luftmassenherkunft für Partikel aus Biomasseverbrennung, die im Winter an allen Stationen und unabhängig von der Anströmung im Mittel ca. 10 % der PM₁₀-Konzentration ausmachten.

Ein weiterer Hauptbestandteil war sekundäres Material, das im Sommer je nach Station und Anströmung einen mittleren Anteil von ca. 30–65 % an PM₁₀ hatte (Summe der beiden sekundären PMF-Faktoren) und im Winter v. a. in Form von Ammoniumsulfat und Ammoniumnitrat im Mittel ebenfalls ca. 30–55 % der PM₁₀-Partikelmasse ausmachte. Den Rest der Partikelmasse machten nach den Ergebnissen der PMF die Quellgruppen Seesalz, (urbaner) Staub, primäres biologisches Material (Sporen) und Kochemissionen aus, die je nach betrachteter Kategorie (Standort, Jahreszeit, Anströmung) ebenfalls signifikante Anteile an PM₁₀ haben können.

Die Ergebnisse der PMF werden im folgenden Kapitel mit denen der anderen im Projekt verwendeten Quellzuordnungsansätze verglichen.

3.8 Vergleich der Quellzuordnungsansätze

In Tabelle 33 und Tabelle 34 werden die Ergebnisse der verschiedenen Quellzuordnungsansätze für PM₁₀ (Summe der Impaktorstufen) an der Station LMI miteinander verglichen, um dadurch ihre jeweilige Qualität besser einschätzen zu können. LMI wurde ausgewählt, weil es sich hier um eine offizielle Station im Messnetz des LfULG handelt, an der stadtwertweit oft mit die höchsten PM-Konzentrationen zu verzeichnen sind.

Aufgrund der sehr unterschiedlichen Methodik der Ansätze können nicht alle der identifizierten Quellen miteinander verglichen werden. Quellgruppen eines Ansatzes, denen keine Quellgruppen eines anderen Ansatzes auch nur annähernd entsprechen, sind in den Tabellen nur in zwei Ausnahmefällen mit angeführt (Partikelwasser, der Vollständigkeit halber und PM Kohleverbrennung als Vergleichswert zu OC und EC Kohleverbrennung).

In der Ergebnisspalte wird versucht, unter Berücksichtigung der jeweiligen methodischen Unterschiede und Unsicherheiten eine qualifizierte Schätzung der Werte für Konzentration und Anteil vorzunehmen, die für eine typische Zusammensetzung des PM₁₀ an LMI plausibel erscheinen.

Tabelle 33: Ergebnisse der verschiedenen Quellzuordnungsansätze für die Hauptquellgruppen Verbrennung und sekundäres Material. Gezeigt sind Median/Mittelwert für PM₁₀-Konzentration und -Anteil (in Klammern, bezogen auf Masse, OC oder EC) der Quellgruppe

Quellgruppe		Makrotracer Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)	C-Bilanz Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)	Lenschow Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)	PMF Konz. µg m ⁻³ (Anteil %)	Ergebnis
PM Biomasse- verbrennung	So West	0,16/0,18 (1/1,2)			0,29/0,27 (1,8/2,1)	0,3 (2)
	So Ost	0,47/0,57 (2,9/3,5)			0,71/0,86 (5,3/5,6)	0,6 (5)
	Wi West	1,1/1,4 (6,2/6,7)			0,96/1,3 (6/6,9)	1 (6)
	Wi Ost	4,2/3,7 (9,7/9,1)			3,8/3,8 (10/12)	4 (10)
	Alle	0,69/1,3 (3,9/5)			0,84/1,4 (5/6,1)	0,8 (5)
OC Biomasse- verbrennung	So West	0,097/0,11 (15/17)	0/0 (0/0) ¹		0,01/0,01 (1,1/1,7) ²	<0,1 (1)
	So Ost	0,29/0,36 (27/34)	0/0 (0/0) ¹		0,06/0,06 (4,2/5,7) ²	<0,1 (5)
	Wi West	0,71/0,84 (57/53)	0,83/1 (63/69) ¹		0,1/0,14 (20/17) ²	0,1 (20)
	Wi Ost	2,6/2,3 (90/83)	1,8/1,7 (62/61) ¹		0,38/0,38 (13/15) ²	0,4 (15)
	Alle	0,43/0,82 (37/45)	0,55/0,65 (32/33) ¹		0,08/0,14 (7,2/10) ²	0,1 (8)
EC Biomasse- verbrennung	So West	0,04/0,05 (1,6/2,1)	0/0 (0/0) ¹		0,03/0,03 (1,5/1,9) ³	<0,1 (2)
	So Ost	0,11/0,14 (5/5,2)	0/0 (0/0) ¹		0,16/0,18 (10/9,2) ³	0,1 (8)
	Wi West	0,28/0,33 (10/10)	0,46/0,85 (17/28) ¹		0,27/0,41 (9,1/12) ³	0,3 (10)
	Wi Ost	1/0,92 (14/13)	5,1/4,6 (64/62) ¹		1/1,1 (20/22) ³	1 (15)
	Alle	0,17/0,33 (5,8/7,7)	0,37/1 (12/22) ¹		0,22/0,39 (8,9/10) ³	0,2 (7)
PM Kohle- verbrennung	So West				0,063/0,064 (0,43/0,47)	<0,1 (<1)
	So Ost				0,086/0,27 (0,72/1,7)	<0,1 (<1)
	Wi West				0,5/0,56 (1,8/3)	0,5 (2)
	Wi Ost				9,5/12 (33/30)	10 (30)
	Alle				0,18/2,4 (1,1/6,9)	0,2 (1)
OC Kohle- verbrennung	So West		0/0 (0/0) ¹		0,001/0,002 (0,33/0,52) ²	<0,1 (<1)
	So Ost		0/0 (0/0) ¹		0,003/0,017 (0,25/1,8) ²	<0,1 (<1)
	Wi West		0,83/1 (63/69) ¹		0,02/0,03 (2,1/4,2) ²	<0,1 (2)
	Wi Ost		1,8/1,7 (62/61) ¹		0,66/1 (39/35) ²	0,7 (40)
	Alle		0,55/0,65 (32/33) ¹		0,007/0,2 (1,5/8,3) ²	<0,1 (2)
EC Kohle- verbrennung	So West		0/0 (0/0) ¹		0,021/0,02 (1,2/1,2) ³	<0,1 (1)
	So Ost		0/0 (0/0) ¹		0,016/0,074 (1,2/2,8) ³	<0,1 (1)
	Wi West		0,46/0,85 (17/28) ¹		0,085/0,16 (3,1/4,4) ³	0,1 (3)
	Wi Ost		5,1/4,6 (64/62) ¹		2,6/3 (51/45) ³	3 (50)
	Alle		0,37/1 (12/22) ¹		0,061/0,59 (2,4/10) ³	<0,1 (2)
PM Verkehr	So West			3,1/7,7 (23/28)	4,6/4,4 (30/33) ⁴	5 (30)
	So Ost			5,3/4,7 (30/26)	3,9/4,7 (26/27) ⁴	4 (35)
	Wi West			6,2/5,1 (41/17)	6,8/7 (40/41) ⁴	7 (40)
	Wi Ost			5,7/8,5 (15/18)	2,1/2,4 (5,7/7,3) ⁴	3 (10)
	Alle			5,2/6,5 (25/23)	4,9/5,2 (29/30) ⁴	5 (30)
OC Verkehr	So West			0,26/0,28 (35/37)	0,089/0,09 (12/16) ⁴	0,3 (35)
	So Ost			0,41/0,39 (39/34)	0,12/0,13 (9,4/11) ⁴	0,4 (40)
	Wi West			0,59/0,59 (47/40)	0,18/0,18 (28/25) ⁴	0,6 (50)
	Wi Ost			0,22/0,25 (8/7,1)	0,039/0,049 (1,6/2,1) ⁴	0,2 (8)
	Alle			0,34/0,4 (33/32)	0,11/0,12 (12/15) ⁴	0,3 (30)
EC Verkehr	So West			1,4/1,4 (72/69)	1,1/1,1 (63/63) ⁴	1 (65)
	So Ost			1,1/1,3 (47/44)	1/1,2 (51/55) ⁴	1 (50)
	Wi West			1,6/1,6 (54/56)	1,8/1,9 (67/60) ⁴	1,5 (60)
	Wi Ost			0,59/1,3 (7,5/12)	0,48/0,49 (7/11) ⁴	0,6 (7)
	Alle			1,3/1,4 (50/50)	1,2/1,3 (53/50) ⁴	1,3 (50)
PM sekundär	So West	3,3/3,2 (18/20) ⁵			4,2/4,2 (32/30) ⁶	4 (30)
	So Ost	3,3/3,6 (20/21) ⁵			5,7/6 (43/41) ⁶	6 (40)
	Wi West	3,3/5,2 (31/27) ⁵			5,1/6,7 (33/33) ⁶	5 (30)
	Wi Ost	18/16 (39/39) ⁵			16/16 (40/45) ⁶	16 (40)
	Alle	3,7/6,6 (24/27) ⁵			6,2/8,2 (37/37) ⁶	6 (35)

1 Hausbrand insgesamt

2 WSOC statt OC zugeordnet

3 WISC statt EC zugeordnet

4 Summe aller Verkehrsquellen, inkl. Abgasemissionen

5 Summe der sekundären Hauptionen Ammonium, Nitrat und Sulfat

6 Summe der beiden sekundären Quellen Photochemie und SIA

Tabelle 34: Ergebnisvergleich der verschiedenen Quellzuordnungsansätze für weitere Quellen. Gezeigt sind Median/Mittelwert für Konzentration und Anteil (in Klammern) der Quellgruppe. Anteile beziehen sich immer auf den jeweiligen Parameter (Masse, OC oder EC).

Quellgruppe		Makrotracer Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$ (Anteil %)	C-Bilanz Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$ (Anteil %)	Lenschow Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$ (Anteil %)	PMF Konz. $\mu\text{g m}^{-3}$ (Anteil %)
PM Brems- abrieb	So West	0,13/0,11 (0,71/0,72)			3,1/3,2 (22/25) ¹
	So Ost	0,09/0,1 (0,6/0,58)			3,4/3,9 (23/22) ¹
	Wi West	0,16/0,17 (0,99/0,96)			5,7/5,8 (35/34) ¹
	Wi Ost	0,075/0,089 (0,21/0,22)			1,5/1,6 (4,5/5,1) ¹
	Alle	0,12/0,13 (0,68/0,69)			3,8/4,1 (22/24) ¹
PM Krusten- material	So West	3,3/16 (25/40)			0,95/0,91 (7,1/6,8) ²
	So Ost	3 /3,7 (19/22)			1,4/1,5 (7,6/10) ²
	Wi West	3,5/3,4 (19/18)			0,04/0,06 (0,22/0,32) ²
	Wi Ost	2,6/3,6 (7,1/9)			0,2/0,27 (0,51/0,94) ²
	Alle	3,4/7,5 (18 /24)			0,21/0,57 (1,1/3,9) ²
PM Sporen	So West	0,1/0,18 (0,69/1,2)			0,26/0,48 (2/3,3)
	So Ost	0,06/0,07 (0,34/0,51)			0,1/0,11 (0,75/0,85)
	Wi West	0/0,009 (0/0,04)			0/0,008 (0/0,04)
	Wi Ost	0/0,03 (0/0,07)			0,0017/0,028 (0,01/0,12)
	Alle	0,034/0,082 (0,15/0,5)			0,038/0,18 (0,2/1,2)
OC Sporen	So West	0,037/0,071 (6,5/9,2)			0,025/0,045 (4,1/5,3)
	So Ost	0,022/0,028 (2,4/3)			0,008/0,01 (0,76/0,92)
	Wi West	0/0,004 (0/0,23)			0/0,001 (0/0,1)
	Wi Ost	0/0,011 (0/0,43)			0,0002/0,002 (0,01/0,13)
	Alle	0,013/0,032 (1,1/3,7)			0,004/0,017 (0,37/1,9)
Wasser	So West	1,5/2 (10,3/10,7) ³			
	So Ost	0,1/0,5 (0,6/2,9) ³			
	Wi West	2,6/3,5 (15,2/18,9) ³			
	Wi Ost	3,9/6,7 (9,7/16,3) ³			
	Alle	2,1/3,6 (11,1/15,7) ³			

1 Faktor Verkehr allgemein

2 Stadtstaub-Faktor, ohne Verkehrseinfluss durch Aufwirbelung

3 berechnet aus mittleren Zusammensetzungen mit thermodynamischem Modell E-AIM III

Der Biomasseverbrennungsanteil an PM_{10} wurde mittels Makrotracer- und PMF-Ansatz bestimmt. Trotz der in beiden Ansätzen enthaltenen Unsicherheiten ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Der Anteil der Biomasseverbrennung an der PM_{10} -Masse machte im Mittel ca. 2, 5, 6 und 10 % für Sommer West, Sommer Ost, Winter West und Winter Ost aus. Die Übereinstimmung für EC ist ebenfalls gut, wobei hier zu berücksichtigen ist, dass i) der vom Impaktor bestimmte EC durch das thermografische Verfahren ohne Korrektur der Pyrolyseprozesse i. d. R. zu hoch ist und ii) aus diesem Grund bei der PMF der wasserunlösliche Kohlenstoff (WISC) verwendet wurde, der jedoch wiederum in der PMF nicht ausschließlich aus EC besteht.

Die Anteile am PM_{10} EC für Biomasseverbrennung lagen je nach Regime (Jahreszeit, Anströmung) zwischen ca. 2 und 15 % und zumindest im Winter unterhalb der mittels Kohlenstoffbilanz bestimmten Anteile für Hausbrand insgesamt (d. h. Biomasse und fossile Brennstoffe).

Für Biomasseverbrennungs-OC ergeben sich deutlichere Unterschiede zwischen dem Makrotraceransatz und der PMF. Die mittels Makrotracer abgeschätzten OC-Anteile lagen im Winter nahe oder sogar über denen der gesamten Hausbrand-Anteile der Kohlenstoffbilanz. Auch im Sommer erschienen sie mit ca. 15 und 30 % (West und Ost) zu hoch. Gründe dafür können wiederum in der OC/EC-Bestimmung (Unterschätzung des tatsächlichen OC) oder in den verwendeten Umrechnungsfaktoren liegen. Die durch PMF ermittelten Anteile lagen bei < 5 % im Sommer und 15–20 % im Winter, beziehen sich jedoch nur auf WSOC (der in der PMF statt OC zugeordnet wurde).

Trotz der Unsicherheiten beim OC erscheint die Übereinstimmung zwischen PMF und der Makrotracer-Methode über Levoglucosan als gut und die erhaltenen Ergebnisse damit als vertrauenswürdig.

Für die Verbrennung fossiler Energieträger zu Heizzwecken lässt sich ein Vergleich verschiedener Ansätze nur bedingt durchführen. Der in der PMF identifizierte Kohleverbrennungsfaktor lässt sich für PM mit keinem anderen Ergebnis, für OC und EC nur mit Hausbrand insgesamt aus der Kohlenstoffbilanzierung vergleichen. Hier sind die erhaltenen Werte dahingehend konsistent, als die Quellstärke der Kohleverbrennung immer unterhalb der des Hausbrandes liegt. Im Ergebnis werden daher die Werte der PMF im Wesentlichen übernommen.

Für die Quellgruppe „Verkehr“ ergeben sich bezüglich PM₁₀-Masse in den meisten Regimen sehr ähnliche Ergebnisse aus dem Lenschow-Ansatz und der PMF (hier gezeigt als Summe der Abgas- und Nicht-Abgasemissionen). Der Verkehrsanteil lag in Sommer West, Sommer Ost und Winter West übereinstimmend bei ca. 30, 25 und 40 %. In Winter Ost erscheinen die durch die PMF zugeordneten Werte etwas zu niedrig. Womöglich können bei den in winterlichen Ostlagen immer sehr hohen Konzentrationen aller Bestandteile von Verbrennungsaerosol die lokalen Verkehrsanteile schlechter aufgelöst werden. Hier wird die durch Lenschow ermittelte Konzentration etwas unterhalb des Winter West-Wertes (aufgrund der oben beschriebenen Windrichtungsabhängigkeit an LMI), die einen Anteil von ca. 15 % ausmacht, als realistischer eingeschätzt.

Die Vergleichbarkeit von OC und EC aus Verkehr wird wieder etwas durch die bei der PMF verwendeten Parameter WSOC und WISC (statt OC und EC) erschwert. Für EC ergeben sich dennoch gut übereinstimmende Anteile von Verkehrs-EC am gesamten PM₁₀-EC an LMI von ca. 50–65 % in Sommer West, Sommer Ost und Winter West und ca. 7 % in Winter Ost. Der sehr deutlich niedrigere Anteil hier ist sowohl auf generell höhere EC-Konzentrationen bei Ostlagen im Winter als auch auf in beiden Ansätzen deutlich geringere EC-Konzentrationen der Verkehrsquelle (nur ca. 1/3 der Konzentration in Winter West) zurückzuführen. Deutlich niedrigere Werte in Winter Ost zeigten sich auch für OC, wobei hier – ähnlich wie bei der Biomasseverbrennung oben – die Ergebnisse der beiden Ansätze stärker voneinander abweichen. Die durch die PMF zugeordneten (WSCO)-Konzentrationen und Anteile sind immer niedriger als die im Lenschow-Ansatz ermittelten OC-Werte, was jedoch aufgrund des überwiegend hydrophoben Verkehrs-OC zumindest qualitativ plausibel erscheint.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass für die Quellgruppe Verkehr die Ergebnisse des Lenschow-Ansatzes an LMI zumindest für PM und EC in den meisten Regimen sehr gut mit denen der PMF-Berechnungen übereinstimmen. Größere Abweichungen können sich im Regime Winter Ost ergeben, in dem möglicherweise aufgrund der generell sehr hohen Konzentrationen anthropogener Verbrennungsemissionen die Verkehrsquelle nur mit höherer Unsicherheit quantitativ korrekt erfasst werden kann.

Neben den Verbrennungsquellen stellt sekundäres Aerosol einen weiteren Hauptbestandteil des PM dar. Die beiden PMF-Faktoren Photochemie und sekundäres anorganisches Aerosol wurden in Tabelle 33 als PM sekundär zusammengefasst und mit der Summe von Ammonium, Nitrat und Sulfat als wesentliche anorganische Bestandteile des sekundären PM verglichen. V. a. im Sommer ergeben sich bei der PMF etwas höhere Anteile (ca. 30–40 % gegenüber ca. 20 % Summe Hauptionen), was vermutlich mit dem den beiden Faktoren zugeordneten organischen sekundären Material zusammenhängt. Im Winter lagen die Anteile mit ca. 30 % bei Westanströmung und ca. 40 % bei Ostlagen sehr nahe beieinander, weil hier auch in der PMF der überwiegend anorganische SIA-Faktor dominiert.

Die Quellgruppe Bremsabrieb ist in Tabelle 34 zwar enthalten, lässt sich aber kaum sinnvoll zwischen Makrotracer- und PMF-Ansatz vergleichen. Während im Makrotraceransatz einzig Bremsabriebs-PM abgeschätzt wird, enthalten die PMF-Werte alle Nicht-Abgas- und einen Teil der Abgasemissionen (Impaktorstufen 2 und 3). Die ermittelten Werte deuten jedoch zumindest darauf hin, dass Bremsabrieb an der Gesamtheit der Ver-

kehrsemissionen (inklusive z. B. auch Resuspension von Straßenstaub) nur eine untergeordnete Rolle spielen könnte.

Ähnlich schwierig ist der Vergleich der Ergebnisse zu Krustenmaterial. Im Makrotraceransatz ergeben sich hier relativ hohe Werte, die an LMI vermutlich stark durch Resuspension von bereits deponiertem Staub zu erklären sind. Dieser Anteil an Krustenmaterial ist bei der PMF jedoch im Verkehrsfaktor enthalten. Gezeigt ist in Tabelle 34 der Faktor Stadtstaub, der unabhängig vom Verkehr an allen Stationen identifiziert wurde und deutlich geringere Konzentrationen und Anteile aufwies.

Für die Quelle PM Pilzsporen zeigen Makrotraceransatz und PMF keine nennenswerten Anteile im Winter. In Sommer Ost lagen sie bei < 1 %, in Sommer West bei 0,7 % (Makrotracer) und 2 % (PMF). Unter Berücksichtigung der sehr niedrigen Konzentrationen dieser Quelle erscheinen diese Werte relativ gut übereinstimmend.

Partikelwasser kann neben den übrigen chemischen Bestandteilen einen bedeutenden Anteil der gewogenen PM-Masse ausmachen und wurde daher der Vollständigkeit halber in die Tabelle mit aufgenommen. Es wurde aus den mittleren (Median und Mittelwert) Konzentrationen der anorganischen Haupt- und Spurenionen in den jeweiligen Regimen (bzw. im Gesamtmittel) mit dem thermodynamischen Modell E-AIM III berechnet. Die sich ergebenden Wasseranteile lagen i. d. R. bei ca. 10–15 % (bei 25 °C und 55 % rel. Feuchte als verwendete typische Raumbedingungen im Wägeraum). Der überraschend niedrige Wert in Sommer Ost (Median 0,6 %) erscheint nicht realistisch. Ein Grund hierfür konnte nicht auf Anhieb ermittelt werden, es wird daher davon ausgegangen, dass der Wasseranteil in Sommer Ost in ähnlicher Größenordnung lag wie in den übrigen Regimen.

Zusammenfassung

Insgesamt zeigen diese Betrachtungen, dass es zwischen eindeutig und in den verschiedenen Ansätzen gleich definierten Quellgruppen i. d. R. sehr gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der PMF und denen der einfacheren Makrotracer- und Lenschow-Ansätze gibt. Die quantitativen Ergebnisse zu den bedeutenden Quellen PM und EC Biomasseverbrennung, PM und EC Verkehr sowie PM sekundär können daher als gut vertrauenswürdig eingeschätzt werden. Auch bei unbedeutenderen Quellen wie Pilzsporen gibt es gute Übereinstimmung zu entsprechenden Makrotraceransätzen, was insgesamt für eine gute Qualität der PMF-Ergebnisse in diesem Projekt spricht.

Der große Vorteil der PMF im Vergleich zu den übrigen Ansätzen ist, dass hiermit eine vergleichsweise hohe Anzahl verschiedener Quellen identifiziert und quantifiziert werden kann, inklusive vieler, für die es keine etablierten Makrotracerverfahren gibt.

3.9 Einordnung in lange Zeitreihen

Chemische Messungen

Um die Ergebnisse der vorgestellten Messungen in die sich über lange Zeiträume ändernde Immissionsituation einordnen zu können, werden in diesem Kapitel die Massenkonzentrationsmittelwerte (HV-Sammler) der Tage der Messkampagnen in eine vorliegende Messreihe eingeordnet. Diese Einordnung erfolgt für die Mittelwerte der Tage der Sommermesskampagne 2013 und der Wintermesskampagnen 2013/14 und 2014/15 (Kampagne aktuell) im Vergleich zur Sommermesskampagne 2000 und zur Wintermesskampagne 1999/2000 (Kampagne 2000) für den regionalen Standort Melpitz. Für Melpitz sind tägliche Messungen für PM₁₀ seit 1993 und für PM_{2,5} seit 2003 vorhanden. Es erfolgte der Vergleich für alle Tage der Kampagnen für die Winter- und

Sommerhalbjahre, danach wird zusätzlich unterschieden nach Tagen mit westlicher oder östlicher Anströmung. Für die Wintertage innerhalb der „Kampagne 2000“ standen allerdings keine Tage mit östlicher Anströmung für den Vergleich zur Verfügung.

Darüber hinaus werden die Mittelwerte der PM₁₀-Konzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM_{2,5}- und PM₁₀-Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten in Abhängigkeit der meteorologischen Parameter mittlere Windgeschwindigkeit, Temperatur und Globalstrahlung gezeigt.

Um auch einen Vergleich am Standort Leipzig Mitte zu haben, wird der Vergleich zwischen den Sommer und Winter (2000 gegenüber 2013 bzw. 1999/00 gegenüber 2013/14 und 2014/15) der Partikelmassenkonzentrationen (HV-Sammler) für PM₁₀ und PM_{2,5} in Melpitz und Leipzig Mitte für Messungen an den Tagen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ gezeigt. Auch hier erfolgt der Vergleich zusätzlich für östliche und westliche Anströmung.

Die Ergebnisse der Messungen mit den fünfstufigen BERNER-Impaktoren werden in vergleichender Darstellung und damit nur möglich für westliche Anströmung zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ gezeigt (Mediane der Partikelmassenkonzentrationen der einzelnen Stufen).

Abbildung 85 zeigt die PM₁₀-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 1992) im Vergleich mit Mittelwerten der PM₁₀-Partikelmassenkonzentration der jeweiligen Kampagne (alle Messungen mit HV-Sammler). Es lässt sich ein fallender Trend für die Konzentrationen in den ersten sieben Jahren erkennen. Danach schwankten die Halbjahreskonzentrationen zwischen den Jahren. Die Mittel für die Winterhalbjahre lagen in der Regel etwas höher als die für die Sommerhalbjahre. Für die „Kampagne 2000“ ist deutlich zu erkennen, dass der Mittelwert aus den neun Winter-Messtagen mit ca. 27,3 µg m⁻³ deutlich höher lag als der Winterhalbjahresmittelwert von 20,5 µg m⁻³ und diesen damit nicht repräsentiert. Dieser Umstand muss bei bezugnehmenden Vergleichen der „Kampagne aktuell“ zur „Kampagne 2000“ berücksichtigt werden. Der Mittelwert aus den acht Sommer-Messtagen der „Kampagne 2000“ von 20,4 µg m⁻³ repräsentiert den Sommerhalbjahresmittelwert von 21,4 µg m⁻³ recht gut. Für die „Kampagne aktuell“ ergab sich ein Wert für den Sommer von 17,0 µg m⁻³ (21 Messtage), der im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert mit 20,8 µg m⁻³ kleiner war. Die Wintermessungen der „Kampagne aktuell“ fanden an 10 Tagen im Winter 2013/14 und an 11 Tagen im Winter 2014/2015 statt. Der Mittelwert der 10 Tage im Winter 2013/14 betrug 24,6 µg m⁻³, verglichen zum Winterhalbjahreswert von 23,1 µg m⁻³ ergibt sich eine recht gute Übereinstimmung. Allerdings weicht der Mittelwert der 11 Tage aus dem Winter 2014/15 mit 28,4 µg m⁻³ gegenüber dem Winterhalbjahresmittelwert von 21,8 µg m⁻³ erheblich nach oben ab.

Im Gesamtergebnis wird der Konzentrationsunterschied für PM₁₀ zwischen Sommer und Winter in der „Kampagne aktuell“ durch die zufällige Auswahl der Messtage größer wiedergegeben als er sich im Vergleich zwischen Sommer- und Winterhalbjahren ergibt. Auch für die Tage der „Kampagne 2000“ war der Wintermittelwert deutlich höher als der entsprechende Winterhalbjahresmittelwert. Eine Ursache dafür kann in der bevorzugten Auswahl möglichst niederschlagsfreier Tage für die Kampagnen liegen.

