

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt –IX C 57 Berlin

Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Dresden-Pillnitz

Landesamt für Umwelt Brandenburg, Potsdam

Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern,
Güstrow

Vergabe Nr. IX C 57 - 16082016

**Auswertung der gravimetrischen PM10- Messungen
in Sachsen, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und
Berlin zur Identifikation des Anteils verschiedener Quellen
an der Feinstaubbelastung anhand der Inhaltsstoffe und
anhand von Rezeptormodellierungen
(PM-OST)**

Kurzbeschreibung der Projektergebnisse

30. November 2017

Projektlaufzeit: 14.10.2016 bis 30.11.2017

Dominik van Pinxteren, Falk Mothes, Gerald Spindler, Khandeh Wadinga Fomba und
Hartmut Herrmann

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS)

Abteilung Chemie der Atmosphäre (ACD)

Permoserstr. 15

04318 Leipzig

Einleitung und Übersicht

Im Projekt PM OST wurde eine detaillierte Ursachenanalyse von PM10- Feinstaub-Immissionen für ausgewählte Messstationen der Länder Brandenburg, Berlin, Sachsen, Mecklenburg Vorpommern und des Umweltbundesamtes (UBA) erstellt. Der Fokus lag hierbei auf Episoden mit östlicher Anströmung der Luftmassen, die im ostdeutschen Raum regelmäßig zu erhöhten PM10 Konzentrationen führen, was häufig auf grenzüberschreitenden Eintrag vorbelasteter Luftmassen aus östlichen Nachbarländern zurückgeführt wird. Diese Annahme wurde im Projekt durch eine detaillierte Betrachtung der Belastungssituationen überprüft, der Anteil des grenzüberschreitenden Ferntransportes quantitativ abgeschätzt, sowie basierend auf der chemischen Zusammensetzung und Rezeptormodellierung seine wahrscheinlichen Ursachen identifiziert.

Als Grundlage des Projekts diente ein Datensatz, der für 10 Messstationen im Untersuchungsgebiet (Abbildung 1) und für den Zeitraum September 2016 bis März 2017 Tageswerte der PM10- Massekonzentration sowie Tageskonzentrationen der Inhaltsstoffe anorganische Ionen und Kohlenstoffsummenparameter (OC / EC) enthielt. Darüber hinaus wurden an 80 im Projekt ausgewählten Sondermesstagen (SMT) Konzentrationen polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK), des Levoglucosans, sowie teilweise (in Berlin) verschiedener Metalle analysiert und zur Verfügung gestellt.



Abbildung 1: Übersicht der ausgewählten Messstationen, unterschieden nach ländlicher Hintergrund- (grün), städtischer Hintergrund- (blau) und Verkehrsstation (rot) in PM-OST (Quelle: OpenStreetmap®).

Bei der Auswahl der Sondermesstage wurden v.a. Tage und Episoden mit hohen PM10- Massekonzentrationen berücksichtigt, allerdings als Kontrast auch einige Tage mit mittleren und niedrigen Konzentrationen eingeschlossen. In Abbildung 2 ist eine Übersicht über die Konzentrationszeitreihen der 10 Stationen gezeigt, in der grau hinterlegt die Sondermesstage und mit roten Punkten Tage mit Grenzwertüberschreitungen ($> 50 \mu\text{g m}^{-3}$) markiert sind.

