

Zusatzbelastung aus Holzheizungen

Schriftenreihe, Heft 12/2020



Zusatzbelastung aus Holzheizungen

Dominik van Pinxteren, Falk Mothes, Gerald Spindler, Khanneh Wadinga Fomba,

Andrea Cuesta, Thomas Tuch, Thomas Müller, Alfred Wiedensohler und Hartmut Herrmann

Institution hinter die Namen sowie komplett in das Impressum Leibniz-Institut für Troposphärenforschung

(TROPOS)

Permoserstr. 15

04318 Leipzig

Inhalt

1	Ausgangslage und Ziele	13
2	Stand des Wissens	14
3	Untersuchungsgebiet und experimentelle Methoden	15
3.1	Messkonzept	16
3.2	Physikalische und chemische Messungen.....	18
3.2.1	Partikelanzahl-Größenverteilung.....	20
3.2.2	Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff	20
3.2.3	Partikelmassenkonzentration, zeitaufgelöst	21
3.2.4	Partikelmassenkonzentration, gravimetrisch.....	21
3.2.5	Ionen.....	21
3.2.6	Organischer und elementarer Kohlenstoff	22
3.2.7	Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff	22
3.2.8	Unpolare organische Einzelverbindungen	22
3.2.9	Anhydromonosaccharide.....	22
3.2.10	Metalle	22
3.3	Datenprozessierung	23
3.3.1	Meteorologie.....	23
3.3.2	Stickoxide	23
3.3.3	Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff und Anteil aus Biomassenverbrennung.....	23
3.3.4	Partikelanzahlkonzentrationen und PMx- Massenkonzentrationen aus Partikelanzahlgrößen verteilungen	25
3.3.5	Zeitreihen, Zeitprofile und Bilanzierung nach Lenschow.....	25
3.4	Datenverfügbarkeit	26
3.5	Maßnahmen Qualitätssicherung (QA/QC)	27
3.5.1	Wetterstation Vantage Pro 2	27
3.5.2	NO _x - Analysatoren.....	27
3.5.3	Partikelanzahlgrößenverteilung aus MPSS und APSS und abgeleitete PM - Massenkonzentrationen	28
3.5.4	MAAP	28
3.5.5	AE33.....	29
3.5.6	OPSS.....	30
3.5.7	Digitel HV- Sammler.....	30
3.6	Auswertemethoden.....	34
3.6.1	Fotografische Dokumentation	34
3.6.2	Trendanalysen.....	34
3.6.3	Bilanzierung nach Lenschow (Inkrement Holzheizung)	35
3.6.4	Meteorologieabhängige Analysen	35
3.6.5	Quellzuordnung	35
3.6.6	Emissionsfaktoren	36
3.6.7	Einordnung in lange Messreihen.....	36
4	Ergebnisse und Diskussion	37
4.1	Zeitreihen und Zeitprofile.....	37
4.1.1	Meteorologie.....	37
4.1.2	Stickoxide	41
4.1.3	Partikelanzahlkonzentration	44
4.1.4	Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (eBC) in PM10	47

4.1.5	PM1, PM2,5 und PM10- Massenkonzentration berechnet aus den Partikelanzahlgrößenverteilungen.....	49
4.1.6	Massenkonzentration PM10 gravimetrisch	51
4.1.7	Kohlenstoff- Summenparameter (OC, EC, WSOC)	53
4.1.8	Ionen.....	56
4.1.9	Oxalat und Anhydromonosaccharide	59
4.1.10	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)	62
4.1.11	Alkane.....	66
4.1.12	Hopane	69
4.1.13	Metalle	71
4.1.14	Dioxine im Staubniederschlag.....	76
4.2	Bilanzierung nach Lenschow (Inkrement Holzheizung)	76
4.2.1	Stickoxide	79
4.2.2	Partikelanzahlkonzentration	81
4.2.3	Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (eBC) in PM10	84
4.2.4	PM1, PM2,5 und PM10- Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahlgrößenverteilung	87
4.2.5	Massenkonzentration PM10 gravimetrisch	91
4.2.6	Kohlenstoff- Summenparameter (OC, EC, WSOC)	93
4.2.7	Ionen.....	95
4.2.8	Oxalat und Anhydromonosaccharide	98
4.2.9	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)	100
4.2.10	Alkane.....	103
4.2.11	Metalle	106
4.3	Einfluss der Meteorologie	111
4.4	Quellzuordnung PM.....	119
4.4.1	Makrotraceransatz Levoglucosan	119
4.4.2	Positive Matrixfaktorisierung (PMF)	121
4.5	Bürgerbefragung.....	130
4.6	Abschätzung von Emissionsfaktoren (EFs) aus Immissionsmessungen.....	133
4.7	Einordnung in die lange Messreihe Melpitz	135
4.8	Vergleich mit Abend- Messwerten im sächsischen Luftgütemessnetz	146
4.9	Maßnahmen	148
5	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	150
	Literaturverzeichnis.....	152

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Box- Whisker Plots zum Anteil Holzverbrennungsaerosol am Gesamt- PM in den Kategorien „ganzes Jahr“, „Sommer“ und „Winter“ in Abhängigkeit vom Stationscharakter (versch. = keine genaue Angabe), ohne Betrachtung von Chemietransportmodel (CTM)- Studien	15
Abbildung 2:	Umgebung des Untersuchungsgebietes Melpitz mit wenigen störenden Emissionsquellen, Ortsumrandung Melpitz rot markiert, Quelle: Google Maps Kartendaten © 2018	16
Abbildung 3:	Untersuchungsgebiet: a) Messstation Melpitz Ort und b) Melpitz Station, Quelle: Google Maps, Kartendaten © 2018	16
Abbildung 4:	Standort des Messcontainers (weißes Rechteck) in der Ortsmitte von Melpitz, R = Radius, Quelle: Google Maps Kartendaten © 2018	17
Abbildung 5:	Final aufgestellter Messcontainer in der Ortsmitte von Melpitz (Foto: Gerald Spindler, TROPOS)	17
Abbildung 6:	Geräuschmessungen am Messcontainer Melpitz Ort am 08.11.2018 (Foto: Gerald Spindler, TROPOS)	18
Abbildung 7:	Scatterplots der Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x aus dem Messgerätevergleich der NO _x - Analysatoren Melpitz Station vs. Melpitz Ort. Der Vergleich erfolgte im Zeitraum 18.- 25.11.2019 an der TROPOS- Forschungsstation, die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	27
Abbildung 8:	Vergleich der Partikelanzahlgrößenverteilung für die beiden MPSS an der Station Melpitz im Nachgang der einjährigen Messungen	28
Abbildung 9:	Vergleich der Geräte MAAP-Ort und MAAP-Station im Anschluss an die einjährige Messkampagne, die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	29
Abbildung 10:	Vergleich der Geräte AE33-Ort und AE33-Station im Kalibrierlabor des TROPOS für die äquivalente Rußkonzentration (eBC) und den Anteil der Biomassenverbrennung am äquivalenten Ruß (BB), die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	30
Abbildung 11:	Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die PM10- Massenkonzentration an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	31
Abbildung 12:	Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen der Ionen in PM10 gemessen an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	32
Abbildung 13:	Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen von EC und OC an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	33
Abbildung 14:	Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen der PAKs in PM10 gemessen an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet	33
Abbildung 15:	Webcam- Aufnahme von der TROPOS- Forschungsstation in Richtung Melpitz Ort am 20.01.2019 14:28:36 Uhr	34
Abbildung 16:	Zeitreihen der meteorologischen Messparameter als Stundenwerte; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt; windstille Zeiten an mind. einer der beiden Stationen (meist im Ort) sind für die Parameter WIG und WIR grau hinterlegt	38

Abbildung 17: Meteorologische Messparameter dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	40
Abbildung 18: Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	42
Abbildung 19: Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	44
Abbildung 20: Zeitreihen der Partikelanzahlkonzentration als Stundenwerte für N ₁₀₋₅₀ , N ₅₀₋₁₅₀ und N ₁₅₀₋₈₀₀ ; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	45
Abbildung 21: Partikelanzahlkonzentrationen für N ₁₀₋₅₀ , N ₅₀₋₁₅₀ und N ₁₅₀₋₈₀₀ dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	46
Abbildung 22: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als hellgraue Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	47
Abbildung 23: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als hellgraue Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	48
Abbildung 24: Die PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ -Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahl-Größenverteilungen sind hier als Zeitreihen dargestellt; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	49
Abbildung 25: Die PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ - Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahl-Größenverteilungen sind hier als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts) dargestellt; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	51
Abbildung 26: Tägliche PM ₁₀ - Massenkonzentrationen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt	52
Abbildung 27: PM ₁₀ - Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt	53
Abbildung 28: OC, EC und WSOC Massenkonzentrationen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	54
Abbildung 29: OC, EC und WSOC Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	55
Abbildung 30: Konzentrationen der Ionen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	57
Abbildung 31: Konzentrationen der Ionen dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	58
Abbildung 32: Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	60
Abbildung 33: Konzentrationen von Oxalat und den Anhydromonosacchariden dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	61

Abbildung 34: Konzentrationen PAKs dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	63
Abbildung 35: Konzentrationen der PAK dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	65
Abbildung 36: Konzentrationen C20-C34 Alkane dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	67
Abbildung 37: Konzentrationen C20-C34 Alkane dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	68
Abbildung 38: Konzentrationen Hopane dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	70
Abbildung 39: Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Punkte, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Punkte dargestellt; die schwarze Linie kennzeichnet das fallspezifische Detektionslimit.....	72
Abbildung 40: Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Punkte, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Punkte dargestellt, die schwarze Linie kennzeichnet das fallspezifische Detektionslimit.....	73
Abbildung 41: Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	74
Abbildung 42: Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	75
Abbildung 43: Mittelwerte der Depositionsraten der bestimmaren PCDD/PCDF-Kongenerere an der Station (schwarze Linie) und im Ort (farbige Linie)	76
Abbildung 44: Polardiagramme für die Inkremente der Massenkonzentration PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ aus Anzahlkonzentration in Abhängigkeit von der Windrichtung, Windgeschwindigkeit und der Jahreszeit	77
Abbildung 45: Polardiagramme für die Inkremente des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP in Abhängigkeit von der Windrichtung, Windgeschwindigkeit und der Jahreszeit.....	78
Abbildung 46: Inkrement Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	79
Abbildung 47: Inkrement Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	80
Abbildung 48: Inkrement Konzentrationen NO, NO ₂ und NO _x dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95% Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	81
Abbildung 49: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N ₁₀₋₅₀ , N ₅₀₋₁₅₀ und N ₁₅₀₋₈₀₀ in Abhängigkeit von der Jahreszeit	82
Abbildung 50: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N ₁₀₋₅₀ , N ₅₀₋₁₅₀ und N ₁₅₀₋₈₀₀ in Abhängigkeit von der Jahreszeit	83
Abbildung 51: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N ₁₀₋₅₀ , N ₅₀₋₁₅₀ und N ₁₅₀₋₈₀₀	84
Abbildung 52: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	85

Abbildung 53: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	86
Abbildung 54: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	87
Abbildung 55: Inkrement der PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ - Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	88
Abbildung 56: Inkrement der PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ der Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	89
Abbildung 57: Inkrement der PM ₁ , PM _{2,5} und PM ₁₀ der Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	90
Abbildung 58: Inkrement PM ₁₀ - Massenkonzentration gravimetrisch, dargestellt als Zeitreihe	91
Abbildung 59: Inkrement PM ₁₀ - Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	92
Abbildung 60: Inkrement PM ₁₀ - Massenkonzentrationen dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	92
Abbildung 61: Inkrement Konzentrationen OC, EC und WSOC dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	94
Abbildung 62: Inkrement Konzentrationen OC, EC und WSOC dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	95
Abbildung 63: Inkrement Konzentrationen der Ionen dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	96
Abbildung 64: Inkrement Konzentrationen der Ionen dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	97
Abbildung 65: Inkrement Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	98
Abbildung 66: Inkrement Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	99
Abbildung 67: Inkrement der PAK- Konzentrationen, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	101
Abbildung 68: Inkrement der PAK-Konzentrationen, dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	102
Abbildung 69: Inkrement Konzentrationen C ₂₀ -C ₃₄ Alkane, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	104
Abbildung 70: Inkrement Konzentrationen C ₂₀ -C ₃₄ Alkane, dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	105
Abbildung 71: Inkrement Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	107
Abbildung 72: Inkrement Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	108
Abbildung 73: Inkrement Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn, dargestellt als Jahregang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	109

Abbildung 74:	Inkrement Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb, dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	110
Abbildung 75:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 8 Bereiche der mittleren stündlichen Windgeschwindigkeit	112
Abbildung 76:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 8 Bereiche der mittleren täglichen Windgeschwindigkeit	113
Abbildung 77:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 7 Bereiche der mittleren stündlichen Temperatur	114
Abbildung 78:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 7 Bereiche der mittleren täglichen Temperatur	115
Abbildung 79:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 5 Bereiche der mittleren stündlichen Mischungsschichthöhe	117
Abbildung 80:	Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 5 Bereiche der mittleren täglichen Mischungsschichthöhe	118
Abbildung 81:	Konzentration PM(BB) dargestellt als Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall im Jahresgang; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt	119
Abbildung 82:	Inkrement PM(BB) dargestellt als Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall im Jahresgang	120
Abbildung 83:	Quellprofile der 7 Faktoren der PMF, Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%)	122
Abbildung 84:	Zeitreihen der PMF- modellierten Quellbeiträgen für den jeweiligen Faktor (Quelle). Werte für Melpitz Ort sind als farbige Linien, für Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	123
Abbildung 85:	Inkrement der PMF- modellierten Quellbeiträge für den jeweiligen Faktor, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit	125
Abbildung 86:	Inkrement der PMF- modellierten Konzentrationen für den jeweiligen Faktor, dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)	126
Abbildung 87:	Relative Anteile der mittels PMF identifizierten Quellkategorien an der modellierten mittleren PM10- Massenkonzentration für Melpitz Ort und Station; schwarze Zahlen über den Balken geben die modellierte Gesamtkonzentration in $\mu\text{g m}^{-3}$ wieder, weiße Zahlen in den Balken die jeweiligen Anteile der Quellen in Prozent	128
Abbildung 88:	Quellbeiträge der mittels PMF identifizierten Quellkategorien für Melpitz Ort und Station, schwarze Zahlen über den Balken geben die gesamte PMF-modellierte PM10-Konzentration wieder, weiße Zahlen in den Balkenabschnitten die jeweiligen Beiträge der einzelnen Quellen, wobei Werte $< 0,5 \mu\text{g m}^{-3}$ nicht dargestellt sind	129
Abbildung 89:	Fragebogen zum Heizen mit Holz für das Forschungsprojekt Melpitz	131
Abbildung 90:	Brennstoffgruppen der Zentralheizungen in Melpitz	132
Abbildung 91:	Brennstoffe der a) Zentralheizungen und b) Einzelfeuerstätten in Melpitz	132
Abbildung 92:	Mittlere jährliche Temperatur an der Forschungsstation Melpitz 1993 bis 2018	136
Abbildung 93:	Monatliche Mitteltemperaturen Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck	137
Abbildung 94:	Anzahl von Tagen in den Jahren 1992 bis 2019 mit Höchsttemperaturen über 30 °C im Halbstundenmittel	137
Abbildung 95:	Monatliche mittlere Windgeschwindigkeit Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck	138
Abbildung 96:	Monatliche mittlere Globalstrahlung Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck	139

Abbildung 97: Monatliche mittlere relative Feuchte Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck.....	139
Abbildung 98: Jährliche Niederschlagsmengen von 2009 bis 2019	140
Abbildung 99: Monatsmittel der Konzentration der Stickoxide (NO und NO ₂) und von Schwefeldioxid (SO ₂) im Zeitraum Januar 1993 bis Oktober 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck	141
Abbildung 100: Verlauf der PM10- Massenkonzentration mit Anteilen ausgewählter wasserlöslicher Ionen und Kohlenstoff. Die Fehlerbalken zeigen die einfache Standardabweichung der Jahresmittelwerte. Die Konzentrationen für OC und EC, seit 2003 mit der VDI-Methode bestimmt, wurden für 2015-18 aus Ergebnissen der Thermo-optischen Methode auf der Basis einer dreijährigen Vergleichsmessung für Melpitz (2012–14) abgeschätzt	142
Abbildung 101: Verlauf der Partikelmassenkonzentrationen für PM1, PM2,5-PM1 und PM10-PM2,5 aufsummiert als PM10 im Jahresmittel (2003–2018)	143
Abbildung 102: Verlauf der täglichen Partikelmassenkonzentration PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck.....	144
Abbildung 103: Verlauf der täglichen Konzentration von Ammonium im PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck.....	144
Abbildung 104: Verlauf der täglichen Konzentration von Nitrat im PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck.....	145
Abbildung 105: Verlauf der täglichen Konzentration von Sulfat im PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck.....	145
Abbildung 106: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes dargestellt als Tagesgang in Abhängigkeit vom Wochentag und der Jahreszeit; Messwerte im Ort Melpitz sind als rote Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt.....	147
Abbildung 107: Massenkonzentrationen PM10 dargestellt als Tagesgang in Abhängigkeit vom Wochentag und der Jahreszeit; Messwerte im Ort Melpitz sind als rote Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt	148

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: An den Messstationen Melpitz Ort und Melpitz Station installierte Messgeräte	19
Tabelle 2: Auflistung der PM10- Inhaltsstoffe (24 h Auflösung).....	19
Tabelle 3: Übersicht Tage im Messzeitraum, die aufgrund ihrer Sonderstellung nicht in der vergleichenden Auswertung berücksichtigt wurden	25
Tabelle 4: Datenverfügbarkeit in % an beiden Messstationen bezogen auf Stunden- bzw. Tagesmittelwerte im Untersuchungszeitraum 01.11.2018 bis 31.10.2019.....	26
Tabelle 5: Inkrement PM10 in Abhängigkeit von der meteorologischen Jahreszeit	93
Tabelle 6: Quellbeiträge und Anteile PM(BB) an Gesamt- PM10 abgeschätzt über die Makrotracermethode via Levoglucosan für Melpitz Ort und Station in Abhängigkeit der Jahreszeit	120
Tabelle 7: Inkrement PM(BB) abgeschätzt über die Makrotracermethode via Levoglucosan für Melpitz Ort in Abhängigkeit der meteorologischen Jahreszeit	121
Tabelle 8: Emissionsfaktoren abgeschätzt aus Immissionsmessdaten für den Zeitraum Winter und vergleich mit Literaturdaten	134

Abkürzungsverzeichnis

ACTRIS	Aerosol, Clouds, and Trace Gases Research Infrastructure
AN	Ammoniumnitrat
APSS	Aerodynamic Particle Size Spectrometer
AS	Ammoniumsulfat
BaA	Benzo(a)anthrazen
BaP	Benzo(a)pyren
BB	Biomass Burning
BbF	Benzo(b)fluoranthen
eBC	Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (engl. equivalent Black Carbon)
BjF	Benzo(j)fluoranthen
BkF	Benzo(k)fluoranthen
BM	Biomasse
CTM	Chemietransportmodell
DBahA	Dibenzo(a,h)anthrazen
DMA	Differential Mobility Analyser
EC	Elementarer Kohlenstoff (engl. Elemental Carbon)
ED	Emissionsdichte
EF	Emissionsfaktor
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
GAW	Global Atmosphere Watch
GLO	Globalstrahlung
IcpP	Indeno(1,2,3-cd)pyren
IQR	Interquartilabstand (engl. interquartile range)
KFA	Kleinfeuerungsanlage
LDR	Luftdruck
LfULG	Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
MAAP	Multiangle Absorption Photometer
MPSS	Mobility Particle Size Spectrometer
MSH	Mischungsschichthöhe
NDS	Niederschlag
OC	Organischer Kohlenstoff (engl. Organic Carbon)
OM	Organisches Material
OPSS	Optical Particle Size Spectrometer
PAKs	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe
PCB	Polychlorierte Biphenyle
PCDD/PCDF	Polychlorierte Dibenzodioxine und polychlorierte Dibenzofurane (Dioxine und Furane)
PM	Partikuläres Material
RFE	Relative Feuchte
Rm	Raummeter
TMP	Temperatur
WHO	Weltgesundheitsorganisation (engl. World Health Organisation)
WIG	Windgeschwindigkeit
WIR	Windrichtung
WSOC	Wasserlöslicher organischer Kohlenstoff (engl. Water-Soluble Organic Carbon)

1 Ausgangslage und Ziele

Die Verwendung von Holz zum Heizen nimmt zum einen wegen des Bedürfnisses nach „Gemütlichkeit“ zum anderen wegen des im Vergleich zu Öl und Gas preiswerteren Brennstoffes im ländlichen und auch im urbanen Raum stetig zu (LFU 2007; SCHMOECKEL UND BLECKMANN 2011; SCHREIBER 2015; UBA 2018). Besonders durch die Förderung von Holzheizungen aufgrund gewollter Biomassenutzung aus dem Blickwinkel des Klimaschutzes (Holz als nachwachsender Rohstoff, EU-Richtlinie 2009/28/EG) stieg die Anzahl sogenannter Kleinfeuerungsanlagen (KFA) zur Wärmeerzeugung durch Holzverbrennung in den letzten Jahren (EEA 2016; VIANA et al. 2016). Laut Umweltbundesamt existierten 2016 in Deutschland schätzungsweise 12,4 Mio. KFA, davon 0,7 Mio. Heizkessel und 11,7 Mio. Einzelraumfeuerungsanlagen, die aus festen Brennstoffen, meist Holz, aber auch Kohle, Energie gewannen (UBA 2017).

Im europäischen Luftqualitätsbericht 2016 wurden Hausbrandemissionen (Summe aus Verwendung von Holz, Kohle, Öl und Gas als Brennstoff) von primärem PM₁₀ und PM_{2,5} mit 40 % respektive 56 % der Gesamtemissionen als stärkste Partikelquelle diskutiert (EEA 2016). Insbesondere KFAs verursachen bei der Verbrennung von Holz als Brennstoff hohe Partikelemissionen (UBA 2017). Häusliche Holzfeuerungsanlagen hatten 2007 einen Anteil von etwa 15 – 20 % an der gesamten Staubemission in Deutschland (LFU 2007). Studien haben gezeigt, dass etwa 90 - 93% des Gesamtstaubes kleiner als PM₁₀ sind (LFU 2010; SCHNELLE-KREIS et al. 2009). Im Berliner Luftreinhalteplan 2011 bis 2017 wurde ein Anteil der Holzverbrennung als Quelle für PM₁₀ von etwa 12 % am Gesamtausstoß für das Jahr 2009 angegeben (RAUTHERBERG-WULFF et al. 2013). Unabhängig von der Beurteilung der Luftqualität anhand von Schadstoffgrenzwerten existiert damit bereits ein Verstoß gegen geltendes EU- Recht, da die EU- Rahmenrichtlinie 96/62/EG, Artikel 1 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität verlangt, dass die Luftqualität dort zu erhalten ist, wo sie gut ist.

Die Feinstaubemissionen aus Holzfeuerungsanlagen in Deutschland (Haushalte und Kleingewerbe) sind heute insgesamt höher als die aus den Motoren von Pkw und Lkw (DUH UND DEC 2016; UBA 2017). KFA sind mit z. B. etwa 20.000 Tonnen PM₁₀- Emissionen durch Holzverbrennung in 2016 (UBA 2018) zum Hauptemittenten von Verbrennungspartikeln aufgestiegen (BEHNKE 2007; KAMINSKI et al. 2017). Allein in Sachsen ergaben Hochrechnungen 2009 vorläufig schätzungsweise 400.000 Holzkleinfeuerungsanlagen, von denen etwa 2/3 als Zusatzheizung (z. B. Einzelraumfeuerungsanlagen in Form von Kachel- oder Kaminöfen) betrieben wurden (HAUSMANN 2010). Um die Emissionen zu begrenzen werden in Deutschland seit dem 22.03.2010 die Errichtung, die Beschaffenheit und der Betrieb von KFA durch die geltende Novellierung der 1. Bundesimmissionsschutzverordnung (BImSchV) geregelt. Zu den regulierten Anlagen zählen Öl- und Gasheizkessel, Kamin- und Kachelöfen sowie Pellet- und Scheitholzkessel privater Haushalte, plus kleine Anlagen in Industrie und Gewerbe (BEHNKE 2010). Da Holzfeuerungen vorwiegend im ländlichen Raum (i.d.R. geringe Schadstoffkonzentrationen) zu finden waren, gab es bisher keine Notwendigkeit die holzfeuerungsbedingten Immissionen zu überwachen, so dass im sächsischen Luftgütemessnetz keine Messstationen existieren, um den realen Beitrag der Holzfeuerungsanlagen zur Luftverschmutzung über eine Verursacheranalyse ermitteln zu können.

Aufgrund der zunehmenden Anwendung von Holzfeuerungen war es daher das Ziel, im Rahmen des vorliegenden Forschungsvorhabens „Zusatzbelastung aus Holzheizungen“ ein Immissionskonzept für das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) über 12 Monate zu erproben, welches umfassende Außenluftmessungen zur chemischen und physikalischen Charakterisierung der PM- Zusatzbelastung aus Holzheizungen vorsieht. Der Datensatz soll bestehende hohe Unsicherheiten bei der Beurteilung der realen Immissionssituation in der Nähe von KFA reduzieren, sowie als Basis für Folgeprojekte (z. B. mikroskalige Modellrechnungen) dienen können. Als Grundlage der Untersuchungen dienten die vom Leibniz-Institut für

Troposphärenforschung e.V., Leipzig (TROPOS) ermittelten Messdatensätze für den Zeitraum 01.11.2018 bis 31.10.2019 an zwei parallel betriebenen Messstationen im Untersuchungsgebiet Melpitz, Sachsen. Diese umfassten Messdaten mit stündlicher und täglicher Auflösung der Konzentrationen von Partikelmasse (PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀), äquivalentem schwarzem Kohlenstoff (eBC), Partikelanzahlkonzentration und Partikelinhaltsstoffen wie zum Beispiel wasserlösliche anorganische Ionen, organischer Kohlenstoff (OC), elementarer Kohlenstoff (EC), sowie polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAKs), Anhydromonosaccharide und Metalle.

Der vorliegende Abschlussbericht stellt die durchgeführten Auswertungen und die erhaltenen Ergebnisse im Detail dar. Beginnend mit einer kurzen Zusammenfassung zum Stand des Wissens hinsichtlich des Forschungsvorhabens „Zusatzbelastung aus Holzheizungen“ werden das Untersuchungsgebiet und die experimentellen Methoden im Detail beschrieben. Im Ergebnisteil wird der Datensatz zunächst in Form von Zeitreihen und Zeitprofilen präsentiert und diskutiert. Anschließend werden die Ergebnisse umfangreicher Ursachenanalysen berichtet, deren zentrale Elemente (i) die Bilanzierung nach Lenschow zur Bestimmung eines Inkrementes Holzheizung, (ii) die Quellzuordnung, sowie (iii) die Einordnung der Messdaten in die lange Messreihe Melpitz und der Vergleich mit weiteren Messwerten des sächsischen Luftgütemessnetzes sind. Die zentralen Ergebnisse werden am Ende zusammengefasst.

2 Stand des Wissens

Im ersten Zwischenbericht vom 15.11.2018 (MOTHES et al. 2018) wurde der Stand des Wissens zum Forschungsvorhaben „Zusatzbelastung aus Holzheizung“ detailliert vorgestellt. Der Fokus der Literaturstudie lag auf der Identifikation von Holzverbrennungstracern, deren Anwendung zur Bestimmung des Holzverbrennungsanteils an PM und den damit verbundenen Auswirkungen auf die Luftqualität. Dazu wurden die Ergebnisse von mehr als 150 wissenschaftlichen Forschungsstudien, sowohl „graue Literatur“ als auch Veröffentlichungen in Fachjournalen, aus den zurückliegenden 20 Jahren ausgewertet und an dieser Stelle noch einmal kurz zusammengefasst.

Unter realen Bedingungen resultiert die Verbrennung fester Biomasse in der Bildung von mit Aerosolen belasteten Abgasen, wobei die Menge und Zusammensetzung von den Inhaltsstoffen des Brennstoffes, der Verbrennungstechnik und den Verbrennungsbedingungen abhängen. Für die zielgerichtete Beurteilung des Anteils der Holzverbrennung an der Gesamtfinstaubemission werden in vielen Forschungsstudien zunächst chemische Verbindungen identifiziert, die speziell bei der Verbrennung von Holz freigesetzt werden. Sogenannte Markerverbindungen (Tracer) sollen quellspezifisch und atmosphärisch stabil sein, möglichst mit konstanten Werten emittiert werden und quantitativ erfassbar sein. Zu den wichtigsten in der Literatur beschriebenen „Verbrennungstracern“ für Holz zählen die Anhydromonosaccharide Levoglucosan, Mannosan und Galactosan. Ebenfalls häufig angewendet werden die Konzentrationen der PAK (z. B. BaP), aber auch von Kalium bzw. der Anteil von organischem und elementarem Kohlenstoff am Holzverbrennungsaerosol. Die Bestimmung von anlagen- bzw. brennstoffspezifischen Emissionsfaktoren (emittierte Masse des Schadstoffes pro Einheit erzeugter Energie oder pro eingesetztem Brennstoff) für die Partikelmasse bzw. die Holzverbrennungstracer ermöglicht in Kombination mit den ermittelten atmosphärischen Konzentrationen und statistischen Auswertemethoden (z. B. trajektorienbasierter Rezeptormodellierung) die Abschätzung des Anteils der Holzverbrennung an der Feinstaubbelastung.

Zur besseren Veranschaulichung sind die wichtigsten Ergebnisse der Literaturstudie zum Anteil des Holzverbrennungsaerosols am Gesamt- PM in Abbildung 1 graphisch in Form von Boxplots (auch als Box-Whisker-Plots bezeichnet) in den Kategorien „ganzes Jahr“, „Sommer“ und „Winter“ dargestellt. Dabei markieren

das untere und obere Ende der Box (rechteckiger Kasten) das untere bzw. obere Quartil (d. h. das 25. und 75. Perzentil) der Verteilung. Die waagerechte Linie innerhalb der Box zeigt den Median (50. Perzentil) und die Enden der senkrechten Linien („Antennen“) markieren die Messwerte, die maximal den 1,5-fachen Interquartilabstand (interquartile range, IQR) von unterem bzw. oberem Quartil entfernt liegen. Messwerte außerhalb dieses Bereiches werden als Punkte eingezeichnet und können so leicht als extrem hohe (bzw. extrem niedrige) Messwerte identifiziert werden.

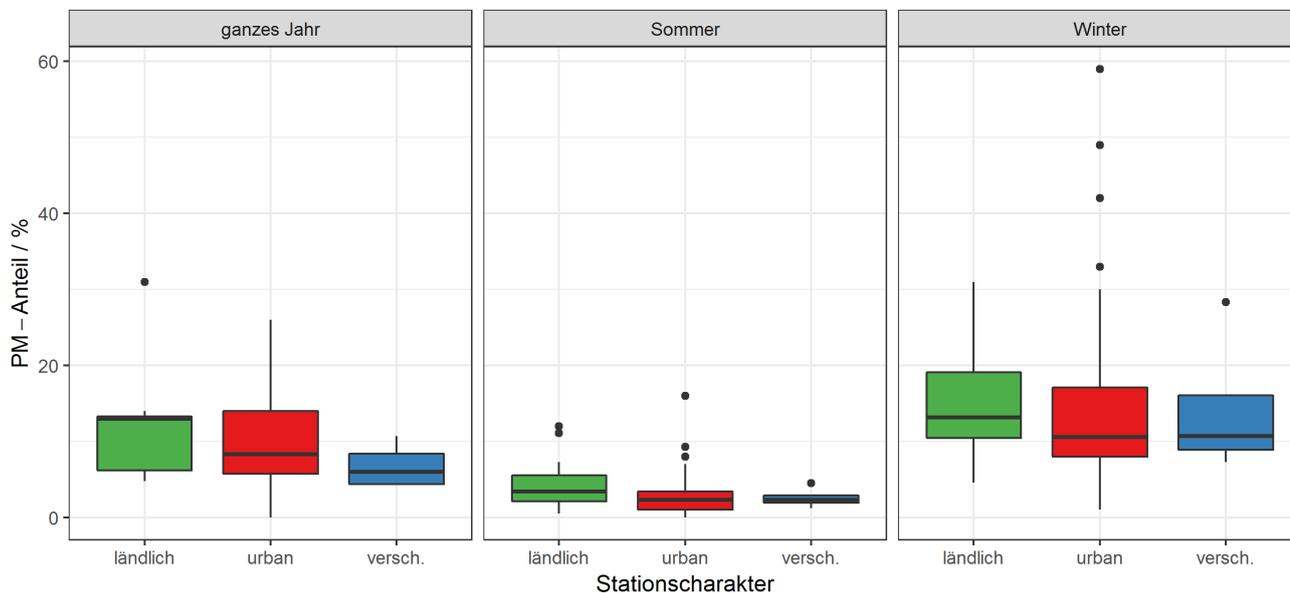


Abbildung 1: Box- Whisker Plots zum Anteil Holzverbrennungsaerosol am Gesamt- PM in den Kategorien „ganzes Jahr“, „Sommer“ und „Winter“ in Abhängigkeit vom Stationscharakter (versch. = keine genaue Angabe), ohne Betrachtung von Chemietransportmodell (CTM)- Studien

Es lässt sich ganz allgemein aus Abbildung 1 ableiten, dass die Verbrennung von Holz - in Abhängigkeit von den zuvor genannten Parametern - in den verschiedenen europäischen Regionen bis zu 30 % des Gesamt- PM₁₀ (oberes Ende der Antennen) ausmachen kann. Während der Anteil im Sommer eher gering ist (im Mittel < 10 %), werden dagegen im Winter Anteile bis etwa 1/3 der Partikelmasse auf Beiträge aus der Holzverbrennung zurückgeführt. Da die Emissionen vor allem dort auftreten, wo sich Menschen aufhalten, sind deren gesundheitliche Auswirkungen von großem Interesse. Da keine signifikanten Unterschiede des Anteils der Holzverbrennung am Gesamt- PM zwischen ländlich und urbanen Messstationen auftreten (vgl. grüne vs. rote Boxen Abbildung 1), werden als Quellregionen urbane und ländliche Gebiete gleichermaßen identifiziert.

3 Untersuchungsgebiet und experimentelle Methoden

Das ausgewählte Untersuchungsgebiet Melpitz (Stadt Torgau) in Sachsen ist ländlich, wenig orografisch gegliedert und wird nur von wenigen, nicht sehr intensiven weiteren Partikelquellen beeinflusst (siehe Abbildung 2).



Abbildung 2: Umgebung des Untersuchungsgebietes Melpitz mit wenigen störenden Emissionsquellen, Ortsumrandung Melpitz rot markiert, Quelle: Google Maps Kartendaten © 2018

3.1 Messkonzept

Das Messkonzept basiert auf einem „twin-site“ Konzept (engl. für „Zwillingsstationen“) mit zwei Messstationen in diesem Untersuchungsgebiet. Eine Messstation wurde direkt im Zentrum des Ortes Melpitz installiert (siehe Abbildung 3 a)). Der Standort und die Ausrichtung des Messcontainers (Dimensionen: 6,06 x 2,44 x 2,59 m) in der Ortsmitte von Melpitz sind in Abbildung 4 dargestellt. Bei der zweiten Messstation (siehe Abbildung 3 b)) handelt es sich um die 300 m westlich von Melpitz gelegene Forschungsstation des TROPOS. Im weiteren Verlauf werden die Messstationen stets in „Melpitz Ort“ und „Melpitz Station“ unterschieden.



Abbildung 3: Untersuchungsgebiet: a) Messstation Melpitz Ort und b) Melpitz Station, Quelle: Google Maps, Kartendaten © 2018

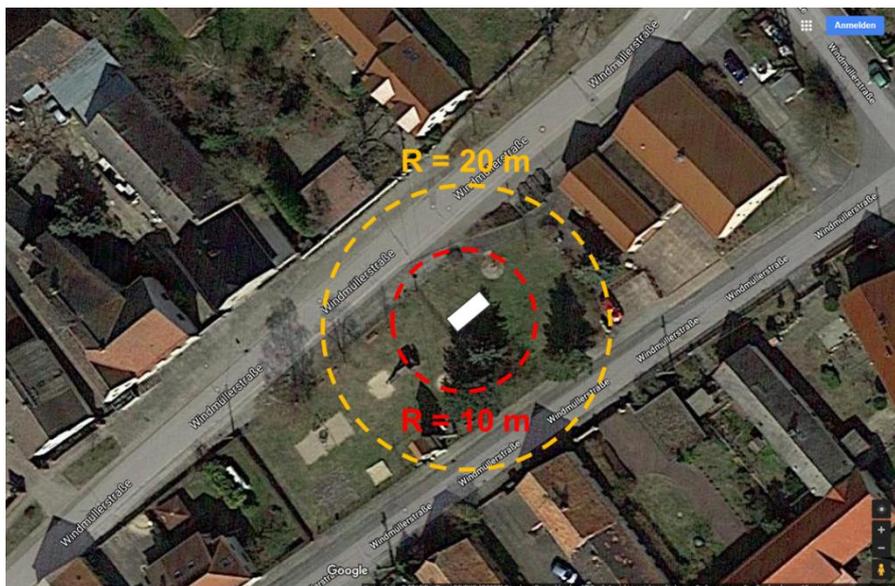


Abbildung 4: Standort des Messcontainers (weißes Rechteck) in der Ortsmitte von Melpitz, R = Radius, Quelle: Google Maps Kartendaten © 2018

Am 24. Oktober 2018 wurde der messbereite Container in der Ortsmitte von Melpitz (Abbildung 5) installiert.



Abbildung 5: Final aufgestellter Messcontainer in der Ortsmitte von Melpitz (Foto: Gerald Spindler, TROPOS)

Den Bürgern von Melpitz wurde ein geräuscharmer Messbetrieb zugesagt. Daher wurden vorbereitende Geräuschmessungen, unterstützt durch die Thüringer Landesanstalt für Umwelt und Geologie in Zusammenarbeit mit dem LfULG, Referat 52: Anlagenbezogener Immissionsschutz, Lärm, durchgeführt. Diese fanden am TROPOS (02.10.2018) und nach dem Aufbau in Melpitz, am 08.11.2018, statt und ergaben, dass das vom Messcontainer verursachte Geräusch bereits vor Ort subjektiv von den anwesenden Personen als leise empfunden wurde. Die Messungen im Ort Melpitz erfolgten in einem Abstand von 10 m um den Messcontainer herum (siehe Abbildung 6).

Die Auswertung der Messdaten ergab zusammenfassend im Maximum einen Beurteilungspegel von 30 dB (A), so dass sowohl der für ein Dorfgebiet geltende Nacht-Immissionsrichtwert von 45 dB (A) als auch der Nacht-Immissionsrichtwert für ein reines Wohngebiet von 35 dB (A) unterschritten wurden.

Der Betrieb des Containers in der Ortsmitte verlief reibungslos, es gab keine Beschwerden von den Einwohnern.



Abbildung 6: Geräuschmessungen am Messcontainer Melpitz Ort am 08.11.2018 (Foto: Gerald Spindler, TROPOS)

3.2 Physikalische und chemische Messungen

Zur physikalischen und chemischen Charakterisierung der Zusatzbelastung aus Holzheizungen wurde an beiden Messstationen anhand kontinuierlicher Messungen über einen Zeitraum von 12 Monaten (01.11.2018 - 31.10.2019) ein identischer Datensatz zu den in Tabelle 1 zusammengefassten Messparametern realisiert. Weiterhin sind in Tabelle 2 alle durch (offline-) Messungen zu analysierenden PM10- Inhaltsstoffe, die der Projektbearbeitung zu Grunde gelegt wurden, aufgelistet.

Tabelle 1: An den Messstationen Melpitz Ort und Melpitz Station installierte Messgeräte

Parameter	Zeitauflösung	Messgerät an beiden Stationen
Massenkonzentration PM10, PM2,5 und PM1	1 h	Grimm DR11R OPSS (Melpitz Ort) Grimm EDM107 OPSS (Melpitz Station) (alternativ MPSS und APSS)
Massenkonzentration PM10	24 h	Digitel HV- Sammler
eBC in PM10	1 h	MAAP 5012 und Mehrwellenlängen- Aethalometer AE33
Partikelanzahlgrößenverteilung 5 - 800 nm, 0,7 - 10 µm	1 h	MPSS und APSS
Spurengase NO, NO2, NOx	1 h	HORIBA APNA 370 Gasmonitor mit Molybdänkonverter
Meteorologie TMP, REF, GLO, WIG, WIR, LDR, NDS	1 h	Wetterstation Vantage Pro 2

OPSS: Optical Particle Size Spectrometer

MAAP: Multiangle Absorption Photometer

MPSS: Mobility Particle Size Spectrometer

APSS: Aerodynamic Particle Size Spectrometer

Tabelle 2: Auflistung der PM10- Inhaltsstoffe (24 h Auflösung)

PM10- Inhaltsstoffe	
Ionen	Chlorid, Nitrat, Sulfat, Ammonium, Natrium, Kalium, Calcium, Magnesium, Oxalat
Kohlenstoff-Summenparameter	Organischer Kohlenstoff (OC), elementarer Kohlenstoff (EC), wasserlöslicher organischer Kohlenstoff (WSOC)
Anhydromonosaccharide	Levoglucosan, Mannosan, Galactosan
PAKs	Benzo(a)anthrazen (BaA), Benzo(a)pyren (BaP), Benzo(b)fluoranthen (BbF), Benzo(j)fluoranthen (BjF) Benzo(k)fluoranthen (BkF), Dibenzo(a,h)anthrazen (DBahA), Indeno(1,2,3-cd)pyren (IcpP)
Alkane	n- Alkane C20 – C34
Hopane	17alpha(H)-22,29,30-Trisnorhopan (TRISNHOP), 17alpha(H),21beta(H)-30-Norhopan (NHOP), 17alpha(H),21beta(H)-Hopan (abHOP), 17beta(H), 21alpha(H)-Hopan (baHOP), 17alpha(H),21beta(H)-22S-Homohopan (ab22SHHOP), 17alpha(H),21beta(H)-22R-Homohopan (ab22RHOP), 17beta(H), 21beta(H)-Hopan (bbHOP), Hop-17(21)-en (HOPEN)
Metalle	Titan, Vanadium, Chrom, Mangan, Eisen, Cobalt, Nickel, Kupfer, Zink, Arsen, Selen, Rubidium, Strontium, Molybdän, Antimon, Barium, Blei

Nachfolgend werden die durchgeführten Mess- und Analysemethoden kurz erläutert.

3.2.1 Partikelanzahl-Größenverteilung

Die Partikelanzahlgrößenverteilung wurde mit einem Mobilitäts-Partikelgrößenpektrometer (MPSS; 5 - 800 nm; Typ TROPOS-TSMPS; (WIEDENSOHLER et al. 2012)) und einem Aerodynamischen Partikelgrößenpektrometer (APSS; 0,7 - 10 µm; Typ TSI Model 3321, (PFEIFER et al. 2016)) bestimmt. Die Qualität der Daten wurde durch regelmäßige Kalibrierungen gewährleistet (PFEIFER et al. 2016; WIEDENSOHLER et al. 2018).

Ein MPSS kann als einziges Gerät die Partikelgrößenverteilung im ultrafeinen Bereich messen. Ein MPSS bestimmt die Partikelanzahlgrößenverteilung in der Regel im Größenbereich zwischen 10 und 800 nm. Im MPSS wird das Aerosol zunächst mit Hilfe eines bipolaren Diffusionsaufladers definiert aufgeladen und es stellt sich ein bipolares Ladungsgleichgewicht ein. In einem differentiellen Mobilitätsanalysator (engl. Differential Mobility Analyser, DMA) werden geladene Partikel anhand ihrer elektrischen Mobilität im elektrischen Feld separiert. Nach der Separierung im elektrischen Feld wird die Partikelanzahlkonzentration für jeden Mobilitätskanal mittels eines Kondensations-Partikelzählers bestimmt. Mit Hilfe der bipolaren Ladungsverteilung wird dann aus der gemessenen elektrischen Mobilitätsverteilung eine Partikelanzahl-Größenverteilung berechnet.

Ein APSS kann die Partikelgrößenverteilung im Bereich 0,7 bis 10 µm messen. In diesem Größenbereich weisen die Partikel eine signifikante Partikelmasse auf, sodass die Trägheit nicht mehr vernachlässigbar ist. Das Prinzip des APSS beruht darauf, dass die Partikel innerhalb einer Düse stark beschleunigt werden. Partikel unterschiedlicher Trägheit brauchen unterschiedlich lange, um sich der Gasgeschwindigkeit anzupassen (Relaxationszeit). Direkt nach der Düse wird innerhalb einer Laser-Lichtschranke die Partikel- Flugzeit gemessen, die ein Maß für den aerodynamischen Durchmesser ist. An der Messstelle Melpitz Station betrug die Zeitauflösung der Einzelmessungen 10 Minuten. Dort erfolgten drei Messungen der Partikelgrößenverteilung pro Stunde. In den verbleibenden 30 Minuten jeder Stunde wurde die Partikelgrößenverteilung nicht volatiler Partikel nach einem Thermodenuder gemessen. Im Ort betrug die Zeitauflösung der Einzelmessungen 5 Minuten.

3.2.2 Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff

Die Massenkonzentrationen des partikulären äquivalenten schwarzen (eBC) Kohlenstoffes wurden mit zwei Absorptionsphotometern gemessen. Dabei kamen das Multiangle Absorption Photometer (MAAP; (PETZOLD UND SCHÖNLINER 2004)) und das Mehrwellenlängen-Aethalometer AE33 zum Einsatz (DRINOVEC et al. 2015).

In einem MAAP wird das Aerosol durch einen Partikelfilter geleitet, worauf die Partikel abgeschieden werden. Ein Laser (Wellenlänge: 637 nm) strahlt hierbei kontinuierlich durch den Filter. Drei Photodetektoren messen das durch den Filter transmittierte, vorwärts gestreute Licht und zwei das unter verschiedenen Winkeln zurückgestreute Licht. Die Abnahme des transmittierten Lichtes mit der Zeit ist ein Maß für die Lichtabsorption. Mit Hilfe eines integrierten Strahlungstransfermodells kann somit der Licht- Partikelabsorptionskoeffizient bestimmt werden. Unter Annahme eines Massenabsorptionsquerschnittes kann daraus die Masse des schwarzen Kohlenstoffes bestimmt werden. Die übliche Zeitauflösung ist eine Minute. Das MAAP erlaubt jedoch keine Rückschlüsse auf die Größe der abgelagerten Partikel.

Das Aethalometer AE33 funktioniert ähnlich wie das MAAP, allerdings wird nur die durch den Filter transmittierte Strahlung gemessen. Im Gegensatz zum MAAP werden allerdings 7 Wellenlängen verwendet (370, 470, 520, 590, 660, 880 und 950 nm). Durch einen internen Kalibrierungsfaktor wird durch die Änderung der Lichtschwächung bei 880 nm der schwarze Kohlenstoff bestimmt. Der Ångström- Exponent ist ein Maß für den spektralen Verlauf der Lichtabsorption und hat für schwarzen Kohlenstoff in dem betrachteten Wellenlängenbereich einen Wert von nahezu eins. Nimmt der Ångström- Exponent zu kleineren Wellenlängen zu, deutet das auf einen zusätzlichen Anteil von braunem Kohlenstoff hin. Das Gerät bietet an, den Massenanteil des eBC aus Biomassenverbrennung am gesamten schwarzen Kohlenstoff über ein hinterlegtes Modell abzuschätzen (SANDRADEWI et al. 2008).

3.2.3 Partikelmassenkonzentration, zeitaufgelöst

Zur Bestimmung der hoch zeitaufgelösten Partikelmassenkonzentration wurden optische Partikelgrößenspektrometer eingesetzt (OPSS). Ein OPSS kann die Partikelgrößenverteilung im Bereich größer als ca. 0,3 µm messen. Im OPSS wird der Aerosolstrom fokussiert und durch einen Laserstrahl geführt. Die Partikel streuen im Messvolumen Licht, dessen Intensität durch einen seitlich angebrachten Detektor gemessen wird. Die Partikel werden entsprechend der gemessenen Streulichtintensität einem optischen Partikeldurchmesser zugewiesen. Die Partikelmassenkonzentrationen können daraus mit hoher Zeitauflösung bestimmt werden. Dies ist allerdings nur unter mehreren Annahmen möglich, weil die gemessene Partikelanzahlgrößenverteilung, insbesondere für den feinen Größenbereich, unvollständig ist. Die Partikelanzahlgrößenverteilung wird dabei in eine Volumen- oder Massengrößenverteilung umgerechnet. Dazu werden vom Gerätehersteller Kalibrierkonstanten eingeführt, um eine Übereinstimmung mit der Referenzmethode zu erreichen.

Neben der Bestimmung der Massenkonzentration mit Hilfe von optischen Größenspektrometern können PM- Massen auch aus der Größenverteilung einer kombinierten Messung mit einem MPSS und einem APSS erfolgen. Die Berechnung erfolgt durch eine Integration über die Volumen- Größenverteilung, welche aus der Anzahl- Größenverteilung abgeleitet wird, und Multiplikation mit der Partikeldichte.

Da die TROPOS- Forschungsstation Melpitz eine ACTRIS- und GAW- Messstation ist, werden die physikalischen Messungen an einem PM10- Einlass betrieben. Diese Konfiguration konnte für die in diesem Projekt vorgesehenen Messungen nicht geändert werden. Da frühere Vergleiche für die Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes an einem PM1- und einem PM10- Einlass nur eine Abweichung von 5 % ergab (LÖSCHAU et al. 2013) (innerhalb der Messunsicherheit) war es unkritisch, die Messgeräte sowohl an der Forschungsstation, als auch in der Ortsmitte von Melpitz an einem PM10- Einlass zu betreiben.

3.2.4 Partikelmassenkonzentration, gravimetrisch

Im Gegensatz zu dem im Freien installierten PM10- Sammler an der TROPOS Forschungsstation wurde der Digital DHA-80 HV- Sammler an der Station in der Ortsmitte von Melpitz aus Gründen des Lärmschutzes innerhalb des Messcontainers installiert und mit einer Einlass- Durchführung zum PM10- Einlasskopf kombiniert. Zur Validierung der Vergleichbarkeit beider Setups (v. a. mit Bezug auf semiflüchtige Substanzen) wurden mehrere kurze Messintervalle durchgeführt, in denen auch an der Forschungsstation Melpitz ein zusätzlicher PM10- Sammler innerhalb eines Messcontainers installiert war. Die Probenahme erfolgte kalendertäglich (Tagesproben, 0 - 24 Uhr MEZ) mit einer Flussrate von 500 L min⁻¹ auf Quarzfaserfilter vom Typ MK 360 (Munktell, Schweden), die vor der Anwendung für 24 h bei 112 °C ausgeheizt wurden. Vor und nach der Beprobung wurden die Filter für 48 h bei 20 ± 1 °C und 50 ± 5% relativer Feuchte konditioniert. Danach erfolgte die Massebestimmung auf einer Waage (Mettler AT 261 Delta Range). Aus der Differenzbildung vor und nach der Beprobung wurde die Netto-Masse ermittelt. Die auf diese Weise gesammelten Partikel wurden anschließend bezüglich ihrer Inhaltsstoffe analysiert.

3.2.5 Ionen

Die Quantifizierung anorganischer Anionen und Kationen erfolgte nach wässriger Extraktion von drei 20 mm Kreisscheiben des Quarzfaserfilters (Spots) in Reinstwasser durch zweistündiges Schütteln mittels Ionenchromatographie (Dionex ICS3000). Für die Trennung der Anionen wurden AG18- und AS18-Säulen (2 mm) mit einem KOH- Eluenten und für die Trennung der Kationen CG16- und CS16-Säulen (3 mm) mit einem Methansulfonsäure- Eluenten verwendet. Es wurden die anorganischen Ionen Chlorid, Nitrat, Nitrit, Sulfat, Ammonium, Natrium, Kalium, Magnesium und Calcium, sowie zusätzlich das organische Ion Oxalat quantifiziert.

3.2.6 Organischer und elementarer Kohlenstoff

Die Quantifizierung der chemischen Summenparameter OC und EC erfolgte nach einer thermo-optischen Zweischrittmethode (Dual optischer Kohlenstoffanalysator, Sunset Laboratory Inc. Tigard, U.S.A.) von einem 1,5 cm² großen Aliquot des Quarzfilters nach dem EUSAAR2-Temperaturprotokoll (CAVALLI et al. 2010). OC und EC wurden durch Aufheizung bis 650 °C in zwei Schritten in Inertgas (Helium, OC) und oxidierender Atmosphäre (He/O₂, EC) vom Quarzfilter desorbiert und das abgegebene CO₂ nach Überführung in Methan (Methanisierung) indirekt mit einem Flammen- Ionisationsdetektor bestimmt. Durch die Messung der Transmission eines Lasers (Wellenlänge 678 nm) wird die Schwärzung der Probe verfolgt und eine Korrektur der Verkokung von OC (charring correction) vorgenommen, da diese zu einem positiven EC- Artefakt in Form von pyrolytischem Kohlenstoff führt. Die hier beschriebene Methode wird im Rahmen von EMEP, ACTRIS und ACTRIS2 zunehmend einheitlich in Europa angewendet, um vergleichbare Ergebnisse für OC und EC zu erhalten. Zur Überprüfung der Methode nimmt das TROPOS jährlich an europäischen Ringversuchen teil.

3.2.7 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 synthetischer Luft anorganischer Kohlenstoff als CO₂ ausgetrieben und der gelöste organische Kohlenstoff anschließend bei 720 °C katalytisch zu CO₂ oxidiert. Dieses wird mittels nicht dispersiver IR- Spektroskopie quantifiziert.

3.2.8 Unpolare organische Einzelverbindungen

Die Quantifizierung ausgewählter unpolarer semivolatiler organischer Einzelspezies aus den Stoffgruppen polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK, inkl. BaP), n-Alkane und Hopane erfolgte direkt von Aliquoten der Quarzfilter (zwei 6 mm Spots, 56,55 cm²) 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- Pyrolysator JPS-350 (Japan Analytical Industry, Ltd.) dient als schneller Thermodesorber. Die Probe wird im Curiepunkt- Pyrolysator in Heliumatmosphäre bei 510°C verdampft, anschließend gaschromatographisch getrennt und anhand charakteristischer Massenspuren quantifiziert. Das verwendete GC-MS-System war ein AGILENT 6890N GC/5973 MSD. Die Nachweisgrenzen liegen bei diesem Verfahren im Bereich 1 - 60 pg m⁻³. Für höhere Genauigkeit wurden die PAK in diesem Projekt im „selected ion monitoring“ –Modus (SIM) und auf einer anderen Trennsäule analysiert als die Alkane und Hopane.

3.2.9 Anhydromonosaccharide

Für die Analyse von Anhydromonosacchariden wurde die Hochleistungs- Anionenaustausch-Chromatographie gekoppelt mit einem elektrochemischen Detektor (HPAEC-PAD) eingesetzt (IINUMA et al. 2009). Als für die Holzverbrennung charakteristische Tracer wurden Levoglucosan, Mannosan und Galactosan analysiert.

3.2.10 Metalle

Für die Metallanalytik wurden Teilstücke des Quarzfaserfilters (drei Spots á 8 mm) chemisch in 1,5 ml inversem Königswasser (drei Teile konzentrierte Salpetersäure und ein Teil konzentrierte Salzsäure) in einem Mikrowellenaufschlussgerät (CEM, Mars 6) aufgeschlossen. Die Quantifizierung der Metalle erfolgte mit Hilfe der Totalreflexions-Röntgenfluoreszenzanalyse (Total Reflection X-ray Fluorescence, TXRF). Es wurde dafür ein S2 Picofox von Bruker mit einer Mo- Röntgenquelle verwendet. Ein einfallender Röntgenstrahl trifft auf ein poliertes Probensubstrat bei sehr kleinen Einfallswinkeln (< 0,1°), um eine Totalreflexion des Strahls innerhalb der Probe zu erreichen, und die fluoreszierenden Photonen von der Probe werden detektiert. Mit der Mo- Röntgenquelle ist

Picofox in der Lage, Elemente von Aluminium bis Bismut zu messen, wobei die Nachweisgrenze stark von der Metallkontamination des verwendeten Filtermaterials abhängt. Dies wurde im fallspezifischen Detektionslimit berücksichtigt.

3.3 Datenprozessierung

3.3.1 Meteorologie

Zur Datenauswertung der meteorologischen Parameter Temperatur (TMP / °C), relative Feuchte (RFE / %), Globalstrahlung (GLO / W m⁻²), Windgeschwindigkeit (WIG / m s⁻¹), Windrichtung (WIR / °) und Luftdruck (LDR / mbar) wurden die minütlich aufgezeichneten Rohdaten (Verfügbarkeit ≥ 75% vorausgesetzt) als Stundenmittelwerte zusammengefasst. Für den Parameter Niederschlag (NDS / mm) dagegen wurde die Summe pro Stunde gebildet. Weiterhin soll darauf hingewiesen werden, dass der eingesetzte Typ an Messtechnik für den Parameter Windgeschwindigkeit einen Messbereich von 1 - 54 m s⁻¹ aufweist. Messzeiten mit Werten < 1 m s⁻¹ wurden zur Bestimmung der Stundenmittelwerte mit verwendet, sind allerdings nicht mit der vom Hersteller üblicherweise angegebenen Genauigkeit von 5% validiert. Stundenmittelwerte deren Anteil minütlicher Werte mit Windgeschwindigkeiten < 1 m s⁻¹ größer als 75% betrug, wurden als „Windstille Stunden“ definiert und sind in manchen Darstellungen explizit gekennzeichnet und in anderen Darstellungen unberücksichtigt geblieben.

3.3.2 Stickoxide

Zur Datenauswertung der Spurengase Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) wurden die in 3- Minuten Intervallen aufgezeichneten Rohdaten (Verfügbarkeit ≥ 75% vorausgesetzt) als Stundenmittelwerte zusammengefasst. Der Parameter NO_x (Stickoxide) bildet sich aus der Summe von NO und NO₂. Die als Mischungsverhältnisse in ppb aufgezeichneten Messwerte wurden temperatur- und druckabhängig in µg m⁻³ umgerechnet.

3.3.3 Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff und Anteil aus Biomassenverbrennung

Die Umrechnung des vom MAAP bestimmten Licht- Absorptionskoeffizienten bei der Wellenlängen 637 nm in eine Rußmasse erfolgte mit einem bekannten Massenabsorptionsquerschnitt. Der Wert des Massenabsorptionsquerschnitts variiert aber je nach Rußquelle und Alterungszustand des Aerosols. Daher wurde empfohlen (PETZOLD et al. 2013), die aus optischen Messungen abgeleiteten Rußmassen als äquivalente Rußmasse (eBC engl. equivalent Black Carbon) zu bezeichnen. Für das MAAP wurde ein Absorptionsquerschnitt von 6,6 m² g⁻¹ durch Vergleich mit einer Thermodesorptions- Referenzmethode (VDI 1996) bestimmt. Die äquivalente Rußkonzentration wird intern für eine Standardatmosphäre (Temperatur 0 °C und Druck 1013,25 hPa) berechnet und minütlich aufgezeichnet.

Beim Aethalometer vom Typ AE33 wird im Gegensatz zum MAAP nicht der Licht- Absorptionskoeffizient, sondern der Licht- Abschwächungskoeffizient direkt bestimmt. Den Unterschied zwischen diesen beiden Größen kann man folgendermaßen beschreiben. Der Licht- Absorptionskoeffizient entspricht der Lichtabsorption von luftgetragenen Partikeln und der Licht- Abschwächungskoeffizient entspricht der kombinierten Lichtabsorption von Partikeln, welche in einem Filter eingelagert sind. Durch Vielfachstreuung wird der Lichtweg im Filter verlängert, so dass die Partikel effektiv mehr Licht absorbieren können. Der Licht- Abschwächungskoeffizient ist abhängig von Filtermaterial und Partikel- Eindringtiefe und beträgt typischerweise das 2 bis 4- fache des Partikel- Absorptionskoeffizienten. Der Hersteller des AE33 korrigiert diesen Unterschied indem zur Bestimmung der Rußmasse nicht der Massen- Absorptionsquerschnitt, sondern ein Filtertyp abhängiger spezifischer

Abschwächungsquerschnitt verwendet wird. Für das AE33 (Filtertyp M8050) wird bei einer Wellenlänge von 660 nm ein Wert von $14,4 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ verwendet. Die Bestimmung des Abschwächungsquerschnitts erfolgte durch Vergleiche mit Referenzmethoden. Auch beim AE33 wird die abgeleitete Konzentration als äquivalente Rußkonzentration bezeichnet.

Dadurch, dass im Gegensatz zum MAAP nur Licht in Transmission gemessen wird, können Beladungskorrekturen nicht durch ein Strahlungstransfermodell erfolgen. Stattdessen wird die Dual Spot Methode (DRINOVEC et al. 2015) angewandt. Durch die unterschiedlichen Methoden können die Messwerte von MAAP und AE33 bis zu 30 % abweichen. Das MAAP wird aber aufgrund des verwendeten Strahlungstransfermodells in Fachkreisen als das verlässlichere Gerät zur Bestimmung der äquivalenten Rußkonzentration angenommen.

Bei der Auswertung der optischen Messungen muss beachtet werden, dass nicht eine spezifische chemische Komponente gemessen wird, sondern die aus der Zusammensetzung resultierenden optischen Eigenschaften.

Bei Messungen mit einem AE33 wird die Lichtabsorption spektral gemessen. Aus diesen Messungen kann nach SANDRADEWI et al. (2008) auf zwei unterschiedliche absorbierende Aerosoltypen geschlossen werden. Die Methode beruht darauf, die spektrale Lichtabsorption in zwei wellenlängenabhängige Anteile zu zerlegen. Der eine Teil repräsentiert den schwarzen Kohlenstoff, und wird in SANDRADEWI et al. (2008) als durch „Verkehr verursachter“ Anteil bezeichnet. Der andere Anteil repräsentiert den durch Biomassenverbrennung verursachten Anteil mit einer signifikant stärkeren Wellenlängenabhängigkeit. Dabei muss beachtet werden, dass bei Biomassenverbrennung sowohl brauner Kohlenstoff (hoher Anteil organischen Materials) als auch schwarzer Kohlenstoff entstehen.

Der Anteil am gemessenen eBC, der aus Biomassenverbrennung stammt, wird prozentual als BB (biomass burning fraction) ausgegeben. Die Interpretation von BB muss folgerichtig lauten:

- BB gibt den prozentualen Anteil der Lichtabsorption durch ein stark wellenlängenabhängiges Aerosol wieder, wobei Biomassenverbrennung ein Proxy für stark wellenlängenabhängiges Aerosol ist.
- BB gibt auch den prozentualen Anteil der eBC Masse (1-BB) aus verkehrsbedingten Emissionen wieder.
- Das Verhältnis, des aus Biomassenverbrennung stammenden schwarzen und braunen Kohlenstoff beeinflusst die spektrale Wellenlängen- Abhängigkeit und somit auch den abgeleiteten Wert für BB.
- Aus BB und eBC kann nicht auf die Massenkonzentration von Biomassenverbrennungsaerosol geschlossen werden, da dessen Massenabsorptionskoeffizient nicht gegeben ist.

Der Wert von BB ist somit nur ein Relativwert. Das Produkt aus BB und eBC ist somit ein Maß für die Konzentration von Biomassenverbrennungsprodukten. Obwohl dieses Maß die Einheit einer Massenkonzentration hat, spiegelt es lediglich den Anteil der durch Biomassenverbrennung verursachten Lichtabsorption wieder. Die Auswertung der Zeitserien der Biomassenverbrennungs-Fraktion (BB) ergab, dass der Wert nur eine geringe Variabilität zeigt. Die Werte betragen zwischen 23 und 42 % für Melpitz Ort und zwischen 19 bis 34 % für Melpitz Station, wobei kein Jahresgang erkennbar war. Diese Werte legen nahe, dass das Modell nach SANDRADEWI et al. (2008) nicht auf das während dieser Kampagne vorherrschende Biomassenverbrennungsaerosol anwendbar ist. Auf weitere Auswertungen des Parameters BB und daraus folgender Produkte wird in diesem Bericht verzichtet. Aufgrund dieser Erkenntnisse werden die Daten der Kampagne weiter ausgewertet werden um ein für Melpitz angepasstes Modell, angelehnt an SANDRADEWI et al. (2008), zu entwickeln.

3.3.4 Partikelanzahlkonzentrationen und PMx- Massenkonzentrationen aus Partikelanzahlgrößenverteilungen

Die Partikelanzahlgrößenverteilungen gemessen mit jeweils einem MPSS und APSS wurden zunächst zusammengefügt. Die Partikelanzahlgrößenverteilung (der Partikeldurchmesser entspricht dem Durchmesser volumenäquivalenter Partikel) wurde aus den Rohwerten durch einen Inversionsalgorithmus ermittelt (PFEIFER et al. 2014). Die aerodynamische Anzahlgrößenverteilung, gemessen mit dem APSS wird unter Annahme sphärischer Partikel mit einer Dichte von $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ auf eine volumenäquivalente Anzahl- Größenverteilung umgerechnet. Die beiden Größenverteilungen wurden bei einem Durchmesser von 700 nm zusammengefügt und unter der Annahme einer konstanten Dichte von $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ für den gesamten Größenbereich eine Partikelmassenverteilung berechnet. Durch numerische Integration der Partikelmassenverteilung wurden die Massenkonzentrationen von PM1, PM2,5 und PM10 berechnet, und durch numerische Integration der Partikelanzahlgrößenverteilung die Partikelanzahlkonzentrationen für Partikel in den Größenbereichen 10 bis 50 nm (N_{10-50}), 50 bis 150 nm (N_{50-150}) und 150 bis 800 nm ($N_{150-800}$) bestimmt.

Zur Auswertung der Massen- und Partikelanzahlkonzentrationen wurden die Werte (Verfügbarkeit $\geq 75 \%$ vorausgesetzt) als Stundenmittelwerte zusammengefasst.

3.3.5 Zeitreihen, Zeitprofile und Bilanzierung nach Lenschow

Für die zeitlich aufgelösten Messparameter der online Geräte wurden stündliche Mittelwerte berechnet, wobei bei einer Datenverfügbarkeit von $< 75 \%$ der Stundenmittelwert als nicht verfügbar definiert wurde.

In den Darstellungen der Ergebnisse als Zeitreihen (Kapitel 4.1) sind alle verfügbaren Messdaten enthalten. Im Gegensatz dazu wurden für alle weiteren, die Stationen vergleichenden, Auswertungen die in Tabelle 3 zusammengefassten Tage entfernt.

Tabelle 3: Übersicht Tage im Messzeitraum, die aufgrund ihrer Sonderstellung nicht in der vergleichenden Auswertung berücksichtigt wurden

Tag	Ereignis	in Melpitz	großräumig
15.12.2018	Weihnachtsmarkt Ortskern Melpitz	X	
31.12.2018	Silvester	X	X
01.01.2019	Neujahr	X	X
24.-26.05.2019	Schützenfest	X	

An diesen Tagen fanden besondere Ereignisse statt, die zu untypisch hohen Konzentrationen verschiedener Messparameter im Ort geführt haben und durch die die später berechneten mittleren zeitlichen Variationen verfälscht würden.

3.4 Datenverfügbarkeit

In Tabelle 4 ist die Datenverfügbarkeit der verschiedenen Messparameter an beiden Messstationen im Untersuchungszeitraum zusammengefasst.

Tabelle 4: Datenverfügbarkeit in % an beiden Messstationen bezogen auf Stunden- bzw. Tagesmittelwerte im Untersuchungszeitraum 01.11.2018 bis 31.10.2019

Messparameter	Datenverfügbarkeit Melpitz Ort / %	Datenverfügbarkeit Melpitz Station / %
Meteorologie	96	99
Stickoxide	96	97
Partikelanzahlgrößenverteilung (MPSS)	97	100
eBC in PM10 (Aethalometer)	90	90
eBC in PM10 (MAAP)	93	98
Massenkonzentration PM1, PM2,5 und PM10 (1 h)	97 (PM1) 84 (PM2,5 und PM10)	99
Massenkonzentration PM10 (24 h)	97	100
Inhaltsstoffe (24 h)	97	100

Die Datenverfügbarkeit ist mit Werten von in der Regel > 96 % an beiden Messstationen sehr gut. Ausnahmen stellen die Geräte Aethalometer (90 %), MAAP Ort (93 %) und APSS Ort (84 %) dar. Ursache sind einzelne technische Ausfälle, notwendige Gerätereparaturen und anschließende Kalibrierverfahren. Allerdings soll darauf hingewiesen werden, dass der wichtigste Messzeitraum (Winter bzw. die Heizperiode) im vorliegenden Projekt davon nicht betroffen ist.

3.5 Maßnahmen Qualitätssicherung (QA/QC)

Im Rahmen der Qualitätssicherung wurden für die in Tabelle 1 aufgeführten Messgeräte QA/QC- Maßnahmen durchgeführt deren Ergebnisse nachfolgend vorgestellt und diskutiert werden.

3.5.1 Wetterstation Vantage Pro 2

Die Kalibrierung der Geräte erfolgte vom Hersteller. Allerdings wurde vor Kampagnenbeginn explizit durch Messungen beider Wetterstationen an einem identischen Standort (Forschungsstation Melpitz) deren Vergleichbarkeit überprüft und als sehr gut beurteilt.

3.5.2 NO_x- Analysatoren

Beide Geräte wurden vor Messbeginn im Kalibrierlabor des TROPOS parallel mit Prüfgas kalibriert und während der Zeit der Messung routinemäßig kontrolliert. Im Anschluss an den Untersuchungszeitraum wurden beide Messgeräte parallel an der TROPOS- Forschungsstation betrieben und verglichen. Das Ergebnis dieses Messgerätevergleiches ist in Abbildung 7 dargestellt.

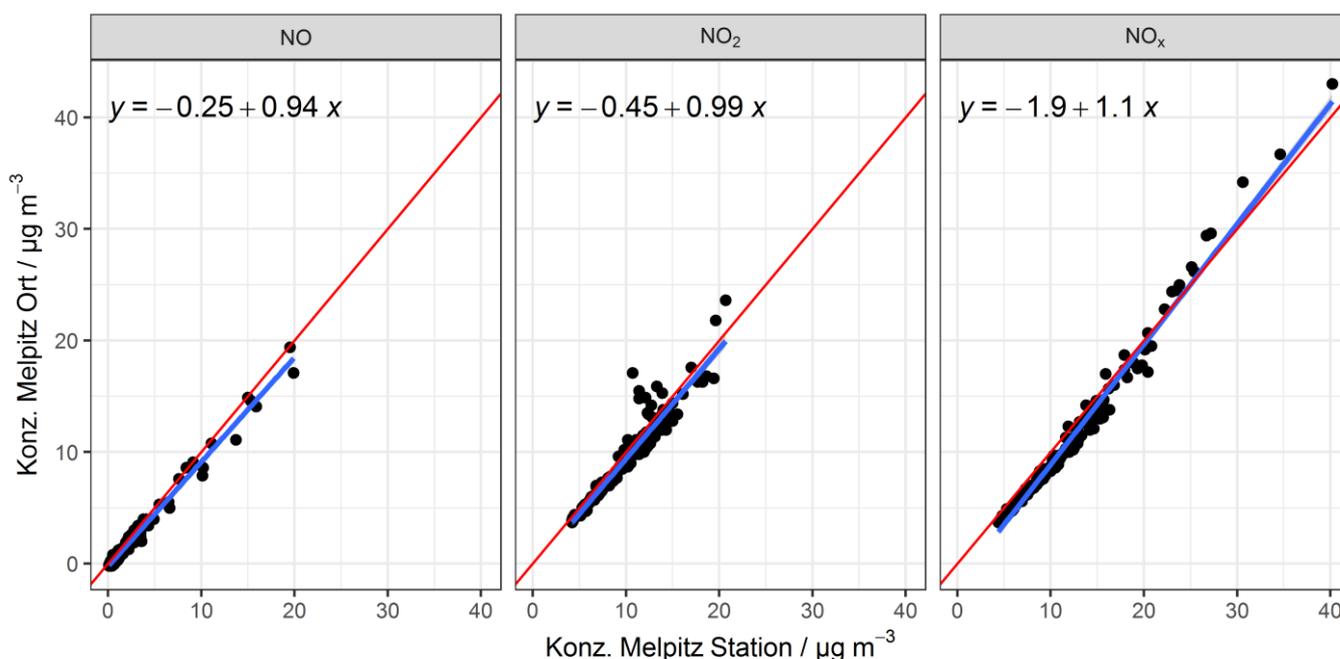


Abbildung 7: Scatterplots der Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x aus dem Messgerätevergleich der NO_x- Analysatoren Melpitz Station vs. Melpitz Ort. Der Vergleich erfolgte im Zeitraum 18.-25.11.2019 an der TROPOS- Forschungsstation, die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

Vergleicht man die Messdaten in der Weise wie später im Bericht die Zusatzbelastung im Ort ermittelt wird, also als Inkrementbildung „Konzentration im Ort“ minus „Konzentration an der Station“ ergibt sich eine mittlere Abweichung der beiden NO_x- Analysatoren von -0,4 µg m⁻³ für NO, -0,6 µg m⁻³ für NO₂ und -1,0 µg m⁻³ für NO_x. Dies liegt im Bereich der Fehlergrenzen des Gerätetyps, deutet aber ebenso wie der negative Achsenabschnitt der Regressionsgeraden daraufhin, dass der NO_x- Monitor an der Station Melpitz eine geringe systematische Abweichung hin zu höheren Konzentrationen gehabt haben könnte.