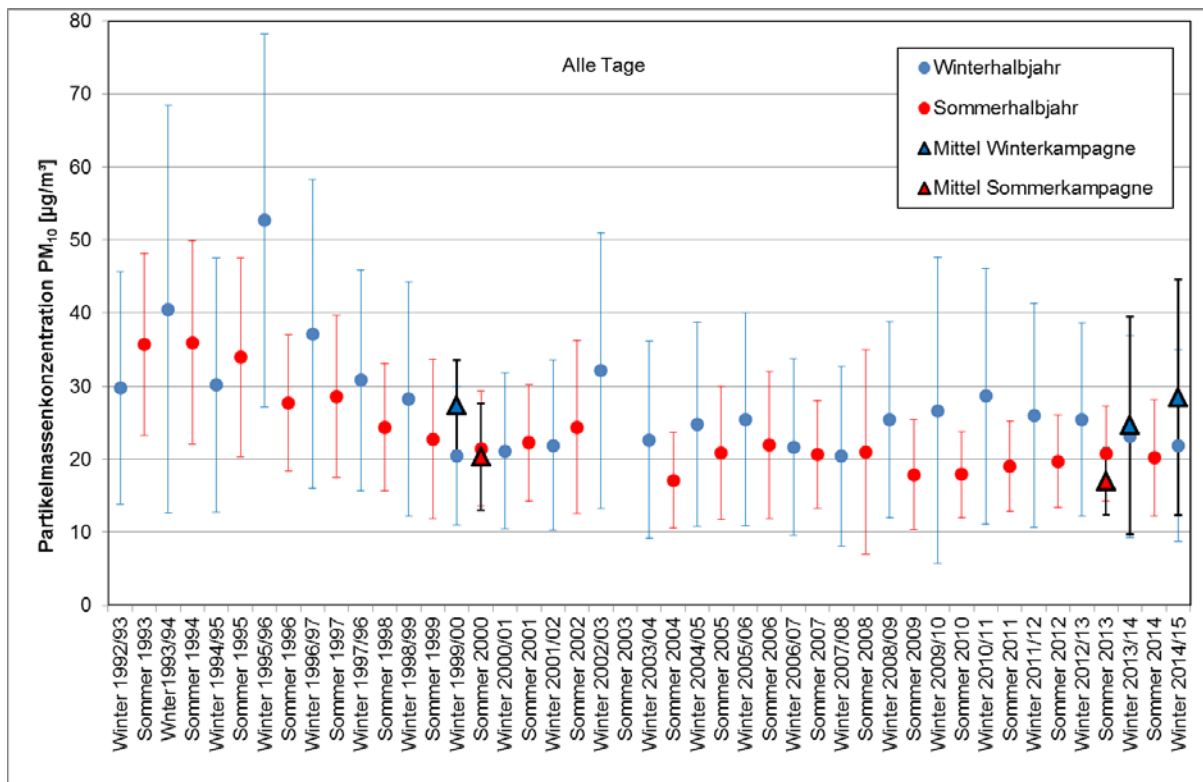


Abbildung 85: PM₁₀-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes. Für den Sommer 2003 ist auf Grund einer zu geringen Zahl an Messtagen kein Sommerhalbjahresmittelwert gezeigt.

Abbildung 86 zeigt die PM_{2,5}-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 2002). Eine direkte Einordnung der „Kampagne 2000“ oder eine Tendaussage sind nicht möglich, weil zu dieser Zeit noch keine täglichen Messungen der Partikelmassenkonzentration PM_{2,5} vorliegen. Die Winterhalbjahreskonzentrationen lagen in der Regel höher als die Sommerhalbjahreskonzentrationen und haben eine etwas größere Schwankungsbreite. Für die „Kampagne aktuell“ ergab sich ein Wert für den Sommer von 12,1 µg m⁻³ (21 Messtage), der im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert mit 15,4 µg m⁻³ kleiner war. Die PM_{2,5}-Wintermessungen der „Kampagne aktuell“ fanden an 10 Tagen im Winter 2013/14 (Mittelwert 22,3 µg m⁻³) und an 11 Tagen im Winter 2014/2015 (Mittelwert 24,9 µg m⁻³) statt. Die entsprechenden Halbjahresmittelwerte betragen 20,0 bzw. 17,4 µg m⁻³ und waren damit kleiner als die entsprechenden Wintermittelwerte der „Kampagne aktuell“. Auch hier ist die Differenz für PM_{2,5}, wie auch bei PM₁₀ im letzten Winter, wesentlich größer als im Winter 2013/14.

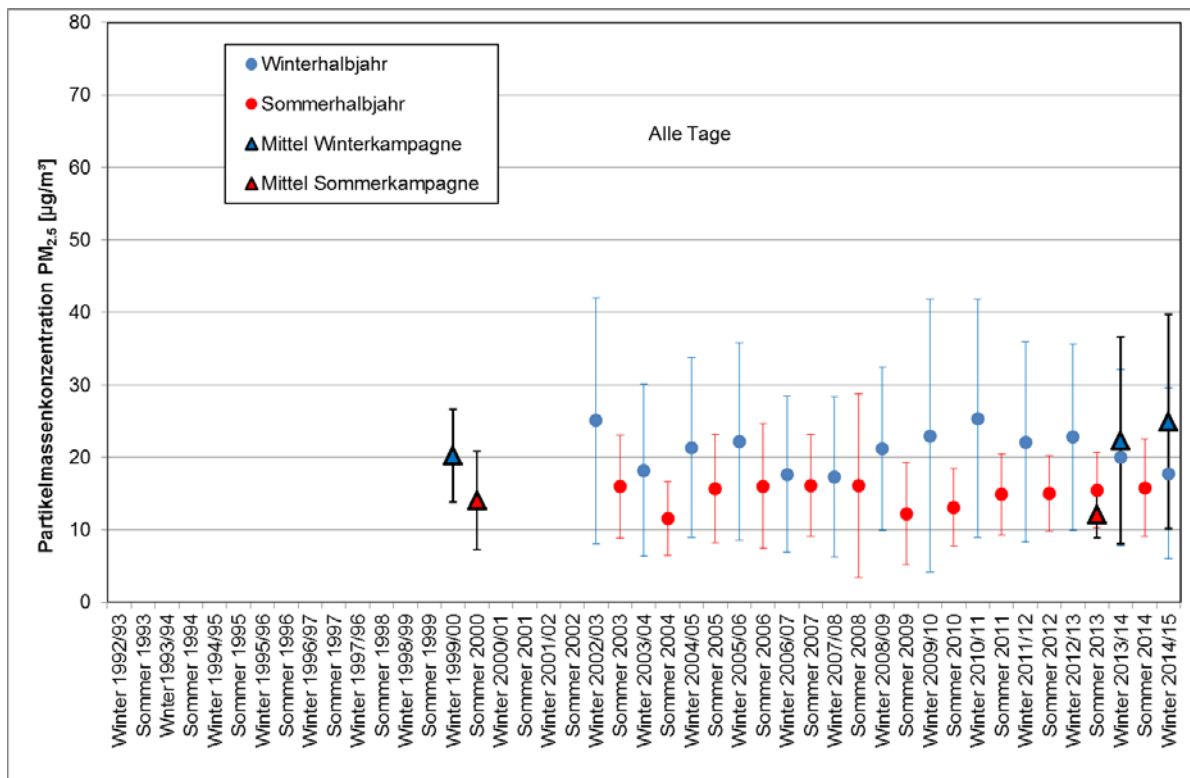


Abbildung 86: PM_{2.5}-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Im Folgenden wird die Einordnung der Messkampagnen wie in Abbildung 85 und Abbildung 86 vorgenommen, es erfolgt aber zusätzlich eine Unterscheidung für Tage mit vorwiegend westlicher oder östlicher Anströmung. Abbildung 87 zeigt den Vergleich für die PM₁₀-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 1992) im Vergleich mit Mittelwerten der PM₁₀-Partikelmassenkonzentration der jeweiligen Kampagne ausschließlich für Tage mit westlicher Anströmung. Es lässt sich auch hier ein fallender Trend für die Konzentrationen in den ersten sieben Jahren erkennen. Danach schwanken die Halbjahreskonzentrationen zwischen den Jahren. Die Konzentrationen lagen für die Sommer- und Winterhalbjahresmittelwerte bei westlicher Anströmung deutlich unter den Mittelwerten für alle Tage im Halbjahr. Die Wintermittelwerte für die einzelnen Winter lagen oft etwas höher als die Sommermittelwerte, der Unterschied ist aber geringer als zwischen den Winter- und Sommerhalbjahresmitteln für alle Tage (vgl. Abbildung 85).

Für die „Kampagne 2000“ ist deutlich zu erkennen, dass der Mittelwert aus den vier Winter-Messtagen mit westlicher Anströmung mit ca. 24,4 µg m⁻³ deutlich höher lag als der Winterhalbjahresmittelwert von 17,3 µg m⁻³. Der Mittelwert aus den sieben Sommer-Messtagen mit westlicher Anströmung der „Kampagne 2000“ von 21,2 µg m⁻³ repräsentiert den Sommerhalbjahresmittelwert von 19,1 µg m⁻³ in etwa. Für die „Kampagne aktuell“ ergibt sich ein Wert für den Sommer von 15,7 µg m⁻³ (13 Messtage mit westlicher Anströmung), er ist im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert für westliche Anströmung von 18,8 µg m⁻³ kleiner. Die Wintermessungen der „Kampagne aktuell“ (sechs Tage im Winter 2013/14 und fünf Tage im Winter 2014/2015 mit westlicher Anströmung) ergeben PM₁₀-Massenkonzentrationsmittelwerte von 15,4 bzw. 15,5 µg m⁻³. Dem gegenüber sind die Halbjahresmittelwerte aller Tage mit westlicher Anströmung für die Winter 2013/14 und 2014/15 mit 16,9 bzw. 15,8 µg m⁻³ gut vergleichbar.

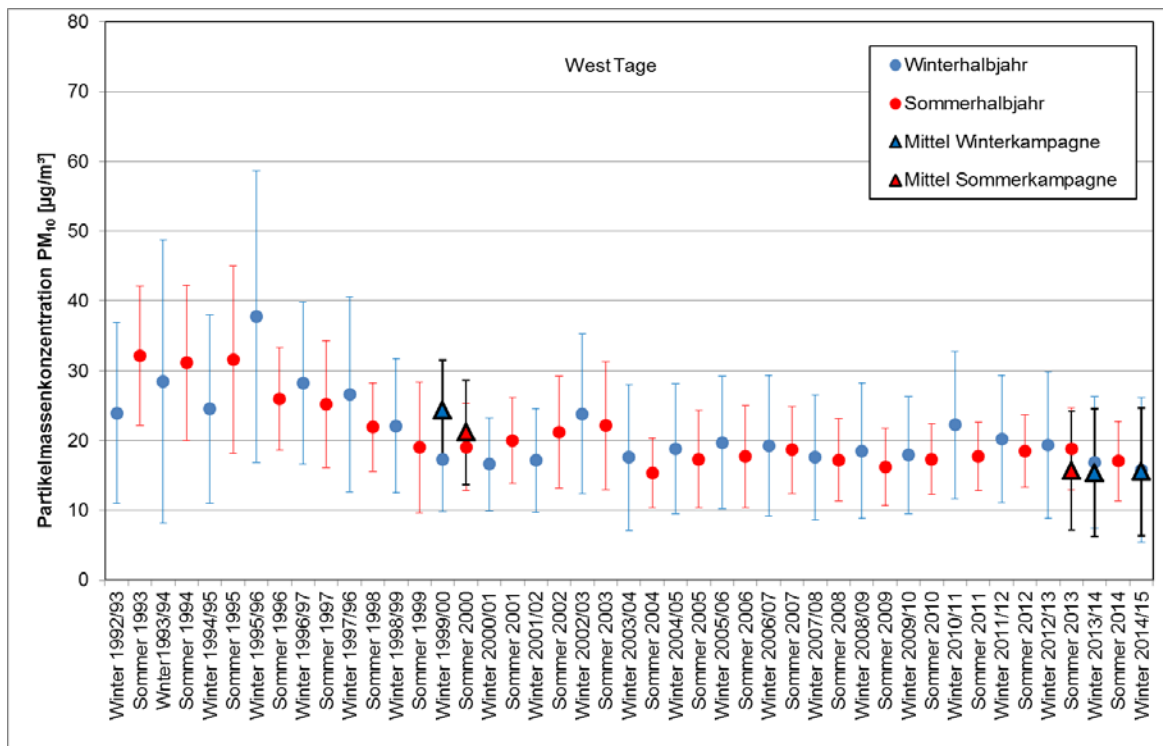


Abbildung 87: PM₁₀ Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit westlicher Anströmung. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Abbildung 88 zeigt die PM_{2,5}-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 2002) gemittelt für Tage mit westlicher Anströmung. Eine direkte Einordnung der „Kampagne 2000“ oder eine Trendaussage sind nicht möglich, weil zu dieser Zeit noch keine täglichen Messungen der Partikelmassenkonzentration PM_{2,5} existierten. Die Winterhalbjahreskonzentrationen lagen in der Regel etwas höher als die Sommerhalbjahreskonzentrationen und haben eine etwas größere Schwankungsbreite. Für die „Kampagne 2000“ ergibt sich aus sieben Messtagen im Sommer mit westlicher Anströmung ein Mittelwert von 14,6 µg m⁻³ und für den Winter aus vier Tagen mit westlicher Anströmung ein Mittelwert von 15,9 µg m⁻³. Für die „Kampagne aktuell“ ergibt sich ein Wert für den Sommer von 10,7 µg m⁻³ (13 Messtage mit westlicher Anströmung), der im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert mit 13,7 µg m⁻³ kleiner ist. Die PM_{2,5}-Wintermessungen für westliche Anströmung der „Kampagne aktuell“ fanden an sechs Tagen im Winter 2013/14 (Mittelwert 13,5 µg m⁻³) und an fünf Tagen im Winter 2014/2015 (Mittelwert 12,7 µg m⁻³) statt. Die entsprechenden Halbjahresmittelwerte betragen 14,1 bzw. 14,5 µg m⁻³ und waren damit etwas größer als die entsprechenden Wintermittelwerte der „Kampagne aktuell“.

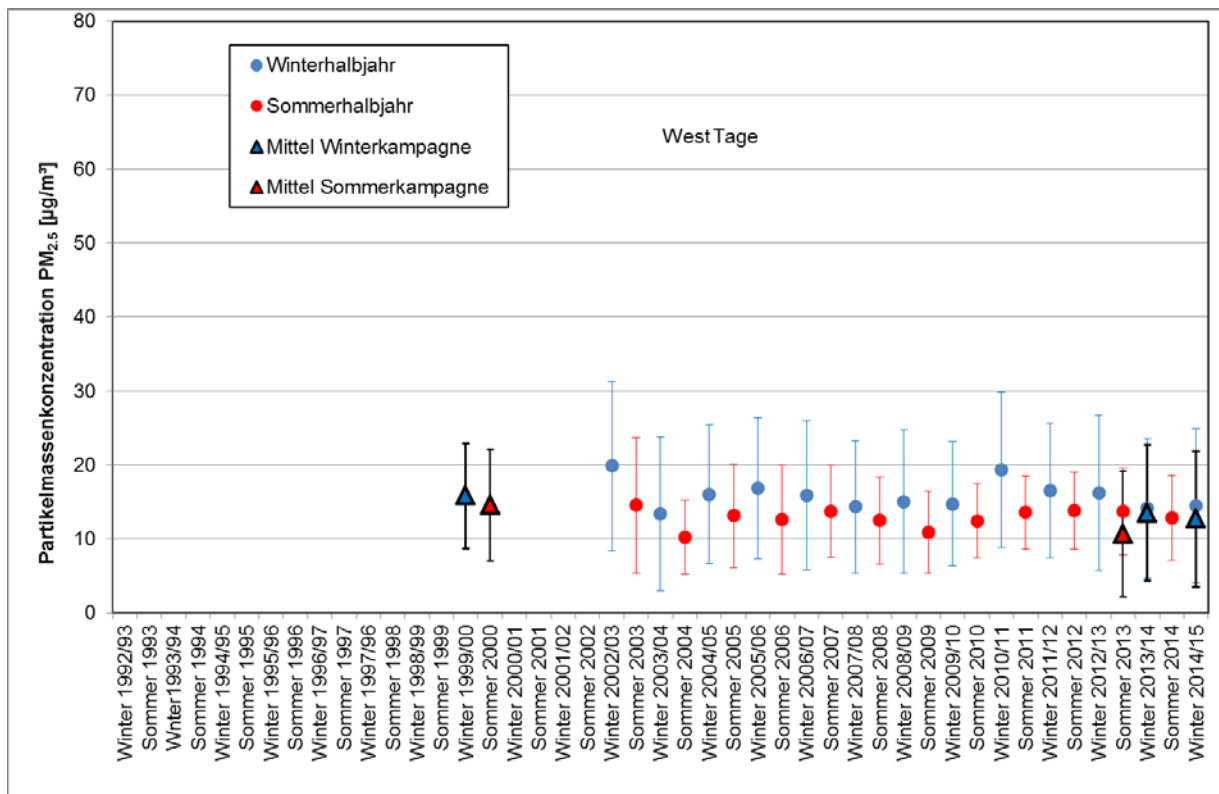


Abbildung 88: PM_{2.5}-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der jeweiligen Kampagne (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit westlicher Anströmung. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Abbildung 89 zeigt den Vergleich für die PM₁₀-Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 1992) im Vergleich mit Mittelwerten der PM₁₀-Partikelmassenkonzentration der jeweiligen Kampagne ausschließlich für Tage mit östlicher Anströmung. Es fällt auf, dass die Werte höher als bei westlicher Anströmung ausfielen und eine deutlich breitere Schwankung aufwiesen. Ursachen dafür liegen in der geringeren Anzahl von Tagen mit östlicher Anströmung (im Zeitraum Winter 1992/93 bis Winter 2014/15 hatten 16 % der Tage östliche Anströmung dem gegenüber 57 % eine westlicher Anströmung und 27% der Tage konnten nicht zugeordnet werden). Tage mit östlicher Anströmung haben oftmals eine geringere Vermischung (kleinere Windgeschwindigkeiten bei kontinentaler Anströmung) im Vergleich zur westlichen Anströmung, bei der auch noch mehr Niederschlag fällt.

Es lässt sich auch hier ein fallender Trend für die Konzentrationen in den ersten Jahren erkennen. Danach schwankten die Halbjahreskonzentrationen zwischen den Jahren. Die Konzentrationen lagen für die Sommer- und Winterhalbjahresmittelwerte bei östlicher Anströmung deutlich über den Mittelwerten für alle Tage im Halbjahr. Die Wintermittelwerte für die einzelnen Winter lagen oft erheblich höher als die Sommermittelwerte, insbesondere auch in den relativ kalten Winterhalbjahren 2009/10, 2010/11 und 2011/12. Dies ist ein Hinweis auf den Einfluss von Ferntransport anthropogener Emissionen, die verursacht durch Verbrennungsprozesse (Kohleheizung) östlich von Melpitz auftreten.

Für die „Kampagne 2000“ ist keine Einordnung für östliche Anströmung möglich, weil es weder im Winter noch im Sommer Tage mit einer solchen Anströmung im Datensatz gibt.

Für die „Kampagne aktuell“ ergibt sich für die Tage mit östlicher Anströmung ein Wert für den Sommer von $19,7 \mu\text{g m}^{-3}$ (sechs Messtage), er ist im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert für östliche Anströmung von $23,0 \mu\text{g m}^{-3}$ kleiner. Die Wintermessungen der „Kampagne aktuell“ (drei Tage im Winter 2013/14 und fünf Tage im Winter 2014/2015 mit östlicher Anströmung) ergaben PM_{10} -Massenkonzentrationsmittelwerte von $44,8$ bzw. $42,9 \mu\text{g m}^{-3}$, dem gegenüber waren die Halbjahresmittelwerte aller Tage mit östlicher Anströmung für die Winter 2013/14 und 2014/15 mit $36,6$ bzw. $36,0 \mu\text{g m}^{-3}$ deutlich kleiner.

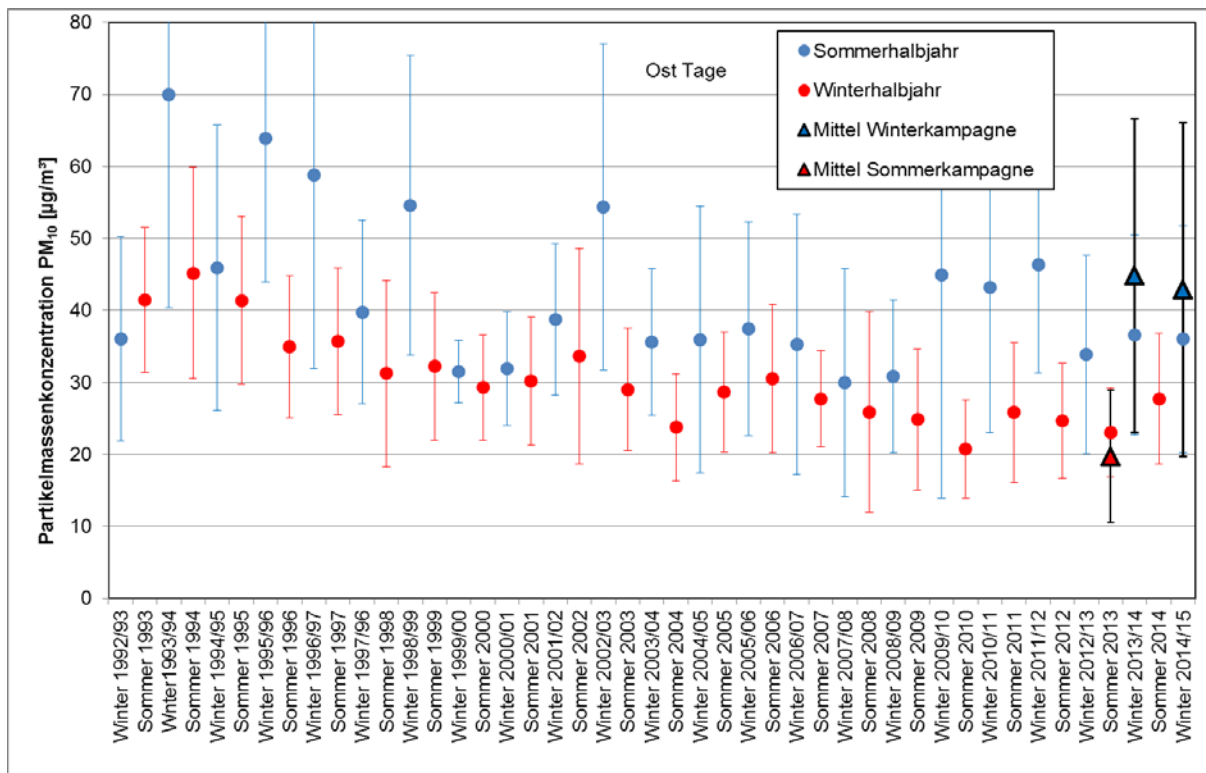


Abbildung 89: PM_{10} -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit östlicher Anströmung. Für die „Kampagne 2000“ sind keine Messungen bei östlicher Anströmung vorhanden. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Abbildung 90 zeigt die $\text{PM}_{2,5}$ -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre seit 2002) gemittelt für Tage mit östlicher Anströmung. Eine direkte Einordnung der „Kampagne 2000“ (keine Messungen bei östlicher Anströmung) oder eine Trendaussage sind nicht möglich, weil zu dieser Zeit noch keine täglichen Messungen der Partikelmassenkonzentration $\text{PM}_{2,5}$ existierten. Die Streuung der Halbjahresmittelwerte war hier wie auch bei PM_{10} größer als für alle oder für die Messtage mit westlicher Anströmung, Ursachen dafür liegen in der geringeren Anzahl von Tagen mit östlicher Anströmung. Zusätzlich weisen Tage mit östlicher Anströmung oftmals eine geringere Vermischung (kleinere Windgeschwindigkeiten bei kontinentaler Anströmung) im Vergleich zu Tagen mit westlichen Anströmungen auf, an denen auch noch mehr Niederschlag fällt. Die Konzentrationen lagen für die Sommer- und Winterhalbjahresmittelwerte bei östlicher Anströmung auch hier bei Partikeln $\text{PM}_{2,5}$ deutlich über den Mittelwerten für alle Tage im Halbjahr. Die Wintermittelwerte für die einzelnen Winter waren oft erheblich höher als die Sommermittelwerte, hier für $\text{PM}_{2,5}$ insbesondere auch in den relativ kalten Winterhalbjahren 2009/10, 2010/11 und 2011/12. Allerdings ist für die gegenüber PM_{10} kleineren Partikel $\text{PM}_{2,5}$ die relative Differenz zwischen Sommer- und Winterhalbjahren noch etwas größer als für PM_{10} (Abbildung 89). Dies ein deutlicher Hinweis auf den Einfluss von Ferntransport

anthropogener Emissionen, die, verursacht durch Verbrennungsprozesse (Kohleheizung), östlich von Melpitz auftreten. Für die „Kampagne aktuell“ ergibt sich für die Tage mit östlicher Anströmung ein Wert der Partikelmassenkonzentration $PM_{2,5}$ für den Sommer von $15,3 \mu\text{g m}^{-3}$ (sechs Messtage), er ist im Vergleich zum Sommerhalbjahresmittelwert für östliche Anströmung von $17,3 \mu\text{g m}^{-3}$ etwas kleiner. Die Wintermessungen für $PM_{2,5}$ der „Kampagne aktuell“ (drei Tage im Winter 2013/14 und fünf Tage im Winter 2014/2015 mit östlicher Anströmung) ergeben Massenkonzentrationsmittelwerte von $41,8$ bzw. $37,6 \mu\text{g m}^{-3}$, dem gegenüber sind die Halbjahresmittelwerte aller Tage mit östlicher Anströmung für die Winter 2013/14 und 2014/15 mit $32,6$ bzw. $28,5 \mu\text{g m}^{-3}$ auch hier, wie bei PM_{10} mit östlicher Anströmung (vgl. Abbildung 89), deutlich kleiner.

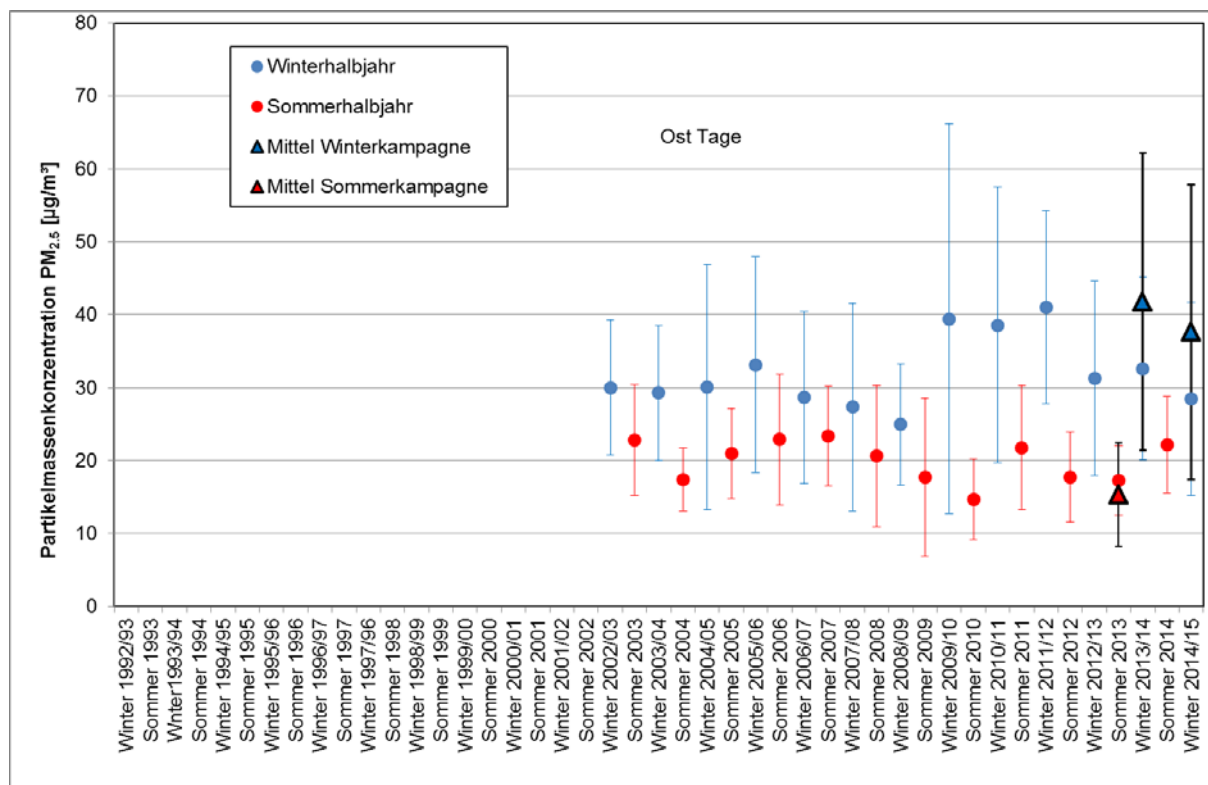


Abbildung 90: $PM_{2,5}$ -Partikelmassenkonzentration in Melpitz (Mittelwerte der Sommer- und Winterhalbjahre) im Vergleich mit Mittelwerten aus den Tagen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke mit schwarzem Rahmen) nur für Tage mit östlicher Anströmung. Für die „Kampagne 2000“ sind keine Messungen bei östlicher Anströmung vorhanden. Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen vorhandenen Messungen gezeigt. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Im Folgenden werden die mittleren Partikelmassenkonzentrationen PM_{10} und $PM_{2,5}$ für alle Sommer- bzw. Winterhalbjahre und die mittleren Partikelmassenkonzentration der Tage der „Kampagne 2000“ bzw. der „Kampagne aktuell“ im Bezug zu den meteorologischen Parametern, Temperatur, Windgeschwindigkeit und mittlere Globalstrahlung gezeigt.