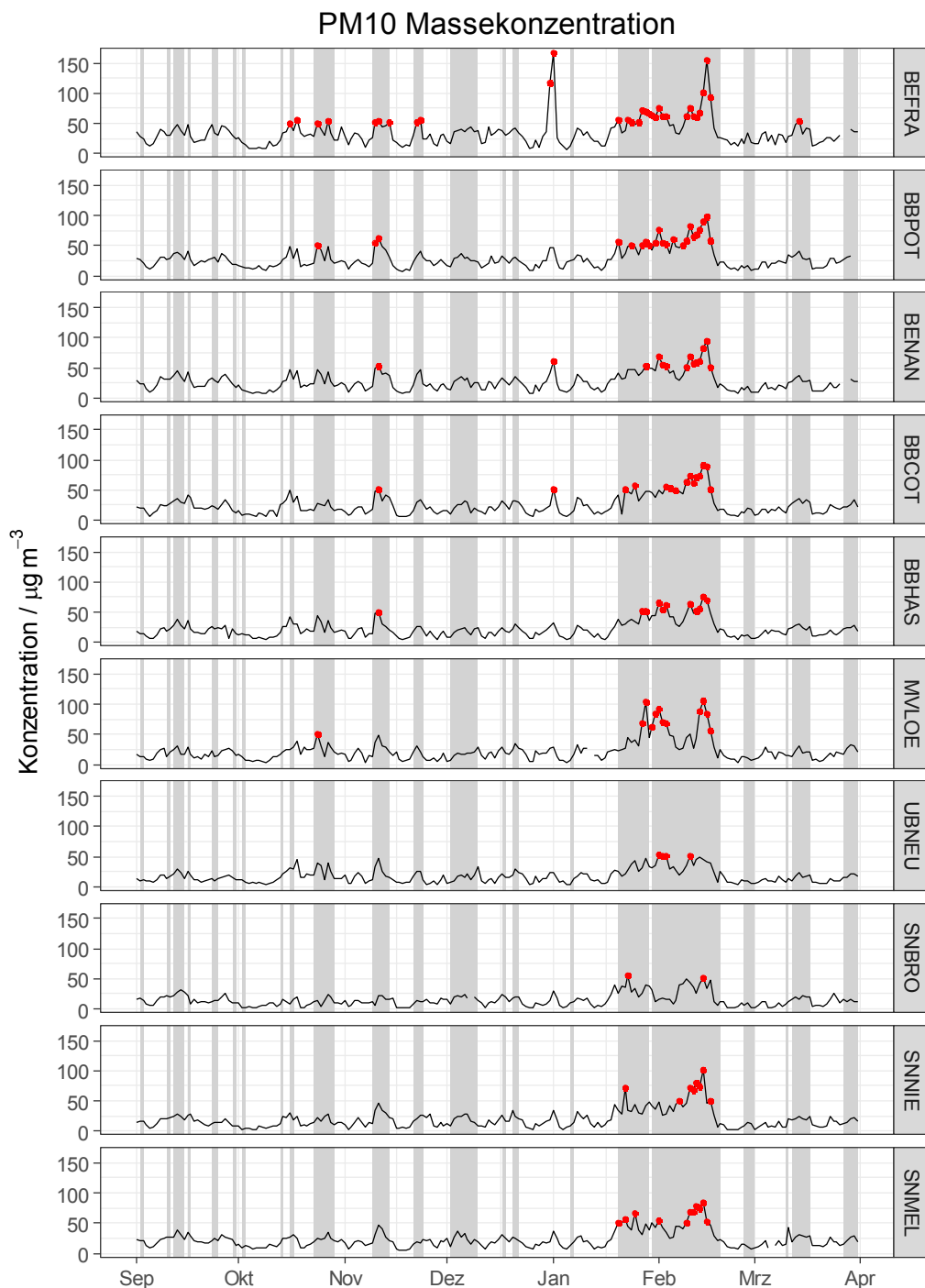


Abbildung 2: Tägliche PM10- Massekonzentrationen für alle Messstationen im Untersuchungszeitraum; rote Punkte markieren Grenzwert- Überschreitungstage; SMT grau hinterlegt.

Die Daten zeigen einen typischen abfallenden Konzentrationstrend von den Verkehrsstationen BEFRA und BBPOT über die städtischen Hintergrundstationen BENAN und BBCOT hin zu den Stationen im ländlichen Hintergrund. Auffallend ist eine lange Episode mit auch an den ländlichen Stationen stark erhöhten PM₁₀ Konzentrationen von Ende Januar bis Mitte Februar 2017, die durch eine hohe Zahl von Grenzwertüberschreitungstagen gekennzeichnet ist.

Tage oder Episoden mit erhöhten PM- Konzentrationen können durch besonders hohe Emissionen z.B. aus Verkehr oder Gebäudeheizung (Hausbrand) und/oder durch meteorologisch ungünstige Bedingungen z.B. bei der Anströmung belasteter Luftmassen und während austauscharmer Wetterlagen verursacht sein. Eine Unterscheidung dieser Effekte ist oft nicht einfach möglich, da sie sich überlagern und gegenseitig verstärken können. So konnte auch für den Untersuchungszeitraum gezeigt werden, dass die Anströmung von Luftmassen aus östlichen Nachbarländern einhergeht mit im Mittel niedrigeren Temperaturen und damit potentiell höheren Emissionen aus Hausbrand, niedrigeren Mischungsschichthöhen und damit verstärkter Anreicherung lokaler Emissionen, sowie weniger Niederschlag und damit reduzierten Austragungsprozessen durch nasse Deposition. Eine eindeutige Zuordnung der im Projekt während Ostanströmung beobachteten erhöhten Konzentrationen der PM₁₀- Masse und vieler Inhaltsstoffe zum grenzüberschreitenden Ferntransport ist somit nicht ohne weiteres möglich, da die typischen meteorologischen Bedingungen während der Ostlagen auch eine lokale und regionale Anreicherung von Emissionen verursachen können.