3.5.3 Partikelanzahlgrößenverteilung aus MPSS und APSS und abgeleitete PM - Massenkonzentrationen

Zur Qualitätssicherung wurden die Partikelgrößenpektrometer MPSS im Anschluss an die Messphase an der Forschungsstation Melpitz parallel betrieben. Die gemittelte Partikelanzahlgrößenverteilung über den Zeitraum einer Woche ist in Abbildung 8 dargestellt. Abweichungen von bis zu 10 % für Partikel kleiner 100 nm im Durchmesser sind im Bereich der Unsicherheiten für MPSS Systeme. Für Partikel im Bereich des Akkumulations-Mode, welche die PM1- Massenkonzentration dominieren, betragen die Abweichungen weniger als 4 %.

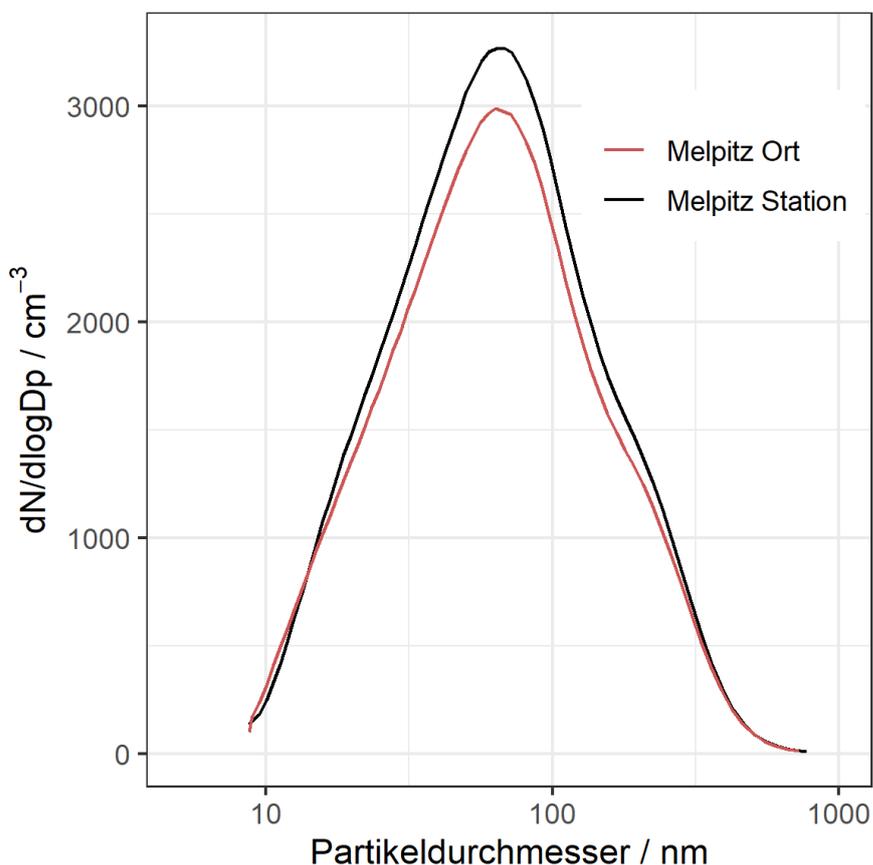


Abbildung 8: Vergleich der Partikelanzahlgrößenverteilung für die beiden MPSS an der Station Melpitz im Nachgang der einjährigen Messungen

Eine geplante Vergleichsmessung der aerodynamischen Partikelgrößenpektrometer (APSS) im Anschluss an die Messphase konnte aufgrund eines Geräteausfalls an der Messstation Melpitz Ort von Mitte bis Ende September nicht erfolgen. Durch die nötige Reparatur und Neu-Kalibrierung beim Hersteller wurde die Kalibrierkette für dieses Gerät wiederhergestellt. Eine Vergleichsmessung der Geräte hätte aber keine Aussagekraft für die Messungen von November 2018 bis September 2019. Da der überwiegende Anteil der Masse im Größenbereich des MPSS liegt, hat die fehlende Qualitätskontrolle der APSS keine Auswirkungen auf die Aussagekraft der ermittelten PM- Werte.

3.5.4 MAAP

Bei einem Gerätevergleich nach der Messkampagne wurden die beiden MAAPs 7 Tage parallel an der Messstation Melpitz betrieben. Die eBC- Werte des Geräts MAAP-Ort waren um 1,9% höher als die Werte des Geräts MAAP-Station, und der Korrelationskoeffizient betrug 0,997. Der Unterschied von 1,9 % (siehe Abbildung 9) liegt im Rahmen der Unsicherheiten der einzelnen Geräte und ist damit nicht signifikant.

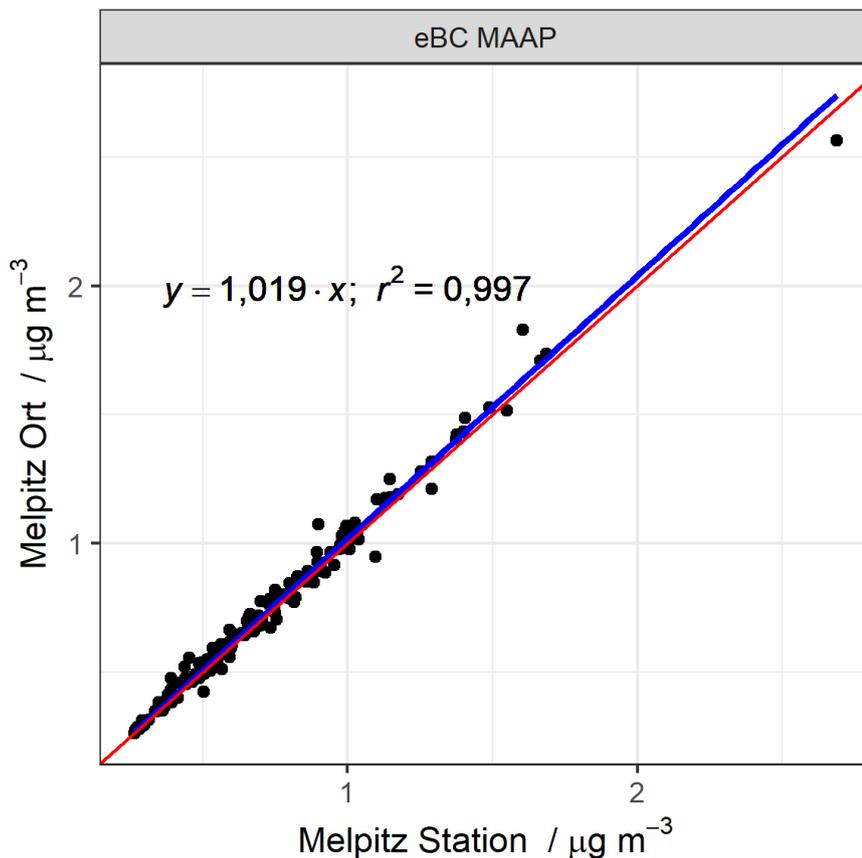


Abbildung 9: Vergleich der Geräte MAAP-Ort und MAAP-Station im Anschluss an die einjährige Messkampagne, die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

3.5.5 AE33

Ein Gerätevergleich fand während der Kampagne am 11. und 12. Juni im Kalibrierlabor des TROPOS statt und zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit 1,7 % höheren Werten für AE33-Station und einem Korrelationskoeffizienten von nahe eins. Zur Bestätigung wurde auch ein drittes Gerät (AE33-Ref) des Kalibrierzentrums in den Vergleich mit einbezogen, welches mit dem Gerät AE33-Station exakt übereinstimmte und 1,7 % höhere Werte als AE33-Ort zeigte. Die Unterschiede sind im Rahmen der Geräteunsicherheiten und werden als nicht signifikant betrachtet.

Der Unterschied des relativen Anteils der Holzverbrennung an eBC (BB) zwischen AE33-Ort und AE33-Station beträgt 1,7% (Abbildung 10) bei einem Bestimmtheitsmaß (R^2) von 0,85. Bei einem Vergleich mit dem Laborreferenzgerät des TROPOS (AE33-Ref) waren AE33-Station und AE33-Ort um 19% bzw. 17% niedriger. Die Bestimmtheitsmaße betragen nur 0.39 bzw. 0.31. Der Wertebereich von BB während der Labormessungen betrug nur zwischen 5 bis 35%, obwohl zum Vergleich Umgebungsaerosol (Leipzig, städtischer Hintergrund) und Ruß einer Propangasflamme (CAST, King Ltd) verwendet wurden. Bei diesen Aerosoltypen wird erwartet, dass die Absorption durch äquivalenten schwarzen Kohlenstoff dominiert wird. Es fand kein Labor-Test mit einem Aerosol mit hohem Biomassen-Verbrennungsanteil statt. Dennoch wurden Werte für BB von bis zu 35% gemessen. Zwischen den drei Geräten unterschieden sich BB Werte um bis zu 20%, während sich die eBC Massenkonzentrationen nur um weniger als 2% unterschieden. Zusammenfassend kann ausgesagt werden, dass die Geräte AE33-Ort und AE33-Station auch im Wert von BB gut übereinstimmen, die unerklärten Abweichungen mit ein drittem Geräte, dem Labor Referenzgerät, und die niedrigen Bestimmtheitsmaße weisen aber auf eine große Unsicherheit in der Bestimmung des BB-Wertes mit dem in dem Gerät verwendeten Algorithmus hin.

Die starke Streuung zwischen den Geräten folgt aus der Unsicherheit des Modells zur Berechnung des BB- Werts auf Basis von Einzelmessungen mit statistischen Fehlern (Messrauschen). Derzeit liegen keine Arbeiten vor, welche die Unsicherheiten des BB- Parameters systematisch untersuchen. Dieser Vergleich zeigt, dass die Entwicklung eines für diese Studie angepassten Modells zur Bestimmung der Biomassenfraktion (Kapitel 3.3.3) auch die Sensitivität bezüglich der Messunsicherheiten berücksichtigen muss.

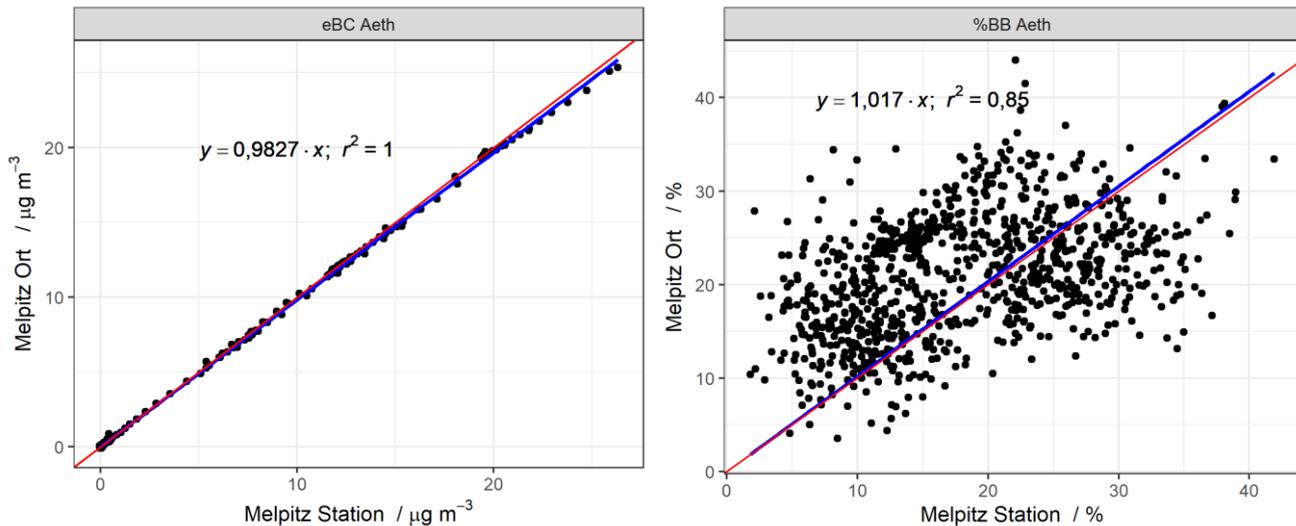


Abbildung 10: Vergleich der Geräte AE33-Ort und AE33-Station im Kalibrierlabor des TROPOS für die äquivalente Rußkonzentration (eBC) und den Anteil der Biomassenverbrennung am äquivalenten Ruß (BB), die blaue Linie zeigt die lineare Regression, die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

3.5.6 OPSS

Aus Messungen mit optischen Größenspektrometern können die Partikelanzahlgrößenverteilung bzw. Massenkonzentrationen abgeleitet werden. Das optische Größenspektrum eines OPSS deckt aber nur einen geringeren Größenbereich als die Kombination von MPSS und APSS ab. Mit einer unteren Nachweisgrenze von über 300 nm (optisch äquivalenter Durchmesser) wird die Partikel-Massenkonzentration im Feinmode des atmosphärischen Aerosols nur zu einem Bruchteil erfasst. Da die Geräte auf einer Messung des Streulichts beruhen, müssen zur Bestimmung des Durchmessers von volumen- äquivalenten Partikeln Korrekturen um den Brechungsindex, die Partikeldichte und die Partikelmorphologie durchgeführt werden, welche zu großen Unsicherheiten in der Bestimmung der Massenkonzentration führen. Prinzipiell ist eine ortsabhängige Kalibrierung der Massenbestimmung mithilfe einer gravimetrischen Filtermessung erforderlich, die aber nicht vorliegt. Ein Vergleich der PM1- Konzentrationen der OPSS mit aus MPSS und APSS abgeleiteten PM1- Massenkonzentrationen wurde durchgeführt und zeigte, dass die Verhältnisse in der PM1- Masse aus OPSS und MPSS / APSS Messungen für Melpitz Ort um den Faktor 1,4 höher bzw. für Melpitz Station um einen Faktor von 1,9 geringer waren. Diese großen Unterschiede weisen auf die Notwendigkeit von ortsabhängigen (Aerosoltyp) Kalibrierungen hin. Da durch die MPSS/APSS Messungen eine zeitlich hochauflösende Bestimmung von PM-Konzentrationen zur Verfügung steht (einer Kalibrierung mit der Referenzmethoden ist hier nicht notwendig), wurde im Weiteren auf die Auswertung der OPSS- Daten verzichtet.

3.5.7 Digital HV- Sammler

Die eingesetzten Digital HV- Sammler werden vom Hersteller kalibriert und vom TROPOS routinemäßig überprüft. Zudem wurde an der Forschungsstation ein weiterer baugleicher Digital HV- Sammler in einem klimatisierten Container installiert und jeden 6. Tag im Projektzeitraum beprobt. Dieser Vergleich wurde durchgeführt, um

sicherzustellen, dass der Betrieb der Sammler an der Station und im Ort bei unterschiedlichen Temperaturen (Station im Freien bei Umgebungstemperatur, Ort im klimatisierten Messcontainer) nicht zu systematischen Abweichungen der Partikelzusammensetzung, insbesondere bei semiflüchtigen Verbindungen führt. Solche Unterschiede könnten theoretisch bei der Sammlung und bei der Lagerung der beprobten Filter im Gerät bis zu ihrer Abholung durch große Temperaturunterschiede, insbesondere im Sommer und Winter auftreten. Daher werden im Folgenden die im Container an der Forschungsstation erhaltenen Konzentrationen für Masse, Ionen (Ammonium und Nitrat sind teilweise flüchtig) OC/EC (semiflüchtige Organika) und PAK (semiflüchtig) mit denen der bei Außentemperatur an der Forschungsstation erhaltenen verglichen.

Die Ergebnisse für PM10- Masse sind in Abbildung 11 gezeigt.

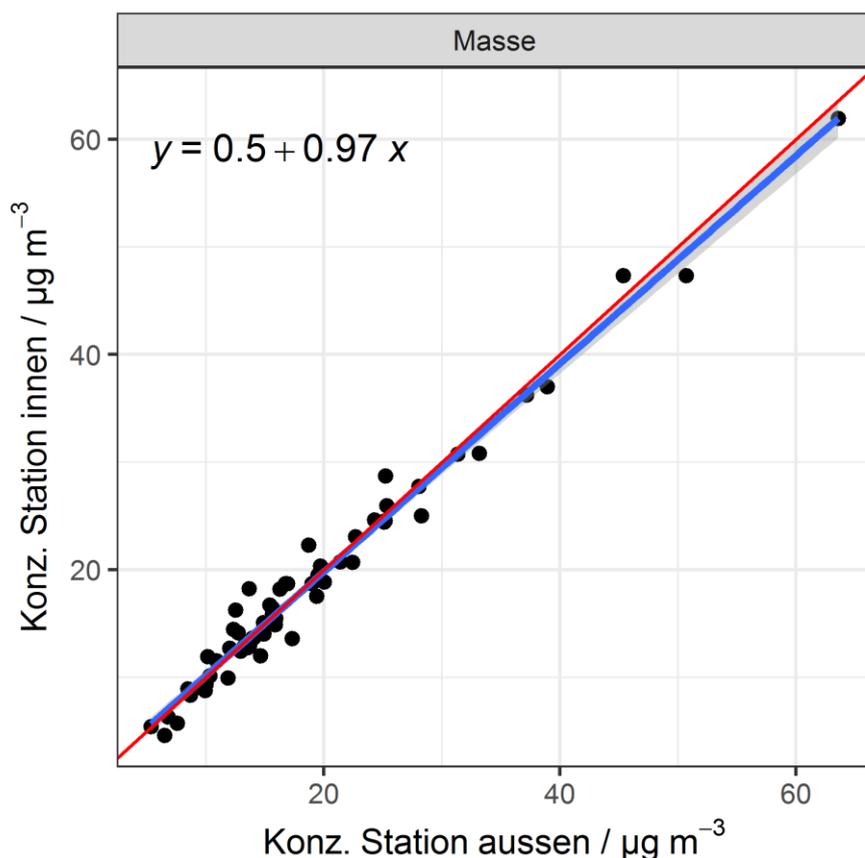


Abbildung 11: Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die PM10- Massenkonzentration an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

Aus dem Anstieg der linearen Regression in Abbildung 11 geht hervor, dass die Position des Sammlers (außen- vs. innenstehend) keinen wesentlichen Einfluss auf die zu bestimmende PM10- Massenkonzentration besitzt. Dies bestätigt sich ebenfalls für die semiflüchtigen Ionen Ammonium und Nitrat, und auch die meisten anderen Ionen (siehe Abbildung 12).

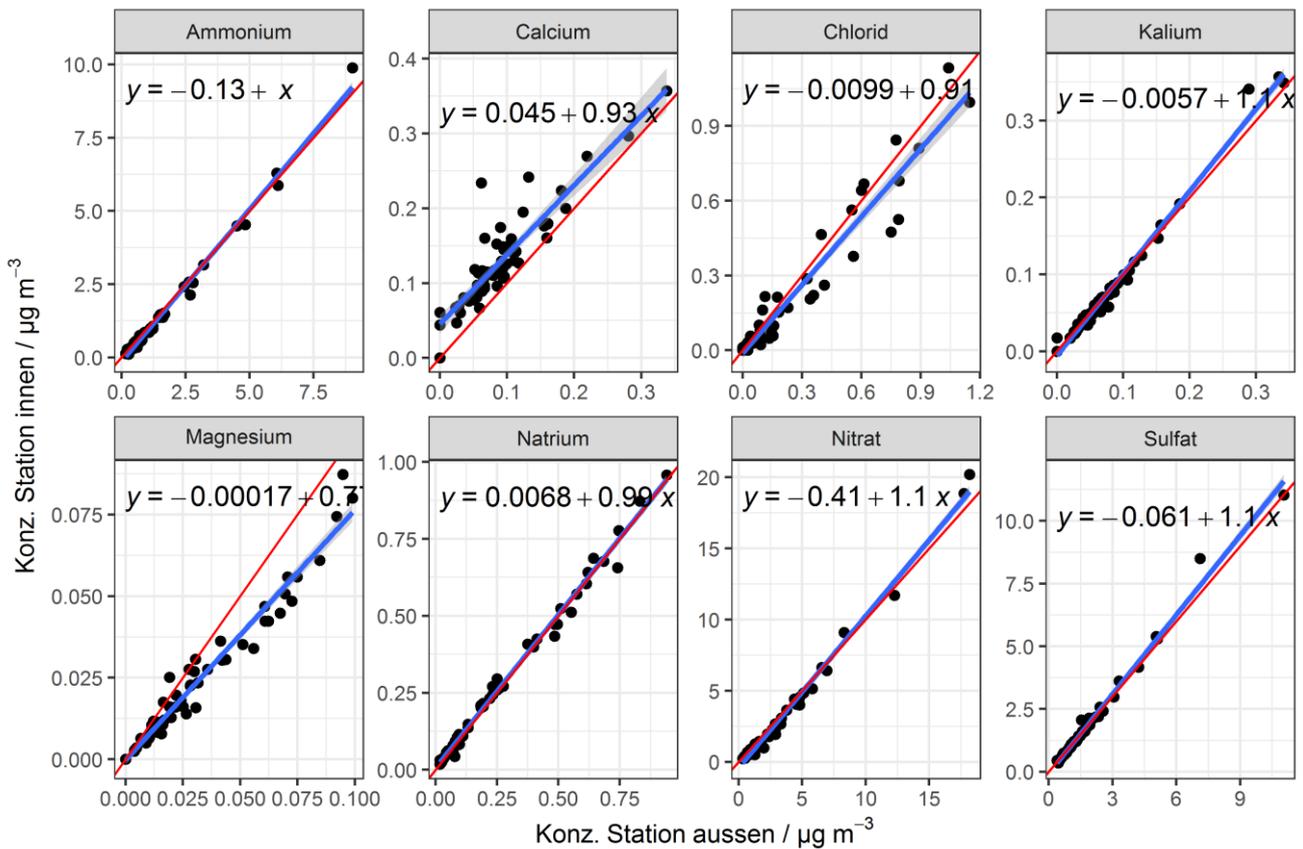


Abbildung 12: Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen der Ionen in PM10 gemessen an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

Systematische Unterschiede treten lediglich für Calcium und Magnesium auf, deren Ursachen möglicherweise die niedrigen Konzentrationen oder die unterschiedlichen Einlassstandorte vor Ort an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz sind (z.B. unterschiedlicher Eintrag von aufgewirbeltem Bodenmaterial).

Ein ähnliches Ergebnis zeigt auch der Vergleich der Standorte für die Konzentrationen von EC und OC in Abbildung 13. Während der Anstieg der linearen Regression für OC keinen wesentlichen Unterschied zeigt (0,99x), sind bei EC Abweichungen vor allem bei 3 sehr hohen Konzentrationen (> 1 µg m⁻³) zu erkennen. Werden diese Werte allerdings entfernt, ergibt sich ein Achsenabschnitt von 0,0037 (sehr nahe Null) und die Steigung der Regression verringert sich auf 1,1 bei Streuung der Messwerte um die 1:1 Gerade. Dies ist ein Hinweis auf lokale Events nahe dem Einlass des Messcontainers als Ursache für die beobachteten Abweichungen.

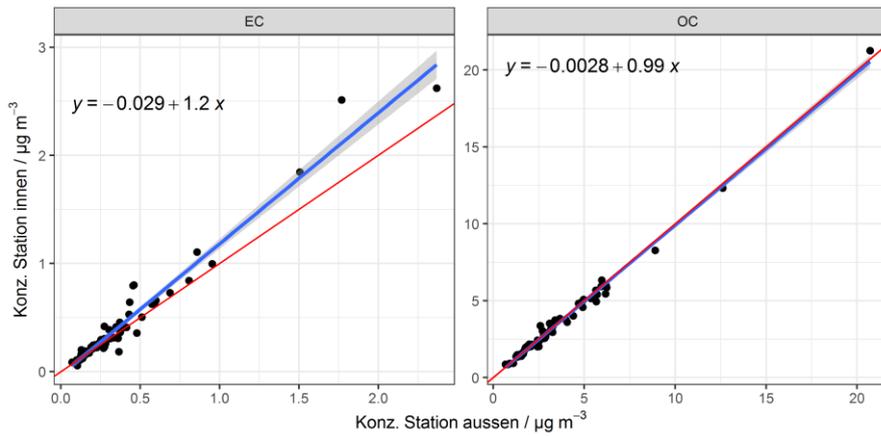


Abbildung 13: Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen von EC und OC an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

Final wurden im Rahmen dieser QA/QC- Maßnahme auch die Auswirkungen des Standortes auf die PAKs als PM10- Inhaltsstoffe überprüft. Die Ergebnisse dieses Vergleiches sind in Abbildung 14 dargestellt.

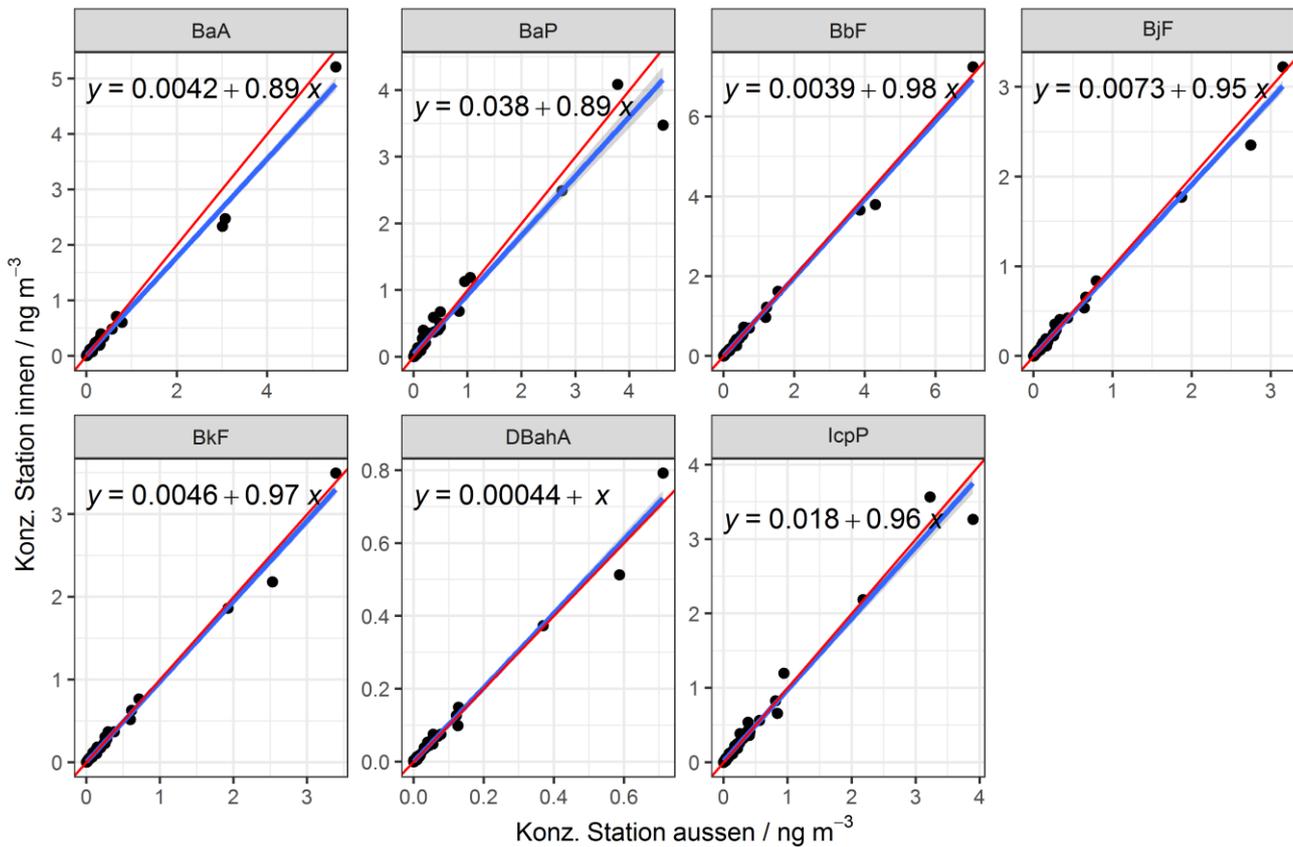


Abbildung 14: Vergleich der Digital HV- Sammler außen- vs. innenstehend für die Konzentrationen der PAKs in PM10 gemessen an der TROPOS- Forschungsstation Melpitz, die blaue Linie zeigt die lineare Regression mit 95% Konfidenzintervall (grau schattiert), die 1:1 Linie ist rot eingezeichnet

Generell zeigen sich keine wesentlichen systematischen Abweichungen für die betrachteten PAKs. Analog den Ergebnissen für EC sind auch bei den PAKs 3 Werte verhältnismäßig hoch. Würden diese Extremwerte (> 1,8 ng m⁻³) entfernt, nähern sich die Steigungen dem Wert 1 an und streuen um die 1:1 Gerade. Einzige

Ausnahme ist BaA, dessen Steigung nicht davon abhängt, aber eine Streuung um die 1:1 Gerade zeigt. Demnach kann zusammenfassend ein Einfluss der Betriebstemperaturen der Digital HV-Sammler auf die PM10-Massenkonzentrationen und deren Inhaltsstoffe im vorliegenden Forschungsvorhaben ausgeschlossen werden.

3.6 Auswertemethoden

Im vorliegenden Abschlussbericht wurde der komplette Datensatz umfassend ausgewertet. Der Fokus lag hier auf den im Folgenden kurz beschriebenen Gesichtspunkten.

3.6.1 Fotografische Dokumentation

Die eingerichteten Messstationen, die eingesetzte Technik, sowie die Messstellenumgebung wurden wie in den Projektvorgaben vorgesehen fotografisch dokumentiert. Ebenso wurde an der TROPOS-Forschungsstation Melpitz eine Webcam installiert, die in festgelegten Intervallen ein Bild in Richtung Melpitz Ort aufzeichnete. In Abbildung 15 ist eine solche Aufnahme exemplarisch dargestellt.



Abbildung 15: Webcam- Aufnahme von der TROPOS- Forschungsstation in Richtung Melpitz Ort am 20.01.2019 14:28:36 Uhr

Anhand Abbildung 15 ist gut zu erkennen, dass die installierte Webcam eine visuelle Erfassung von Rauchgasfahnen über dem Ort Melpitz ermöglicht. Allerdings ist eine derartige Aufnahme nur unter idealen Verhältnissen, d. h. klarem Himmel ohne Bewölkung, freie Sicht und maximale Beleuchtung möglich. Insbesondere in den Wintermonaten ist eine Beobachtung aufgrund mangelnder Lichtverhältnisse sehr eingeschränkt. Eine Durchsicht eines großen Teils der Fotos ergab nur wenige Fotos mit sichtbaren Rauchfahnen im Winter, daher wurde diese fotografische Dokumentation nicht weiter für Auswertungen verwendet.

3.6.2 Trendanalysen

In einem ersten Schritt der Auswertungen wurden die Zeitreihen und Zeitprofile der Messdaten aufbereitet und dargestellt. Neben dem Gesamtzeitraum als Jahresgang (in Monatsmittelwerten) wurden auch mittlere

Wochengänge Mo - So (in Tagesmittelwerten) und für stündliche Messwerte mittlere Tagesgänge 0 - 23 Uhr betrachtet. Um eine identische Datenbasis und somit eine exakte Vergleichbarkeit dieser Zeitprofile zwischen Melpitz Station und Melpitz Ort zu gewährleisten, wurden für die entsprechenden Mittelungen nur die Stunden oder Tage berücksichtigt, für die an beiden Stationen gültige Messwerte vorhanden waren.

3.6.3 Bilanzierung nach Lenschow (Inkrement Holzheizung)

Zur Ermittlung des Beitrages der Holzheizungen zur lokalen Immissionsbelastung wurde der Lenschow- Ansatz verwendet (LENSCHOW et al. 2001). In Variation vom ansonsten üblichen Ansatz mit einer Verkehrsstation als lokalem „Hotspot“ der Luftverschmutzung, repräsentierte in diesem Projekt der Ort Melpitz den lokalen „Hotspot“ aufgrund der erwarteten Emissionen aus der Feststoffverbrennung und die Forschungsstation Melpitz den Hintergrund dazu. Durch einfache Bilanzierung, also Konzentration im Ort minus Konzentration an der Station, ergab sich das Inkrement „Holzheizung“, welches für PM- Massenkonzentration, PM- Inhaltsstoffe, eBC, NO_x und Partikelanzahlkonzentrationen ausgewertet wurde. Die Zuordnung des Inkrements zur „Holzheizung“ ergibt sich aus der Annahme, dass die Verbrennung von Holz zu Heizzwecken im Ort Melpitz die einzige relevante Partikelquelle darstellt. Das Inkrement „Holzheizung“ wurde in ähnlicher Form wie die eigentlichen Messparameter dargestellt und diskutiert.

3.6.4 Meteorologieabhängige Analysen

Die Abhängigkeit des Inkrements Holzheizung von möglichen meteorologischen Einflüssen wurde auf verschiedene Art und Weise untersucht. Die Inkremente wurden hierfür in Polardiagrammen in Abhängigkeit von Windrichtung und Windgeschwindigkeit dargestellt, nach Jahreszeiten unterschieden ausgewertet, sowie durch Korrelation mit Windgeschwindigkeit, Temperatur und Mischungsschichthöhe untersucht. Ziel war es, ein differenziertes Bild zur Zusatzbelastung aus Holzfeuerung in verschiedenen Jahreszeiten und unter unterschiedlichen meteorologischen Rahmenbedingungen zu gewinnen.

3.6.5 Quellzuordnung

Basierend auf der chemischen Charakterisierung wurde eine Quellzuordnung der Partikelmassenkonzentrationen und eine Berechnung der Quellbeiträge aus Holzverbrennung durchgeführt. Hierfür kam zum einen der Makrotraceransatz via Levoglucosan zum Einsatz, bei dem basierend auf den gemessenen Konzentrationen dieses Holzverbrennungstracers die Gesamt- PM- Quellbeiträge abgeschätzt werden (VAN PINXTEREN et al. 2016). Zum anderen wurde eine Rezeptormodellierung mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) durchgeführt, bei der basierend auf dem statistischen Verfahren der Faktoranalyse chemische Quellprofile für relevante Partikelquellen, sowie deren jeweilige Quellbeiträge berechnet werden. Die PMF- Modellierung wurde mit der „EPA PMF“- Software in Version 5 durchgeführt, die von der US- amerikanischen Umweltbehörde EPA frei erhältlich ist (<https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses>). Die hierfür notwendige Datenaufbereitung wurde sehr ähnlich zu früheren Untersuchungen (VAN PINXTEREN et al. 2017; VAN PINXTEREN et al. 2016) durchgeführt und bestand im Wesentlichen aus dem Ersetzen fehlender Messwerte mit der jeweiligen Mediankonzentration, der Zuordnung einer hohen Unsicherheit von 4 x der Mediankonzentration zu diesen aufgefüllten Werten, sowie der Berechnung der Unsicherheiten aller Messwerte basierend auf den methodischen Nachweisgrenzen und Wiederholbarkeiten. Mit der Matrix der Messwerte und der zugehörigen Unsicherheitsmatrix wurden in mehreren Durchläufen verschiedene Versionen der PMF gerechnet, die zwischen 4 und 9 Faktoren bzw. Quellen im Modell unterschieden und auf ihre Plausibilität und Interpretierbarkeit hin überprüft worden. Als finale Lösung wurde diejenige ausgewählt, bei der alle Quellen chemisch gut interpretiert werden konnten ohne dass sich eine Quellkategorie in nicht weiter erklärbare Unterkategorien aufteilte.

3.6.6 Emissionsfaktoren

Für die Messparameter sollten im Projekt Emissionsfaktoren aus den Immissionsmessungen berechnet werden. Hierzu wurde u.a. auf Informationen aus der projektinternen Bürgerbefragung zum Thema „Heizen mit Holz in Melpitz“ zurückgegriffen. Direkte Berechnungen von Emissionsfaktoren aus Immissionsmessungen sind nicht ohne weiteres möglich, da die beobachtete Zusatzbelastung auch sehr stark von meteorologischen Einflüssen abhängig ist, z. B. Verdünnung, Dispersion und Transport. Daher wurde im Rahmen dieser Auswertungen die Tracer- Methode zur Abschätzung der Emissionsfaktoren angewendet. Auf Grundlage von recherchierten Literaturwerten für Emissionsfaktoren des sehr spezifischen Holzverbrennungstracers Levoglucosan wurde das meteorologische Verdünnungsverhältnis als Verhältnis zwischen Tracer Emissionsfaktor und Zusatzbelastung in der Außenluft berechnet. Das Verdünnungsverhältnis wird als konstant für alle Messparameter angesehen, mit deren Zusatzbelastungen multipliziert und durch die geschätzte Brennstoffmenge geteilt, um Emissionsfaktoren zu erhalten. Unsicherheiten bei dieser Methode liegen v. a. in den Literaturwerten der Emissionsfaktoren von Levoglucosan, die je nach Brennstoff und Brandbedingungen sehr unterschiedlich sein können.

3.6.7 Einordnung in lange Messreihen

Das TROPOS verfügt seit 1993 über tägliche Messungen der PM10- Masse mit High- Volume Sammlern inklusive der Inhaltsstoffe wasserlösliche Ionen und seit 2003 OC/EC an seiner Forschungsstation in Melpitz. Mit Hilfe dieser Langzeitreihe war es möglich, einen fallenden Trend der Jahresmittel für 1993 bis etwa 1999 nachzuweisen, dem sich für den Zeitraum 2000 bis 2018 eine Phase anschließt, die hauptsächlich geprägt ist von Schwankungen zwischen den Jahren. Mit diesen langjährigen Messungen, lässt sich der zu untersuchende Zeitraum (November 2018 bis Oktober 2019) einordnen. Zusätzlich wurden die langjährigen Messungen der meteorologischen Parameter und von einzelnen Spurengaskonzentrationen mit einbezogen. Damit kann ein Maß für die zwischenjährlichen Konzentrationsschwankungen gefunden werden und das Ergebnis des Vorhabens eingeordnet und besser beurteilt werden.

4 Ergebnisse und Diskussion

Im vorliegenden Abschlussbericht wurden die Messergebnisse der Stationen Melpitz Ort und Melpitz Forschungsstation für den Messzeitraum 01.11.2018 bis 31.10.2019 dargestellt und Trends und Analysenergebnisse diskutiert.

4.1 Zeitreihen und Zeitprofile

Die Messparameter wurden zunächst als Zeitreihen und Zeitprofile an der jeweiligen Messstation dargestellt. Die Ergebnisse für Melpitz Ort sind stets farbig, die der Referenz Melpitz Station dagegen schwarz präsentiert. Für den Vergleich der Ergebnisse beider Messstationen wurden die verschiedenen Messparameter weiterhin in Abhängigkeit vom Tages-, Wochen- und Jahresgang ausgewertet. Für wochentagsabhängige Betrachtungen wurden die Feiertage des Projektzeitraums unabhängig von ihrem tatsächlichen Wochentag in die Kategorie „Sonntag“ einsortiert.

4.1.1 Meteorologie

Die zeitlichen Verläufe der meteorologischen Parameter Temperatur (TMP / °C), relative Feuchte (RFE / %), Globalstrahlung (GLO / W m⁻²), Windgeschwindigkeit (WIG / m s⁻¹), Windrichtung (WIR / °), Luftdruck (LDR / mbar) und Niederschlag (NDS / mm) für Melpitz Ort und Station sind in Abbildung 16 für den gesamten Projektzeitraum gezeigt.

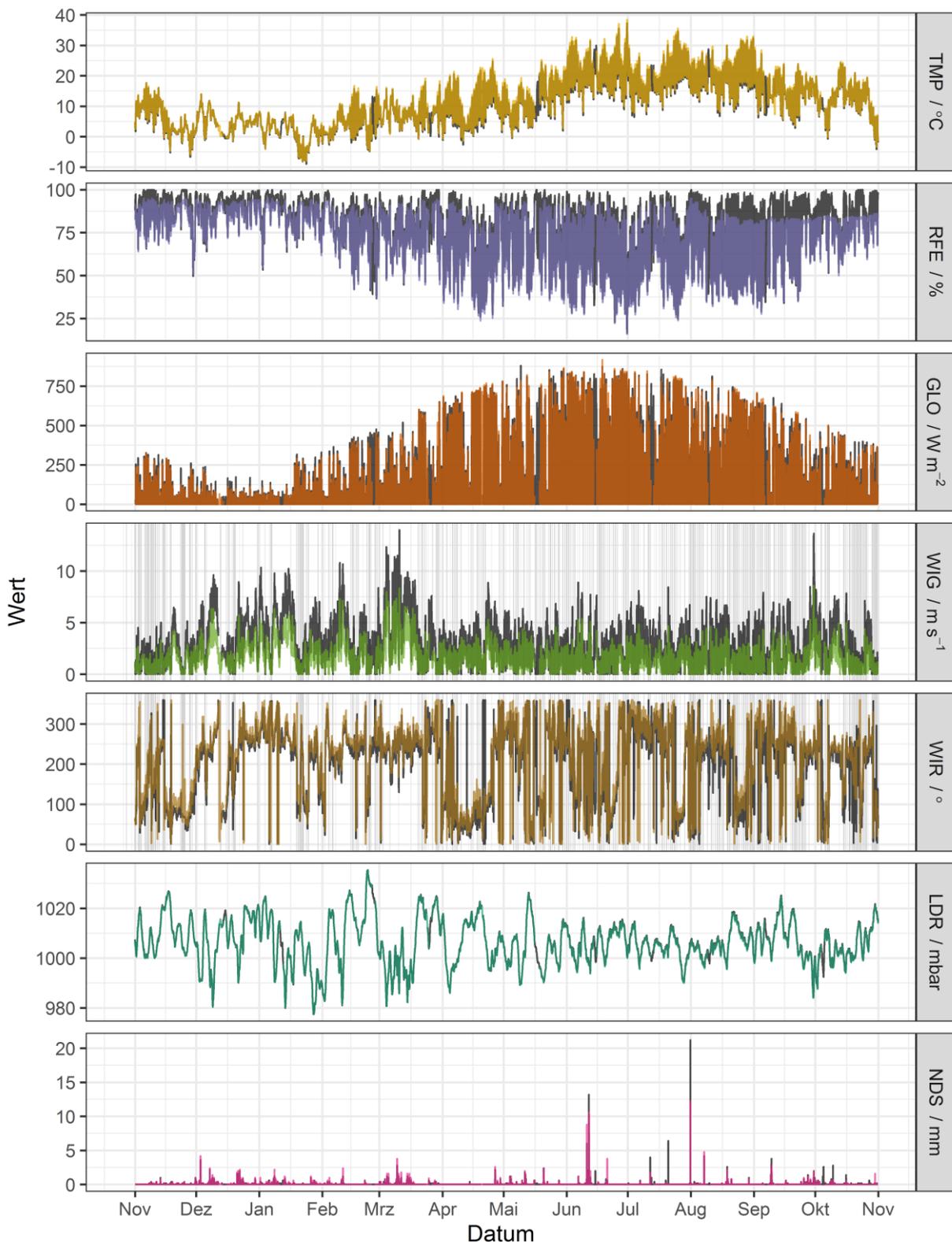


Abbildung 16: Zeitreihen der meteorologischen Messparameter als Stundenwerte; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt; windstille Zeiten an mindestens einer der beiden Stationen (meist im Ort) sind für die Parameter WIG und WIR grau hinterlegt

In Abbildung 16 ist am Verlauf der Temperatur ein ungewöhnlich warmer einjähriger Jahresabschnitt (Projektlaufzeit: November 2018 bis Oktober 2019) zu erkennen. Die mittlere Temperatur an der Station beträgt

11,0 °C. Zum Vergleich im gesamten Jahr 2018 tritt mit 11,1 °C die höchste Jahresmitteltemperatur an der Forschungsstation seit 1993 (Beginn der Messungen) auf (vgl. auch Kapitel 4.7). Die höchsten Temperaturen im Projektzeitraum gibt es am 30. Juni mit 37,8 °C an der Station und 38,4 °C im Ort. Der einjährige Temperaturverlauf zeigt einige kurze Frostperioden, nur im Januar 2019 tritt eine durchgehende kurze Frostperiode von etwa einer Woche Dauer auf. Weder im Ort, noch außerhalb an der Station ist es im Projektzeitraum kälter als -9,0 °C. Es lässt sich erkennen, dass die Temperaturen im Ort zeitweise geringfügig über denen an der Station liegen. Ende Februar und Anfang März ist es oft wärmer als 10,0 °C. Die relative Feuchte steht im Zusammenhang mit der Temperatur, bei höheren Temperaturen ist diese meist geringer. Daher zeigt sich häufig im Ort im Vergleich zur Station eine etwas geringere relative Luftfeuchte (Einfluss der Bebauung im Ort). Dennoch ist eine gute Übereinstimmung der relativen Luftfeuchten zwischen Ort und Station erkennbar. Die Globalstrahlung folgt dem typischen Jahresgang. Bei der Korrelation der Globalstrahlung fallen einige Werte im Ort auf, die kleiner sind als an der Station. Hier tritt ein Abschattungseffekt des Strahlungssensors durch Bebauung und Vegetation auf. Dieser Effekt variiert zusätzlich mit dem täglichen und jahreszeitlichen Lauf der Sonne. Die Windgeschwindigkeit und die Windrichtung sind entsprechend der meteorologischen Situation hoch variabel. Bedingt durch die den meteorologischen Mast im Ort umgebende Bebauung und Vegetation (höhere Rauigkeit) ist die Windgeschwindigkeit im Ort geringer als an der frei angeströmten Forschungsstation. Die Windrichtung wird ebenfalls durch die umgebende Bebauung im Ort beeinflusst. Für beide Standorte ist West-Südwest die vorherrschende Anströmung und als zweithäufigste mittlere Windrichtung ist Ost (um 90°) erkennbar. Die insgesamt geringere Windgeschwindigkeit im Ort kann Einfluss auf die Konzentration von dort gemessenen Tracern haben und muss bei den weiteren Diskussionen zur Auswertung berücksichtigt werden. Der Luftdruck zeigt eine Abfolge von Tiefdruck- und Hochdrucklagen. Im November 2018 ist eine Hochdrucklage, im Februar 2019 sind zwei Hochdrucklagen mit mehr als 1020 mbar auszumachen. Ab Mitte Mai 2019 bis zum Ende des Messzeitraumes sind dann die Luftdruckschwankungen moderater. Der Niederschlagsverlauf zeigt starke Niederschlagsereignisse im Juni und zum Ende des Julis. Kurzzeitig extrem starke Niederschläge fallen in der Summe an der frei anströmbaren Station etwas höher aus.

In Abbildung 17 sind die meteorologischen Parameter ergänzend als Tages-, Wochen- und Jahrgang dargestellt.

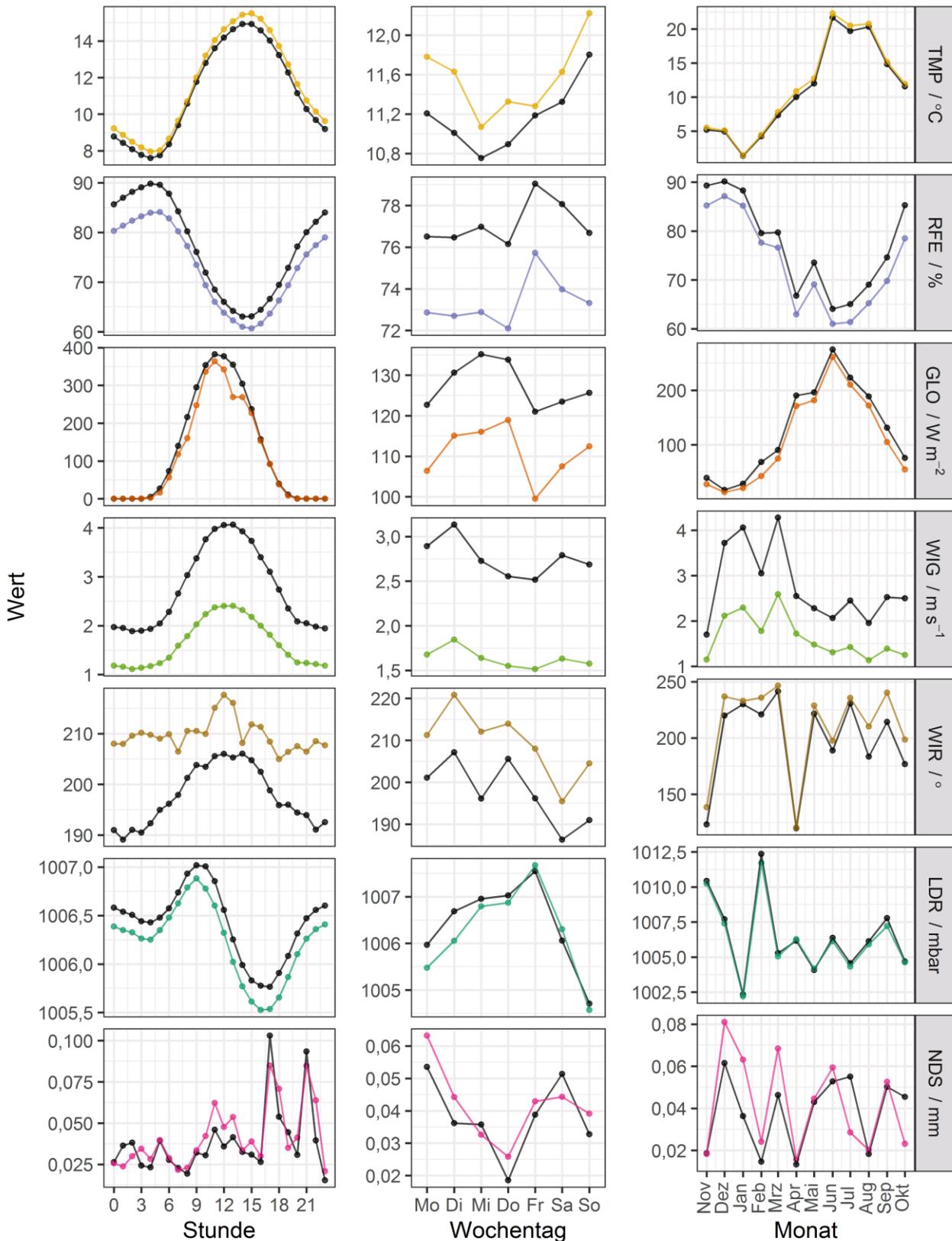


Abbildung 17: Meteorologische Messparameter dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Abbildung 17 mit den Tages-, Wochen- und Jahresverläufen fasst die meteorologischen Parameter zusammen und zeigt Unterschiede zwischen Ort und Station, die teilweise deutlich ausfallen. Für einen Einfluss der Wochentage auf die Mittelwerte der meteorologischen Parameter gibt es keinen sinnvollen physikalischen Grund, diese Verläufe (mittlere Diagramme in Abbildung 17) sind zur Vollständigkeit mit gezeichnet, werden aber nicht näher diskutiert. Die Temperatur zeigt im mittleren Tagesgang über das Jahr des Projektes einen typischen Verlauf mit einem morgendlichen Minimum und einem Maximum am Nachmittag. Abgesehen von den Vormittagsstunden ist es im Ort am Nachmittag etwas wärmer als außerhalb. Damit zeigt selbst die flächenmäßig kleine Gemeinde die Ausprägung einer Wärmeinsel in der wenig orografisch gegliederten ebenen Umgebung. Im Verlauf des Jahres werden die höchsten Monatsmittel der Temperatur im Sommer (Juni, Juli und August) registriert. Der kälteste Monat ist der Januar. In diesem Monat tritt auch, wie bereits zuvor beschrieben, die einzige nennenswerte Frostperiode auf. Die relative Feuchte weist einen mittleren Tagesgang mit den niedrigsten Werten am frühen Nachmittag auf. Die mittleren Werte der relativen Feuchte sind im Tagesgang im Ort geringer als außerhalb an der Station, dies stimmt mit den im Ort etwas höheren Temperaturen überein. Die größere Differenz zwischen der Feuchte im Ort und außerhalb an der Station wird am Morgen gefunden, hier spiegelt sich der Einfluss einzelner Tage mit Morgennebel und mehr Kondensation (Tau) außerhalb des Ortes wider. Im Verlauf der Monatsmittel über das Jahr ist die relative Feuchte erwartungsgemäß im Sommer und dabei im Ort am kleinsten. Der Jahresgang der mittleren stündlichen Globalstrahlung folgt dem Lauf der Sonne und ist an der Station vollständig geometrisch ausgeprägt und ungestört. Die Globalstrahlung ist im Ort durch den Einfluss der die Station umgebenden Bebauung und Vegetation zeitweise leicht geringer. Diese Abschattung ist tages- und jahreszeitabhängig und im Mittel in der Zeit von etwa 12:00 bis 15:00 Uhr am größten. Der Verlauf der jährlichen Monatsmittel der Globalstrahlung zeigt das Maximum im Juni, dem Monat der Sommersonnenwende. Die etwas geringeren Strahlungswerte im Ort im Vergleich zur Station treten über das gesamte Jahr auf. Der Verlauf der mittleren Windgeschwindigkeit über das Jahr zeigt höhere Windgeschwindigkeiten um die Mittagszeit. Dann ist auch die Differenz der Windgeschwindigkeiten zwischen Ort und Station am größten und die Windgeschwindigkeit außerhalb an der Station mit etwas mehr als 4 m s^{-1} fast doppelt so hoch wie im Ort. In den nächtlichen Stunden wird außerhalb des Ortes noch eine mittlere Windgeschwindigkeit von etwa 2 m s^{-1} registriert, was knapp doppelt so hoch ist wie im Ort. Dies zeigt, dass die Durchmischung der Luft bereits durch die Bebauung und einzelne Bäume (höhere Rauigkeit in der kleinen Ortschaft Melpitz) merklich beeinflusst wird. Im Verlauf der Monatsmittel über das Jahr zeigen sich höhere Windgeschwindigkeiten in den Wintermonaten. Über den Verlauf des gesamten Jahres ist im Mittel die Windgeschwindigkeit außerhalb erheblich höher als innerorts. Die Windrichtung differiert im Tagesgang nur geringfügig zwischen Ort und Station. Ein leichter Unterschied im Verlauf und Werte hin zu etwas höheren Gradzahlen im Ort kann durch einen „Kanalisierungseffekt“ der örtlichen Bebauung und eine leicht abweichende „Nordausrichtung“ der temporär errichteten Station im Ort verursacht sein. Der Verlauf der mittleren Windrichtung in den Monaten über das Jahr zeigt ebenfalls eine Tendenz zu höheren Gradzahlen im Ort. In den Diagrammen zum Verlauf des Luftdrucks lässt sich zwar eine stetige Differenz zwischen Station und Umgebung von wenigen mbar erkennen, doch dürfte diese nicht signifikant sein. Eine Variation in Richtung höherer Luftdrücke am Morgen im Vergleich zum Nachmittag tritt auf. Die Monatsmittel variieren stärker im Winter als im Sommer. Beim Niederschlag gibt es die höheren Mengen im stündlichen Tagesverlauf am späten Nachmittag und Abend. Dies kann durch stärkere konvektive Niederschläge verursacht sein. Die Winter und Frühjahrsmonate zeigen eine Tendenz zu etwas mehr Niederschlag innerorts. Wodurch dieser Effekt bestimmt wird lässt sich nicht sicher feststellen.

4.1.2 Stickoxide

In Abbildung 18 und Abbildung 19 sind die zeitlichen Verläufe und die Tages-, Wochen- und Jahresgänge der Konzentration der Spurengase Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) und in Summe für NO_x gezeichnet.

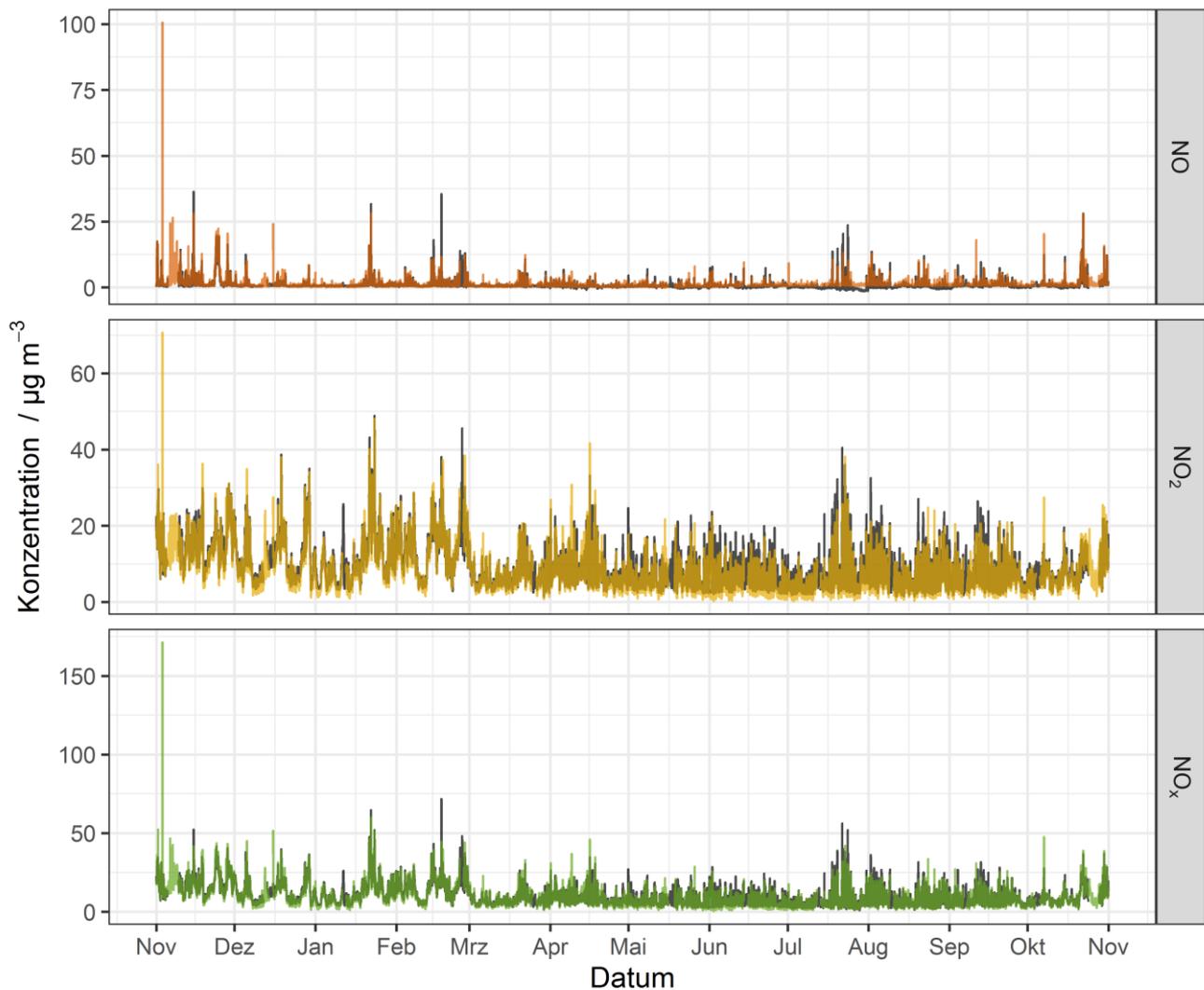


Abbildung 18: Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Im zeitlichen Verlauf der NO-Konzentration gibt es kurzzeitig erhöhte Werte, die von einzelnen mobilen Quellen (Verbrennungsmotoren) oder stationären Quellen (Heizungsemissionen) stammen. Besonders im Zeitraum November bis März treten diese bevorzugt im Ort auf. Im Zeitverlauf der NO₂-Konzentration ist eine hohe Variabilität zu sehen, die sich auf Grund des hohen Anteiles von NO₂ ebenfalls im Summenparameter NO_x zeigt.

Sieht man sich in Abbildung 19 den Verlauf des aus primären Quellen stammenden NO im Verlauf der Tagesstunden für den Ort im Vergleich zur Station an, so zeigen sich die höchsten NO-Konzentrationen in den Morgen und frühen Vormittagsstunden im Ort. Diese Tatsache lässt auf stärkere primäre NO-Emissionen im Ort schließen, die in eine weniger durchmischte Atmosphäre erfolgen. An der Station ist der NO-Konzentrationsverlauf bei etwas geringeren Konzentrationen ähnlich. In den Abendstunden wird der Konzentrationsanstieg für die primären NO-Emissionen nicht so stark abgebildet, da die Atmosphäre oft besser durchmischt wird und sich aus NO über den Tag NO₂ bildet. Der Anstieg der NO-Konzentration zur Nacht an der Station dürfte indirekt eine stärkere Verringerung des Mischungsvolumens anzeigen. Die Verläufe der Konzentration von NO₂, das sekundär durch Oxidation von NO gebildet wird, zeigen sowohl im Ort als auch an der Station höhere Konzentrationen in der Nacht und die geringsten Konzentrationen um Mittag. Dieser Konzentrationsverlauf von sekundär gebildetem NO₂ wird hauptsächlich durch ein größeres Mischungsvolumen am Tag im Vergleich zur Nacht bestimmt. Über den

gesamten Tag ist die Konzentration an der Station außerhalb des Ortes für NO_2 etwas größer. Ob diese höhere NO_2 -Konzentration außerhalb des Ortes auch zusätzlich durch atmosphärische Transportprozesse bestimmt wird, lässt sich nicht ausschließen. Der Tagesverlauf für NO_x zeigt sich in seiner Ausprägung vergleichbar zu dem des NO_2 , da die Konzentration von NO_2 einem Mehrfachen der Konzentration von NO entspricht. Schaut man sich für die Stickoxide die mittleren Konzentrationen im Verlauf der Wochentage und über die Monate des Jahres an, so ist weiteres zu deren Entstehung auszumachen. Die Konzentration des primär emittierten NO ist im Verlauf der Woche an beiden Stationen am Samstag am höchsten und dabei im Ort selbst größer als an der Station. Dies ist ein Hinweis auf mobile (Kfz- Emissionen) und stationäre NO - Quellen im Ort, die hauptsächlich samstags auftreten (Holzverbrennung, Holzkohlegrill oder Feuerschale). Tatsächlich sind im Verlauf der Monatsmittel die Stickoxidkonzentrationen in den Wintermonaten höher als im Sommer. Die Konzentration für NO ist in allen Monaten im Ort höher als an der Station, ein weiterer Hinweis auf lokale NO - Emissionen im Ort. Für NO treten in den Sommermonaten (Juli, August und September) deutlich höhere Konzentrationen im Ort im Vergleich zur Station auf, fast gleichzeitig ist auch die NO_2 - Konzentration im Ort im Vergleich zur Station in diesen drei Monaten etwas geringer. Dies kann ein Hinweis auf zusätzliche NO - Emissionen im Ort aus stationären Quellen im Sommer sein (Grill oder Feuerschale). Das sekundär gebildete NO_2 und auch der Summenparameter NO_x zeigen einen typischen Wochengang mit höheren Konzentrationen um die Wochenmitte und einem Minimum am Sonntag, dabei sind die Konzentrationen an der Station etwas höher im Vergleich zum Ort. Auch im Verlauf der NO_2 - Konzentration als Monatsmittel zeigen sich höhere Konzentrationen in den Wintermonaten, dabei treten etwas höhere Konzentrationen an der Station außerhalb des Ortes auf. Die Ergebnisse für die Stickoxide geben einen Hinweis auf mobile Quellen (Kraftfahrzeuge) und auf mit der Jahres- und Tageszeit unterschiedlich starke stationäre NO - Quellen im Ort. Für eindeutigere Aussagen zu Emissionen aus Holzheizung im Ort müssen die im weiteren gezeigten Konzentrationsverläufe der Partikelmasse, der Kohlenstoff-Summenparameter und spezifischer Verbrennungstracer mitberücksichtigt werden. Weiterhin ist zu beachten, dass die hier diskutierten Konzentrationsdifferenzen für NO und NO_2 teilweise im Bereich der Fehlergrenzen der eingesetzten NO_x - Analysatoren mit Chemilumineszenz-Detektor zur Quantifizierung von NO und alternierender Messung von NO_2 über einen Molybdänkonverter liegen.

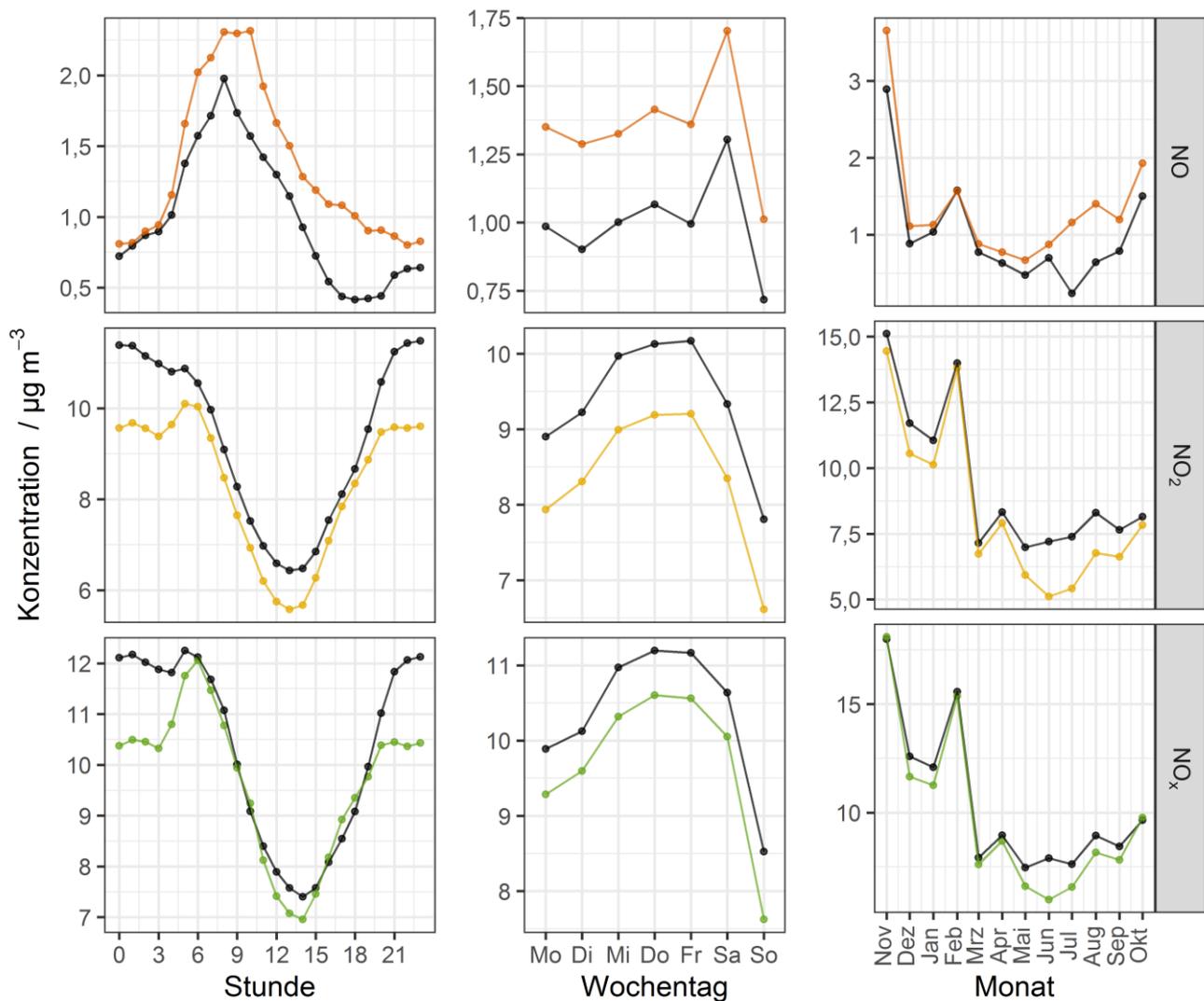


Abbildung 19: Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.3 Partikelanzahlkonzentration

Die Partikelanzahlkonzentrationen für drei Größenbereiche wurden aus den gemessenen Partikelanzahlgrößenverteilungen berechnet. Abbildung 20 zeigt die Zeitreihen der Partikelanzahlkonzentrationen in den Größenbereichen 10 – 50 nm, 50 – 150 nm und 150 – 800 nm. Die auffälligen Maxima in den Konzentrationsverläufen sind durch die oben beschriebenen lokalen Ereignisse verursacht (z. B. Weihnachtsmarkt, Silvesterfeuerwerk). Daher wurden diese Extremwerte bei der Berechnung der Stundenmittel für die weitere Auswertung nicht berücksichtigt.

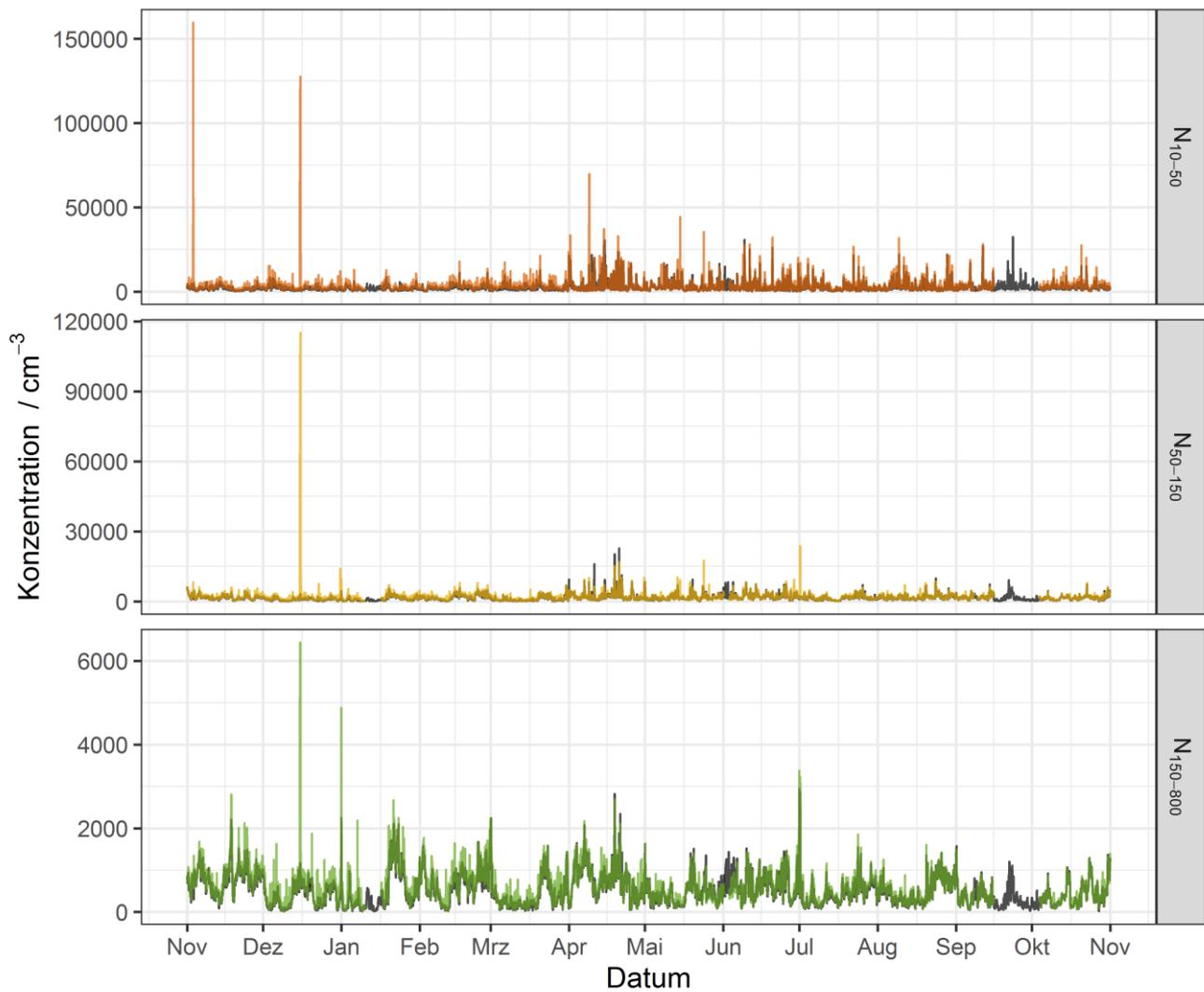


Abbildung 20: Zeitreihen der Partikelanzahlkonzentration als Stundenwerte für N₁₀₋₅₀, N₅₀₋₁₅₀ und N₁₅₀₋₈₀₀; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

In Abbildung 21 sind von links nach rechts die jeweiligen Stunden-, Tages- und Jahressgänge für die integralen Größenbereiche dargestellt.