Abbildung 91 zeigt die mittleren Partikelmassekonzentrationen im Bezug zur Temperatur im Sommer und im Winter. Die Sommerkampagnen fanden bei einer mittleren Temperatur von 15 bis 16 °C statt mit einer mittleren Partikelmassekonzentration für $PM_{2,5}$ von etwa 11 bis 14 $\mu\text{g m}^{-3}$ und einer entsprechend höheren mittleren PM_{10} -Partikelmassekonzentration von 17 bis 21 $\mu\text{g m}^{-3}$. Dem entsprechen fast alle Sommerkonzentrationen für $PM_{2,5}$ und die meisten für PM_{10} . Die Winterkampagnen fanden bei mittleren Temperaturen von 4 bis 6 °C statt und es ergibt sich eine mittlere Partikelmassenkonzentration für $PM_{2,5}$ von ca. 18 bis 25 $\mu\text{g m}^{-3}$, die PM_{10} -Partikelmassekonzentration war mit 23 bis 29 $\mu\text{g m}^{-3}$ entsprechend höher. Auch für PM_{10} entsprachen fast

alle Winterhalbjahreskonzentrationen für $PM_{2.5}$ und die meisten für PM_{10} diesem Konzentrationsbereich. Sowohl im Sommer als auch im Winter ergaben sich für PM_{10} bei etwas geringeren Sommer- bzw. Winterhalbjahresmitteltemperaturen wesentlich höhere Partikelmassekonzentrationen. Dieser Effekt ist für $PM_{2.5}$ nicht zu sehen und entsteht dadurch, dass für die Sommer- und Winterhalbjahre mit ohnehin noch relativ hohen mittleren Partikelmassekonzentrationen nur PM_{10} , aber keine $PM_{2.5}$ -Messungen (ab Winter 2002/03) vorhanden waren. Insgesamt waren die PM -Konzentrationen im Winter etwas höher, Ursachen können anthropogene Emissionen aus Verbrennungsprozessen, aber auch ein höherer Anteil von sonst thermisch flüchtigem Ammoniumnitrat sein.

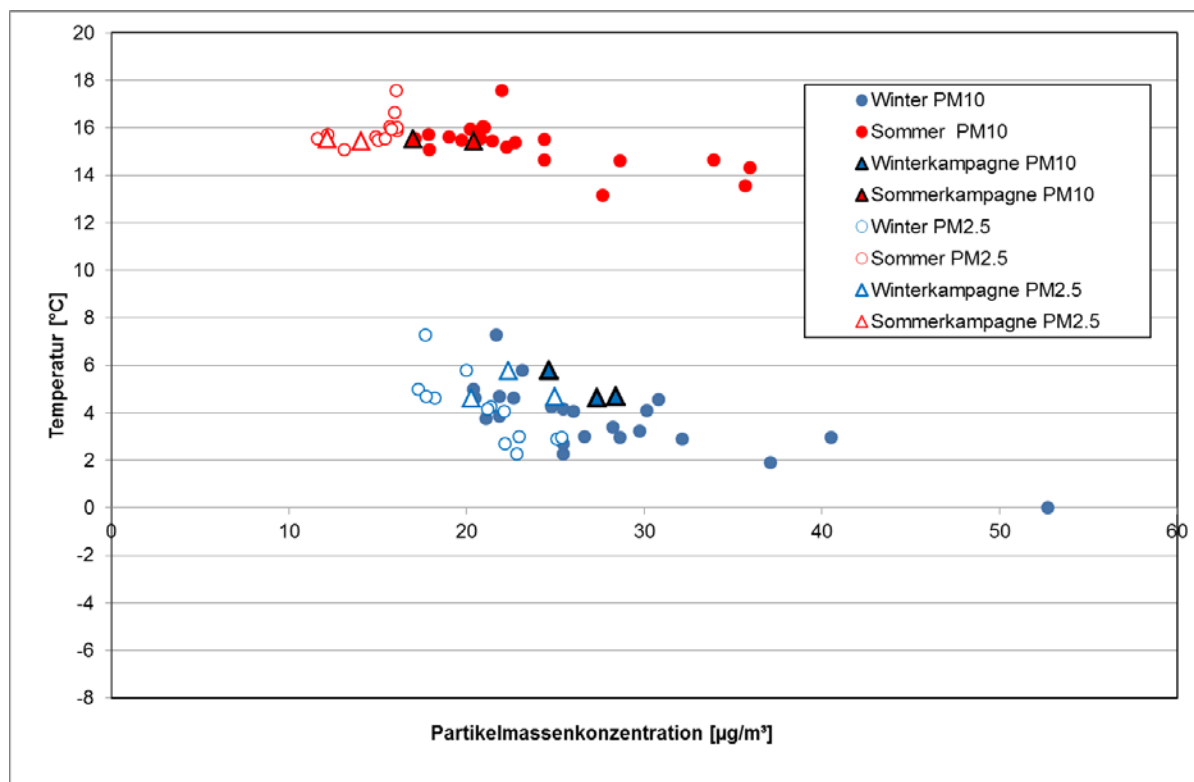


Abbildung 91: Mittelwerte der PM_{10} -Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der $PM_{2.5}$ - und PM_{10} -Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für $PM_{2.5}$ und PM_{10} (Kreise) in Bezug zur Temperatur

Abbildung 92 zeigt die mittleren Partikelmassekonzentrationen im Bezug zur Windgeschwindigkeit im Sommer und im Winter. Die Winterkampagnen fanden bei mittleren Windgeschwindigkeiten von 3 bis 4 $m s^{-1}$ statt bei einer mittleren Partikelmassekonzentration für $PM_{2.5}$ von etwa 20 bis 25 $\mu g m^{-3}$ und einer entsprechend höheren mittleren PM_{10} Partikelmassekonzentration von 24 bis 29 $\mu g m^{-3}$. Die Winterhalbjahreskonzentrationen für PM betragen im Bereich von mittleren Windgeschwindigkeiten 2.0 bis 4.0 $m s^{-1}$ zwischen 17 und 26 $\mu g m^{-3}$, für $PM_{2.5}$ und für PM_{10} lagen sie zwischen 20 und sehr hohen 53 $\mu g m^{-3}$. Dieser Effekt ist für $PM_{2.5}$ nicht zu sehen und entsteht dadurch, dass für die Sommer- und Winterhalbjahre mit ohnehin noch relativ hohen mittleren Partikelmassekonzentrationen besonders im Winter nur PM_{10} , aber keine $PM_{2.5}$ -Messungen (ab Winterhalbjahr 2002/03) vorhanden sind. Die Sommerkampagnen fanden im Bereich mittlerer Windgeschwindigkeiten von 2.0 bis 2.3 $m s^{-1}$ statt bei einer mittleren Partikelmassekonzentration für $PM_{2.5}$ von etwa 11 bis 17 $\mu g m^{-3}$ und einer höheren Partikelmassekonzentration für PM_{10} von 17 bis etwa 53 $\mu g m^{-3}$. Es ergaben sich somit im Winter etwas höhere Partikelmassekonzentrationen bei höheren Windgeschwindigkeiten (besserer Vermischung), dies ist ein Hinweis auf zusätzliche anthropogene Emissionen oder auch Resuspension von vegetationslosen Feldern. Auch dürfte an kalten Wintertagen der Gehalt an Ammoniumnitrat höher sein.

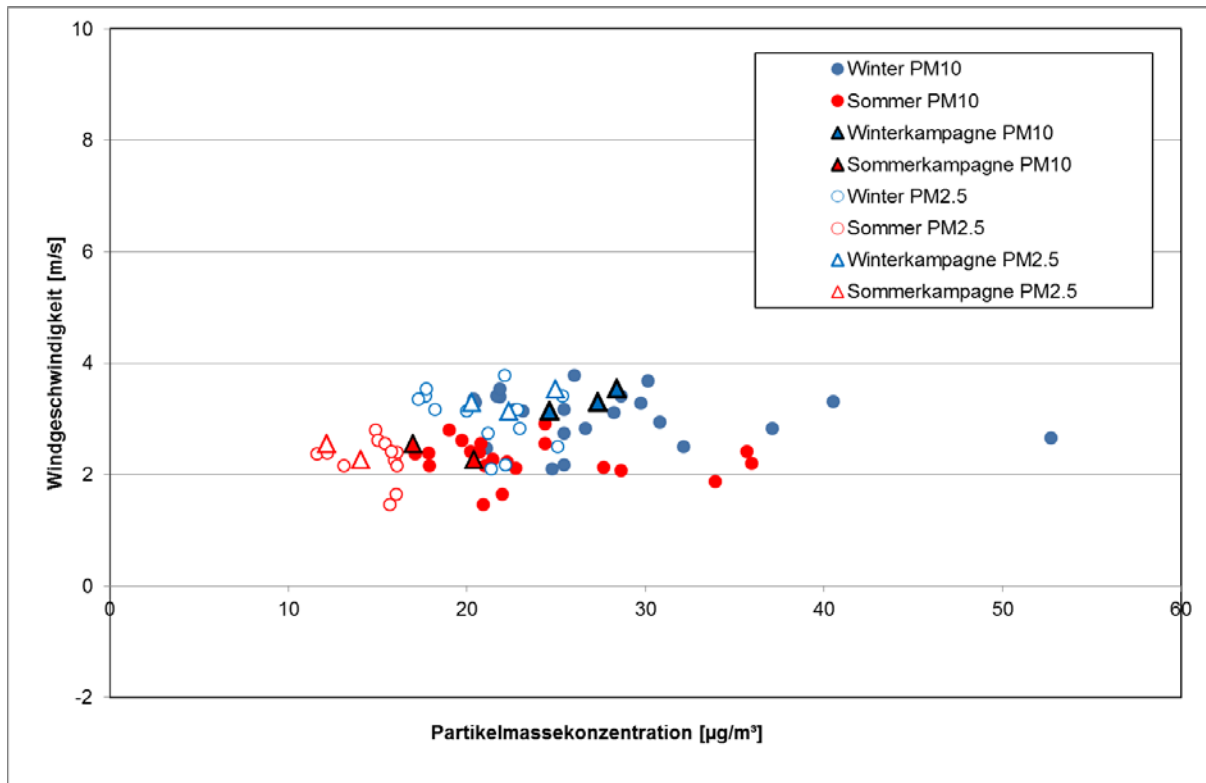


Abbildung 92: Mittelwerte der PM₁₀-Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM_{2,5}- und PM₁₀-Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für PM_{2,5} und PM₁₀ (Kreise) in Bezug zur Windgeschwindigkeit

Abbildung 93 zeigt die mittleren Partikelmassekonzentrationen im Bezug zur mittleren Globalstrahlung im Sommer und im Winter. Die Sommerkampagnen fanden bei einer mittleren Globalstrahlung 157 bis 215 W m⁻² statt, die mittlere Partikelmassekonzentration für PM_{2,5} betrug etwa 11 bis 16 µg m⁻³ und war für PM₁₀ mit 16 bis 37 µg m⁻³ entsprechend höher. Die Sommerhalbjahreskonzentrationen lagen jeweils in diesen Bereichen. Für PM₁₀ traten auch wesentlich höhere Werte auf – Ursache dafür sind die höheren Konzentrationen im Zeitraum bis 2002, für den keine täglichen PM_{2,5}-Messungen vorliegen. Die Winterkampagnen fanden bei wesentlich geringeren mittleren Globalstrahlungen als im Sommer im Bereich von 58 bis 82 W m⁻² statt und es ergab sich eine mittlere Partikelmassekonzentration für PM_{2,5} von etwa 17 bis 26 µg m⁻³, die PM₁₀-Partikelmassekonzentration war mit 21 bis 53 µg m⁻³ entsprechend höher. Für PM₁₀ traten auch hier wesentlich höhere Werte auf – Ursache dafür sind die höheren Konzentrationen im Zeitraum bis 2002, für den keine täglichen PM_{2,5}-Messungen vorliegen. Insgesamt waren die sommerlichen PM-Konzentrationen bei hoher Einstrahlung etwas geringer als im Winter bei wenig Einstrahlung. Die Ursache für die höheren mittleren Konzentrationen im Winter kann in stärkeren anthropogenen Emissionen, aber auch im höheren Gehalt an Ammoniumnitrat liegen.

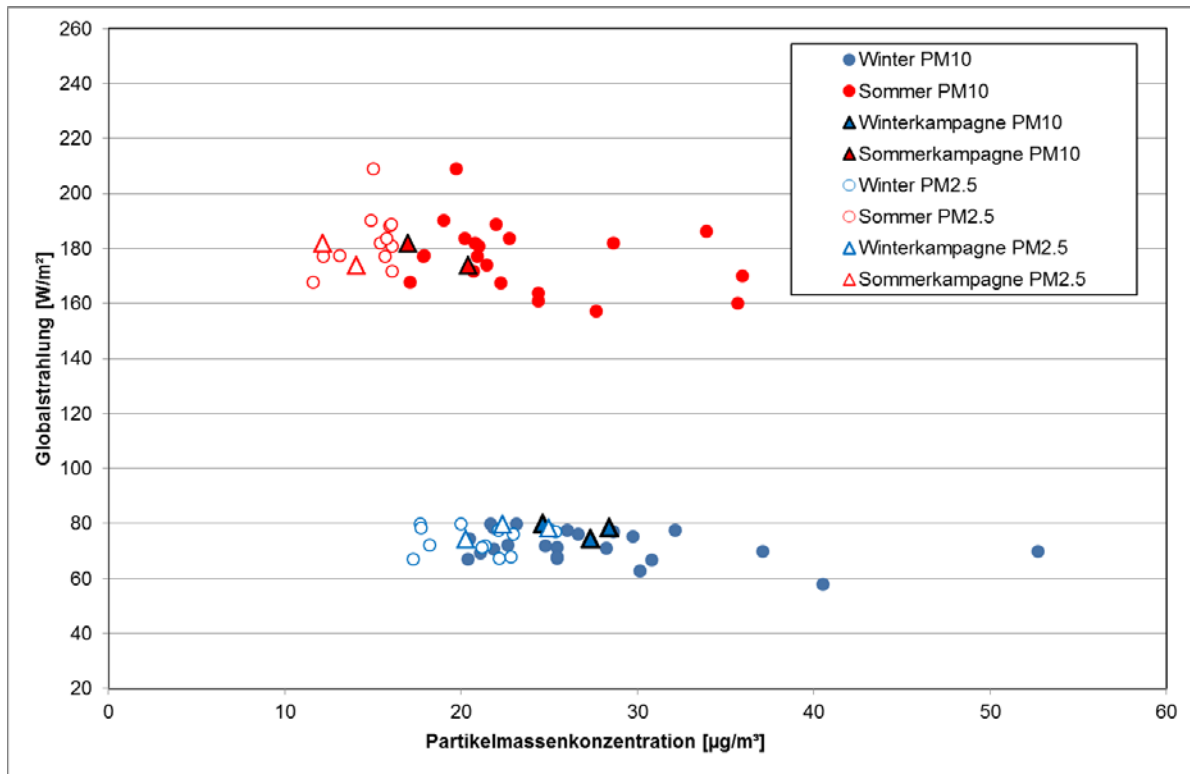


Abbildung 93: Mittelwerte der PM₁₀-Massenkonzentrationen der „Kampagne 2000“ und die Mittelwerte der PM_{2,5}- und PM₁₀-Konzentrationen der „Kampagne aktuell“ (Dreiecke) zusammen mit den Winter- und Sommerhalbjahresmittelwerten für PM_{2,5} und PM₁₀ (Kreise) in Bezug zur mittleren Globalstrahlung

Abbildung 94 zeigt den Vergleich der Mittelwerte der Partikelmassenkonzentrationen für PM₁₀ und PM_{2,5} in Melpitz und Leipzig-Mitte gemessen mit dem HV-Sammler an Tagen der „Kampagne 2000“ (Balken mit schwarzem Rahmen) und der „Kampagne aktuell“ (Balken ohne Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen Messungen und jeweils für Tage mit westlicher oder östlicher Anströmung gezeigt. In der Kampagne 1999/00 konnten keine Tage mit Ostanströmung beprobt werden. Es ist deutlich zu erkennen, dass beim Vergleich des regionalen Standortes Melpitz mit dem Verkehrsstandort Leipzig Mitte für die „Kampagne 2000“ (Balken mit schwarzem Rahmen) sowohl die Mittelwerte für PM₁₀ als auch für PM_{2,5} am Standort Leipzig-Mitte höher waren. Dies gilt für das Mittel aus allen Tagen und auch für das Mittel der Tage mit westlicher Anströmung der jeweiligen Kampagne. Vergleicht man allerdings parallel die Mittelwerte für die „Kampagne aktuell“ (Sommer 2013 und Winter 2013/14 und 2014/15), so ist der Unterschied für PM₁₀ durchaus noch vorhanden, aber für PM_{2,5} nicht mehr so ausgeprägt. Für PM_{2,5} ergaben sich im Sommer 2013 sogar etwa vergleichbare Werte. In jedem Fall der „Kampagne aktuell“ wurden bei östlicher Anströmung die höchsten Mittelwerte gemessen. Dieser Unterschied war im Winter stärker ausgeprägt und zeigt hier den Einfluss des Langstreckentransportes anthropogener Emissionen in den sächsischen Raum.

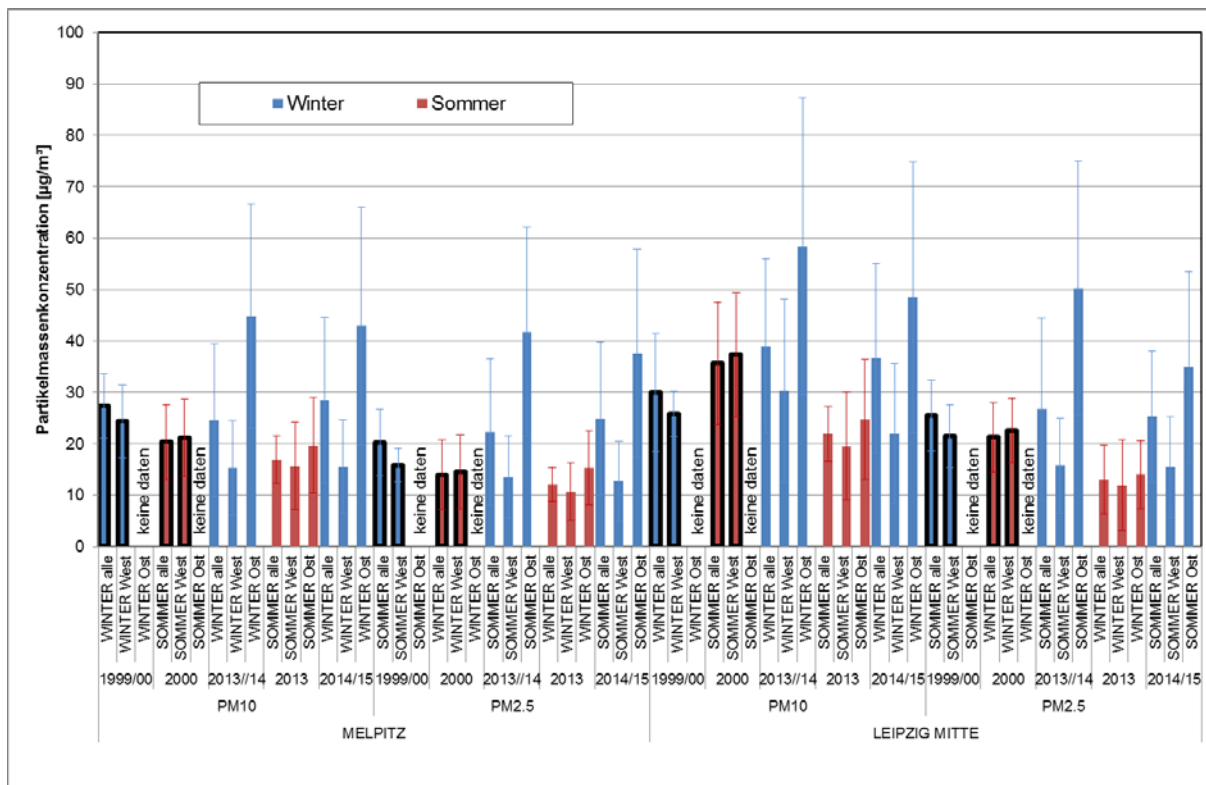


Abbildung 94: Vergleich der Mittelwerte der Partikelmassenkonzentrationen für PM₁₀ und PM_{2,5} in Melpitz und Leipzig Mitte gemessen mit dem HV-Sammler an Tagen der „Kampagne 2000“ (Balken mit schwarzem Rahmen) und der „Kampagne aktuell“ (Balken ohne Rahmen). Es wurde jeweils der Mittelwert aus allen Messungen und jeweils für Tage mit westlicher oder östlicher Anströmung gezeigt. In der Kampagne 1999/00 konnten keine Tage mit Ostanströmung beprobt werden. Angegeben ist die jeweilige Standardabweichung des Mittelwertes.

Physikalische Messungen

Abbildung 95 bis Abbildung 100 zeigen Mittelwerte der Aerosolparameter, die aus den MAAP- und Partikelmobilitätsgrößenspektrometern abgeleitet sind: Black Carbon (BC), m[40-110], m[110-330], m[330-800], N[20;110] und N[20;800] (vgl. Kapitel 2.2.2.2). Auch hier soll der Grad der Repräsentativität der Messkampagne dieses Projektes („Aerosol 2013/15“) im Vergleich zu den langjährigen Mittelwerten bestimmt werden.

Für BC sieht man, dass sich die ganzjährigen Kampagnenmittelwerte kaum von den langjährigen Mittelwerten unterscheiden. (Als Signifikanzkriterium kann man die Fehlerbalken ansehen, die die Standardfehler der entsprechenden Mittelwerte kennzeichnen.) Für den Winterzeitraum (definiert als November – April) erkennt man, dass die Kampagnenmittelwerte leicht höher lagen als die langjährigen Mittelwerte (zwischen 2 und 22 % stationsbezogen, 11 % als Mittelwert über alle Stationen). Die größte Verschiebung ergab sich an der Station Melpitz. Die Überhöhung der Kampagnenwerte kann ggf. auf die gezielte Beprobung spezieller Wetterlagen (d. h. mit niedriger Temperatur und niederschlagsfrei) bei der Messkampagne zurückgeführt werden. Für den Sommerzeitraum (definiert als Mai – Oktober) sieht man über alle Stationen hinweg gesehen wiederum keinen deutlichen Trend.