Ergebnisse nach dem Lenschow-Ansatz

Eine Abschätzung lokaler und regionaler Beiträge an in besonderem Maße belasteten städtischen „Hotspot“-Stationen ist jedoch über den sog. „Lenschow-Ansatz“ möglich, der mittlere Konzentrationen an 3 räumlich beieinander liegenden Stationen unterschiedlichen Typs (Verkehrsstation, städtische und ländliche Hintergrundstation) vergleicht und daraus mittlere Inkremente für Verkehr und städtischen Hintergrund ableitet, die sich zur regionalen Hintergrundkonzentration addieren. Dieser Ansatz wurde im Projekt für die Stationen BEFRA, BENAN und BBHAS verwendet, wobei neben allen Tagen des Untersuchungszeitraumes auch Kategorien nach speziellen Charakteristika gebildet wurden. Diese enthielten Grenzwertüberschreitungstage, „Werkstage“ (Mo-Fr) vs. „Wochenendtage“ (Sa, So, Feiertage), sowie als meteorologische Belastungskategorien Anströmung der Luftmassen aus „Ost“ oder „West“ (aus Rückwärtstrajektorien), Raumskala der Luftmassen eher „Regional“ oder „Fern“ (aus der Entfernung der Rückwärtstrajektorien vom Rezeptor), Temperatur „Warm“ oder „Kalt“ (Median aller Tagesmitteltemperaturen als Grenzwert), Grenzschichthöhe „Hoch“ oder „Niedrig“ (Median der von COSMO-CLM Modell der FU Berlin ausgegebenen Mischungsschichthöhe als

Grenzwert) und Witterung „Trocken“ oder „Nass“ (Median von DWD Niederschlagswerten der Stationen als Grenzwert). In Abbildung 3 sind die relativen Inkremente für Verkehr, städtischen und ländlichen Hintergrund für die Station BEFRA in den verschiedenen Kategorien gezeigt. Für alle Tage, sowie in den meisten Kategorien zeigt sich ein auch in früheren Untersuchungen gefundenes typisches Bild von ca. 20% Verkehrsanteil, 15% Anteil des städtischen Hintergrundes und 65% Anteil des regionalen Hintergrundes an der mittleren PM-Konzentration der Verkehrsstation. In den Kategorien Überschreitungstage, Anströmung Ost und Raumskala regional, die die höchsten mittleren Konzentration an BEFRA zeigten (41 – 65 $\mu\text{g m}^{-3}$), nimmt der Anteil des ländlichen Hintergrundes jedoch auf ca. 70% zu und ist in der jeweiligen gegenteiligen Kategorie entsprechend deutlich niedriger. Ein maßgeblicher Einfluss des grenzüberschreitenden Eintrages belasteter Luftmassen auf die erhöhten Konzentrationen und ländlichen Anteile lässt sich jedoch nicht direkt ableiten. Zum einen aufgrund der oben beschriebenen Wechselwirkungen der meteorologischen Belastungskategorien untereinander, zum anderen, da die Kategorie mit den höchsten Konzentrationen (Überschreitungstage) nur zu etwa einem Drittel Tage mit eindeutiger Ostanströmung enthielt.

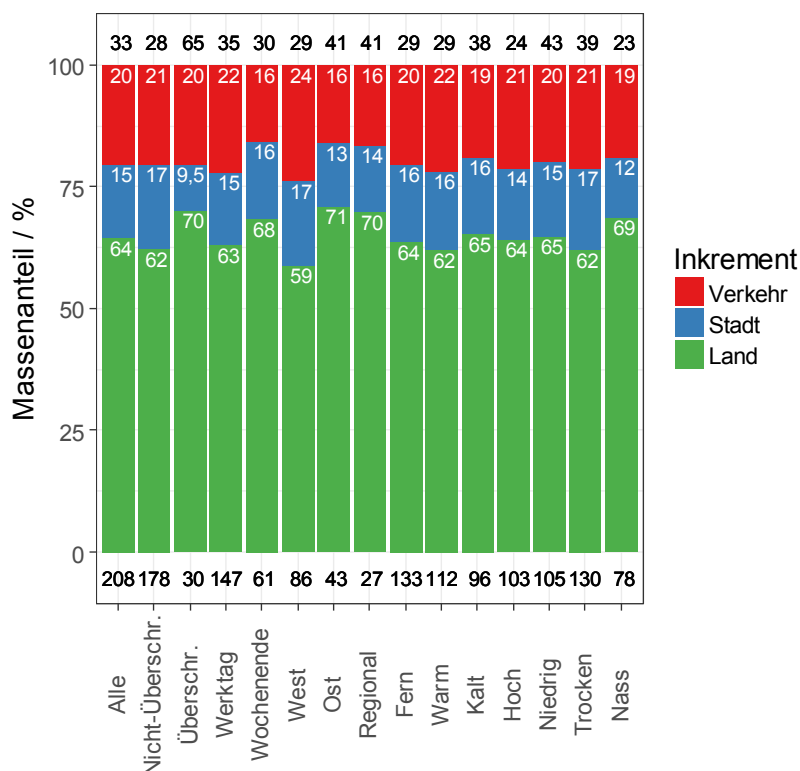


Abbildung 3: Relative Inkremente nach Lenschow-Ansatz für die Station BEFRA für die verschiedenen Tagescharakteristiken und Belastungskategorien. Schwarze Zahlen über den Balken geben die mittlere PM10- Massekonzentration in $\mu\text{g m}^{-3}$ an, schwarze Zahlen unter den Balken die Anzahl der Messwerte in der Kategorie.