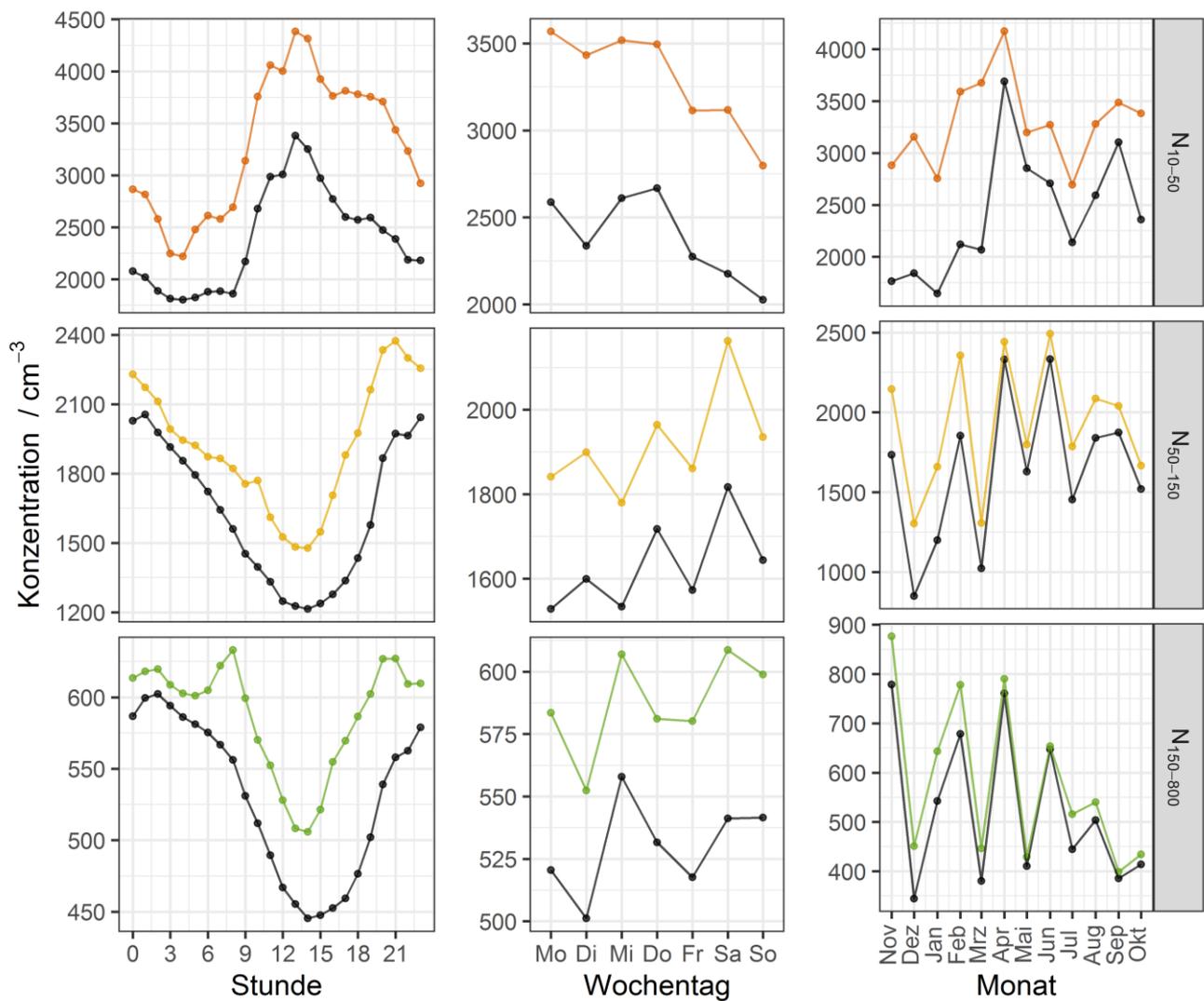


Abbildung 21: Partikelanzahlkonzentrationen für N_{10-50} , N_{50-150} und $N_{150-800}$ dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahressgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Im Größenbereich N_{10-50} wird ein ausgeprägter Jahressgang beobachtet. Die Anzahlkonzentrationen der Partikel ist im Ort stets höher als an der Station. Während die Konzentrationen an beiden Messstellen in den warmen Monaten des Jahres annähernd identisch sind, ist in der kalten Jahreszeit die Konzentration im Ort deutlich gegenüber der Messstation erhöht. Dies deutet darauf hin, dass auch in diesem Größenbereich bereits Partikel aus Verbrennungsprozessen zu finden sind. Diese Annahme wird durch den Tagesgang der Konzentrationen an beiden Messorten unterstützt. Der Verlauf der Kurven legt nahe, dass dieser Konzentrationsverlauf zum Teil durch anthropogene Aktivitäten verursacht wird. Andererseits trägt auch die Partikelneubildung aus der Gasphase zu diesem Größenbereich bei. Diese setzt typischerweise etwa ein bis zwei Stunden nach Sonnenaufgang ein. Da diese Partikelneubildung ein regionales Phänomen ist, wird diese typischerweise an beiden Messstationen im gleichen Ausmaß beobachtet.

Im Jahressgang der Partikelanzahlkonzentration im Größenbereich N_{50-150} ist nur eine geringe Differenz in den Konzentrationen an Ort und Station sichtbar. Auffällig ist, dass die Konzentrationen an beiden Stationen von März

bis Juni nahezu identisch sind. Im Tagesgang fallen die Konzentrationen in diesem Größenbereich bis Mittag ab und steigen dann wieder auf erhöhte Werte an. Neu gebildete Partikel aus dem Größenbereich N_{10-50} wachsen im Verlauf des Tages durch Koagulation an. Dieses Anwachsen benötigt Zeit bis die Partikel groß genug sind um im Bereich N_{50-150} detektiert zu werden. Im Wochengang ist an beiden Stationen am Samstag ein Peak zu erkennen, der möglicherweise mit großflächig erhöhten Rußemissionen aus Einzelfeuerstätten am Wochenende zusammenhängen könnte. Dies wird in Kapitel 4.8 weiter untersucht werden.

Der Jahresgang im Größenbereich $N_{150-800}$ ist an beiden Messstationen nahezu identisch. Unterschiede zwischen den Stationen sind nur im Tagesgang erkennbar. Hier fällt ein kleiner Peak an der Messstation Ort zwischen 6 und 8 Uhr morgens auf. Dieser ist vermutlich durch aufgewirbelten Staub durch Fahrzeuge verursacht. Auch im Wochengang dieses Partikelgrößenbereichs fällt ein Peak am Samstag auf. Dieser ist jedoch deutlich weniger ausgeprägt als in den anderen Größenklassen.

4.1.4 Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (eBC) in PM10

Die Messungen des schwarzen Kohlenstoffes erfolgten an beiden Messstationen jeweils unter Verwendung eines Aethalometers AE33 und eines MAAP 5012 (Multi Angle Absorption Photometer). Für die Aethalometer gibt es Zeiträume, zu denen keine Daten vorliegen. Im Januar fehlen an der Referenz Melpitz Station zwei Wochen eBC-Konzentrationen vom Aethalometer aufgrund eines mechanischen Defekts. Im Juni waren die beiden Aethalometer für Qualitätssicherungsmaßnahmen für die Dauer von einer Woche im Kalibrierlabor des TROPOS. Abbildung 22 zeigt die Zeitreihen des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffes (eBC), die an den Messstellen Melpitz Ort und Melpitz Station gemessen wurden. Die folgende Diskussion bezieht sich auf die eBC Konzentrationen gemessen mit dem Aethalometer.

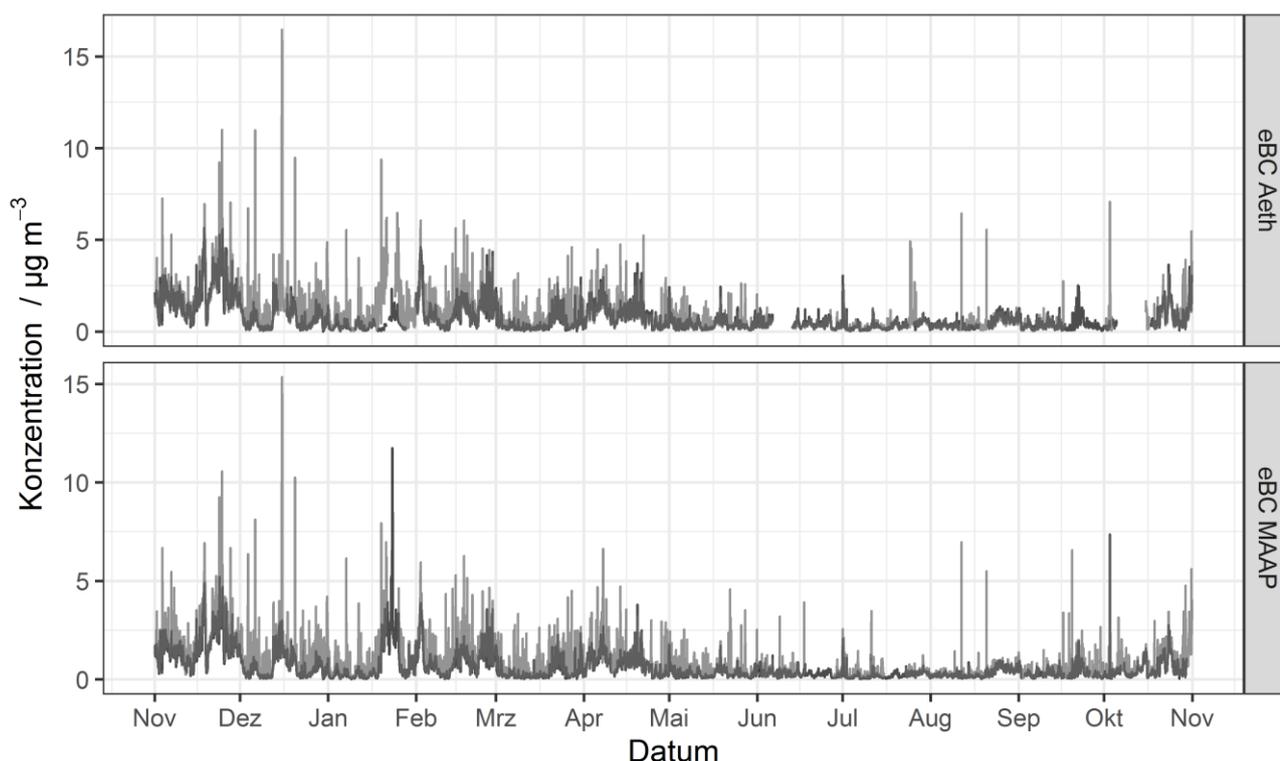


Abbildung 22: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als hellgraue Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

An der Messstelle Melpitz Ort sind die eBC- Massenkonzentrationen (Mittelwert = $0,86 \mu\text{g m}^{-3}$) höher als an der Messstelle Melpitz Station (Mittelwert = $0,73 \mu\text{g m}^{-3}$). Dies ist eine Folge der näher gelegenen anthropogenen Quellen von schwarzem Kohlenstoff, wie aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe aus mobilen Quellen und aus der Verbrennung von Biomasse aus stationären Quellen. Extrem hohe eBC- Massenkonzentrationen stehen in den meisten Fällen im Zusammenhang mit dem Auftreten besonderer Ereignisse wie z. B. dem Weihnachtsmarkt im Zentrum von Melpitz am 15. Dezember 2018.

Im Herbst und Winter treten an den Messstellen Melpitz Ort und Melpitz Station eine höhere Variabilität und durchschnittlich höhere eBC- Massenkonzentrationen auf (Abbildung 22 und Abbildung 23), mit maximalen Werten im November (Mittelwert Ort = $2,12 \mu\text{g m}^{-3}$, Mittelwert Station $2,00 \mu\text{g m}^{-3}$) und Februar (Mittelwert Ort = $1,38 \mu\text{g m}^{-3}$, Mittelwert Station = $1,18 \mu\text{g m}^{-3}$). Der höhere Nutzungsgrad von Holzfeuerung und eine geringere Höhe der Mischungsschicht im Winter erklären die in diesem Zeitraum beobachteten höheren Konzentrationen. Im Sommer werden an beiden Standorten die niedrigsten Durchschnittskonzentrationen mit Mittelwerten im Juli (Monatsmittel Ort = $0,35 \mu\text{g m}^{-3}$, Monatsmittel Station = $0,33 \mu\text{g m}^{-3}$) und September (Monatsmittel Ort = $0,34 \mu\text{g m}^{-3}$, Monatsmittel Station = $0,36 \mu\text{g m}^{-3}$) gemessen.

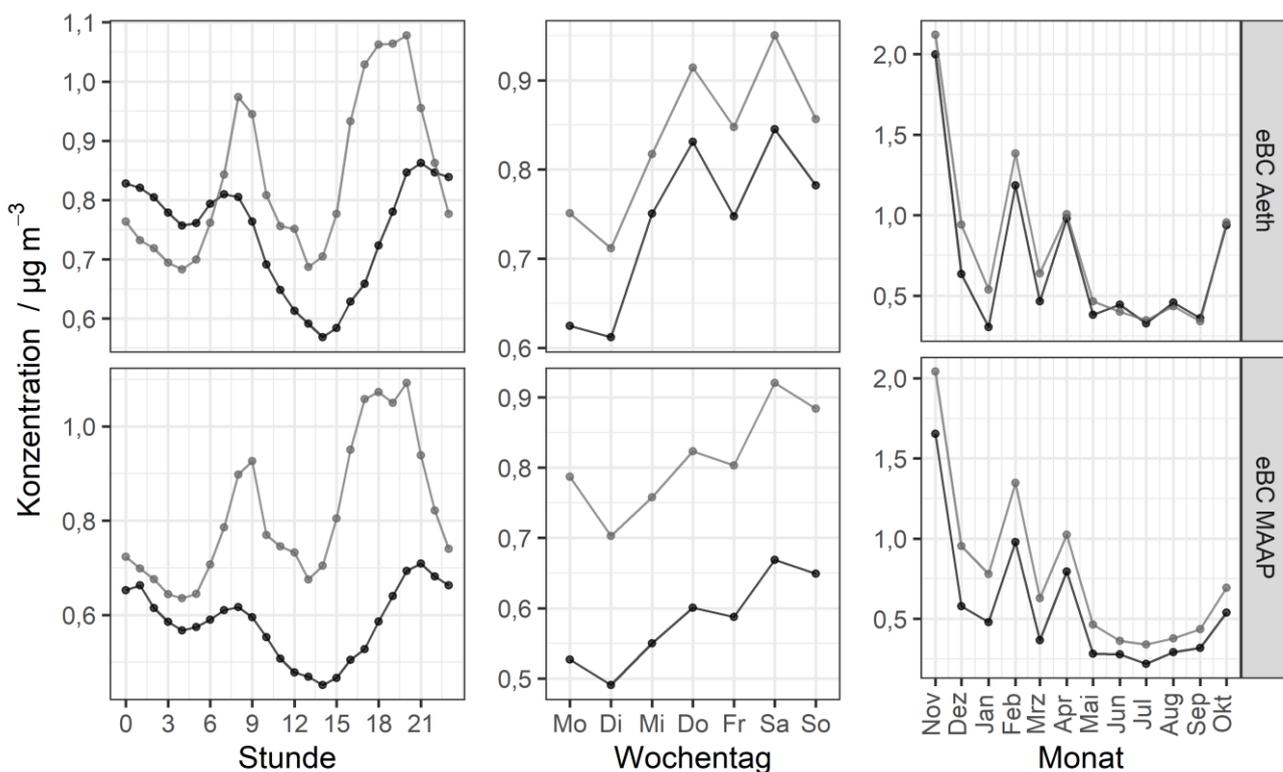


Abbildung 23: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als hellgraue Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

In Abbildung 23 zeigt sich für Melpitz Ort ein ausgeprägter Tagesgang, mit niedrigeren Konzentrationen zur Mittags- und Nachtzeit und maximalen Werten am Morgen zwischen 8.00 und 9.00 Uhr und am späten Nachmittag und Abend zwischen 17.00 und 20.00 Uhr, wenn die Grenzschicht stabiler geschichtet ist, was vermutlich die größere Stärke dieser letzten Peaks verursacht. Diese Tendenz deutet auch auf die Aktivität nahegelegener anthropogener Quellen hin. An der Messstelle Melpitz Station wird ein unterschiedlicher Tagesgang gezeigt. Niedrigere Konzentrationen werden nur mittags gemessen. Die Konzentrationen steigen am späten Nachmittag an und sind ab 19 Uhr nahezu konstant bis zum nächsten Morgen um 8 Uhr. Diese relativ konstanten Werte während der Nachtzeit deuten auf den Einfluss regionaler Emissionen auf die an der Hintergrundmessstation gemessenen

Konzentrationen hin. Dieser Umstand erklärt möglicherweise auch die Tatsache, dass die höchsten und niedrigsten eBC- Konzentrationen an der Station Melpitz etwa eine Stunde zeitversetzt an Melpitz Ort auftreten.

Im Laufe der Woche (Abbildung 23) steigen die eBC-Konzentrationen von den Wochentagen zu den Wochenenden hin an, wobei die höchsten Durchschnittskonzentrationen an den Samstagen beobachtet werden. Der Grund für dieses Verhalten kann mit einer Zunahme der Biomasse-Verbrennungsaktivitäten an den Wochenenden und dem akkumulierten Transport von Schadstoffen aus den Wochentagen zusammenhängen. Es ist jedoch schwierig, diesen Trend im Detail zu erklären.

4.1.5 PM1, PM2,5 und PM10- Massenkonzentration berechnet aus den Partikelanzahlgrößenverteilungen

Aus den Messungen der Partikelanzahlgrößenverteilungen wurden die Massenkonzentrationen für PM1, PM2,5, und PM10 abgeleitet, die Zeitreihen sind in Abbildung 24 dargestellt.

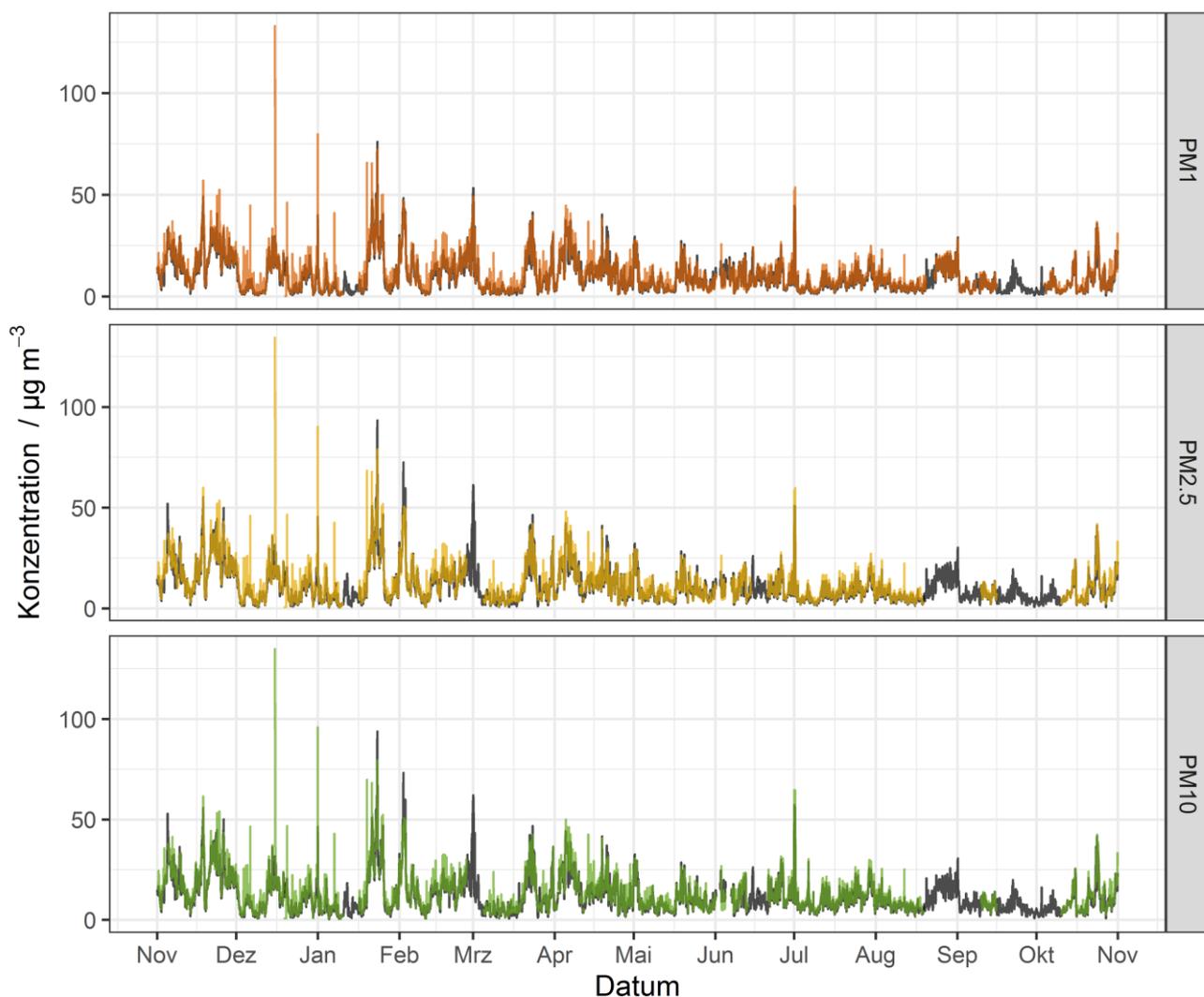


Abbildung 24: Die PM1, PM2,5 und PM10-Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahl-Größenverteilungen sind hier als Zeitreihen dargestellt; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Die Werte der PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀- Massenkonzentrationen unterscheiden sich nur geringfügig, da die Gesamtmasse durch Partikel im Akkumulationsmode dominiert wird. Grobe Partikel spielen nur eine untergeordnete Rolle, so dass die Unterschiede zwischen PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀ gering sind. Im Folgenden werden daher nur Werte für PM₁₀ diskutiert.

Die in Melpitz Ort gemessenen PM₁₀- Massenkonzentrationen (Jahresmittel = 12,7 µg m⁻³) sind höher als die Konzentrationen an der Station Melpitz (Jahresmittel = 11,7 µg m⁻³). Die höchste Variabilität wird im Herbst und im Winter beobachtet, wobei die durchschnittlich höchsten Monatsmittelwerte im November (22,1 µg m⁻³) und Februar (16,6 µg m⁻³) gemessen werden (Abbildung 25). Dieser Trend über das Jahr hinweg steht im Zusammenhang mit der verstärkten Holzfeuerung und der geringen Höhe der Mischungsschicht im Winter, wodurch mehr PM-Emissionen entstehen bzw. deren Akkumulation in der Troposphäre gefördert wird. An beiden Messstellen werden im Jahresverlauf einige atypische PM- Spitzen beobachtet, die mit besonderen Tagen wie Neujahr oder mit dem Einfluss ungewöhnlicher Emissionsquellen auf die lokalen Messungen zusammenhängen. In den Monaten August, September und Oktober stehen durch einen Ausfall des APSS für längere Zeiträume nur Werte der PM₁-Konzentration zur Verfügung. In der zweiten Hälfte des Septembers gab es zusätzlich einen Ausfall des MPSS, sodass für diesen Zeitraum keine PM- Konzentrationen für Ort Melpitz gemessen werden konnten. Obwohl die Datengrundlage für diese Monate geringer ist, zeigen die Monatsmittel (Abbildung 25) keine auffälligen Abweichungen zwischen Ort Melpitz und Referenz Melpitz Station.

Es wird ein ausgeprägter Tagesgang mit den niedrigsten PM- Konzentrationen von 13.00 bis 15.00 Uhr in Melpitz Ort und von 14.00 bis 16.00 Uhr an der Station Melpitz beobachtet. Gegen Mittag sorgt in der Regel die ansteigende Mischungsschichthöhe für eine Verdünnung, wodurch die PM- Konzentrationen reduziert werden. Die höchsten PM- Konzentrationen in Ort Melpitz finden sich morgens von 07.00 bis 08.00 Uhr, ein zweites Maximum wird abends zwischen 19.00 und 21.00 Uhr beobachtet. An der Referenz Melpitz Station dagegen sind die PM- Konzentrationen von Mitternacht bis 08.00 Uhr relativ konstant bis die PM- Konzentrationen auf das Tagesminimum am Nachmittag sinken. Danach steigen die PM- Konzentrationen kontinuierlich bis Mitternacht an, wobei kein Maximum am Abend ähnlich zu Ort Melpitz beobachtet werden kann.

Die durchschnittlichen Konzentrationen entlang der Woche zeigen höhere PM- Konzentrationen in der Mitte der Woche von Mittwoch bis Freitag. An den Wochenenden ist ein leichter Rückgang zu beobachten, der niedrigste Mittelwert wird jedoch am Dienstag gefunden. Der Verlauf der PM- Konzentrationen über die Woche entspricht nicht dem Verlauf der eBC- Konzentrationen. In einem Vergleich mit den PM₁₀-Konzentrationen aus gravimetrischen Filtermessungen wird aber der Verlauf über die Woche bestätigt. Unterschiede in den Absolutwerten der PM₁₀- Massen aus Gravimetrie und abgeleitet aus der Partikelanzahlgrößenverteilung sind methodisch bedingt.

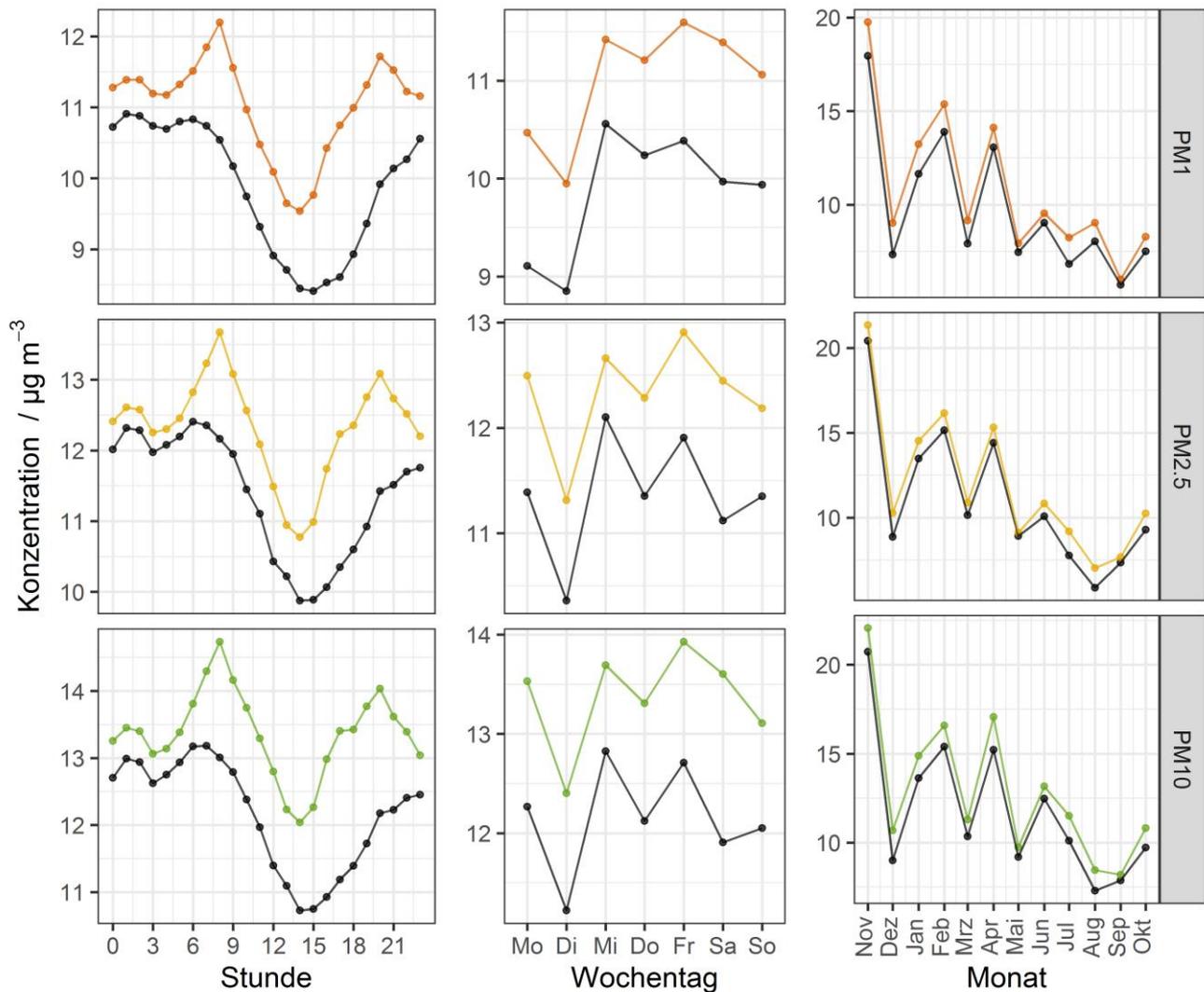


Abbildung 25: Die PM1, PM2,5 und PM10- Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahl-Größenverteilungen sind hier als Tages- (links), Wochen- (mittig) und Jahrgang (rechts) dargestellt; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.6 Massenkonzentration PM10 gravimetrisch

Die gravimetrisch bestimmten PM10- Massenkonzentrationen sind zur Auswertung als zeitlicher Verlauf der Tageswerte und als Verlauf der mittleren Konzentrationen über die Wochentage bzw. über die zwölf Monatsmittel im Projektzeitraum vergleichend für beide Messstationen in Abbildung 26 dargestellt.

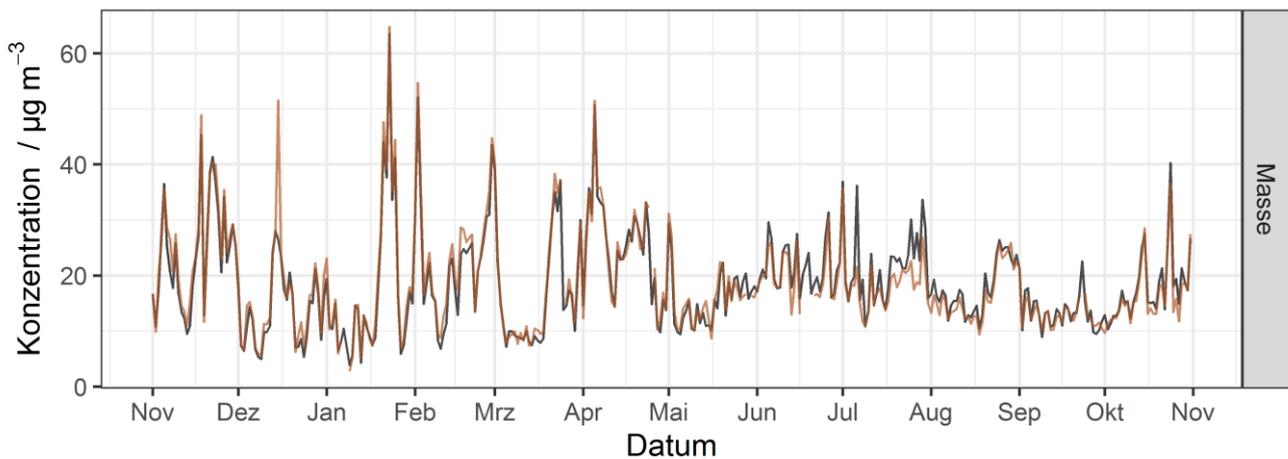


Abbildung 26: Tägliche PM10- Massenkonzentrationen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt

Im zeitlichen Verlauf der Messtage treten nur an drei Tagen Überschreitungen des Tagesmittelwertes von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ sowohl im Ort, als auch außerhalb an der Station auf. Dies deutet auf großflächig erhöhte PM10- Partikelmassenkonzentrationen hin. Mitte Dezember gibt es aber an einem Tag nur im Ort eine Überschreitung dieses Grenzwertes, während die Konzentration an der Station mit $< 30 \mu\text{g m}^{-3}$ deutlich unter diesem Wert bleibt. An diesem Samstag, 15. Dezember 2018, war in Melpitz Weihnachtsmarkt am Dorfanger. Damit verbundene Emissionen, die auch im Verlauf der Konzentration von OC, EC und WSOC (vgl. Abbildung 28) und der Anhydromonosaccharide (Levoglucosan, Mannosan und Galactosan, vgl. Abbildung 32) im Ort als deutlich erhöht gegenüber der Station zu sehen sind, könnten dadurch verursacht sein. Dies zum einen durch Reemission von Straßenstaub (Anfahrten PKW) und zum anderen durch typische Emissionen aufgrund offener Feuer und Grillen. Im gesamten Verlauf der Konzentration der gravimetrisch bestimmten Partikelmasse zeigt sich mit dem Übergang von der Heizperiode zum Sommer und Mitte Oktober zurück, dass die auftretenden Massenkonzentrationen weniger stark schwanken und im Sommer an vielen Tagen an der Station höher sind als im Ort. Darin bilden sich die Reemissionen von PM10 auf den umliegenden Feldern durch Wind und landwirtschaftliche Aktivitäten ab.

Diese Tendenz bildet sich auch im Verlauf der Monatsmittel (Abbildung 27) ab. Von November bis März sind hier die Partikelmassenkonzentrationen im Ort größer als an der Station. Für die typischen Hochsommermonate Juni, Juli und August und auch im Oktober treten aber höhere PM10- Massenkonzentrationen an der Station auf. Für die Gesamteinschätzung der Situation ist es wichtig anzumerken, dass 2018 und 2019 extrem heiße und trockene Jahre im Raum Melpitz/Torgau waren (vgl. Kapitel 4.7). Im Verlauf der mittleren PM10- Partikelmassenkonzentrationen mit den Wochentagen lassen sich höhere Konzentrationen zur Wochenmitte und die geringsten zum Beginn der Woche (Montag) erkennen. Auffällig in diesem Zusammenhang ist ein Peak der PM10- Massenkonzentration im Ort am Sonntag. Eine Interpretation dazu ist anhand des Verlaufs aus Abbildung 27 recht schwierig, da zum einen die auftretenden Differenzen im Bereich der Fehlergrenzen der gravimetrischen Partikelmassenkonzentrationsmessungen liegen und zum anderen die Messdaten des gesamten Projektzeitraumes in diese Darstellung eingehen. Es soll an dieser Stelle aber bereits angemerkt sein, dass die spätere Auswertung in Abhängigkeit von der Jahreszeit (siehe Abbildung 59, Kapitel 4.2.5) zeigen wird, dass der Effekt am Sonntag vor allem in den Sommermonaten auftritt und damit in keinem direkten Zusammenhang zu Zusatzbelastungen aus Holzheizungen steht.

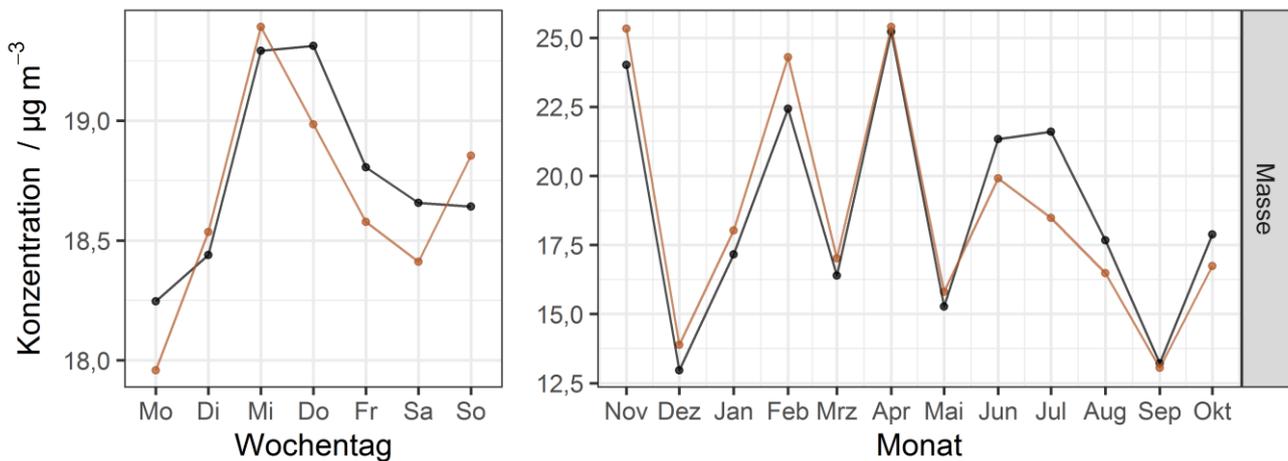


Abbildung 27: PM10- Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt

Im direkten Vergleich mit den berechneten PM10- Konzentrationen in Abbildung 25 fällt auf, dass die Monatsmittelwerte in den Sommermonaten Juni, Juli und August an der Forschungsstation Melpitz deutlich unterschiedliche Verläufe annehmen, was für den Rest des Jahres nicht der Fall ist. Die gravimetrisch bestimmten Massen liegen weit über den parallel im Ort bestimmten, während die berechneten Massen ähnlich oder etwas niedriger als die Konzentrationen im Ort liegen. Die wahrscheinliche Ursache hierfür ist die unterschiedliche Positionierung der Geräte an der Forschungsstation. Die Digital HV- Sammler stehen etwas weiter von den Messcontainern entfernt und näher an den umgebenden Feldern. Zudem ist die Einlasshöhe des Digital niedriger als der Aerosoleinlass am Messcontainer der Forschungsstation. Es ist gut vorstellbar, dass v.a. in den sehr trockenen Sommermonaten aufgewirbelter Staub von den abgeernteten Feldern stärker von den Filtersammlern als vom APSS im Container beprobt wurde und der Unterschied im Konzentrationsverlauf dadurch verursacht ist.

4.1.7 Kohlenstoff- Summenparameter (OC, EC, WSOC)

Die zeitlichen Verläufe der täglichen Konzentrationen der Summenparameter organischer Kohlenstoff (OC), elementarer Kohlenstoff (EC) und wasserlöslicher organischer Kohlenstoff (WSOC) sind für den Ort Melpitz und die Station in Abbildung 28 dargestellt.

Die Zeitreihen der Tagesmittel der OC-, EC- und WSOC- Konzentrationen im PM10 variieren ähnlich an Melpitz Ort und Station. Besonders für EC, aber auch für OC und WSOC treten oft höhere Konzentrationen im Ort auf. Allerdings sind die Konzentrationen, insbesondere für WSOC, in den Sommermonaten ab Mitte Juli im Ort und an der Station nahezu identisch, was auf eine großflächige Quelle schließen lässt. Für EC treten Tage mit sichtbar stärker erhöhter Konzentration im Ort, besonders innerhalb der Heizperiode auf. Dies ist ein Hinweis auf das Heizen mit Festbrennstoffen. Der bereits erwähnte kleine Weihnachtsmarkt auf dem Dorfanger vom 15. Dezember zeigt sich in allen drei Zeitreihen durch im Ort stark erhöhte Konzentrationen im Vergleich zur Station außerhalb des Ortes. In der Zeitreihe von EC lässt sich das Ende der Heizperiode zum Mai und der Neubeginn des Heizens mit Ende Oktober gut erkennen. Im Sommer kann für alle drei Parameter der Ferntransport von Emissionen eines großen Waldbrandes bei Lübtheen (Mecklenburg-Vorpommern) identifiziert werden. Die Luftmassen mit den Brandemissionen wurden aus Richtung Schwerin über Berlin in den Raum Torgau transportiert und waren noch in Leipzig als Brandgeruch wahrnehmbar. Im zeitlichen Verlauf ist sowohl für die Station als auch für den Ort Melpitz jeweils für OC, EC und WSOC ein Konzentrationspeak am 1. Juli 2019 zu sehen. Dieser Peak tritt dabei nahezu isoliert in der Zeitreihe für EC im Sommer auf, da die EC- Konzentrationen im PM10 in und um Melpitz eher sehr gering sind. Dieser Waldbrand in Lübtheen steht zwar nicht unmittelbar im Zusammenhang mit Untersuchungen

von Emissionen aus Holzheizungen, zeigt aber die Leistungsfähigkeit der eingesetzten Analytik. Die Auswirkungen dieses Waldbrandes werden auch in den Zeitreihen der täglichen Konzentrationen der Anhydromonosaccharide (vgl. Abbildung 32) als isolierter Wert im Sommer an beiden Stationen registriert. Die Waldbrandemissionen haben wahrscheinlich auch den Konzentrationspeak an der Station und im Ort in den Zeitreihen der Partikelmassenkonzentration PM10 (vgl. Abbildung 26) am 1. Juli verursacht.

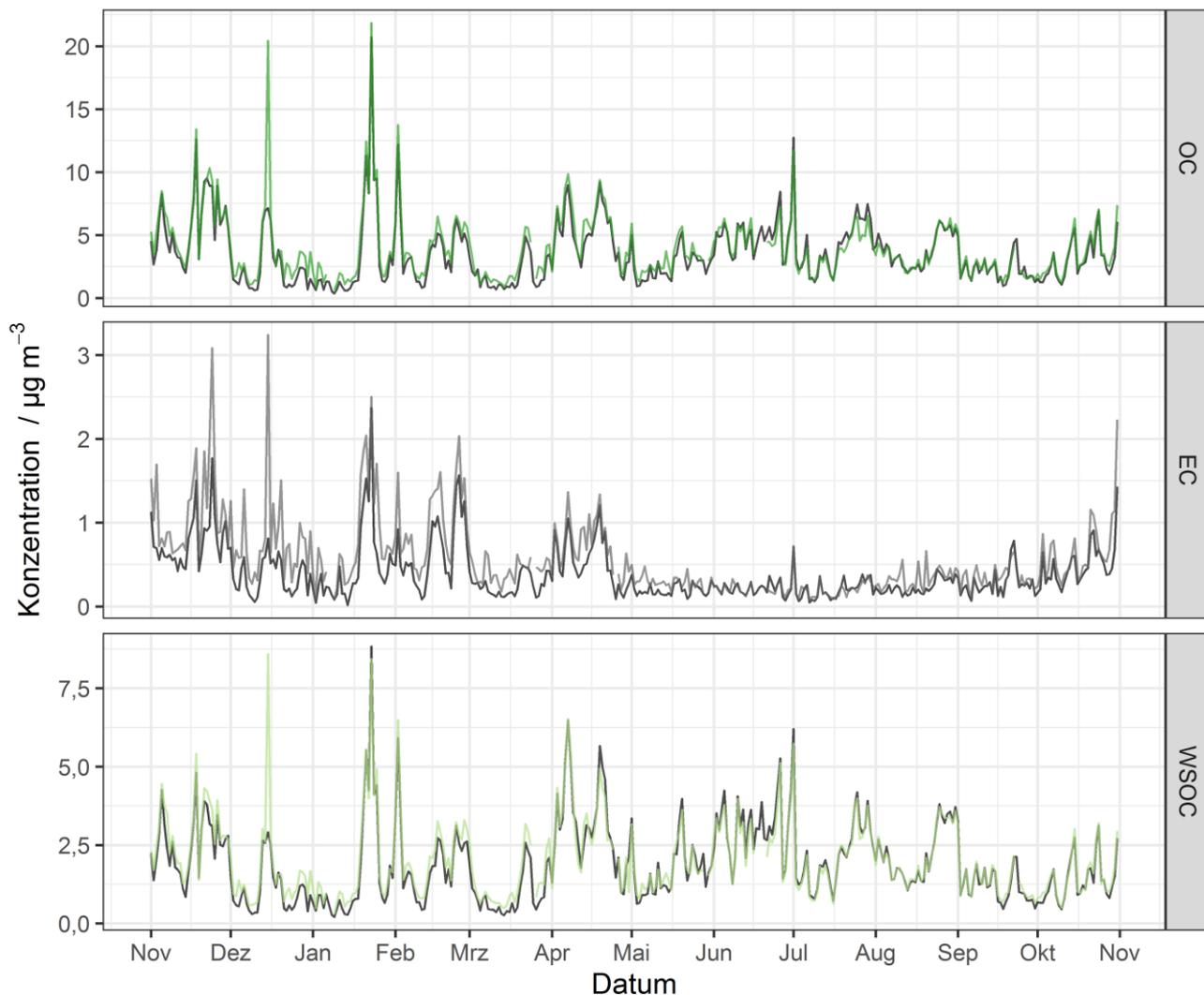


Abbildung 28: OC, EC und WSOC Massenkonzentrationen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Abbildung 29 zeigt die Konzentrationen von OC, EC und WSOC für Melpitz und die Station ergänzend zu den Zeitreihen als Mittelwerte über die Wochentage und als Monatsmittel über das Jahr des Projektes.

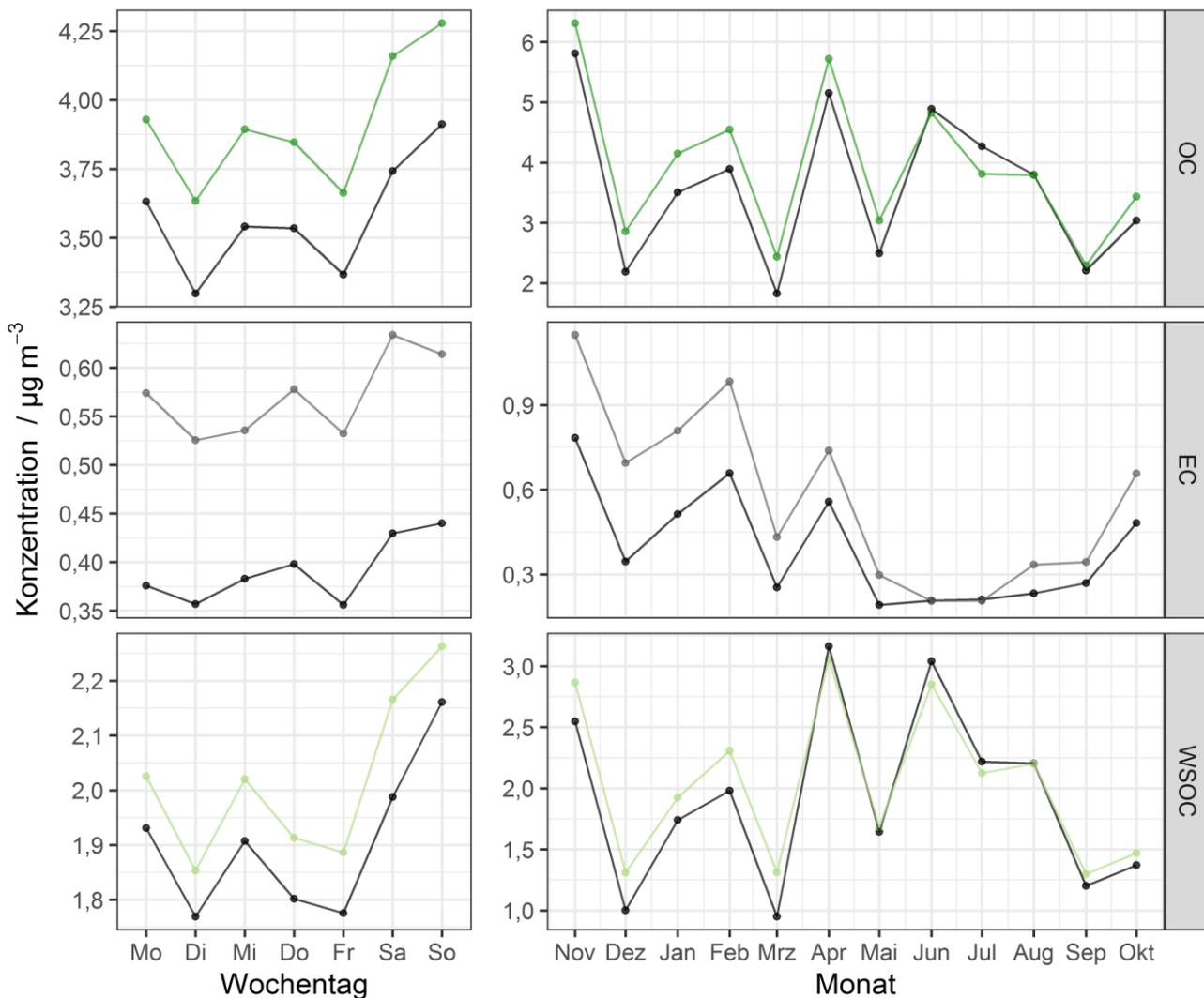


Abbildung 29: OC, EC und WSOC Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

In Abbildung 29 zeigen sich im Verlauf der Wochentage jeweils höhere Konzentrationen für OC, EC und WSOC im Ort, dabei nehmen die Konzentrationen zum Wochenende hin zu. Die Konzentrationsdifferenz (relativ betrachtet) für WSOC ist am kleinsten und für EC am größten. Zwar entsteht WSOC auch bei der Holzverbrennung, hat aber seine wichtigere Quelle in Emissionen der Vegetation. Der Verlauf der Monatsmittel für OC, EC und WSOC über den Projektzeitraum ist unterschiedlich. OC ist für die Monate variabel, aber in der Größenordnung vergleichbar, die höchsten Konzentrationen treten im Ort auf. Die Monatsmittel für EC sinken in ihrer Konzentration nach der Heizperiode stark ab, sind im Sommer sehr gering und steigen mit Beginn der Heizperiode erneut an. Die höchsten Konzentrationen für EC treten im Ort auf, nur im Sommer (Juni und Juli) zeigt sich kein Unterschied. Dies zeigt eine stationäre Quelle für EC im Ort Melpitz an, die an Stärke mit der Temperatur variiert (Verbrennung von Festbrennstoffen, Holz- und im geringen Maße auch Kohle). WSOC variiert im Verlauf der Monate und ist in der Heizperiode im Ort nur leicht erhöht, dieser Effekt kann teilweise mit Emissionen aus Verbrennungsprozessen erklärt werden.

4.1.8 Ionen

Die Zeitreihen der täglichen Konzentrationen von wasserlöslichen Ionen im PM₁₀, gemessen im Ort und außerhalb an der Station, sind in Abbildung 30 dargestellt.

Es zeigt sich in allen Zeitverläufen eine hohe Variabilität der Konzentrationen bei gleichzeitig sehr guter Übereinstimmung im Trend beider Messstationen. Die Hauptbestandteile in atmosphärischem PM sind typischerweise Nitrat, Sulfat und Ammonium, die in den Wintermonaten die höchsten Konzentrationen (bis zu 25 µg m⁻³) bei größter Variabilität aufweisen. Ein ähnlicher Verlauf zeigt sich für Chlorid, als Nebenbestandteil in PM. Natrium, Magnesium und lösliches Calcium, als weitere Nebenbestandteile in kontinentalem PM, erreichen im Verlauf des Projektzeitraumes maximal etwa 2,5 µg m⁻³ bei gleichbleibender Variabilität. Auffallend sind stark erhöhte Konzentrationen zum Jahreswechsel, insbesondere für Kalium, aber auch für Magnesium, sowie Chlorid und Natrium. Dabei sind die Konzentrationen für Kalium und Magnesium im Ort höher als an der Station. Die Ursache dürfte im Silvesterfeuerwerk liegen.

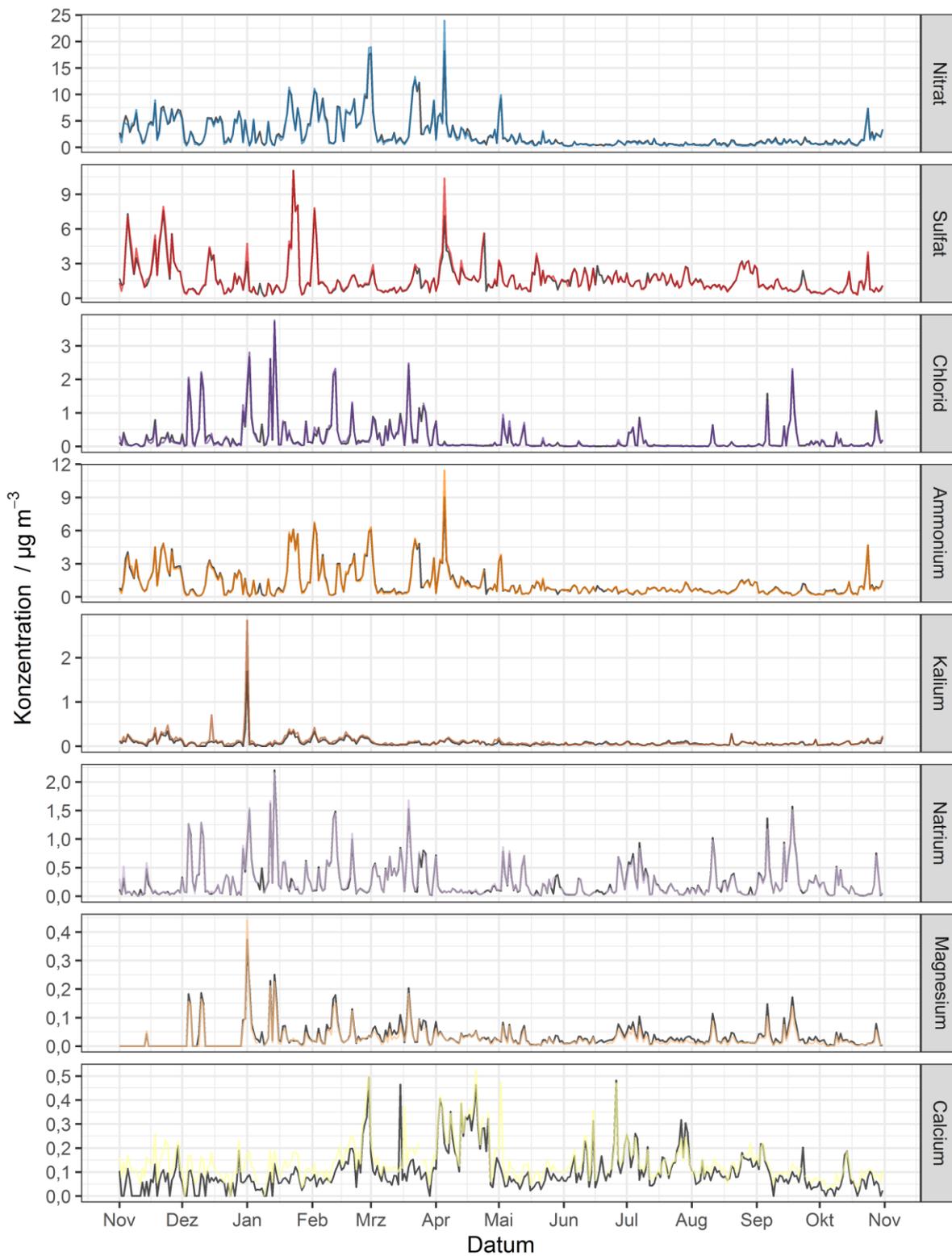


Abbildung 30: Konzentrationen der Ionen dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Ergänzend dazu, sind in Abbildung 31 die Konzentration der wasserlöslichen Ionen in PM10 als Wochen- bzw. Jahrgang (Monatsmittelwerte) für beide Messstationen vergleichend dargestellt.

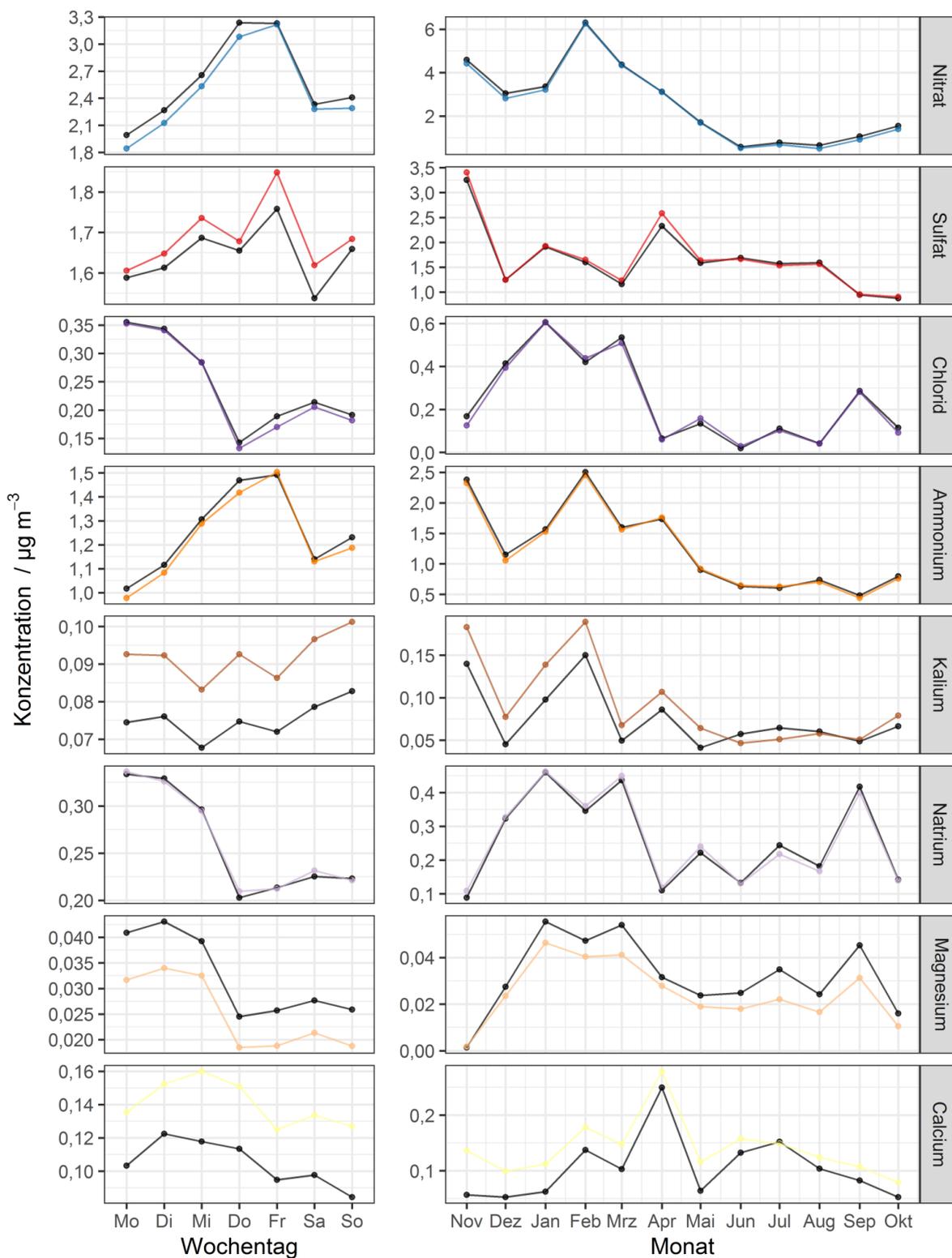


Abbildung 31: Konzentrationen der Ionen dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Die in Abbildung 31 dargestellten Jahresgänge zeigen in etwa für die erste Hälfte des Projektzeitraumes (vorrangig während der Heizperiode) höhere Konzentrationen für Kalium und Calcium im Ort im Vergleich zur Station. Dabei deutet die höhere Kaliumkonzentration im Ort auf Holzverbrennung hin, die höhere Calciumkonzentration dagegen auf mehr mineralische Bestandteile im PM10. Da die Kaliumkonzentrationen in den Monaten Juni bis September 2019 an beiden Stationen sehr ähnlich sind, ist die Ursache für die erhöhten Konzentrationen an Kalium im Ort Melpitz für den Zeitraum November 2018 bis Mai 2019 mit hoher Wahrscheinlichkeit Heizungsemissionen aus der Verbrennung von Holz. Der Kaliumgehalt in Holz ist etwa 0,2 % und bedingt damit etwa 30 % des Oxid-Aschegehaltes (ABBASZADE et al. 2009). Eine Zunahme der Reemission vom Boden bedingt durch Kraftfahrzeugverkehr im Ort ist als Ursache auszuschließen, da sich dies im Sommerhalbjahr ähnlich verhalten würde. Die Jahresgänge der Konzentrationen der anderen Ionen Nitrat, Sulfat, Chlorid, Ammonium und Natrium sind zwischen Station und Ort eher vergleichbar. Für Magnesium zeigen sich dagegen über den gesamten Projektzeitraum auftretende minimal höhere Konzentrationen an der Station im Vergleich zum Ort Melpitz. Dies bestätigt sich auch anhand des in Abbildung 31 (links) dargestellten Wochenganges. Ganz allgemein zeigt sich allerdings für die meisten Ionenkonzentrationen kein auffälliger Trend im Wochengang an sich und in den Unterschieden zwischen Ort und Station. Für Kalium, als ein Tracer für Holzverbrennung, deutet sich zwar eine Zunahme zum Wochenende hin an, diese ist allerdings sehr gering ($< 0,01 \mu\text{g m}^{-3}$) und auch an beiden Stationen ähnlich. Diese Auswertemethode gibt demnach keinen Hinweis auf eine verstärkte Holzverbrennung an Wochenenden im Ort Melpitz.

4.1.9 Oxalat und Anhydromonosaccharide

In Abbildung 32 sind die Zeitreihen der Partikelmassenkonzentrationen für Oxalat als Markerverbindung für sekundäres organisches Aerosol und die Anhydromonosaccharide Levoglucosan, Mannosan und Galactosan als Markerverbindungen für Biomasseverbrennung gezeigt.

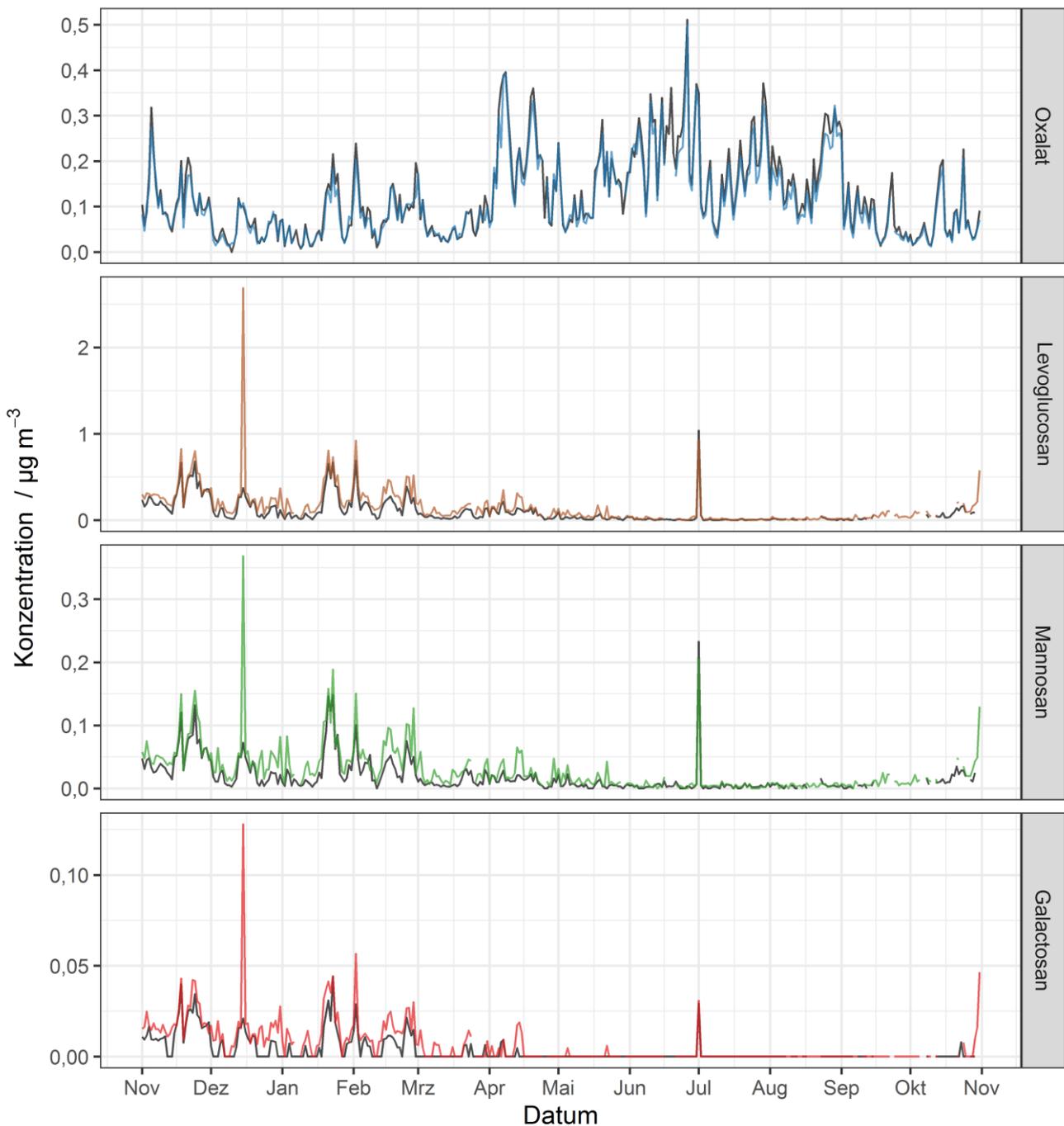


Abbildung 32: Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Für alle vier in Abbildung 32 dargestellten PM₁₀- Inhaltsstoffe zeigen sich generell vergleichbare Variationen im Ort und an der Station, allerdings mit deutlichen Unterschieden im Auftreten der zwei verschiedenen Klassen von Markerverbindungen. Während Oxalat als Marker für sekundär gebildetes organisches Aerosol an beiden Station in nahezu identischen Konzentrationen vorliegt, sind die Werte der Anhydromonosaccharide während der Heizperiode eindeutig höher im Ort als an der Station. Hervorzuheben ist in diesem Zusammenhang die Sonderstellung des 15.12.2018, da hier der Einfluss des örtlichen Weihnachtsmarktes auf dem Dorfanger klar identifiziert werden kann. Peaks sind nur im Ort und nur für die Holzverbrennungstracer, nicht aber für die „Referenz“ Oxalat zu verzeichnen. In den Sommermonaten sind die ermittelten Konzentrationen der

Anhydromonosaccharide an beiden Stationen nahe null. Die Ursache für den Peak Anfang Juli ist der zuvor in Kapitel 4.1.7 bereits diskutierte Einfluss des Waldbrandes bei Lübtheen. Dass die Erhöhungen der Anhydromonosaccharidkonzentrationen an beiden Stationen gleichermaßen auftreten, bestätigt den Einfluss ferntransportierter Verbrennungsemissionen.

Ergänzend zu den Zeitreihen wurden auch die Konzentrationen von Oxalat und den Anhydromonosacchariden im PM10 in Abhängigkeit vom Wochen- bzw. Jahresgang ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 33 dargestellt.

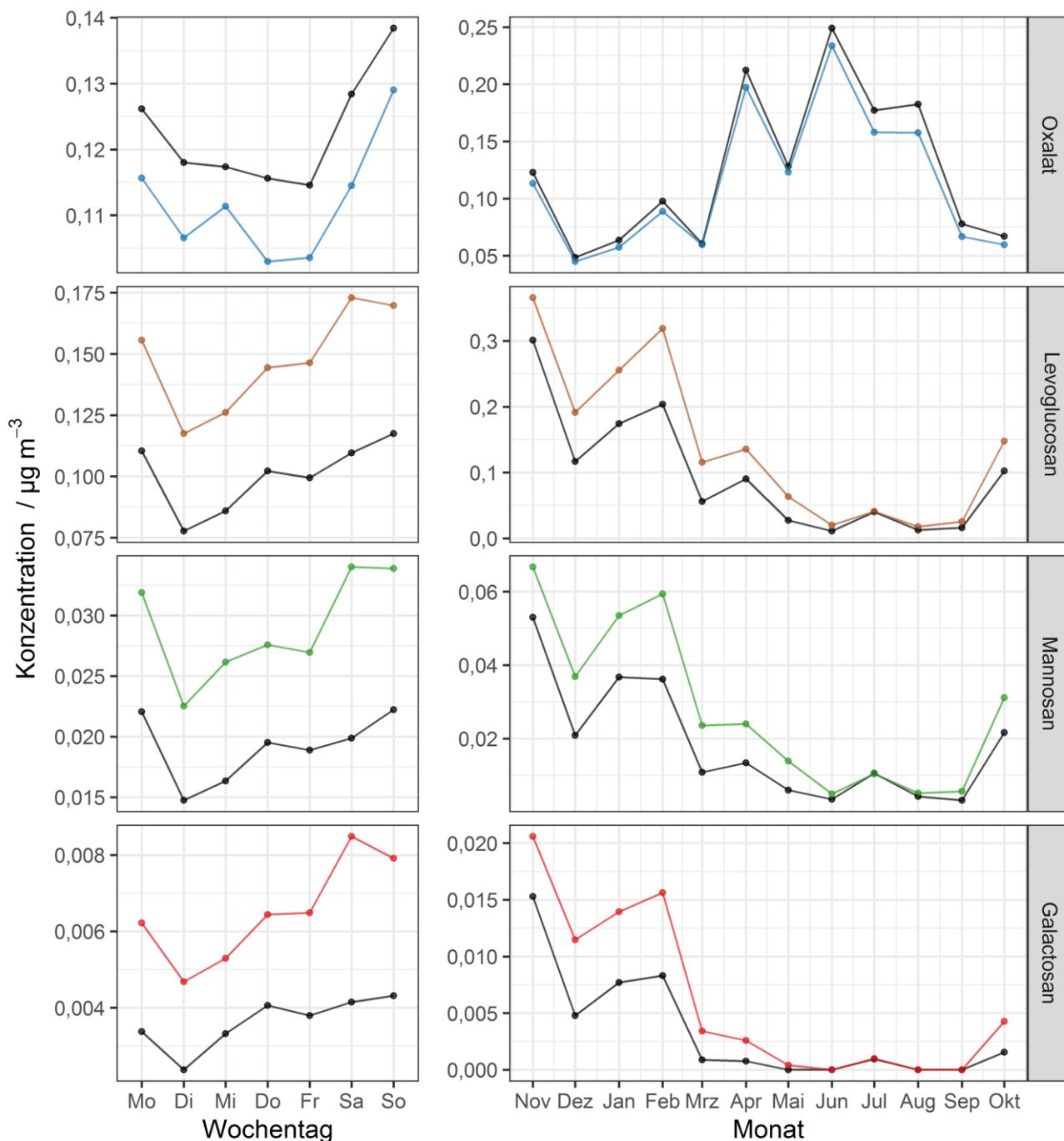


Abbildung 33: Konzentrationen von Oxalat und den Anhydromonosacchariden dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Die Darstellung aller vier PM10- Inhaltsstoffe im Jahrgang bestätigt die bereits anhand der Zeitreihen identifizierte Abhängigkeit der Konzentrationen der Anhydromonosaccharide von der Jahreszeit, mit höheren Werten während der kalten Jahreszeiten im Ort. Diese Konzentrationsunterschiede sind ein Beleg für Holzverbrennung als Quelle im Ort Melpitz. Da nicht nur Levoglucosan, sondern im gleichen Maße auch Mannosan und Galactosan diesen Verlauf zeigen, ist Braunkohleverbrennung als mögliche weitere Quelle unwahrscheinlich (FABBRI et al. 2009).

Die Auswertung der Konzentrationen von Oxalat und der Anhydromonosaccharide in Abhängigkeit vom Wochentag ermöglicht bei Berücksichtigung der Messdaten des gesamten Projektzeitraumes (Abbildung 33 links) keine eindeutige Zuordnung erhöhter Werte zu bestimmten Wochentagen. Lediglich ein Trend zu höheren Messwerten beim Übergang von Woche zu den Wochenenden ist zu erkennen, dies aber für Oxalat gleichermaßen wie für die Anhydromonosaccharide. Im Unterschied zu Oxalat zeigen die Verbrennungstracer allerdings eine Zunahme von Freitag zu Samstag, gefolgt von einer erneuten Abnahme sonntags. Da dies nur im Ort und nicht an der Station auftritt, ist es ein Hinweis auf einen lokalen Einfluss.