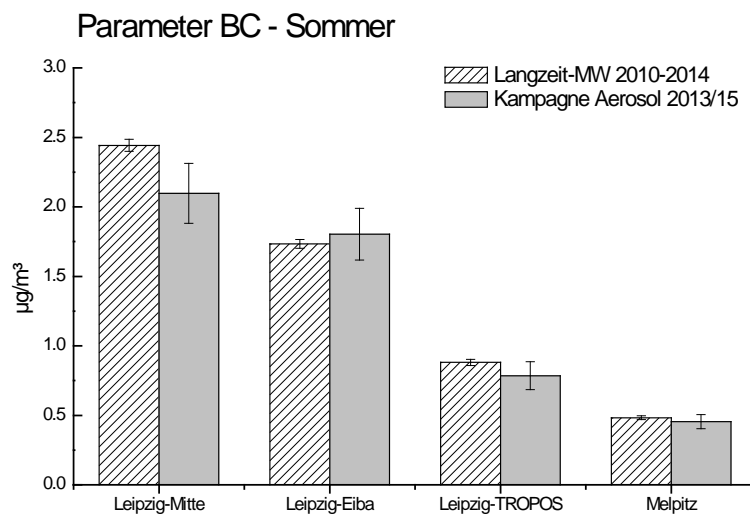
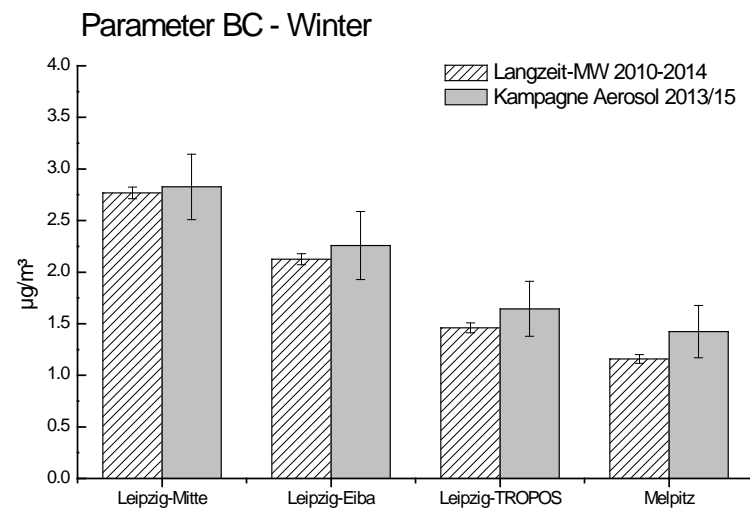
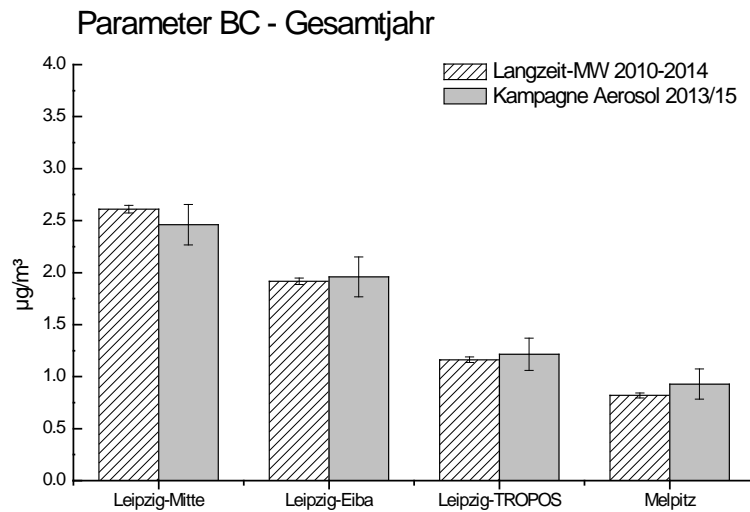


Abbildung 95: Black Carbon an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

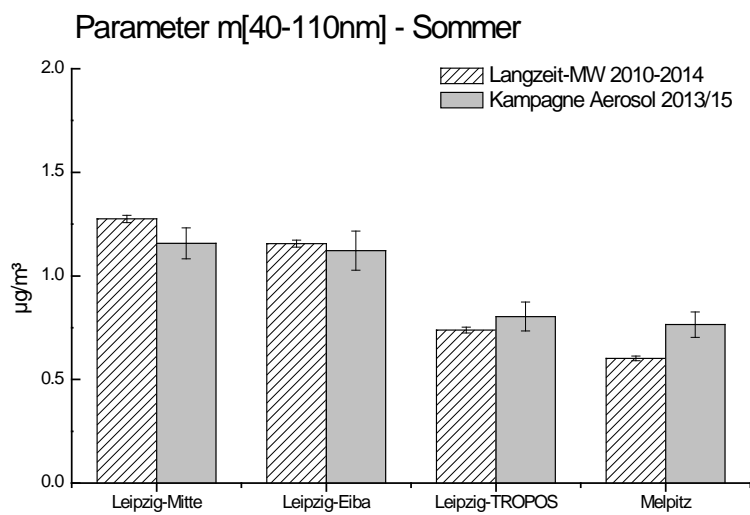
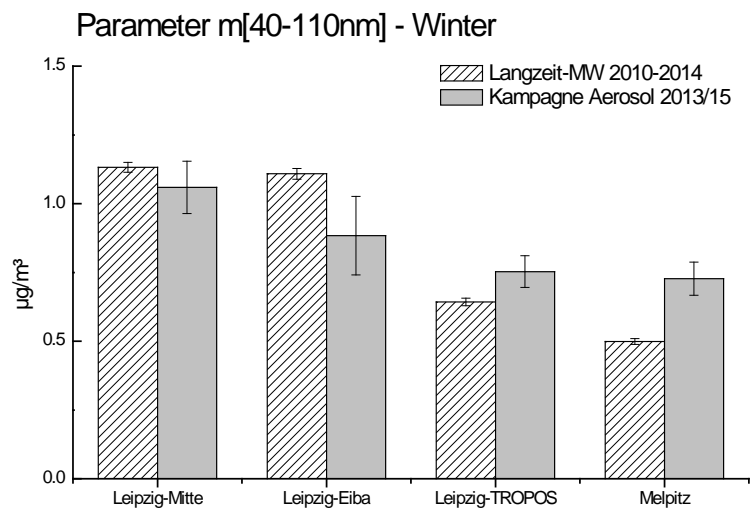
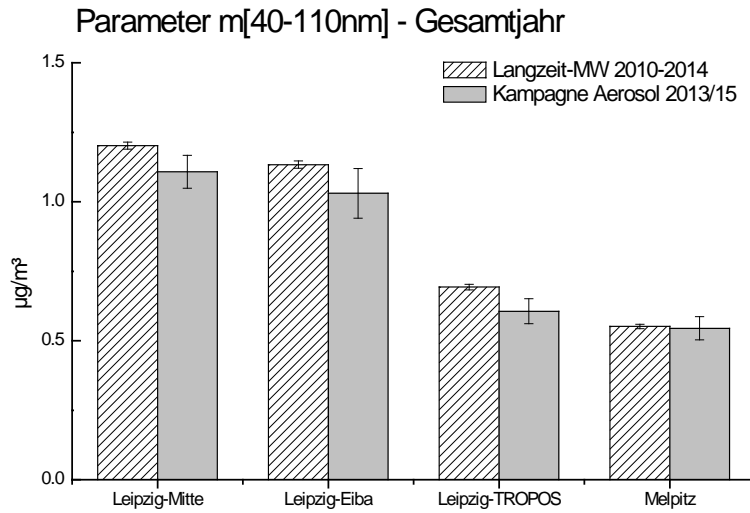


Abbildung 96: Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswertmesser 40–110 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

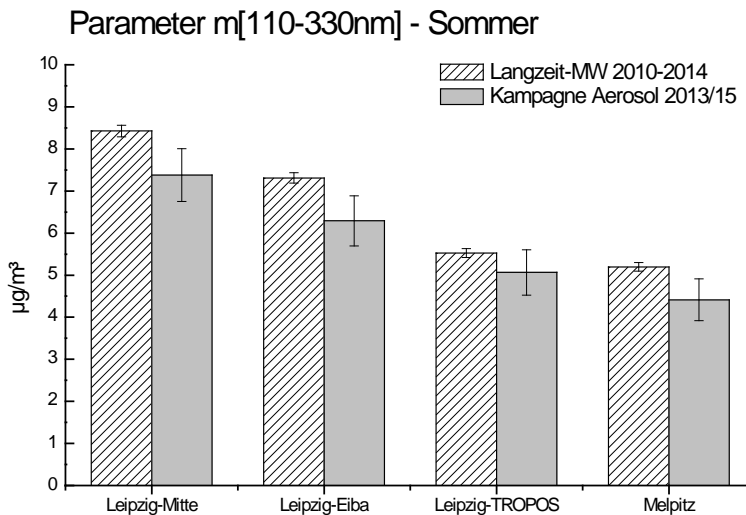
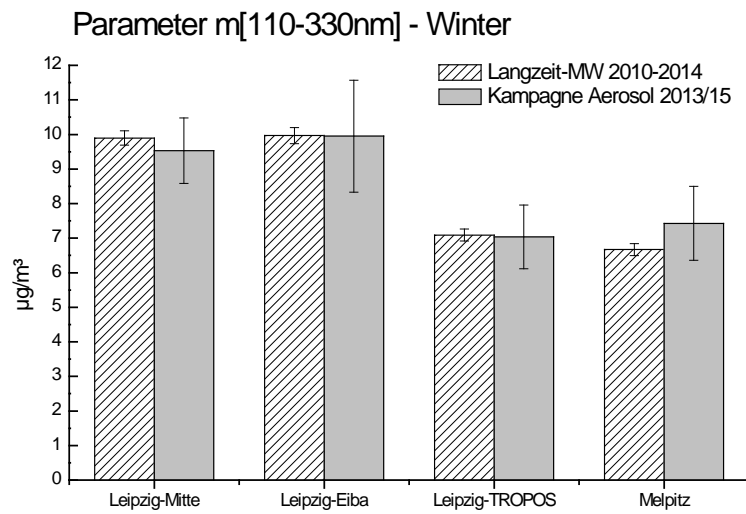
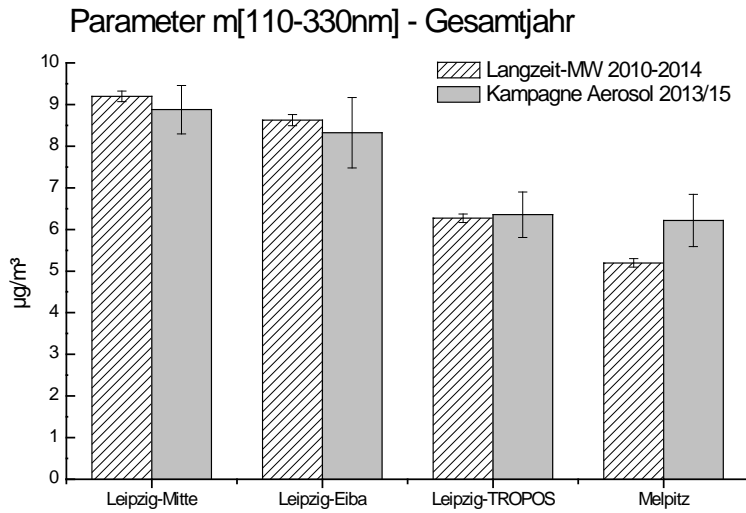


Abbildung 97: Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswertmesser 110–330 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

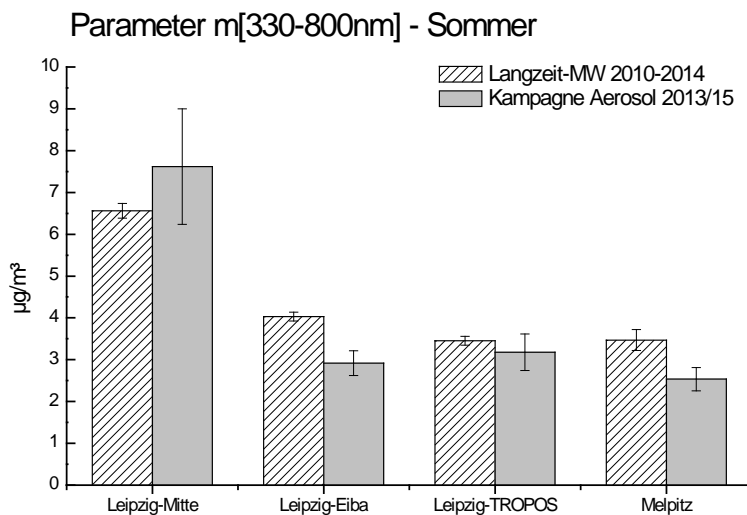
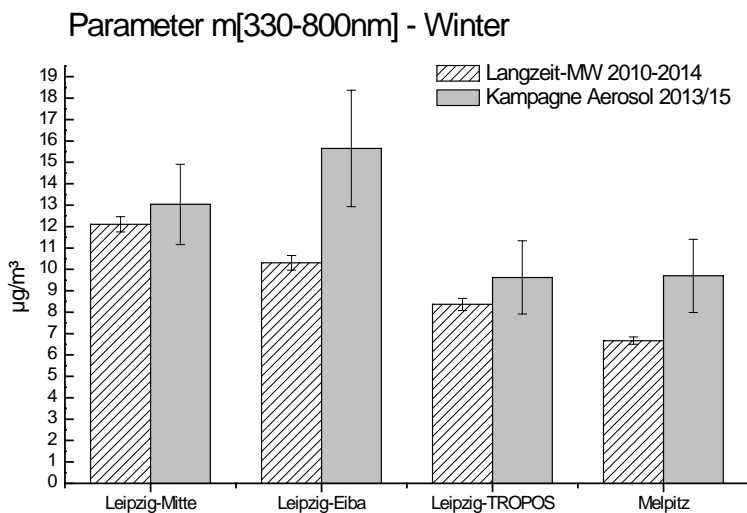
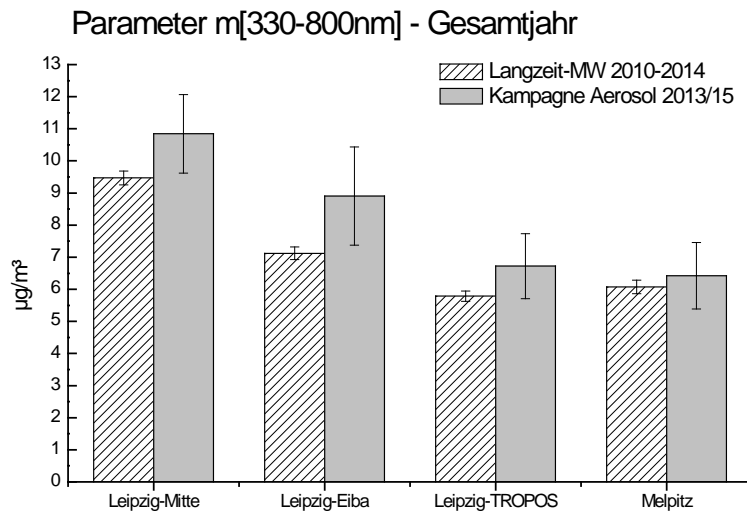


Abbildung 98: Partikelmassenkonzentration (Mobilitätswert 330–800 nm), geschätzt aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

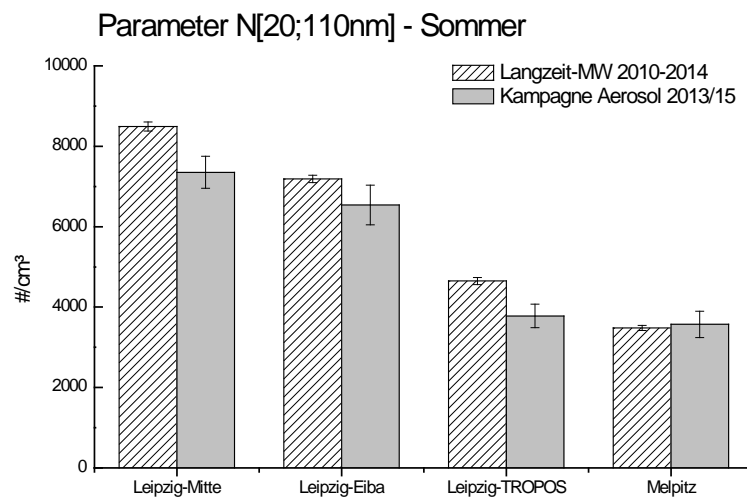
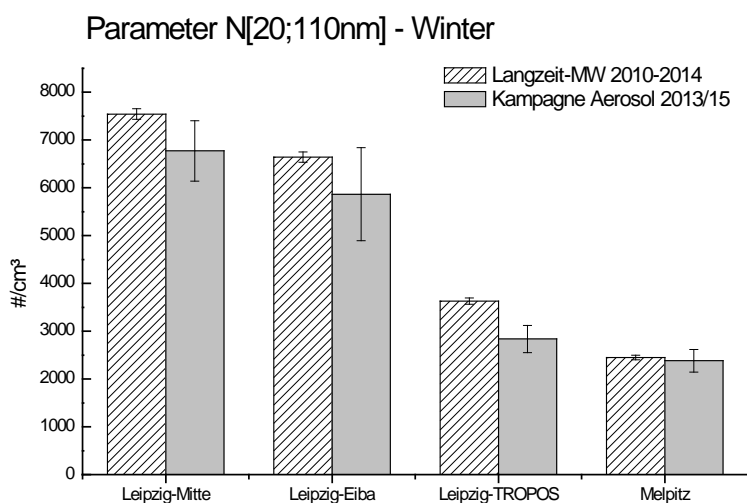
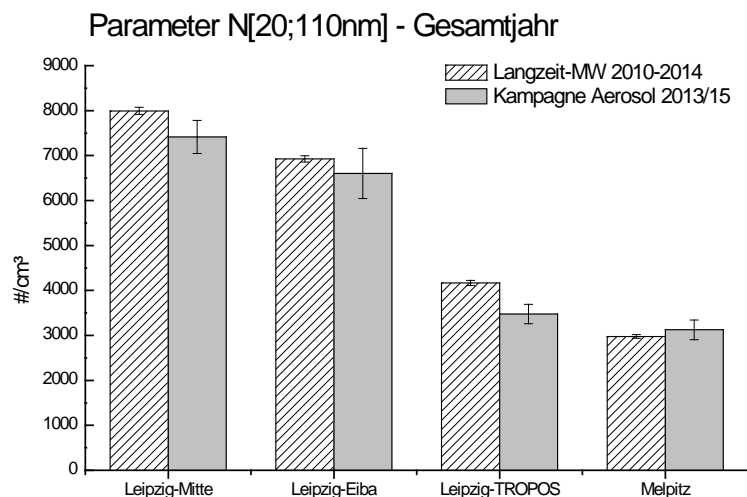


Abbildung 99: Partikelanzahlkonzentration (Mobilitätswert 20–110 nm), aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

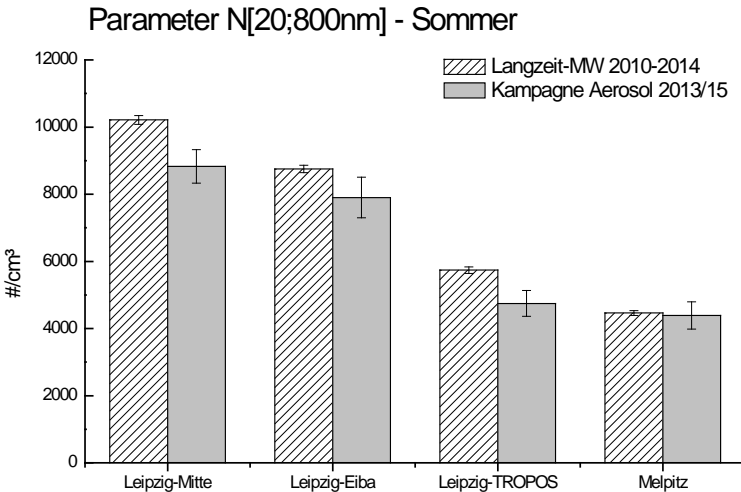
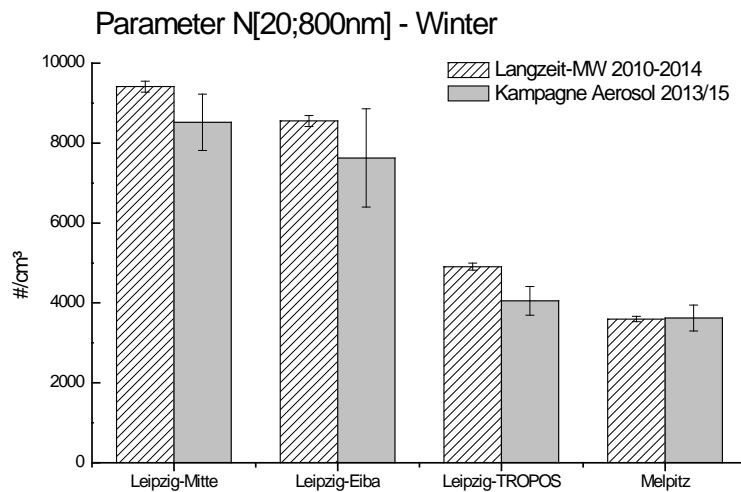
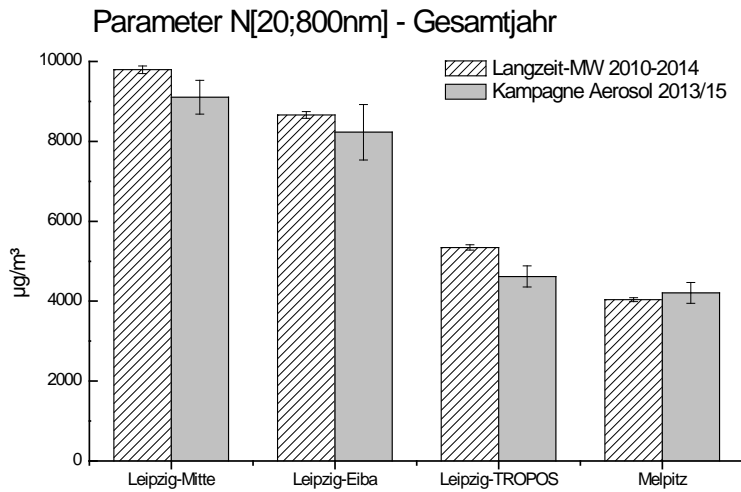


Abbildung 100: Partikelanzahlkonzentration (Mobilitätswertmesser 20–800 nm), aus Partikelmobilitätsspektrometerdaten, an den vier Messstationen, Vergleich des Fünfjahresmittelwertes 2010–2014 mit dem Mittelwert für die BERNER-Probenahme während der Kampagne 2013/2015. Gezeigt sind die Statistiken für das Gesamtjahr, Winter und Sommer. Die Fehlerbalken zeigen den Standardfehler $\sigma/\sqrt{(n-1)}$ auf Basis von Tagesmittelwerten an.

Für die massebezogenen Parameter $m[40-110]$, $m[110-330]$ und $m[330-800]$ ergibt sich ein gemischtes Bild aus positiven und negativen Abweichungen zwischen Kampagnenmittelwerten und langjährigen Mittelwerten. Bemerkenswert ist möglicherweise der Überschuss des Kampagnenmittelwertes beim Massenparameter $m[330-800]$ für den Winterzeitraum. Hier lagen die Kampagnenmittelwerte über alle Stationen gemittelt 30 % über den langjährigen Wintermittelwerten. Weil $m[330-800]$ repräsentativ für die großräumig homogen verteilten und gealterten Aerosolpartikel ist, steht auch hier die Hypothese, dass die gezielte Beprobung wintertypischer Wetterlagen zu diesem Überschuss führte.

Bei den partikelanzahlbezogenen Parametern $N[20;110]$ und $N[20;800]$ sind die Unterschiede wiederum bescheidener, wobei hier eine generelle Tendenz besteht, dass die Kampagnenmittelwerte niedriger als die langjährigen Mittelwerte sind.

Insgesamt stellt man fest, dass sich auf Basis der untersuchten Aerosolparameter die Kampagnenmittelwerte nicht allzu stark von den langjährigen Mittelwerten unterscheiden (Abweichungen meist im Bereich bis 10 %). Merkliche Ausnahme sind die Winterzeiträume, besonders für die Parameter BC und $m[330-800]$.

Zusammenfassung

Die Vergleiche der in den Kampagnen bestimmten Messwerte mit denen aus langjährigen Messreihen zeigen, dass die gezielte Auswahl von einzelnen Messtagen, zumal wenn es nur relativ wenige sind, nicht immer die mittleren Konzentrationen in einer Jahreszeit-Anströmungskategorie trifft. Für die nachfolgenden Vergleiche der BERNER-Messdaten des aktuellen Projektes mit denen aus dem Projekt 2000 sind hier besonders die Mittelwerte während Westanströmung in Sommer und Winter relevant. Während der Kampagnenmittelwert 2000 für Winter West deutlich über dem gesamten Wintermittelwert lag, war dies im aktuellen Projekt nicht der Fall. Dies bedeutet, dass die unten diskutierten Konzentrationsunterschiede im Winter nicht unbedingt repräsentativ sind. In den Sommern lagen die Kampagnenmittelwerte näher an den gesamten Sommermittelwerten, jedoch 2000 etwas darüber und im aktuellen Projekt etwas darunter. Daher ergibt sich auch hier möglicherweise ein etwas größerer Unterschied zwischen dem damaligen und dem heutigen Projekt, als er sich für umfangreichere Sommermesstage (mit Westanströmung) möglicherweise ergeben würde.

Diese Einschränkungen sind bei den Darstellungen in Kapitel 3.10 immer zu berücksichtigen.

3.10 Veränderungen der PM-Belastung zum Jahr 2000

3.10.1 Vorbemerkungen

Die im Rahmen der beiden Vorhaben in den Jahren 2000 bzw. 2013–2015 genommenen und untersuchten Proben stehen für regenfreie, typische Sommer- bzw. Wintertage. Sie sind vergleichbar, was Messtage mit Westanströmung betrifft. Für die im aktuellen Projekt untersuchten Tage mit östlicher Anströmung gibt es keine Vergleichsmöglichkeit, weil Ostlagen während der damaligen Kampagnen nicht auftraten. Die Zahl der Messtage im Jahr 2000 war mit insgesamt 17 auch deutlich geringer als in der gegenwärtigen Messkampagne, was zusammen mit den oben beschriebenen Unterschieden in den jahreszeitlichen Mittelwerten zu einer gewissen Unsicherheit in der Beurteilung der beobachteten Konzentrationstrends führt.

3.10.2 Masse

Weil 1999/2000 im Winter nur Westwindlagen untersucht wurden, sind für diesen Vergleich mit der aktuellen Messkampagne ebenfalls nur Tage mit westlicher Anströmung ausgewählt worden. In Abbildung 101 ist ein Vergleich der mittleren größen aufgelösten Konzentrationen der Massekonzentration 2000 mit der im aktuellen

Projekt gezeigt. Im damaligen Projekt lag der Fokus auf $PM_{2,5}$, weshalb es nur Daten für die ersten vier Impaktorstufen gibt ($PM_{3,5}$), die verglichen werden können.

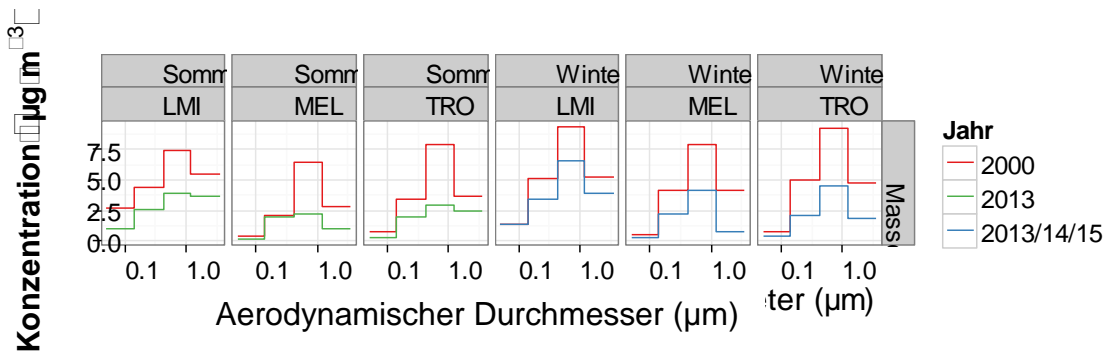


Abbildung 101: Vergleich der größen aufgelösten Median-Massekonzentrationen, die jeweils bei Westanströmung in den Jahren 2000 bzw. 2013–2015 an den Stationen Leipzig Mitte, Leipzig TROPOS und Melpitz gesammelt wurden.

Es wurde sowohl im Sommer als auch im Winter ein deutlicher Rückgang der Massen in allen Fraktionen und an allen Stationen beobachtet. Besonders auffällig sind die Rückgänge in der massereichen Ferntransportstufe 3, die sowohl im Sommer als auch im Winter an allen Probenahmeorten beobachtet wurden. Einschränkend ist jedoch auf die geringe Zahl der Probenahmen zu verweisen, die nur eine begrenzte statistische Sicherheit bieten.

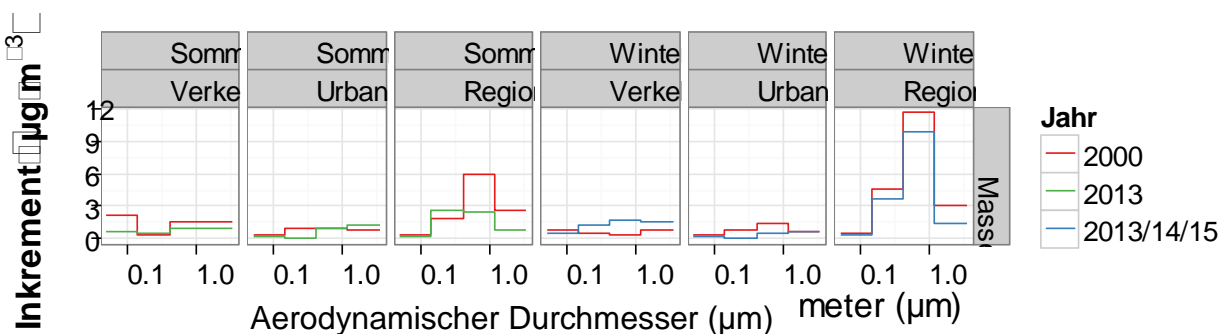


Abbildung 102: Vergleich der Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen 2000 und im aktuellen Projekt

Um beurteilen zu können, ob der Rückgang der Konzentrationen an den städtischen Stationen einzig auf den Rückgang im regionalen Hintergrund zurückzuführen ist, sind in Abbildung 102 die mittleren (Median) größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen für die Messungen aus 2000 und heute gezeigt. Daran lässt an LMI in den ultrafeinen Partikeln (Impaktorstufe 1) ein Rückgang des Verkehrsincrementes von $2,2$ auf $0,7 \mu g m^{-3}$ im Sommer und von $0,9$ auf $0,5 \mu g m^{-3}$ im Winter erkennen, was auf reduzierte direkte Verkehrsemissionen hindeutet.