Quantifizierung des grenzüberschreitenden PM- Eintrages

Um den Einfluss des grenzüberschreitenden Ferntransportes zu quantifizieren, wurde eine differenzierte Betrachtung von kombinierten Belastungskategorien durchgeführt. Dazu wurden die Kategorien Raumskala, Temperatur, Mischungsschichthöhe und Witterung in ihrer für den jeweiligen Messtag geltenden Ausprägung zu einer kombinierten Kategorie zusammengefasst, um dann die beobachteten PM10- Massekonzentrationen bei Westanströmung und Ostanströmung in diesen kombinierten Kategorien zu mitteln und miteinander zu vergleichen. Hierdurch konnten die Unterschiede in den meteorologischen Randbedingungen beim Vergleich der beiden Hauptanströmungsrichtungen im Untersuchungsgebiet deutlich verringert werden. So lagen z.B. die mittleren Mischungsschichthöhen innerhalb der kombinierten Kategorien bei West- und Ostanströmung oft relativ nahe beieinander, unterschieden sich zwischen den jeweils gegensätzlichen Kategorien jedoch deutlich:

West_Fern_Kalt_Hoch_Trocken: 700 m

Ost_Fern_Kalt_Hoch_Trocken: 600 m

Zum Vergleich

West_Fern_Kalt_Niedrig_Trocken: 250 m

Ost_Fern_Kalt_Niedrig_Trocken: 260 m

Ähnlich verhielt es sich bei den weiteren meteorologischen Einflussgrößen Temperatur und Niederschlag, wobei klar ist, dass die Einteilung der Kategorien in jeweils 2 Ausprägungen nicht immer alle Unterschiede in den meteorologischen Randbedingungen vollständig nivellieren kann. Hierzu wäre eine weitere Differenzierung in mehr als 2 Ausprägungen notwendig, für die der Datensatz mit 212 Messtagen allerdings keine ausreichend große Stichprobe darstellt.

Innerhalb der kombinierten Belastungskategorien wurde ein „Inkrement Ost“ berechnet als Unterschied zwischen mittleren Konzentrationen bei Westlagen und denen bei Ostlagen. Dieses Inkrement wird interpretiert als Beitrag des antransportierten, grenzüberschreitenden Eintrags von PM ins Untersuchungsgebiet, da es den zusätzlichen Beitrag aus östlichen Anströmungsrichtungen bei ansonsten relativ ähnlichen meteorologischen Randbedingungen darstellt. In Abbildung 4 sind die Hauptergebnisse dieser Berechnungen gezeigt.