4.1.10 Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)

In Abbildung 34 sind die Verläufe täglicher Massenkonzentrationen im PM10 für sieben PAK dargestellt. Ähnlich zu den vorherigen Inhaltsstoffen, zeigt sich auch für die PAK eine gut aufgelöste Variabilität, wobei die Konzentrationsverläufe der unterschiedlichen PAK auf unterschiedlichem Niveau der absoluten Konzentrationen relativ zueinander ähnliche Muster aufweisen. Dies bedeutet, dass alle PAK wenn dann gemeinsam in höherer bzw. geringerer Konzentration auftreten und vergleichbaren Quellen zuzuordnen sind. Aus den Zeitreihen in Abbildung 34 wird bereits die Jahreszeitabhängigkeit des Auftretens der PAK sichtbar. Während für alle PAK die höchsten Konzentrationen während der Heizperiode (November 2018 bis März 2019) auftreten, sind die Konzentrationen in den Sommermonaten Juni, Juli, August bis in den September hinein nahe 0. Aus dem Vergleich der Stationen wird deutlich, dass die auftretenden Konzentrationen für alle PAK im Ort höher sind als außerhalb an der Station, was auf zusätzliche Emissionen aus stationärer Kohle- oder Holzverbrennung im Ort schließen lässt. Der 12-Monats-Mittelwert des gesetzlich geregelten Benzo(a)pyrens betrug an der Station 0,28 und im Ort 0,48 ng m⁻³. Auch wenn es sich hierbei um keinen exakten kalendarischen Jahresmittelwert handelt, so kann doch festgestellt werden, dass beide Werte zwar unterhalb des EU-Zielwertes von 1 ng m⁻³, aber oberhalb der Empfehlung der Weltgesundheitsorganisation (WHO) zum Schutz der Gesundheit von 0,12 ng m⁻³ liegen. Ein möglicher Einfluss von Verbrennungsemissionen aus dem Verkehr (Dieselabgase aus mobilen Quellen wie Autos und Busse) kann ausgeschlossen werden, da sich diese auch in den Sommermonaten widerspiegeln würden. Dass sich die PAK in diesem Projekt als Tracer für Holzverbrennungsemissionen eignen, beweist weiterhin der Nachweis des Weihnachtsmarktes auf dem Dorfanger in Melpitz am 15.12.2018. Die Konzentrationen aller PAK sind an diesem Tag im Ort signifikant höher als an der außerhalb liegenden Station, analog Abbildung 28 für OC, EC und WSOC und Abbildung 32 für die Anhydromonosaccharide.

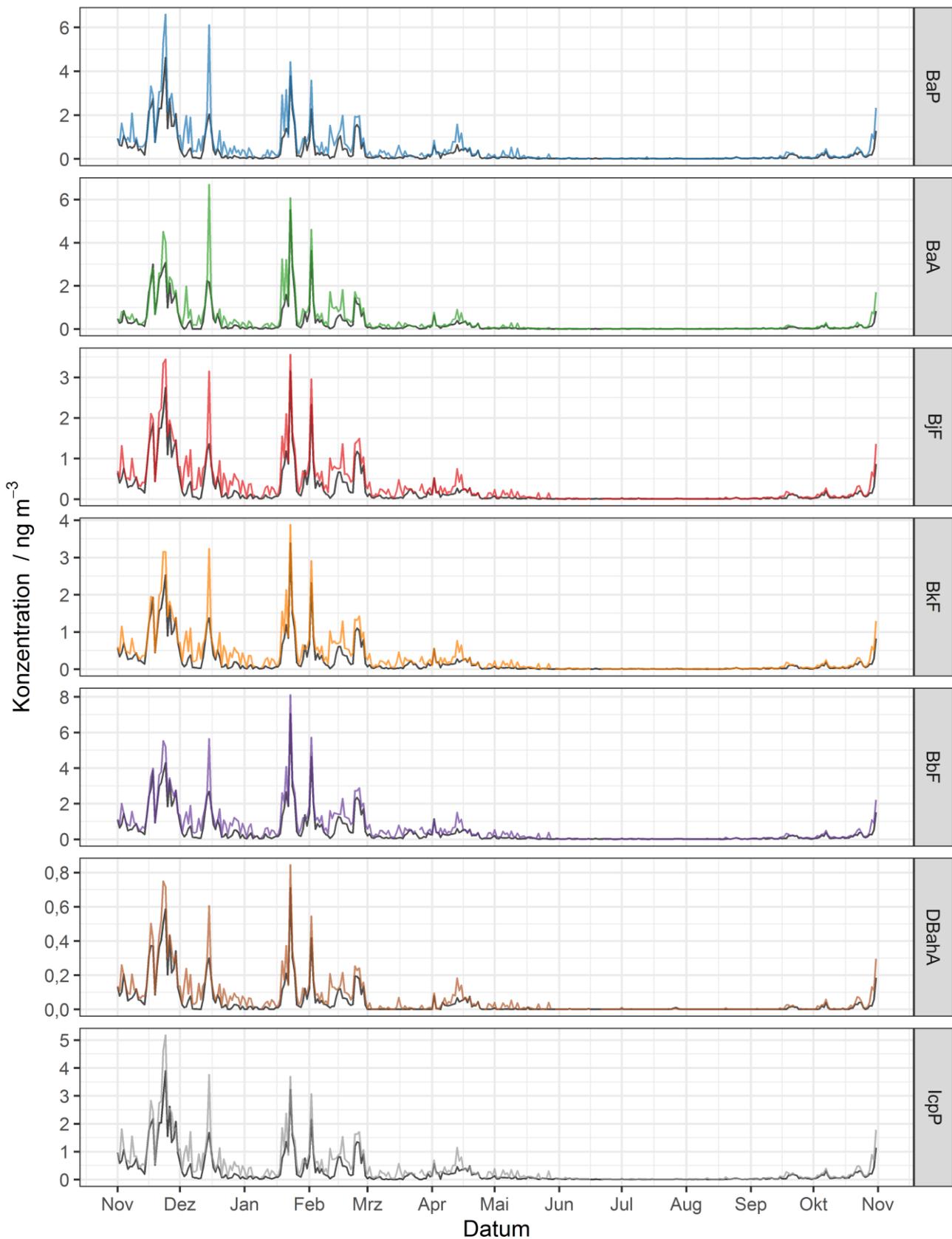


Abbildung 34: Konzentrationen PAKs dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Die Auswertung der wochentäglichen Verläufe der mittleren Partikelmassenkonzentrationen für PAK im Ort und außerhalb an der Station in Abbildung 35 (links) belegt erneut, dass die PAK-Konzentrationen über den gesamten Messzeitraum gemittelt im Ort immer höher als an der Station sind. Zum Wochenende steigen die Konzentrationen minimal an und die Differenz nimmt mit steigenden Konzentrationen im Ort zu. Dies kann auf steigende Emissionen aus Verbrennungsprozessen im Ort deuten, besonders aus Holzöfen, die hauptsächlich am Wochenende zusätzlich betrieben werden. Aufgrund des Auftretens einer wochentäglichen Variation und einer Zunahme der Konzentrationsdifferenz nur am Wochenende (hauptsächlich samstags) lässt sich eine alleinige Ausprägung dieses Effekts durch unterschiedliche Variationen der Grenzschichthöhe (Mischungsvolumen) am Ort und über dem umgebenden Feld ausschließen. Die Konzentrationsverläufe der PAK im Wochengang sind denen für die Anhydromonosaccharide sehr ähnlich (vgl. Abbildung 33), was erneut auf vergleichbare Quellen schließen lässt. Die Darstellung der mittleren Konzentrationen der Monate im Jahresgang in Abbildung 35 (rechts), bestätigt die stets höheren PAK-Konzentrationen im Ort während der Heizperiode, bei identischen Messwerten an beiden Stationen während der Sommermonate.

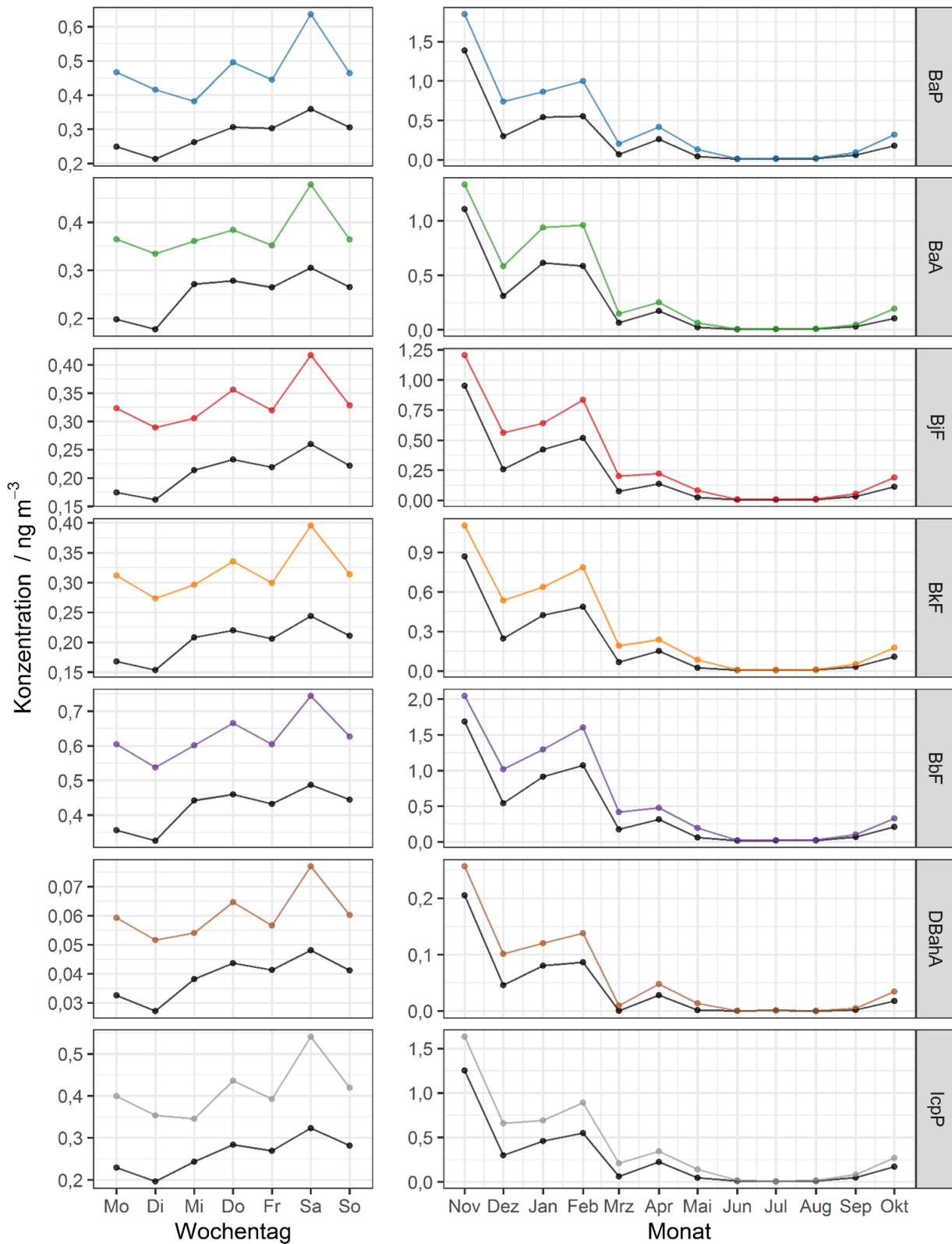


Abbildung 35: Konzentrationen der PAK dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.11 Alkane

Die zeitlichen Verläufe der n- Alkane, als weitere Bestandteile des OC im PM10, sind für beide Messstationen in Abbildung 36 vergleichend gezeigt. Generell wird deutlich, dass, wie schon für andere PM10- Inhaltsstoffe auch, die Zeitreihen eine hohe Variabilität bei gleichzeitig sehr ähnlichem Trend beider Messstationen aufweisen. Für die meisten der in Abbildung 36 dargestellten Zeitreihen der n- Alkane sind die ermittelten Konzentrationen im Ort Melpitz (farbige Linien) meist höher als an der Station. Die Konzentrationsmuster variieren allerdings zwischen den einzelnen Alkanen. Hier ist zum Beispiel zu erwähnen, dass die Variabilität in den Zeitreihen der C20-C24 Alkane ab März deutlich geringer ist als für die restlichen Vertreter (C25-C34). Im Gegensatz dazu zeigen sich für alle Alkane durchweg hohe Konzentrationen für eine gewisse Periode im Januar 2019. Mit Ausnahme von C20 und C21 ist dies auch für die Monate November und Dezember 2018 zu erkennen. Ebenfalls erhöhte Konzentrationen zeigen sich im Juni und Juli 2019, insbesondere für die höheren ungeradkettigen Alkane, z. B. C27, C29 und C31. Im Gegensatz zu den Wintermonaten sind hier allerdings tendenziell die Konzentrationen an der Forschungsstation höher als im Ort. Die Ursache hierfür könnte in einer während der trockenen Sommermonate erhöhten Aufwirbelung von Bodenmaterial liegen, die aufgrund der organischen biologischen Bestandteile des Bodens zu erhöhten Konzentrationen insbesondere dieser ungeradkettigen Alkane führt (VAN PINXTEREN et al. 2016).

Zur weiteren Auswertung sind in Abbildung 37 die Konzentrationen der C20-C34 Alkane als Wochen- und Jahresgang gezeigt. Es wird deutlich, dass die Konzentrationen der Alkane keine eindeutige Abhängigkeit von einem bestimmten Wochentag besitzen. Auffällig ist aber, dass die Konzentrationen stets im Ort höher als an der Station sind. Dies bestätigt sich auch in den dargestellten Jahresgängen, wobei sich andeutet, dass die Differenz zwischen beiden Stationen in den Wintermonaten (bzw. der Heizperiode) höher als in den restlichen Monaten ist und sich wie oben schon beschrieben für manche Alkane in den Monaten Juni und Juli umkehrt. Verantwortlich für diese unterschiedlichen Konzentrationsmuster und Jahreszeitabhängigkeiten sowohl zwischen den Alkanen als auch zwischen den Stationen sind die unterschiedlichen Quellen der n- Alkane. Während die Vertreter der n- Alkane bis C25 hauptsächlich aus anthropogenen Quellen resultieren (z. B. Verkehrsemissionen), stammen die n- Alkane ab C25 überwiegend aus biologischen Quellen, vor allem Abrieb von Pflanzenwachsen, Bodenmaterial oder Biomasseverbrennung (IINUMA et al. 2007). Die höhere Variabilität in den Konzentrationsmustern ab C25 in Abbildung 36, gemeinsam mit den erhöhten Konzentrationen im Winter im Ort (Abbildung 37) sind ein weiterer Hinweis auf zusätzliche Holzverbrennung im Ort Melpitz. Typisch für Biomasseverbrennung als Ursache sind höhere Konzentrationen der Alkane mit ungerader Anzahl an C- Atomen (IINUMA et al. 2007). Die in Abbildung 36 dargestellten Zeitreihen bestätigen dies in guter Näherung.

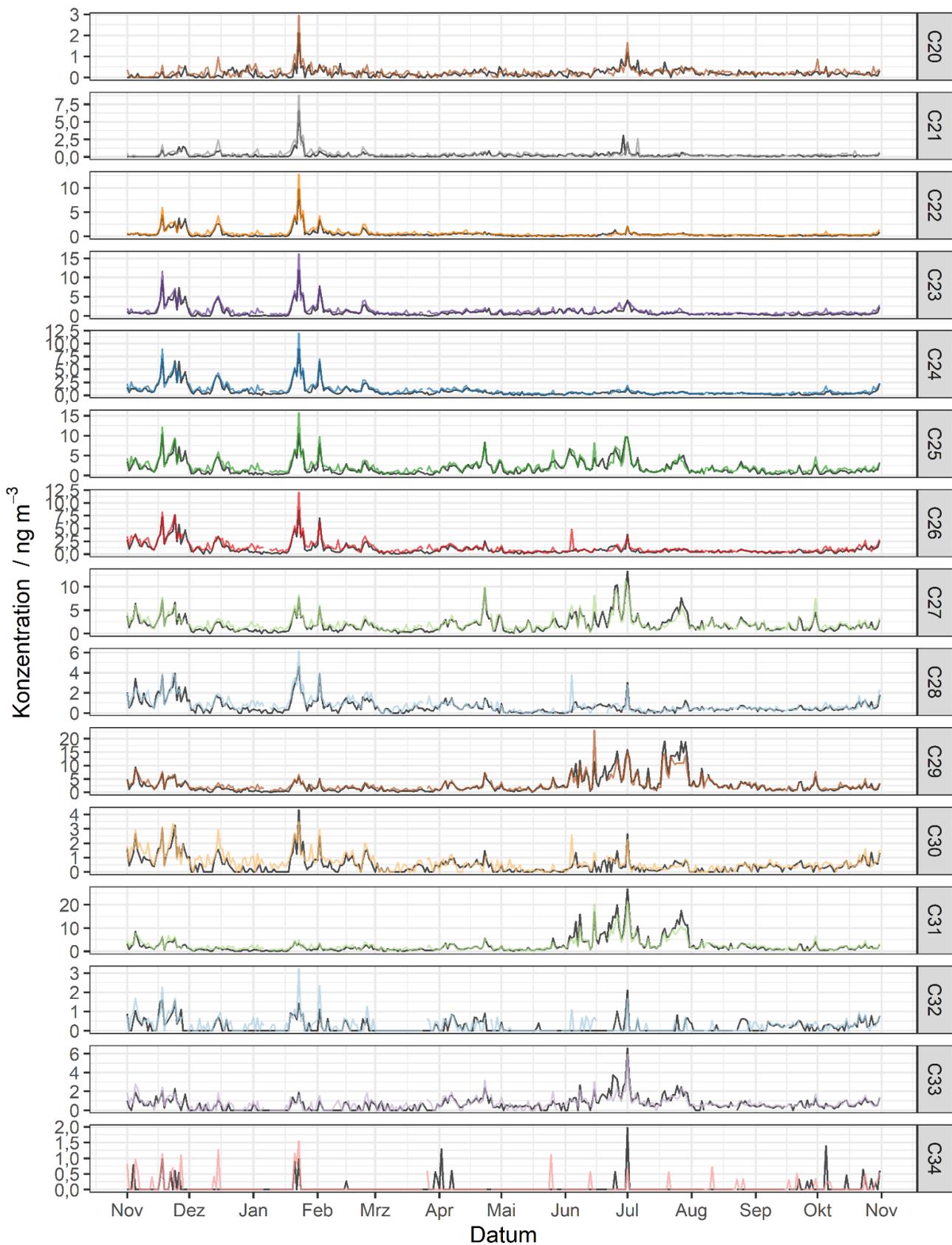


Abbildung 36: Konzentrationen C20-C34 Alkane dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

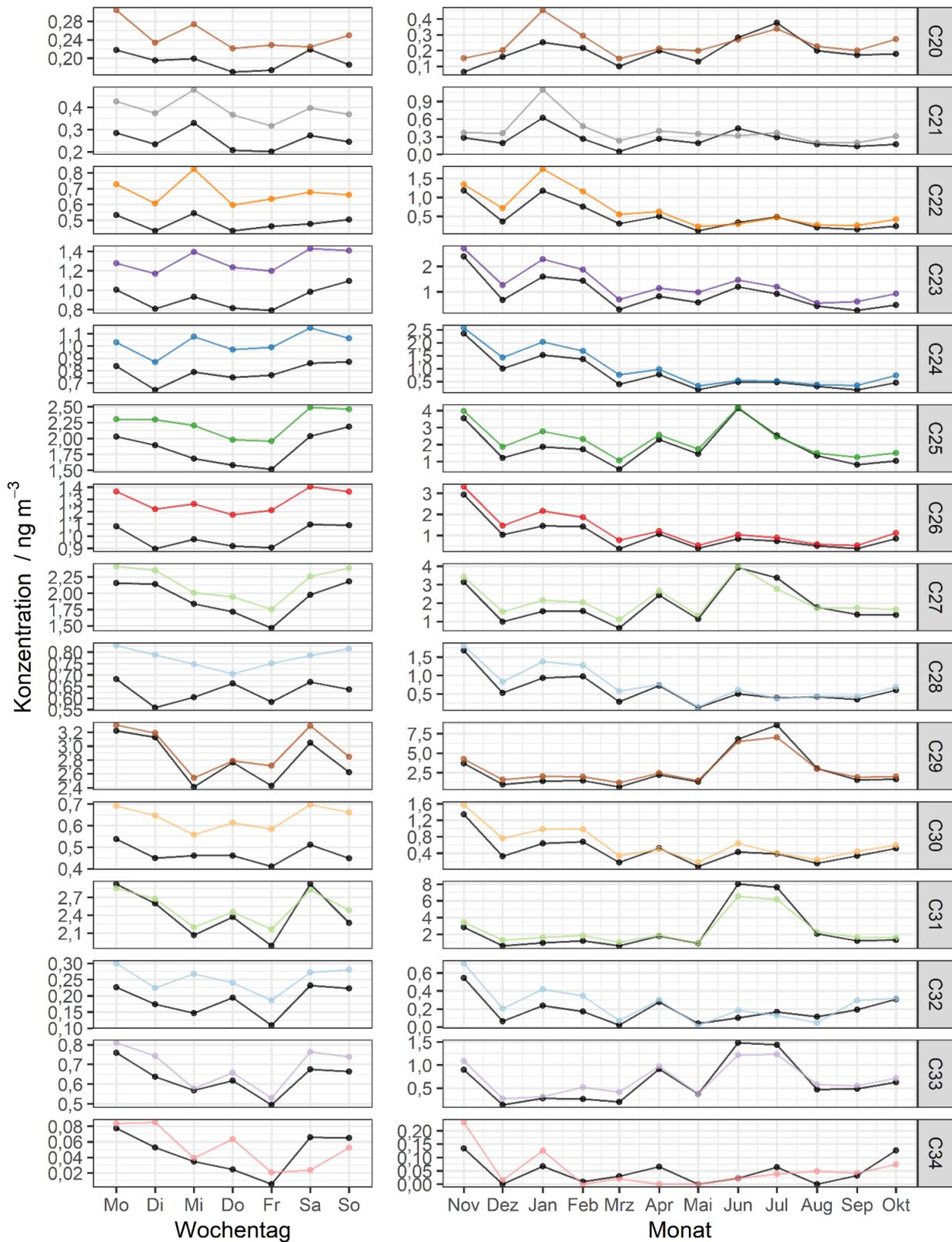


Abbildung 37: Konzentrationen C20-C34 Alkane dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.12 Hopane

In Abbildung 38 sind die Verläufe täglicher Massenkonzentrationen im PM10 für ausgewählte Hopane dargestellt. Im Gegensatz zu den Anhydromonosacchariden und den PAK sind die Hopane eine Gruppe von organischen Verbindungen, die üblicherweise als Markerverbindungen für die Verbrennung fossiler Brennstoffe genutzt werden. Aus den Zeitreihen wird deutlich, dass die Hopankonzentrationen über den verfügbaren Messzeitraum hinweg generell sehr niedrig ($< 1 \text{ ng m}^{-3}$) sind bzw. nur recht selten in messbaren Größenordnungen vorliegen. Daraus resultiert eine sehr begrenzte Datenverfügbarkeit. Unter Berücksichtigung dieser Einschränkung kann dennoch die Verbrennung fossiler Brennstoffe als Quelle für die Hopane anhand Abbildung 38 abgeleitet werden. Messbare Konzentrationen treten häufiger im Ort Melpitz als an der Station und hauptsächlich in den Wintermonaten (bzw. in der Heizperiode) auf. Auf eine detailliertere Auswertung, analog den zuvor diskutierten PM10- Inhaltsstoffen, wird aber aufgrund der sehr begrenzten Datenmenge im Weiteren verzichtet.

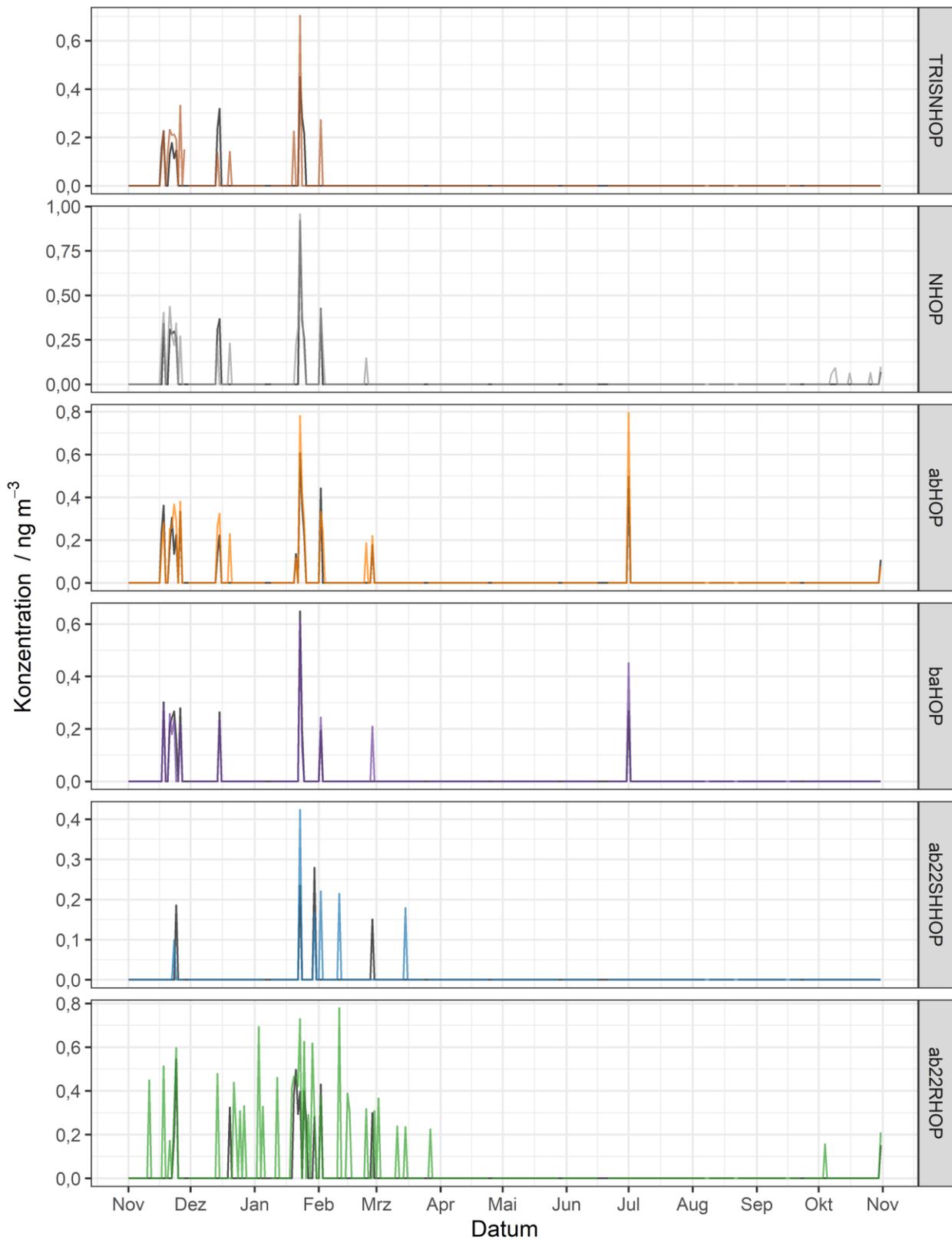


Abbildung 38: Konzentrationen Hopane dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.13 Metalle

In Abbildung 39 und Abbildung 40 sind die Zeitreihen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt. Da die Metallkonzentrationen im PM10 nicht täglich, sondern nur alle 3 Tage gemessen wurden, erfolgt die Darstellung der Messwerte in Form von Punkten an Stelle von Linien. Des Weiteren ist in den Abbildungen jeweils das fallspezifische Detektionslimit als schwarze Linie eingezeichnet. Dieses ergibt sich aus dem dreifachen der Standardabweichung des Feldblindwertes. In Abbildung 39 und Abbildung 40 ist zu erkennen, dass die Metallkonzentrationen im Projektzeitraum generell sehr stark streuen und sehr nah bzw. zum Teil sogar unterhalb des Detektionslimits liegen. Dies ist möglich, da der methodisch bedingte Feldblindwert von den Messwerten abgezogen wird. Aus dem Vergleich der farbigen und schwarzen Punkte wird deutlich, dass die Metallkonzentrationen keinen Trend erkennen lassen. Allein für Co sind in dieser Form der Darstellung zum Teil erhöhte Messwerte im Ort in den Monaten Januar und Februar zu identifizieren. In Ergänzung zu den Zeitreihen zeigen auch die Darstellungen der Konzentrationen der Metalle als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts) in Abbildung 41 und Abbildung 42 keine eindeutigen Abhängigkeiten. Unter Berücksichtigung der zuvor genannten Einschränkungen lassen sich eventuelle Einflüsse durch Heizungen lediglich für die drei Metalle Co, Se und Rb der insgesamt 17 analysierten Metalle aufgrund minimal höherer Messwerte im Ort in den Wintermonaten Januar und Februar erkennen. Experimente zur Verbrennung von Birkenholz haben allerdings gezeigt, dass Co, Se und Rb mit Emissionsfaktoren von maximal $0,16 \text{ mg kg}^{-1}$ Holz nicht zu den wichtigsten emittierten Metallen zählen (HEDBERG et al. 2002). Die Emissionsfaktoren der in Abbildung 39 und Abbildung 40 dargestellten Metalle in absteigender Reihenfolge sind nach HEDBERG et al. (2002) Zn, Mo, Cr, Cd, Pb, Fe, Mn und Ni. Studienübergreifend gehören zu den wichtigsten Vertretern der Metalle resultierend aus der Verbrennung von Holz, in Abhängigkeit vom Brennstoff und den Verbrennungsbedingungen, neben Zn die Metalle Fe, Mn, Pb und Ni (ALVES et al. 2011; CASTRO et al. 2018; HEDBERG et al. 2006; HOVORKA et al. 2015; KASURINEN et al. 2017; KOEBACH BØLLING et al. 2009; LAUPSA et al. 2009). Da für keines der genannten Metalle eindeutige Unterschiede zwischen den Messstationen bzw. Abhängigkeiten von der Jahreszeit (Abbildung 41 und Abbildung 42) erkennbar sind, ist eine Identifikation von Zusatzbelastungen aus Holzheizungen im vorliegenden Forschungsvorhaben über diese PM10- Inhaltsstoffe nicht realisierbar.

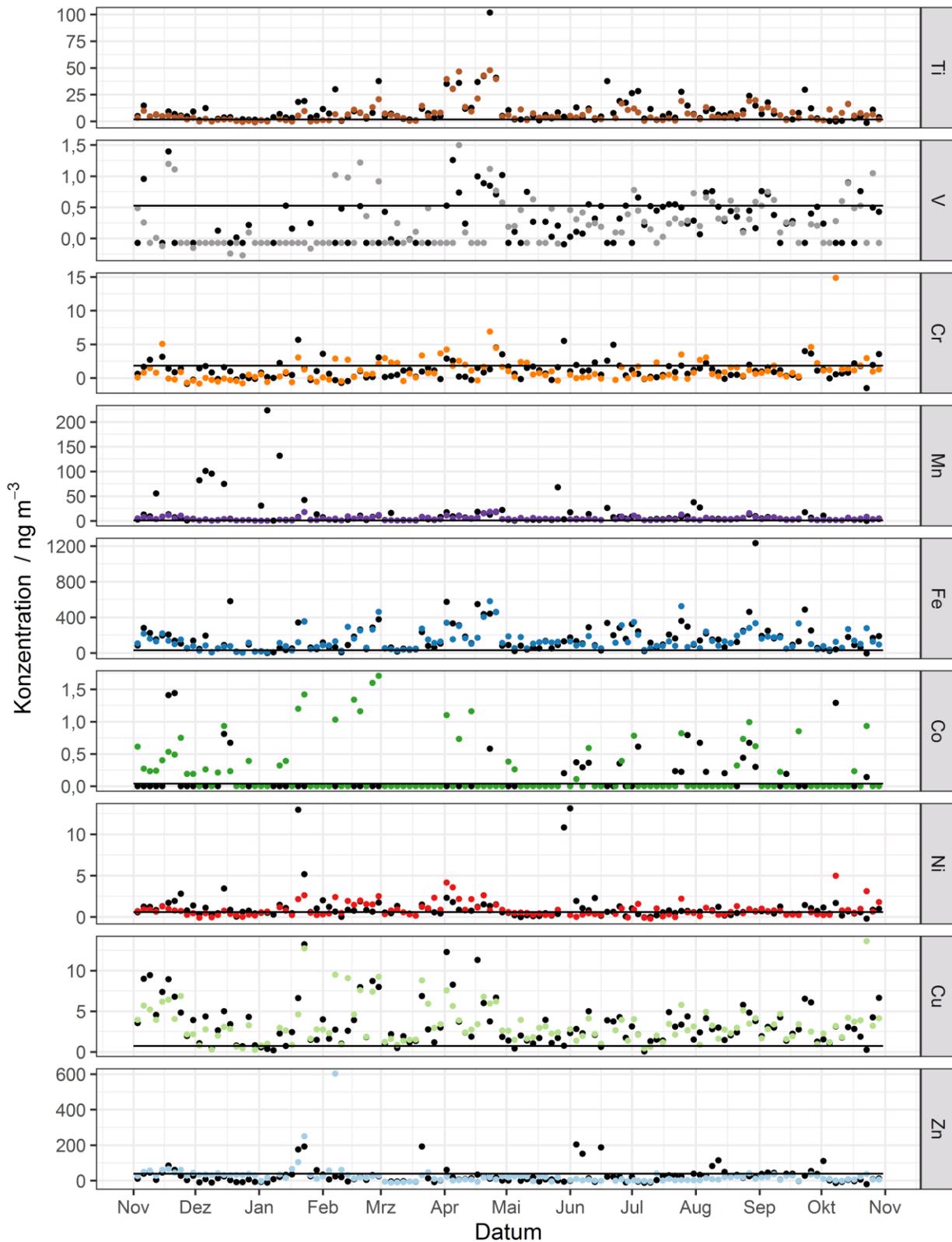


Abbildung 39: Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Punkte, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Punkte dargestellt; die schwarze Linie kennzeichnet das fallspezifische Detektionslimit

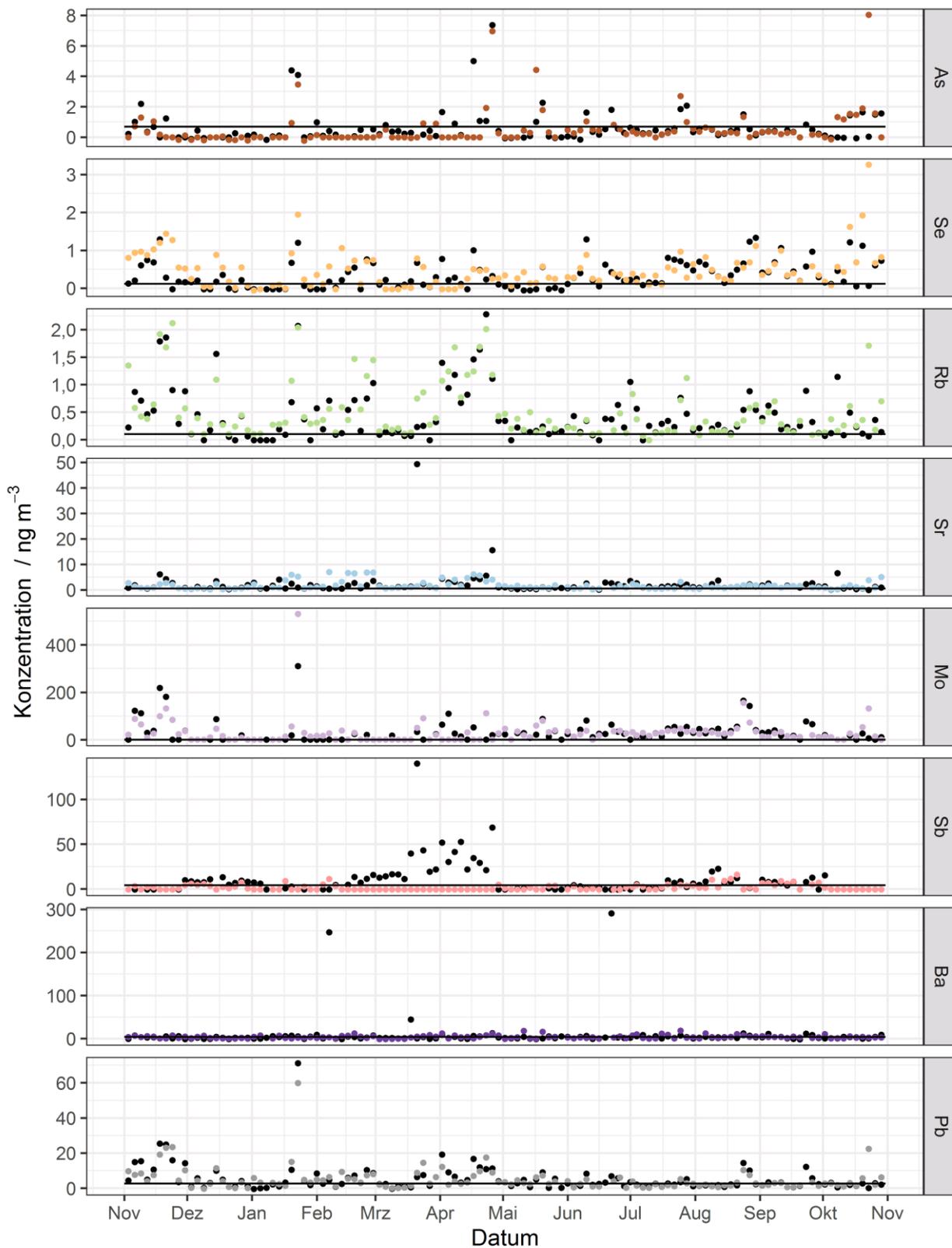


Abbildung 40: Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Zeitreihen; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Punkte, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Punkte dargestellt, die schwarze Linie kennzeichnet das fallspezifische Detektionslimit

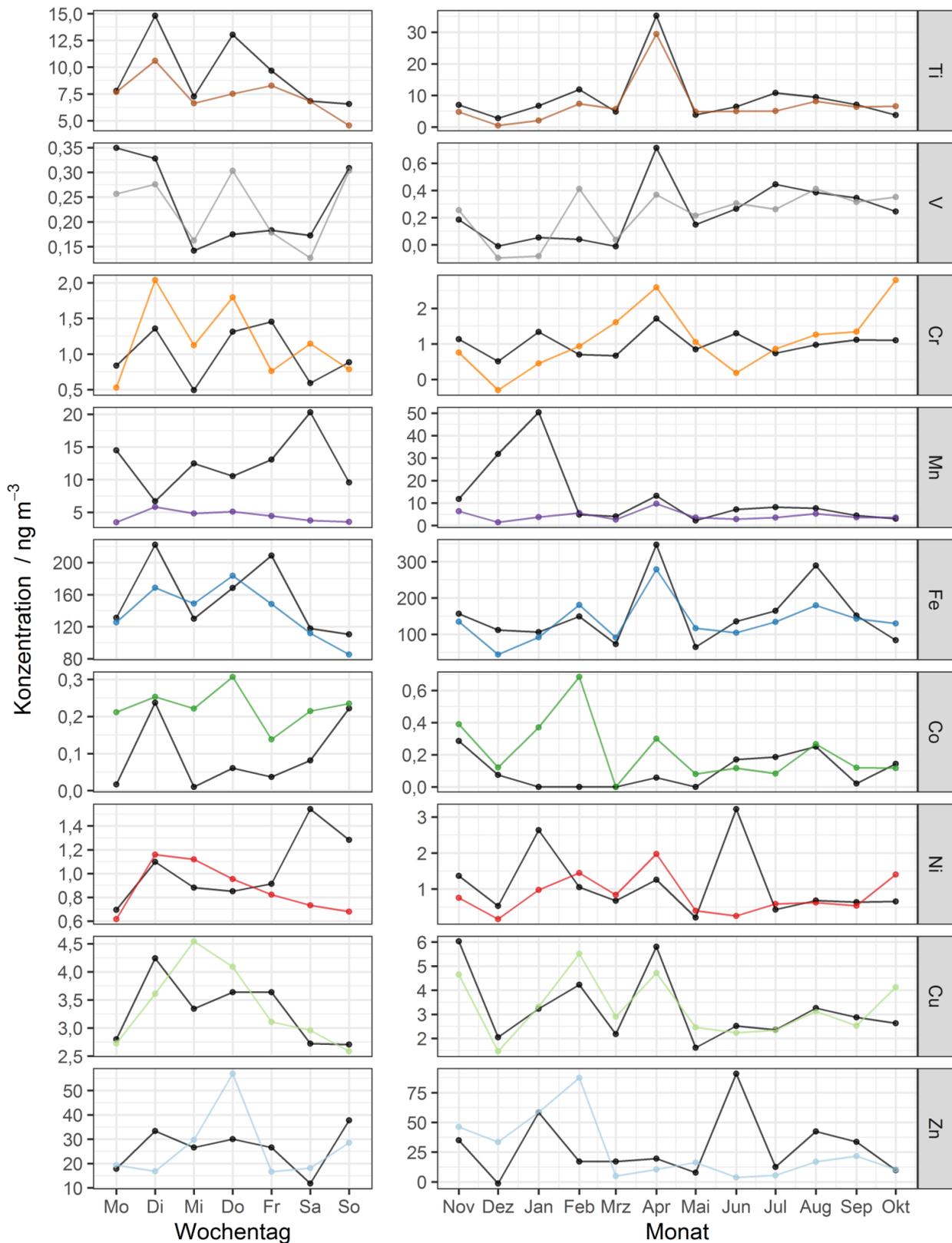


Abbildung 41: Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn dargestellt als Wochengang (links) und Jahrgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

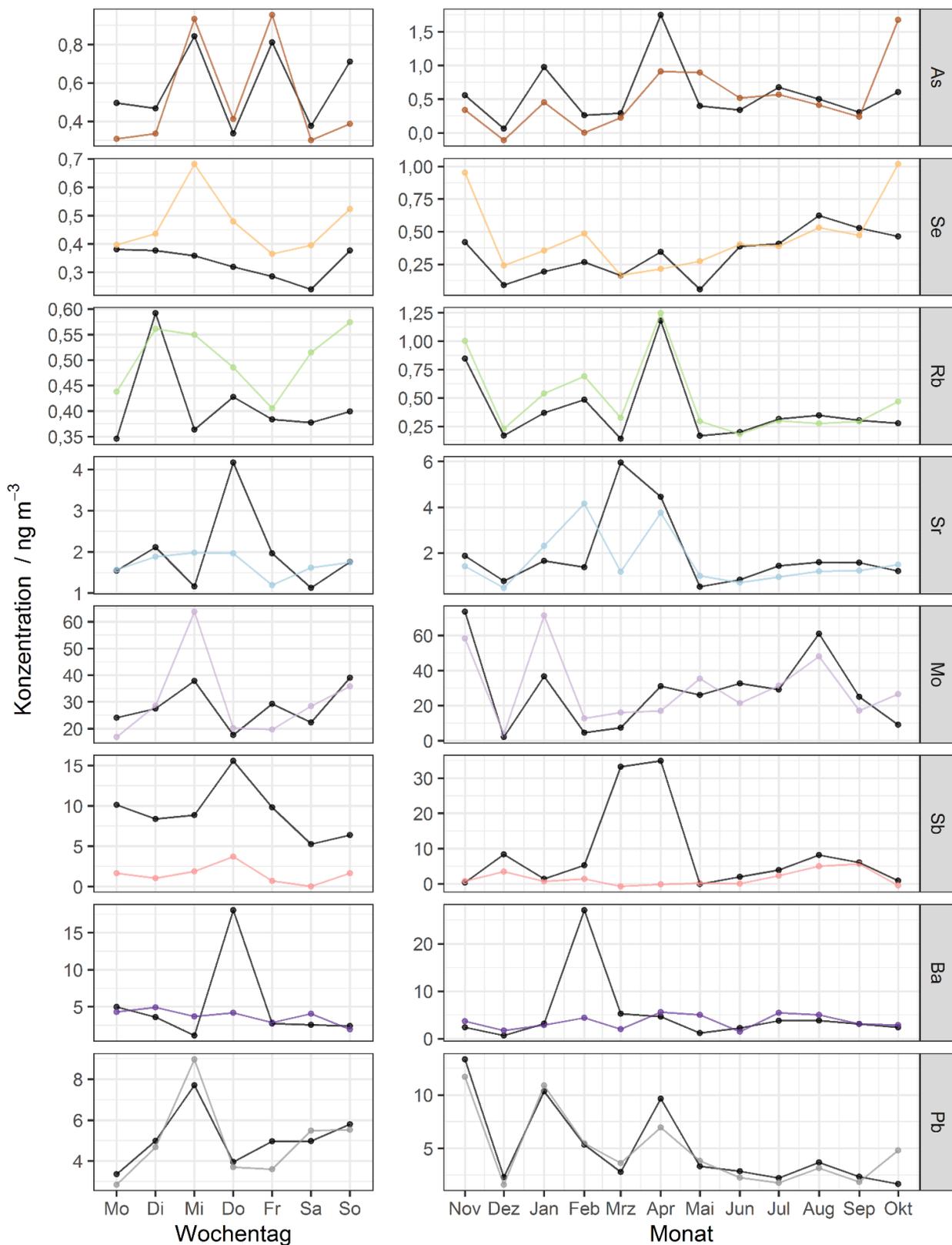


Abbildung 42: Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Wochengang (links) und Jahresgang (rechts); Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

4.1.14 Dioxine im Staubniederschlag

Ergänzend zu den in diesem Bericht beschriebenen Messungen wurden parallel an beiden Messstationen Depositionsmessungen von Dioxinen und Furanen (PCDD/PCDF), sowie dioxinähnlichen polychlorierten Biphenylen (PCB) im Staubniederschlag über einen Zeitraum von 6 Monaten (25.01. bis 26.07.2019) durchgeführt. Die Messungen wurden durch die vom LfULG beauftragte Müller-BBM GmbH durchgeführt, ausgewertet und in einem eigenen Abschlussbericht zusammengefasst (HEINZ 2019). Diese Messungen zeigen für die PCB keine quantifizierbaren Depositionsraten, für einzelne Kongenere der Dioxine und Furane aber messbare Werte oberhalb ihrer analytischen Bestimmungsgrenzen. Selbst bei konservativer Abschätzung derer Toxizitätsäquivalente (TEQ) liegen diese zwar unterhalb des Zielwertes für die langfristige Luftreinhalteplanung von 4 pg WHO-TEQ/(m²×d), zeigen aber erhöhte Werte im Ort im Vergleich zu den Werten an der Station (HEINZ 2019). Die im Abschlussbericht dokumentierten Depositionsraten sind zum Vergleich mit den im vorliegenden Projekt bestimmten Konzentrationsverläufen in Abbildung 43 wiedergegeben.

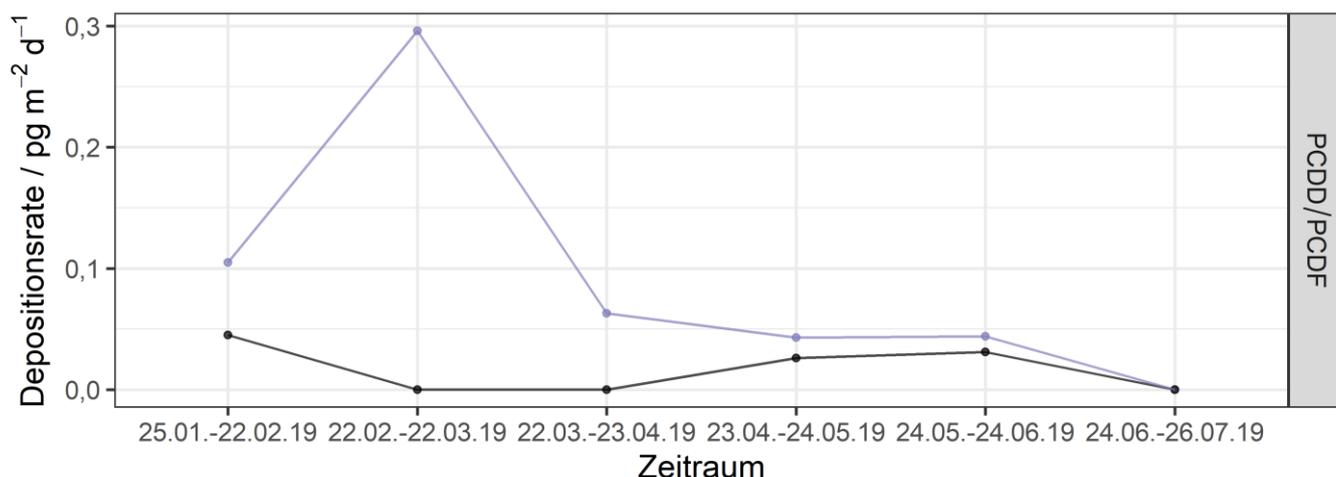


Abbildung 43: Mittelwerte der Depositionsraten der bestimmaren PCDD/PCDF-Kongenere an der Station (schwarze Linie) und im Ort (farbige Linie).

Im Ort sind die Depositionsraten vor allem in den Wintermonaten deutlich höher als an der Forschungsstation im Hintergrund. Dies ist konsistent mit den ebenfalls im Winter gemessenen erhöhten Konzentrationen typischer Bestandteile von Holzverbrennungspartikeln (s. o.) und kann daher auf den Einfluss der im Ort betriebenen Feuerungsanlagen zurückzuführen sein.

4.2 Bilanzierung nach Lenschow (Inkrement Holzheizung)

Aus den an den beiden Stationen gemessenen Stunden- und Tagesmittelwerten wurde wie in Kapitel 3.6.3 beschrieben das „Inkrement Holzheizung“ als Differenz zwischen Ort und Station berechnet. Bedingt durch ihre Lage westlich des Ortes Melpitz sollte die Forschungsstation insbesondere bei westlichen Windrichtungen unbeeinflusst von Emissionen aus dem Ort sein, wobei es bei östlichen Windrichtungen zum Transport der Ortsemissionen zur nur 300 m entfernt gelegenen Forschungsstation kommen könnte, was die berechneten Inkremente erniedrigen würde. Um dies zu prüfen, werden zunächst die Inkremente der stündlichen aus den Partikelanzahlkonzentrationen berechneten Massen für PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀ in Abhängigkeit von Windrichtung und Windgeschwindigkeit als Polardiagramme in Abbildung 44 dargestellt. Hierbei ist zu beachten, dass die Werte in den Polardiagrammen zur besseren Erkennung der Muster geglättet wurden.

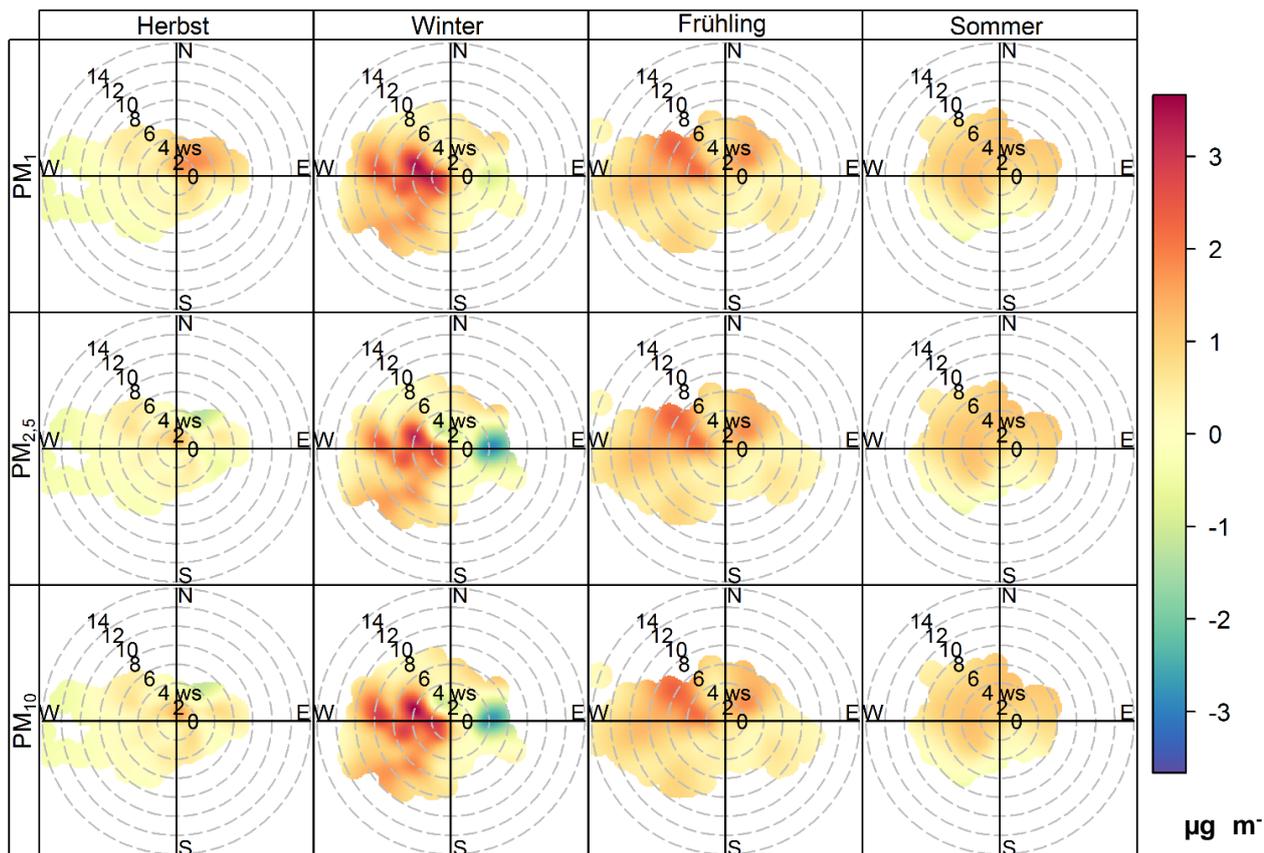


Abbildung 44: Polardiagramme für die Inkremente der Massenkonzentration PM1, PM2,5 und PM10 aus Anzahlkonzentration in Abhängigkeit von der Windrichtung, Windgeschwindigkeit und der Jahreszeit

Es ist gut zu erkennen, dass insbesondere im Winter (Dezember – Februar) die Inkremente v.a. bei westlichen Windrichtungen deutlich positiv sind, während sie bei östlichen Windrichtungen oft nahe Null oder sogar negativ sind, die Konzentrationen im Ort also niedriger als an der Forschungsstation sind. Da Unterschiede in den Massekonzentrationen nicht unbedingt nur auf Emissionen aus der Holzheizung, sondern möglicherweise auch auf andere Partikelquellen zurückzuführen sind, wurde dieselbe Auswertung in Abbildung 45 mit den stündlichen Konzentrationen des eBC durchgeführt, die spezifischer für Verbrennungsprozesse sind.

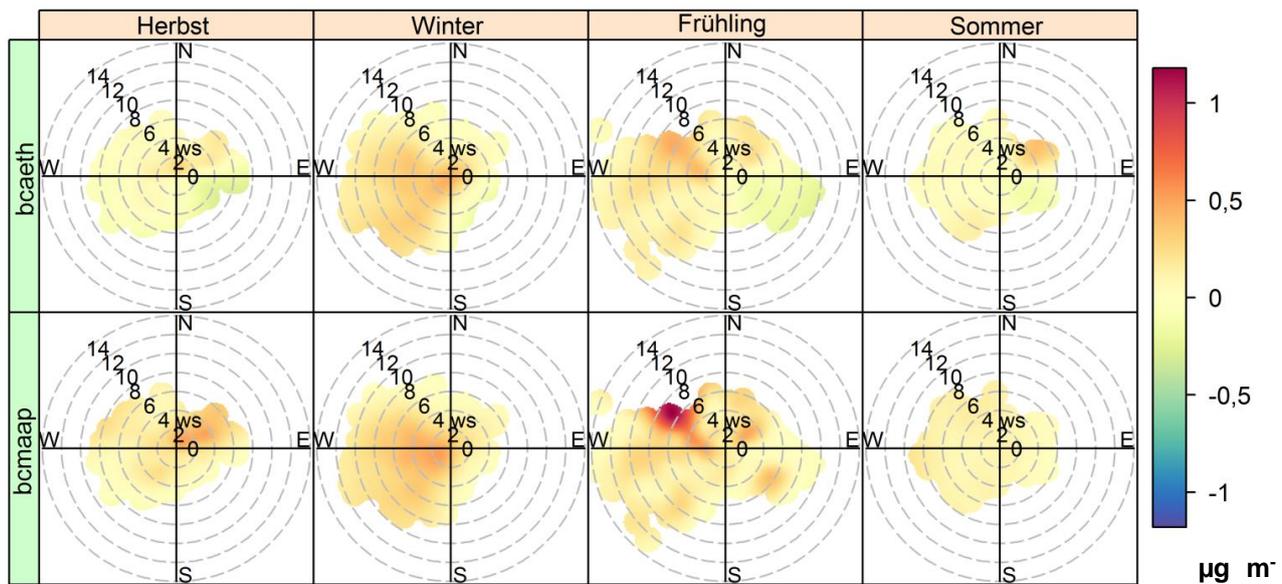


Abbildung 45: Polardiagramme für die Inkremente des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP in Abhängigkeit von der Windrichtung, Windgeschwindigkeit und der Jahreszeit

Auch hier liegen deutlich positive Inkremente im Winter insbesondere bei westlichen Windrichtungen, sowie bei Schwachwind < ca. 2 m s^{-1} vor.

Diese Ergebnisse passen gut mit der Lage der beiden Stationen, sowie der geographischen Orientierung der Bebauung im Ort Melpitz zusammen. Von der Station in der Ortsmitte aus betrachtet erstrecken sich die Häuser v.a. nach West und Ost, wohingegen in nördlicher und südlicher Richtung jeweils nur sehr wenige Häuser stehen, deren Emissionen bei Anströmung aus diesen Windrichtungen zur Ortsmitte gelangen könnten.

Um die Berechnung der Inkremente der Stundenwerte nicht zu verfälschen, wurden daher für die folgenden Auswertungen nur Stunden mit Windrichtung zwischen 180 und 315° oder mit Windgeschwindigkeiten $< 2 \text{ m s}^{-1}$, dann unabhängig von der Windrichtung, verwendet.

Für die Inkremente aus den Tagesmittelwerten sind windrichtungsabhängige Effekte wie für die Stundenwerte beobachtet nicht direkt zu erkennen, was möglicherweise am deutlich längeren Mittelungszeitraum liegen könnte. Da außerdem die Datenbasis mit 365 Werten im Vergleich zur Datenbasis der Stundenwerte viel kleiner war, wurde auf eine Filterung der Tagesmittelwerte nach Windrichtung und Windgeschwindigkeit verzichtet.

Vergleiche der Ergebnisse, die einmal mit gefiltertem und einmal mit komplettem Datensatz durchgeführt wurden, zeigen jedoch sowohl für die stündlichen, als auch für die täglichen Messwerte keine gravierenden Unterschiede. Vor allem in den Tagesgängen erscheinen die im Folgenden gezeigten Ergebnisse des gefilterten Datensatzes allerdings etwas plausibler.

Neben dieser Filterung wurden für eine Reihe von Messgrößen einzelne extreme Inkremente, die sehr weit außerhalb der ansonsten typischen Schwankungen lagen, aus dem Datensatz entfernt. Dies betraf jeweils nur sehr wenige (je nach Messgröße 1 – 6) Ausreißer, die ansonsten die gemittelten Zeitprofile z. B. für einen einzelnen Wochentag zu sehr verzerrt hätten.

Im Folgenden werden die berechneten Inkremente, gemittelt als Tages-, Wochen- oder Jahresgang für alle Messgrößen gezeigt und diskutiert.

4.2.1 Stickoxide

Abbildung 46 zeigt das Inkrement der mittleren NO, NO₂ und NO_x- Konzentrationen für alle vier Jahreszeiten im Projektzeitraum jeweils als Tagesgang der Stundenmittelwerte. Abbildung 47 und Abbildung 48 zeigen dieses Inkrement als Wochengang für die Jahreszeiten bzw. im Verlauf der Monatsmittel über den Projektzeitraum. In allen drei Abbildungen ist immer das jeweilige 95% Konfidenzintervall mit eingezeichnet.

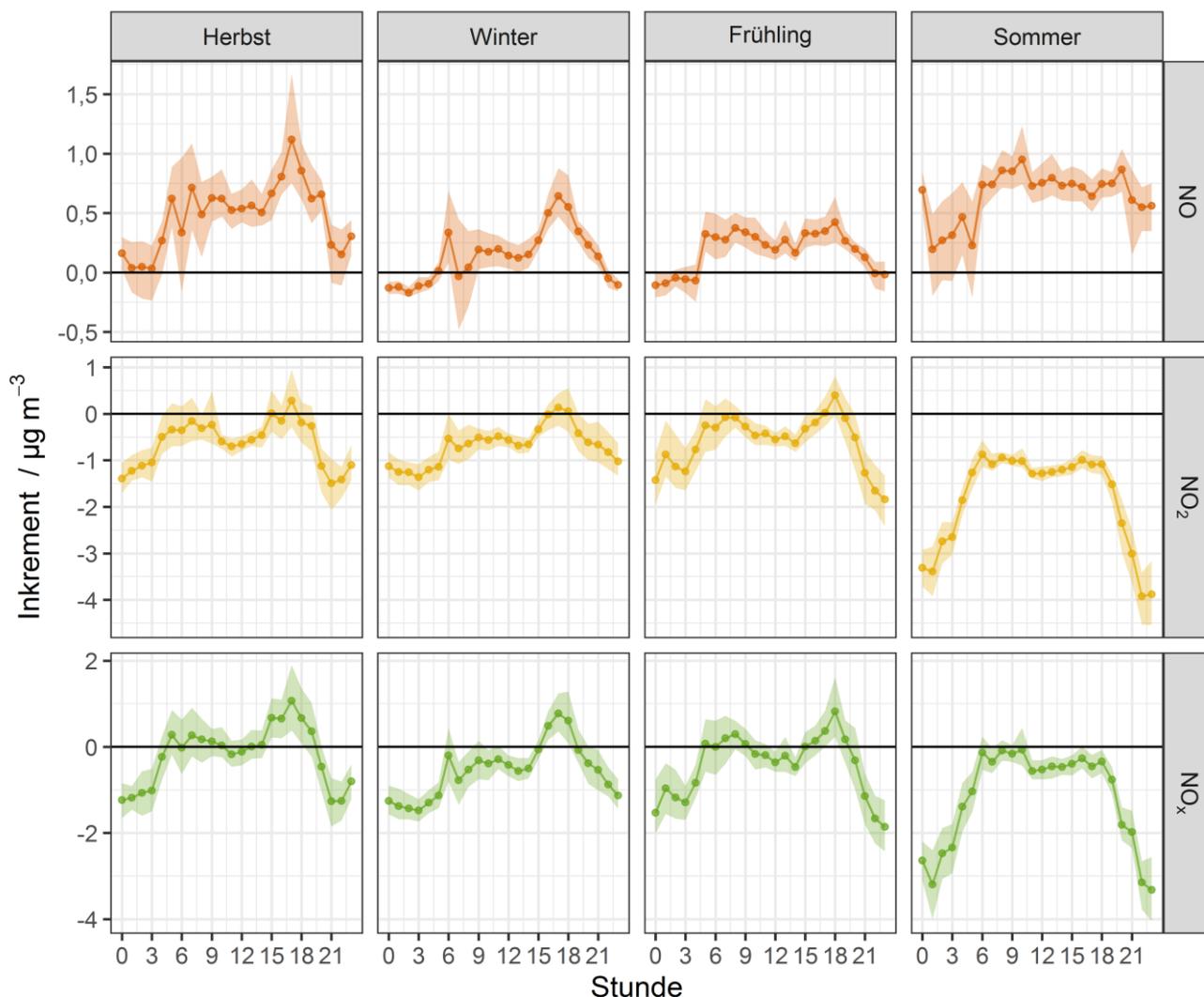


Abbildung 46: Inkrement Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

In Abbildung 46 ist zu sehen, dass das Inkrement von NO in den Tagesgängen zu allen Jahreszeiten im Wesentlichen positiv ist, was den Ort als Quelle für NO ausweist, hierfür kommen sowohl mobile Quellen (Kfz) als auch stationäre Quellen (Heizungsemissionen) in Frage. Im Verlauf der Stundenmittel über den Tag lassen sich stärkere NO- Emissionen jeweils am Morgen und Abend erkennen, die sowohl durch Kraftfahrzeuge als auch besonders im Winter durch Heizungen verursacht sein können. Ein Beitrag durch Heizen kann auch im Herbst und Frühjahr an kühlen Morgen- und Abendstunden resultieren und bildet sich ab. Welche Ursache das etwas größere positive Inkrement für NO im Sommer, bei gleichzeitig negativem Inkrement für NO₂ haben könnte, lässt sich aus diesen Daten nicht eindeutig sagen. Allerdings deutet das stärkere negative Inkrement für NO₂ in den Nachtstunden auf zusätzlichen Quellen im Umfeld der Station hin, z. B. temperaturabhängige Bodenemissionen (OIKAWA et al. 2015). Des Weiteren können aber auch unterschiedliche Mischungsschichthöhen an beiden

Messtation Einfluss nehmen. In Herbst, Winter und Frühling ist das NO₂- Inkrement über den Tagesgang minimal negativ und erreicht lediglich im Zeitraum 15 - 18 Uhr ein Maximum mit geringen positiven Werten nahe „0“. Da an der Summe der Stickoxide NO₂ den weitaus größeren Anteil gegenüber NO hat, ähneln sich die Tagesgänge der Stundenmittel von NO₂ und NO_x.

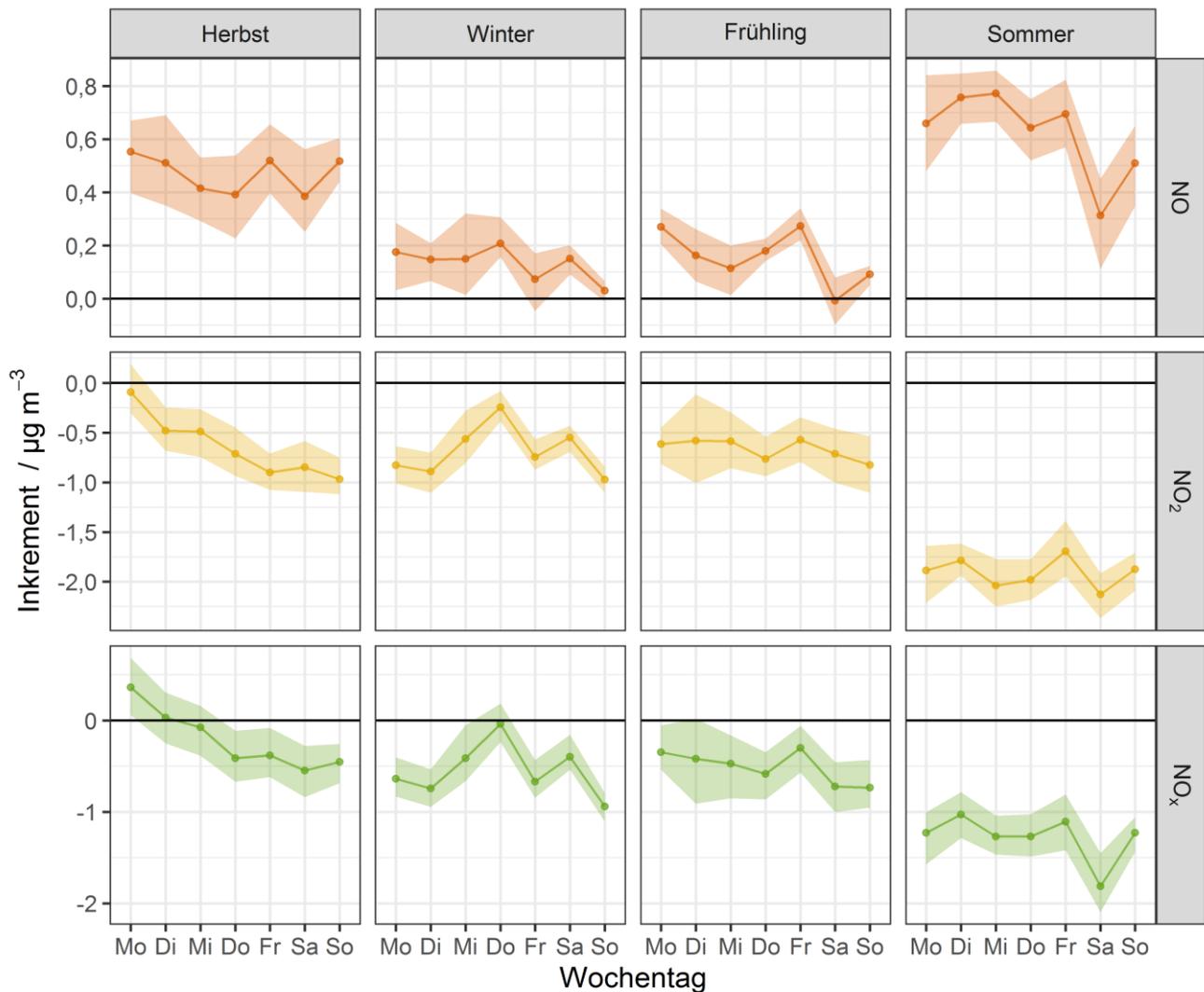


Abbildung 47: Inkrement Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Im Verlauf über die Wochentage in den vier Jahreszeiten (Abbildung 47) ergibt sich ein qualitativ ähnliches Bild mit meist positiven NO- Inkrementen im Ort, die besonders im Sommer stark ausgeprägt sind. Im Gegensatz dazu zeigen NO₂ und NO_x meist negative Inkremente. Ein bestimmter Wochengang lässt sich allerdings in den vorliegenden Daten nicht erkennen.

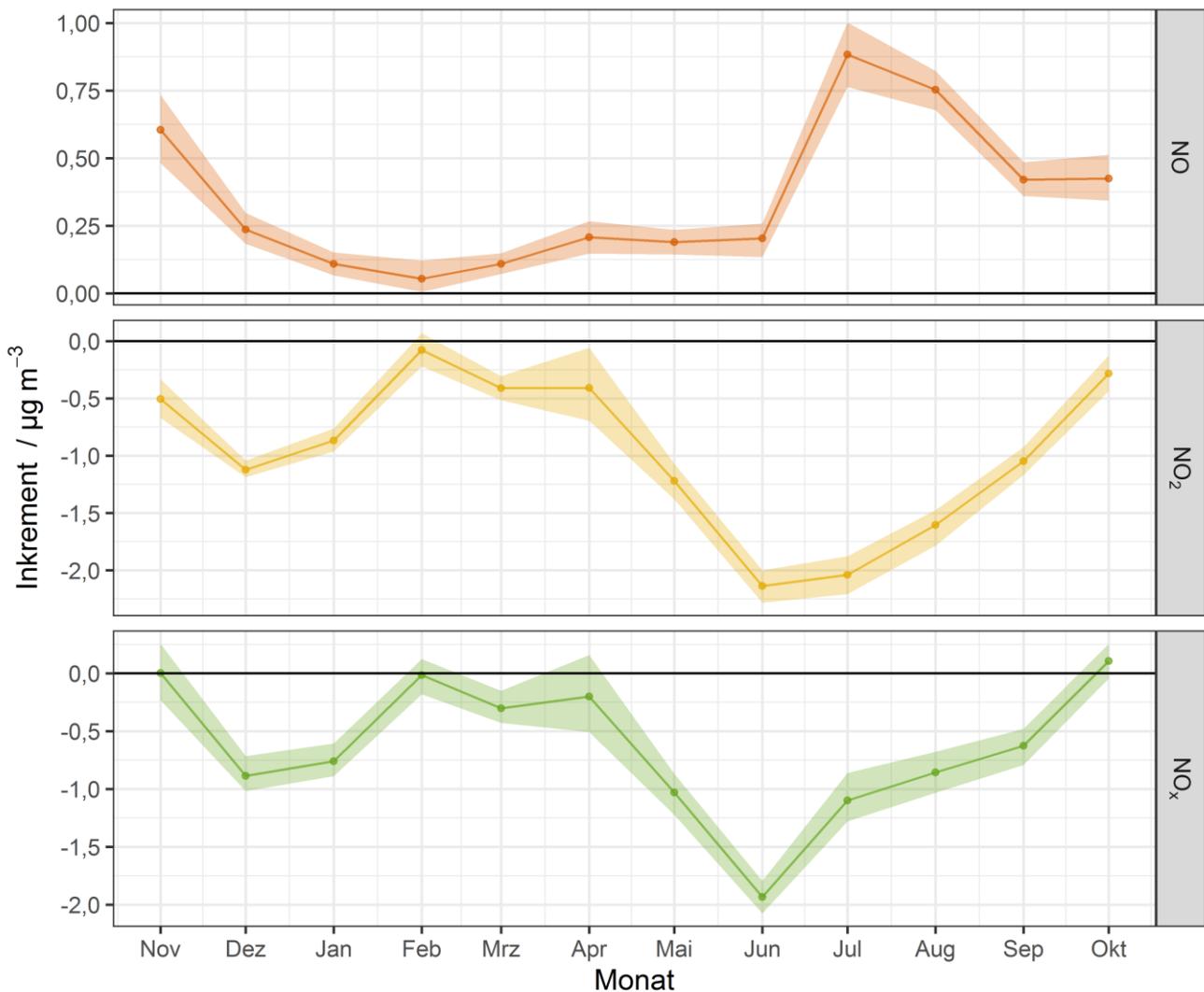


Abbildung 48: Inkrement Konzentrationen NO, NO₂ und NO_x dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95% Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Die in Abbildung 48 dargestellten Verläufe der Monatsmittel für NO, NO₂ und NO_x zeigen erneut durchweg positive Inkremente für NO und meist negative für NO₂ und NO_x. Die Zunahme des NO- Inkrements in den Sommermonaten Juli, August und September bei gleichzeitiger Abnahme des NO₂- Inkrements stützt die Vermutung zusätzlicher Quellprozesse deren Identifikation aber weiterer Auswertungen bedarf.