3.10.3 Ionen

In Abbildung 103 sind die größen aufgelösten mittleren Konzentrationen der ionischen Partikelbestandteile im Vergleich 2000 mit heute gezeigt.

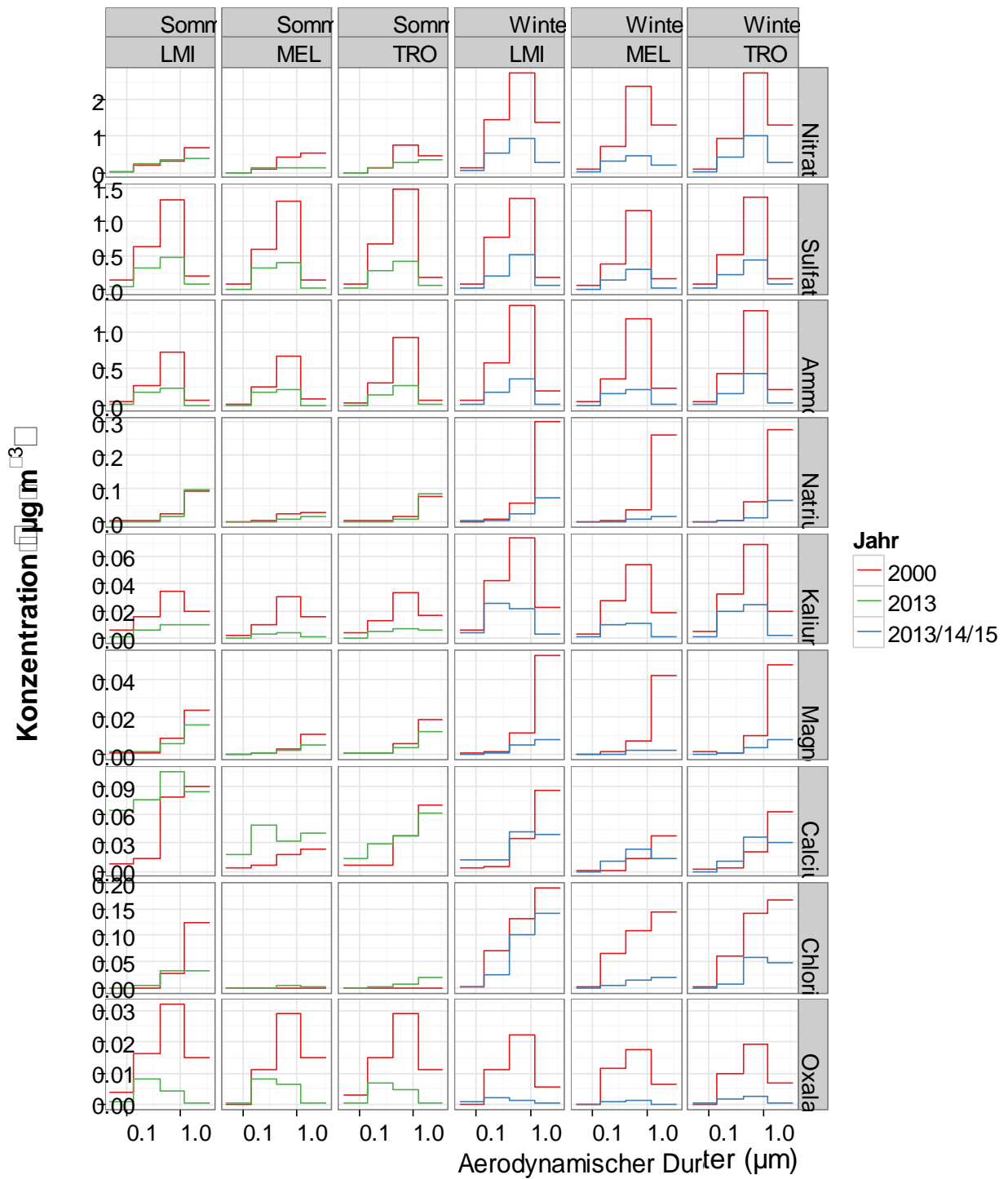


Abbildung 103: Vergleich der Konzentration der ionischen Aerosolkomponenten der Messkampagnen 2000 und 2013–2015

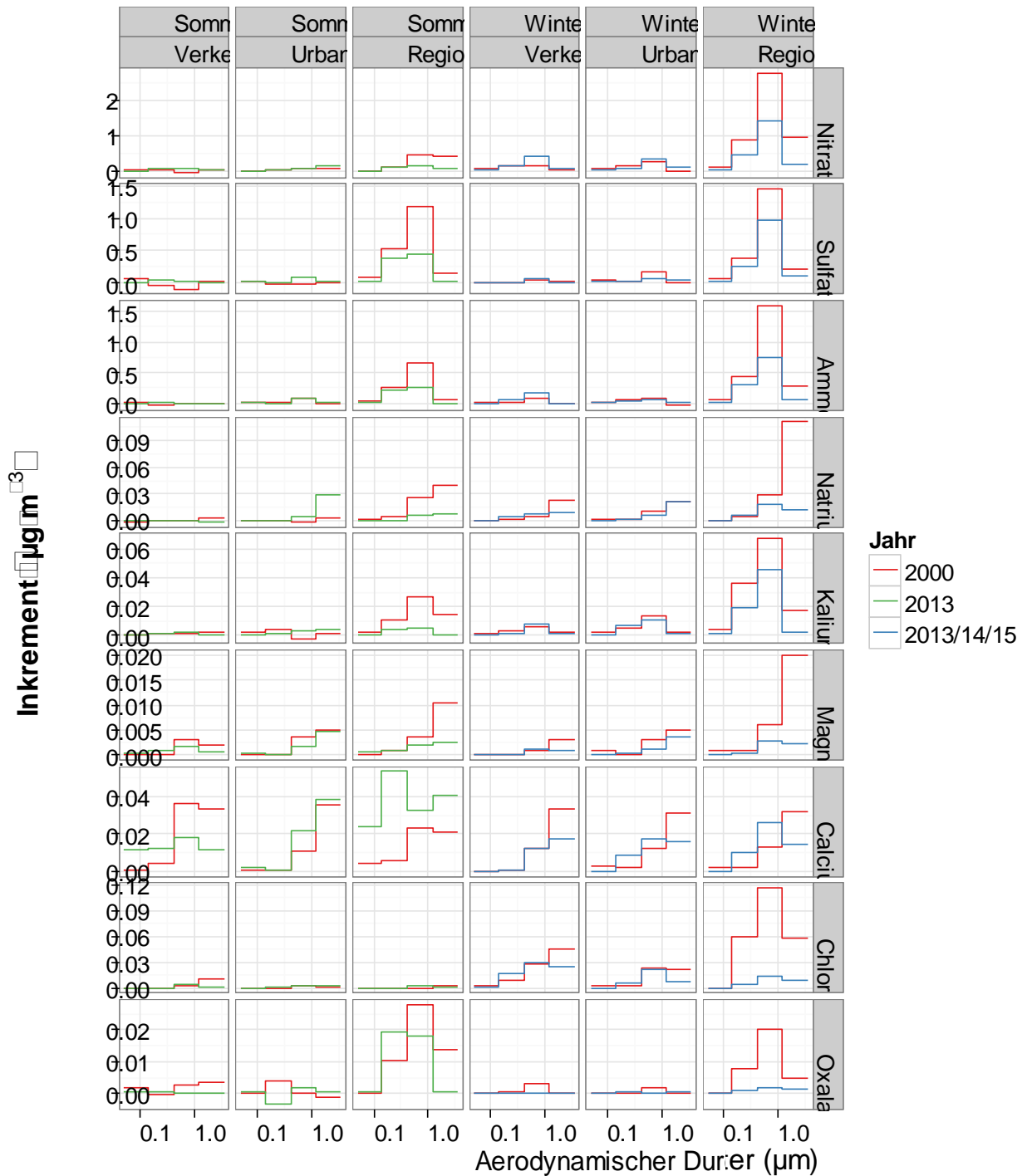


Abbildung 104: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt

Bei fast allen Ionen wurde an allen Messstationen für alle Partikelfractionen ein deutlicher Konzentrationsrückgang beobachtet. Am deutlichsten war der Rückgang bei Sulfat und Ammonium zu beobachten, während die Absenkung des Nitrats im Sommer nur in den groben Partikeln beobachtet wurde, im Winter jedoch alle Partikelfractionen umfasste.

Auffallend sind in diesem Vergleich die niedrigeren Werte von Kalium und Oxalat bei der aktuellen Messkampagne gegenüber den Ergebnissen aus dem Jahr 2000, was im Falle des Oxalates für ein geringeres Angebot

an Vorläufersubstanzen – OC ist im Aerosol deutlich niedriger als 2000 – spricht und bei Kalium für einen Rückgang der Biomasseverbrennungsemissionen. Ausnahmen bildeten die sommerlichen Werte für Natrium, Kalzium und Chlorid. Natrium und Chlorid sind natürlich emittierte Seesalzkomponenten, deren Konzentration bis in die Leipziger Region wesentlich von meteorologischen Einflüssen bestimmt wird. Kalzium stammte in der Stadt (Leipzig Mitte) aus lokaler Bautätigkeit und der Reemission von Straßenstaub, während in Melpitz die Emission von Krustenmaterial als wichtigste Quelle zu nennen ist. Im Winter wurde auf den Impaktorstufen 2 und 3 aller Messstandorte eine minimale Erhöhung gegenüber dem Jahr 2000 beobachtet, die offenbar mit der Hintergrundsituation zusammenhängt.

Für Natrium, Magnesium und Chlorid wurden im Winter ebenfalls deutliche Rückgänge im Bereich der supermikronen Partikel gemessen, deren Ursache an den meteorologischen Bedingungen lag, denn Melpitz war genauso davon betroffen wie die beiden städtischen Stationen. Dies ist auch in Abbildung 104 in den i. d. R. sehr ähnlichen städtischen Inkrementen der Ionen zu sehen.

3.10.4 Kohlenstoff

Im Folgenden werden für organischen und elementaren Kohlenstoff (in Summe total Carbon, TC) sowohl die größen aufgelösten Mediane der Konzentration (Abbildung 105) als auch die Inkremente (Mediankonzentrationen nach dem Lenschow-Ansatz, Abbildung 106) zwischen der „Kampagne aktuell“ und der „Kampagne 2000“ verglichen.

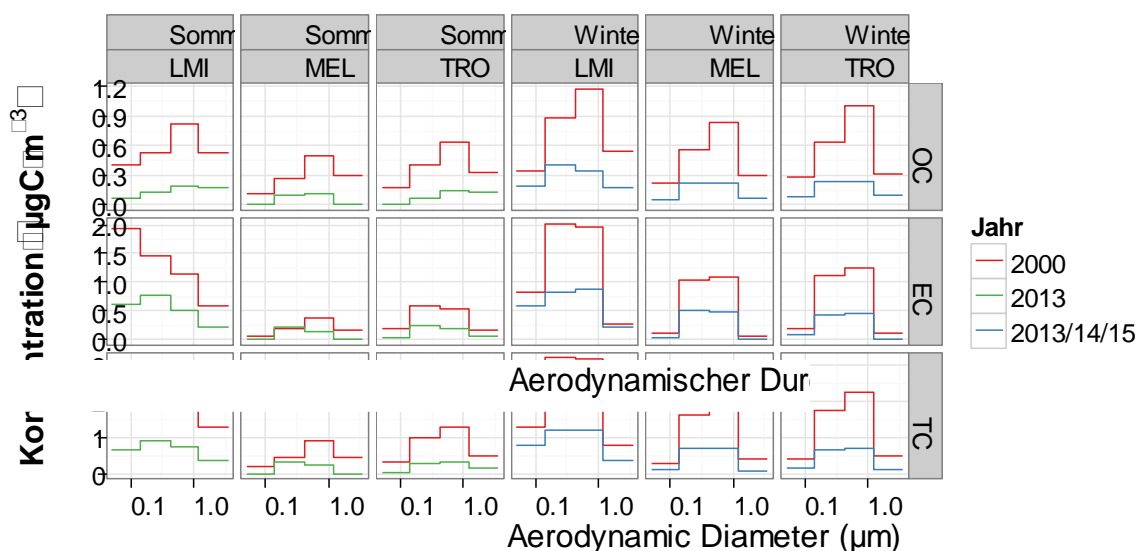


Abbildung 105: Median der Konzentration von OC, EC und TC auf den fünf Stufen des BERNER-Impaktors. Vergleich zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ für Sommer und Winter

In Abbildung 106 ist zu sehen, dass die mittleren Konzentrationen (Mediane) im Winter auf allen Stufen für die „Kampagne 2000“ verglichen mit der „Kampagne aktuell“ erheblich höher waren. Vergleicht man beide Größen für den Sommer, so zeigten sich in der Vergangenheit ebenfalls höhere Werte, allerdings ist die Sommerdifferenz in Melpitz nur gering bis gar nicht (EC Stufe 4) ausgeprägt. Im Winter zeigte sich für die Konzentrationen von OC und EC ein Anstieg vom regionalen (MEL) über den urbanen Hintergrund (TRO) hin zur Verkehrsstation (LMI). Dieser Anstieg ist für die mittleren Stufen 2–4 des Impaktors der „Kampagne 2000“ in etwa mit dem der „Kampagne aktuell“ vergleichbar. Allerdings lagen die absoluten Konzentrationen in der Vergan-

genheit etwa 2- bis 3-mal höher, was den damaligen Einfluss höherer OC- und EC-Emissionen zeigt. Auch im Sommer zeigte sich bei geringeren Konzentrationen im Vergleich zum jeweiligen Winter eine Zunahme der Konzentration in Richtung MEL<TRO<LMI für die Messungen aus der Vergangenheit und für die aktuellen Messungen.

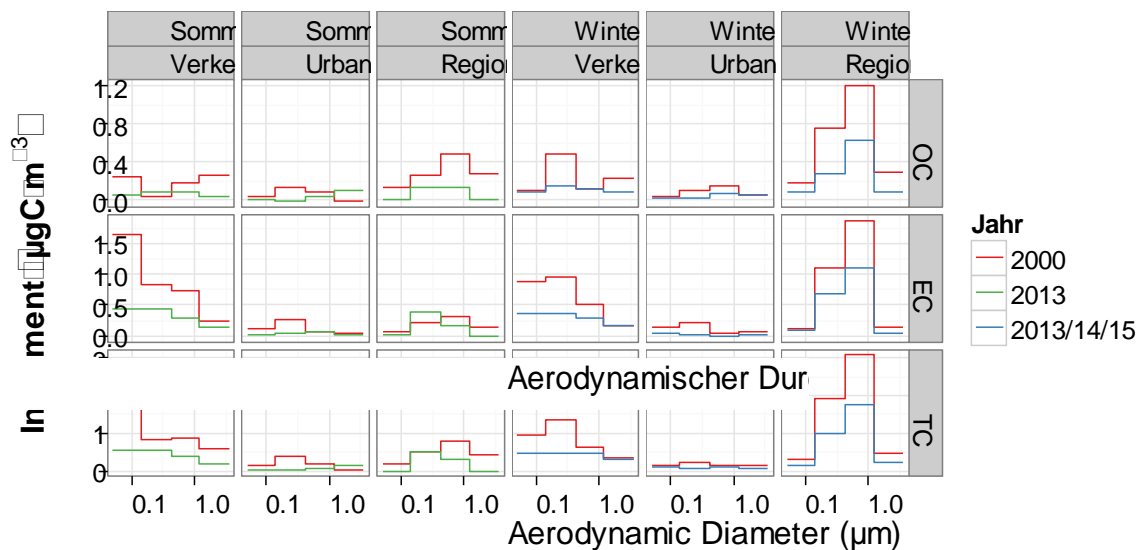


Abbildung 106: Inkremente (Mediankonzentrationen nach dem Lenschow-Ansatz) von OC, EC und TC auf den fünf Stufen des BERNER-Impaktors. Vergleich zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ für Sommer und Winter

Den größten Unterschied zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ findet man im Sommer auf Stufe 1 der Verkehrsstation, so wurde dort im Jahr 2000 die höchste EC-Konzentration aller vier vermessenen Impaktorstufen erreicht. In den aktuellen Werten war die EC-Konzentration auf Stufe 1 an der Verkehrsstation LMI absolut die zweithöchste, allerdings bei einer um das 1,5- bis 2-Fache geringeren Konzentration. Die heute kleineren EC-Konzentrationen auf Stufe 1 der Verkehrsstation im Sommer und im Winter zeigen den Rückgang der Emission von Dieselruß.

Den unterschiedlich starken Einfluss der Quellregionen soll ein Vergleich der Inkrementkonzentrationen zwischen der „Kampagne 2000“ und der „Kampagne aktuell“ unterschieden für Sommer und Winter zeigen (Abbildung 106). Für den regionalen bis überregionalen Hintergrund in Melpitz zeigt sich zwischen beiden Kampagnen ein großer Unterschied, der im Winter hauptsächlich durch den Einfluss von Ferntransport verursacht wurde. So war die OC-Konzentration auf allen vier Stufen in der „Kampagne 2000“ etwa doppelt so hoch wie heute – für EC gab es eine ähnlich höhere Konzentration in der Vergangenheit nur für die Stufen 2 und 3 im regionalen Hintergrund. Dies zeigt, dass EC immer noch, wenn auch im geringeren Ausmaß, im Winter über Ferntransport die Messstationen erreichte. Allerdings dürfte der Anteil lokaler Quellen im Gegensatz zu denen für OC stärker abgenommen haben. Im Sommer waren die Konzentrationen im regionalen Hintergrund für EC für beide Kampagnen etwa vergleichbar groß, für OC sind die Konzentrationen im Vergleich zum Jahr 2000 um die Hälfte (Stufen 1 bis 2) und um etwa das Doppelte (Stufen 3 bis 4) zurückgegangen. Geht man davon aus, dass die Emissionen aus biogenen Quellen in etwa gleich geblieben sein dürften, kann dies ein Hinweis auf den Rückgang von anthropogenen Emissionen organischer Vorläufersubstanzen sein. Betrachtet man nun den Einfluss des urbanen Hintergrunds, so war der für beide Kampagnen absolut betrachtet gering. Allerdings ist ein Rückgang hauptsächlich auf Stufe 2 für OC und EC sowohl im Winter als auch im Sommer erkennbar, er zeigt die etwas geringeren Emissionen bedingt durch Hausbrand und geringere anthropogene

Emissionen organischer Vorläufersubstanzen im Winter. Der Zuwachs der Konzentrationen vom urbanen Hintergrund hin zur Verkehrsstation ist gut sichtbar. Besonders ausgeprägt war er in der „Kampagne 2000“ für EC, der auf Stufe 1 im Sommer eine mehr als dreifache und im Winter eine doppelt so hohe Konzentration wie heute aufwies. Dies kann nur mit einem Rückgang der Verkehrsemissionen (Dieselruß) erklärt werden. Aber auch auf den Stufen 2 und 3 ist der Zuwachs der EC-Konzentration heute verglichen mit 2000 im Winter um etwa das Doppelte und im Sommer um etwa das 0,6-Fache zurückgegangen. Weil auf diesen Stufen sowohl die EC-Emissionen aus dem Verkehr als auch vom Hausbrand sichtbar sind, kann dies ein Hinweis für den Rückgang anthropogener Emissionen aus dem Hausbrand sein. Für OC sind die Konzentrationszuwächse für beide Kampagnen vom urbanen Hintergrund in Richtung Verkehrsstation in etwa vergleichbar. Lediglich auf Stufe 2 im Winter zeigte sich für die „Kampagne 2000“ eine Verdreifachung der Konzentration. Dies könnte im Winter 1999/2000 anthropogen verursacht gewesen sein.

3.10.5 Alkane und PAK

Im Vergleich zu den im Jahr 2000 für n-Alkane ermittelten Konzentrationen wurden in der Kampagne 2013/14/15 signifikant niedrigere Konzentrationen festgestellt (Abbildung 107). Sowohl im Sommer als auch im Winter waren die Konzentrationen von kleinen n-Alkanen (<C₂₅) in den Jahren 2013/14/15 weitaus niedriger als im Jahr 2000. Dies zeigt sich besonders ausgeprägt in den im Sommer durchgeführten Messungen an der Verkehrsstation LMI. Dass dies nicht nur an einer reduzierten Hintergrundbelastung, sondern auch an deutlich niedrigeren Verkehrsinkrementen liegt, ist auch in Abbildung 108 zu sehen und deutet stark auf eine Reduktion verkehrsbedingter Emissionen, bedingt durch verbesserte Emissionskontrollmaßnahmen hin.

Im Winter ist eine Reduktion von längeren n-Alkanen (>C₂₅) am Standort MEL und in geringerem Ausmaß am Standort TRO in den Jahren 2013/14 erkennbar. Die Reduktion ist auf der Stufe 2 und 3 besonders ausgeprägt, was als wahrscheinlichen Grund die Abnahme die Reduktion regionaler Schadstoffemissionen wie z. B. Heizungsemissionen nahelegt.

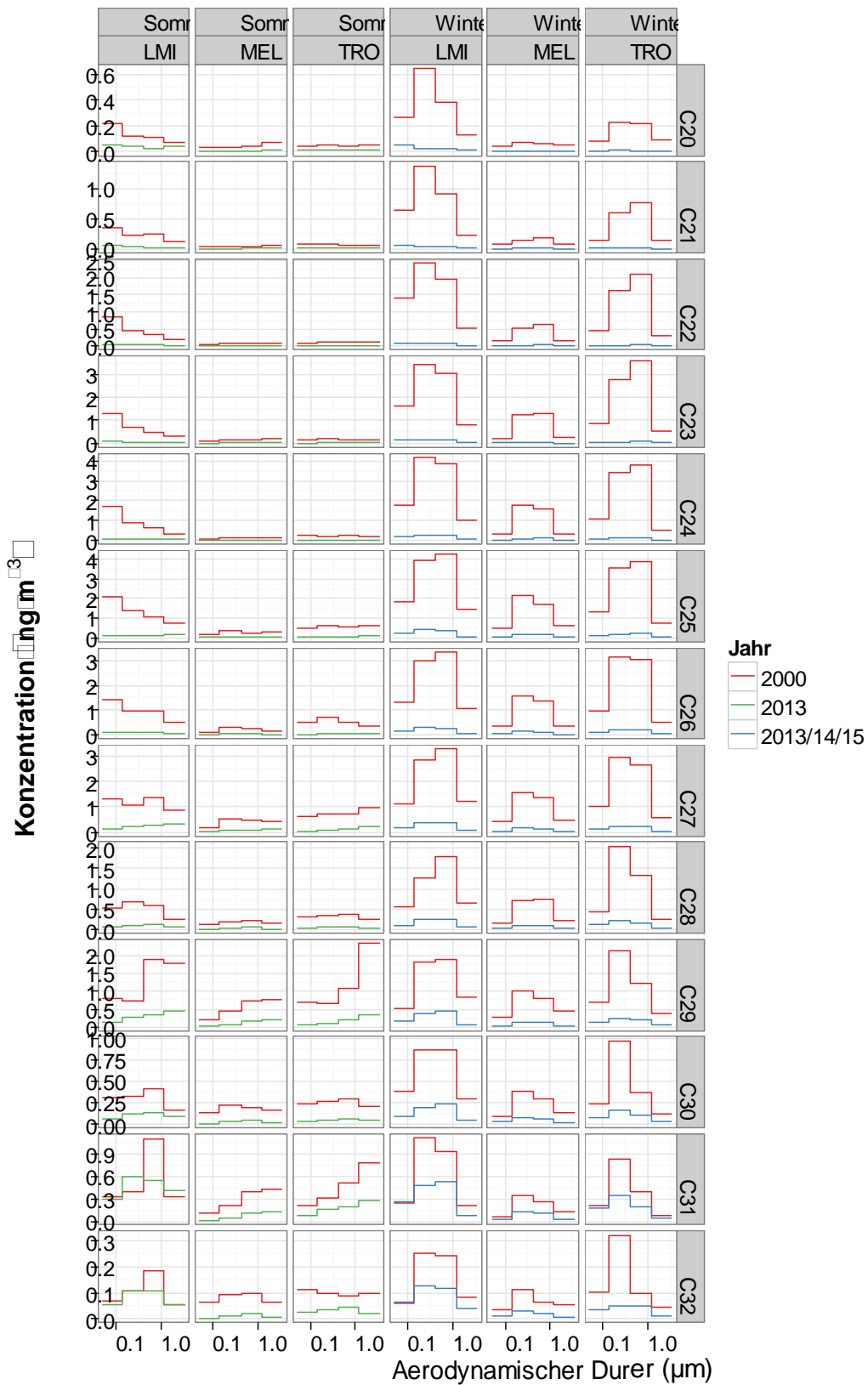


Abbildung 107: Vergleich der Konzentration der Alkane für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne

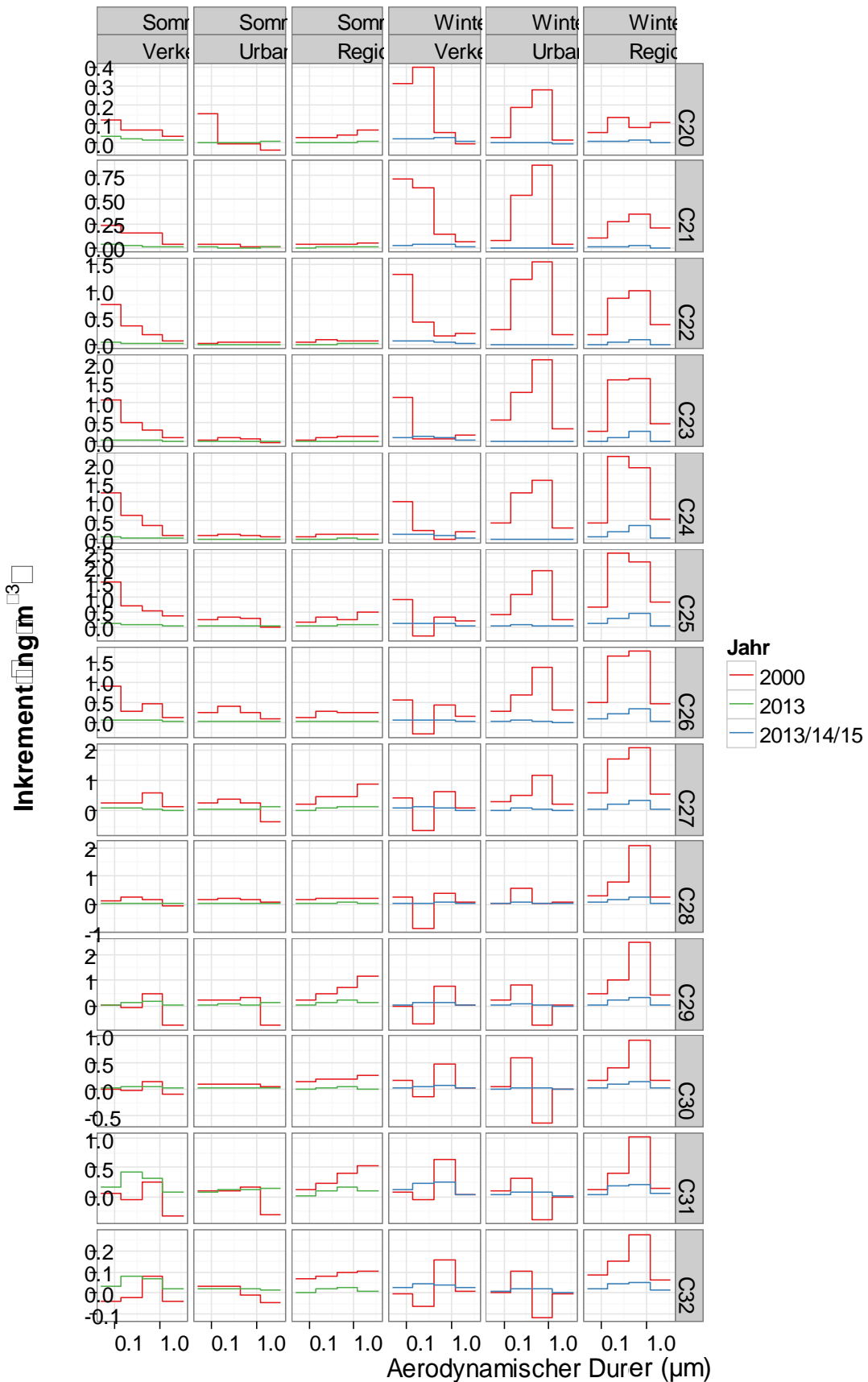


Abbildung 108: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkremente im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt

Der Vergleich von PAK-Konzentration zwischen dem Jahr 2000 und in den Jahren 2013/14/15 durchgeführten Messungen ist möglich für Phenanthren, Anthracen, Fluoranthen, Pyren, Chrysen/Triphenylen, 9,10-Fluorenon und 9,10-Anthracendione (Abbildung 109 und Abbildung 110), weil es für die im Jahr 2000 durchgeführten Messungen nur für diese PAK eine ausreichende Datengrundlage gibt.