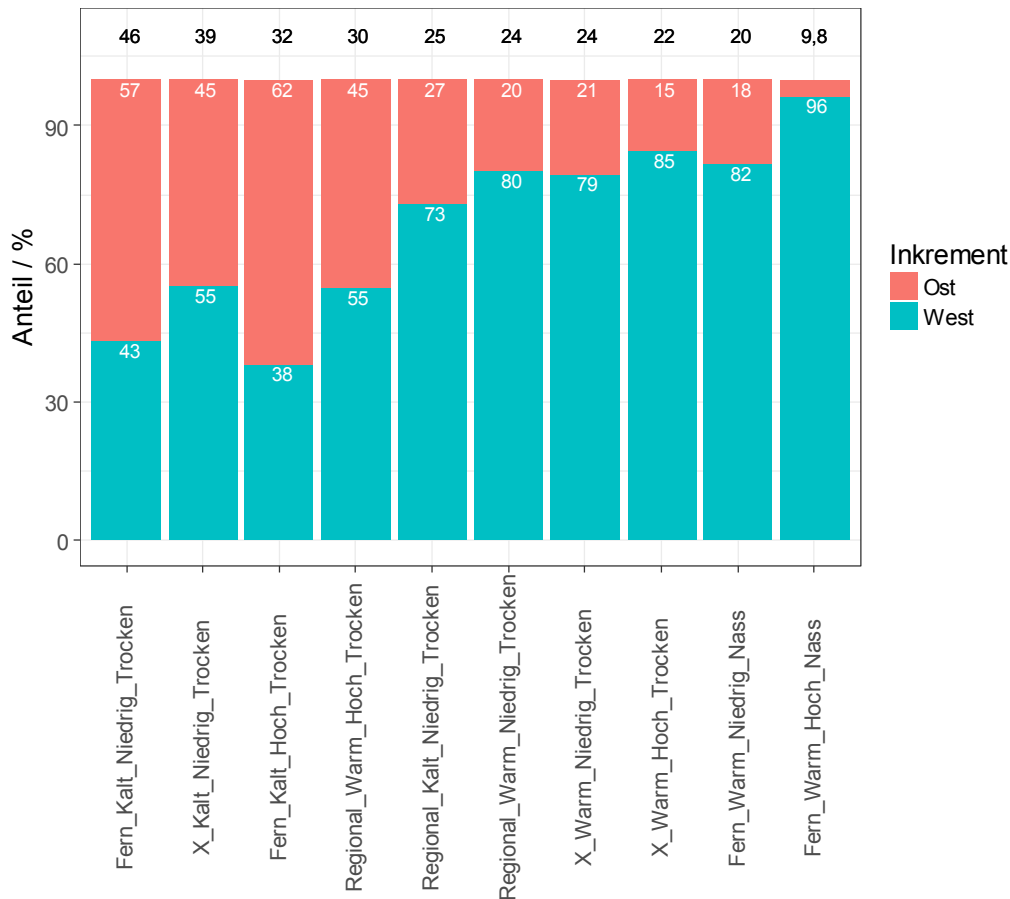


Abbildung 4: Mittlere Beiträge des grenzüberschreitenden Ferneintrages von PM10 aus östlicher Richtung ins Untersuchungsgebiet (Inkrement Ost). Schwarze Zahlen über den Balken geben die mittlere Konzentration bei Ostanströmung in $\mu\text{g m}^{-3}$ an, weiße Zahlen die Anteile des Hintergrundniveaus (West) und des zusätzlich antransportierten Beitrages (Ost) unter den jeweiligen meteorologischen Bedingungen, jeweils gemittelt alle ländlichen Hintergrundstationen.

Das höchste Inkrement Ost wurde an an kalten, trockenen Tagen mit weit zurückreichenden Rückwärtstrajektorien und niedriger Mischungsschichthöhe („Fern_Kalt_Niedrig_Trocken“) bestimmt und lag für den Untersuchungszeitraum unabhängig vom Typ der Messstation (Verkehr, Stadt, Land) im Mittel bei ca. $30 \mu\text{g m}^{-3}$ lag, was ca. 60% der am jeweiligen Stationstyp in dieser Kategorie gemessenen mittleren PM10-Konzentration entsprach. Ändert sich die Höhe der Mischungsschicht von „Niedrig“ auf „Hoch“ bei ansonsten gleichbleibenden Rahmenbedingungen („Fern_Kalt_Hoch_Trocken“) beträgt das Inkrement noch ca. $20 \mu\text{g m}^{-3}$, was wegen ebenfalls niedrigeren mittleren Konzentrationen immer noch ca. 60% der Gesamtbelastung entsprach. Ein Wechsel der Raumskala von „Fern“ auf „Regional“ („Regional_Kalt_Niedrig_Trocken“) verringert den aus Osten antransportierten Beitrag auf knapp $10 \mu\text{g m}^{-3}$ und seinen Anteil auf ca. 25% im Mittel der ländlichen Hintergrundstationen. Dies könnte darauf hindeuten, dass

der Hauptbeitrag des grenzüberschreitenden PM-Eintrages aus weiter entfernt liegenden Ländern erfolgt und nicht unbedingt aus den direkten Nachbarländern Polen und Tschechien. Dieser Befund ist konsistent mit den Ergebnissen trajektorienstatistischer Methoden, die im Projekt ebenfalls den Schluss nahelegten, dass die hauptsächlichen Quellregionen der im Untersuchungsgebiet bestimmten PM10- Massekonzentrationen im südöstlichen Europa liegen (Ungarn, Rumänien, Ukraine).

Betrachtet man die Anteile des Inkrement Ost in Abbildung 4 in Abhängigkeit der mittleren PM10- Massekonzentration über die kombinierten Belastungskategorien hinweg, ergibt sich folgendes Bild: Bei meteorologischen Randbedingungen, die zu einer hohen Belastung von $> 30 \mu\text{g m}^{-3}$ führen, trägt der grenzüberschreitende Eintrag grob 50% bei. Bei mittleren PM10- Massekonzentrationen von ca. $20 - 30 \mu\text{g m}^{-3}$ liegt dieser Anteil noch bei ca. 20%, wohingegen er bei niedrigen Belastungssituationen mit Konzentrationen $< 20 \mu\text{g m}^{-3}$ vernachlässigbar klein und v.a. in warmen und nassen kombinierten Kategorien sogar leicht negativ wird, d.h. die Konzentrationen bei Ost- etwas geringer sind als bei Westlagen (hier nicht gezeigt). Diese Werte gelten im Mittel über den Untersuchungszeitraum, wobei die Kombination der Belastungskategorien in manchen Fällen zu einer recht niedrigen Anzahl an Tagen pro kombinierter Kategorie führte, die für Ostanströmung zwischen 3 (Mindestkriterium zur Mittelwertbildung) und 40 über alle ländlichen Messstationen hinweg lag. Robustere und repräsentativere Werte könnten nur durch mehrjährige Betrachtungen gewonnen werden.