Zusammenfassend belegen die Ergebnisse in Abbildung 46 bis Abbildung 48, dass die Stickoxide allein zur spezifischen Quellzuordnung für die Zusatzbelastung aus Holzheizungen nicht geeignet sind. Zusätzlich erschwert wird die Interpretation der Ergebnisse durch die Messunsicherheit der verwendeten NO_x- Analysatoren von etwa 1 µg m⁻³ für NO₂ (26).

4.2.2 Partikelanzahlkonzentration

Abbildung 49 zeigt das Inkrement der mittleren Anzahlkonzentrationen N₁₀₋₅₀, N₅₀₋₁₅₀ und N₁₅₀₋₈₀₀ für alle vier Jahreszeiten im Projektzeitraum jeweils als Tagesgang der Stundenmittelwerte. Abbildung 50 und Abbildung 51 zeigen dieses Inkrement als Wochengang für die Jahreszeiten bzw. im Verlauf der Monatsmittel über den Projektzeitraum. In allen drei Abbildungen ist immer das jeweilige 95 % Konfidenzintervall mit eingezeichnet.

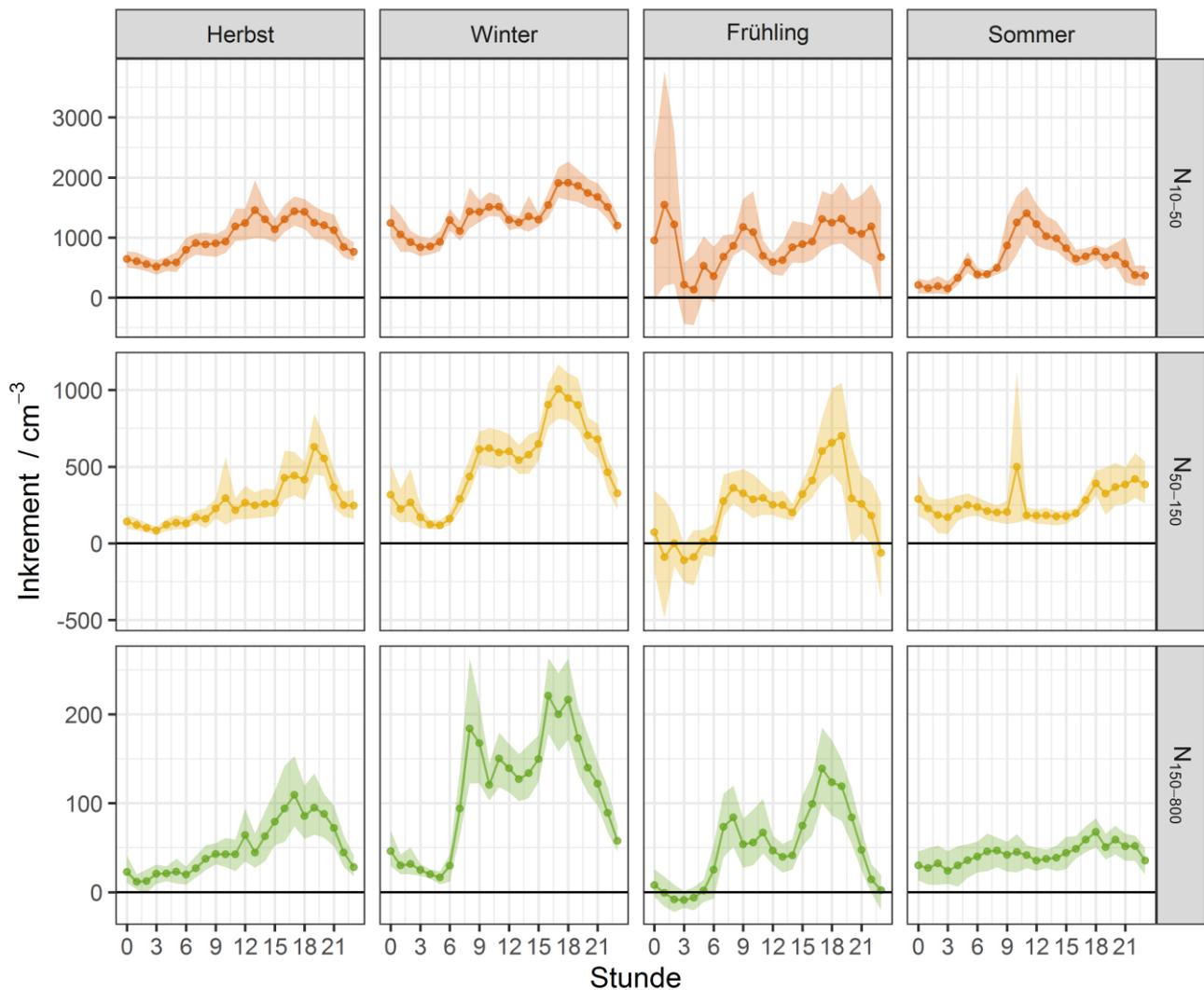


Abbildung 49: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N_{10-50} , N_{50-150} und $N_{150-800}$ in Abhängigkeit von der Jahreszeit

In Abbildung 49 ist zu sehen, dass das Inkrement der Partikelanzahlkonzentration im Größenbereich von 10-50 nm in den Tagesgängen im gesamten Studienzeitraum positiv ist. Welche Ursache das etwas größere positive Inkrement im Sommer gegen Mittag hat, lässt sich aus diesen Daten nicht eindeutig sagen.

Die Tendenz der Inkremente im Größenbereich 10-50 nm ist auch deutlich in den Partikelgrößenbereichen N_{50-150} und $N_{150-800}$ sichtbar. Die Inkremente in diesen Größenbereichen sind im Winter und Frühjahr allerdings deutlich ausgeprägter als im Größenbereich von 10-50 nm. Im Größenbereich von 50-150 nm findet man üblicherweise neben Aerosolen aus dem Ferntransport solche, die aus lokalen Verbrennungsprozessen stammen. Das gleiche Bild ist eher untypisch für den größten betrachteten Partikelgrößenbereich. Möglicherweise ist dies ein Indiz für unvollständige Verbrennung in älteren Ofenheizungen oder die Verwendung ungeeigneter Brennstoffe („rauchende Schornsteine“) bei denen durch Koagulation primärer Verbrennungsaerosole im Schornstein größere Partikel gebildet werden.

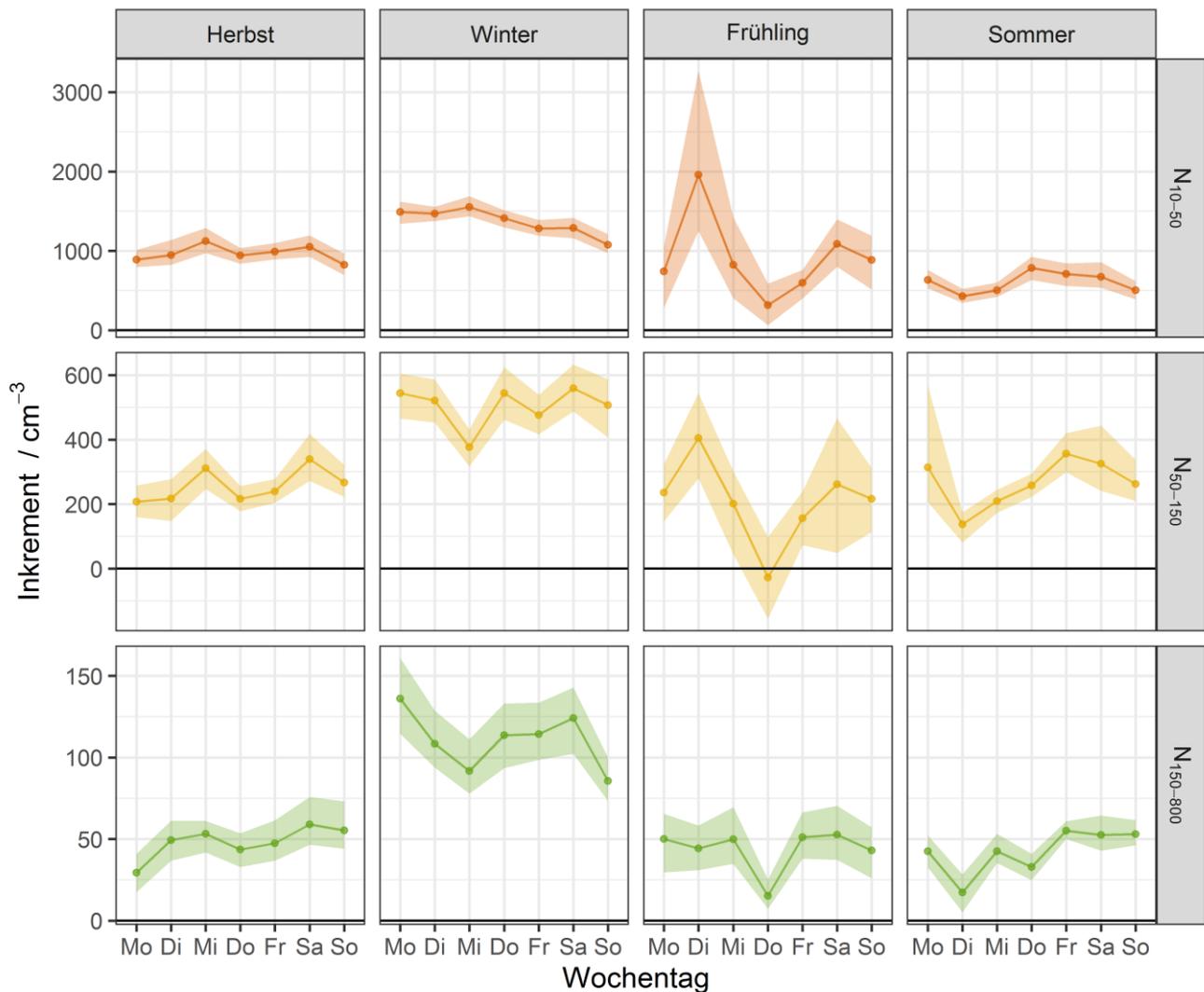


Abbildung 50: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N_{10-50} , N_{50-150} und $N_{150-800}$ in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Im Verlauf über die Wochentage in den vier Jahreszeiten (Abbildung 50) ist die deutliche Überhöhung der Partikelanzahlkonzentrationen im Winter erkennbar. Ein bestimmter Wochengang lässt sich in den vorliegenden Daten nicht erkennen. Dies trifft auch auf den Herbst und den Sommer zu. Dagegen ist im Frühjahr ein Wochengang erkennbar. Dies kann möglicherweise mit im Durchschnitt unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen an den einzelnen Wochentagen im Untersuchungszeitraum erklärt werden. In den jeweiligen Jahreszeiten stehen pro Wochentag nur 13 Datenpunkte zur Verfügung. Einzelne Wochentage mit besonderen meteorologischen Bedingungen könnten daher für den beobachteten Wochengang verantwortlich sein.

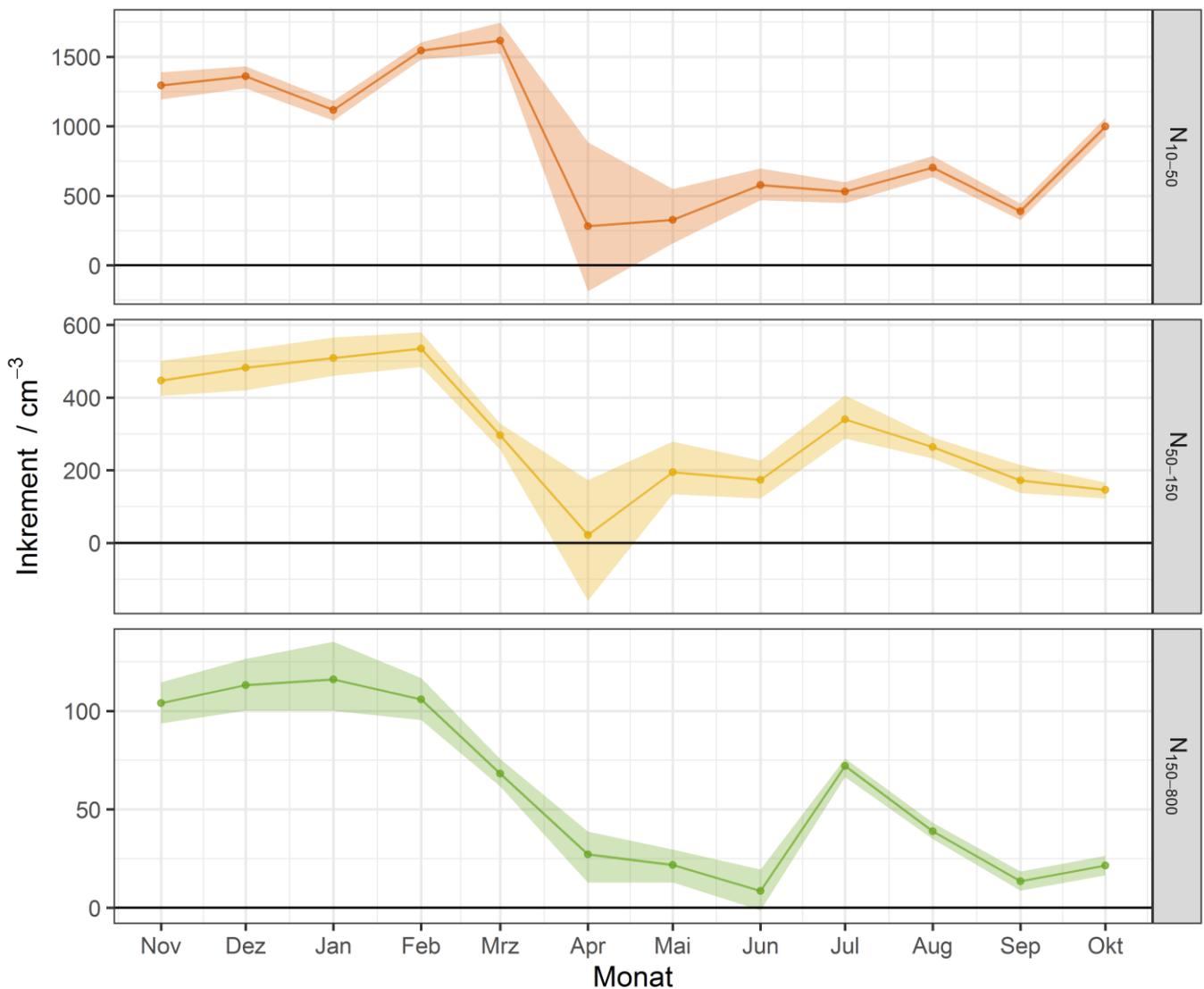


Abbildung 51: Inkrement der Partikelanzahlkonzentration dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) für N₁₀₋₅₀, N₅₀₋₁₅₀ und N₁₅₀₋₈₀₀

Die in Abbildung 51 dargestellten Verläufe der Monatsmittel für N₁₀₋₅₀, N₅₀₋₁₅₀ und N₁₅₀₋₈₀₀ zeigen erneut durchweg positive Inkremente. Die Anzahlkonzentrationen in allen Größenbereichen sind in der Heizperiode deutlich stärker im Ort überhöht als in der warmen Jahreszeit. Dies legt die Vermutung nahe, dass diese Überhöhung durch Heizungen verursacht wird. Eine Unterscheidung nach Heizungsarten ist aus Anzahlkonzentrationen allein allerdings nicht möglich.

4.2.3 Äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (eBC) in PM₁₀

Abbildung 52 zeigt das Inkrement der mittleren Konzentrationen des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs für alle vier Jahreszeiten im Projektzeitraum jeweils als Tagesgang der Stundenmittelwerte. Abbildung 53 und Abbildung 54 zeigen dieses Inkrement als Wochengang für die Jahreszeiten bzw. im Verlauf der Monatsmittel über den Projektzeitraum. In allen drei Abbildungen ist immer das jeweilige 95 % Konfidenzintervall mit eingezeichnet.

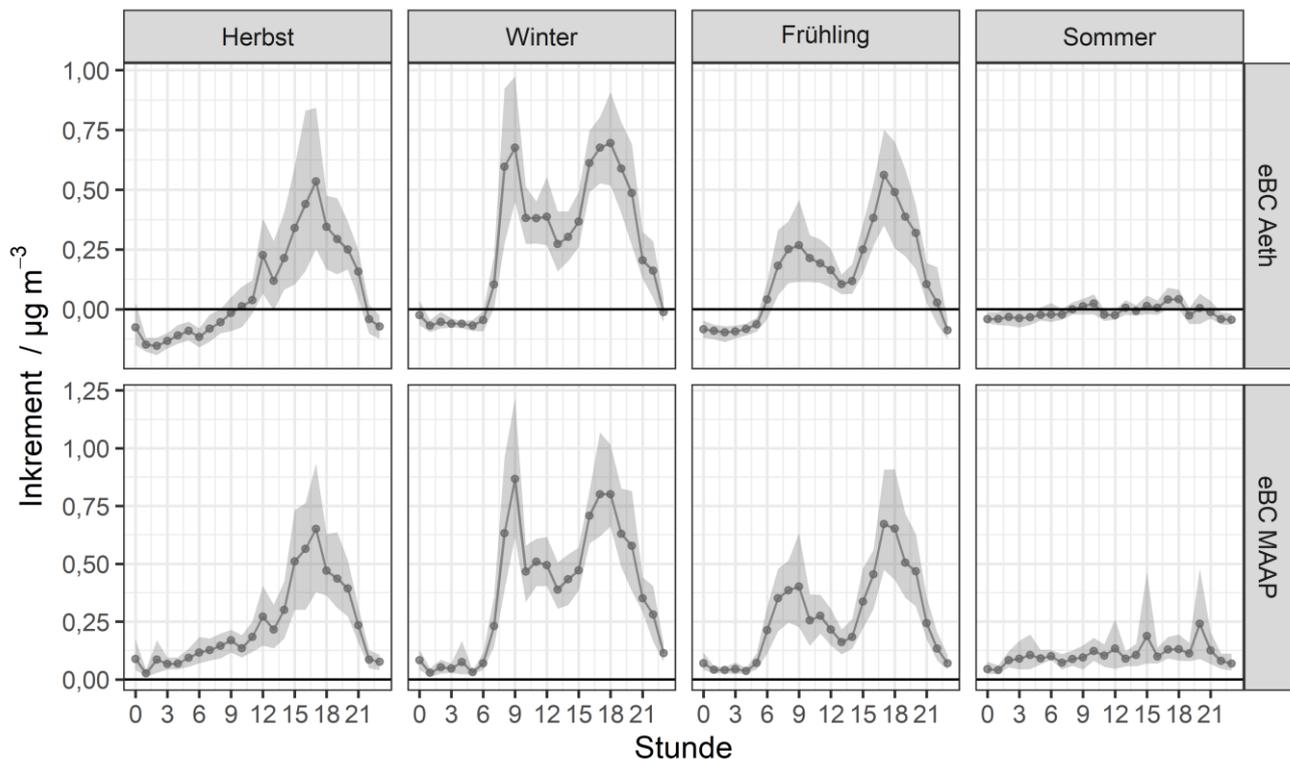


Abbildung 52: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

In Abbildung 52 ist zu sehen, dass das Inkrement der eBC-Konzentration überwiegend positiv ist, da der Ort Melpitz aufgrund von Kraftfahrzeugen und Heizungsemissionen eine Quelle von eBC ist. Es fällt auf, dass bei Messungen mit den Aethalometern negative Werte auftreten. Die entsprechenden Werte von Messungen mit den MAAPs sind sehr niedrig aber immer positiv. Dieses Verhalten wird dadurch verursacht, dass das Aethalometer eine partikelgrößenabhängige Sensitivität zeigt, da kleinere Partikel tiefer in das Filtermaterial des Aethalometers eindringen und durch Mehrfachstreuung in der Tiefe des Filters mehr Licht absorbieren. Die Partikelanzahlgrößenverteilungen zeigen, dass die Größe des Feinmodes, zu dem auch der schwarze Kohlenstoff gehört, an der Station Melpitz im Vergleich zu Ort Melpitz zu kleineren Durchmessern verschoben ist. Die negativen Inkremente können somit im Einklang von Theorie und Messungen als Messartefakt erklärt werden. Eine Korrektur der Messwerte ist nach aktuellem Stand nicht möglich. Ein solcher Größeneffekt ist für das MAAP nicht bekannt.

Das Inkrement ist im Winter am stärksten ausgeprägt mit eindeutigen Spitzen in den Morgen- und Abendstunden, was mit Heizungsemissionen in Verbindung gebracht werden kann. Die Tagesgänge sind im Herbst und Frühjahr schwächer. Im Sommer ist das Inkrement aufgrund fehlender Heizungsemissionen dementsprechend niedrig und der Tagesgang im Inkrement wird durch lokale Kraftfahrzeugemissionen in Verbindung mit der Mischungsschichthöhe bestimmt.

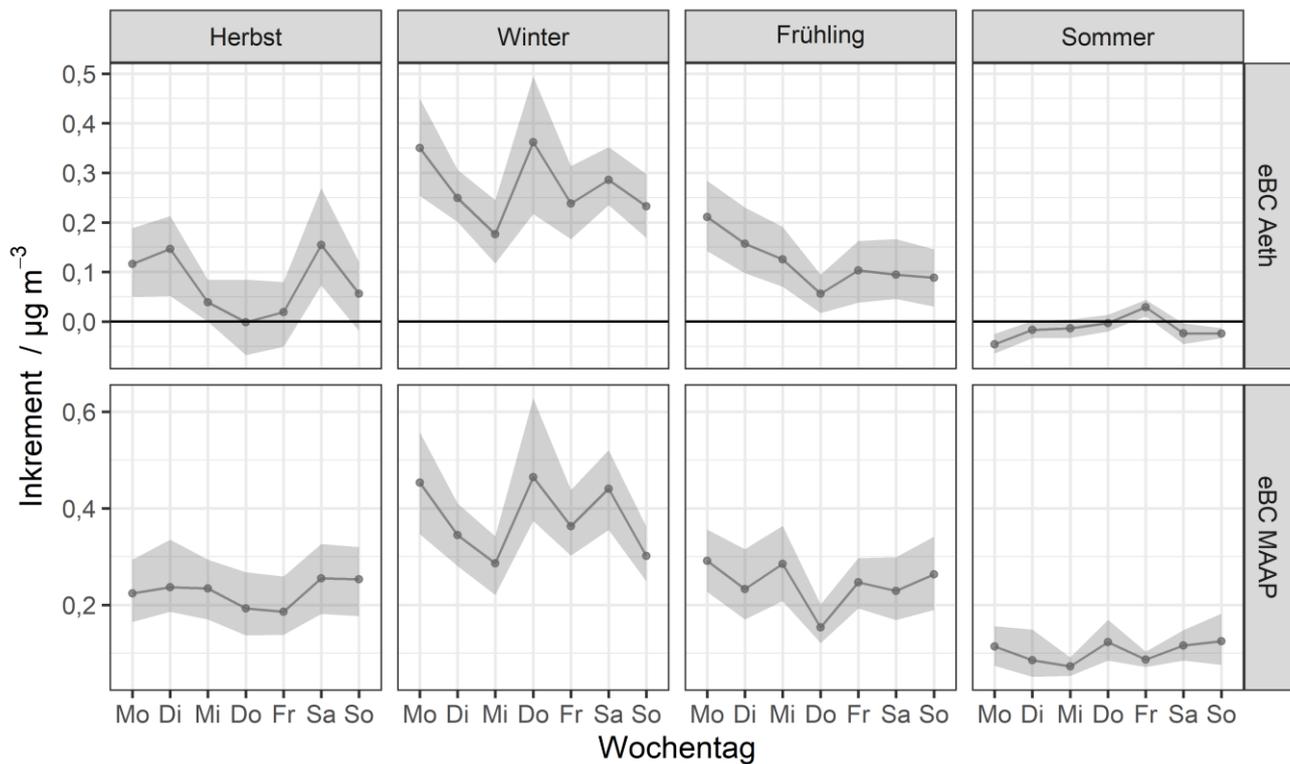


Abbildung 53: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Der Wochengang der Inkremente (Abbildung 53) zeigt, dass die Inkremente im Allgemeinen für eBC-Werte gemessen mit Aethalometer geringer sind als Werte gemessen mit MAAP. Dieser Umstand wird durch den Partikel-Größeneffekt des Aethalometers erklärt. Das MAAP liefert daher die verlässlicheren Werte. Die Inkremente sind am größten für den Winter mit Werten von ca. $0,4 \mu\text{g m}^{-3}$ und am geringsten im Sommer mit Werten von ca. $0,1 \mu\text{g m}^{-3}$. Im Sommer ist auch die geringste Variabilität im Wochengang zu beobachten. Die höchste Variabilität im Wochengang tritt im Winter auf, was vermutlich durch wenige Events verursacht wird. Anhand der Daten lässt sich kein eindeutiger Wochengang feststellen, der auf ein verändertes Muster von eBC-Emissionen an Wochenenden oder an Werktagen schließen lässt. Der Grund liegt vermutlich in der geringen Statistik in Verbindung mit variablen meteorologischen Bedingungen. Somit können einzelne Events den Wochengang stark beeinflussen.

Der Jahresgang der Inkremente ist in Abbildung 54 dargestellt.

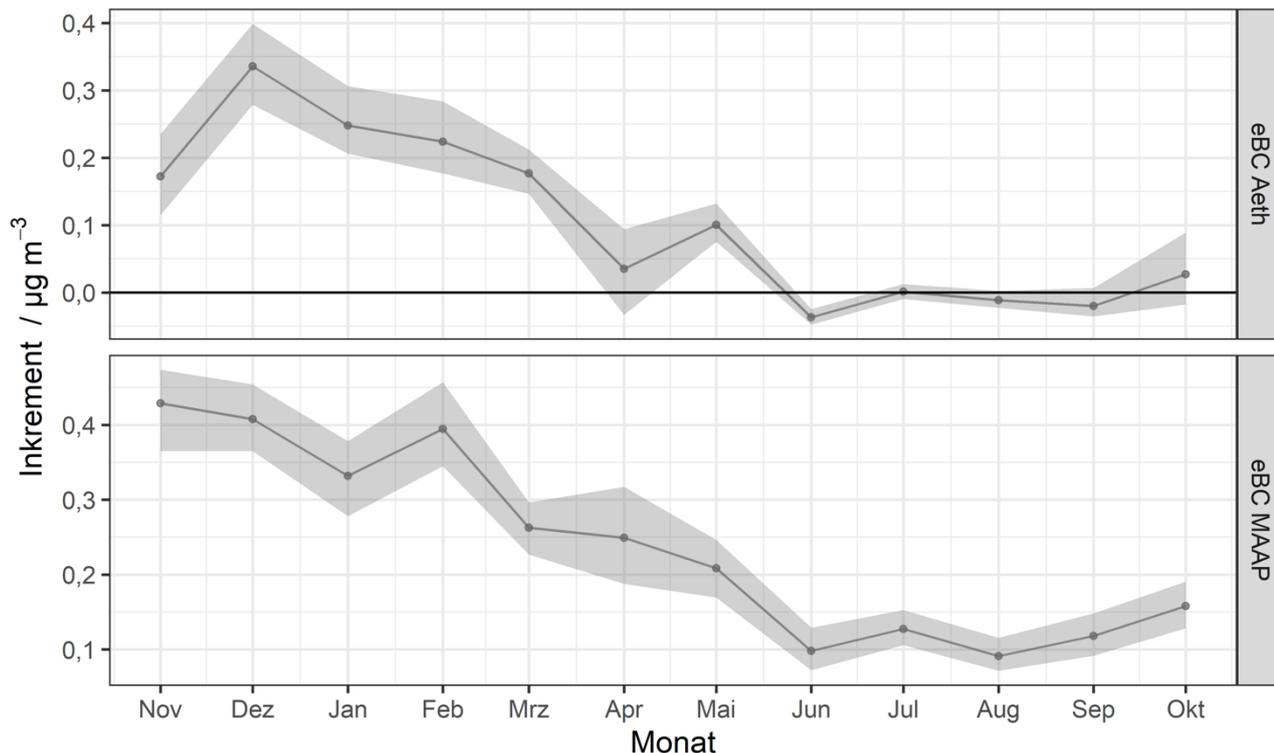


Abbildung 54: Inkrement der Massenkonzentration des schwarzen Kohlenstoffes gemessen mit Aethalometer und MAAP dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

Der Jahrestrend zeigt deutlich die Zunahme von Emissionen während der Heizperiode. Es ist wieder ein höheres Inkrement bei Messungen mit dem MAAP im Vergleich zu Messungen mit dem Aethalometer zu erkennen. Die Unterschiede zwischen MAAP und Aethalometer im November können nicht erklärt werden. Um den Jahresgang richtig zu beurteilen, muss der Übergang von Oktober auf November berücksichtigt werden. Dieser Übergang wurde aufgrund der einjährigen Messperiode nicht gemessen. In den vorliegenden Daten zeigt sich aber ein großer Sprung in den Werten, welcher wahrscheinlich durch die Großwetterlagen im November 2018 und Oktober 2019 verursacht wird. Ein ähnlicher Unterschied wird auch in den Inkrementen der Partikelanzahlkonzentration gesehen. NO, NO₂, und NO_x zeigen dagegen ähnliche Inkremente im November 2018 und Oktober 2019.

4.2.4 PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀- Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelanzahlgrößenverteilung

Abbildung 55 zeigt die Inkremente der mittleren PM₁, PM_{2,5} und PM₁₀- Massenkonzentrationen für die vier Jahreszeiten im Projektzeitraum jeweils als Tagesgang der Stundenmittelwerte.

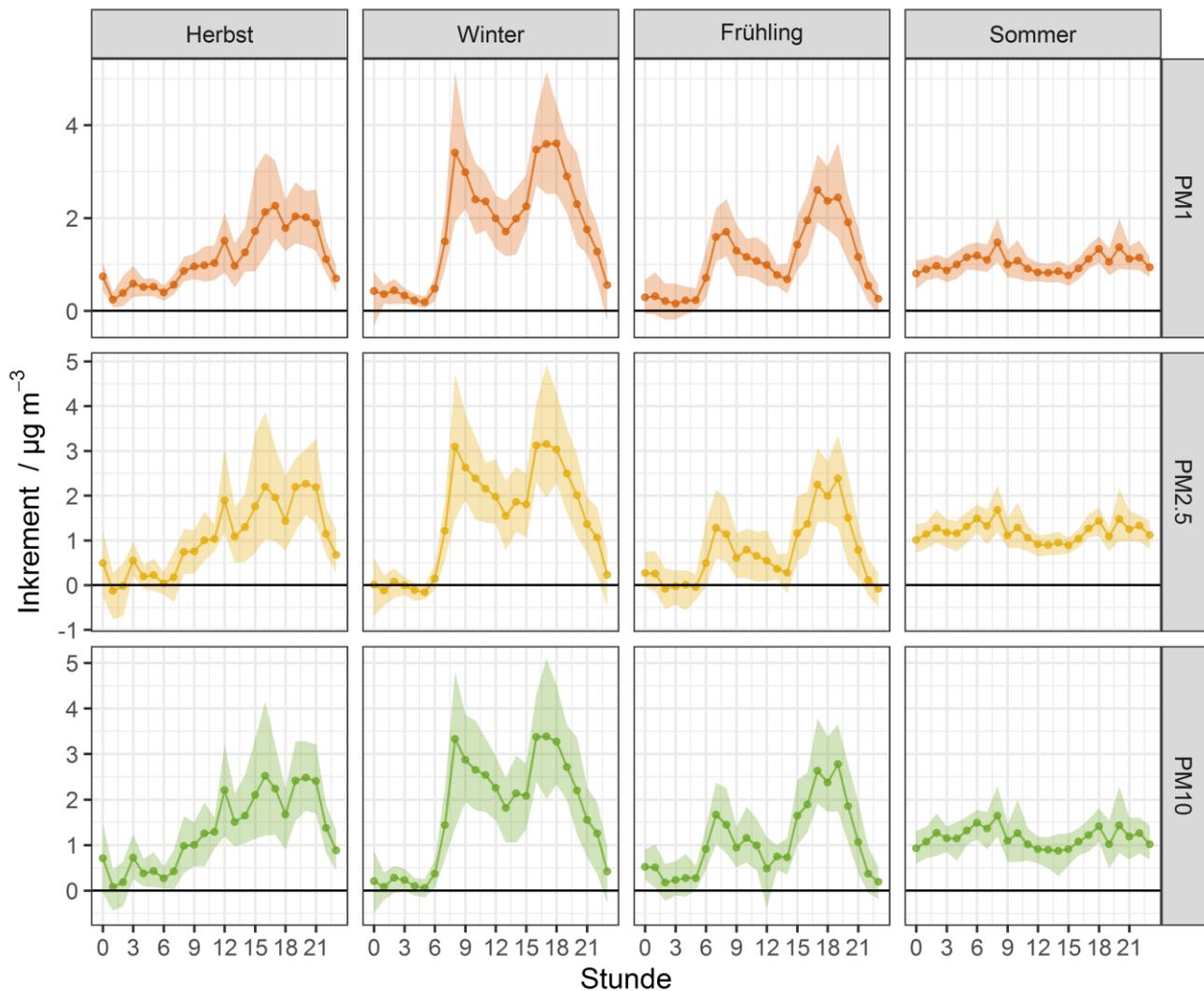


Abbildung 55: Inkrement der PM1, PM2,5 und PM10 - Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Tagesgang (Stundenmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

In Abbildung 55 ist zu sehen, dass die Inkremente der PM1, PM2,5 und PM10-Konzentrationen überwiegend positiv sind, da der Ort Melpitz eine Quelle für Emissionen aus Kraftfahrzeugen und Heizungen ist. Die Inkremente sind in ihrem Verlauf sehr ähnlich, so dass in der Diskussion nur auf PM- Inkremente allgemein eingegangen wird ohne die Größenfraktion weiter zu benennen. Weiterhin ist auffällig, dass sich die Inkremente für PM und eBC (siehe Abbildung 52) in ihrem Verlauf stark ähneln. Die Inkremente sind im Winter am stärksten ausgeprägt mit eindeutigen Maxima in den Morgen- und Abendstunden. Diese wurden schon mit Heizungsemissionen in Verbindung gebracht. Die Tagesgänge sind im Herbst und Frühjahr schwächer. Im Sommer sind die Inkremente aufgrund fehlender Heizungsemission dementsprechend niedriger und der Tagesgang der Inkremente wird vermutlich durch Kraftfahrzeugemissionen in Verbindung mit der Höhe der Mischungsschicht bestimmt.

Abbildung 56 und Abbildung 57 zeigen die PM- Inkremente als Wochengang für die Jahreszeiten bzw. im Verlauf der Monatsmittel über den Projektzeitraum.

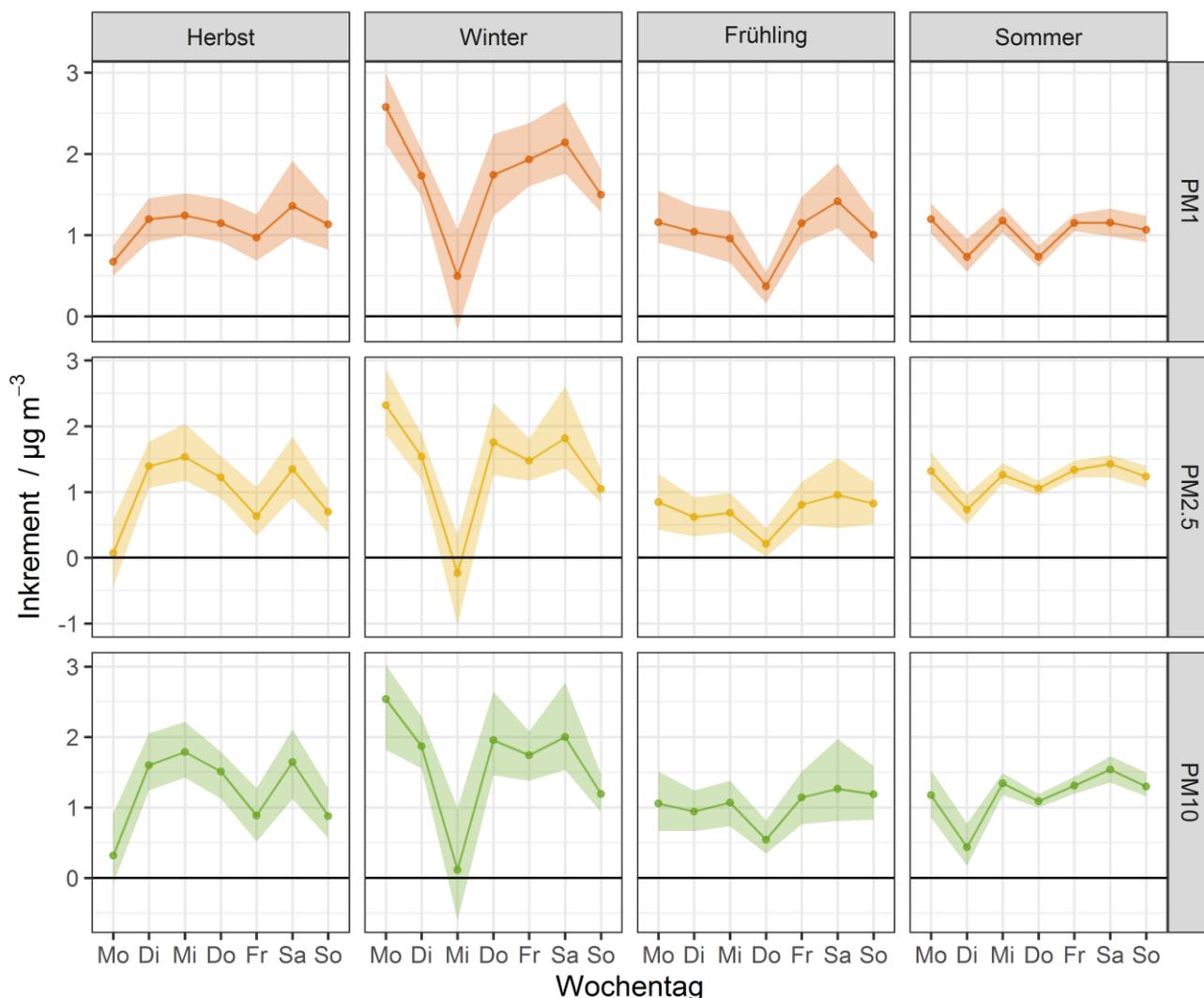


Abbildung 56: Inkrement der PM1, PM2,5 und PM10 der Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Im Wochengang der Inkremente (Abbildung 56) ist zu sehen, dass besonders im Winter das Inkrement sehr stark ist. Ein ausgeprägtes Minimum der Inkremente jeweils mittwochs kann allerdings nicht mit einem veränderten Verhaltensmuster bei Emissionen erklärt werden. Da gerade Inkremente von PM aus der Subtraktion zweier großer Zahlenwerte bei vergleichsweise kleinen Differenzen gebildet werden, muss mit größeren Unsicherheiten gerechnet werden. Unsicherheiten durch geringfügig fehlerhafte Messungen und der Filterung von Events können nicht ausgeschlossen werden. Die Unsicherheiten können nicht immer anhand der Zeitserien der Einzelmessungen sicher erkannt werden. Die dargestellten 95 % Konfidenzintervalle berücksichtigen keine derartigen systematischen Fehler.

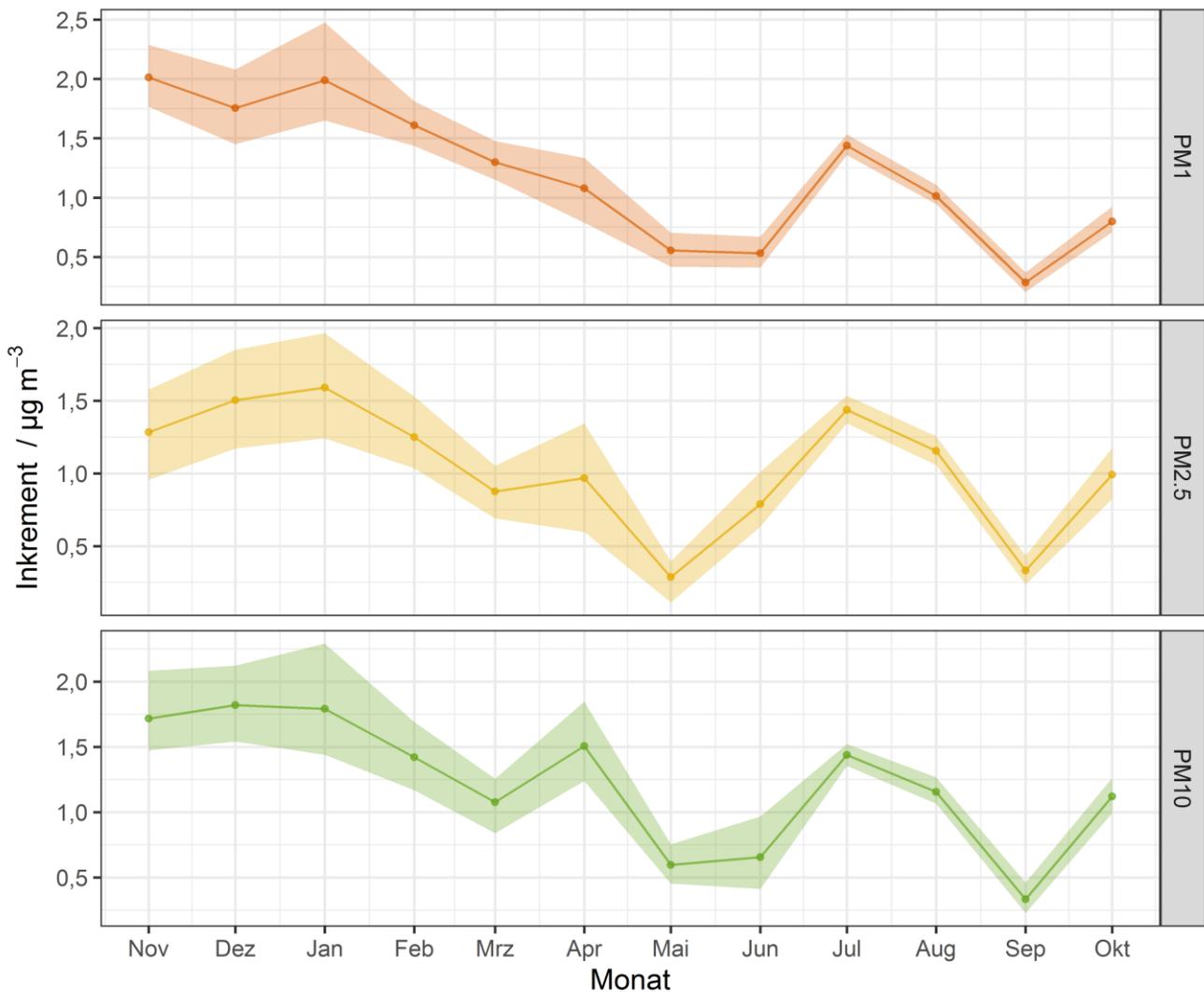


Abbildung 57: Inkrement der PM1, PM2,5 und PM10 der Massenkonzentrationen berechnet aus der Partikelgrößenverteilung dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

Der Jahresgang der Inkremente für PM1, PM2,5 und PM10 ist in Abbildung 57 dargestellt. Die Abbildung zeigt deutlich die Zunahme der Inkremente für die kalte Jahreszeit. Der Verlauf ist ähnlich zu dem Verlauf der Inkremente des schwarzen Kohlenstoffes. Die monatliche Variation ist dabei höher als beim schwarzen Kohlenstoff. Unterschiede zwischen aufeinanderfolgenden Monaten Oktober und November wurden aufgrund der einjährigen Messperiode nicht gemessen. Unterschiede zwischen Oktober- und Novemberwerten zeigen sich besonders in der PM1- Massenkonzentration. Dieses Verhalten wird auf die unterschiedlichen Großwetterlagen in November 2019 und Oktober 2018 zurückgeführt.

4.2.5 Massenkonzentration PM10 gravimetrisch

Abbildung 58 zeigt den Zeitverlauf des Inkrements der gravimetrisch bestimmten Partikelmassenkonzentration PM10.

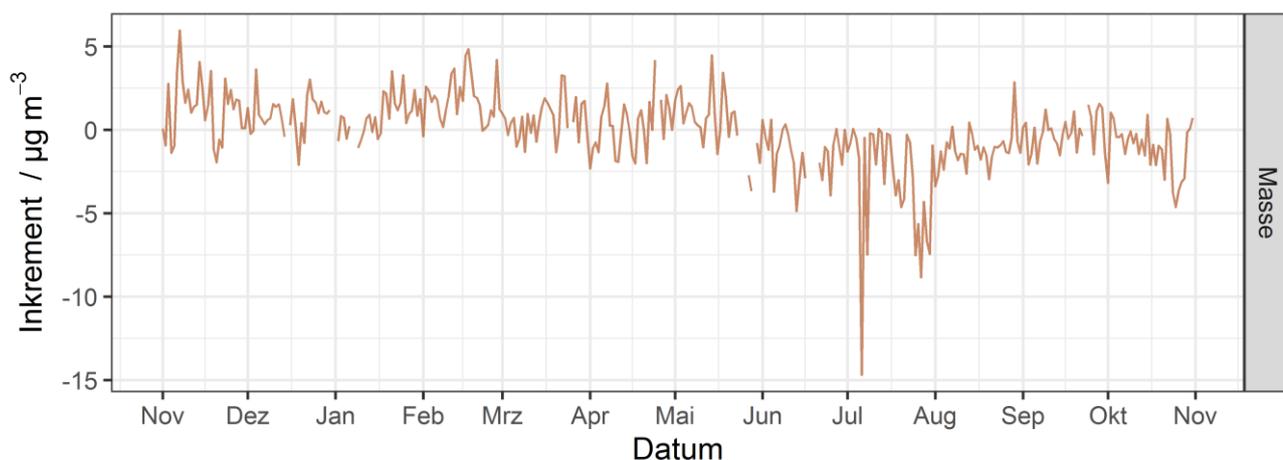


Abbildung 58: Inkrement PM10- Massenkonzentration gravimetrisch, dargestellt als Zeitreihe

Es ist deutlich zu erkennen, dass das Inkrement bis zum Beginn des Sommers gehäuft Werte größer Null annimmt, dies bedeutet höhere PM10- Massenkonzentrationen im Ort. Diese höheren Konzentrationen können durch Kraftfahrzeugverkehr im Ort, aber auch von Heizungsemissionen stammen. Bereits ab April treten mehr Werte kleiner Null auf und ab Ende Mai bis Ende August sind die Werte überwiegend negativ und treten immer wieder bis zum Ende der Messungen auf. Hier sind es wahrscheinlich die Emissionen von Grobstaub aus landwirtschaftlichen Aktivitäten im Umfeld der Station von einer extrem trockenen Weide. So tritt am 6. Juli eine Differenz zwischen Ort und Station von nahe $15 \mu\text{g m}^{-3}$ auf, am Folgetag sind es noch $7,5 \mu\text{g m}^{-3}$. Auch Ende Juli gibt es drei Tage mit 6 bis $8 \mu\text{g m}^{-3}$, die landwirtschaftlich, z. B. durch Einbringen von trockenem Heu nach vorangehender Grasmahd im Bereich der Station verursacht sein können. Reine Verkehrsemissionen bedingt durch die kinetische Energie sich bewogender Kraftfahrzeuge als Ursache für solche lokalen Konzentrationsspitzen im Inkrement können indirekt ausgeschlossen werden, da diese kontinuierlich auftreten.

Abbildung 59 zeigt das Inkrement der PM10- Massenkonzentration als Wochengang in den vier Jahreszeiten (Tagesmittelwert + 95 % Konfidenzintervall).

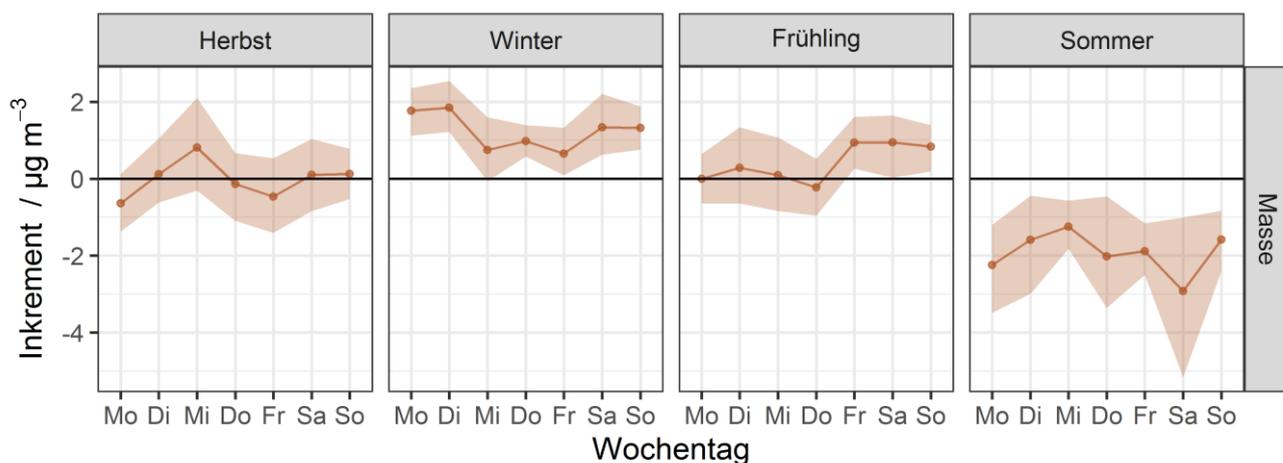


Abbildung 59: Inkrement PM10- Massenkonzentrationen dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Die Wochenverläufe des Inkrements für Herbst und Frühling bewegen sich um den Wert „0“ und sind im Winter eindeutig positiv bzw. im Sommer negativ. Im Frühling ist der Mittelwert des Inkrements am Freitag, Samstag und Sonntag leicht positiv, was etwas höhere Konzentrationen im Ort anzeigt. Im Winter ist der Wochenverlauf des Inkrements positiv mit niedrigeren Werten in der Wochenmitte, was den Ort als Quelle für PM10 mit einer etwas geringeren Quellstärke in der Wochenmitte ausweist. Es ist möglich, dass sich hier bestimmte Emissionen (Heizung oder etwas mehr Individualverkehr) abbilden. Im Sommer ist das Inkrement an allen Tagen negativ, was die Umgebung des Ortes eindeutig als Quelle für PM10 ausweist. Das Inkrement ist am Samstag relativ negativ bei stärkerer Streuung, ob sich hier Wochenendaktivitäten außerhalb des Ortes (Individualverkehr) oder einfach durch zulässige bevorzugte landwirtschaftliche Tätigkeit (Bearbeitung des Weidelandes) abbilden kann nicht eindeutig gesagt werden. Abbildung 60 zeigt das Inkrement als Monatsmittel, Tabelle 5 die für die jeweilige Jahreszeit gemittelten Inkremente.

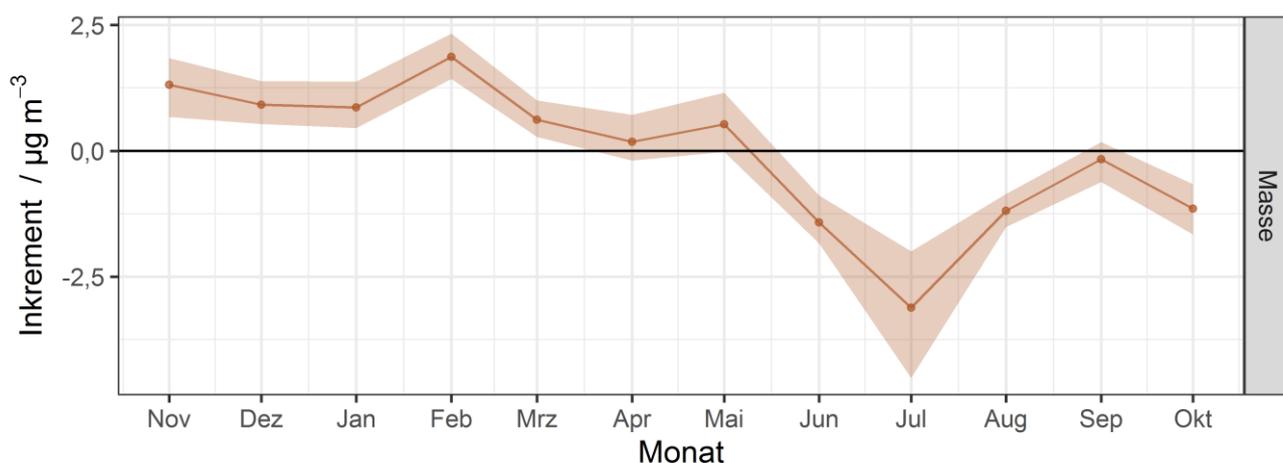


Abbildung 60: Inkrement PM10- Massenkonzentrationen dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

Tabelle 5: Inkrement PM10 in Abhängigkeit von der meteorologischen Jahreszeit

Jahreszeit	Inkrement- PM10 / $\mu\text{g m}^{-3}$
Winter	1,21
Frühling	0,44
Sommer	-1,94
Herbst	-0,01

Für November bis Mai ist das Inkrement positiv, was den Ort als PM10- Quelle, zum Beispiel verursacht durch Heizungsemissionen, ausweist. Das Inkrement der PM10- Massenkonzentrationen ist für den Zeitraum Winter (Dezember, Januar und Februar) mit $1,21 \mu\text{g m}^{-3}$ am größten und verringert sich für den Frühling auf $0,44 \mu\text{g m}^{-3}$ (siehe Tabelle 5). In den Sommermonaten Juni, Juli und August ist das Inkrement stark negativ (Haupterntezeit mit trockenen heißen Sommertagen) und bleibt im September und Oktober ebenfalls leicht negativ, wahrscheinlich verursacht durch etwas geringere Staubemissionen außerhalb des Ortes oder beginnende Heizungsemissionen im Ort in kühlen Morgen- und Abendstunden.

4.2.6 Kohlenstoff- Summenparameter (OC, EC, WSOC)

Abbildung 61 und Abbildung 62 zeigen das Inkrement der Konzentrationen für OC, EC und WSOC im PM10 als Wochengang (Tagesmittelwerte und 95% Konfidenzintervall) in den Jahreszeiten und das Inkrement der Konzentrationen dargestellt als Jahrgang über den Projektzeitraum (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall).

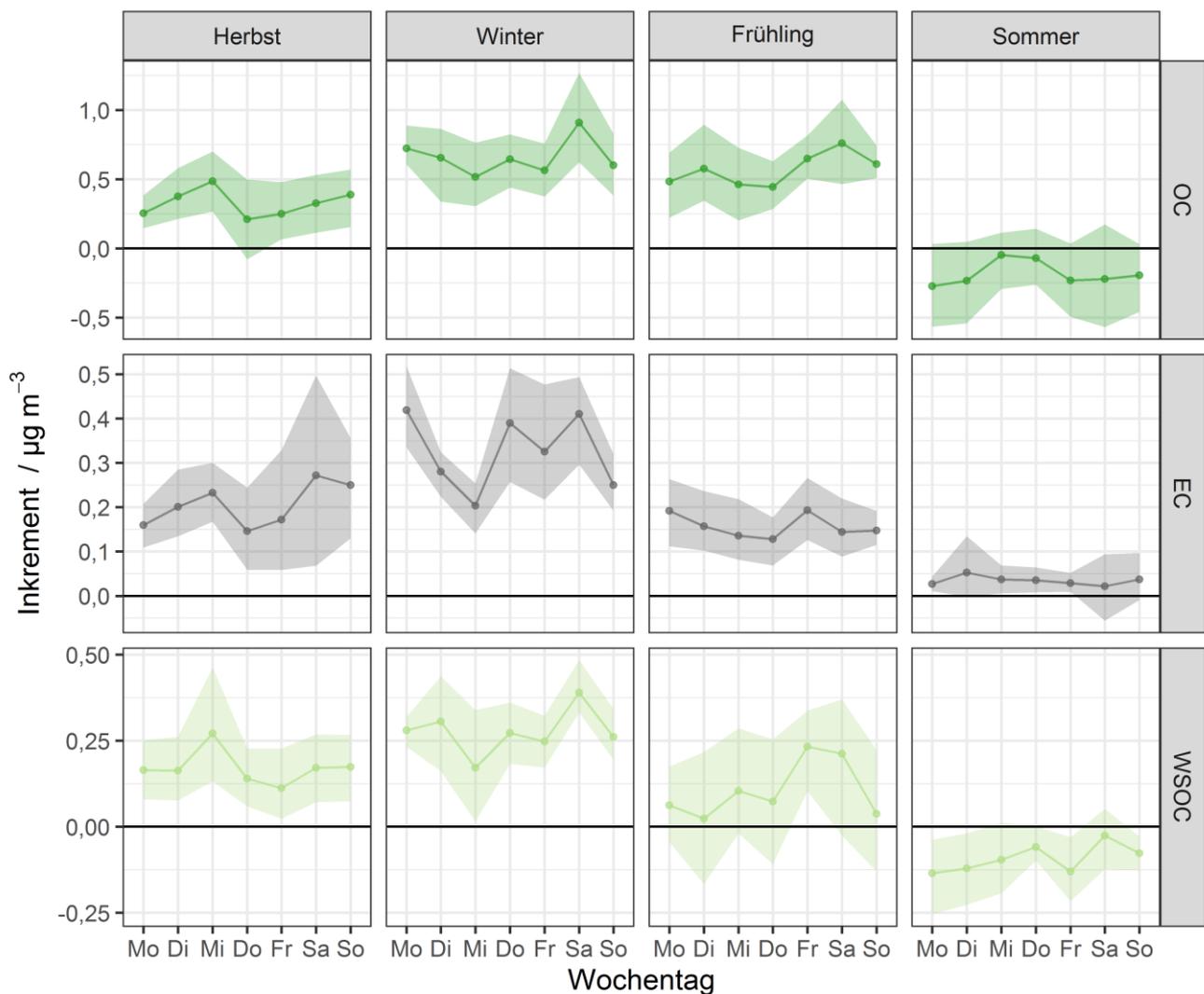


Abbildung 61: Inkrement Konzentrationen OC, EC und WSOC dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Es zeigt sich, dass der Ort im Herbst, Winter und im Frühling im Mittel eine Quelle für OC, EC und WSOC ist. Es fällt auf, dass das Inkrement für EC im Mittel im Winter relativ groß ist, was auf eine Quelle im Ort hindeutet (Heizungsemissionen). Schaut man auf die Wochentage, so bildet sich unter Berücksichtigung der Streuung für alle drei Messgrößen keine durchgängig eindeutige Abhängigkeit von bestimmten Wochentagen ab. Im Sommer ist das Inkrement für EC aus Verbrennungsprozessen noch vorhanden, aber extrem klein. OC und WSOC zeigen als resultierende natürliche Quelle die Umgebung des Ortes an. Bei der Betrachtung des Verlaufes der Monatsmittel über den Projektzeitraum (Abbildung 62) wird folgendes deutlich: Für OC ist das Inkrement überwiegend positiv (Quelle im Ort) und wird im Juni und August etwa „0“, im Juli ist es negativ. In diesem Sommermonat überwiegt die Umgebung des Ortes als OC- Quelle, eventuell verursacht durch Emissionen der Vegetation. EC zeigt bis zum Mai positive Werte für das Inkrement, während der Hochsommermonate Juni und Juli ist es „0“ und im August, September und Oktober erneut positiv. Das bedeutet, der Ort ist bis auf Juni und Juli Quelle für EC, dass aus Verbrennungsprozessen stammt. Der jahreszeitliche Verlauf ist ein Hinweis auf Heizungsemissionen im Winter, dabei könnte die auftretende höhere Streuung im Winter auf im Ort verteilte stationäre Einzelquellen mit nicht immer kontinuierlichem Betrieb hinweisen. Dieses Quellverhalten im Ort könnte zum Beispiel durch Holzöfen erklärt werden. Der Parameter wasserlöslicher Kohlenstoff zeigt im Winter und zum Herbst ein positives Inkrement und hat damit seine Hauptquelle im Ort, was ebenfalls auf Heizungsemissionen hindeutet. Im Frühjahr und

Sommer überwiegen natürliche Quellen (Vegetation) in der Umgebung des Ortes Melpitz und das Inkrement wird negativ.

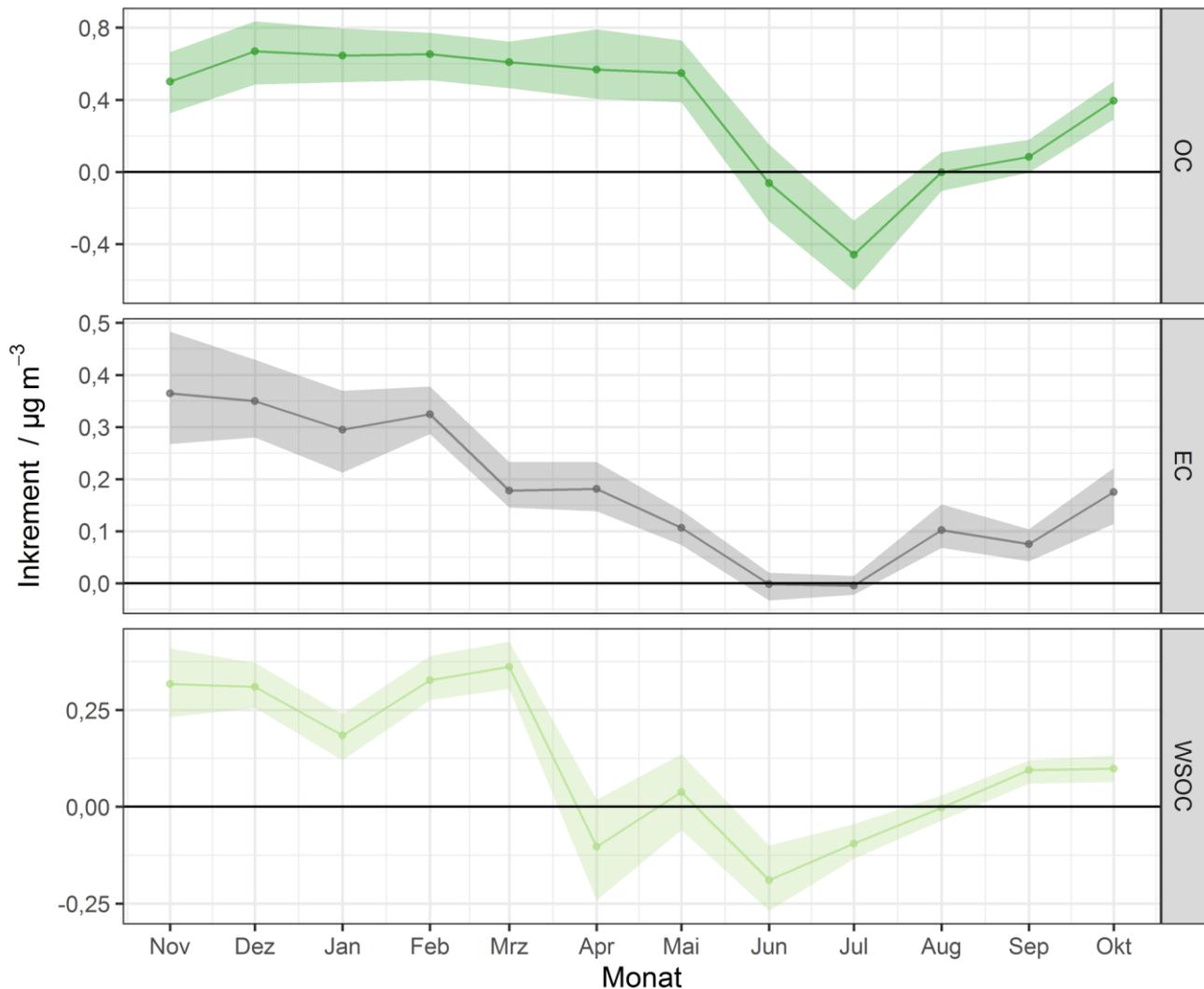


Abbildung 62: Inkrement Konzentrationen OC, EC und WSOC dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

4.2.7 Ionen

Da die Unterschiede aufgrund einzelner „Events“ in den zuvor in Kapitel 4.1.8 Abbildung 30 dargestellten Zeitreihen nur bedingt identifizierbar waren, wird nachfolgend das Inkrement für die wasserlöslichen Ionen in PM10 als Wochengang in Abhängigkeit von der Jahreszeit (Abbildung 63) und als Jahresgang in Form von Monatsmittelwerten + 95% Konfidenzintervall in Abbildung 64 dargestellt. Generell bestätigt sich, dass im Verlauf des Projektzeitraumes häufig kein signifikanter Unterschied zwischen den Stationen für Nitrat, Sulfat, Chlorid, Ammonium und Natrium existiert. Nahezu über den gesamten Messzeitraum hinweg zeigt Magnesium ein minimales konstant negatives Inkrement, Calcium dagegen ein minimal positives. Als mögliche Ursache kommen Staubaufwirbelungsprozesse in Frage. Da beide Ionen allerdings keine relevanten Bestandteile von Holzrauch sind, wird dies nicht weiter betrachtet. Im Gegensatz dazu wird für den Holzverbrennungstracer Kalium eine Abhängigkeit von der Jahreszeit deutlich. Für den Zeitraum November 2018 bis Mai 2019 ist das Inkrement statistisch signifikant positiv. Demnach sind die Kaliumkonzentrationen in den Monaten mit verstärkten Heizungsemissionen im Ort höher als an der Station außerhalb. In den Sommermonaten wird das Inkrement

minimal negativ und steigt zum Ende des Messzeitraumes erneut an. Der Einfluss der Holzverbrennung auf die Kaliumkonzentration im PM10 im Ort Melpitz wird durch die Auswertung als Wochengang in Abhängigkeit von der Jahreszeit in Abbildung 63 bestätigt.

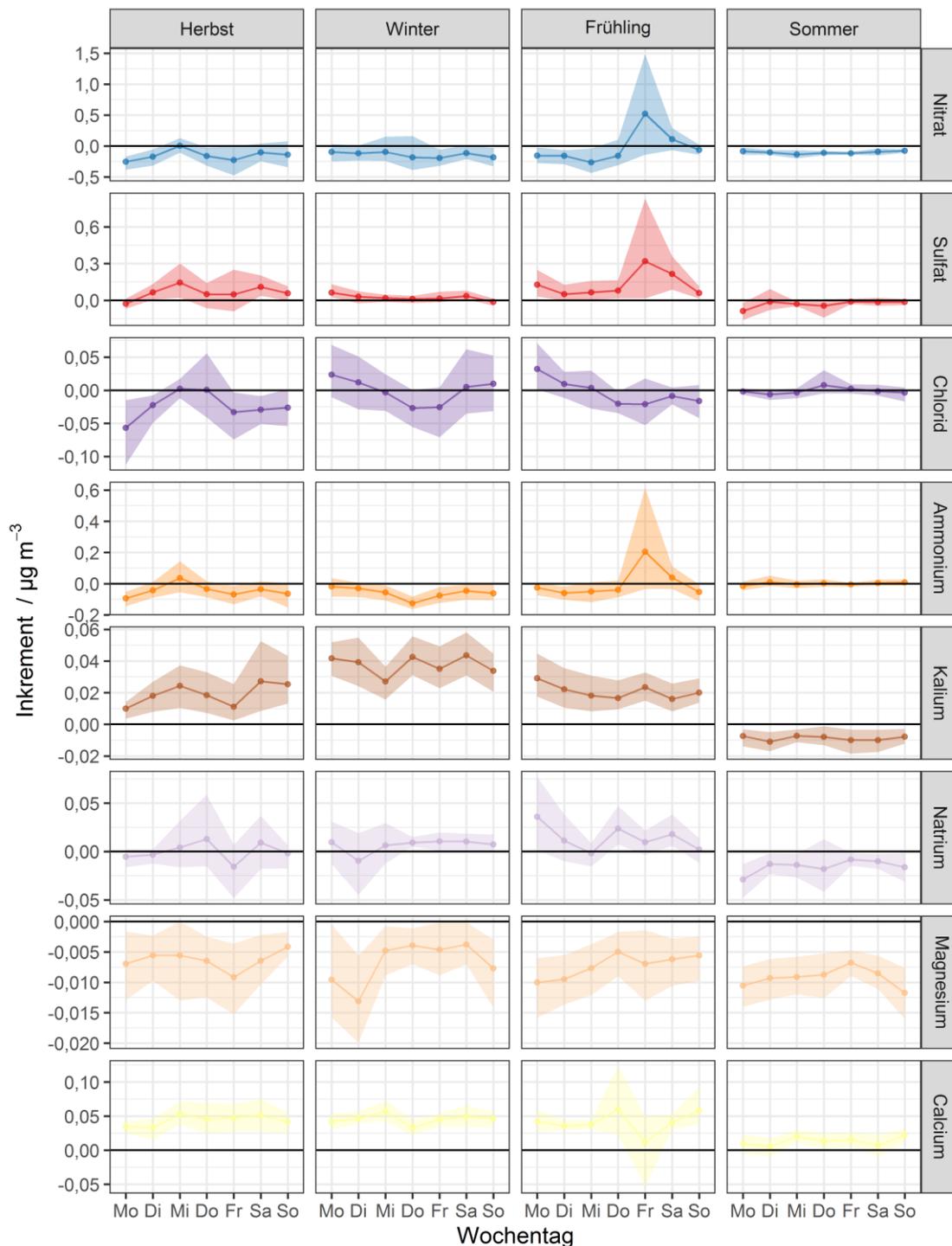


Abbildung 63: Inkrement Konzentrationen der Ionen dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Die in Abbildung 63 dargestellten Inkremente der Ionenkonzentrationen zeigen keinen auffälligen Trend in den Unterschieden der meisten Ionen im Wochengang zwischen Ort und Station. Eindeutige Effekte sind keinem Wochentag zwingend zuzuordnen. Lediglich für die Ionen Nitrat, Sulfat und Ammonium treten positive Peaks an

Samstagen im Frühling auf, wobei diese Ionen keine relevanten Ionen für die Beurteilung der Zusatzbelastung aus Holzheizungen sind.