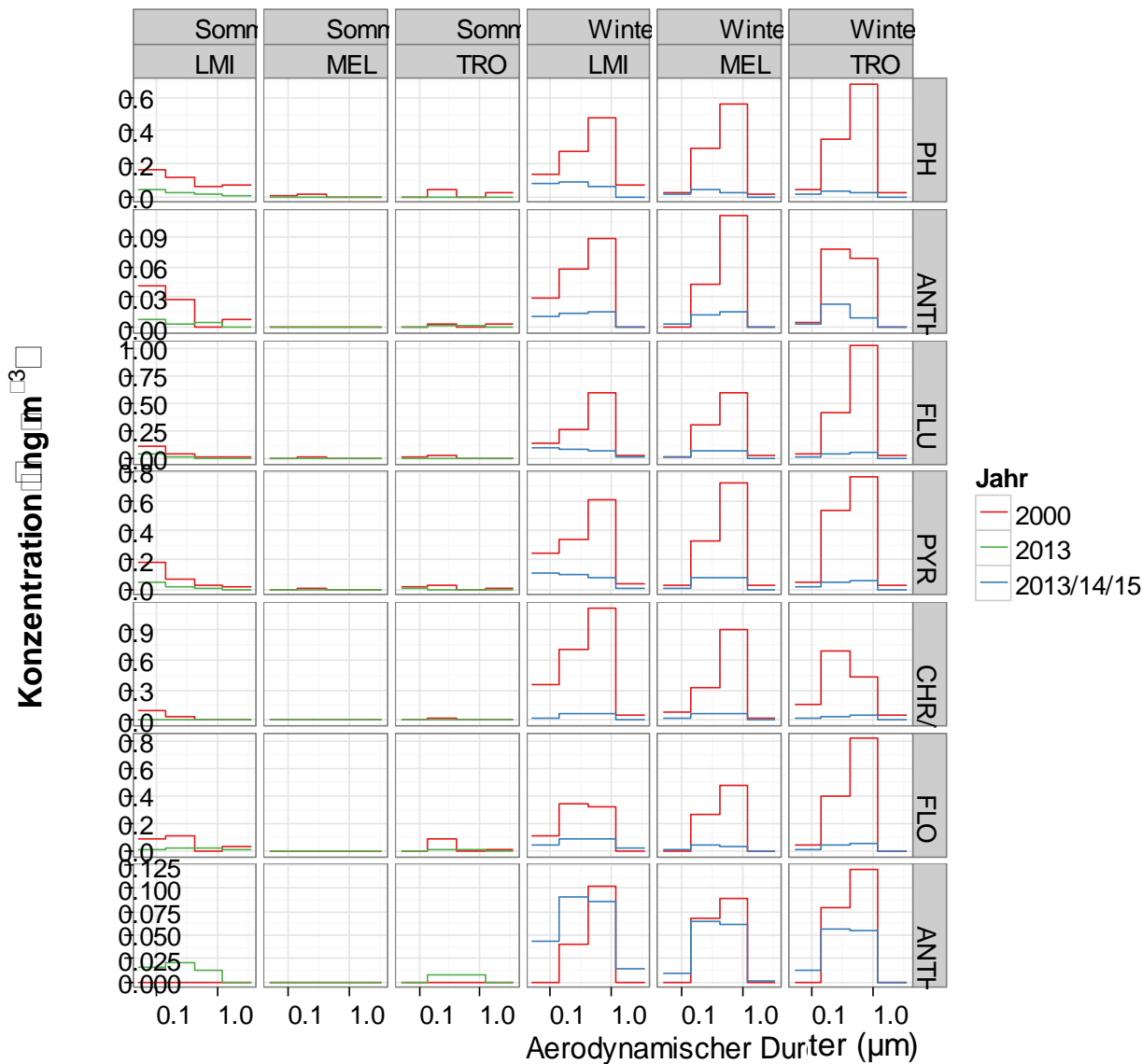


Abbildung 109: Vergleich der Konzentration der PAK für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne

Ähnlich den n-Alkanen lagen die PAK-Konzentrationen in den Jahren 2013/14/15 niedriger als im Jahr 2000. Dies zeigt sich i. d. R. in allen Größenbereichen und an LMI insbesondere auch in ultrafeinen Partikeln auf Impaktorstufe 1. Ähnlich wie bei den n-Alkanen deutet auch dies auf verminderte Emissionen aus dem Verkehr hin. Dass diese Abnahme über die Reduktion des Hintergrundes hinausgeht, zeigt sich auch in den Inkrementen in Abbildung 109.

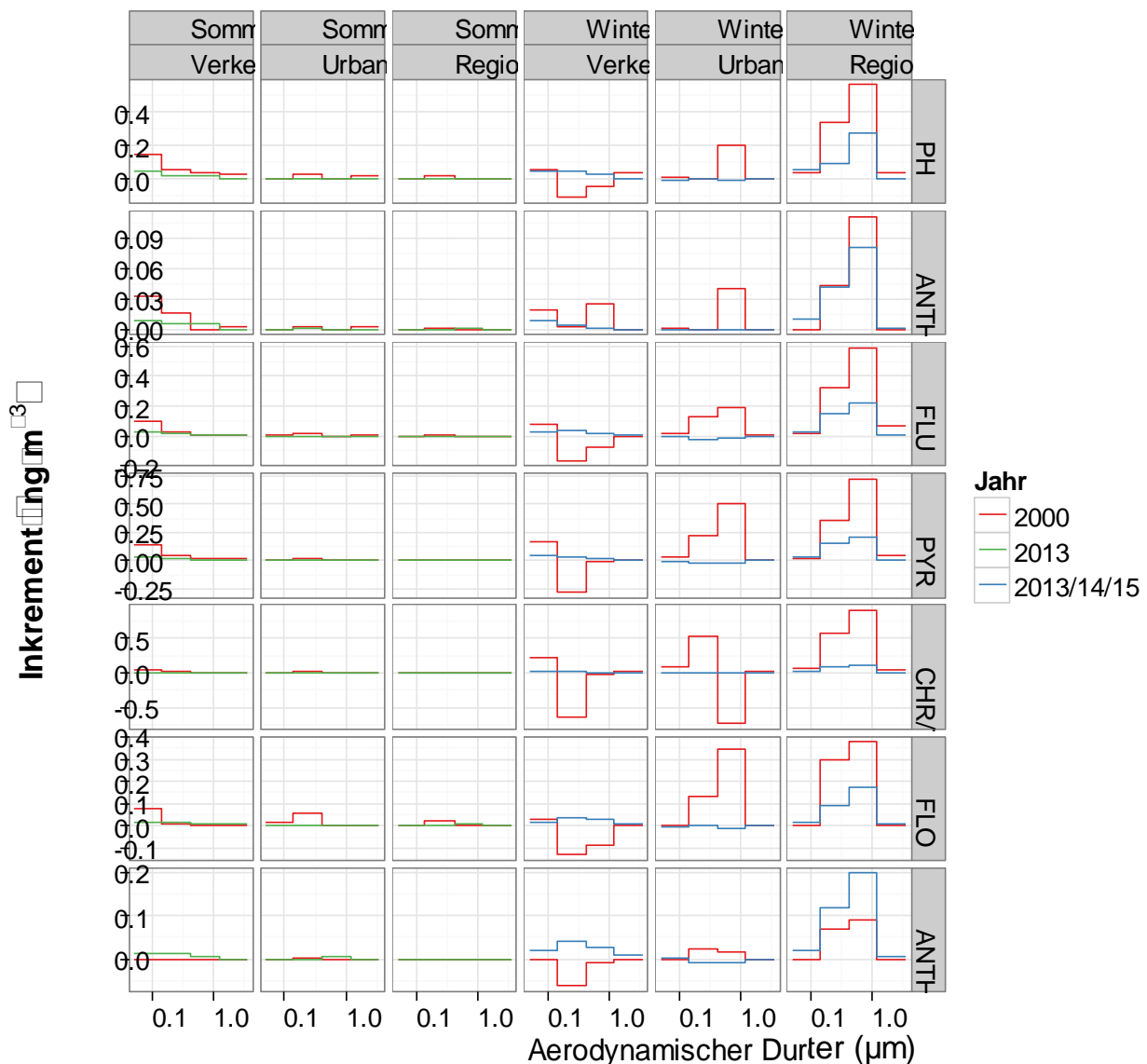


Abbildung 110: Mediane der größen aufgelösten Lenschow-Inkrementen im Vergleich 2000 mit aktuellem Projekt

3.10.6 Metalle

In Abbildung 111 ist der Vergleich zwischen den aktuellen Messungen und denen des Jahres 2000 für die Metalle gezeigt. Die analytischen Bestimmungen 2000 wurden mit einem anderen Instrument (ICP-MS) und einer anderen Probenvorbereitungsprozedur (Säureaufschluss bei hoher Temperatur) durchgeführt. Dies kann zu gewissen Unterschieden in den damals und heute erhaltenen Konzentrationen führen, die jedoch ohne genauere Methodenvergleiche nicht quantifiziert werden können.

Konzentrationen von V waren in der aktuellen Kampagne etwa 60 % geringer als in den 2000 durchgeführten Messungen. Trotz der niedrigeren Werte änderte sich die Größenverteilung mit einem überwiegenden Auftreten im feinen Partikelgrößenbereich nicht, was darauf hindeutet, dass sich nicht die Hauptquelle von V-Emissionen in dieser Region, sondern alleine der Emissionsfaktor verändert haben könnte. Cr und Mn weisen ein anderes Muster auf: Im Vergleich zu den Messungen im Jahr 2000 waren in den Jahren 2013/14/15 im Sommer geringere Cr- und Mn-Konzentrationen zu vermessen, im Winter jedoch höhere Konzentrationswerte.

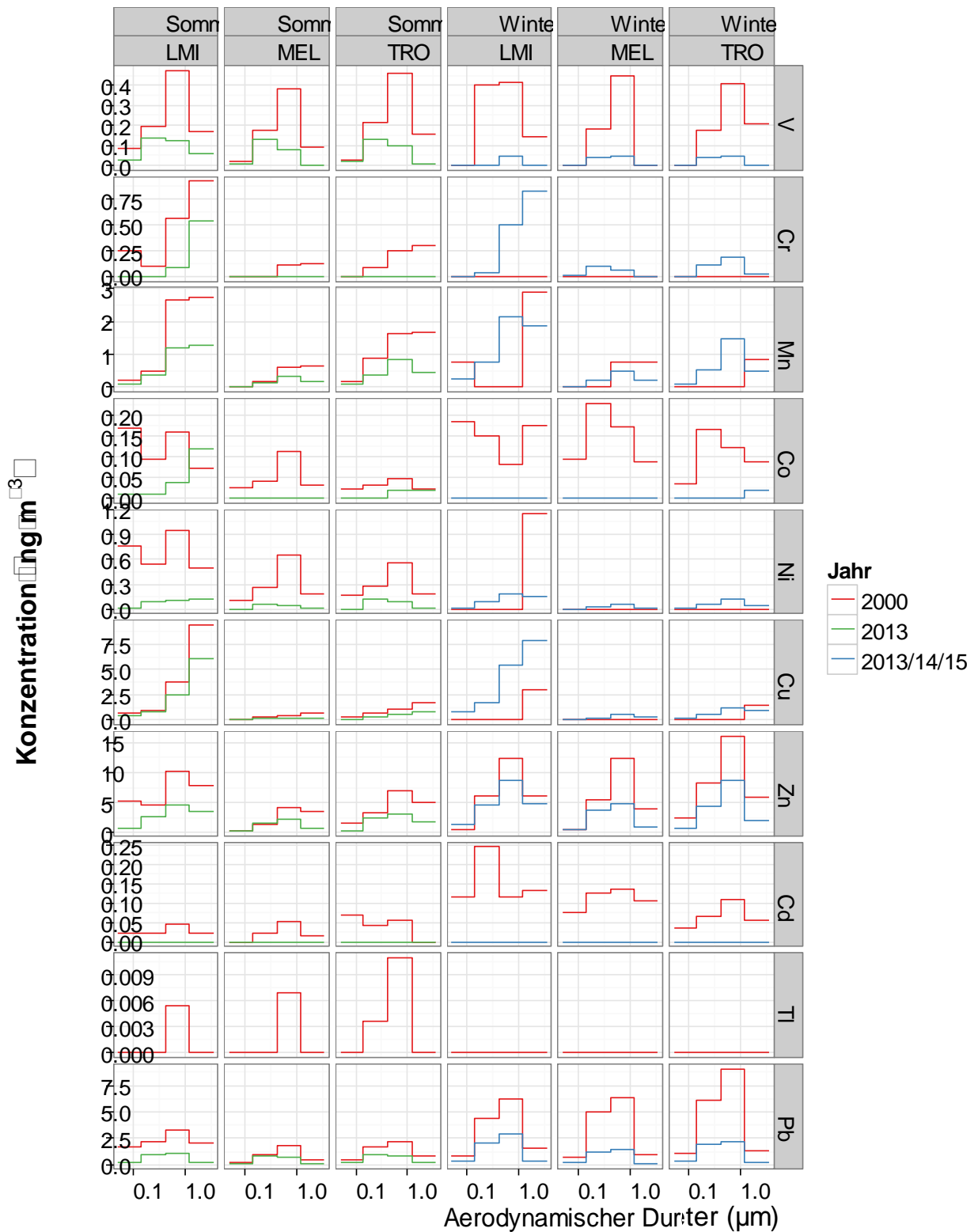


Abbildung 111: Vergleich der Konzentration der Spuremetalle für Sommer und Winter zwischen der Messkampagne 2000 und der aktuellen Messkampagne

Die Größenverteilung von Cr veränderte sich nicht in den beiden Sommermessungen und die im Winter 2000 gemessenen Konzentrationen waren gering. Allerdings ähnelten sich die sommerlichen und winterlichen Größenverteilungen der Cr-Konzentrationen am Standort LMI, wobei Cr sowohl im feinen als auch im groben Größenbereich auftrat. Nicht-Abgas-Verkehrsemissionen und mit der Herstellung von Edelstahl zusammen-

hängende industrielle Quellen wurden in anderen Studien für Cr-Partikel im feinen Größenbereich verantwortlich gemacht (VISSER et al. 2015). Ähnlich den zu Cr gemachten Beobachtungen zeigte auch Mn im Sommer diese Größenverteilung und im Winter eine leichte Verlagerung der Größenverteilung zu den Partikeln im feinen Größenbereich. Ni und Cu wiesen ein ähnliches Verhalten auf wie Mn und Cr, mit im Vergleich zu den Messungen in 2000 geringeren Konzentrationen im Sommer und höheren Konzentrationen im Winter. Ni-Partikel traten vorwiegend im feinen Größenbereich auf, während sich Cu eher in der groben Partikelfraktion konzentrierte, besonders in den im Jahr 2000 durchgeführten Messungen. Verkehrsemissionen von Cu wie z. B. durch Bremsverschleiß sind hoch, demzufolge die höheren Konzentrationswerte an den sich durch hohes Verkehrsaufkommen auszeichnenden Standorten LMI und EIB zu beobachten waren.

Die Konzentrationen von Spurenmetallen wie Zn, Pb und Co waren im Allgemeinen geringer als die sich aus den Messungen im Jahr 2000 ergebenden Werten, sowohl im Sommer als auch im Winter. Die Zn-Konzentration war um etwa 30 % geringer, während Pb im Winter um etwa 60 % und im Sommer um etwa 25 % geringeren Konzentrationen auftrat.

Im Vergleich zu den Messungen aus 2000 war etwa 90 % weniger Co in den aktuellen Messungen zu finden, wobei im Winter größere Unterschiede bestehen als im Sommer. Trotz der Konzentrationsunterschiede zeigten die Größenverteilungen von Zn, Pb und Co keine signifikanten Unterschiede, wobei höhere Konzentrationen überwiegend im feinen Größenbereich auftraten. Zn und Pb sind Elemente, die aus anthropogenen Quellen emittiert werden. Sie wurden mit verschiedenen Verbrennungsprozessen wie der Verbrennung von Kohle und Kraftstoff sowie Müllverbrennungsanlagen in Verbindung gebracht (VISSER et al. 2015; PACYNA et al. 2001; PANT & HARRISON 2013; HANDLER et al. 2008). Dass sie in der feinen Partikelfraktion auftreten, ist ein Indiz dafür, dass ihr Ursprung wahrscheinlich in Verbrennungsprozessen liegt. Cd-Konzentrationen waren in den aktuellen Messungen geringer als im Jahr 2000.

Insgesamt ist für die Konzentrationen von V, Co, Zn und Pb für beide Jahreszeiten eine signifikante Abnahme im Vergleich zu den Messungen aus dem Jahr 2000 zu verzeichnen, während Cr, Ni, Cu und Mn in ihren Konzentrationen nur im Sommer abnahmen und im Vergleich zum Jahr 2000 etwa 20 bis 40 % im Winter zunahmen. Diese Unterschiede könnten mit der Einführung neuer Autoabgasnormen und der 2011 in Leipzig eingerichteten Umweltzone zusammenhängen, besonders für Spurenmetalle wie Pb, die bekanntermaßen mit Autoabgasen ausgestoßen werden (MAENHAUT et al. 2005).

In Abbildung 112 sind die urbanen und die Verkehrs-Inkrementen der Spurenmetalle für die aktuelle und die damalige Kampagne gezeigt. V, Pb und Zn wiesen sowohl im Jahr 2000 als auch in den Jahren 2013/14/15 einen geringeren Beitrag von Verkehr und urbaner Aktivität, aber einen höheren Beitrag von regionaler Aktivität zu den für diese Spurenmetalle ermittelten Konzentrationen auf. Die höchsten Konzentrationen dieser Elemente lagen während beider Kampagnen in feinen Partikeln. Abgesehen von den Unterschieden in den gemessenen Konzentrationen konnten keine signifikanten Veränderungen in der Größenverteilung und somit auch nicht in den Emissionsprozessen dieser Spurenmetalle von den Messungen im Jahr 2000 zu den gegenwärtigen Messungen beobachtet werden. Wie schon oben erwähnt, könnten mögliche Quellen in der Verbrennung von Öl oder Kraftstoff und in Reifenverschleiß liegen. Cu, Cr und Mn zeigten höhere Beiträge durch Verkehr und urbane Aktivität, aber niedrigere Beiträge durch regionale Aktivität zu den beobachteten Konzentrationen, wobei im Jahr 2000 geringfügig höhere Inkremente gemessen wurden als in den gegenwärtigen Messungen. Höhere Inkremente wurden in der groben Partikelfraktion beobachtet. Die Inkremente von Ni und Co waren während der Messungen im Sommer 2000 im Vergleich zu den gegenwärtigen Messungen höher in groben Partikeln. Konzentrationen von sowohl Co als auch Ni waren gering während der Wintermessungen,

wodurch Unterschiede in den Messungen nicht im Detail ausgeführt werden können. Die Konzentrationen von Cd waren sehr gering, weshalb Vergleiche hier nicht näher ausgeführt werden.

Insgesamt wurden in den im Jahr 2000 durchgeführten Messungen höhere Inkremente beobachtet als in den gegenwärtigen Messungen, aber die Trends in den Beiträgen von urbaner, regionaler oder verkehrsbezogener Aktivität zu den Spurenmetallen zeigten keine signifikanten Unterschiede. Dies impliziert, dass der relative Beitrag und die Quellen von V, Pb, Z, Cu, Cr, Ni und Co sich seit den im Jahr 2000 durchgeführten Messungen nicht signifikant verändert haben.

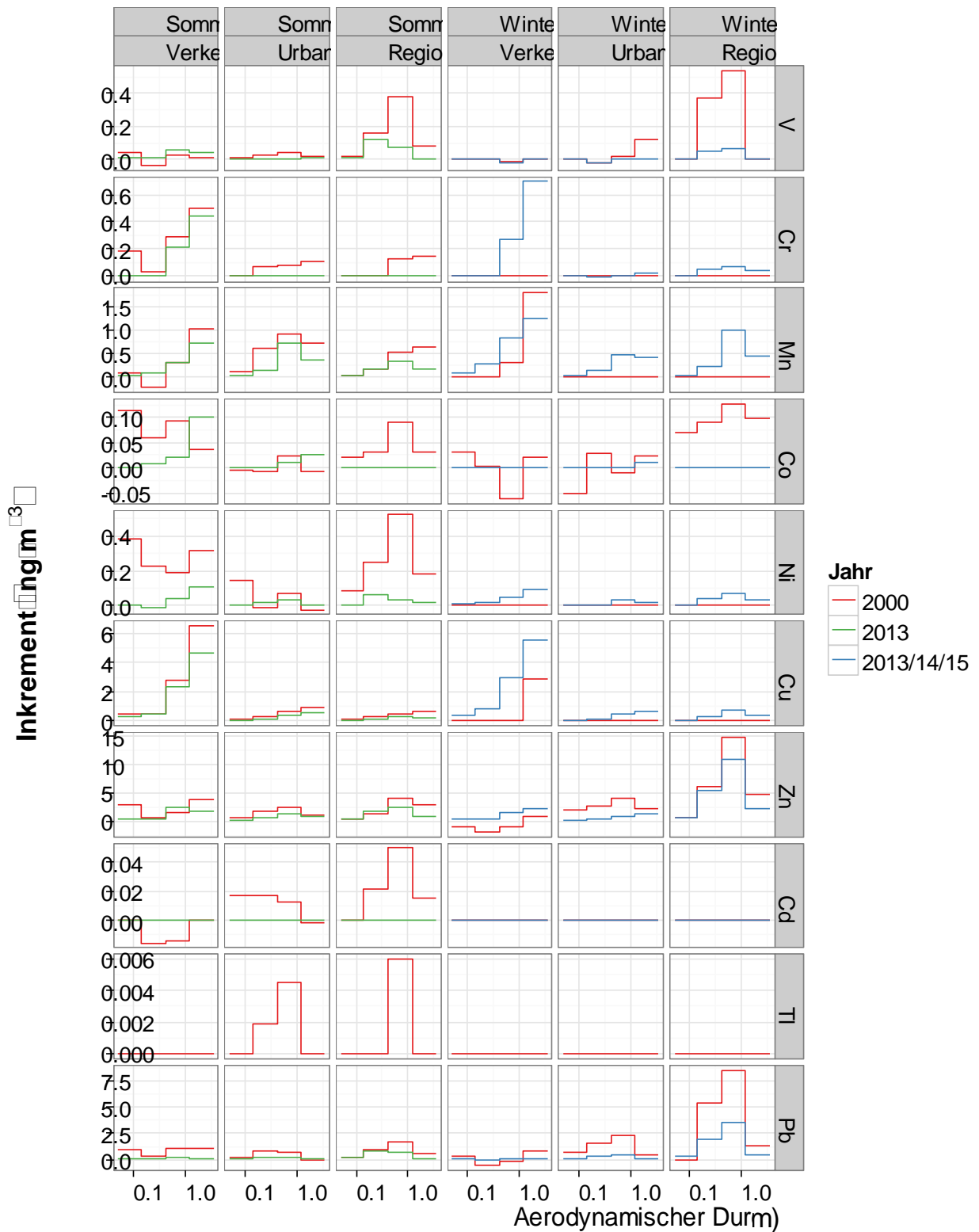


Abbildung 112: Vergleich der Konzentration im regionalen Hintergrund und der Inkremente der Stadtstationen zwischen den Messkampagnen 2000 und 2013–2015 für Sommer und Winter

3.10.7 Zusammenfassung

Ein Vergleich der Messkampagnen 2000 und 2013–2015 ist wie oben ausgeführt nur eingeschränkt möglich, weil 2000 ausschließlich westliche Luftmassen untersucht wurden. Die Zahl der vergleichbaren Messungen war 2000 mit ca. acht Proben pro Kampagne eher gering, was zu einer gewissen statistischen Unsicherheit des Vergleichs führt. Auch weichen die mittleren Werte der Kampagnen teilweise deutlich von den jahreszeitlichen Mittelwerten ab, wie oben in der Einordnung in lange Messreihen beschrieben. Die Vergleiche sind daher eher als Momentaufnahmen, denn als repräsentative Trends der PM-Belastung anzusehen.

Trotz dieser Unsicherheit lassen sich jedoch durch die Kombination von größen aufgelöster Partikelprobenahme und paralleler Beprobung an verschiedenen Standorten interessante Erkenntnisse zur Entwicklung der PM-Belastung im Raum Leipzig gewinnen.

Die dargestellten Ergebnisse deuten darauf hin, dass sich die Luftqualität in Leipzig im betrachteten Zeitraum weiter verbessert hat. Die Aerosolpartikelbelastung ist im aktuellen Projekt deutlich niedriger als im Jahr 2000, was besonders stark ausgeprägt ist bei den Metallen, den Kohlenstoffspezies und bei den sekundären ionischen Komponenten. Besonders die massereichen Stufen 2 und 3 der Impaktorproben wiesen starke Rückgänge auf, was auf ein gesunkenes Hintergrundbelastungsniveau schließen lässt. Die an der Verkehrsstation LMI beobachtete Minderung der Massenkonzentration ultrafeiner Partikel und insbesondere auch von OC, EC anthropogenen n-Alkanen und PAK, deutet auf rückläufige Emissionen aus Verkehr hin. Dies kann sicherlich auch der Einführung der Umweltzone zugeschrieben werden, weil moderne Motoren deutlich weniger EC sowie unverbrannte Treib- und Schmierstoffe emittieren als ältere. Die Inbetriebnahme des Citytunnels könnte ebenso mit dazu beigetragen haben, dass weniger Autos in die Innenstadt fahren, die durch die S-Bahn Anbindung aus dem Umland jetzt besser mit öffentlichen Verkehrsmitteln erreichbar ist.