Quellzuordnung mit PMF

Zur genaueren Quellzuordnung der an den Stationen und für das Inkrement Ost beobachteten Konzentrationen wurden Analysen mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) durchgeführt, in die neben den PM10- Massekonzentrationen auch die der im Projekt analysierten Inhaltsstoffe einfließen. Es wurden PMF Läufe auf 5 Stufen durchgeführt, deren Gehalt an chemischer Information von Stufe zu Stufe zunahm, allerdings auf Kosten der Anzahl an Beobachtungstagen, wie in folgender Übersicht gezeigt wird:

Level 1:	alle 212 Messtage, alle Stationen, PM10- Masse, Ionen, OC / EC
Level 2:	80 SMT, alle Stationen, PM10- Masse, Ionen, OC / EC
Level 3:	80 SMT, alle Stationen, PM10- Masse, Ionen, OC / EC, PAK
Level 4:	80 SMT, alle Stationen, PM10- Masse, Ionen, OC / EC, PAK, Levoglucosan
Level 5:	80 SMT, 2 Stationen (Berlin), PM10-Masse, Ionen, OC/EC, PAK, Levoglucosan, Metalle

Die in den verschiedenen Levels identifizierten Quellkategorien sind in Tabelle 1 gezeigt, zusammen mit ihren Hauptinhaltsstoffen und

charakteristischen Markerverbindungen, die die Grundlage für die physikalische Interpretation der mathematischen PMF- Faktoren waren.

Die Quellen frisches Salz (Seesalz oder Streusalz), chemisch gealtertes Salz (durch Austausch Chlorid gegen andere Säuren), sekundäre Bildung I (v.a. Ammoniumnitrat), sekundäre Bildung II (v.a. Ammoniumsulfat und organisches Material), Verbrennung und Verkehr wurden auf allen Levels durch das PMF-Modell aufgelöst, wobei sich die Quellkategorie Verbrennung durch zusätzliche chemische Information (Levoglucosan und Metalle) in Verbrennung allgemein, Biomasseverbrennung und Kohleverbrennung auftrennen lässt und die Quellkategorie Verkehr sich durch Hinzunahme der Metalle sich aufspaltet in Abriebs- und Aufwirbelungsemissionen des Straßenverkehrs.

Tabelle 1: Mittels PMF identifizierte Quellkategorien für PM10 im Untersuchungsgebiet.

Quellkategorie	Level	Hauptinhaltsstoffe	Markerverbindungen
Salz (frisch)	1-5	Natrium, Chlorid	Natrium, Chlorid
Salz (gealtert)	1-5	Natrium, Sulfat, Nitrat, OC	Natrium, Magnesium
Sekundär I (AN)	1-5	Ammonium, Nitrat, OC	Nitrat
Sekundär II (AS + OC)	1-5	Ammonium, Sulfat, OC	Sulfat
Verbrennung	1-5	OC, EC	EC, Kalium, (PAK)
Verbrennung (BM)	4-5	OC, EC	Kalium, Levoglucosan
Verbrennung (Kohle)	5	OC, Nitrat, Ammonium	As
Verkehr	1-4	OC, EC, Calcium, Sulfat, Nitrat	EC, Calcium
Verkehr (Abrieb)	5	EC, Fe	Fe, Cu, Ba
Verkehr (Aufwirbelung)	5	OC, Calcium, Sulfat	Calcium, Ti, Sr

Abk.: AN – Ammoniumnitrat,
AS – Ammoniumsulfat,
BM – Biomasse

Diese Quellkategorien verursachen verschieden große Anteile der PM10- Massekonzentrationen einer Station, die im Mittel über alle Tage (PMF Level 1) in Abbildung 5 gezeigt sind.