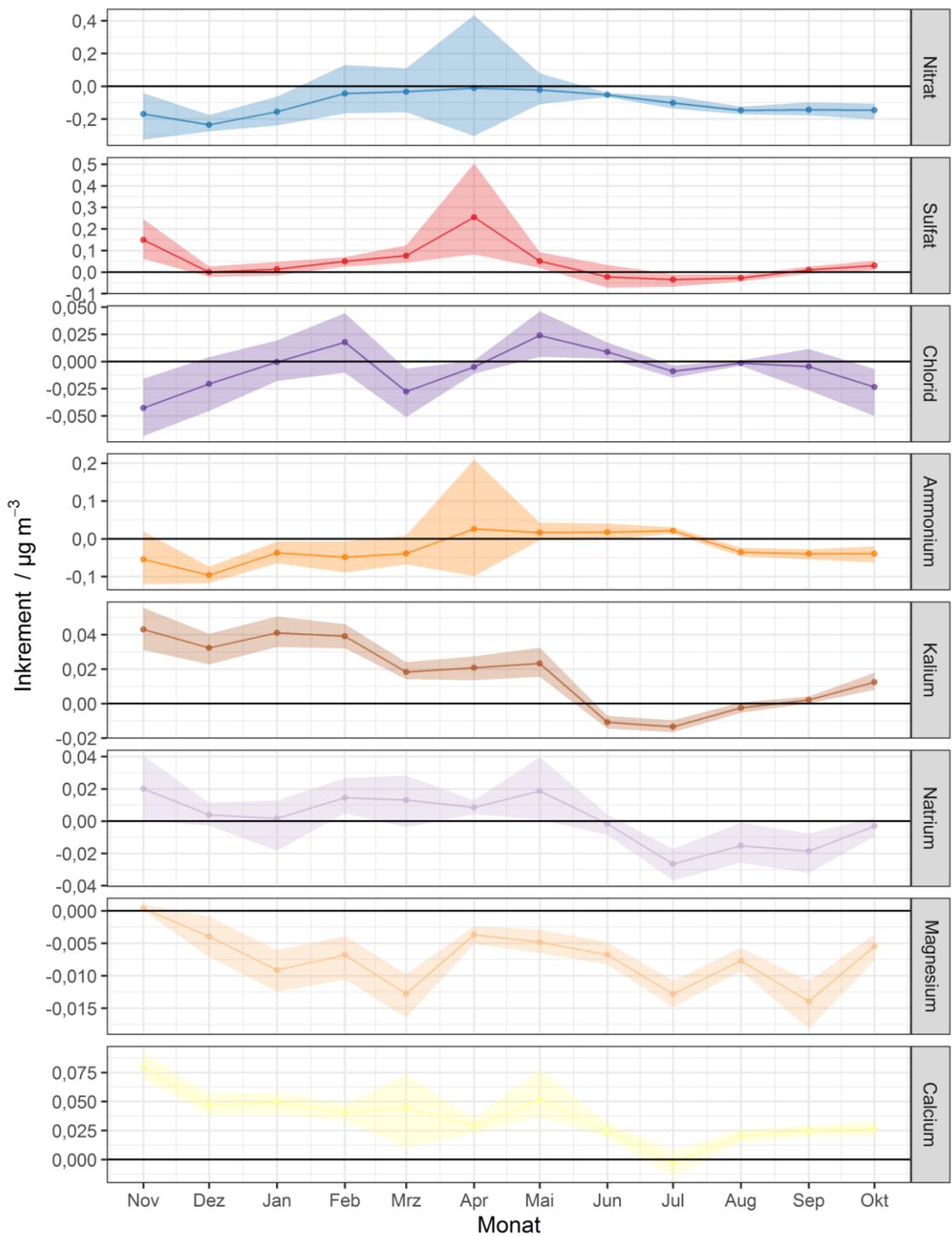


Abbildung 64: Inkrement Konzentrationen der Ionen dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

4.2.8 Oxalat und Anhydromonosaccharide

Analog der zuvor diskutierten PM10- Inhaltsstoffe werden nachfolgend auch die Konzentrationen von Oxalat und der Anhydromonosaccharide als Differenz der Messwerte von Ort und Station (als Inkremente) ausgewertet. Abbildung 65 zeigt die Inkremente der Konzentrationen als Wochengang in Abhängigkeit von der Jahreszeit.

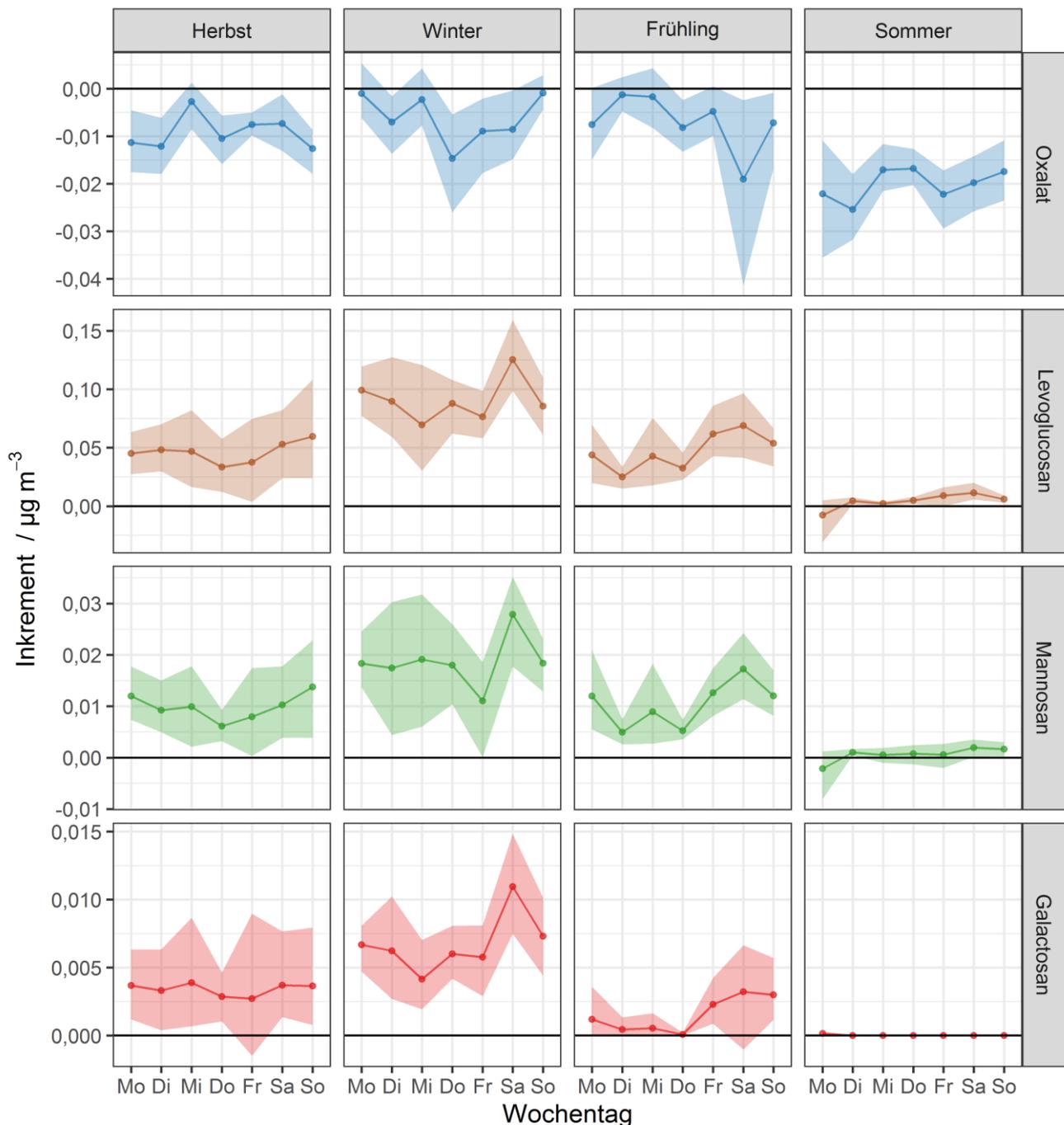


Abbildung 65: Inkrement Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

Aufgrund der Trennung der Messdaten in die vorherrschenden Jahreszeiten ergibt sich im Vergleich zur Auswertung in Kapitel 4.1.9 Abbildung 33 (Betrachtung gesamter Messzeitraum) ein differenzierteres Bild. Während die Konzentrationen von Oxalat unabhängig von der Jahreszeit keinem bestimmten Wochengang folgen, zeigt sich für

die Anhydromonosaccharide eine Sonderstellung für den Zeitraum Winter. Der sich bereits in Abbildung 33 aus den gesamten Messdaten andeutende Trend zu höheren Konzentrationen beim Übergang von Woche zu Wochenenden, und insbesondere der Peak an Samstagen wird entsprechend Abbildung 65 demnach besonders durch die Messwerte im Winter hervorgerufen. In den Zeiträumen Herbst und Frühling ist der Trend zu leicht ansteigenden Werten am Wochenende auch zu erkennen, bei weitem aber nicht so deutlich wie im Winter. Dies ist ein Hinweis auf erhöhte Holzverbrennungsemissionen an Wochenenden durch verstärktes Heizen und/oder Einsatz von Kaminen und Kaminöfen.

Die Abhängigkeit der Anhydromonosaccharidkonzentrationen im PM10 von der Jahreszeit, wird anhand der Darstellung der Inkremente als Jahresgang in Form von Monatsmittelwerten + 95 % Konfidenzintervall in Abbildung 66 erneut bestätigt.

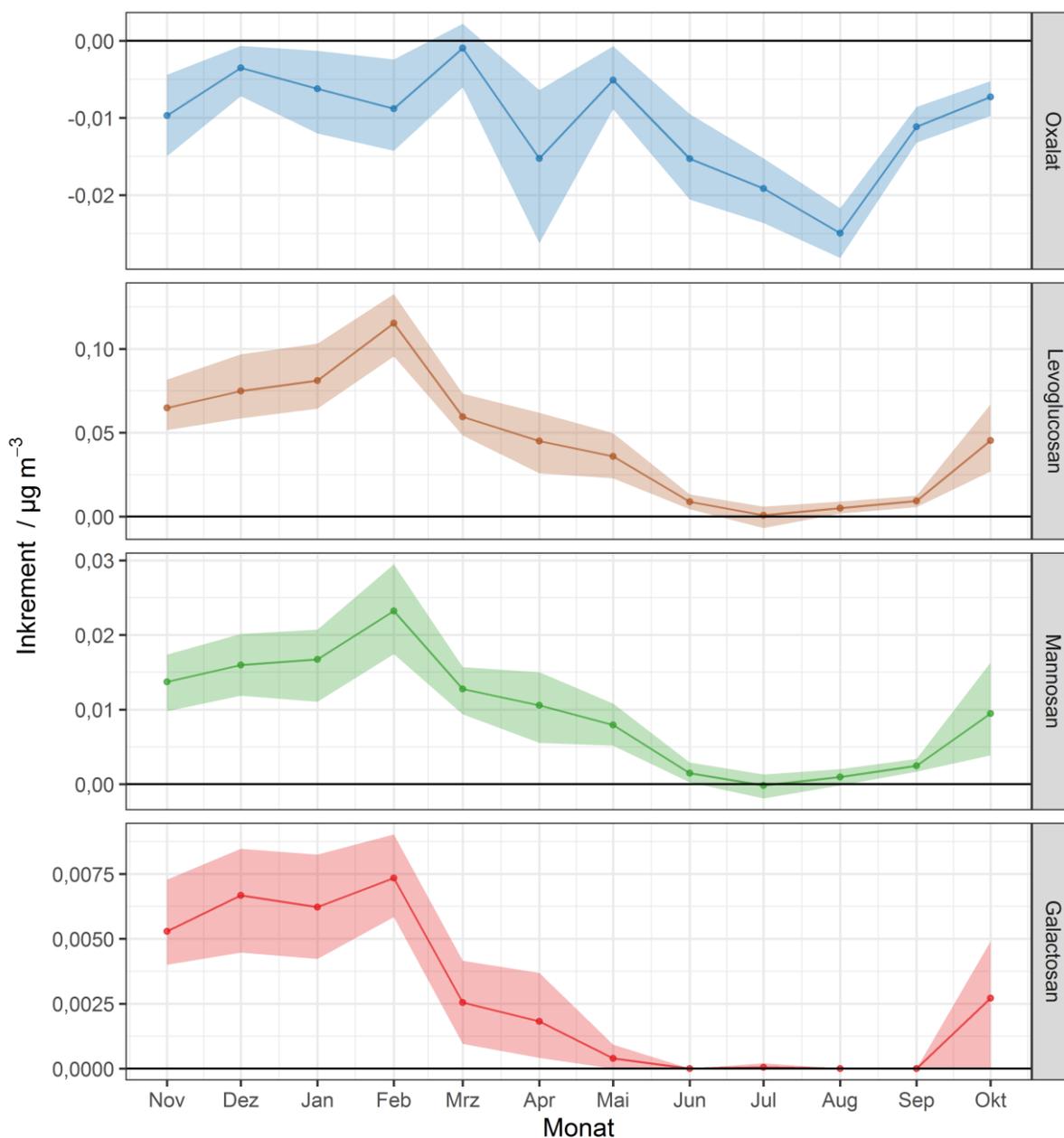


Abbildung 66: Inkrement Konzentrationen Oxalat und der Anhydromonosaccharide dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

Schneidet das 95 % Konfidenzintervall nicht die „Nulllinie“, so können die Unterschiede als statistisch signifikant betrachtet werden. Die Monatsmittelwerte November 2018 bis Mai 2019 für die Inkremente von Levoglucosan und Mannosan sind demnach im Ort statistisch signifikant höher als an der Station. Dagegen ist das Inkrement außerhalb der Heizperiode nah 0 und steigt entsprechend zum Ende des Projektzeitraumes (September/Okttober 2019) wieder an. Das größte Inkrement für Levoglucosan als Holzverbrennungstracer beträgt im Winter $0,09 \mu\text{g m}^{-3}$ (Monate: Dezember, Januar und Februar). Zum Vergleich im Frühling beträgt das Inkrement $0,05 \mu\text{g m}^{-3}$, im Sommer lediglich noch $0,005 \mu\text{g m}^{-3}$. Der Konzentrationsverlauf von Levoglucosan kann im Weiteren dazu verwendet werden den Anteil der Holzverbrennung an der Gesamtpartikelmasse abzuschätzen (siehe Kapitel 4.4.1).

4.2.9 Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)

Die Auswertung der ermittelten PAK-Konzentrationen, dargestellt als Inkrement im Wochengang in Abhängigkeit von der Jahreszeit ist in Abbildung 67 gezeigt. Die Verläufe der Inkremente der PAK verhalten sich ähnlich den Holzverbrennungstracern Levoglucosan, Mannosan und Galactosan. Es zeigt sich keine durchgängig einheitliche Abhängigkeit der erhöhten Konzentrationen im Ort von einem bestimmten Wochentag. Allerdings ist der minimale Trend zu erhöhten Inkrementen beim Übergang von der Woche zum Wochenende, mit dem Peak am Samstag insbesondere für den Zeitraum Winter zu erkennen. Dieser Trend ist in den Zeiträumen Frühling und Herbst deutlich weniger ausgeprägt. Im Unterschied zu den Anhydromonosacchariden tritt im Winter allerdings für alle sieben PAK-Inkremente der höchste Wert stets montags auf, ein Trend der sich in den anderen Jahreszeiten nicht bestätigt. Eine Ursache für diesen Effekt kann anhand dieser Daten nicht abgeleitet werden.

Die Inkrementkonzentrationen der PAK dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) sind in Abbildung 68 gezeigt und belegen die statistisch signifikant höheren PAK-Inkrementkonzentrationen während der Monate November 2018 bis Mai 2019. Die größten Inkremente ergeben sich für den Zeitraum Winter für BaP und BaA mit $0,40 \text{ ng m}^{-3}$, respektive $0,32 \text{ ng m}^{-3}$. In den Sommermonaten sind die Inkrementkonzentrationen aller PAK etwa zwei bis drei Größenordnungen kleiner, der Unterschied zwischen den Stationen demzufolge vernachlässigbar. Erst zum Ende der Messperiode (Beginn der neuen Heizperiode) steigen die Werte wieder an.

Im Jahresmittel liegt das Inkrement des gesetzlich geregelten BaP bei $0,2 \text{ ng m}^{-3}$. Damit liegt schon die sich im Ort Melpitz ergebende Zusatzbelastung oberhalb der WHO-Empfehlung von $0,12 \text{ ng m}^{-3}$ für die Gesamtkonzentration von BaP im Jahresmittel. Zusammen mit der Konzentration im Hintergrund von $0,28 \text{ ng m}^{-3}$, ergibt sich die in Kapitel 4.1.10 schon erwähnte mittlere 12-Monats-Konzentration von $0,48 \text{ ng m}^{-3}$, die 4 mal höher ist, als unter dem Gesichtspunkt des Gesundheitsschutzes wünschenswert wäre.

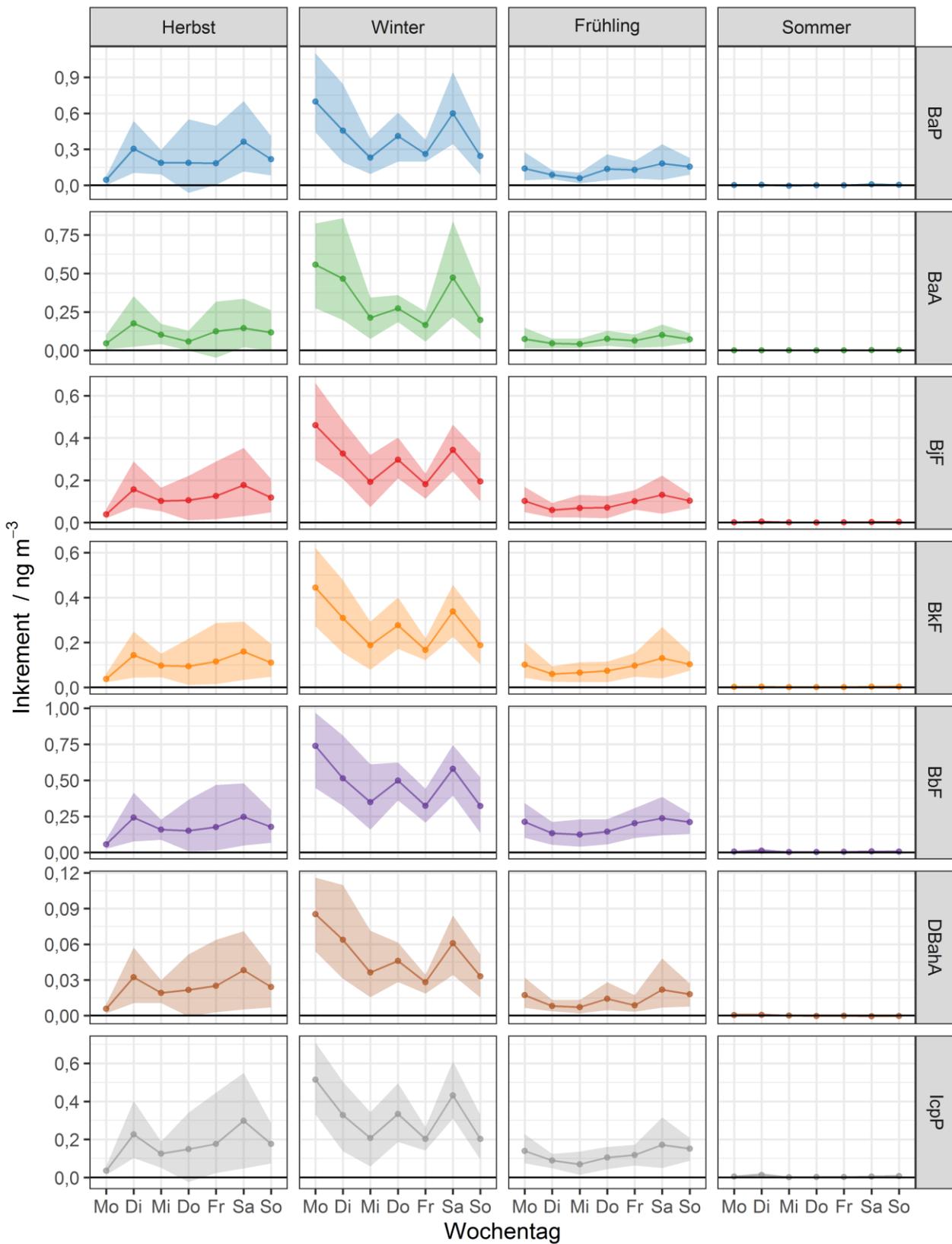


Abbildung 67: Inkrement der PAK- Konzentrationen, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

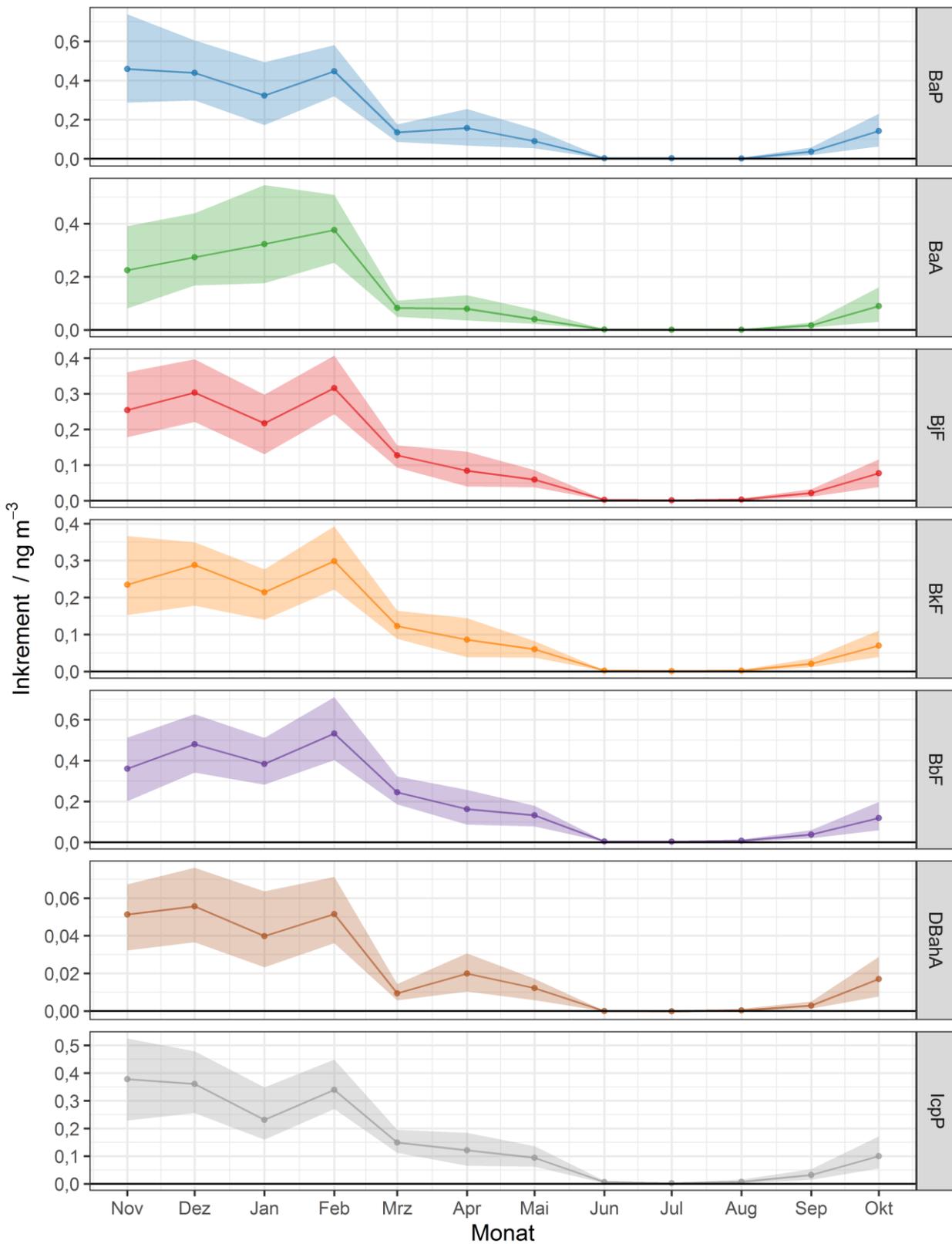


Abbildung 68: Inkrement der PAK-Konzentrationen, dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

4.2.10 Alkane

In Abbildung 69 sind die Inkremente der n-Alkane C₂₀-C₃₄ als Wochengang inklusive der 95 % Konfidenzintervalle in Abhängigkeit von der Jahreszeit gezeigt. Ähnlich zu den Zeitreihen lässt sich für die Verläufe der Inkremente unabhängig von der Jahreszeit kein bestimmter Wochengang identifizieren. Im Gegensatz dazu bestätigen die nach Jahreszeiten separierten Inkremente unter Berücksichtigung der 95 % Konfidenzintervalle, dass insbesondere für den Zeitraum Winter die Inkremente für die meisten Alkane positiv und damit die Konzentrationen im Ort signifikant höher als an der Station sind. Für die Zeiträume Frühling und Herbst nähern sich die Inkremente wieder mehr der Nulllinie an. Diese Abhängigkeit von der Jahreszeit wird durch die Berechnung der Monatsmittelwerte (+95 % Konfidenzintervalle) und deren Darstellung als Jahresgang in Abbildung 70 bestätigt. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus den Zeitreihen, sind auch die Inkrementkonzentrationen der Alkane mit ungerader Anzahl an C-Atomen zumeist höher als die mit einer geraden Anzahl. Dies verstärkt den Unterschied nochmals und ist ein weiterer Hinweis auf biologische Quellen, im Winter insbesondere die Verbrennung von Biomasse im Ort Melpitz.

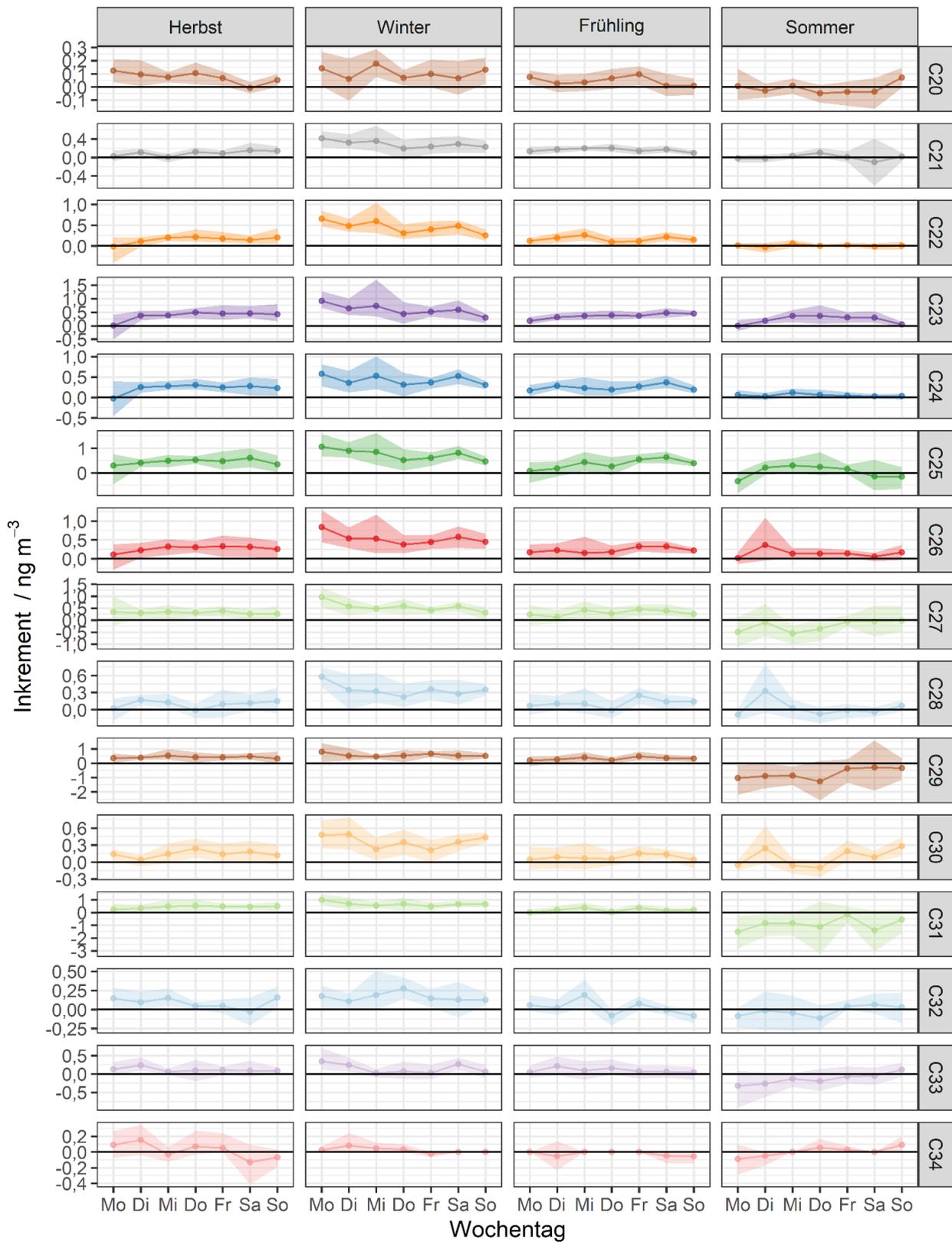


Abbildung 69: Inkrement Konzentrationen C20-C34 Alkane, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

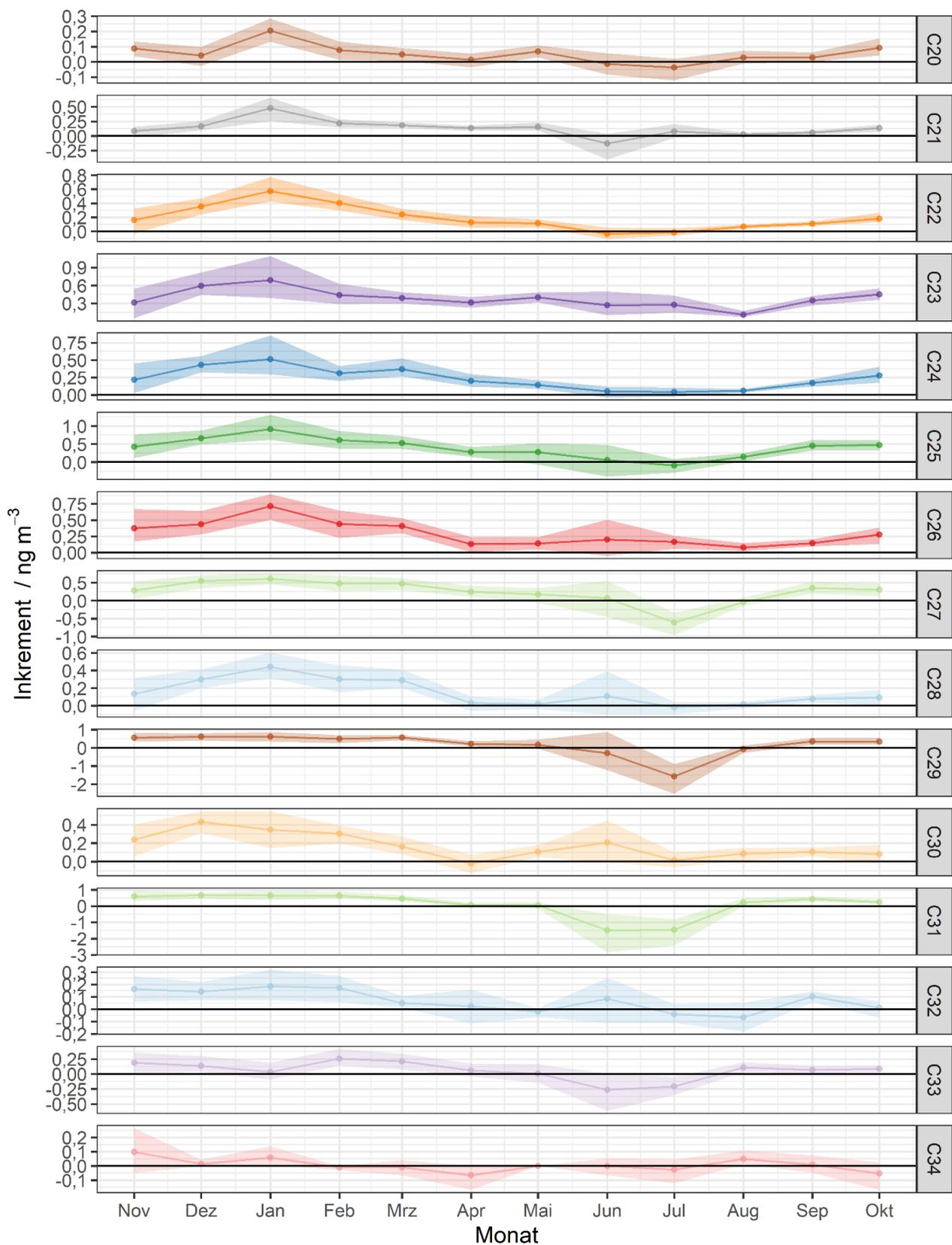


Abbildung 70: Inkrement Konzentrationen C20-C34 Alkane, dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

4.2.11 Metalle

Die ermittelten Metallkonzentrationen im PM10, dargestellt als Inkrement im Wochengang in Abhängigkeit von der Jahreszeit sind in Abbildung 71 und Abbildung 72 gezeigt. Aufgrund der bereits in Kapitel 4.1.11 diskutierten niedrigen gemessenen Metallkonzentrationen im Projektzeitraum und der hohen Streuung der Messwerte zeigt sich auch in dieser Form der Darstellung kein spezifischer Wochengang. Für keine Metallspezies ergibt sich ein statistisch signifikantes Inkrement in Abhängigkeit vom Wochentag und/oder von der Jahreszeit. Die Ergebnisse der berechneten Monatsmittelwerte der Metallkonzentrationen als Jahresgang unter Angabe der 95 % Konfidenzintervalle sind in Abbildung 73 und Abbildung 74 gezeigt. Erneut wird bestätigt, dass für die Metalle keine statistisch signifikanten Unterschiede zwischen der Messstation im Ort und der Station außerhalb existieren. Einzelne Ausnahmen, wie zu sehen für Co, Se und Rb, vorrangig in den Wintermonaten Januar und Februar 2019, sind aufgrund der beschriebenen Einschränkungen auch maximal als Hinweis, aber nicht als Beleg für einen Einfluss von Holzverbrennung zu bewerten.

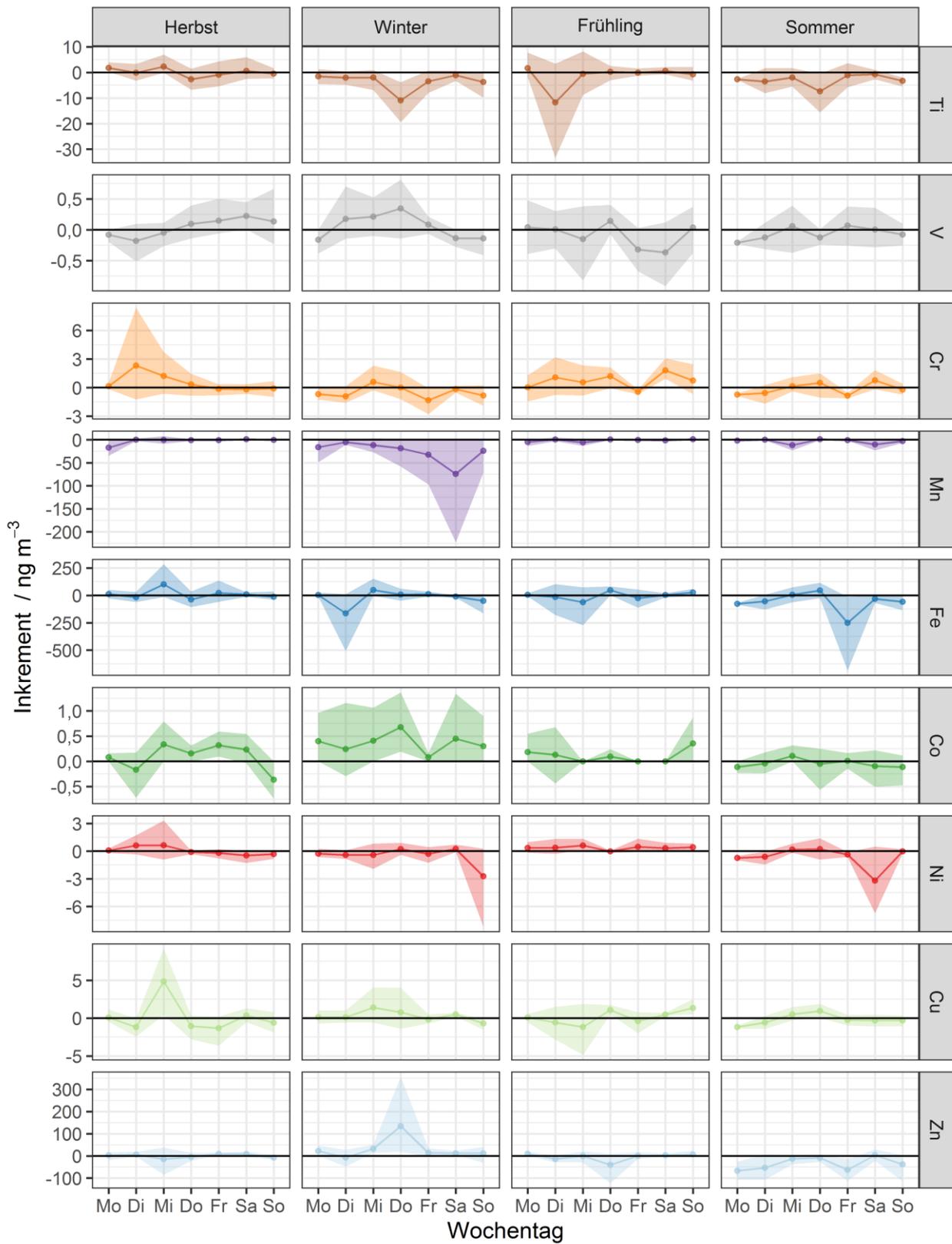


Abbildung 71: Inkrement Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

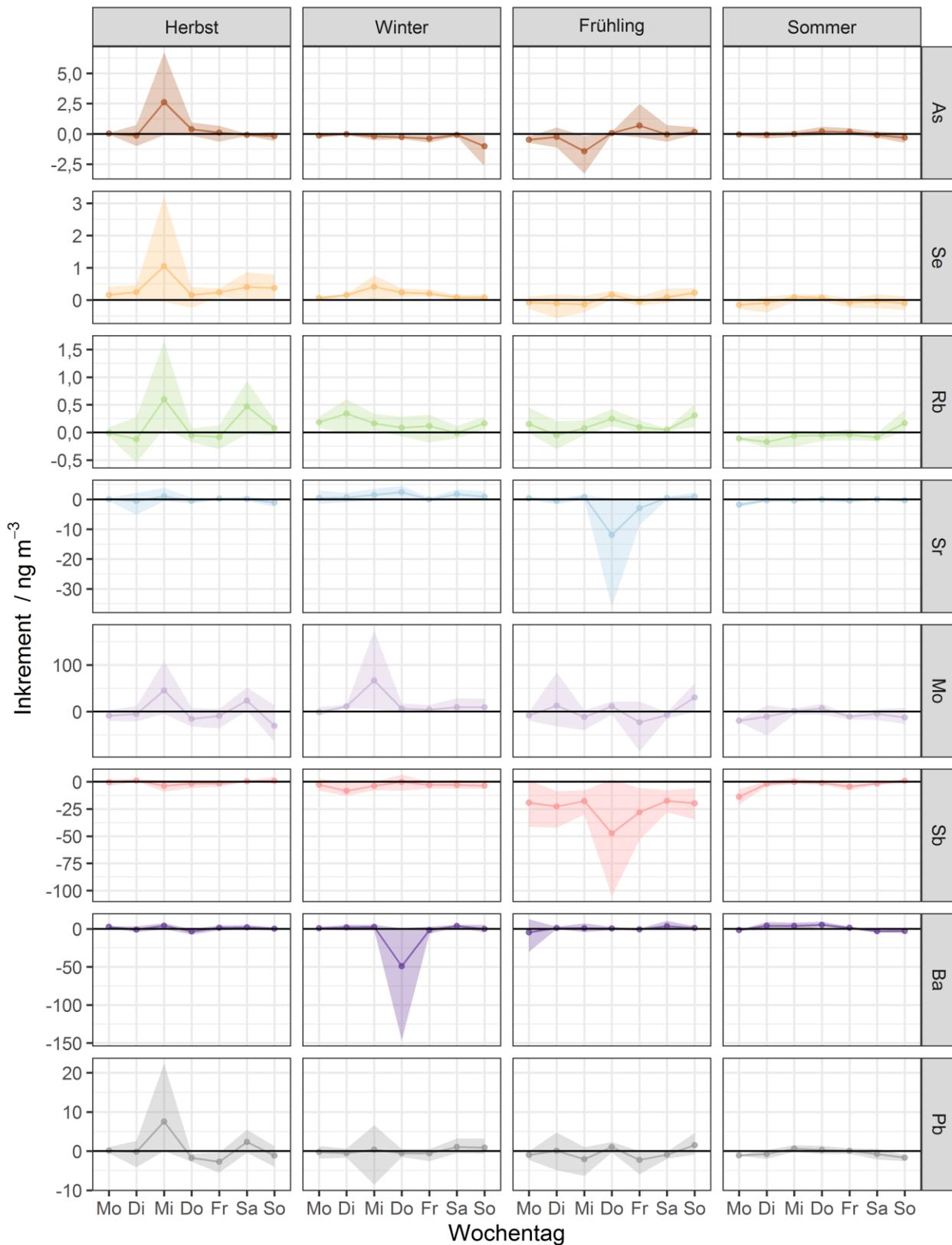


Abbildung 72: Inkrement Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

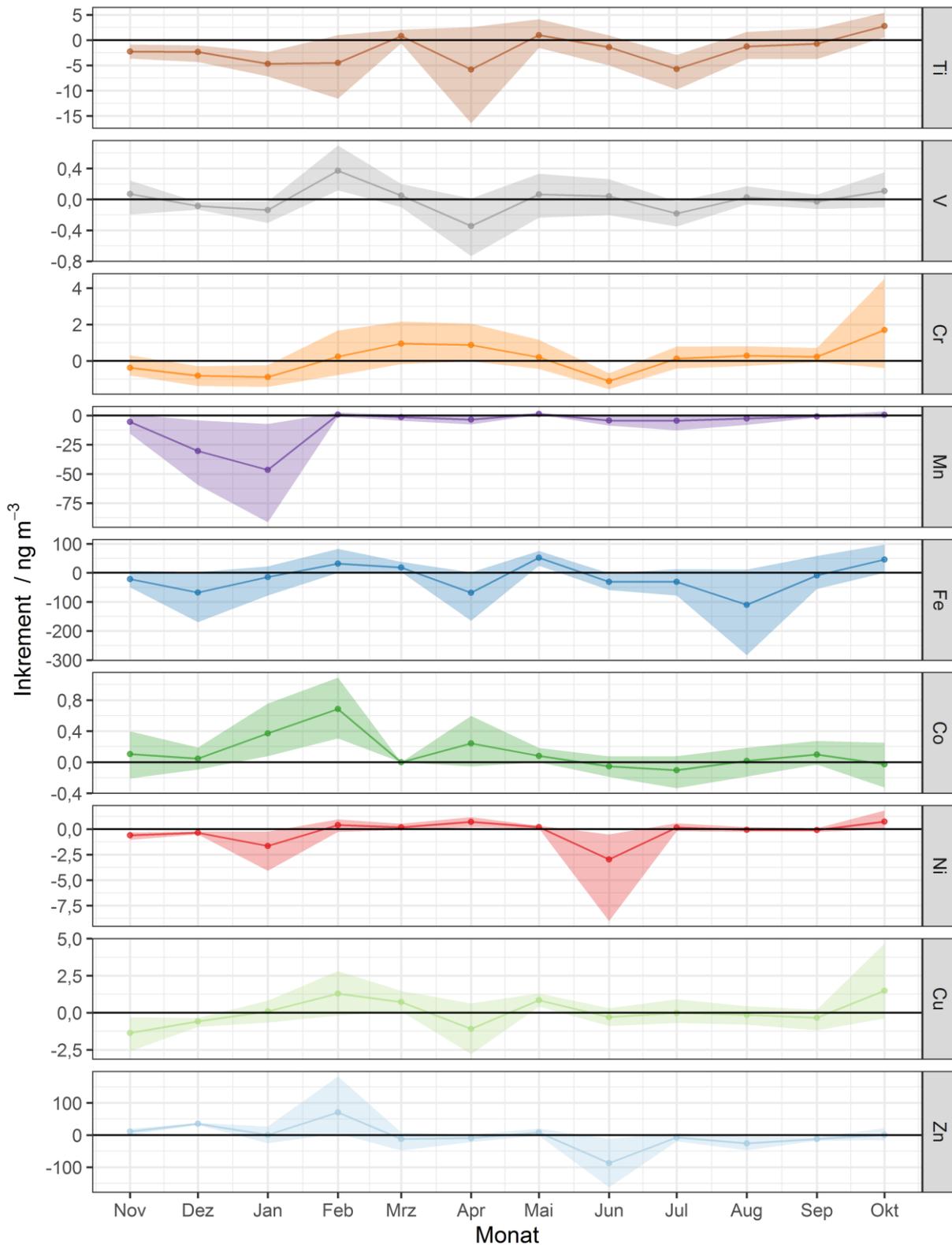


Abbildung 73: Inkrement Konzentrationen der Metalle Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Zn, dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

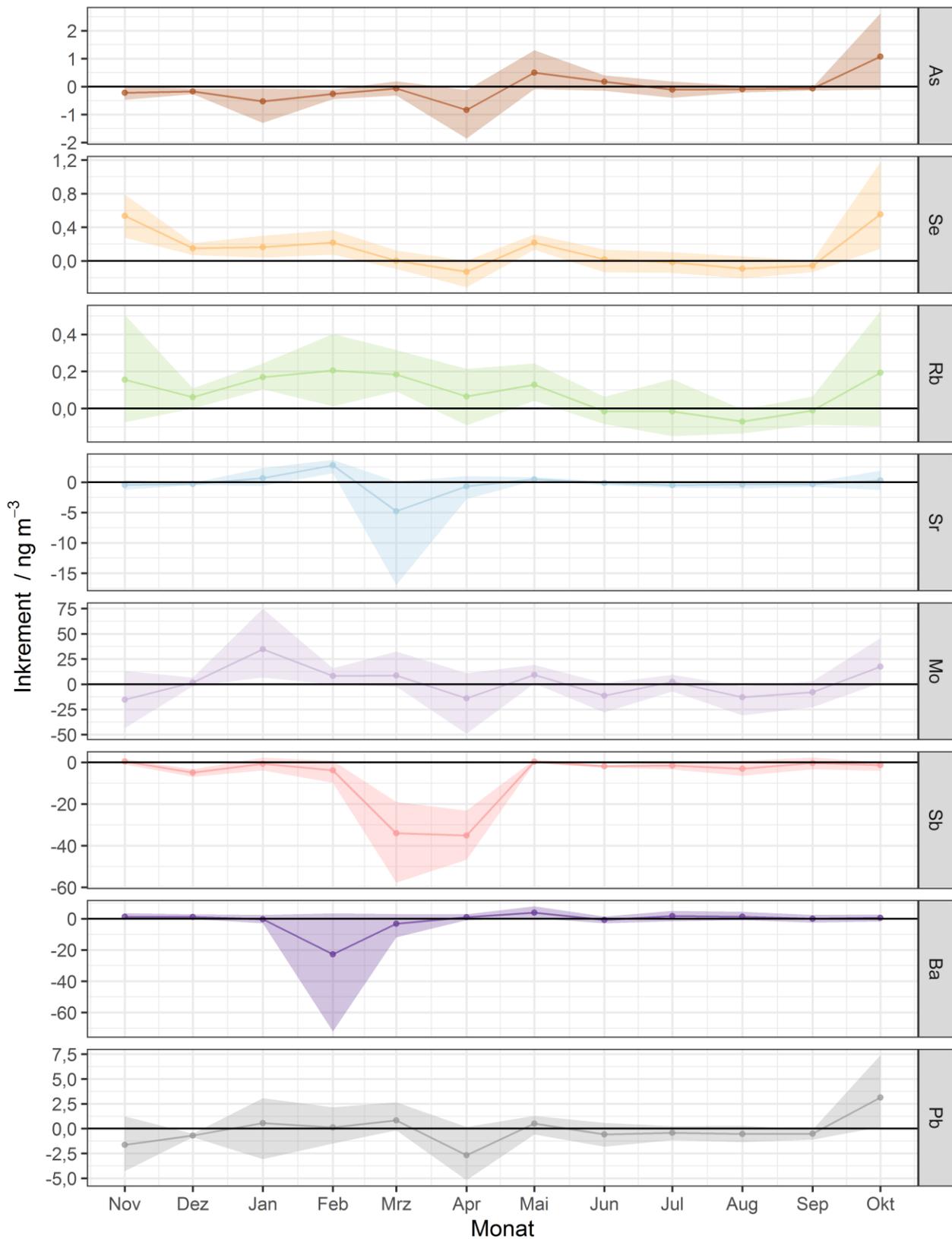


Abbildung 74: Inkrement Konzentrationen der Metalle As, Se, Rb, Sr, Mo, Sb, Ba und Pb, dargestellt als Jahrgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

4.3 Einfluss der Meteorologie

Die lokale Zusatzbelastung aus Holzheizung kann unter Umständen durch die vorherrschenden meteorologischen Bedingungen beeinflusst werden. Aus Abbildung 44 und Abbildung 45 war schon ersichtlich, dass die Inkremente für stündliche Masse- und eBC-Konzentrationen v. a. bei westlichen Anströmungen positiv sind und bei östlichen Anströmungen oft nahe Null liegen oder gar negativ werden. Dies hängt wie in Kapitel 3.1 beschrieben mit der Lage der Stationen in dieser twin-site Studie zusammen, durch die die Referenzstation v. a. bei westlichen Anströmungen tatsächlich unbeeinflusst von den örtlichen Emissionen ist. Ein Einfluss der Windgeschwindigkeit war in den Polardiagrammen aus Kapitel 4.2 für westliche Anströmungen nicht zu beobachten und für östliche Anströmungen nur insofern, dass die Zusatzbelastung nur bei windarmen Bedingungen mit Windgeschwindigkeiten $< 2 \text{ m s}^{-1}$ positiv war. Da in den Polardiagrammen die Messdaten in einer geglätteten Version gezeigt sind, wurde der Einfluss der Windgeschwindigkeit auf die Zusatzbelastung der stündlichen Messparameter noch einmal mit den direkten Messdaten untersucht. Streudiagramme mit allen Messwerten zeigten aufgrund einer sehr großen Streubreite der Daten keinerlei Zusammenhang mit Steigung der Regressionsgeraden und Bestimmtheitsmaß R^2 jeweils nahe Null (nicht gezeigt). Im nächsten Schritt wurden daher die Messdaten diskretisiert, indem für 8 Bereiche der Windgeschwindigkeiten (< 1 , $1 - 2$, $2 - 3$, ..., $> 7 \text{ m s}^{-1}$) Mittelwerte und zugehörige Standardabweichung berechnet wurden. Diese Ergebnisse sind in Abbildung 75 dargestellt.

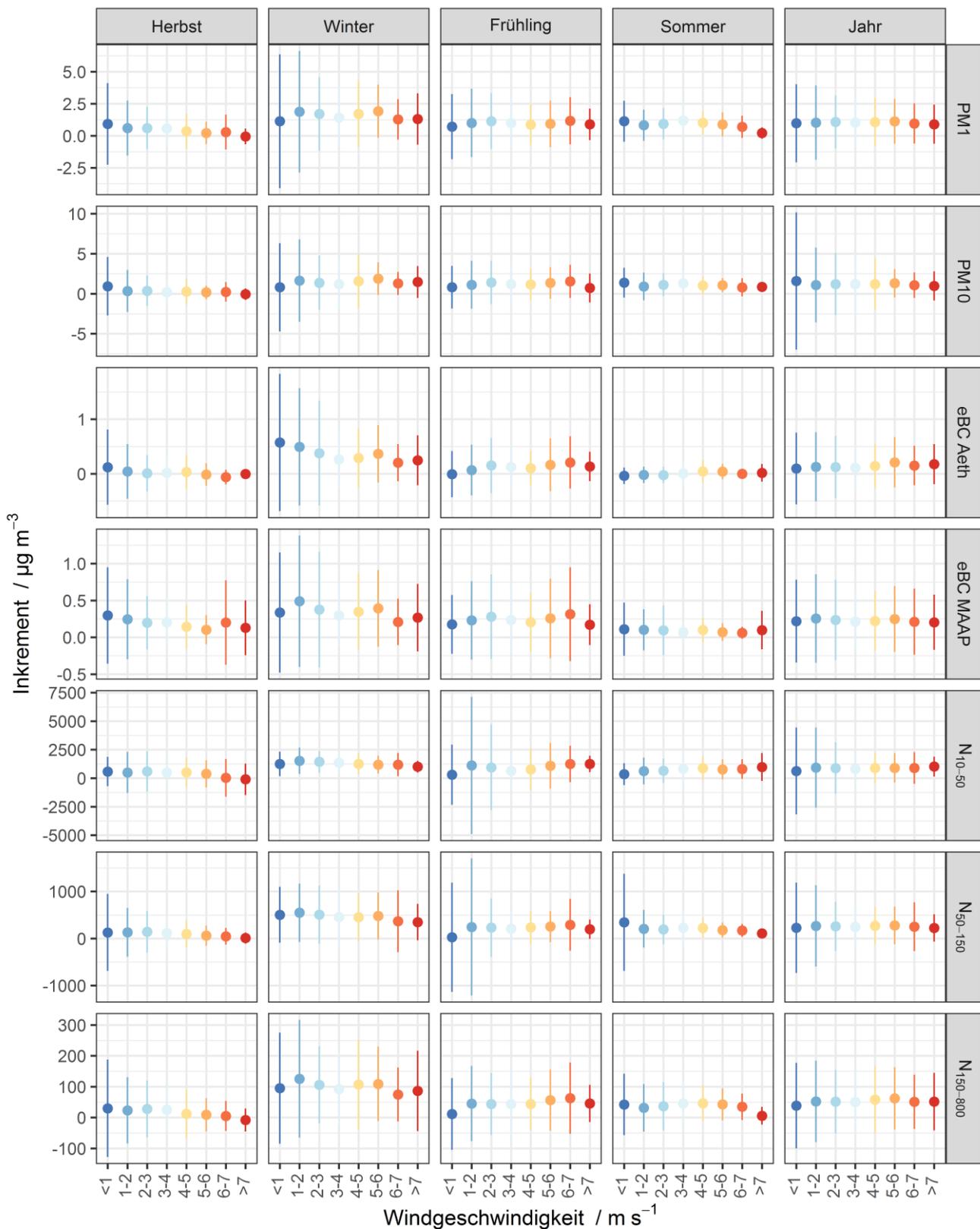


Abbildung 75: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 8 Bereiche der mittleren stündlichen Windgeschwindigkeit

Auch in dieser Zusammenfassung der Messdaten zeigt sich kein eindeutiger Zusammenhang des Inkrements mit der Windgeschwindigkeit, weder in einzelnen Jahreszeiten, noch über das gesamte Jahr betrachtet. Eine gewisse

Ausnahme stellen die vom Aethalometer bestimmten eBC-Werte dar, bei denen das höchste Inkrement für windstille Bedingungen gefunden wird. Allerdings wird dieser Befund durch die mittels MAAP bestimmten eBC-Werte nicht bestätigt, so dass für eBC ebenfalls kein eindeutiger Trend festzustellen ist. Offensichtlich werden Emissionen aus Quellen, die zwischen den beiden Stationen im twin-site Messkonzept liegen relativ unabhängig von der Windgeschwindigkeit an der Station Melpitz Ort erfasst, so dass es hier nicht zu einer deutlichen Beeinflussung der Werte kommt. In Abbildung 76 sind die Ergebnisse für die täglichen Messparameter, die in den vorherigen Auswertungen eine relevante Zusatzbelastung ergaben, gezeigt. Sie bestätigen im Wesentlichen den Befund, dass auch im Tagesmittel kein eindeutiger Zusammenhang zwischen der lokalen Zusatzbelastung und der Windgeschwindigkeit beobachtet werden kann. Einzige Ausnahme sind windstille Bedingungen im Herbst mit Windgeschwindigkeiten $< 1 \text{ m s}^{-1}$, für die deutlich höhere Inkremente bestimmt werden als für höhere Windgeschwindigkeiten. Da diese Beobachtung allerdings für Winter und Frühling nicht gemacht wird, handelt es sich hierbei möglicherweise nur um einen zufälligen Effekt.

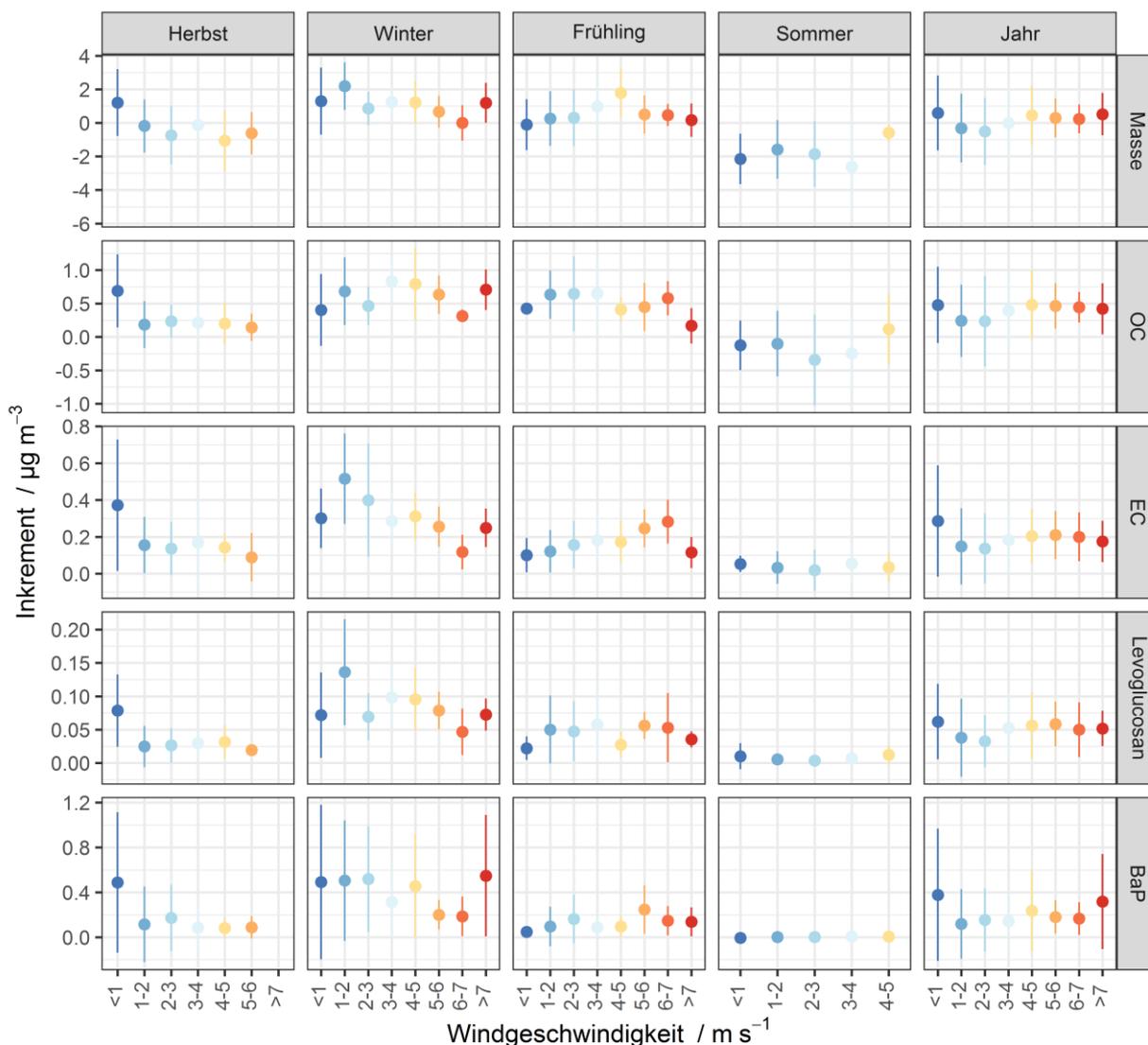


Abbildung 76: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 8 Bereiche der mittleren täglichen Windgeschwindigkeit

Eine weitere meteorologische Größe, die Einfluss auf die lokale Zusatzbelastung aus Holzheizung haben könnte, ist die Temperatur. Man könnte erwarten, dass bei niedrigen Temperaturen mehr Brennstoff verwendet wird, was zu höheren

Emissionen führen könnte. Eine direkte Korrelation der stündlichen und täglichen Inkremente mit der Temperatur konnte allerdings nicht beobachtet werden. Die Mittelwerte für 7 Temperaturbereiche (<0, 0 - 5, ..., > 25 °C) sind in Abbildung 77 für die stündlichen und in Abbildung 78 für ausgewählte tägliche Messparameter gezeigt.

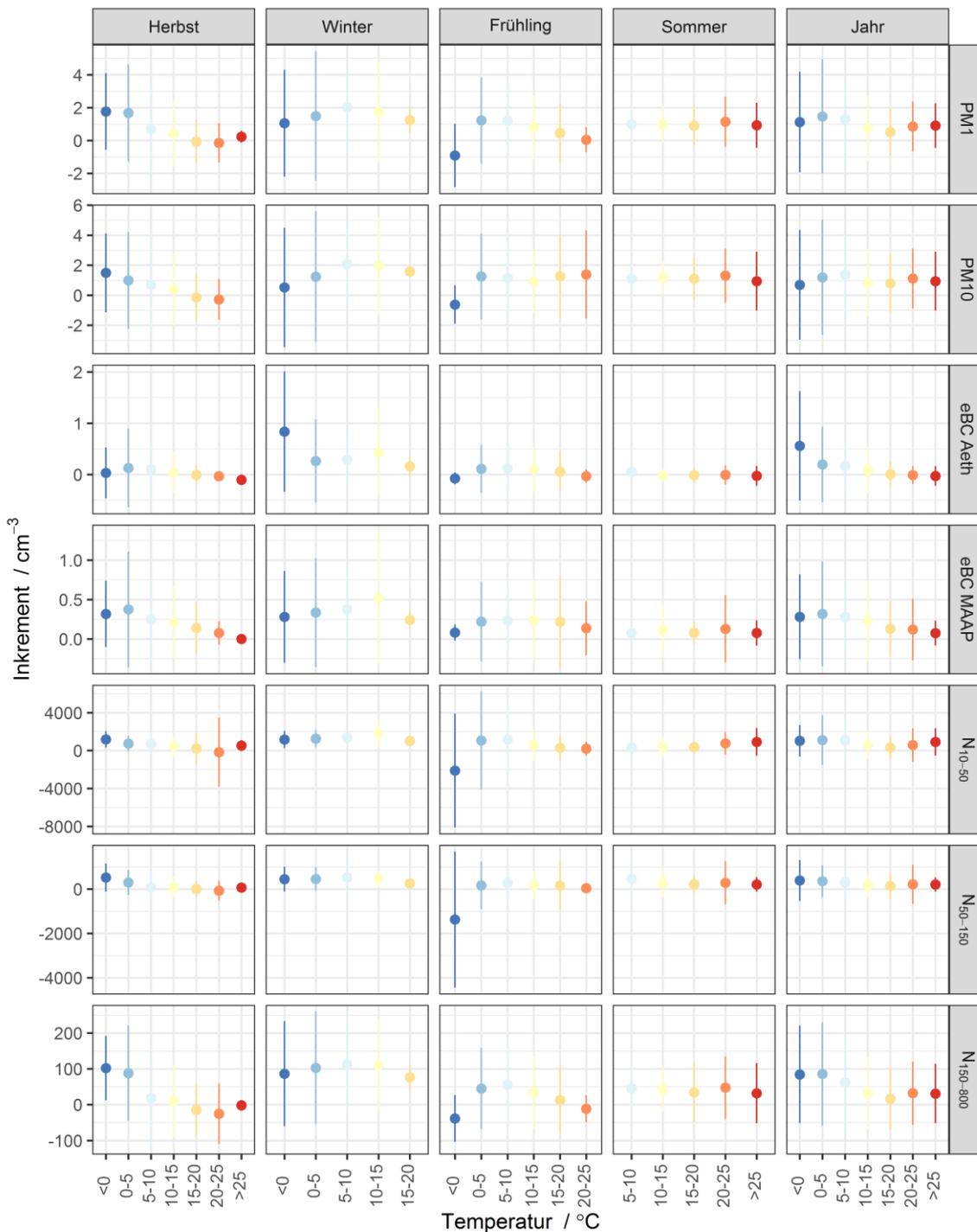


Abbildung 77: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 7 Bereiche der mittleren stündlichen Temperatur

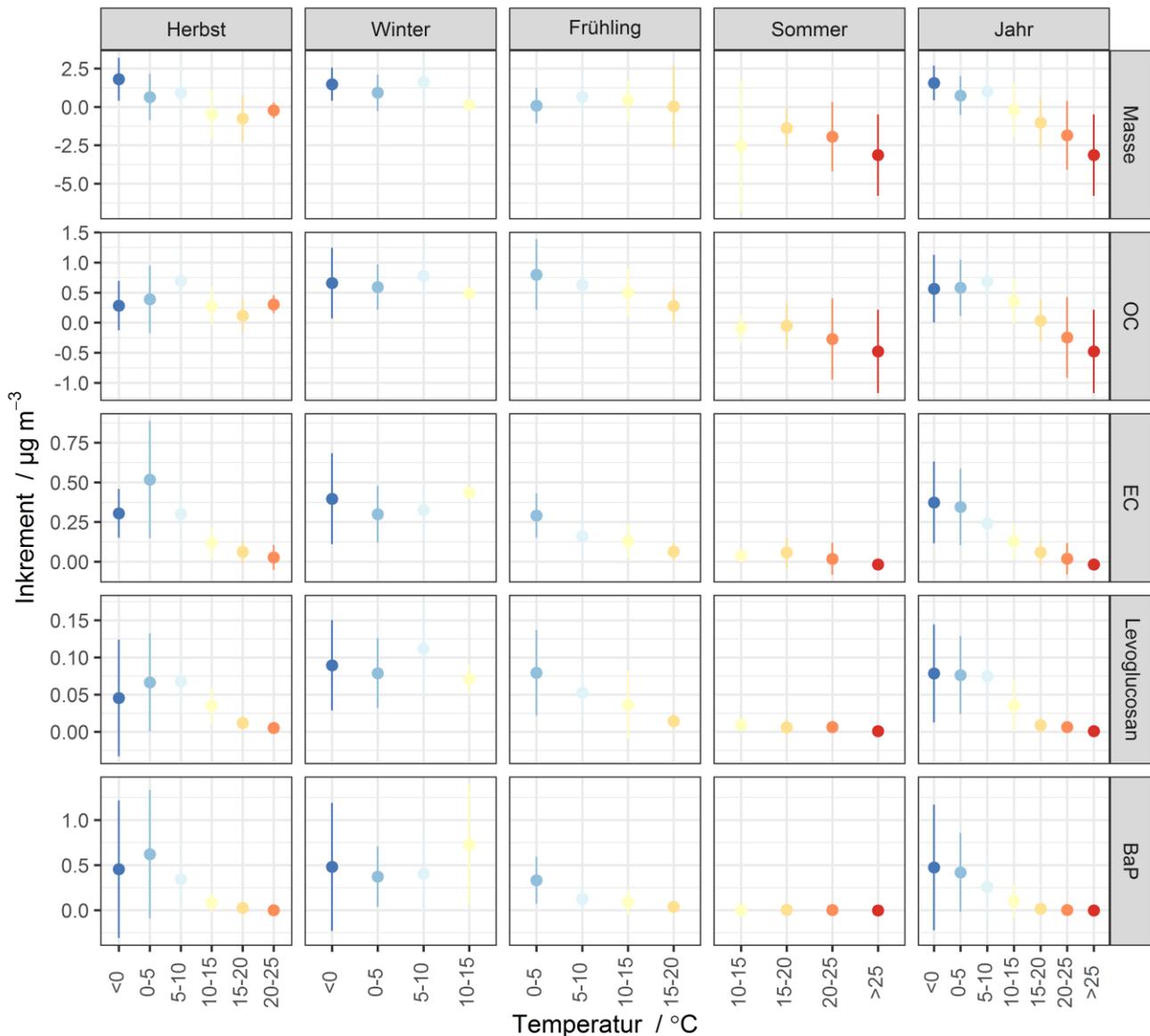


Abbildung 78: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 7 Bereiche der mittleren täglichen Temperatur

Im Herbst ist für viele Messgrößen, z. B. stündliche Massen-, eBC- und Anzahlkonzentrationen, sowie tägliche Masse-, EC-, Levoglucosan- und Benzo(a)pyren-Konzentrationen ein Trend zu erhöhten Inkrementen bei niedrigen Temperaturen zu erkennen, der sich zwar für den kältesten Temperaturbereich $< 0\text{ }^{\circ}\text{C}$ nicht fortsetzt, für den übrigen Bereich bis hin zu $20 - 25\text{ }^{\circ}\text{C}$ allerdings sehr deutlich ist. Im Winter ist dieser Zusammenhang nicht mehr vorhanden, die mittleren Inkremente bleiben relativ konstant oder schwanken unabhängig vom jeweiligen Temperaturbereich. Im Frühling ist der Trend in etwas abgeschwächter Form für die meisten der Messparameter wieder zu erkennen. Im Sommer ist aufgrund fehlender Heizungsemissionen kein Einfluss zu erwarten und zeigt sich in den Messdaten auch nicht. Über das gesamte Jahr betrachtet (rechte Spalte in den Abbildungen) ergibt sich somit eine v. a. für die täglichen und etwas schwächer ausgeprägt auch für die stündlichen Messparameter, deutliche Dynamik der lokalen Zusatzbelastung aus Holzheizungsemissionen.

Diese Beobachtungen und insbesondere der fehlende Zusammenhang des Inkrements mit der Temperatur im Winter lassen sich so interpretieren, dass die Verfeuerung von Holz im Ort Melpitz möglicherweise in den Übergangsjahreszeiten Herbst und Frühling zum einen vermehrt als einzige Heizquelle temporär zu kühlen

Tageszeiten oder an kühleren Tagen genutzt wird bzw. zum anderen auch Zentralheizungen mit Holz als Brennstoff zunächst nur temporär im Einsatz sind. Im Winter hingegen findet die Gebäudeheizung kontinuierlich mit Zentralheizungen aller Brennstoffe statt und die Holzfeuerung wird lediglich als zusätzliche Wärmequelle dann unabhängig von der Außentemperatur verwendet. Die in Kapitel 4.5 beschriebenen Ergebnisse der Bürgerbefragung legen nahe, dass Zentralheizungen in Melpitz überwiegend (ca. 70 %) nicht mit Holz und Einzelfeuerstätten überwiegend (ca. 80 %) mit Holz als Brennstoff betrieben werden. Kommen diese Einzelfeuerstätten wie oben vermutet vor allem in den Übergangszeiten zur temporären Aufheizung von Wohnräumen zum Einsatz bei ansonsten fehlenden oder nur niedrigen Emissionen aus Zentralheizungen, könnte das die beobachteten Temperaturabhängigkeiten der Inkremente erklären.

Eine weitere mögliche meteorologische Einflussgröße auf die lokale Zusatzbelastung ist die Höhe der atmosphärischen Mischungsschicht, durch die das zur Verfügung stehende Mischungsvolumen für Emissionen bestimmt wird. Diese Mischungsschichthöhe kann nicht direkt gemessen werden und wurde daher für diese Untersuchungen aus globalen Reanalysedaten (Global Data Assimilation System $1^\circ \times 1^\circ$, U.S. National Oceanic and Atmospheric Administration) für den Ort Melpitz bezogen. Es muss allerdings betont werden, dass diese berechneten Daten mit sehr hohen Unsicherheiten und Ungenauigkeiten behaftet sein können. Mangels besserer Alternativen wurden sie dennoch in der gleichen Weise wie Windgeschwindigkeit und Temperatur zur Untersuchung des Zusammenhangs mit den lokalen Inkrementen verwendet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 79 und Abbildung 80 gezeigt.