3.11 Mögliche Maßnahmen zur weiteren Luftreinhaltung

Im Rahmen der Untersuchungen in diesem Projekt konnte festgestellt werden, dass die Stadt Leipzig auf einem guten Weg ist, die strengen EU-Kriterien der Luftreinhaltung in Hinblick auf die Partikelbelastung einzuhalten. Es besteht jedoch weiterhin die Notwendigkeit, beeinflussbare PM-Quellen zu reduzieren. Wie durch die vorliegenden Untersuchungen unzweifelhaft nachgewiesen wurde, stellt die winterliche Aerosolbelastung bei östlicher Luftmassenherkunft das größte Problem für die Luftqualität in der Region Leipzig dar, denn der größte Teil des in der Stadt gemessenen Aerosols stammt aus dem Ferntransport. Individuelle Heizungen sind dabei als wesentlicher Verursacher identifiziert worden. Vor allem in den östlichen EU-Staaten sind geeignete Maßnahmen zu befördern, die heizungsbedingte Emissionen deutlich abzusenken. Das nordböhmische Industriegebiet und das dicht besiedelte südliche Polen haben großen Einfluss auf die Luftqualität in Sachsen. Neben den Einträgen durch den Ferntransport haben auch die meteorologischen Randbedingungen – trockene und kalte Luftmassen, niedrige Windgeschwindigkeiten und zur Inversion neigende Hochdrucklagen – einen erheblichen Einfluss auf die Belastungssituation in Bezug auf Partikel in der Region Leipzig.

Die Industrieemissionen sind heute im Raum Leipzig nahezu unbedeutend. Die Energiewende wird mit einer weiteren Abkehr von der Braunkohle als energetische Basis hin zu regenerativen Energien noch einen zusätzlichen, regionalen Beitrag liefern. Auch von der modernen Landwirtschaft kann noch ein Beitrag zur Absenkung der Partikelmissionen, z. B. durch Senkung primärer Ammoniakemissionen, eingefordert werden.

Die weitere Förderung von modernen Dieselmotoren, die die Norm Euro 6 wirklich erfüllen, trägt neben der Senkung des CO₂-Ausstoßes auch zur Verringerung des Kohlenwasserstoffausstoßes bei. Die NO_x-

Emissionen sollten in allen Fahrzeugen minimiert werden, was technisch aufwändig ist, aber bei den Autoherstellern durchgesetzt werden sollte und dann auch kontrolliert werden muss. Beim Dieselmotor erscheinen besondere Anstrengungen, insbesondere bei der Emission von NO_2 aus den Dieselpartikelfiltern, angebracht.

Für die Verbesserung der städtischen Luftqualität hat die Umweltzone schon einen wichtigen Beitrag insbesondere bei ultrafeinen Partikeln und Ruß geleistet, es sind aber weitere Anstrengungen nötig, um die von der EU hochgesteckten Ziele bei der Partikelbelastung der Außenluft zu erfüllen. Der EC-Ausstoß aus dem Kraftverkehr und den Festbrennstoffheizungen ist weiter abzusenken – der Preis, der für Gemütlichkeitsfeuer durch eine verminderte Luftqualität besonders im Winter gezahlt wird, ist zu hoch. Die eingeleiteten Maßnahmen entsprechend der Novellierung der 1.BImSchV von 2010 sind daher zu begrüßen. Der Einsatz von Verbrennungskraftmaschinen (z.B. Baumaschinen und Schiffsdiesel) ohne zeitgemäße Abgasreinigung sollte weiter reduziert werden.

Eine Optimierung städtischer Verkehrsströme kann zur Emissionsminderung durch den Straßenverkehr beitragen. Dafür gibt es zahlreiche Möglichkeiten, die allerdings im Rahmen dieses Projekts nicht im Einzelnen referiert oder bewertet werden können. Denkbar sind Verbesserungen im öffentlichen Nahverkehrssystem und eine Verbesserung des Radwegenetzes innerhalb der Stadt, die, bei Wahl geeigneter Maßnahmen, zu einer Verringerung des Individualverkehrs und von Verkehrsemissionen im Ballungsraum führen können.

Der Ersatz von Einzelfeuerstätten durch effiziente und preisgünstige Fernwärmeversorgung sollte vor allem in Großstädten und Ballungszentren gefördert werden. Auch die Modernisierung von Altbauten (Wärmedämmung und Heizsysteme) sollte noch stärker gefördert werden.

Partikelströme kennen keine Grenzen. Es muss stärker darum gerungen werden, dass auch außerhalb Deutschlands die Emissionen von Partikeln und deren Vorläufern weiter abgesenkt werden, insbesondere in den zur EU gehörigen Staaten.

4 Zusammenfassung

Im vorliegenden Abschlussbericht wurden physikalische und chemische Messungen im Projekt „Korngrößen-differenzierte chemisch-physikalische Aerosolcharakterisierung als Indikator der Veränderung der Luftqualität gegenüber 2000 in Leipzig und Sachsen“ umfassend dargestellt und ausgewertet.

Der Schwerpunkt lag hierbei auf der größen aufgelösten chemischen Charakterisierung von Aerosolpartikeln parallel an vier Standorten im Raum Leipzig für insgesamt 42 Messtage in den Sommer- und Wintermonaten der Jahre 2013 bis 2015. Aus diesen Daten wurden über verschiedene Ansätze die Quellen der aktuellen Partikelbelastung in Leipzig abgeleitet. Es zeigte sich, dass unterschiedlich komplexe Ansätze hier zu sehr ähnlichen Ergebnissen führen können, insofern die Definitionen der jeweiligen Quellgruppen in den verschiedenen Methoden vergleichbar sind. Aus den derart „validierten“ Ergebnissen können als Gesamtergebnis die Quellen von PM_{10} an der hochbelasteten Station Leipzig-Mitte wie in Abbildung 113 gezeigt zusammengefasst werden.

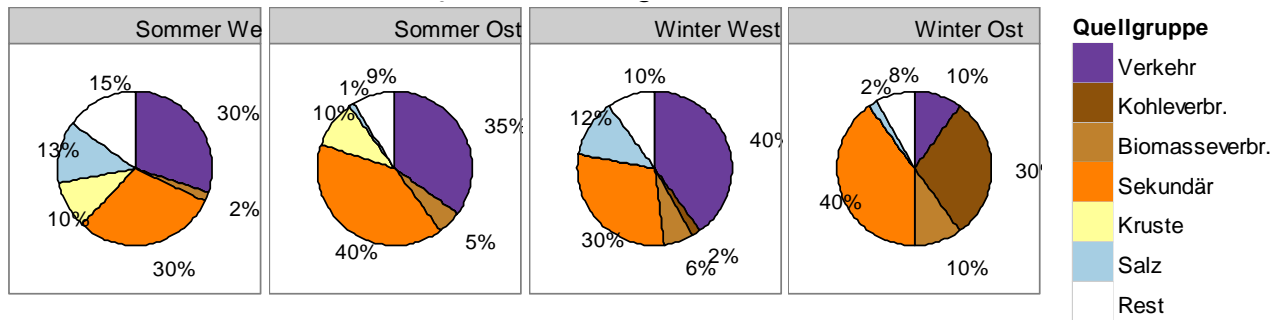


Abbildung 113: Relative Anteile der wichtigsten Quellgruppen für PM₁₀ an der Station Leipzig-Mitte

Unterschieden wird hierbei neben der Jahreszeit auch nach der Luftmassenherkunft (westliche oder östliche großräumige Anströmung des Leipziger Raumes), weil sich in diesem und in früheren Projekten zeigte, dass es sich hierbei um sehr verschiedene Regime handelt. Dementsprechend unterscheiden sich auch die Anteile der Quellgruppen deutlich. Bei Ostlagen war sowohl im Sommer als auch im Winter sekundäres Material mit 40 % Anteil an der PM₁₀-Masse die wichtigste Quellgruppe. Es entsteht durch chemische Reaktionen aus den Vorläufergasen Schwefeldioxid, Stickoxiden, Ammoniak und flüchtigen organischen Verbindungen. Bei Westlagen stellten direkte und indirekte Verkehrsemissionen mit 30–40 % Masseanteil eine ebenso wichtige (Sommer) und die wichtigste (Winter) Quellgruppe an Leipzig-Mitte dar.

Deutlich die höchsten Partikelkonzentrationen wurden in Leipzig regelmäßig bei winterlichen Ostlagen beobachtet. In dieser Kategorie gibt es daher die höchste Anzahl von Tagen, an denen der gesetzliche Grenzwert für PM₁₀ von 50 µg m⁻³ überschritten wurde. Unter diesen meteorologischen Bedingungen machte der Verkehr an Leipzig-Mitte im Mittel immerhin noch 10 % des PM₁₀ aus, dominiert wurde die Partikelmasse jedoch neben dem sekundären Material von Emissionen aus der Verbrennung von Kohle und Holz zu Heizzwecken. Diese Emissionen erreichen Leipzig ganz überwiegend durch überregionalen Ferntransport, wie durch die parallelen Messungen im regionalen Hintergrund (ohne direkten Einfluss anthropogener Emissionen) gezeigt werden konnte.

Insgesamt zeigen diese Betrachtungen, dass PM an hochbelasteten städtischen Standorten ganz überwiegend aus anthropogenen Quellen stammt. Die Summe der relativen Quellbeiträge aus Krustenmaterial (ohne Verkehrsaufwirbelung), Seesalz und Pilzsporen betrug an Leipzig-Mitte im Gesamtmittel 13 %. Die Quantifizierung des natürlichen Anteils ist jedoch mit großen Ungenauigkeiten verbunden, weil ursprünglich natürlich emittierte Partikel sich durch chemische Prozesse in der verschmutzten Atmosphäre stark verändern können und sich damit auch ihr Massebeitrag ändert. Außerdem sind in sekundär gebildetem Material auch unterschiedlich hohe Anteile organischen Materials enthalten, das sich aus natürlich emittierten Vorläufergasen bildete.

Neben der Quantifizierung aktueller Quellbeiträge zur PM-Belastung in Leipzig war der Vergleich mit ähnlichen Messungen aus dem Jahr 2000 ein weiterer Schwerpunkt des Projekts. Die Einordnung der jeweiligen Messdaten in langjährige Messreihen an der TROPOS-Forschungsstation Melpitz zeigte, dass diese Vergleiche eher als Momentaufnahme denn als repräsentative Trends zu sehen sind. Durch die notwendige Auswahl einzelner Messtage in den Projekten ist nicht immer gewährleistet, dass die mittleren Werte der Kampagnen auch die mittleren Werte der entsprechenden Jahreszeit (und großräumigen Anströmung) wiedergeben. Dennoch ermöglicht die größen aufgelöste Probenahme zusammen mit der sehr detaillierten chemischen Charakterisierung der Partikel in den Projekten Erkenntnisse, die die Ergebnisse aus der Bestimmung der gesetzlich geregelten Messgrößen deutlich und sinnvoll ergänzen.

Ein wichtiger Befund ist die Reduktion von gesundheitsschädlichem Ruß (EC), die sowohl in ultrafeinen Partikeln als auch insgesamt in $PM_{3,5}$ beobachtet wurde. Durch Inkrementbildung mittels des Lenschow-Ansatzes kann gezeigt werden, dass diese nicht nur durch eine Reduktion im regionalen Hintergrund verursacht wurde, sondern auch sehr deutlich durch eine Halbierung des zusätzlichen Verkehrsbeitrages von ca. $2\text{--}3\ \mu\text{g m}^{-3}$ im Jahr 2000 auf ca. $1\text{--}1,5\ \mu\text{g m}^{-3}$ im aktuellen Projekt (Abbildung 114).



Abbildung 114: Mittlere $PM_{3,5}$ Konzentration von EC im regionalen Hintergrund und zusätzliche Inkremente im urbanen Hintergrund sowie durch Verkehr in den Jahren 2000 und 2013–2015

Ähnliche Beobachtungen wurden für weitere gesundheitsschädliche Partikelbestandteile, wie verschiedene Metalle und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe, gemacht. Trotz der statistischen Unsicherheit der Vergleiche deutet dies darauf hin, dass die umgesetzten Luftreinhaltemaßnahmen in Leipzig (z. B. Einführung der Umweltzone) Wirkung zeigen. Weitere Anstrengungen sind sicherlich notwendig, um den Gesundheitsschutz der Bevölkerung zu verbessern und die gesetzgeberischen Vorgaben zu erfüllen. Durch die große Bedeutung des Ferntransportes von Luftverschmutzung, insbesondere aus südosteuropäischen Regionen, ist hier neben lokalen Maßnahmen auch weiterhin eine strenge EU-weite Regulierung insbesondere von Verbrennungsemissionen aus Verkehr und Heizung wichtig.

Literaturverzeichnis

- ALVES, C.C., CARVALHO, O., RAFAEL, A., PEREIRA, M.I., MEDEIROS, J.A., CABRITA, A.M.S.: The use of budesonide to reduce lesions induced by the experimental administration of DSS. *Faseb Journal* 20(2006),S. A1273-A1273
- AMATO, F., PANDOLFI, M., ESCRIG, A., QUEROL, X., ALASTUEY, A., PEY, J., PEREZ, N., HOPKE, P.K.: Quantifying road dust resuspension in urban environment by Multilinear Engine: A comparison with PMF2. *Atmospheric Environment* 43(2009),S. 2770-2780
- AMATO, F., VIANA, M., RICHARD, A., FURGER, M., PREVOT, A.S.H., NAVA, S., LUCARELLI, F., BUKOWIECKI, N., ALASTUEY, A., RECHE, C., MORENO, T., PANDOLFI, M., PEY, J., QUEROL, X.: Size and time-resolved roadside enrichment of atmospheric particulate pollutants. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11(2011),S. 2917-2931
- ARTAXO, P., HANSSON, H.C.: Size Distribution of Biogenic Aerosol-Particles from the Amazon Basin. *Atmospheric Environment* 29(1995),S. 393-402
- AVINO, P., CASCIARDI, S., FANIZZA, C., MANIGRASSO, M.: Deep Investigation of Ultrafine Particles in Urban Air. *Aerosol and Air Quality Research* 11(2011),S. 654-663
- BAGDA, E., SPINDLER, G.: Warum Fassaden vergrauen. *Farbe und Lack* 108(2002),S. 94-100
- BARMPADIMOS, I., HUEGLIN, C., KELLER, J., HENNE, S., PREVOT, A.S.H.: Influence of meteorology on PM10 trends and variability in Switzerland from 1991 to 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11(2011),S. 1813-1835
- BAUER, H., CLAEYS, M., VERMEYLEN, R., SCHUELLER, E., WEINKE, G., BERGER, A., PUXBAUM, H.: Arabitol and mannitol as tracers for the quantification of airborne fungal spores. *Atmospheric Environment* 42(2008a),S. 588-593
- BAUER, H., SCHUELLER, E., WEINKE, G., BERGER, A., HITZENBERGER, R., MARR, I.L., PUXBAUM, H.: Significant contributions of fungal spores to the organic carbon and to the aerosol mass balance of the urban atmospheric aerosol. *Atmospheric Environment* 42(2008b),S. 5542-5549
- BEDDOWS, D.C.S., DONOVAN, R.J., HARRISON, R.M., HEAL, M.R., KINNERSLEY, R.P., KING, M.D., NICHOLSON, D.H., THOMPSON, K.C.: Correlations in the chemical composition of rural background atmospheric aerosol in the UK determined in real time using time-of-flight mass spectrometry. *Journal of Environmental Monitoring* 6(2004),S. 124-133
- BELIS, C.A., LARSEN, B.R., AMATO, F., EL HADDAD, I., FAVEZ, O., HARRISON, R.M., HOPKE, P.K., NAVA, S., PAATERO, P., PREVOT, A., QUASS, U., VECCHI, R., VIANA, M.: European Guide on Air Pollution Source Apportionment with Receptor Models. *EU JRC Reference Reports*(2014)
- BIRMILI, W., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., HERRMANN, H., IINUMA, Y., MÜLLER, K., POULAIN, L., WEINHOLD, K., WIEDENSOHLER, A.: Einfluss kleiner Holzfeuerungen auf die Immissionssituation - Teil Immissionsmessung. Abschlussbericht des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie (2008), zu beziehen unter <http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/download/luft/Holzfeuerung.pdf>
- BISSOLLI, P., DITTMANN, E.: The objective weather type classification of the German Weather Service and its possibilities of application to environmental and meteorological investigations. *Meteorologische Zeitschrift* 10(2001),S. 253-260
- BÖHLMANN, N., MEISSNER, R., BERNSDORF, S., BÖHME, F.: Studies of atmospheric nitrogen deposition in a mire of the German National Park Hochharz mountains using two different methods. *Water Air and Soil Pollut* 168(2005),S. 17-32
- BRÜGGEMANN, E., FRANCK, U., GNAUK, T., HERRMANN, H., MÜLLER, K., NEUSÜß, C., PLEWKA, A., SPINDLER, G., STÄRK, H.J., WENNRICH, R.: Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile verschiedener

- Quellgruppen an der Feinstaubbelastung. Abschlussbericht des Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (2000),S. 201 Seiten, zu beziehen unter http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/download/luft/2000_Feinstaub.pdf
- BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., MERTES, S., ACKER, K., AUER, R., WIEPRECHT, W., MÖLLER, D., COLLETT, J.L., CHANG, H., GALGON, D., CHEMNITZER, R., RÜD, C., JUNEK, R., WIEDENSOHLER, W., HERRMANN, H.: Schmücke hill cap cloud and valley stations aerosol characterisation during FEBUKO (I): Particle size distribution, mass, and main components. *Atmospheric Environment* 39(2005),S. 4291-4303
- CAPE, J.N., TANG, Y.S., VAN DIJK, N., LOVE, L., SUTTON, M.A., PALMER, S.C.F.: Concentrations of ammonia and nitrogen dioxide at roadside verges, and their contribution to nitrogen deposition. *Environmental Pollution* 132(2004),S. 469-478
- CASEIRO, A., MARR, I.L., CLAEYS, M., KASPER-GIEBL, A., PUXBAUM, H., PIO, C.A.: Determination of saccharides in atmospheric aerosol using anion-exchange high-performance liquid chromatography and pulsed-amperometric detection. *Journal of Chromatography A* 1171(2007),S. 37-45
- CAVALLI, F., VIANA, M., YTTRI, K.E., GENBERG, J., PUTAUD, J.P.: Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmospheric Measurement Techniques* 3(2010),S. 79-89
- CHAN, D., STACHOWIAK, G.W.: Review of automotive brake friction materials. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers Part D-Journal of Automobile Engineering* 218(2004),S. 953-966
- CHANG, M.C., SIOUTAS, C., KIM, S., GONG, H., LINN, W.S.: Reduction of nitrate losses from filter and impactor samplers by means of concentration enrichment. *Atmospheric Environment* 34(2000),S. 85-98
- CHEN, S.C., TSAI, C.J., HUANG, C.Y., CHEN, H.D., CHEN, S.J., LIN, C.C., TSAI, J.H., CHOU, C.C.K., LUNG, S.C.C., HUANG, W.R., ROAM, G.D., WU, W.Y., SMOLIK, J., DZUMBOVA, L.: Chemical Mass Closure and Chemical Characteristics of Ambient Ultrafine Particles and other PM Fractions. *Aerosol Science and Technology* 44(2010),S. 713-723
- CHOW, J.C., WATSON, J.G.: Review of PM_{2.5} and PM₁₀ apportionment for fossil fuel combustion and other sources by the chemical mass balance receptor model. *Energy & Fuels* 16(2002),S. 222-260
- DÄMMGEN, U., MATSCHULLAT, J., ZIMMERMANN, F., STROGIES, M., GRÜNHAGEN, L., SCHELER, B., CONRAD, J.: Emission reduction effects on bulk and wet-only deposition in Germany - evidence from long-term observations (Part 1: General introduction). *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft* 72(2012),S. 49-54
- DRAXLER, R.R., ROLPH, G.D. 2003. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL Ready. In *Model access via NOAA ARL Ready* NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring MD.
- ENGELHART, G.J., HILDEBRANDT, L., KOSTENIDOU, E., MIHALOPOULOS, N., DONAHUE, N.M., PANDIS, S.N.: Water content of aged aerosol. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11(2011),S. 911-920
- EU-KOMMISSION: Council Directive 1999/30/EC of 22 April 1992 relation to limit values for sulphur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air. *Official Journal of the European Communities* L 163(1999),S. 41-60
- EU-KOMMISSION: Council Directive 2008/50/EC of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe. . *Official Journal of the European Communities* L 152(2008),S. 1-44
- FABRETTI, J.F., SAURET, N., GAL, J.F., MARIA, P.C., SCHARER, U.: Elemental characterization and source identification of PM_{2.5} using Positive Matrix Factorization: The Malraux road tunnel, Nice, France. *Atmospheric Research* 94(2009),S. 320-329
- FISSEHA, R., DOMMEN, J., GUTZWILLER, L., WEINGARTNER, E., GYSEL, M., EMMENEGGER, C., KALBERER, M., BALTENSPERGER, U.: Seasonal and diurnal characteristics of water soluble inorganic compounds in the gas and aerosol phase in the Zurich area. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6(2006),S. 1895-1904

- FRANCK, U., ODEH, S., WIEDENSOHLER, A., WEHNER, B., HERBARTH, O.: The effect of particle size on cardiovascular disorders - The smaller the worse. . *Science of the Total Environment* 409(2011),S. 4217-4221
- FUZZI, S., ANDREAE, M.O., HUEBERT, B.J., KULMALA, M., BOND, T.C., BOY, M., DOHERTY, S.J., GUENTHER, A., KANAKIDOU, M., KAWAMURA, K., KERMINEN, V.M., LOHMANN, U., RUSSELL, L.M., POSCHL, U.: Critical assessment of the current state of scientific knowledge, terminology, and research needs concerning the role of organic aerosols in the atmosphere, climate, and global change. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6(2006),S. 2017-2038
- GIETL, J.K., LAWRENCE, R., THORPE, A.J., HARRISON, R.M.: Identification of brake wear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road. *Atmospheric Environment* 44(2010),S. 141-146
- GIETL, J.K., TRITSCHER, T., KLEMM, O.: Size-segregated analysis of PM10 at two sites, urban and rural, in Munster (Germany) using five-stage Berner type impactors. *Atmospheric Environment* 42(2008),S. 5721-5727
- GNAUK, T., BRUGGEMANN, E., MULLER, K., CHEMNITZER, R., RUD, C., GALGON, D., WIEDENSOHLER, A., ACKER, K., AUDEL, R., WIEPRECHT, W., MOLLER, D., JAESCHKE, W., HERRMANN, H.: Aerosol characterisation at the FEBUKO upwind station Goldlauter (I): Particle mass, main ionic components, OCEC, and mass closure. *Atmospheric Environment* 39(2005),S. 4209-4218
- GNAUK, T., MULLER, K., BRUGGEMANN, E., BIRMI, W., WEINHOLD, K., VAN PINXTEREN, D., LOSCHAU, G., SPINDLER, G., HERRMANN, H.: A study to discriminate local, urban and regional source contributions to the particulate matter concentrations in the city of Dresden, Germany. *Journal of Atmospheric Chemistry* 68(2011),S. 199-231
- GONCALVES, C., ALVES, C., EVTYUGINA, M., MIRANTE, F., PIO, C., CASEIRO, A., SCHMIDL, C., BAUER, H., CARVALHO, F.: Characterisation of PM10 emissions from woodstove combustion of common woods grown in Portugal. *Atmospheric Environment* 44(2010),S. 4474-4480
- H. BAUER, I.M., A. Kasper-Giebl, A. Limbeck, A. Caseiro,, M. HANDLER, N.J., B. Klatzer, P. Kotianova,, P. POURESMAEIL, C.S., H. Puxbaum: Bestimmung von Immissionsbeiträgen in Feinstaubproben in Knittelfeld. Abschlussbericht des (2009)
- HALLQUIST, M., WENGER, J.C., BALTENSPERGER, U., RUDICH, Y., SIMPSON, D., CLAEYS, M., DOMMEN, J., DONAHUE, N.M., GEORGE, C., GOLDSTEIN, A.H., HAMILTON, J.F., HERRMANN, H., HOFFMANN, T., IINUMA, Y., JANG, M., JENKIN, M.E., JIMENEZ, J.L., KIENDLER-SCHARR, A., MAENHAUT, W., MCFIGGANS, G., MENTEL, T.F., MONOD, A., PREVOT, A.S.H., SEINFELD, J.H., SURRATT, J.D., SZMIGIELSKI, R., WILDT, J.: The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues. *Atmospheric Chemistry and Physics* 9(2009),S. 5155-5236
- HARRISON, R.M., SMITH, D.J.T., LUHANA, L.: Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK. *Environmental Science & Technology* 30(1996),S. 825-832
- HARRISON, R.M., STEDMAN, J., DERWENT, D.: New directions: Why are PM10 concentrations in Europe not falling? *Atmospheric Environment* 42(2008),S. 603-606
- HAYWOOD, J., BOUCHER, O.: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Reviews of Geophysics* 38(2000),S. 513-543
- HERRMANN, H., BRÜGGEMANN, E., FRANCK, U., GNAUK, T., LÖSCHAU, G., MÜLLER, K., PLEWKA, A., SPINDLER, G.: A source study of PM in saxony by size-segregated characterisation. *Journal of Atmospheric Chemistry* 55(2006),S. 103-130
- HILDEMAN, L.M., RUSSELL, A.G., CASS, G.R.: Ammonia and Nitric-Acid Concentrations in Equilibrium with Atmospheric Aerosols - Experiment Vs Theory. *Atmospheric Environment* 18(1984),S. 1737-1750

- HITZENBERGER, R., PETZOLD, A., BAUER, H., CTYROKY, P., POURESMAEL, P., LASKUS, L., PUXBAUM, H.: Intercomparison of thermal and optical measurement methods for elemental carbon and black carbon at an urban location. *Environmental Science & Technology* 40(2006),S. 6377-6383
- HOEK, G., BRUNEKREEF, B., GOLDBOHN, S., FISCHER, P., VAN DEN BRANDT, P.A.: Association between mortality and indicators of traffic-related air pollution in the Netherlands: a cohort study. *The Lancet* 360(2002),S. 1203-1209
- HUANG, X.D., OLMEZ, I., ARAS, N.K., GORDON, G.E.: Emissions of Trace-Elements from Motor-Vehicles - Potential Marker Elements and Source Composition Profile. *Atmospheric Environment* 28(1994),S. 1385-1391
- IINUMA, Y., BOGE, O., GRAFE, R., HERRMANN, H.: Methyl-Nitrocatechols: Atmospheric Tracer Compounds for Biomass Burning Secondary Organic Aerosols. *Environmental Science & Technology* 44(2010),S. 8453-8459
- IINUMA, Y., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., MÜLLER, K., ANDREA, M.O., HELAS, G., PARMAR, R., HERRMANN, H.: Source characterization of biomass burning particles: The combustion of selected European conifers, African hardwood, savanna grass, and German and Indonesian peat. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 112(2007),S. -
- IINUMA, Y., ENGLING, G., PUXBAUM, H., HERRMANN, H.: A highly resolved anion-exchange chromatographic method for determination of saccharidic tracers for biomass combustion and primary bio-particles in atmospheric aerosol. *Atmospheric Environment* 43(2009),S. 1367-1371
- JACOB, D.J., WINNER, D.A.: Effect of climate change on air quality. *Atmospheric Environment* 43(2009),S. 51-63
- JAENICKE, R.: Über die Dynamik atmosphärischer Aitkenteilchen. *Berichte der Bunsen-Gesellschaft für Physikalische Chemie* 82(1978),S. 1198-1202
- JICKELLS, T.D., AN, Z.S., ANDERSEN, K.K., BAKER, A.R., BERGAMETTI, G., BROOKS, N., CAO, J.J., BOYD, P.W., DUCE, R.A., HUNTER, K.A., KAWAHATA, H., KUBILAY, N., LAROCHE, J., LISS, P.S., MAHOWALD, N., PROSPERO, J.M., RIDGWELL, A.J., TEGEN, I., TORRES, R.: Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate. *Science* 308(2005),S. 67-71
- JUDA-REZLER, K., REIZER, M., HUSZAR, P., KRUGER, B.C., ZANIS, P., SYRAKOV, D., KATRAGKOU, E., TRAPP, W., MELAS, D., CHERVENKOV, H., TEGOULIAS, I., HALENKA, T.: Modelling the effects of climate change on air quality over Central and Eastern Europe: concept, evaluation and projections. *Climate Research* 53(2012),S. 179-203
- JUNG, K.H., YAN, B.Z., CHILLRUD, S.N., PERERA, F.P., WHYATT, R., CAMANN, D., KINNEY, P.L., MILLER, R.L.: Assessment of Benzo(a)pyrene-equivalent Carcinogenicity and Mutagenicity of Residential Indoor versus Outdoor Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Exposing Young Children in New York City. *International Journal of Environmental Research and Public Health* 7(2010),S. 1889-1900
- KAPPOS, A.D., BRUCKMANN, P., EIKMANN, T., ENGLER, N., HEINRICH, U., HÖPPE, P., KOCH, E., KRAUSE, G.H.M., KREYLING, W.G., RAUCHFUSS, K., ROMBOUT, P., SCHULZ-KLEMP, V., THIEL, W.R., WICHMANN, H.-E.: Health effects of particles in ambient air. *International Journal of Hygiene and Environmental Health* 207(2004),S. 399-407
- KHODER, M.I., HASSAN, S.K.: Weekday/weekend differences in ambient aerosol level and chemical characteristics of water-soluble components in the city center. *Atmospheric Environment* 42(2008),S. 7483-7493
- KITTELSON, D.B.: Engines and nanoparticles: A review. *Journal of Aerosol Science* 29(1998),S. 575-588
- KUMAR, P., PIRJOLA, L., KETZEL, M., HARRISON, R.M.: Nanoparticle emissions from 11 non-vehicle exhaust sources – A review. *Atmospheric Environment* 67(2013),S. 252-277