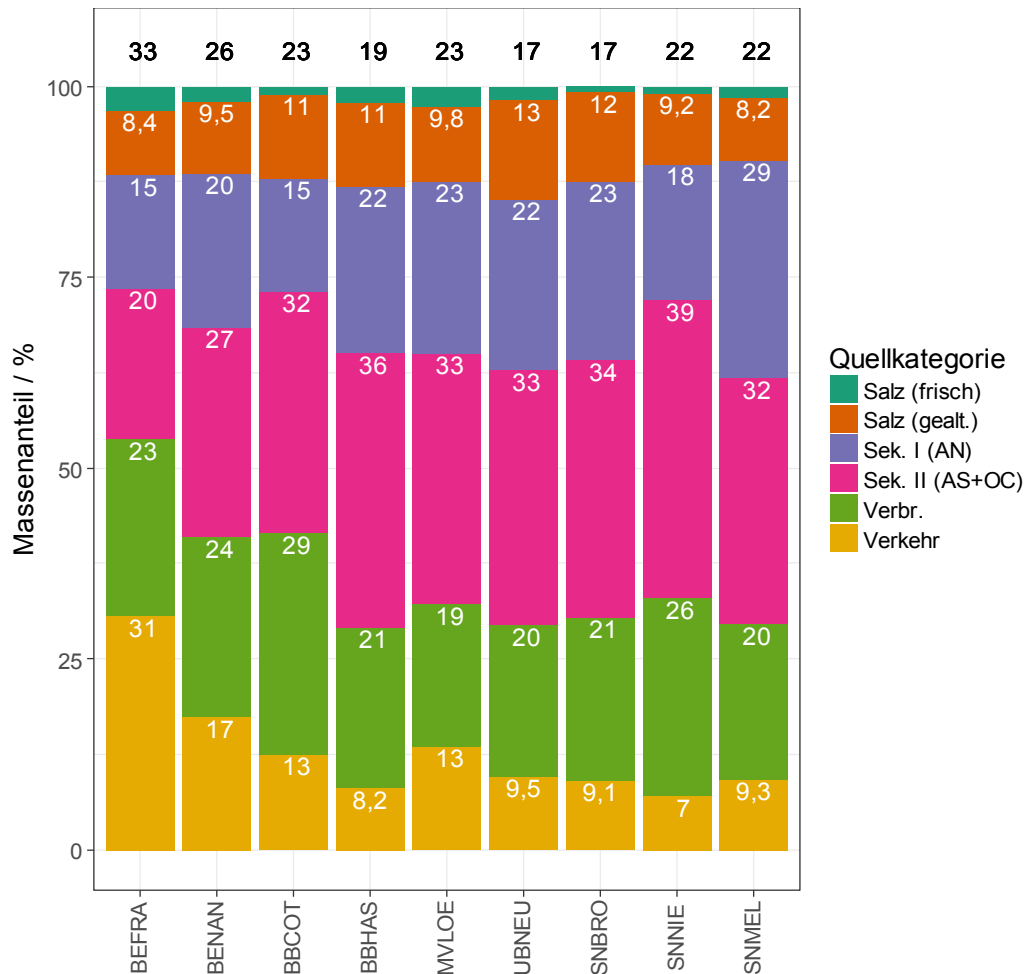


Abbildung 5: Quellzuordnung der PM10- Massekonzentrationen an den Stationen des Untersuchungsgebietes. Schwarze Zahlen geben die mittlere Konzentration der Station wieder, weiße Zahlen die Anteile der Quellkategorien.

Erwartungsgemäß war der Verkehrsanteil an den städtischen Stationen am höchsten mit 30% an BEFRA und ca. 15% im städtischen Hintergrund (BBPOT wurde in der PMF- Analyse nicht berücksichtigt wegen dort nicht vorhandener Ionenkonzentrationen). Verbrennungsemissionen erklärten an allen Stationen ca. 20 – 30% der PM10- Masse, sekundäre Bildung von Ammoniumsulfat und organischem Material 20 – 40%, Bildung von Ammoniumnitrat 15 – 30% und frisches und gealtertes Salz ca. 10%.

Die PMF- Ergebnisse wurden verwendet, um die Quellen des grenzüberschreitenden PM- Eintrages zu identifizieren, indem die Berechnung des Inkrement Ost unter gleichen meteorologischen Rahmenbedingungen für alle PMF- Quellkategorien durchgeführt und zu einem Gesamtbild integriert wurden. In Abbildung 6 sind die kombinierten Belastungskategorien mit positivem Inkrement Ost zusammen mit den mittleren durch die PMF zugeordneten PM10- Massekonzentrationen und ihrer Quellzusammensetzung gezeigt.