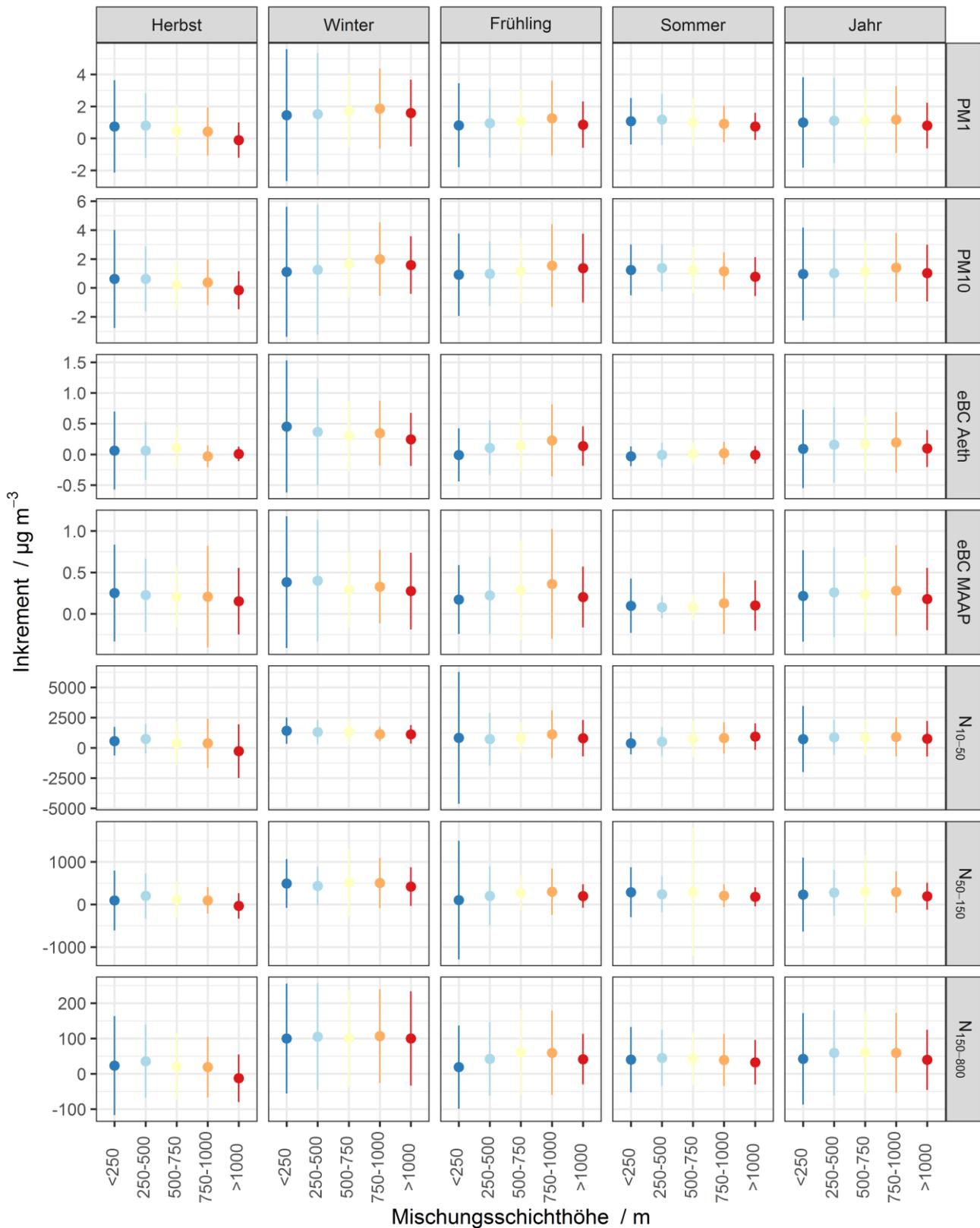


Abbildung 79: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter stündlicher Messparameter für 5 Bereiche der mittleren stündlichen Mischungsschichthöhe

Für die stündlichen Messparameter ist in Abbildung 79 kein Zusammenhang der Inkremente mit der Mischungsschichthöhe zu erkennen. Dies könnte – neben der ungewissen Qualität der Mischungsschichthöhen –

an den unterschiedlichen Tagesgängen von Inkrement und Mischungsschichthöhe liegen. Mischungsschichthöhen sind i.d.R. insbesondere nachts sehr niedrig und nehmen im Tagesverlauf zu. Die lokalen Inkremente zeigen jedoch tendenziell Maxima am Morgen und am früheren Abend, da zu diesen Tageszeiten die Emissionen insbesondere aus Einzelfeuerstätten am ehesten zu erwarten sind, während in der Nacht generell eher mit niedrigeren Heizungsemissionen zu rechnen ist. Diese gegenläufigen Effekte könnten zu dem für die Stundenwerte nicht beobachtbaren Zusammenhang führen.

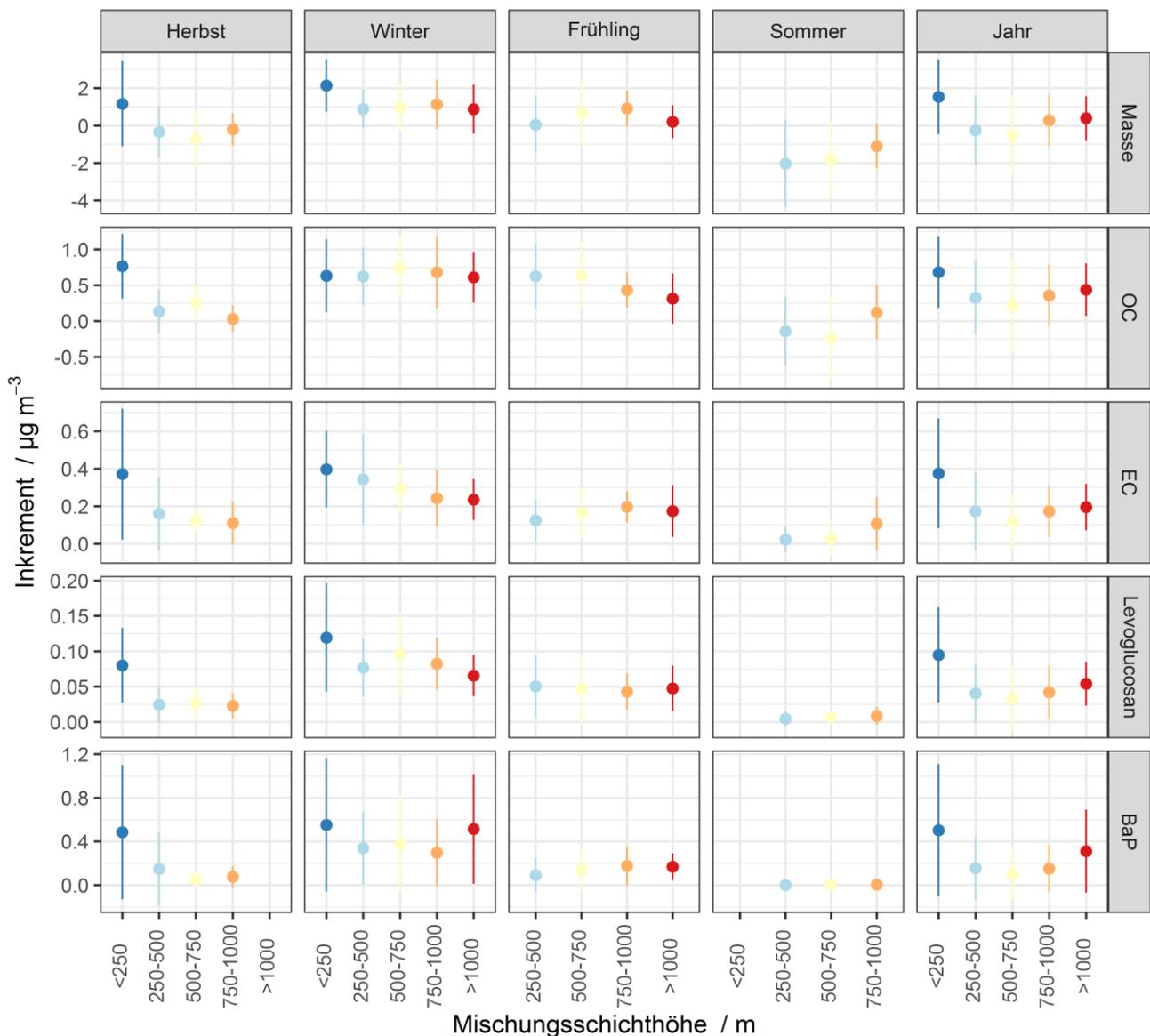


Abbildung 80: Mittelwerte (Punkte) +/- Standardabweichung (Linien) des Inkrements ausgewählter täglicher Messparameter für 5 Bereiche der mittleren täglichen Mischungsschichthöhe

Diese Vermutung wird unterstützt durch die Ergebnisse der täglichen Messparameter in Abbildung 80. Hier ist für Masse, EC, Levoglucosan und teilweise BaP in Herbst und Winter ein Trend zu höheren mittleren Inkrementen bei niedrigeren Tagesmittelwerten der Mischungsschichthöhe zu erkennen, da Einflüsse des Tagesganges hier herausgemittelt sind.

Insgesamt erscheinen diese Betrachtungen zu den Zusammenhängen zwischen Meteorologie und lokaler Zusatzbelastung aus Holzheizung ganz überwiegend plausibel und gut erklärbar. Emissionen werden unabhängig

von der Windgeschwindigkeit von der Messstation in der Ortsmitte erfasst, sind v.a. in den Übergangsjahreszeiten an die temperaturabhängige temporäre Nutzung von Holzfeuerungsstätten gekoppelt und reichern sich an Tagen mit niedrigen Mischungsschichthöhen besonders stark an, was zu erhöhten gemessenen Immissionen führt. Die Plausibilität dieser Ergebnisse belegt den Erfolg und die Eignung des in diesem Projekt implementierten twin-site Messkonzeptes zur Bestimmung der lokalen Zusatzbelastung im Ort Melpitz.

4.4 Quellzuordnung PM

Die Zuordnung der ermittelten Partikelmassenkonzentration zu Ihren Quellen kann über verschiedene Methoden erfolgen. Im vorliegenden Forschungsvorhaben soll die Zusatzbelastung aus Holzheizungen beurteilt werden. Dazu wurden der Makrotraceransatz via Levoglucosan und die Rezeptormodellierung mit PMF durchgeführt, deren Ergebnisse nachfolgend diskutiert werden.

4.4.1 Makrotraceransatz Levoglucosan

Ein Makrotraceransatz zur zielgerichteten Beurteilung des Anteils der Holzheizung an der Gesamtfeinstaubmasse basiert auf der Analyse und Auswertung von Verbindungen (Tracer), die speziell bei der Verbrennung von Holz freigesetzt werden. Einer der wichtigsten Verbrennungstracer für Holz ist der Anhydromonosaccharid Levoglucosan, der bei der Pyrolyse von Cellulose und Hemicellulose, den wichtigsten Biopolymeren in Holz, freigesetzt wird. Anhand von Emissionsfaktoren aus Laborexperimenten für die Partikelmasse und Levoglucosan und ihren relativen Verhältnissen zueinander wird der Holzverbrennungsanteil an PM10 (PM(BB)=Konzentration Levoglucosan x Faktor) abgeschätzt. Basierend auf Literaturdaten wurde als Faktor ein Wert von 10,95 verwendet (VAN PINXTEREN et al. 2016). In Abbildung 81 sind die daraus resultierenden Konzentrationsverläufe für PM(BB) als Monatsmittelwerte für Melpitz Ort und Station vergleichend dargestellt.

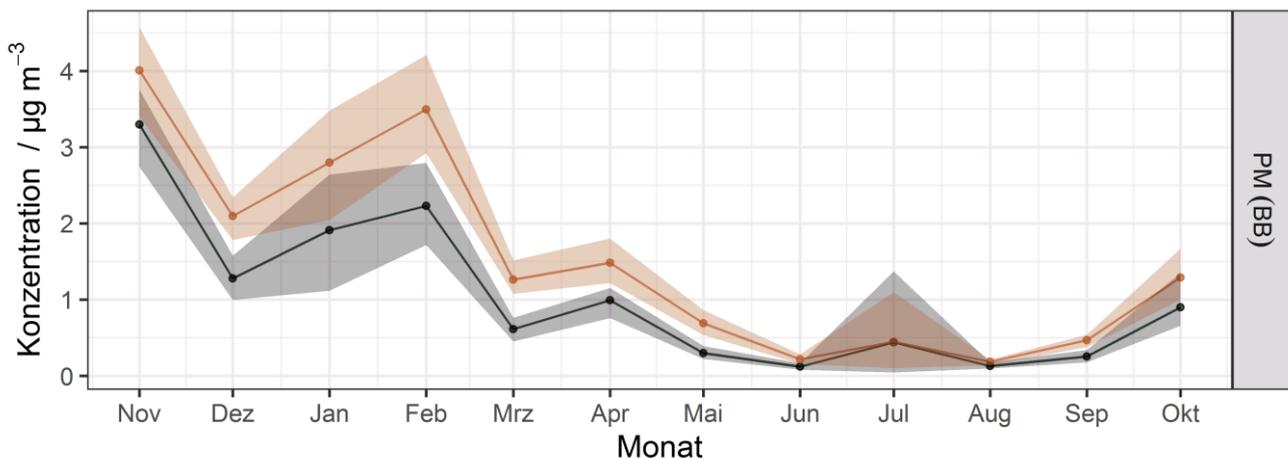


Abbildung 81: Konzentration PM(BB) dargestellt als Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall im Jahresgang; Messwerte im Ort Melpitz sind als farbige Linie, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linie dargestellt

Fasst man die Monatsmittelwerte nach den meteorologischen Jahreszeiten zusammen, ergeben sich die in Tabelle 6 zusammengestellten Beiträge und Anteile der Holzverbrennung an der Gesamtmasse PM10.

Tabelle 6: Quellbeiträge und Anteile PM(BB) an Gesamt- PM10 abgeschätzt über die Makrotracermethode via Levoglucosan für Melpitz Ort und Station in Abhängigkeit der Jahreszeit

Jahreszeit	Quellbeitrag PM(BB) / $\mu\text{g m}^{-3}$		Anteil PM(BB) am Gesamt- PM10 / %	
	Ort	Station	Ort	Station
Winter	2,79	1,80	15,5	9,4
Frühling	1,16	0,64	6,3	3,2
Sommer	0,29	0,24	1,3	0,9
Herbst	1,93	1,49	9,1	6,7

Die Auswertung zeigt, dass der Anteil PM(BB) an der Gesamtmasse PM10 eindeutig jahreszeitabhängig ist. Während im Sommer an beiden Stationen der Anteil mit rund 1 % der Gesamtmasse PM10 vernachlässigbar gering ist, steigen die Anteile im Frühling bzw. Herbst an und erreichen ihre maximalen Werte im Winter. Der Anteil PM(BB) im Ort Melpitz ist mit etwa 15,5 % am höchsten und damit etwa 6 % höher als an der Referenz Melpitz Station. Die an dieser Station ermittelten 9,4 % im Winter stimmen sehr gut mit einer vorherigen Studie überein, die für die Winter 2013/14 und 2014/15 im Mittel einen Anteil von 8,7 % abschätzten (VAN PINXTEREN et al. 2016). Durch Differenzbildung der Ergebnisse Melpitz Ort und Station ergibt sich das Inkrement PM(BB), dargestellt in Abbildung 82.

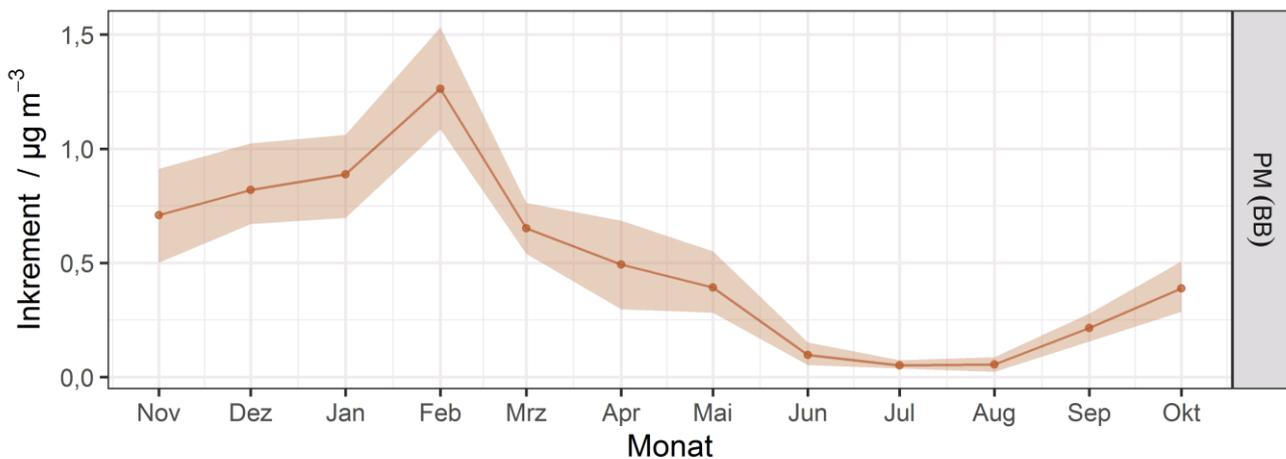


Abbildung 82: Inkrement PM(BB) dargestellt als Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall im Jahresgang

Aus dem Kurvenverlauf für das Inkrement PM(BB) wird die zuvor diskutierte Jahreszeitabhängigkeit bestätigt. Mit etwa $1,25 \mu\text{g m}^{-3}$ zeigt sich das Maximum im Februar und nimmt anschließend im Verlauf des Jahres wieder ab. In den Sommermonaten Juni und Juli gleichen sich die Stationen an, sodass kein messbares Inkrement durch Holzverbrennung im Ort Melpitz auftritt. In den Folgemonaten steigt es entsprechend wieder an. Fasst man die Monatsmittelwerte erneut nach den meteorologischen Jahreszeiten zusammen, ergeben sich die in Tabelle 7 zusammengestellten Inkremente Holzfeuerung im Ort Melpitz.

Tabelle 7: Inkrement PM(BB) abgeschätzt über die Makrotracermethode via Levoglucosan für Melpitz Ort in Abhängigkeit der meteorologischen Jahreszeit

Jahreszeit	Inkrement PM(BB) im Ort Melpitz / $\mu\text{g m}^{-3}$
Winter	0,99
Frühling	0,52
Sommer	0,05
Herbst	0,44

Das mittels Makrotracermethode abgeschätzte Inkrement PM(BB) beträgt im Winter (Heizperiode) etwa $0,99 \mu\text{g m}^{-3}$ im Ort Melpitz. Vergleicht man diese Massenkonzentration des PM(BB) Inkrementes mit dem Inkrement der Gesamtpartikelmasse PM10 von $1,21 \mu\text{g m}^{-3}$ (siehe Tabelle 5, Kapitel 0) im gleichen Zeitraum, ergibt sich ein Anteil von größer 80%. Zusammenfassend zeigt die Abschätzungsmethode, dass ca. $1 \mu\text{g m}^{-3}$ PM10-Massenkonzentration bzw. 4/5 der PM10-Zusatzbelastung im Winter im Ort Melpitz mit hoher Wahrscheinlichkeit auf Holzverbrennung (Holzheizung) zurückzuführen sind.

4.4.2 Positive Matrixfaktorisierung (PMF)

Über die PMF als Rezeptormodell können Beiträge einzelner Quellen oder Quellkategorien zur Gesamtpartikelbelastung quantifiziert werden. Wie in Kapitel 3.6.5 beschrieben wurden hierfür verschiedene Varianten gerechnet und diejenige mit den plausibelsten und am besten interpretierbaren Ergebnissen ausgewählt. In Abbildung 83 sind die Quellprofile der finalen PMF-Lösung mit 7 Quellen gezeigt. In dieser Variante wurden die Konzentrationen der Alkane und Hopane nicht berücksichtigt, da diese aufgrund technischer Probleme mit dem Analysensystem erst sehr spät im Projektverlauf vollständig zur Verfügung standen. Vergleiche zwischen den hier dargestellten PMF-Ergebnissen und denen, die unter Hinzunahme eines Teildatensatzes der Alkane und Hopane durchgeführt wurden, zeigten jedoch keine wesentlichen Änderungen in den mittleren Quellbeiträgen einzelner Quellen.

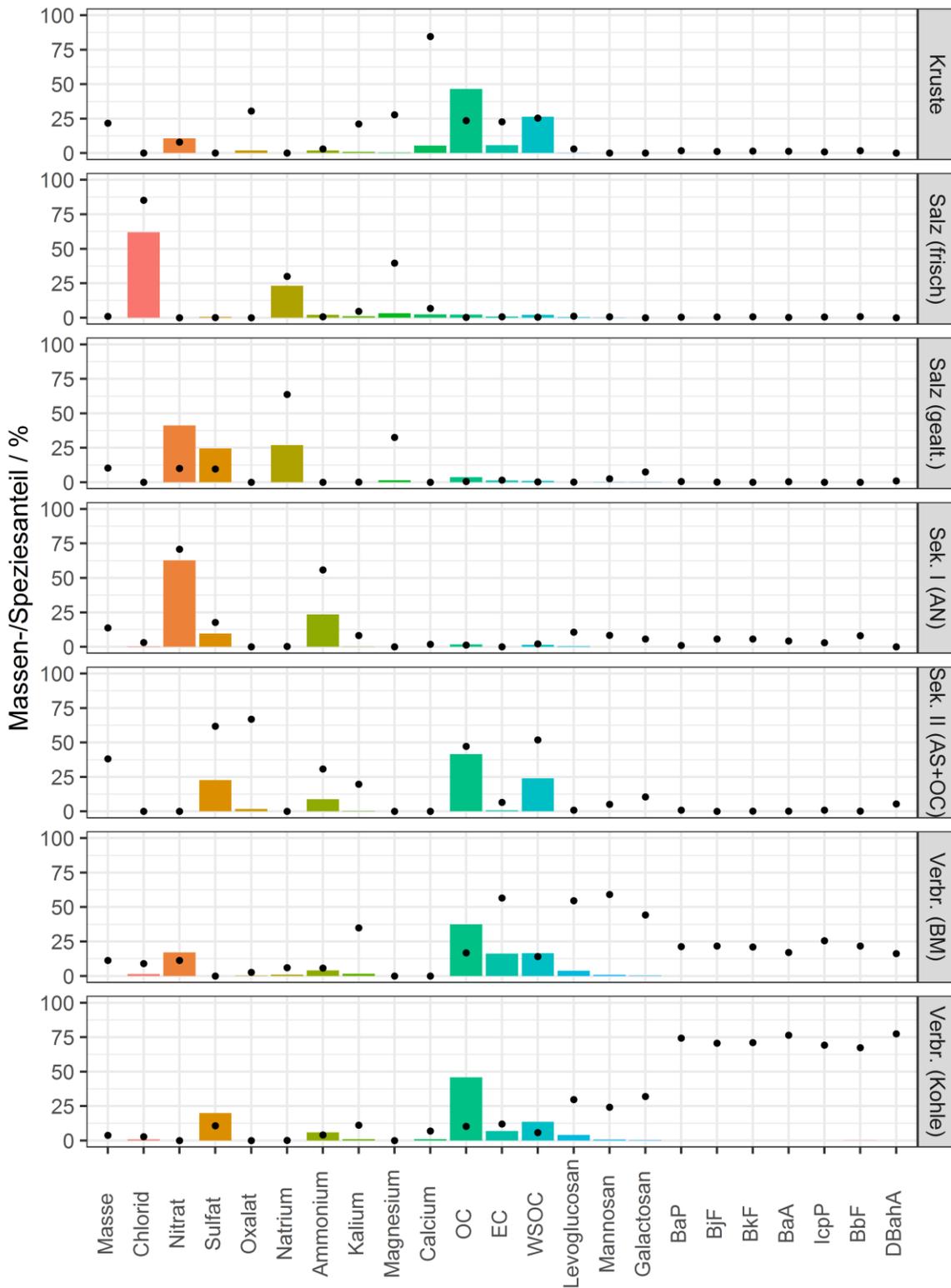


Abbildung 83: Quellprofile der 7 Faktoren der PMF, Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%)

Die 7 Faktoren der finalen PMF- Lösung wurden verschiedenen PM- Quellen zugeordnet. Diese Interpretation basiert auf den Quellprofilen, d. h. der chemischen Zusammensetzung der Quelle, die in Abbildung 83 gezeigt sind. Balken

stellen hier den Masseanteil eines Inhaltsstoffs an der Gesamtmasse eines jeweiligen Faktors dar, Punkte den Speziesanteil, der beschreibt wie stark ein bestimmter Inhaltsstoff einem jeweiligen Faktor zugeordnet ist. Ebenfalls wichtig für die Interpretation und Identifikation einzelner PMF- Faktoren sind die Zeitverläufe ihrer Quellbeiträge, die in Abbildung 84 gezeigt sind und im Folgenden zusammen mit den Quellprofilen kurz diskutiert werden.

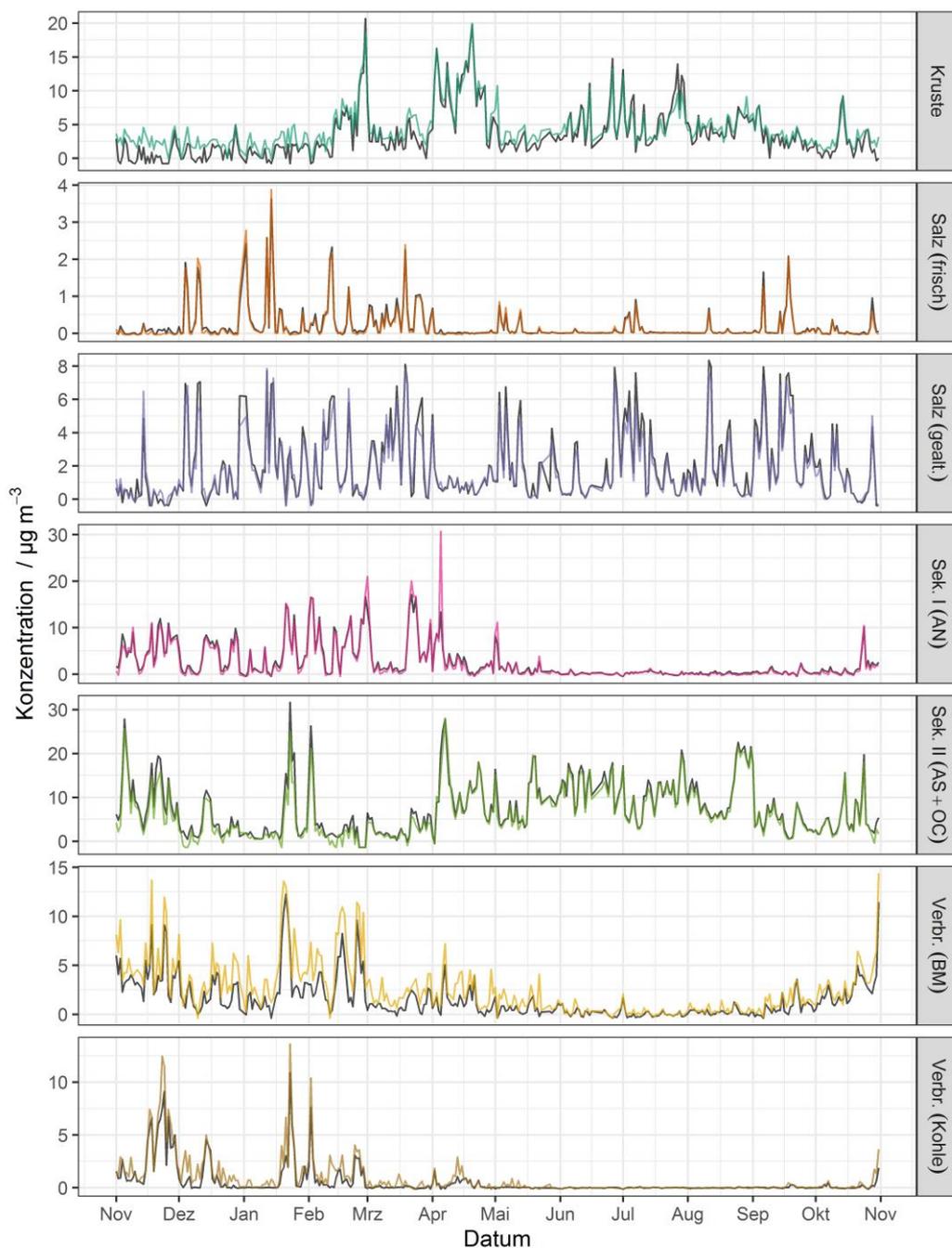


Abbildung 84: Zeitreihen der PMF- modellierten Quellbeiträge für den jeweiligen Faktor (Quelle). Werte für Melpitz Ort sind als farbige Linien, für Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Die Quelle **Krustenmaterial** besteht zu einem hohen Anteil aus organischem Kohlenstoff (OC) und einer Reihe anorganischer Ionen wie Calcium, Natrium und Nitrat. Insbesondere der für eine Spurenkategorie hohe Masseanteil von Calcium, sowie der sehr hohe Speziesanteil dieses Ions in diesem Faktor führen zu seiner Identifizierung als aufgewirbeltes Bodenmaterial. Seine Quellbeiträge sind tendenziell im Sommer aufgrund trockenerer Bedingungen höher als im Winter. Die hohen Quellbeiträge im April sind wahrscheinlich auf eine in

dieser Zeit intensive Bewirtschaftung der Felder im Umfeld von Melpitz zurückzuführen, die mit einer erhöhten Staubaufwirbelung verbunden ist.

Zwei weitere natürliche Quellen werden als **frisches und gealtertes Seesalz** identifiziert. Frisches Seesalz besteht im Wesentlichen aus Natriumchlorid mit geringen Beiträgen weiterer Ionen und hoher Speziesanteile von Chlorid, Natrium und Magnesium. Trotz der Entfernung zum Meer kann es bei bestimmten Wetterlagen mit hohen Windgeschwindigkeiten zum schnellen Transport frischer mariner Emissionen nach Melpitz kommen. An den Quellbeiträgen ist zu erkennen, dass dies oft nur während kurzer Zeiträume geschieht und ansonsten der Quellbeitrag von frischem Seesalz bei 0 liegt. Im Gegensatz dazu liegt der Quellbeitrag von chemisch gealtertem Seesalz nur selten bei 0 und nimmt in Melpitz regelmäßig auch etwas höhere Werte an. Chemisch gealtertes Seesalz besteht aus ursprünglich frischen Seesalzemissionen, die sich durch längeren Transport durch verschmutzte kontinentale Gebiete chemisch verändern. Insbesondere wird durch Salpeter- und Schwefelsäure als starke Mineralsäuren Salzsäure aus den Partikeln ausgetrieben und somit das ursprünglich vorhandene Chlorid durch Nitrat und Sulfat ersetzt. Dies spiegelt sich im Quellprofil des Faktors „gealtertes Seesalz“ wider, welches hohe Masseanteile von Nitrat, Sulfat und Natrium, sowie hohe Speziesanteile von Natrium und Magnesium aufzeigt.

Die Quellkategorien **Sekundär I (Ammoniumnitrat, AN)** und **Sekundär II (Ammoniumsulfat und OC)** stellen keine direkten Partikelemissionen dar, sondern durch chemische Prozessierung in der Atmosphäre sekundär gebildete Partikelmasse. Das Quellprofil des ersten Faktors wird dominiert durch Nitrat und Ammonium, das des zweiten enthält hohe Masseanteile von Sulfat, Ammonium und organischem, insbesondere wasserlöslichem organischem Kohlenstoff, sowie darüber hinaus hohe Speziesbeiträge von Oxalat als Markerverbindung für sekundäres organisches Aerosol. Sek. I (AN) zeigt hohe Quellbeiträge insbesondere in den kühlen und kalten Jahreszeiten, wohingegen die Beiträge im Sommer nahe 0 sind, was an der Thermolabilität von Ammoniumnitrat und seiner Verflüchtigung bei hohen Temperaturen als Ammonium und Salpetersäure liegt. Die Quellbeiträge von Sek. II (AS + OC) sind tendenziell im Sommer höher als im Winter, was auf die Bedeutung der Photochemie und Strahlungsintensität für die sekundäre Bildung hindeutet. Im Winter steigen die Quellbeiträge insbesondere bei Wetterlagen mit östlicher Anströmung kontinentaler Luftmassen, die aufgrund höherer Emissionen in Osteuropa i.d.R. auch höhere Konzentrationen sekundärer Partikelinhaltsstoffe aufweisen (VAN PINXTEREN et al. 2017).

Die weiteren 2 identifizierten Quellen repräsentieren Emissionen aus Verbrennungsprozessen. Sie bestehen zu hohem Anteil aus organischem und elementarem Kohlenstoff und zeigen unterschiedlich hoch ausgeprägte Speziesbeiträge der PAK sowie der Anhydromonosaccharide. Sie unterscheiden sich in den Massebeiträgen der Ionen Nitrat und Sulfat, sowie in den zeitlichen Verläufen ihrer Quellbeiträge. Einer der Faktoren enthält v. a. Nitrat, zeigt den höheren Speziesbeitrag von Levoglucosan und in den kühlen und kalten Jahreszeiten kontinuierlich erhöhte Quellbeiträge und wird daher überwiegend der **Verbrennung von Biomasse (BM)** zugeordnet. Der andere Faktor enthält v. a. Sulfat, die höheren Speziesbeiträge der PAK zeigen zwischen Perioden mit erhöhten Quellbeiträgen regelmäßig auch Perioden mit Quellbeiträgen nahe 0. Da die Perioden mit erhöhten Quellbeiträgen oft zeitgleich mit östlicher Luftmassenanstömung (nicht gezeigt) liegen und der Sulfatanteil im Faktor auf die Verbrennung schwefelhaltiger Brennstoffe hinweist, wird dieser Faktor der **Verbrennung von Kohle**, aufgrund des Beitrages von Levoglucosan vermutlich insbesondere von Braunkohle zugeordnet. Grundsätzlich können diesen beiden Faktoren auch Beiträge anderer, vom Modell nicht weiter aufgelöster, Verbrennungsquellen zugeordnet sein, wie z. B. KfZ-Emissionen oder industrielle Emissionen, die allerdings aufgrund der Lage der Stationen im ländlichen Hintergrund vernachlässigbar erscheinen.

Die PMF- berechneten Quellbeiträge können in gleicher Weise wie die Konzentrationen der Inhaltsstoffe für die Berechnung des Inkrements Ort minus Station verwendet werden, um lokale Zusatzbeiträge im Ort Melpitz zu quantifizieren. In Abbildung 85 sind die jahreszeitlich unterschiedenen Wochengänge der Inkremente und in Abbildung 86 die Monatsmittel im Jahrgang gezeigt.

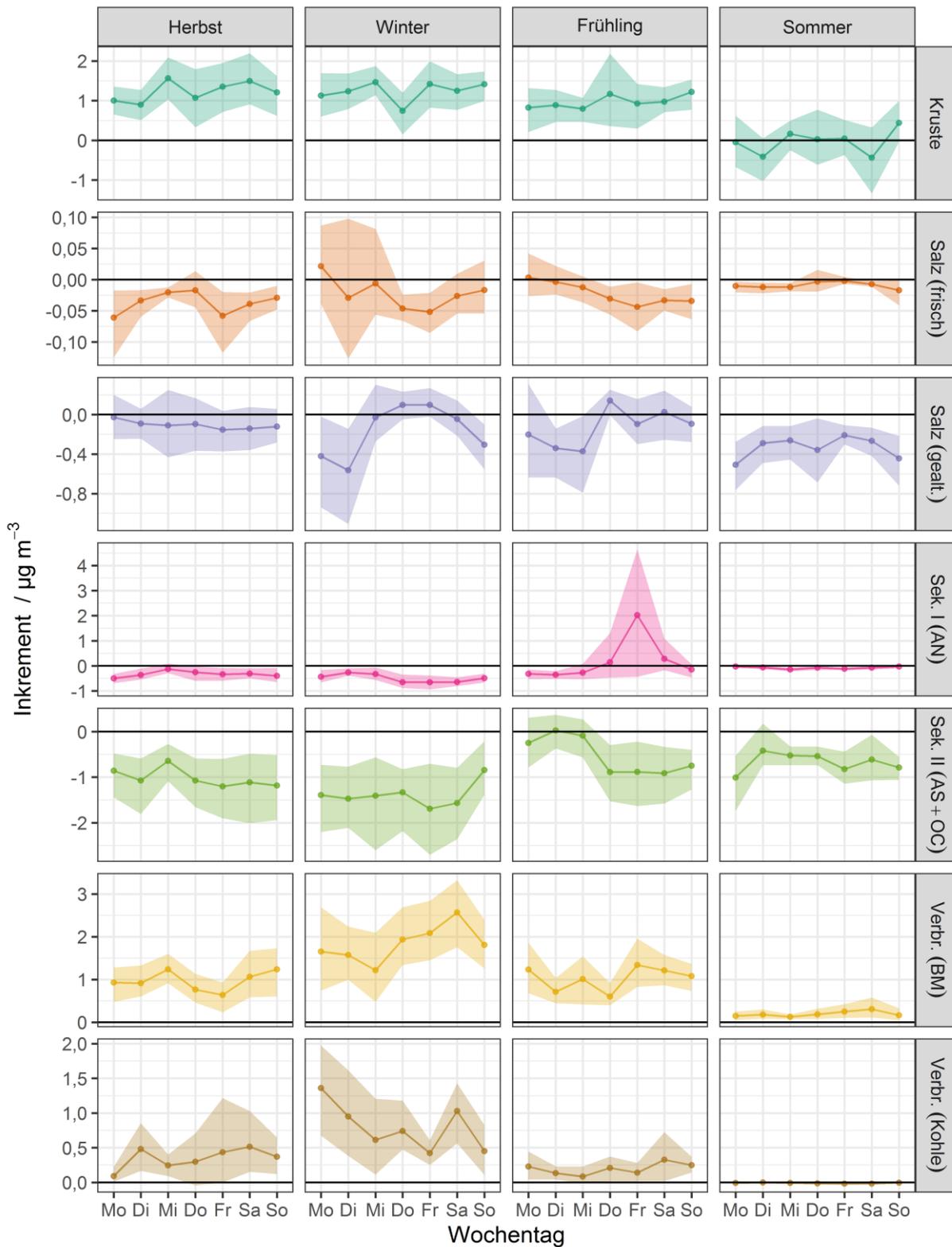


Abbildung 85: Inkrement der PMF- modellierten Quellbeiträge für den jeweiligen Faktor, dargestellt als Wochengang (Tagesmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall) in Abhängigkeit von der Jahreszeit

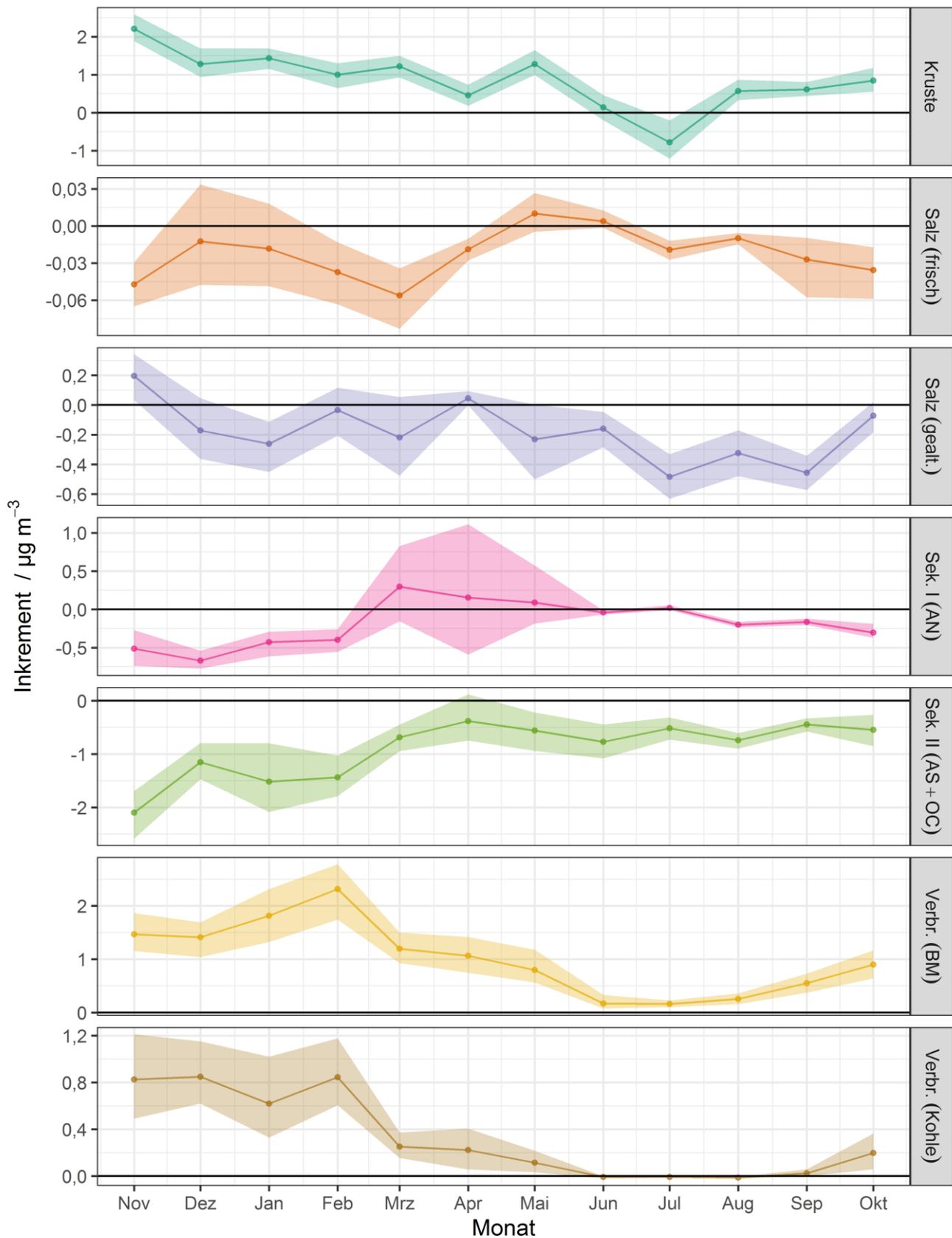


Abbildung 86: Inkrement der PMF- modellierten Konzentrationen für den jeweiligen Faktor, dargestellt als Jahresgang (Monatsmittelwerte + 95 % Konfidenzintervall)

Für die beiden Seesalz-Quellen zeigen sich sowohl im Wochen-, als auch im Jahresgang im Wesentlichen Schwankungen des Inkrements um 0, was aufgrund fehlender lokaler Quellen plausibel ist. Einzig im Sommer ist das Inkrement des gealterten Seesalzes leicht negativ, wobei ein Grund für an der Station Melpitz erhöhte Konzentrationen gealterten Seesalzes nicht direkt offensichtlich ist. Die Inkremente für Krustenmaterial liegen mit Ausnahme der Monate Juni und Juli bei ca. + 0,5 bis 2 $\mu\text{g m}^{-3}$, was durch Staubaufwirbelung durch menschliche Aktivitäten, insbesondere geringfügigen Verkehr auf nahe dem Messcontainer gelegenen Straßen begründet sein könnte. Variationen des Inkrements im Wochengang sind für die 3 natürlichen Quellkategorien nicht zu erwarten und auch nicht zu erkennen.

Ähnliches gilt für die beiden sekundären Quellkategorien, die ebenfalls eher regionale und stark durch Transport geprägte Quellen darstellen. Allerdings zeigen sowohl Sek. I (AN), als auch Sek. II (AS+OC) v.a. in den Monaten November - Februar teilweise deutlich negative Inkremente bis - 2 $\mu\text{g m}^{-3}$, also entsprechend höhere Konzentrationen an der Station als im Ort. Ähnlich wie beim gealterten Seesalz sind auch hierfür plausible Ursachen nicht direkt zu finden, zumal die oben diskutierten Inkremente von Ammonium, Nitrat und Sulfat diesen Befund nicht offensichtlich zeigen. Wahrscheinlich spiegeln sich hierin Unsicherheiten der PMF-Modellierung in der Trennschärfe zwischen einzelnen Quellkategorien bzw. auch der zeitlichen Zuordnung der Beiträge zu den einzelnen Quellen an den beiden sehr nahe gelegenen Messstationen wider.

Die Inkremente der beiden Verbrennungsquellen zeigen im Jahresgang einen sehr ähnlichen Verlauf mit höchsten Werten in den Monaten November - Februar bei ca. + 0,8 $\mu\text{g m}^{-3}$ für Verbrennung (Kohle) und ca. + 1,5 bis + 2,4 $\mu\text{g m}^{-3}$ für Verbrennung (Biomasse). Über die Monate März – Mai nimmt das Inkrement ab und liegt für Verbrennung (BM) im Sommer bei nur noch ca. 0,2 $\mu\text{g m}^{-3}$ und für Verbrennung (Kohle) aufgrund fehlender Quellbeiträge bei 0. Im Wochengang ist für die Biomasseverbrennung v.a. im Winter ähnlich wie zuvor bei Inhaltsstoffen in Holzverbrennungsrauch am Samstag ein Maximum zu erkennen, das allerdings bei Berücksichtigung des Konfidenzintervalls nicht allzu weit von den Werten der übrigen Wochentage entfernt liegt.

Aus den PMF-berechneten Quellbeiträgen kann die Bedeutung der einzelnen Quellen für die PM10-Belastung in Melpitz abgeleitet werden. Hierfür ist in Abbildung 87 der mittlere relative Anteil der Quellen an der modellierten PM10-Konzentration jahreszeitlich unterschieden für die beiden Stationen dargestellt.

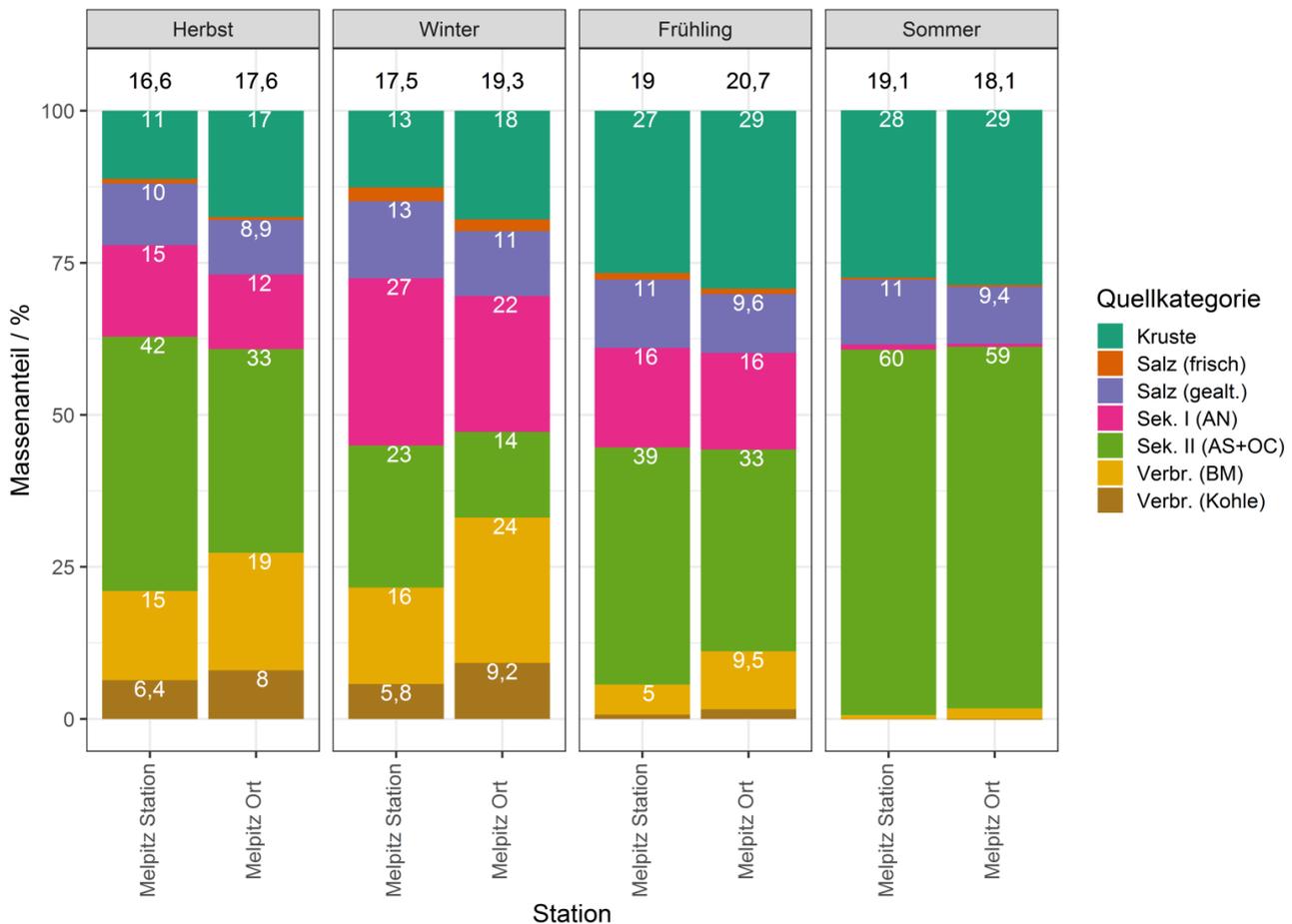


Abbildung 87: Relative Anteile der mittels PMF identifizierten Quellkategorien an der modellierten mittleren PM10- Massenkonzentration für Melpitz Ort und Station; schwarze Zahlen über den Balken geben die modellierte Gesamtkonzentration in $\mu\text{g m}^{-3}$ wieder, weiße Zahlen in den Balken die jeweiligen Anteile der Quellen in Prozent

Für den Winter ergibt sich an der Forschungsstation Melpitz ein Bild, das ähnlich zu früheren Untersuchungen in Melpitz und an weiteren Stationen ist (VAN PINXTEREN et al. 2017; VAN PINXTEREN et al. 2019) und als typisch für den ländlichen Hintergrund in Ostdeutschland angesehen werden kann: Die mittlere PM10- Konzentration liegt bei etwa $20 \mu\text{g m}^{-3}$ (etwas weniger im Winter dieses Projektes), die zu ca. 20 % aus Verbrennungsemissionen stammen, zu ca. 50 % aus den sekundären Quellen I und II, also Ammoniumnitrat, Ammoniumsulfat und sekundäres organisches Material, zu ca. 15 % aus frischen und v. a. chemisch gealterten Emissionen von Seesalz und zu weiteren ca. 15 % aus aufgewirbeltem Material der Erdkruste.

Der Biomasseverbrennung werden im Winter an der Forschungsstation 16 % der modellierten PM10- Konzentration zugeordnet, was etwas höher als der Beitrag von knapp 10 % ist, der sich wie in Kapitel 4.4.1 beschrieben aus dem Makrotraceransatz ergibt, aber immer noch gut in den in Kapitel 2 beschriebenen typischen Bereich für diese Quellkategorie fällt. In Melpitz Ort nimmt dieser Anteil um 8 Prozentpunkte auf 24 % zu, was ähnlich zur Steigerung um 6 Prozentpunkte aus dem Makrotraceransatz ist.

Die mittleren absoluten Quellbeiträge in $\mu\text{g m}^{-3}$, auf denen diese Anteile basieren, sind in Abbildung 88 gezeigt.

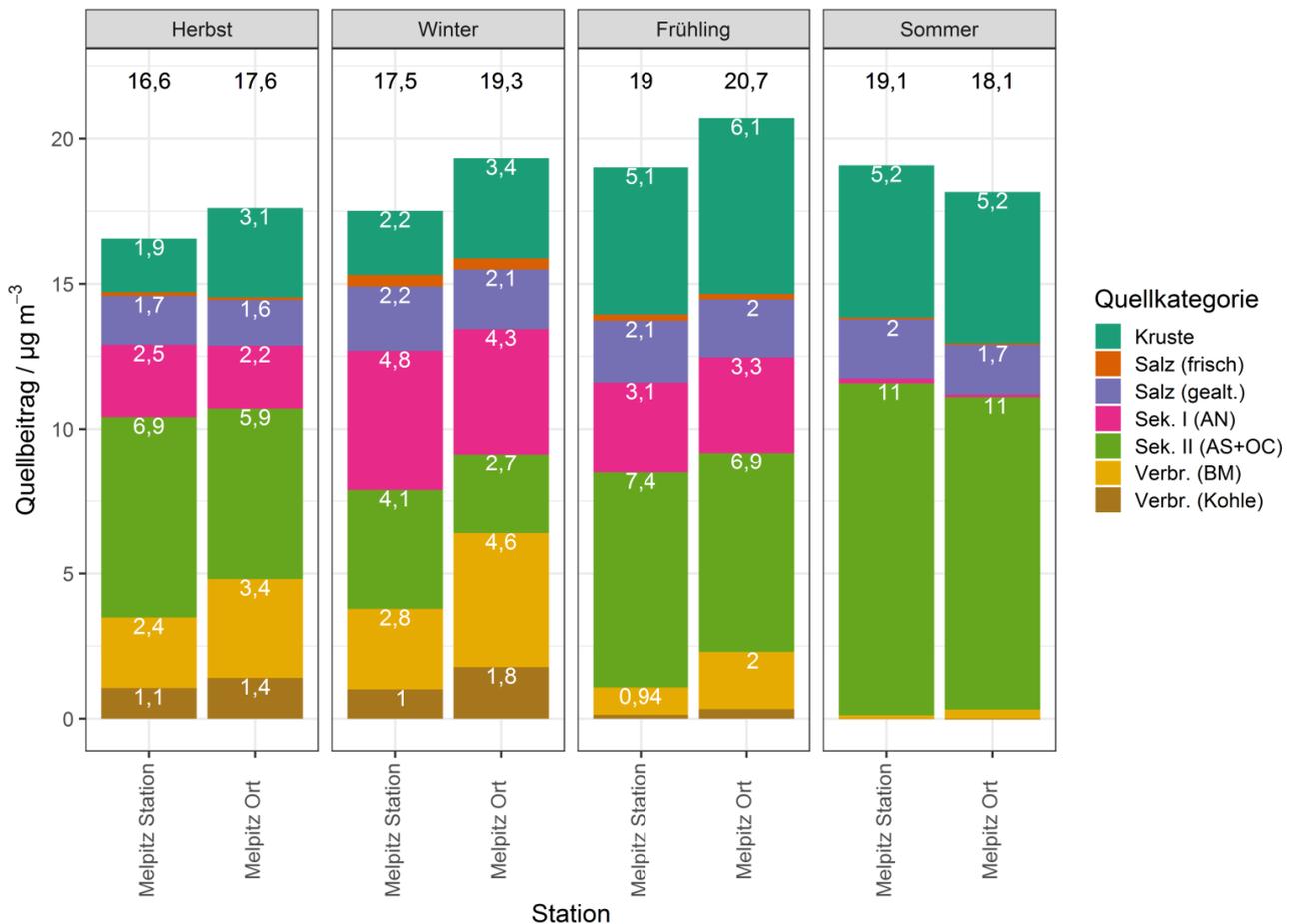


Abbildung 88: Quellbeiträge der mittels PMF identifizierten Quellkategorien für Melpitz Ort und Station, schwarze Zahlen über den Balken geben die gesamte PMF-modellierte PM10-Konzentration wieder, weiße Zahlen in den Balkenabschnitten die jeweiligen Beiträge der einzelnen Quellen, wobei Werte < 0,5 µg m⁻³ nicht dargestellt sind

Hieraus ist ersichtlich, dass die Zusatzbelastung aus der Verbrennung von Biomasse im Ort Melpitz im Winter des Untersuchungszeitraumes 1,8 µg m⁻³ betrug. Dieser Wert ist ebenfalls etwas höher als der über den Makrotraceransatz abgeschätzte Wert von 1,0 µg m⁻³. Da allerdings auch die mittels PMF bestimmte Hintergrundkonzentration von Biomasseverbrennungs-PM an der Forschungsstation höher ist als die über den Makrotraceransatz bestimmte, ergibt sich eine ähnlich starke Zunahme um 64 % über PMF im Vergleich zur Zunahme um 56 % über Makrotraceransatz.

Die Ursachen für die Abweichungen der absoluten Quellbeiträge zwischen den beiden Ansätzen liegen in den nicht unerheblichen Unsicherheiten der beiden Methoden begründet.

Der Makrotraceransatz basiert auf einem Faktor, der je nach Brennstoff, Brandbedingungen und Alterungszustand des Aerosols sehr variabel sein kann und für Immissionsmessungen nur über einen angenäherten mittleren Wert beschrieben werden kann. Zudem kann der verwendete Makrotracer Levoglucosan auch aus der Verbrennung von Braunkohle emittiert werden, so dass er in Gebieten, in denen die Braunkohleverbrennung eine Rolle spielt nicht vollständig spezifisch für die Verbrennung von Biomasse ist.

Kohle als Brennstoff ist im Ort Melpitz durchaus relevant und wird nach den Ergebnissen der Bürgerbefragung (s. Kapitel 4.5) in 7 % der Zentralheizungen und 23 % der Einzelfeuerstätten als Brennstoff verwendet. Hierdurch könnte sich auch die mittels PMF ermittelte Zusatzbelastung von 0,8 µg m⁻³ im Winter im Ort Melpitz erklären.

Darüber hinaus wird im ländlichen ostdeutschen Raum eine Hintergrundbelastung aus Kohleverbrennungsemissionen beobachtet, die im aktuellen Projekt bei $1 \mu\text{g m}^{-3}$ bzw. 6 % der PM10-Konzentration liegt und zumindest zu einem hohen Anteil aus grenzüberschreitendem Eintrag aus osteuropäischen Nachbarländern stammt, da sie v. a. bei Wetterlagen mit östlicher Anströmung beobachtet wird.

Die PMF als statistisches Modell ist ebenfalls mit Unsicherheiten behaftet. Wie schon angedeutet, ist eine hohe Trennschärfe zwischen verschiedenen Quellen nicht immer gegeben. Insbesondere bei Quellen mit ähnlichem Quellprofil, für die zudem nur wenige spezifische Tracer vorliegen, kann es hier zu Ungenauigkeiten in der Massezuordnung kommen. Dies kann z. B. für die Verbrennungsquellen und die sekundären Quellen der Fall sein, da partikuläres Nitrat aus der Quelle Sekundär I und Sulfat aus der Quelle Sekundär II ihren Ursprung in Emissionen von NO_x und SO_2 haben, die überwiegend aus Verbrennungsprozessen stammen.

Eine exakte Übereinstimmung der Holzverbrennungsbeiträge aus den beiden Quellzuordnungsansätzen ist aufgrund dieser methodischen Unsicherheiten nicht zu erwarten. Dennoch zeichnet sich in der Gesamtschau bezüglich der Zusatzbelastung aus Holzverbrennung ein konsistentes Bild ab: Beide Ansätze schätzen eine deutliche Zusatzbelastung von ca. $1 - 2 \mu\text{g m}^{-3}$ im Winter ab, die einer Zunahme des Holzverbrennungs-PM im ländlichen Hintergrund um ca. 60 % entspricht. In Anbetracht der geringen Einwohnerzahl der Ortschaft und des vergleichsweise milden Winters 2018/19 ist dies ein nicht unerheblicher Wert. Zusammen mit den Emissionen vieler weiterer ähnlicher Dörfer und der Städte in der Region erscheint es plausibel, dass hierdurch die typischen ca. 20 % der PM10- Belastung aus Verbrennungsemissionen im Winter zumindest zu einem bedeutenden Anteil mit verursacht werden.

4.5 Bürgerbefragung

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsvorhaben wurden am 08.01.2019 insgesamt 63 Fragebögen (bezogen auf 60 Grundstücke) zum Thema Heizen mit Holz im Ort Melpitz zugestellt. Abbildung 89 zeigt den Inhalt des verteilten Fragebogens.

Fragebogen zum Heizen mit Holz für das Forschungsprojekt Melpitz

- 1. Angaben zum Gebäude** Einfamilienhaus Mehrfamilienhaus
Nutzung: Wohnen Gewerbe Wohnen und Gewerbe

2. Angaben zur Heizung

Art:	<input type="checkbox"/> Zentralheizung ggf. Einzelfeuerstätten			
	<input type="checkbox"/> Kachelofen	<input type="checkbox"/> Kamin	<input type="checkbox"/> Kaminofen	<input type="checkbox"/> Pelletofen
Leistung: ¹	kWh	kWh	kWh	kWh
<small>1 Nennleistung, bitte dem Typenschild am Kessel/Ofen entnehmen</small>				
Brennstoff:	<input type="checkbox"/> Holzpellets			<input type="checkbox"/> Holzpellets handbeschickt
	<input type="checkbox"/> Holzbriketts	<input type="checkbox"/> Holzbriketts	<input type="checkbox"/> Holzbriketts	<input type="checkbox"/> Holzpellets automatisch
	<input type="checkbox"/> Scheitholz	<input type="checkbox"/> Scheitholz	<input type="checkbox"/> Scheitholz	
	<input type="checkbox"/> Kohle	<input type="checkbox"/> Kohle	<input type="checkbox"/> Kohle	
	<input type="checkbox"/> Heizöl			
	<input type="checkbox"/> Gas			
	<input type="checkbox"/> Flüssiggas			
	<input type="checkbox"/> Wärmepumpe			
	<input type="checkbox"/> Nachtspeicherofen			
	<input type="checkbox"/> Solar als Heizungsunterstützung			

3. Nutzungsdauer

Bitte zur jeweiligen Heizung ankreuzen

ganzjährig				
nur in der Heizperiode				
oft täglich abends				
oft am Wochenende abends				
selten				
Platz für Bemerkung				

- 4. Warmwassererzeugung über** Zentralheizung Solar Elektrisch Wärmepumpe

5. Brennstoffverbrauch pro Jahr

(grobe Angabe für Menge und Brennstoffart)

Beispiel: 1500 l Heizöl und 5 Raummeter Scheitholz

Vielen Dank für Ihre Mitarbeit!

Abbildung 89: Fragebogen zum Heizen mit Holz für das Forschungsprojekt Melpitz

Etwa die Hälfte aller Fragebögen (29 von 63) der anonymen Bürgerbefragung wurden an das LfULG zurückgesendet und konnten ausgewertet werden. Die detaillierte Auswertung dieser Bürgerbefragung erfolgte durch das LfULG. Nachfolgend werden einige Ergebnisse daraus exemplarisch vorgestellt.

Die Zentralheizungen sind die Hauptquelle der Wärmeerzeugung in Melpitz, mit einem Anteil von 88 % an der Gesamt- Nennleistung der Feuerungsanlagen. Dabei besitzen die Zentralheizungen eine durchschnittliche Nennleistung von 22 kW. Der Anteil der Einzelfeuerstätten an der Gesamt- Nennleistung beträgt lediglich 12 %. Im modernen Ort kommen 14 % dieser Anlagen ganz ohne lokale Emissionen aus. Es sind Wärmepumpen, Nachtspeicheröfen und Solar- Anlagen mit Heizungsunterstützung. Zum größten Teil werden jedoch Brennstoffe verwendet. Etwa die Hälfte der Anlagen nutzen Flüssiggas (11 %) und Heizöl (35 %). Die Festbrennstoffe Holz und Kohle kommen in 40 % der Feuerungsanlagen zum Einsatz. Holz wird in 33 % und Kohle in 7 % der Zentralheizungen in Melpitz verbrannt (siehe Abbildung 90 und Abbildung 91 a)).

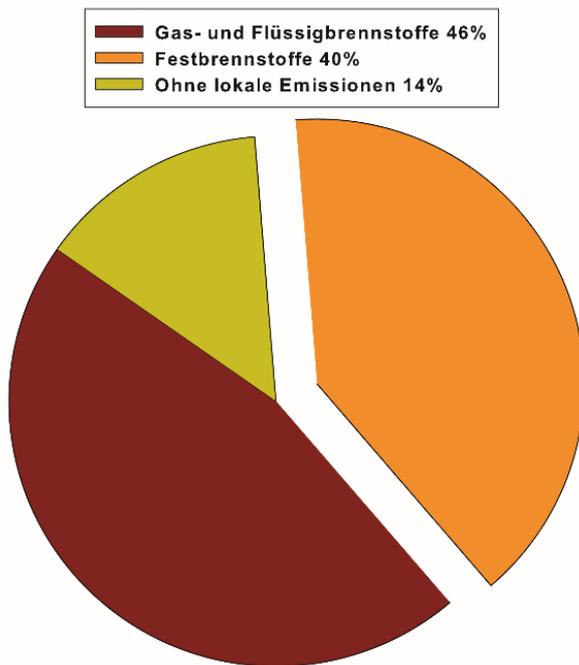


Abbildung 90: Brennstoffgruppen der Zentralheizungen in Melpitz

Zentralheizungen werden meist intensiv und oft zeitlich durchgängig betrieben. Es sind in Melpitz 53 % der Anlagen, die ganzjährig und 44 % der Anlagen, die nur in der Heizperiode genutzt werden.

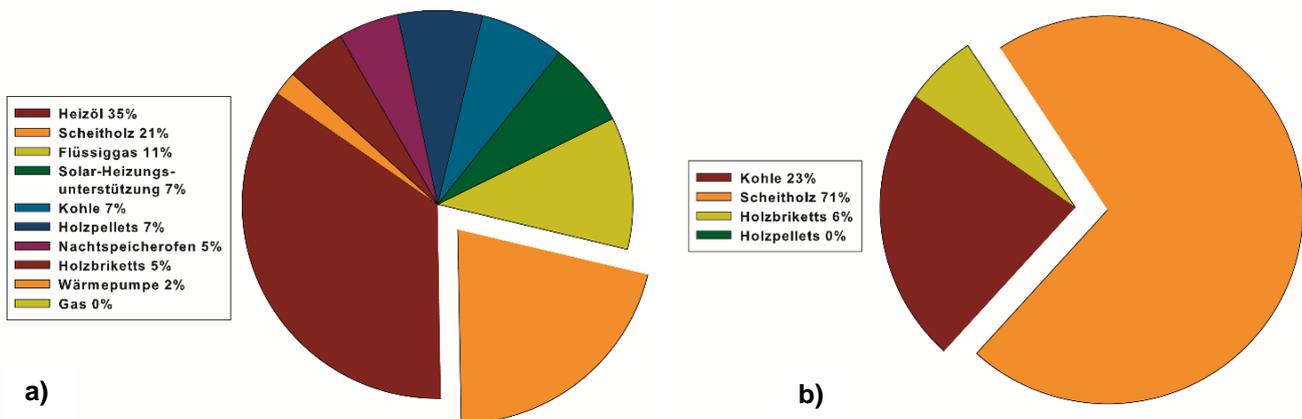


Abbildung 91: Brennstoffe der a) Zentralheizungen und b) Einzelfeuerstätten in Melpitz

Abbildung 91 a) zeigt den prozentualen Anteil der Brennstoffe für die ermittelten Zentralheizungen. Kohle wird in 7 % der Anlagen verbrannt. Scheitholz kommt in 21 %, Holzbricketts in 5 % und Holzpellets in 7 % der Anlagen zum Einsatz. Insgesamt wird bei 9 gezählten Zentralheizungen ein Durchschnittsverbrauch von etwa 10 Rm Scheitholz pro Zentralheizung ermittelt. Das Heizöl ist der Hauptbrennstoff in Melpitz. Es wird in 35 % der Anlagen verwendet. Weiterhin wird Flüssiggas in 12 % der Anlagen genutzt. Für Gas existieren keine Anlagen in Melpitz. Weitere Zentralheizungen sind Wärmepumpen (2 %), Nachtspeicheröfen (5 %) und Solaranlagen mit Heizungsunterstützung (7 %).

Einzelfeuerstätten werden meist mit mehreren Brennstoffen betrieben, wie z. B. mit Scheitholz, Holzbrickett und Kohle.

In der Mehrheit der Einzelfeuerstätten wird Scheitholz (71 %) verbrannt, wie Abbildung 91 b) zeigt. Holzbriketts werden mit 6 % an wenigen Einzelfeuerstätten verwendet. Holz wird damit zu 77 % als Brennstoff der Einzelfeuerstätten eingesetzt. In 23 % der Einzelfeuerstätten wird zusätzlich Kohle verbrannt. In den Einzelfeuerstätten werden damit ausschließlich Festbrennstoffe genutzt. Einzelfeuerstätten werden im Gegensatz zu den Zentralheizungen meist nur zeitweise betrieben. Ein Drittel der Feuerstätten wird selten genutzt und 42 % wird oft am Wochenende abends betrieben. 25 % der Einzelfeuerstätten werden nur in der Heizperiode genutzt.

4.6 Abschätzung von Emissionsfaktoren (EFs) aus Immissionsmessungen

Die aus der Bürgerbefragung zum tatsächlichen Heizverhalten und Brennstoffverbrauch im Ort Melpitz gesammelten Informationen werden zum Teil für die nachfolgend durchgeführte Abschätzungsmethode von Emissionsfaktoren (EFs) aus den Immissionsmessungen, auf Grundlage der Levoglucosan-Tracermethode, eingesetzt. Zunächst werden dazu Literaturwerte für den Emissionsfaktor von Levoglucosan mit der ermittelten Zusatzbelastung aus den Immissionsmessungen kombiniert und das meteorologische Verdünnungsverhältnis berechnet. Dieses Verdünnungsverhältnis wird als konstant für alle Messparameter angesehen, mit deren Zusatzbelastungen multipliziert und durch die geschätzte Brennstoffmenge geteilt, um Emissionsfaktoren zu erhalten (siehe Gleichung 1 und 2). Unsicherheiten bei dieser Methode liegen v.a. in den Literaturwerten der Emissionsfaktoren von Levoglucosan, die je nach Brennstoff und Brandbedingungen sehr unterschiedlich sein können. Im vorliegenden Abschlussbericht wird als Emissionsfaktor für Levoglucosan 1000 mg kg^{-1} verwendet, ein häufig eingesetzter Wert der auch in guter Übereinstimmung mit eigenen Studien zur Biomasseverbrennung ist (BIRMILI et al. 2008; IINUMA et al. 2007). Dennoch wurden zur besseren Einordnung ergänzend Emissionsfaktoren mit einer Abweichung von $\pm 20 \%$ berechnet.

$$\frac{\text{Zusatzbelastung (Levoglucosan)}}{\text{Emissionsdichte (Levoglucosan)}} = \frac{\text{Zusatzbelastung (Messparameter)}}{\text{Emissionsdichte (Messparameter)}} = \textit{konstant} \quad (\text{Gleichung 1})$$

$$\textit{Emissionsdichte (ED)} = \textit{Emissionsfaktor(EF)} \times \textit{Brennstoffverbrauch} \quad (\text{Gleichung 2})$$

Die für die Berechnung der Emissionsfaktoren eingesetzten Werte sind wie folgt:

- EF (Levoglucosan) = 1000 mg kg^{-1} , zusätzlich $\pm 20 \%$ (aus Literaturdaten)
- Zusatzbelastung Levoglucosan (Winter) = $0,09 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$ (aus Immissionsmessungen)
- Brennstoffverbrauch = $9 \text{ kg Scheitholz pro Zentralheizung und Tag in Melpitz}$ (aus Bürgerbefragung)

Die auf diese Weise abgeschätzten Emissionsfaktoren für alle Messparameter, die im Projektzeitraum „Winter“ ein signifikant positives Inkrement aufwiesen, sind in Tabelle 8 zusammengestellt.

Tabelle 8: Emissionsfaktoren, abgeschätzt aus Immissionsmessdaten für den Zeitraum Winter und vergleich mit Literaturdaten

Messparameter	Zusatzbelastung Winter / $\mu\text{g m}^{-3}$	EF / mg kg^{-1}	-20% EF / mg kg^{-1}	+20% EF / mg kg^{-1}	Referenzwerte / mg kg^{-1}
NO	0,133	1.478	1.182	1.773	1.700-3.300 ^g (NO _x)
PM10	1,213	13.478	10.782	16.173	100-36.000 ^{a-e, g}
OC	0,656	7.289	5.831	8.747	1.495-46.908 ^{b-d}
EC	0,323	3.589	2.871	4.307	40-3.568 ^{b-d}
Kalium	0,037	411	329	493	2,3-96 ^{a, b, d}
Calcium	0,046	511	409	613	0,15-27,8 ^{b, d}
Mannosan	0,019	211	169	253	12,8-1.527 ^{c, d, f} 130-320 ^b
Galactosan	0,007	78	62	93	8,9-789 ^{c, d, f} 70-240 ^b
BaP	4,0E-04	4	4	5	0,11-16 ^{a, b, g} Mittelwert 3,6 ^a
BaA	3,2E-04	4	3	4	0,1-15,8 ^{a, b} Mittelwert 3,5 ^a
BjF	2,8E-04	3	2	4	-
BkF	2,7E-04	3	2	4	0,03-4,7 ^{a, b, g}
BbF	4,7E-04	5	4	6	0,1-26,0 ^{a, b, g} Mittelwert 6,1 ^a
DBahA	4,9E-05	0,4	0,5	0,7	0,01-1,8 ^{a, b, h}
IcpP	3,1E-04	3	3	4	0,05-13,0 ^{a, b, g} Mittelwert 3,6 ^a
n- Alkane (Mittelwert C20-C34)	3,9(±2,1)E-04	4,4(±2,4)	3,5(±1,9)	5,2(±2,8)	0,008-1,6 ^b

^a (HEDBERG et al. 2002); ^b (IINUMA et al. 2007); ^c (GONÇALVES et al. 2012); ^d (CALVO et al. 2015); ^e (FINE et al. 2002); ^f (NOLTE et al. 2001); ^g (OZGEN et al. 2014); ^h (PETTERSSON et al. 2011)

In Tabelle 8 sind die aus den Immissionsmessungen im Winter abgeschätzten EF ±20 % Abweichung Referenzwerten aus der Literatur vergleichend gegenübergestellt. Der Einfluss der Verbrennungsbedingungen und des Brennstoffes auf die Verbrennungsemissionen führen dazu, dass die tabellierten Referenz- EF häufig einen

Bereich über bis zu drei Größenordnungen abdecken. Aus diesem Grund wurden die EF aus der Levoglucosan-Tracermethode jeweils unter Angabe einer Abweichung von $\pm 20\%$ abgeschätzt. Aus dem Vergleich der Werte in Tabelle 8 zeigt sich, dass die abgeschätzten EF für die typischen Verbrennungsprodukte NO, PM₁₀, OC, EC, Anhydromonosaccharide und die PAK in den referenzierten Bereichen liegen. Im Gegenteil dazu, sind die abgeschätzten EF für die wasserlöslichen anorganischen Ionen Kalium und Calcium und die n-Alkane größer als die in der Literatur diskutierten. Dies ist ein Hinweis darauf, dass diese PM-Inhaltsstoffe aus zusätzlichen Quellen resultieren. Da z. B. kaliumhaltige Minerale häufig in der Natur auftreten, kommen Aufwirbelungsprozesse von Krustenmaterial oder Kohleverbrennung als mögliche Quellen in Frage. Die Aufwirbelung von Krustenmaterial als zusätzliche Quelle erklärt damit übereinstimmend auch die Überschätzung des EF von Calcium. Für die n-Alkane ist Pflanzenwachsabrieb eine mögliche weitere Quelle zur Verbrennung von Biomasse. Zusammenfassend kann anhand der Ergebnisse aus Tabelle 8 geschlussfolgert werden, dass die Levoglucosan-Tracermethode durchaus eine Abschätzung von EF aus Immissionsmessdaten ermöglicht, die Präzision der Daten bzw. ihre Belastbarkeit bei der Bewertung aufgrund der Vielzahl von diskutierten Einflussgrößen und Annahmen aber berücksichtigt werden muss.