- LAMMEL, G., BRUGGERMANN, E., GNAUK, T., MULLER, K., NEUSS, C., ROHRL, A.: A new method to study aerosol source contributions along the tracks of air parcels and its application to the near-ground level aerosol chemical composition in central Europe. *Journal of Aerosol Science* 34(2003),S. 1-25
- LAMMEL, G., LEIP, A.: Formation of nitrate and sulfate in the plume of Berlin. *Environmental Science and Pollution Research* 12(2005),S. 213-220
- LENSCHOW, P., ABRAHAM, H.J., KUTZNER, K., LUTZ, M., PREUSS, J.D., REICHENBACHER, W.: Some ideas about the sources of PM10. *Atmospheric Environment* 35(2001),S. S23-S33
- LODGE, J.P., CHAN, T.L. 1986. *Cascade Impactor Sampling & Data Analysis*. Amer Industrial Hygiene Assn (November 1986).
- LOHMANN, U., FEICHTER, J.: Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5(2005),S. 715-737
- LÖSCHAU, G., WIEDENSOHLER, A., BIRMILI, W., RASCH, F., SPINDLER, G., MÜLLER, K., WOLF, U., HAUSMANN, A., HERRMANN, H.: Umweltzone Leipzig, Teil 1 Ausgangsbeurteilung. Bericht des Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (2012), zu beziehen unter <https://publikationen.sachsen.de/bdb/artikel/14411/documents/17122>
- MA, N., BIRMILI, W.: Estimating the contribution of photochemical particle formation to ultrafine particle number averages in an urban atmosphere. *Science of The Total Environment* 512-513(2015),S. 154-166
- MAENHAUT, W., RAES, N., CHI, X.G., CAFMEYER, J., WANG, W., SALMA, I.: Chemical composition and mass closure for fine and coarse aerosols at a kerbside in Budapest, Hungary, in spring 2002. *X-Ray Spectrometry* 34(2005),S. 290-296
- MARPLE, V.A.: History of Impactors - The first 110 years. *Aerosol Science and Technology* 38(2004),S. 247-292
- MARZI, R., TORKELSON, B.E., OLSON, R.K.: A Revised Carbon Preference Index. *Organic Geochemistry* 20(1993),S. 1303-1306
- MAY, K.R.: The Cascade Impactor - an Instrument for Sampling Coarse Aerosols. *Journal of Scientific Instruments* 22(1945),S. 187-195
- MCINNES, L.M., QUINN, P.K., COVERT, D.S., ANDERSON, T.L.: Gravimetric analysis, ionic composition, and associated water mass of the marine aerosol. *Atmospheric Environment* 30(1996),S. 869-884
- MIKKONEN, S., KORHONEN, H., ROMAKKANIEMI, S., SMITH, J.N., JOUTSENSAARI, J., LEHTINEN, K.E.J., HAMED, A., BREIDER, T.J., BIRMILI, W., SPINDLER, G., PLASS-DUELMER, C., FACCHINI, M.C., LAAKSONEN, A.: Meteorological and trace gas factors affecting the number concentration of atmospheric Aitken ($D_p=50$ nm) particles in the continental boundary layer: parameterization using a multivariate mixed effects model. *Geoscientific Model Development* 4(2011),S. 1-13
- MOHR, C., DECARLO, P.F., HERINGA, M.F., CHIRICO, R., SLOWIK, J.G., RICHTER, R., RECHE, C., ALASTUEY, A., QUEROL, X., SECO, R., PENUELAS, J., JIMENEZ, J.L., CRIPPA, M., ZIMMERMANN, R., BALTENSPERGER, U., PREVOT, A.S.H.: Identification and quantification of organic aerosol from cooking and other sources in Barcelona using aerosol mass spectrometer data. *Atmospheric Chemistry and Physics* 12(2012),S. 1649-1665
- MUES, A., MANDERS, A., SCHAAP, M., KERSCHBAUMER, A., STERN, R., BUILTJES, P.: Impact of the extreme meteorological conditions during the summer 2003 in Europe on particulate matter concentrations. *Atmospheric Environment* 55(2012),S. 377-391
- MÜLLER, K., BIRMILI, W., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., IINUMA, Y., POULAIN, L., WEINHOLD, K., LÖSCHAU, G., HERRMANN, H.: Partikuläre Holzheizungsemissionen in einem sächsischen Kurort. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft* 70(2010a),S. 493-499
- MÜLLER, K., BIRMILI, W., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., IINUMA, Y., POULAIN, L., WEINHOLD, K., LÖSCHAU, G., HERRMANN, H.: Partikuläre Holzheizungsemissionen in einem sächsischen Kurort. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft* 70(2010b),S. 493-499

- MÜLLER, K., SPINDLER, G., VAN PINXTEREN, D., GNAUK, T., IINUMA, Y., BRÜGGEMANN, E., HERRMANN, H.: Ultrafine and Fine Particles in the Atmosphere - Sampling, Chemical Characterization and Sources. *Chemie Ingenieur Technik* 84(2012),S. 1130-1136
- NEUSÜB, C., GNAUK, T., PLEWKA, A., HERRMANN, H., QUINN, P.K.: Carbonaceous aerosol over the Indian Ocean: OC/EC fractions and selected specifications from size-segregated onboard samples. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 107(2002),S. art. no.-8031
- NEUSÜB, C., PELZING, M., PLEWKA, A., HERRMANN, H.: A new analytical approach for size-resolved speciation of organic compounds in atmospheric aerosol particles: Methods and first results. *Journal of Geophysical Research* 105(2000),S. 4513-4527
- NORRIS, G., DUVAL, R., BROWN, S.: EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 - Fundamentals and User Guide. U.S. Environmental Protection Agency(2014)
- PAATERO, P., EBERLY, S., BROWN, S.G., NORRIS, G.A.: Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions. *Atmospheric Measurement Techniques* 7(2014),S. 781-797
- PAATERO, P., TAPPER, U.: Positive Matrix Factorization - a Nonnegative Factor Model with Optimal Utilization of Error-Estimates of Data Values. *Environmetrics* 5(1994),S. 111-126
- PACYNA, E.G., PACYNA, J.M., PIRONE, N.: European emissions of atmospheric mercury from anthropogenic sources in 1995. *Atmospheric Environment* 35(2001),S. 2987-2996
- PACYNA, J.M., PACYNA, E.G.: An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide. *Environmental Reviews* 9(2001),S. 269-298
- PANT, P., HARRISON, R.M.: Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: A review. *Atmospheric Environment* 77(2013),S. 78-97
- PASTUSZKA, J.S., WAWROS, A., TALIK, E., PAW, K.T.U.: Optical and chemical characteristics of the atmospheric aerosol in four towns in southern Poland. *Science of the Total Environment* 309(2003),S. 237-251
- PEREZ, N., PEY, J., CUSACK, M., RECHE, C., QUEROL, X., ALASTUEY, A., VIANA, M.: Variability of Particle Number, Black Carbon, and PM₁₀, PM_{2.5}, and PM₁ Levels and Speciation: Influence of Road Traffic Emissions on Urban Air Quality. *Aerosol Science and Technology* 44(2010),S. 487-499
- PETERS, A.: Air quality and cardiovascular health. Smoke and pollution matter. *Circulation* 120(2009),S. 924-927
- PEY, J., QUEROL, X., ALASTUEY, A.: Discriminating the regional and urban contributions in the North-Western Mediterranean: PM levels and composition. *Atmospheric Environment* 44(2010),S. 1587-1596
- PIETROGRANDE, M.C., ABBASZADE, G., SCHNELLE-KREIS, J., BACCO, D., MERCURIALI, M., ZIMMERMANN, R.: Seasonal variation and source estimation of organic compounds in urban aerosol of Augsburg, Germany. *Environmental Pollution* 159(2011),S. 1861-1868
- PLESSOW, K., SPINDLER, G., ZIMMERMANN, F., MATSCHULLAT, K.: Seasonal variations and interactions of N-containing gases and particles over a coniferous forest, Saxony, Germany. *Atmospheric Environment* 39(2005),S. 6995-7007
- PLEWKA, A., GNAUK, T., BRÜGGEMANN, E., NEUSUSS, C., HERRMANN, H.: Size-resolved aerosol characterization for a polluted episode at the IfT research station Melpitz in autumn 1997. *Journal of Atmospheric Chemistry* 48(2004a),S. 131-156
- PLEWKA, A., GNAUK, T., BRÜGGEMANN, E., NEUSÜB, C., HERRMANN, H.: Size-resolved aerosol characterization for a polluted episode at the IfT research station Melpitz in autumn 1997. *Journal of Atmospheric Chemistry* 48(2004b),S. 131-156
- POPE, C.A., BURNETT, R.T., KREWSKI, D., JERRETT, M., SHI, Y.L., CALLE, E.E., THUN, M.J.: Cardiovascular Mortality and Exposure to Airborne Fine Particulate Matter and Cigarette Smoke Shape of the Exposure-Response Relationship. *Circulation* 120(2009),S. 941-948

- POPE, C.A., BURNETT, R.T., THURSTON, G.D., THUN, M.J., CALLE, E.E., KREWSKI, D., GODLESKI, J.J.: Cardiovascular mortality and long-term exposure to particulate air pollution - Epidemiological evidence of general pathophysiological pathways of disease. *Circulation* 109(2004),S. 71-77
- POULAIN, L., SPINDLER, G., BIRMILI, W., PLASS-DULMER, C., WIEDENSOHLER, A., HERRMANN, H.: Seasonal and diurnal variations of particulate nitrate and organic matter at the IfT research station Melpitz. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11(2011),S. 12579-12599
- RAMDAHL, T.: Retene - a Molecular Marker of Wood Combustion in Ambient Air. *Nature* 306(1983),S. 580-583
- ROGULA-KOZLOWSKA, W., BLASZCZAK, B., ROGULA-KOPIEC, P., KLEJNOWSKI, K., MATHEWS, B., SZOPA, S.: Physicochemical Characteristics of Fine Ambient Aerosol from Quasi-Rural Area in Southern Poland. *International Journal of Environmental Research* 8(2014),S. 751-764
- ROGULA-KOZLOWSKA, W., KOZIELSKA, B., KLEJNOWSKI, K.: Concentration, Origin and Health Hazard from Fine Particle-Bound PAH at Three Characteristic Sites in Southern Poland. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology* 91(2013),S. 349-355
- ROSE, D., WEHNER, B., KETZEL, M., ENGLER, C., VOIGTLÄNDER, J., TUCH, T., WIEDENSOHLER, A.: Atmospheric number size distributions of soot particles and estimation of emission factors. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6(2006),S. 1021-1031
- RÜCKERL, R., SCHNEIDER, A., BREITNER, S., CYRYS, J., PETERS, A.: Health effects of particulate air pollutin: a review of epidemiological evidence. *Inhalation Toxicology* 23(2011),S. 555-592
- RUEHL, C.R., HAM, W.A., KLEEMAN, M.J.: Temperature-induced volatility of molecular markers in ambient airborne particulate matter. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11(2011),S. 67-76
- SCHAAP, M., SPINDLER, G., SCHULZ, M., ACKER, K., MAENHAUT, W., BERNER, A., WIEPRECHT, W., STREIT, N., MULLER, K., BRUGGEMANN, E., CHI, X., PUTAUD, J.P., HITZENBERGER, R., PUXBAUM, H., BALTENSPERGER, U., TEN BRINK, H.: Artefacts in the sampling of nitrate studied in the "INTERCOMP" campaigns of EUROTRAC-AEROSOL. *Atmospheric Environment* 38(2004),S. 6487-6496
- SCHAUER, J.J., CASS, G.R.: Source apportionment of wintertime gas-phase and particle-phase air pollutants using organic compounds as tracers. *Environmental Science & Technology* 34(2000),S. 1821-1832
- SCHAUER, J.J., KLEEMAN, M.J., CASS, G.R., SIMONEIT, B.R.T.: Measurement of emissions from air pollution sources. 2. C-1 through C-30 organic compounds from medium duty diesel trucks. *Environmental Science & Technology* 33(1999),S. 1578-1587
- SCHEINHARDT, S., SPINDLER, G., LEISE, S., MULLER, K., IINUMA, Y., ZIMMERMANN, F., MATSCHULLAT, J., HERRMANN, H.: Comprehensive chemical characterisation of size-segregated PM₁₀ in Dresden and estimation of changes due to global warming. *Atmospheric Environment* 75(2013),S. 365-373
- SCHEINHARDT, S., SPINDLER, G., MÜLLER, K., IINUMA, Y., GRÜNER, A., HERRMANN, H., RENNER, E.: Abschätzung der größen aufgelösten Partikel-konzentration und -zusammensetzung anhand wetter-lagenorientierter experimenteller Messungen. Abschlussbericht des TROPOS (2012)
- SCHMID, H., LASKUS, L., ABRAHAM, H.J., BALTENSPERGER, U., LAVANCHY, V., BIZJAK, M., BURBA, P., CACHIER, H., CROW, D., CHOW, J., GNAUK, T., EVEN, A., TEN BRINK, H.M., GIESEN, K.P., HITZENBERGER, R., HUEGLIN, C., MAENHAUT, W., PIO, C., CARVALHO, A., PUTAUD, J.P., TOOM-SAUNTRY, D., PUXBAUM, H.: Results of the "carbon conference" international aerosol carbon round robin test stage I. *Atmospheric Environment* 35(2001),S. 2111-2121
- SCHMIDL, C., MARR, L.L., CASEIRO, A., KOTIANOVA, P., BERNER, A., BAUER, H., KASPER-GIEBL, A., PUXBAUM, H.: Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmospheric Environment* 42(2008),S. 126-141
- SCHNELLE-KREIS, J., SKLORZ, M., ORASCHE, J., STOLZEL, M., PETERS, A., ZIMMERMANN, R.: Semi volatile organic compounds in ambient PM_(2.5). Seasonal trends and daily resolved source contributions. *Environmental Science & Technology* 41(2007),S. 3821-3828

- SEIBERT, P., KROMP-KOLB, H., BALTENSPERGER, U., JOST, D.T., SCHWIKOWSKI, M., KASPER, A., PUXBAUM, H. 1994. Trajectory analysis of aerosol measurements at high alpine sites. In *Transport and transformation of pollutants in the troposphere*, P.M. BORRELL, P. BORRELL, T. CVITAS AND W. SEILER Eds. Academic Publishing, The Hague, 689-693.
- SEINFELD, J.H., PANDIS, S.N. 2006. *Atmospheric chemistry and physics : From air pollution to climate change - 2nd edition*. Wiley, New York.
- SHARMA, M., KISHORE, S., TRIPATHI, S.N., BEHERA, S.N.: Role of atmospheric ammonia in the formation of inorganic secondary particulate matter: A study at Kanpur, India. *Journal of Atmospheric Chemistry* 58(2007),S. 1-17
- SIMONEIT, B.R.T.: Biomass burning - A review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. *Applied Geochemistry* 17(2002a),S. 129-162
- SIMONEIT, B.R.T.: Biomass burning — a review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. *Applied Geochemistry* 17(2002b),S. 129-162
- SONG, F., GAO, Y.: Size distributions of trace elements associated with ambient particular matter in the vicinity of a major highway in the New Jersey-New York metropolitan area. *Atmospheric Environment* 45(2011),S. 6714-6723
- SÖRME, L., BERGBÄCK, B., LOHM, U.: Goods in the Anthroposphere as a Metal Emission Source A Case Study of Stockholm, Sweden. *Water, Air and Soil Pollution: Focus* 1(2001),S. 213-227
- SPINDLER, G., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., GRÜNER, A., MÜLLER, K., HERRMANN, H.: A four-year size-segregated characterization study of particles PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ depending on air mass origin at Melpitz. *Atmospheric Environment* 44(2010),S. 164-173
- SPINDLER, G., GNAUK, T., GRUNER, A., IINUMA, Y., MULLER, K., SCHEINHARDT, S., HERRMANN, H.: Size-segregated characterization of PM₁₀ at the EMEP site Melpitz (Germany) using a five-stage impactor: a six year study. *Journal of Atmospheric Chemistry* 69(2012),S. 127-157
- SPINDLER, G., GRUNER, A., MULLER, K., SCHLIMPER, S., HERRMANN, H.: Long-term size-segregated particle (PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁) characterization study at Melpitz - influence of air mass inflow, weather conditions and season. *Journal of Atmospheric Chemistry* 70(2013),S. 165-195
- SRAM, R.J., DOSTAL, M., LIBALOVA, H., ROSSNER, P., ROSSNEROVA, A., SVECOVA, V., TOPINKA, J., BARTONOVA, A.: The European Hot Spot of B[a]P and PM_{2.5} Exposure—The Ostrava Region, Czech Republic: Health Research Results. *ISRN Public Health* 2013(2013),S. 1-12
- TEN BRINK, H., MAENHAUT, W., HITZENBERGER, R., GNAUK, T., SPINDLER, G., EVEN, A., CHI, X.G., BAUER, H., PUXBAUM, H., PUTAUD, J.P., TURSIC, J., BERNER, A.: INTERCOMP2000: the comparability of methods in use in Europe for measuring the carbon content of aerosol. *Atmospheric Environment* 38(2004),S. 6507-6519
- THORPE, A., HARRISON, R.M.: Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic: A review. *Science of the Total Environment* 400(2008),S. 270-282
- TRAN, K., YU, C.C., ZENG, E.Y.: Organic pollutants in the coastal environment off San Diego, California .2. Petrogenic and biogenic sources of aliphatic hydrocarbons. *Environmental Toxicology and Chemistry* 16(1997),S. 189-195
- TURPIN, B.J., SAXENA, P., ANDREWS, E.: Measuring and simulating particulate organics in the atmosphere: problems and prospects. *Atmospheric Environment* 34(2000),S. 2983-3013
- Umweltbundesamt 2013. Das Luftmessnetz des Umweltbundesamtes, Langzeitmessungen, Prozessverständnis und Wirkung ferntransportierter Luftverunreinigungen. , UMWELTBUNDESAMT Ed. Umweltbundesamt, http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/378/publikationen/das_luftmessnetz_des_umweltbundesamtes_bf_0.pdf.

- VAN PINXTEREN, D., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., IINUMA, Y., MÜLLER, K., NOWAK, A., ACHTERT, P., WIEDENSOHLER, A., HERRMANN, H.: Size- and time-resolved chemical particle characterization during CAREBeijing-2006: Different pollution regimes and diurnal profiles. *Journal of Geophysical Research (D)* 114(2009),S. D00G09, doi:10.1029/2008JD010890
- VAN PINXTEREN, D., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., MÜLLER, K., THIEL, C., HERRMANN, H.: A GIS based approach to back trajectory analysis for the source apportionment of aerosol constituents and its first application. *Journal of Atmospheric Chemistry* 67(2010),S. 1-28
- VAN PINXTEREN, D., NEUSÜß, C., HERRMANN, H.: On the abundance and source contributions of dicarboxylic acids in size-resolved aerosol particles at continental sites in central Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics* 14(2014),S. 3913-3928
- VISSER, S., SLOWIK, J.G., FURGER, M., ZOTTER, P., BUKOWIECKI, N., DRESSLER, R., FLECHSIG, U., APPEL, K., GREEN, D.C., TREMPER, A.H., YOUNG, D.E., WILLIAMS, P.I., ALLAN, J.D., HERNDON, S.C., WILLIAMS, L.R., MOHR, C., XU, L., NG, N.L., DETOURNAY, A., BARLOW, J.F., HALIOS, C.H., FLEMING, Z.L., BALTENSBERGER, U., PREVOT, A.S.H.: Kerf and urban increment of highly time-resolved trace elements in PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} winter aerosol in London during ClearLo 2012. *Atmospheric Chemistry and Physics* 15(2015),S. 2367-2386
- WANG, W., TAO, S., WANG, W.T., SHEN, G.F., ZHAO, J.Y., LAM, K.C.: Airborne particulates and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in ambient air in Donghe, Northern China. *Journal of Environmental Science and Health Part a-Toxic/Hazardous Substances & Environmental Engineering* 44(2009),S. 854-860
- WARNECK, P. 2000. *Chemistry of the Natural Atmosphere, 2. Auflage*. Academic Press, San Diego USA.
- WEDEPOHL, K.H.: The Composition of the Continental-Crust. *Geochimica et cosmochimica acta* 59(1995),S. 1217-1232
- WEST, J.J., ANSARI, A.S., PANDIS, S.N.: Marginal PM_{2.5}: Nonlinear Aerosol Mass Response to Sulfate Reductions in the Eastern United States. *Journal of the Air & Waste Management Association* 49(1999),S. 1515-1424
- WIEPRECHT, W., ACKER, K., MULLER, K., SPINDLER, G., BRUGGEMANN, E., MAENHAUT, W., CHI, X.G., HITZENBERGER, R., BAUER, H., TEN BRINK, H.: INTERCOMP2000: ionic constitution and comparison of filter and impactor. *Atmospheric Environment* 38(2004),S. 6477-6486
- WISE, S.A., BENNER, B.A., BYRD, G.D., CHESLER, S.N., REBBERT, R.E., SCHANTZ, M.M.: Determination of Polycyclic Aromatic-Hydrocarbons in a Coal-Tar Standard Reference Material. *Analytical Chemistry* 60(1988),S. 887-894
- XIE, R.K., SEIP, H.M., WIBETOE, G., NORI, S., MCLEOD, C.W.: Heavy coal combustion as the dominant source of particulate pollution in Taiyuan, China, corroborated by high concentrations of arsenic and selenium in PM₁₀. *Science of the Total Environment* 370(2006),S. 409-415
- YTTRI, K.E., AAS, W., BJERKE, A., CAPE, J.N., CAVALLI, F., CEBURNIS, D., DYE, C., EMBLICO, L., FACCHINI, M.C., FORSTER, C., HANSEN, J.E., HANSSON, H.C., JENNINGS, S.G., MAENHAUT, W., PUTAUD, J.P., TORSETH, K.: Elemental and organic carbon in PM₁₀: a one year measurement campaign within the European Monitoring and Evaluation Programme EMEP. *Atmospheric Chemistry and Physics* 7(2007),S. 5711-5725
- YTTRI, K.E., AAS, W., TORSETH, K., STEBEL, K., FAHRE VIK, A., FJAERAA, A.M., HIRDMAN, D., TSYRO, S., SIMPSON, D., MARECKOVA, K., WANKMÜLLER, R., KLIMONT, Z., KUPIAINEN, K., AMANN, M., BERGSTRÖM, R., NEMITZ, E., QUEROL, X., ALASTUEY, A., PEY, J., GEHRING, R.: EMEP Transboundary particulate matter in Europe Status report 2010 NILU. Abschlussbericht des (2013)
- YUE, Z.W., FRASER, M.P.: Characterization of nonpolar organic fine particulate matter in Houston, Texas. *Aerosol Science and Technology* 38(2004),S. 60-67

- ZENDER, C.S., BIAN, H.S., NEWMAN, D.: Mineral Dust Entrainment and Deposition (DEAD) model: Description and 1990s dust climatology. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 108(2003)
- ZHENG, M., CASS, G.R., SCHAUER, J.J., EDGERTON, E.S.: Source apportionment of PM_{2.5} in the southeastern United States using solvent-extractable organic compounds as tracers. *Environmental Science & Technology* 36(2002),S. 2361-2371

Herausgeber:

Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG)
Pillnitzer Platz 3, 01326 Dresden
Telefon: +49 351 2612-0
Telefax: +49 351 2612-1099
E-Mail: lfulg@smul.sachsen.de
www.smul.sachsen.de/lfulg

Autoren:

Dr. Dominik van Pinxteren, Dr. Gerald Spindler, Dr. Konrad Müller,
Dr. Khanneh Wadinga Fomba, Dr. Yoshiteru Iinuma,
Fabian Rasch, Kay Weinhold, Dr. Wolfram Birmili, Prof. Alfred Wiedensohler,
Prof. Hartmut Herrmann
Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS)
Permoserstr. 15, 04318 Leipzig
Telefon: +49 341 2717-7029
Telefax: +49 341 2717-997029
E-Mail: dominik@tropos.de

Redaktion:

Dr. Gunter Löschau
LfULG, Abteilung Klima, Luft, Lärm, Strahlen/Referat Klima, Luftqualität
Söbrigener Str. 3a, 01326 Dresden
Telefon: +49 351 2612-5102
Telefax: +49 351 2612-5199
E-Mail: gunter.loeschau@smul.sachsen.de

Redaktionsschluss:

10.11.2015

ISSN:

1867-2868

Hinweis:

Die Broschüre steht nicht als Printmedium zur Verfügung, kann aber als PDF-Datei unter <https://publikationen.sachsen.de/bdb/> heruntergeladen werden.

Verteilerhinweis

Diese Informationsschrift wird von der Sächsischen Staatsregierung im Rahmen ihrer verfassungsmäßigen Verpflichtung zur Information der Öffentlichkeit herausgegeben.

Sie darf weder von Parteien noch von deren Kandidaten oder Helfern im Zeitraum von sechs Monaten vor einer Wahl zum Zwecke der Wahlwerbung verwendet werden. Dies gilt für alle Wahlen.

Missbräuchlich ist insbesondere die Verteilung auf Wahlveranstaltungen, an Informationsständen der Parteien sowie das Einlegen, Aufdrucken oder Aufkleben parteipolitischer Informationen oder Werbemittel. Untersagt ist auch die Weitergabe an Dritte zur Verwendung bei der Wahlwerbung. Auch ohne zeitlichen Bezug zu einer bevorstehenden Wahl darf die vorliegende Druckschrift nicht so verwendet werden, dass dies als Parteinahme des Herausgebers zugunsten einzelner politischer Gruppen verstanden werden könnte.

Diese Beschränkungen gelten unabhängig vom Vertriebsweg, also unabhängig davon, auf welchem Wege und in welcher Anzahl diese Informationsschrift dem Empfänger zugegangen ist. Erlaubt ist jedoch den Parteien, diese Informationsschrift zur Unterrichtung ihrer Mitglieder zu verwenden.