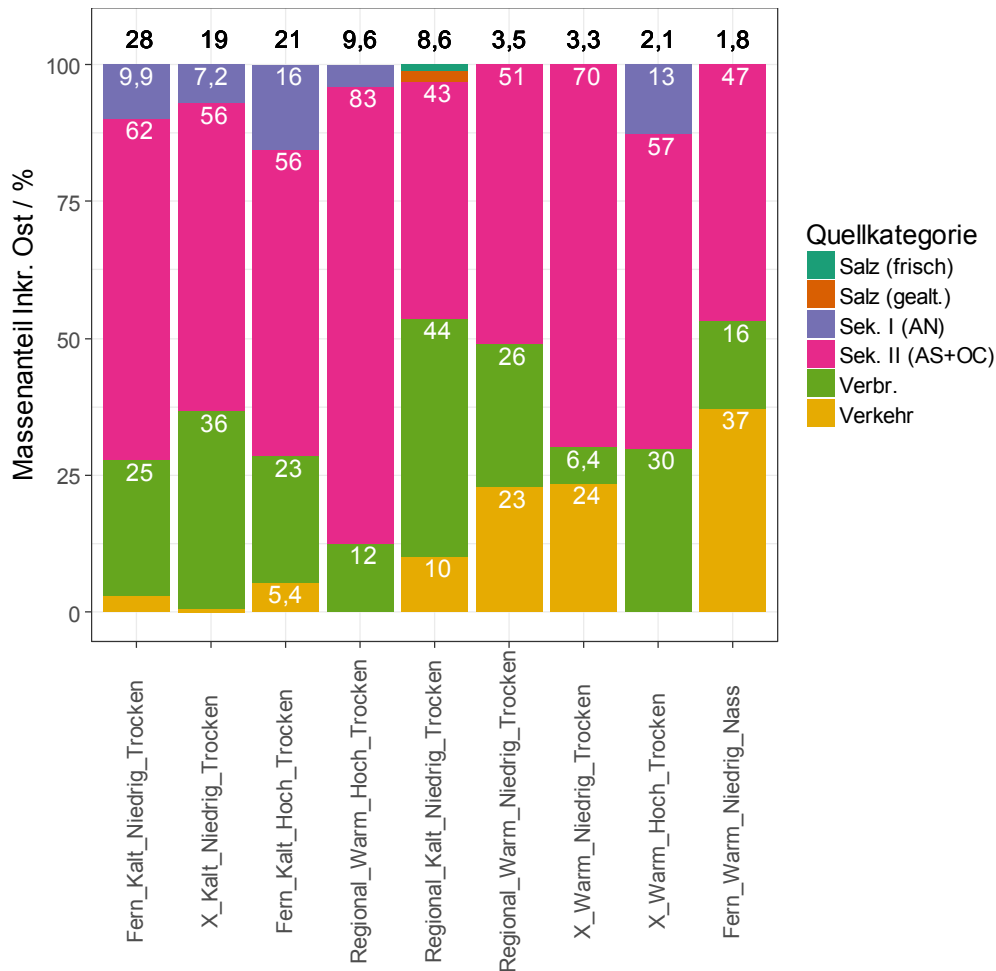


Abbildung 6: Quellzusammensetzung des grenzüberschreitenden PM10- Eintrages im Mittel über alle ländlichen Hintergrundstationen. Schwarze Zahlen stellen die mittlere durch PMF zugeordnete PM10- Massekonzentration in $\mu\text{g m}^{-3}$ dar, weiße Zahlen die Anteile der Quellkategorien daran.

Es zeigte sich deutlich, dass der zusätzliche aus östlichen Richtungen antransportierte Anteil unter allen meteorologischen Randbedingungen im Wesentlichen durch Verbrennungsemissionen und sekundärem Ammoniumsulfat und organischem Material verursacht wurde. Da SO_2 und flüchtige Kohlenwasserstoffe als Vorläufersubstanzen von Sulfat und organischem Material ebenfalls in hohem Maße aus der Verbrennung von Kohle und Biomasse emittiert werden, ergibt sich als Schlussfolgerung aus diesen Betrachtungen, dass sowohl primäre als auch sekundäre Produkte der Verbrennung von Festbrennstoffen die Hauptursache des grenzüberschreitenden Eintrages von PM ins Untersuchungsgebiet waren. Zusammen mit dem Befund, dass die absoluten Inkremente von warmen zu kalten Tagen in den kombinierten Kategorien stark ansteigen, deutet dies v.a. auf Hausbrandemissionen als wesentliche Quelle der hohen antransportierten Belastungen hin, da diese im Gegensatz zu Emissionen aus Industrie oder Energiesektor sehr stark von der Temperatur abhängig sind.

Fazit

Im Projekt PM-Ost wurde eine Quantifizierung und Quellzuordnung des grenzüberschreitenden Eintrages von PM in das ostdeutsche Untersuchungsgebiet durchgeführt. Im Ergebnis zeigte sich, dass die zusätzlich antransportiertes PM10 aus östlicher Richtung je nach meteorologischen Randbedingungen im Mittel über 6 ländliche Hintergrundstationen $0 - 30 \mu\text{g m}^{-3}$, an einzelnen Stationen sogar bis zu $50 \mu\text{g m}^{-3}$ ausmachte. Für meteorologische Bedingungen, die hohe PM10- Massekonzentrationen von $> 30 \mu\text{g m}^{-3}$ zur Folge haben, hatte dieses Inkrement Ost im Mittel einen Anteil von 50% an der Gesamtkonzentration. Für Bedingungen mit mittleren Konzentrationen zwischen 20 und $30 \mu\text{g m}^{-3}$ erklärte es 20% und in Situationen mit geringen PM10- Massekonzentrationen $< 20 \mu\text{g m}^{-3}$ war der grenzüberschreitende Eintrag vernachlässigbar. Für die städtische Verkehrsstation Frankfurter Allee in Berlin, ergab sich dadurch zusammen mit Ergebnissen aus dem Lenschow-Ansatz für Episoden mit östlicher Anströmung und hoher lokaler PM10- Belastung folgende grobe Quellaufteilung:

Verkehr:	15 – 20%
Städtischer Hintergrund:	10 – 15%
Ländlicher Hintergrund:	35%
Ferneintrag:	35%

Die Quellen des importierten PM- Anteils lagen in primären Emissionen der Holz- und Kohleverbrennung, sowie sekundär gebildetem Ammoniumsulfat und organischem Material, das sich während des Transportes der Luftmassen vermutlich überwiegend aus den gasförmigen Verbrennungsemissionen SO_2 und VOCs gebildet hatte. Die Zunahme des Inkrementes Ost mit abnehmender Temperatur ließ Emissionen aus Hausbrand bzw. Anlagen zur Gebäudeheizung als wahrscheinlicher erscheinen als Emissionen des Industrie- oder Energiesektors. Darüber hinaus deuteten die Auswertungen auf Quellregionen eher im etwas weiter entfernten östlichen Mitteleuropa und Südosteuropa als in den direkt angrenzenden Regionen der Nachbarländer hin, wobei diese auf Rückwärtstrajektorien beruhenden Ergebnisse mit hohen Unsicherheiten behaftet sind. Zur genaueren Beurteilung der Quellregionen erscheinen weitere Untersuchungen als zwingend notwendig.