4.7 Einordnung in die lange Messreihe Melpitz

An der Melpitzer Forschungsstation des TROPOS werden seit 1992/93 meteorologische Parameter und Spurenstoffe in der Atmosphäre (Spurengase und Partikel) quantifiziert. Es bietet sich damit an, die hier beschriebenen Messungen in den langfristigen Verlauf einzelner Parameter einzuordnen. Damit ist es möglich den einjährigen Untersuchungszeitraum dieses Projektes hinsichtlich der vorherrschenden meteorologischen und chemischen Situation und des Konzentrationstrends einzelner Spezies zu beurteilen.

In den Zeitraum dieses Vorhabens (November 2018 bis Oktober 2019) fällt mit 2018 das wärmste seit 1993 in Melpitz gemessene Jahr, mit einer jährlichen Mitteltemperatur von 11,1°C. Für die seit 1993 vorliegende Temperaturmessreihe kann per einfacher linearer Regression ein mittlerer Temperaturanstieg von 0,7 K per Dekade abgeschätzt werden (vgl. Abbildung 92).

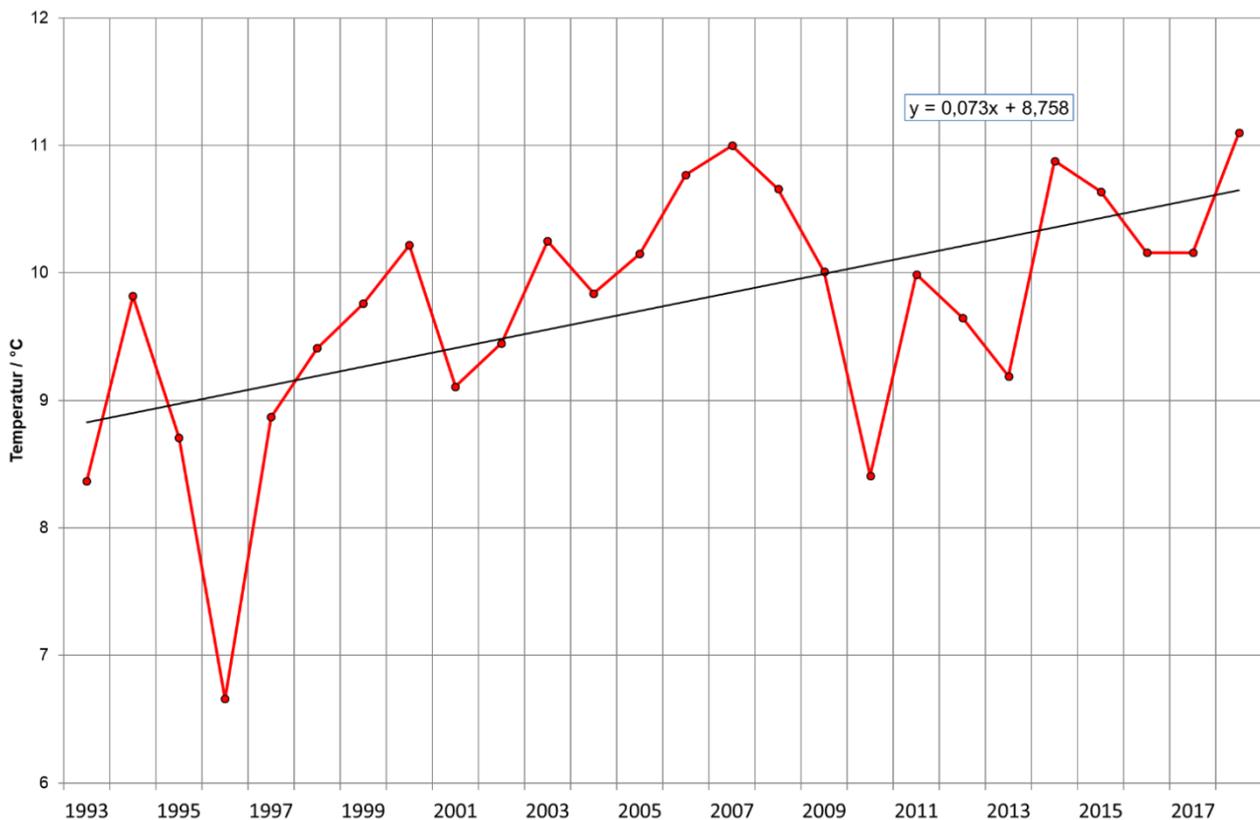


Abbildung 92: Mittlere jährliche Temperatur an der Forschungsstation Melpitz 1993 bis 2018

Die mittleren Temperaturen der 12 Monate Projektzeitraum sind im Verlauf aller monatlichen Mitteltemperaturen für Melpitz von Mai 1992 bis Oktober 2019 in Abbildung 93 dargestellt (Kennzeichnung: blaues Rechteck). Für November 2018 bis Oktober 2019 ergibt sich ein quasi Einjahresmittel (12 Monatsmittel) von 11,0 °C. Damit ist die mittlere Temperatur für den Experimentzeitraum mit der des Jahres 2018 vergleichbar. Betrachtet man die Anzahl der Tage pro Jahr mit einer Temperatur über 30 °C im Halbstundenmittel (Abbildung 94) wird deutlich, dass mit dem mittleren Temperaturanstieg auch die Anzahl solcher extrem warmer Tage pro Jahr im Zeitraum 1992 bis 2019 zugenommen hat. Neben den zwei Jahren 2003 und 2006 mit außergewöhnlich heißen Sommern, wurden auch in den aufeinanderfolgenden Jahren 2018 und 2019 vermehrt Tage (Anzahl > 20) mit über 30 °C aufgezeichnet.

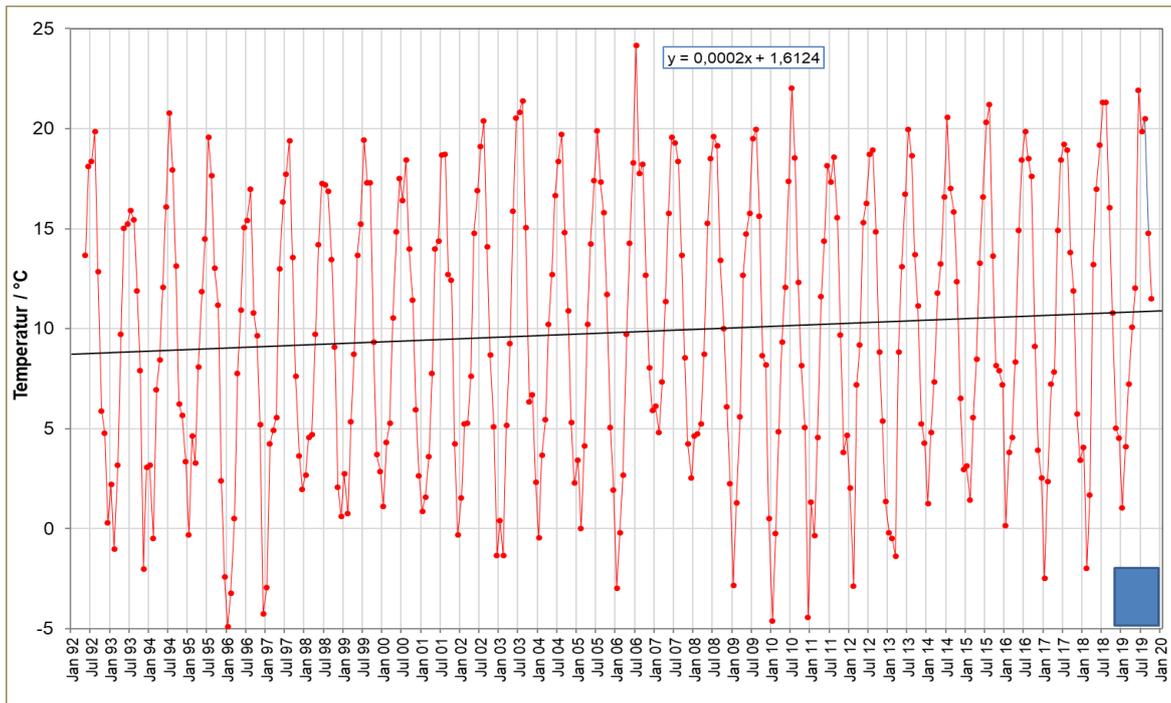


Abbildung 93: Monatliche Mitteltemperaturen Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

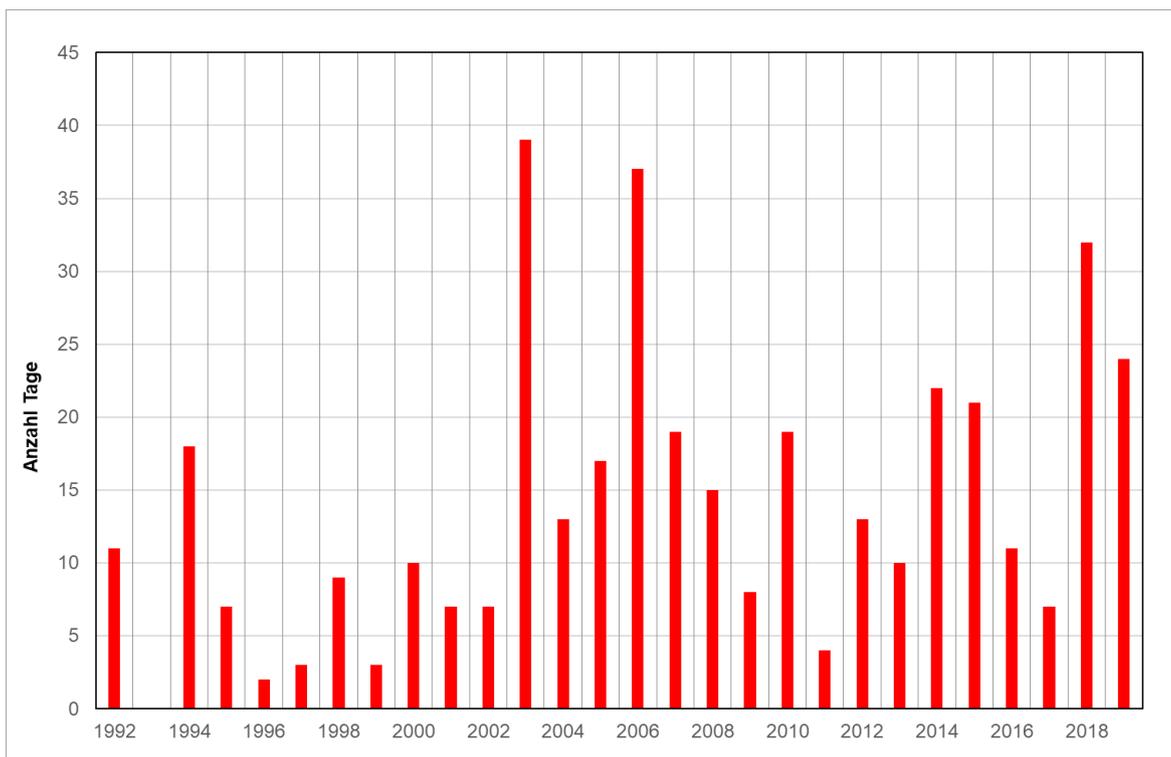


Abbildung 94: Anzahl von Tagen in den Jahren 1992 bis 2019 mit Höchsttemperaturen über 30 °C im Halbstundenmittel

Zur weiteren meteorologischen Charakterisierung des Gesamtzeitraumes sind in Abbildung 95 bis Abbildung 97 die Verläufe der mittleren horizontalen Windgeschwindigkeit, der Globalstrahlung und der relativen Feuchte gezeigt. Ob eine geringfügige Zunahme der horizontalen Windgeschwindigkeit ursächlich auf den Trend zur Erwärmung zurückzuführen ist muss offenbleiben. Die geringfügige Zunahme der Globalstrahlung kann mit einer

abnehmenden Trübung der Atmosphäre bedingt durch weniger direkte Staubemissionen und abnehmende Emissionen anthropogener Vorläufersubstanzen für die Partikelbildung erklärt werden. Die relative Luftfeuchte bleibt im Gesamtzeitraum mit den üblichen Schwankungen im Mittel konstant.

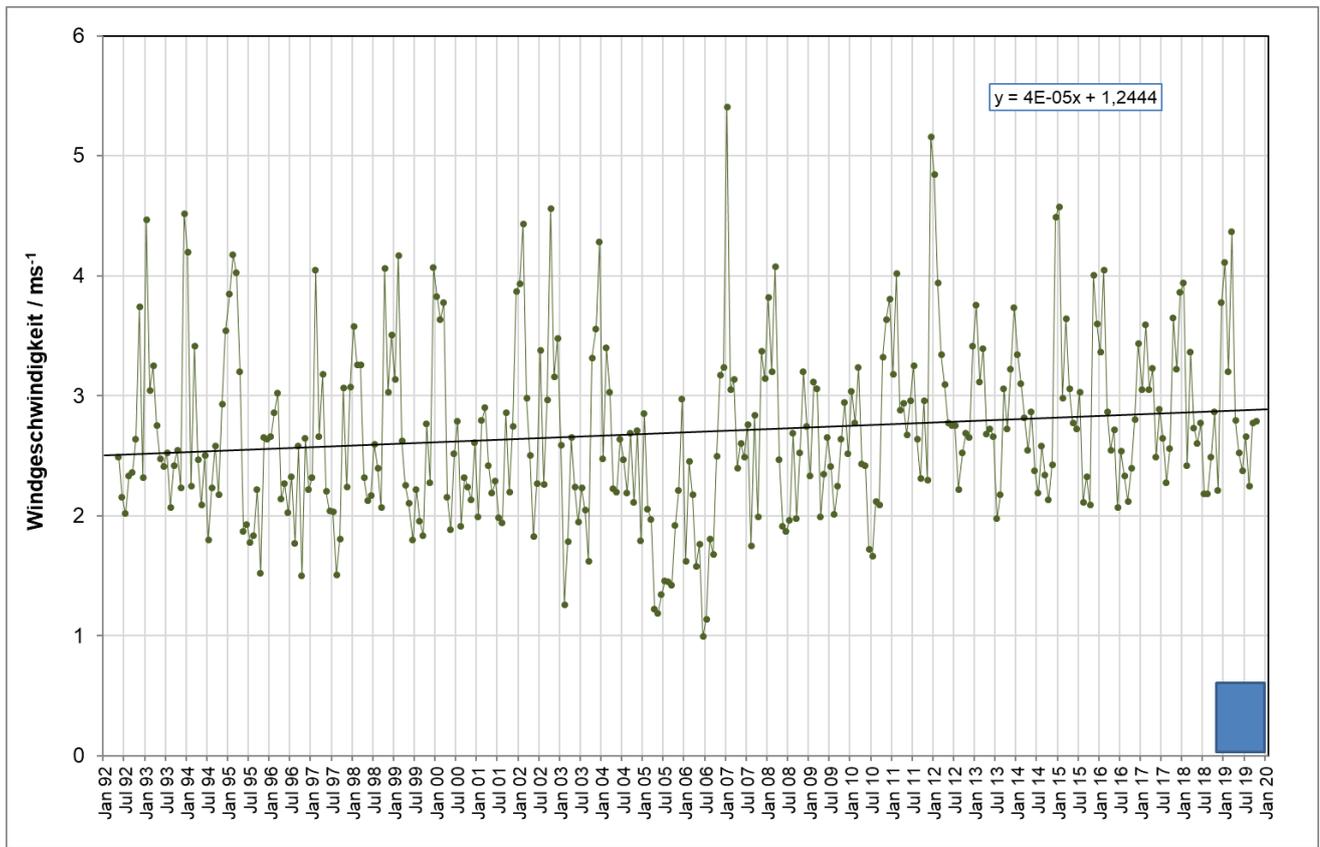


Abbildung 95: Monatliche mittlere Windgeschwindigkeit Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

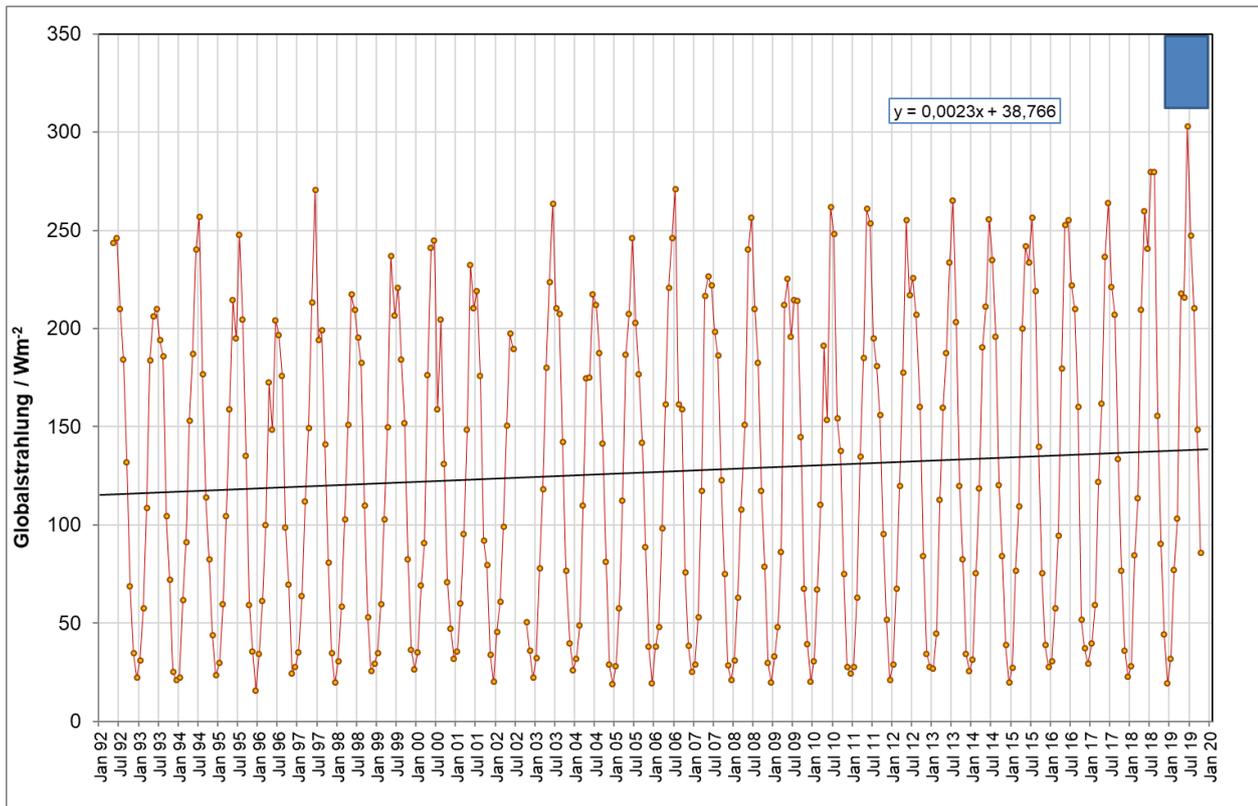


Abbildung 96: Monatliche mittlere Globalstrahlung Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

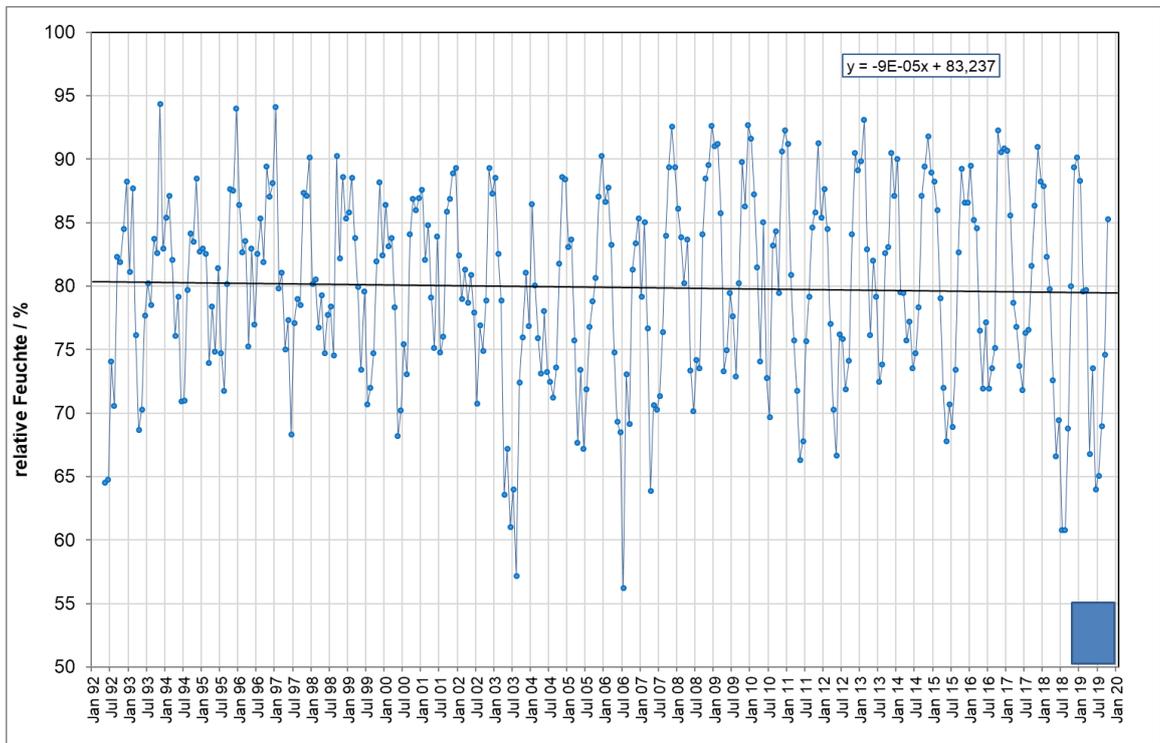


Abbildung 97: Monatliche mittlere relative Feuchte Mai 1992 bis Oktober 2019, Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

Die Niederschlagsmengen der Jahre 2009 bis 2019, gemessen mit einem automatischen Ombrometer, zeigt Abbildung 98.

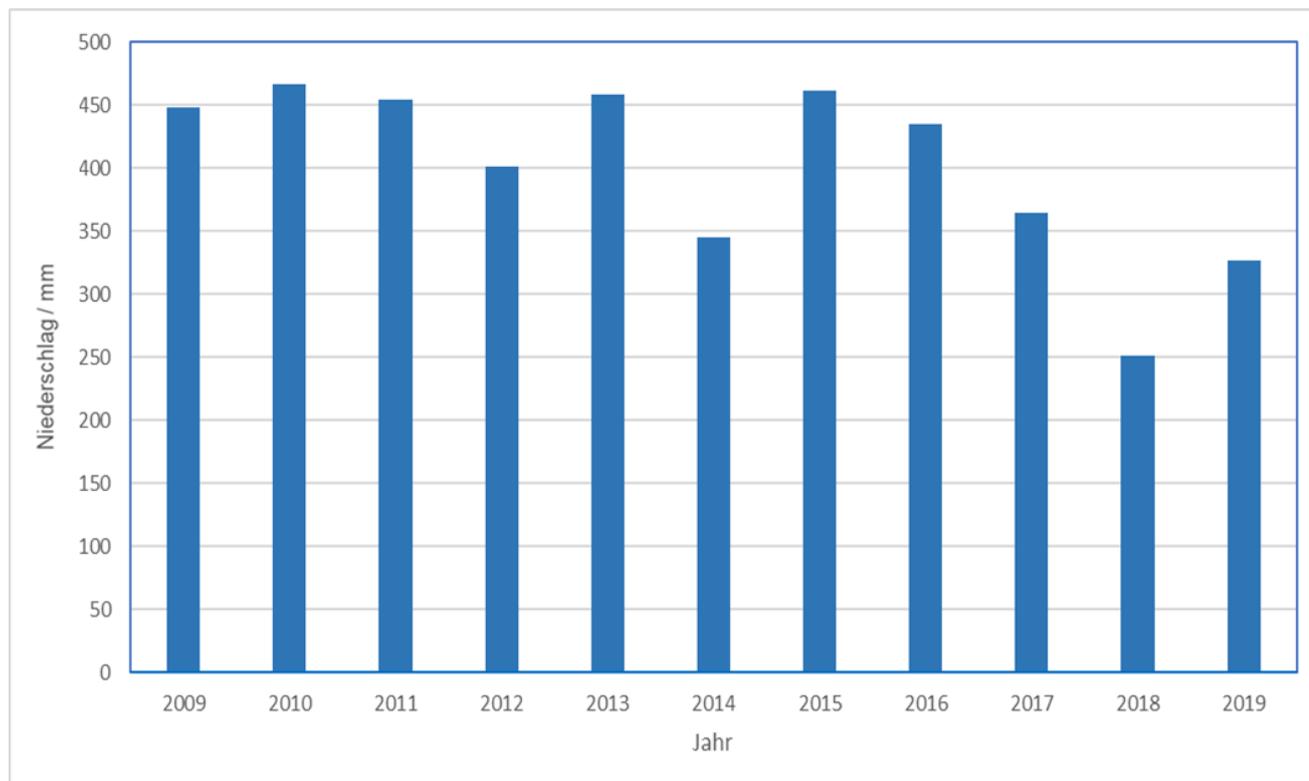


Abbildung 98: Jährliche Niederschlagsmengen von 2009 bis 2019

Es ist für den Zeitraum 2015 bis 2018 ein Rückgang der Niederschlagsmenge von 461 mm auf 251 mm pro Jahr zu erkennen. In den Jahren davor, gab es mit einer Ausnahme im Jahr 2014 (345 mm) Niederschlagsmengen im Bereich von 401 bis 466 mm. Im Jahr 2019 bleibt die Niederschlagsmenge niedrig, scheint aber mit 327 mm einen etwas höheren Wert als 2018.

Betrachtet man den Verlauf der monatlichen Spurengaskonzentrationen in Abbildung 99, so fällt der deutliche Rückgang der SO_2 -Konzentration im Vergleich zum Anfang der Messungen auf. Er ist auf eine stetige Reduzierung der Emission durch Stilllegung und Sanierung von Industrieanlagen zurückzuführen. Ab etwa 2000 gehen die SO_2 -Konzentrationen, dann bereits auf niedrigem Niveau, relativ langsam zurück, diese stammen hauptsächlich aus individueller Kohleverbrennung in Einzelöfen und werden besonders im Winter mit Ostwindlagen von Emittenten, die östlich von Melpitz liegen herantransportiert (Langstreckentransport). Die Stickoxide stammen aus Verbrennungsprozessen in der Umgebung (Heizungsemissionen), sie werden aber auch aus Verkehrsemissionen bis nach Melpitz transportiert. Die Stickoxide, besonders NO_2 , zeigen etwa seit 2013 in Melpitz eine leicht fallende Konzentration mit höheren Werten im Winter (Einfluss Ferntransport, Mischungsschichthöhe und bei niedrigen Temperaturen stärkeren Emissionen). Im Jahr 2019 sanken die NO_2 -Konzentrationen weiter.

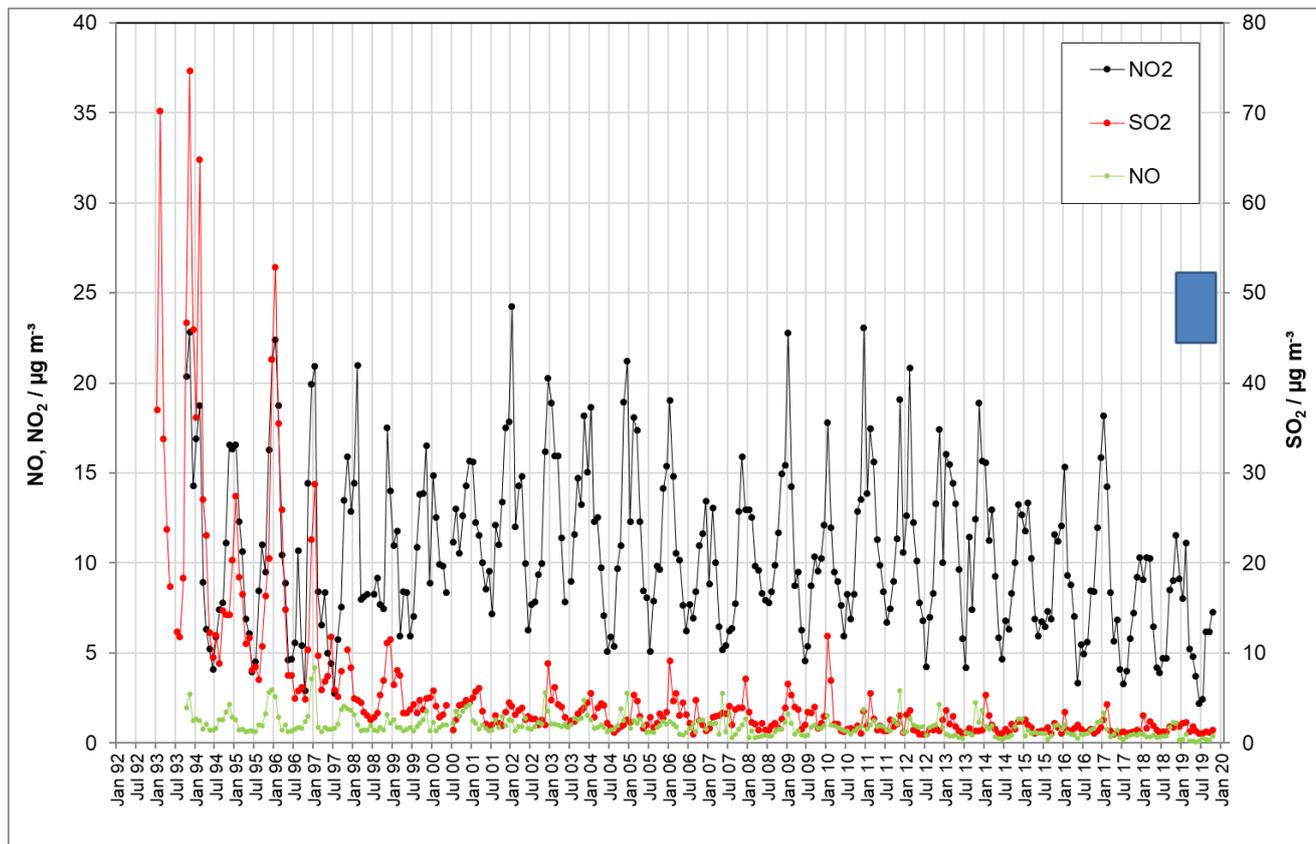


Abbildung 99: Monatsmittel der Konzentration der Stickoxide (NO und NO₂) und von Schwefeldioxid (SO₂) im Zeitraum Januar 1993 bis Oktober 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

Den Verlauf der Jahresmittel der PM₁₀-Konzentration mit Anteilen von ausgewählten wasserlöslichen Ionen und Kohlenstoff (OC und EC) zeigt das Säulendiagramm in Abbildung 100. Bis etwa 2001 fällt die Partikelmassenkonzentration PM₁₀. Danach bleibt diese mit jahreszeitlichen Variationen etwa konstant und erreicht relativ geringe Werte für 2015-2017. Im Jahr 2018 tritt mit 22,88 µg m⁻³ wieder ein höherer Wert auf. Dieser ist wahrscheinlich auf Re-Emissionen von einer sehr trockenen Weide zurückzuführen. Dafür spricht der hohe Wert an nicht analysiertem Material im Vergleich zum analysierten Anteil, der in etwa mit dem in den Jahren 2015-17 vergleichbar ist. Der relativ hohe PM₁₀-Wert tritt im Jahr 2018 mit der seit 2009 geringsten gemessenen Niederschlagsjahressumme zusammen auf (vgl. Abbildung 98). Ergänzend zeigt Abbildung 101 einen etwa vergleichbaren Anteil PM₁ für die Jahre 2016 und 2017. Der Anteil der Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser größer als diese (PM_{2,5}-PM₁ und PM₁₀-PM_{2,5}) hat dagegen zugenommen. Bezüglich der Partikelinhaltsstoffe zeigt sich in Abbildung 100 in den Jahren 1993 bis etwa 2001 ein Rückgang der Sulfatkonzentration im PM₁₀, während in dieser Zeit der Anteil von Nitrat in etwa konstant geblieben ist. Darin spiegelt sich der starke absolute Rückgang der atmosphärischen SO₂-Konzentration als Vorläufersubstanz für Sulfat an der Hintergrundstation Melpitz wider (vgl. Abbildung 99). Die Nitratkonzentration bleibt mit Schwankungen zwischen den Jahren in etwa konstant, da die Konzentration der Stickoxide (NO_x) bisher im ländlichen Raum der Melpitzer Station nur etwas zurückgegangen ist (vgl. Abbildung 99). Der Anteil von Ammonium an der PM₁₀-Massenkonzentration hat sich nicht auffallend verändert, was auf über den Zeitraum vergleichbare NH₃-Immissionen zurückzuführen ist. Die Anteile für OC und EC, die erst ab 2003 vorliegen, zeigen mit den Jahren Schwankungen ihrer Höhe. Sicher zu erkennen ist der Rückgang der absoluten Konzentration von EC.

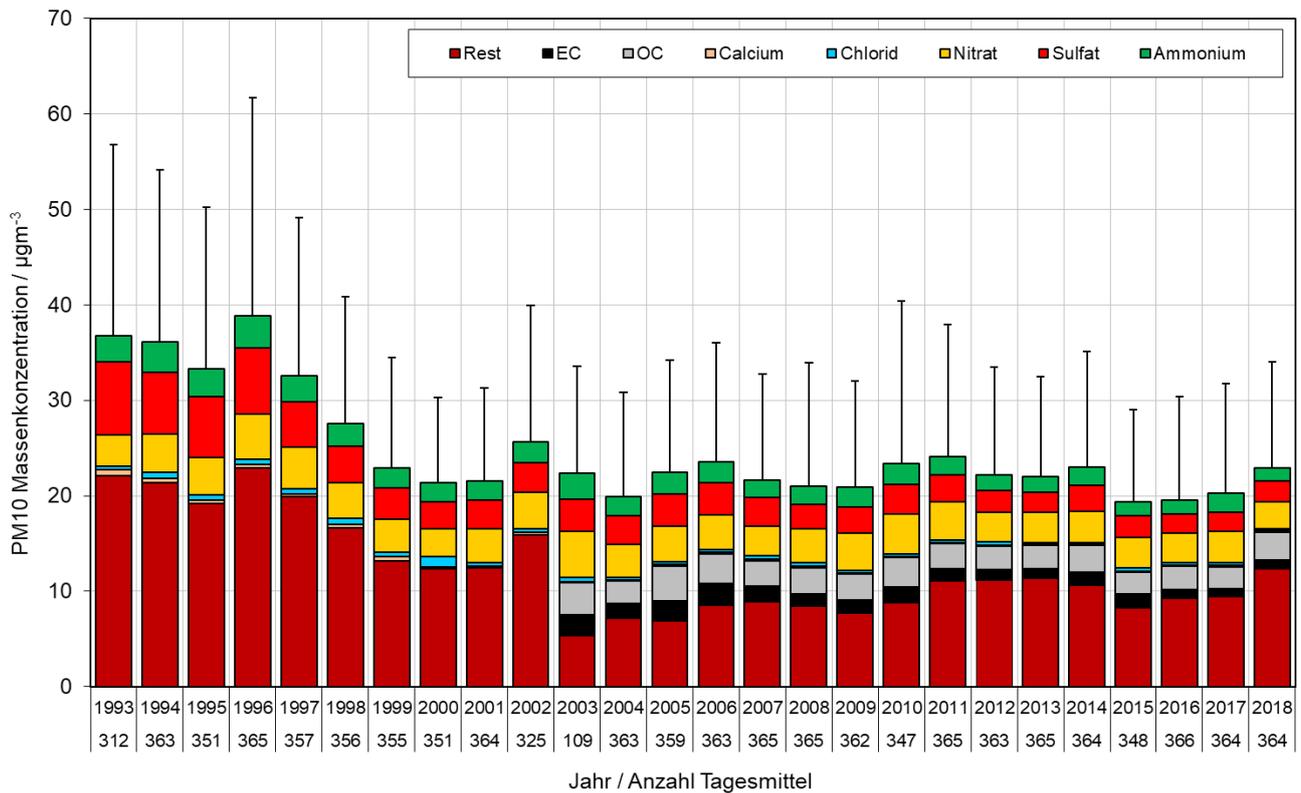


Abbildung 100: Verlauf der PM10- Massenkonzentration mit Anteilen ausgewählter wasserlöslicher Ionen und Kohlenstoff. Die Fehlerbalken zeigen die einfache Standardabweichung der Jahresmittelwerte. Die Konzentrationen für OC und EC, seit 2003 mit der VDI-Methode bestimmt, wurden für 2015-18 aus Ergebnissen der Thermo-optischen Methode auf der Basis einer dreijährigen Vergleichsmessung für Melpitz (2012–14) abgeschätzt

Den Verlauf der Partikelmassenkonzentrationen für PM1, PM2,5-PM1 und PM10-PM2,5 als Anteile an PM10 im Jahresmittel (2003 - 2018) zeigt Abbildung 101. Es ist gut zu erkennen, dass der Verlauf der PM10-Massenkonzentration vom Anteil des PM1 dominiert wird. Für 2018 zeigt sich im Vergleich zu den Vorjahren 2016 und 2017 ein erhöhter Anteil der Partikel mit größerem aerodynamischem Durchmesser. Dies stützt die Vermutung (vgl. auch Abbildung 100), dass der ausgetrocknete Boden und trockene Oberflächen in der Umgebung die Re-Emission von Partikeln mit größerem aerodynamischem Durchmesser im Jahr 2018 begünstigt haben.

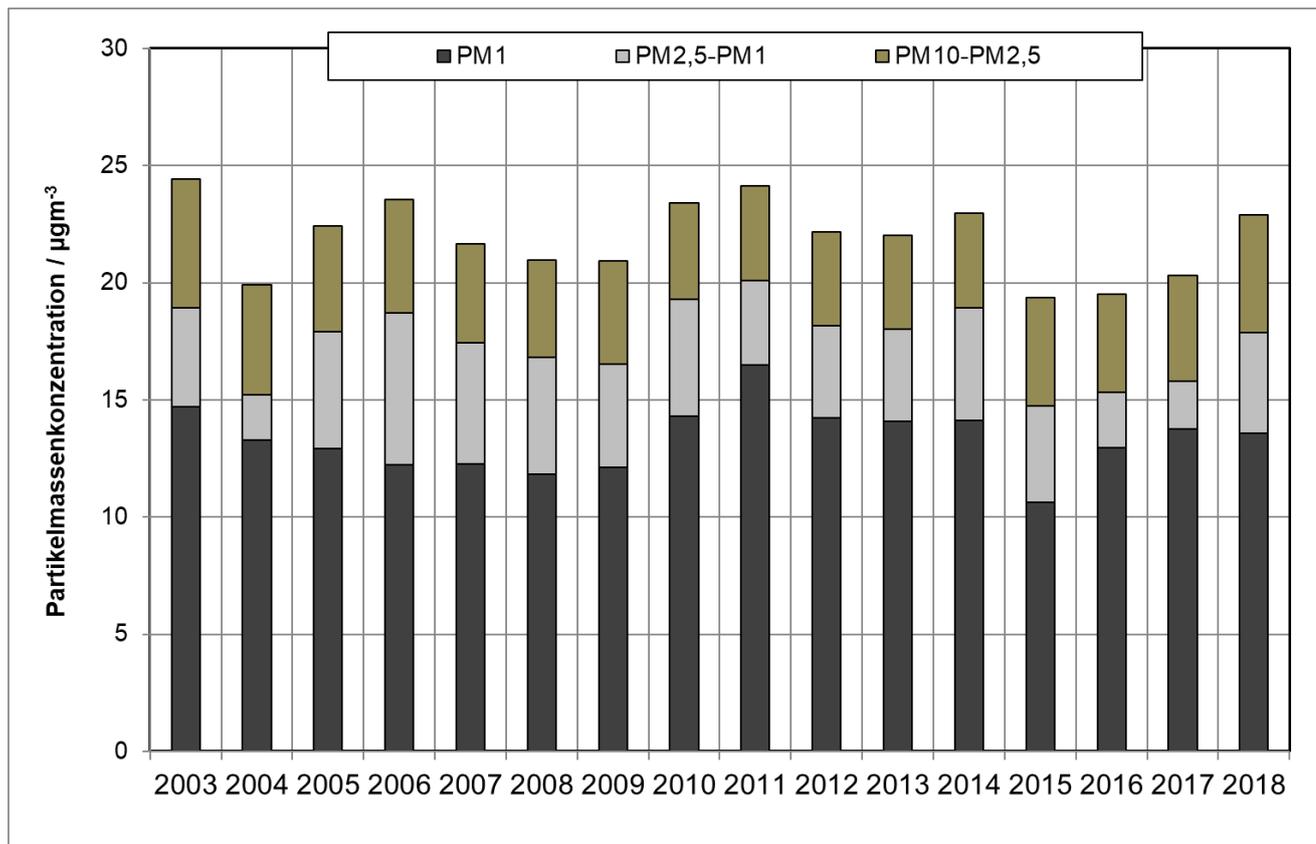


Abbildung 101: Verlauf der Partikelmassenkonzentrationen für PM1, PM2,5-PM1 und PM10-PM2,5 aufsummiert als PM10 im Jahresmittel (2003–2018)

Für die Einordnung in den langfristigen zeitlichen Verlauf an der Melpitzer Forschungsstation werden sowohl die Partikelmassenkonzentration PM10 (Abbildung 102), als auch die darin enthaltenen Konzentrationen für Ammonium, Nitrat und Sulfat (Abbildung 103 bis Abbildung 105) als Verlauf täglicher Konzentrationen gezeigt. Die tägliche Partikelmassenkonzentration PM10 ist seit 1993 mit den typischen jahreszeitlichen Schwankungen zwischen Winter- und Sommerhalbjahr stark zurückgegangen. Seit etwa 2005 zeigt sich im Wesentlichen nur noch die jahreszeitliche Konzentrationsschwankung mit unterschiedlich hohen Winterkonzentrationen, bedingt durch eine unterschiedliche meteorologische Ausprägung der Winter, die hauptsächlich beeinflusst werden durch die Verteilung zwischen maritimer und kontinentaler Anströmung und der mittleren Temperatur (vgl. auch Abbildung 100 und Abbildung 101). Der Konzentrationsrückgang beträgt seit 2005 an der Hintergrundstation Melpitz nur noch etwa $2 \mu\text{g m}^{-3}$ in 10 Jahren. Damit hat eine etwa daraus bedingte Konzentrationsänderung kaum Einfluss auf die Messungen im Projektzeitraum.

Die Konzentration von Ammonium in PM10 (Abbildung 103) zeigt bei einem insgesamt fallenden Trend jahreszeitliche Schwankungen mit höheren Konzentrationen im Winter bei niedrigeren Temperaturen. Die jahreszeitliche Variation ist in den Jahren bis etwa 2000 geringer ausgeprägt, da Ammoniumsulfat, dass bei höheren SO_2 -Konzentrationen bevorzugt gebildet wird, im Gegensatz zu Ammoniumnitrat thermisch stabil ist. Im sehr milden Winter 2019/20 (bis Nov. 2019) traten relativ hohe Ammoniumkonzentrationen auf, hier können Emissionen aus der Landwirtschaft (NH_3) von Einfluss gewesen sein.

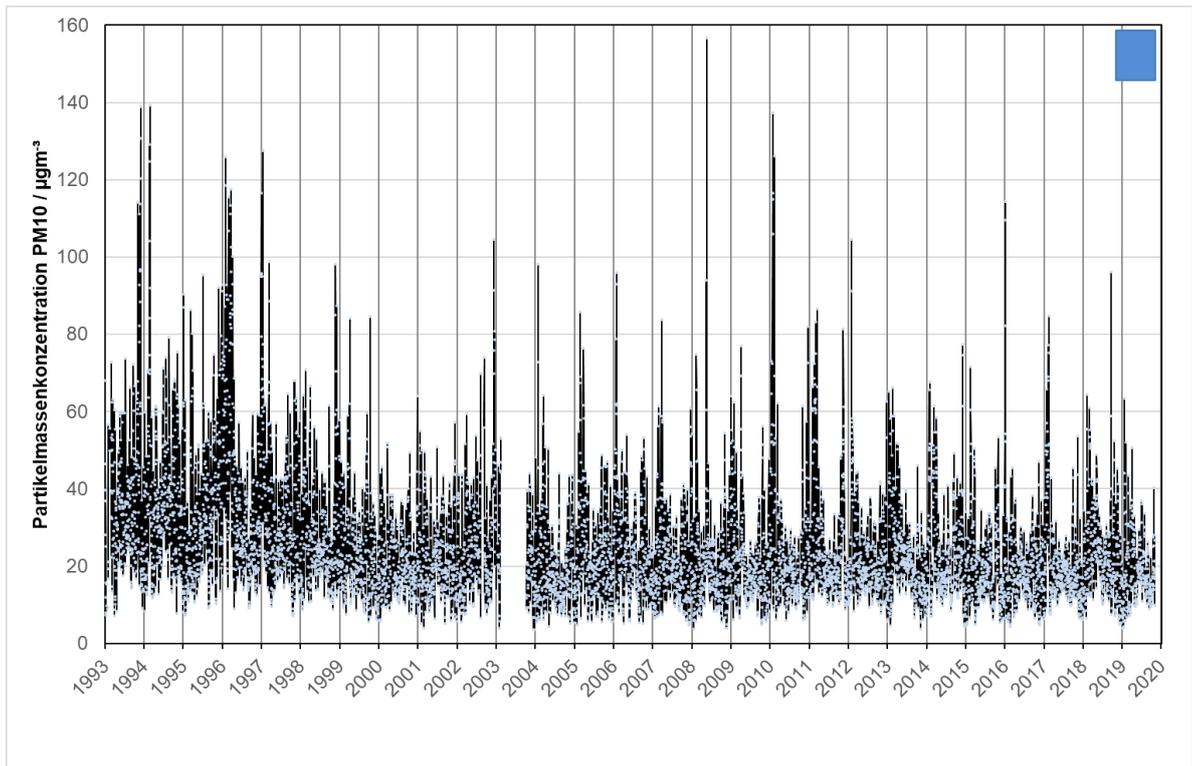


Abbildung 102: Verlauf der täglichen Partikelmassenkonzentration PM10 1993 bis 3. November 2019.
 Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

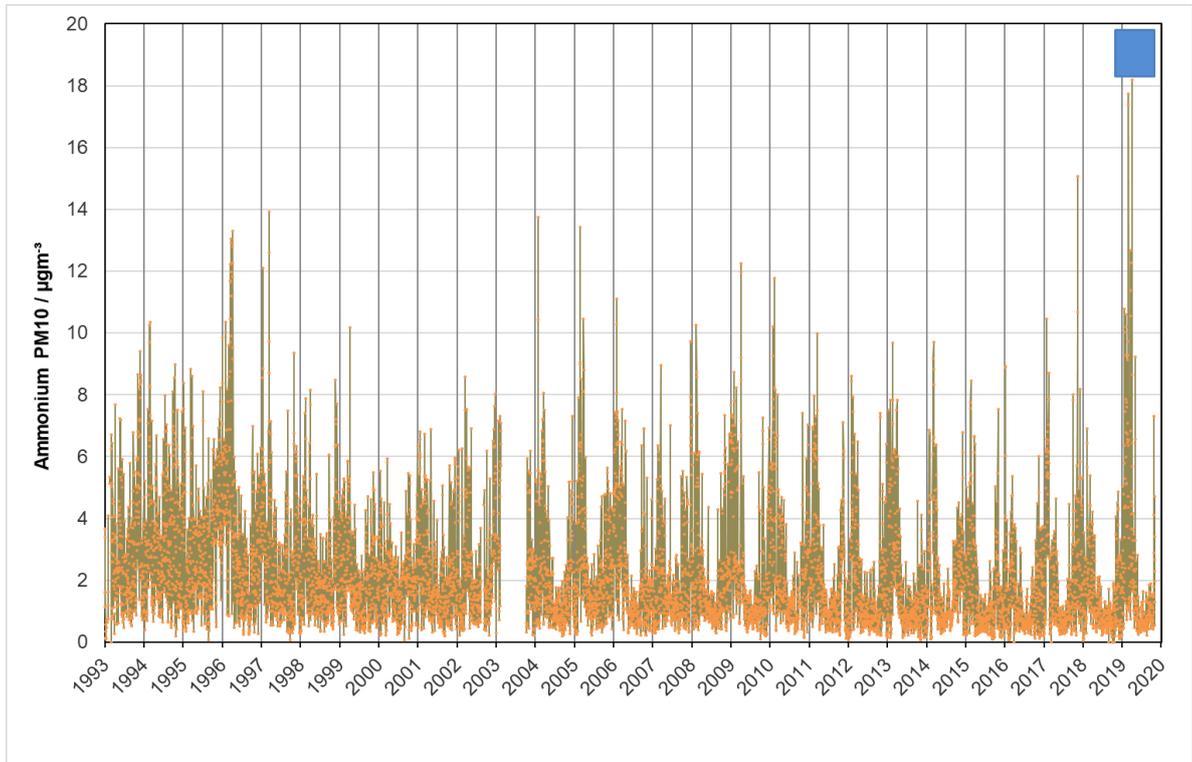


Abbildung 103: Verlauf der täglichen Konzentration von Ammonium im PM10 1993 bis 3. November 2019.
 Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

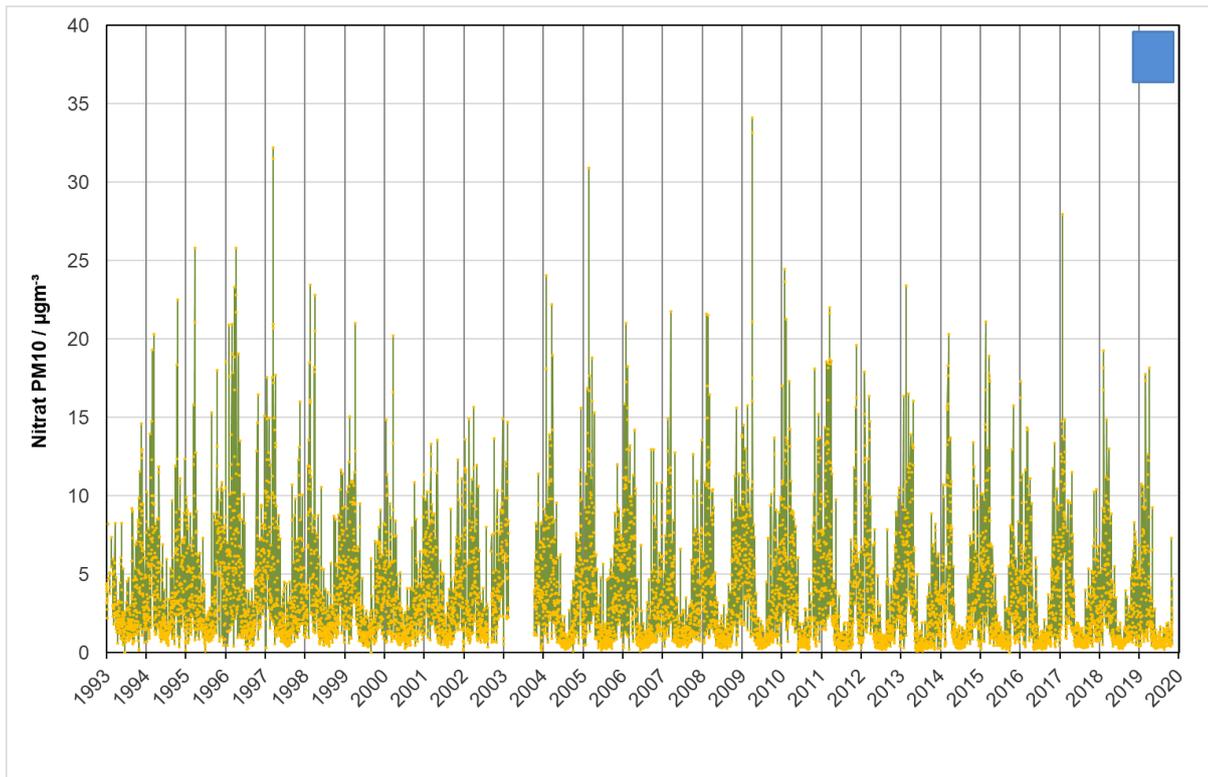


Abbildung 104: Verlauf der täglichen Konzentration von Nitrat im PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

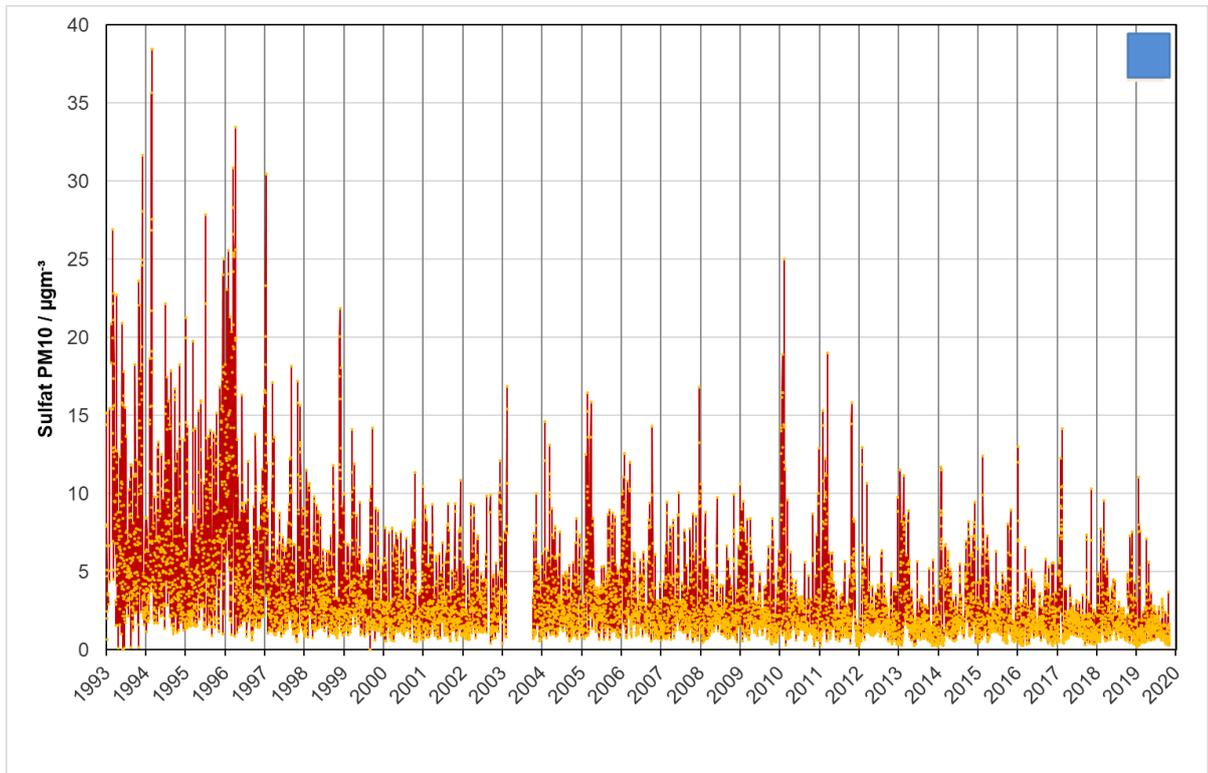


Abbildung 105: Verlauf der täglichen Konzentration von Sulfat im PM10 1993 bis 3. November 2019. Dauer dieses Vorhabens: blaues Rechteck

Abbildung 104 zeigt den Verlauf der täglichen Konzentration von Nitrat im PM10 1993 bis 3. November 2019. Deutlich zu erkennen ist die Variation der Konzentration zwischen Winter und Sommer, bedingt durch die thermische Flüchtigkeit von Nitrat. Über den gesamten Zeitraum zeigt Nitrat nur einen Rückgang der mittleren Konzentration von etwa $1 \mu\text{g m}^{-3}$ in 25 Jahren. Das korrespondiert mit den nur leicht rückgängigen NO_2 -Konzentrationen (vgl. Abbildung 99). Im Projektzeitraum, besonders im Sommer 2019, waren die Nitratkonzentrationen auffallend gering. Hier hat sich wahrscheinlich der Einfluss hoher Temperaturen, bei starker mittlerer Globalstrahlung (Abbildung 93) ausgewirkt.

Die Sulfatkonzentrationen im PM10 (vgl. Abbildung 105) gehen über den gesamten Messzeitraum zurück. Anfänglich war dieser Rückgang verbunden mit einem drastischen Abfall der SO_2 -Konzentrationen (vgl. Abbildung 99) durch zurückgehende Emissionen aus der Kohleverbrennung in der näheren Umgebung der Station. Seit 2004 geht die Sulfatkonzentration weiter kontinuierlich, aber mit geringerer Steigung zurück ($1,1 \mu\text{g m}^{-3}$ in 10 Jahren). Ursache hierfür ist der Rückgang der SO_2 -Emissionen in größerer Entfernung zur Station, bedingt durch weniger Kohleverbrennung dort. Damit verbunden ist weniger Langstreckentransport von SO_2 in kontinentalen Luftmassen die aus östlicher Richtung herantransportiert werden. Im Projektzeitraum, besonders im Sommer 2019, war die Sulfatkonzentration gering.

Über den mehr als 26-jährigen Zeitraum des Betriebes der TROPOS-Forschungsstation bei Melpitz werden sowohl jahreszeitliche Variationen der Konzentration von Spurengasen und partikulären Bestandteilen in PM10, als auch ein, je nach Spezies unterschiedlich rückläufiger Trend in der Immissionskonzentration festgestellt. Bedingt werden diese rückläufigen Immissionen hauptsächlich durch rückläufige Emissionen anthropogener Spezies. Für einen erheblichen Anteil der intra- und inter-annularen Variation der Konzentrationen sind neben der wirtschaftlichen Entwicklung meteorologische Parameter verantwortlich. Innerhalb des Zeitraumes von mehr als 25 Jahren macht sich im Untersuchungsgebiet auch der Klimawandel mit steigenden mittleren Temperaturen und rückläufigen Niederschlagsmengen bemerkbar.

Die einjährigen Untersuchungen zur Zusatzbelastung aus Holzheizungen (Projektzeitraum von November 2018 bis Oktober 2019) fanden im bisher wärmsten und einem insgesamt sehr trockenen Zeitabschnitt der Melpitzer Messreihe statt. Da die Emissionen für NO_x , PM10 und typische Holzheizungstracer (z. B. PAK und Anhydromonosaccharide) von der eingesetzten Brennstoffmenge und diese wiederum zumindest zum Teil von der Temperatur im Winter abhängig ist, dürften die hier an der Station (Hintergrund) und im Ort (nahe der Emissionsquellen) gemessenen Konzentrationen im Mittel für den Winter 2018/2019 am unteren Rand der sonst zu erwartenden Konzentrationen liegen.

4.8 Vergleich mit Abend- Messwerten im sächsischen Luftgütemessnetz

An Messstationen des sächsischen Luftgütemessnetzes werden regelmäßig statistisch auffällig erhöhte Messwerte für BC und Partikelanzahlkonzentration 30 - 200 nm an Freitag- und Samstagabenden beobachtet. Diese werden im Folgenden mit den im Projekt ermittelten Wochengängen des schwarzen Kohlenstoffes (Abbildung 106) und der PM10-Massenkonzentration (Abbildung 107) in verschiedenen Jahreszeiten verglichen, um Holzfeuerung als mögliche Ursache der Auffälligkeiten zu untersuchen.

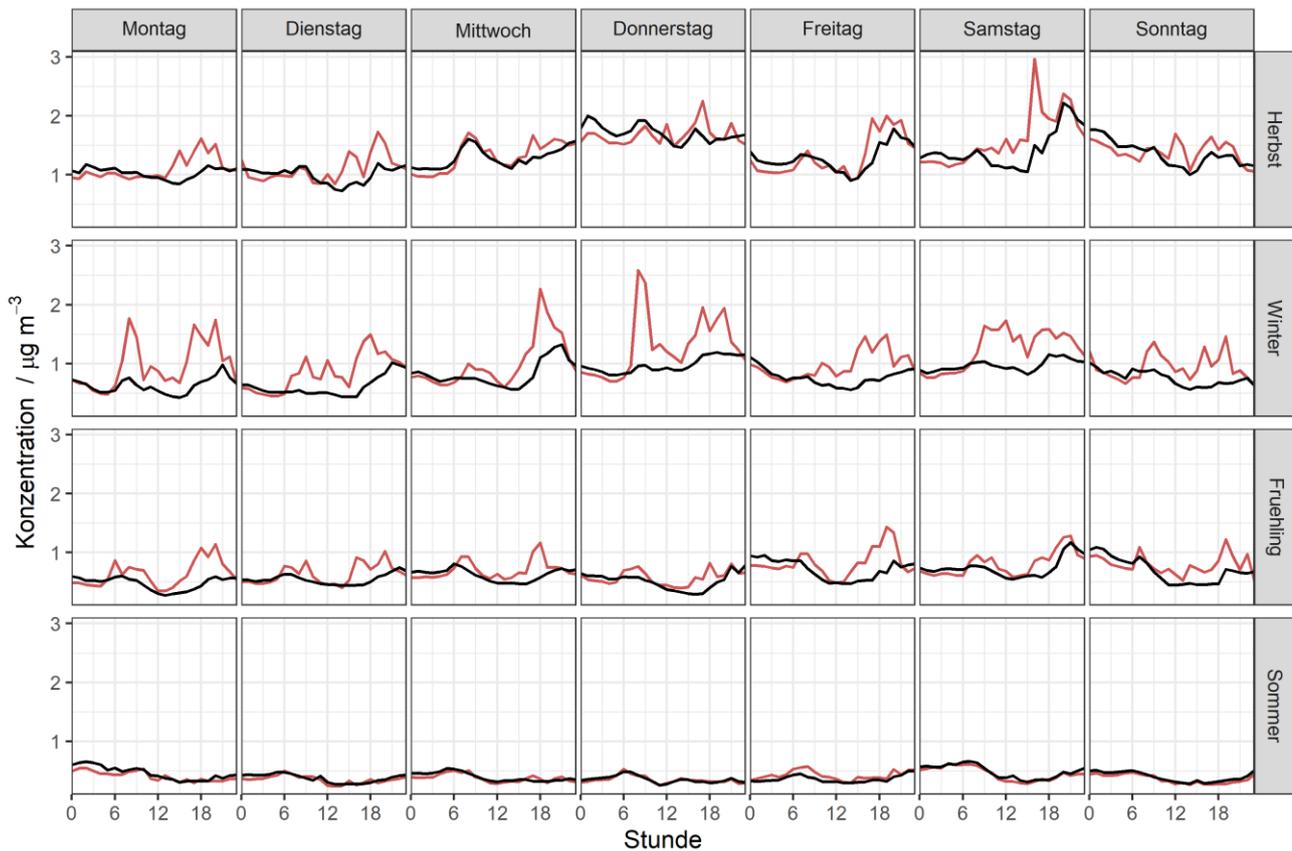


Abbildung 106: Konzentrationen des schwarzen Kohlenstoffes dargestellt als Tagesgang in Abhängigkeit vom Wochentag und der Jahreszeit; Messwerte im Ort Melpitz sind als rote Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Erhöhte eBC-Konzentrationen an Freitag- und Samstagabenden sind in den Sommermonaten nur schwach ausgeprägt. Im Frühling sind die Konzentrationen zu diesen Zeiten im Ort etwas erhöht und an der Station ist nur an Samstagen eine Erhöhung festzustellen. Im Winter dagegen tritt eine Erhöhung zur Abendzeit an allen Tagen im Ort auf, wobei die Erhöhung am Sonntag nur sehr schwach ausgeprägt ist. An der Station dagegen sind die abendlich hohen Werte in der Woche sogar ausgeprägter als am Wochenende. Im Herbst sind die Tagesverläufe im Ort und an der Station sehr ähnlich. An Freitagen und Samstag ist ein ausgeprägter Tagesgang mit erhöhten Werten am Abend zu erkennen, wohingegen in der Woche und am Sonntag die Konzentrationen relativ konstant sind.

Die PM₁₀-Konzentrationen (Abbildung 107) sind im Ort und an der Station relativ ähnlich im zeitlichen Verlauf und mit geringfügig höheren Konzentrationen im Ort. Wochengänge können für Sommer, Herbst und Winter nicht klar ausgemacht werden.

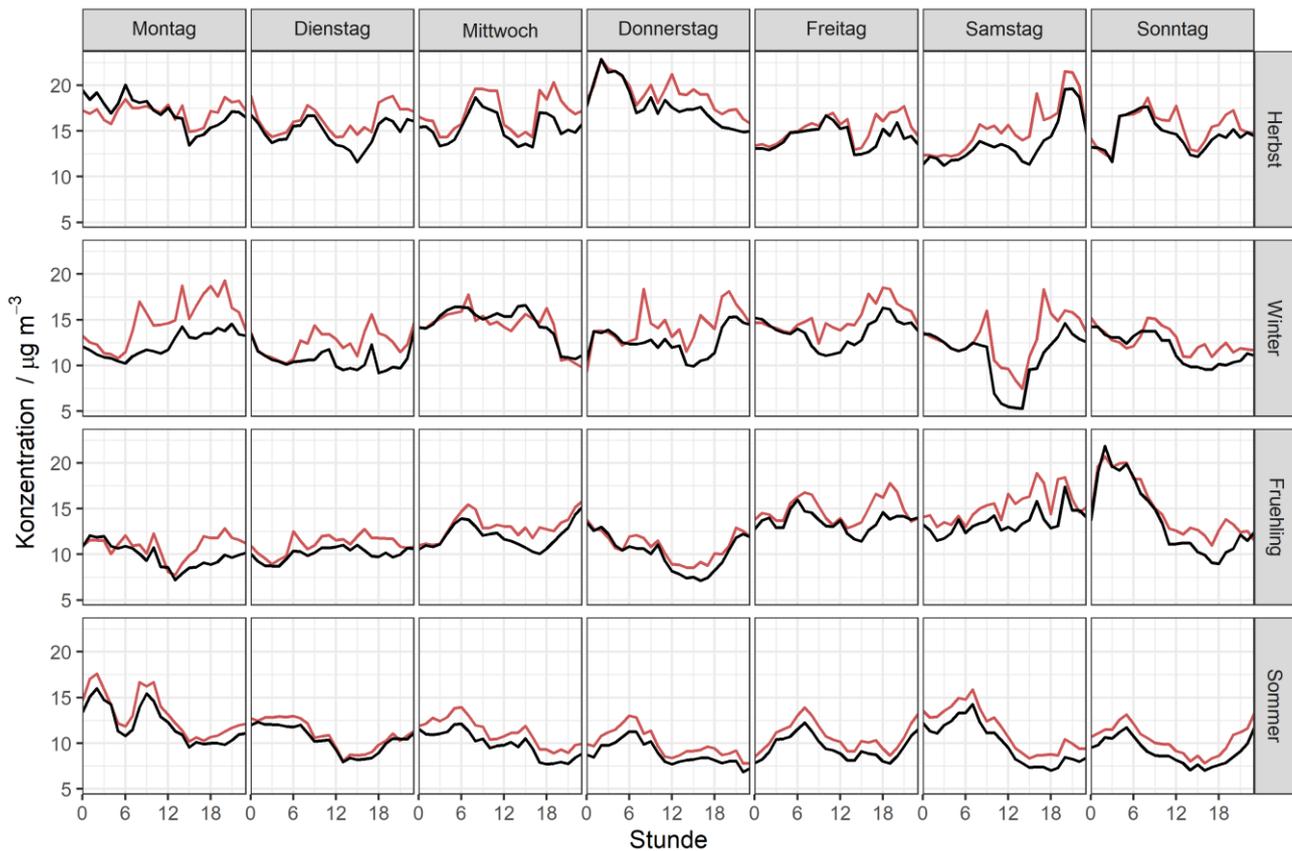


Abbildung 107: Massenkonzentrationen PM10 dargestellt als Tagesgang in Abhängigkeit vom Wochentag und der Jahreszeit; Messwerte im Ort Melpitz sind als rote Linien, die an der Referenz Melpitz Station als schwarze Linien dargestellt

Aufgrund der Datengrundlage von nur einem Jahr und dem Umstand, dass einige Perioden um Fehlmessungen und außergewöhnliche Events (meistens um volle Tage) bereinigt wurden, sind Sprünge zwischen den einzelnen Tagen teilweise zu erklären. Die Stärke der Sprünge ist Folge des geringen Umfangs der Stichprobe bei teilweise hoher Variabilität des Messparameters.

Im Rahmen der Unsicherheit der Messungen ist eine stichhaltige Interpretation bzgl. der erhöhten Konzentrationen an Freitag- und Samstagabenden nur schwer möglich. In den eBC-Konzentrationen können aber im Ort Anzeichen für erhöhte Werte an Freitag- und Samstagabenden, wenn auch mit großen Unsicherheiten, gefunden werden. An der außerhalb des Orts gelegenen Messstation sind diese Erhöhungen kaum erkennbar. Für weitere Analysen müssten Langzeitmessreihen der Messstation Melpitz im Hinblick auf Wochengang und saisonale Unterschiede untersucht werden.

4.9 Maßnahmen

Auf Basis der in diesem und in früheren Projekten gewonnenen Erkenntnisse zum Einfluss der Holzverbrennung auf die Luftqualität während der Heizperiode scheint es ratsam, gesetzliche Regulierungen zu den Emissionen aus Kleinf Feuerungsanlagen weiterzuentwickeln. Durch Reduktion insbesondere der partikulären Emissionen bietet sich ein hohes Potential zur deutlichen Senkung der PM10-Belastung, sowohl an lokalen Hotspots, als auch in der Fläche.

Die Auswirkungen möglicher zukünftiger Regulierungen könnten sich durch das in diesem Vorhaben erfolgreich implementierte twin-site Konzept in Melpitz langfristig verfolgen lassen. Die Messungen an der Forschungsstation spiegeln dabei die Entwicklung der Biomasseverbrennungsanteile im ländlichen Hintergrund wieder, wobei permanentisierte Messungen in der Ortsmitte die lokalen Auswirkungen dokumentieren könnten.

Hierzu könnten in geringerem Umfang als in diesem Projekt die wichtigsten Messgrößen an einer kleinen Messstation im Ort durchgeführt werden. Anbieten würden sich die zeitaufgelöste Messung von eBC mit Aethalometer oder MAAP, sowie die regelmäßige Beprobung von PM10 mittels Filtersammler zur Bestimmung der Konzentrationen von Masse, Levoglucosan als Markerverbindung, PAK als gesundheitsschädliche Inhaltsstoffe und ggf. noch weiteren Inhaltsstoffen.

Durch ein solches reduziertes Setup könnte gewährleistet werden, dass die Messungen unauffällig und ohne Beeinträchtigung der Ortsbevölkerung langfristig durchgeführt werden können.

Zur Untersuchung der lokalen Zusatzbelastung wäre es ideal, den Ort Melpitz zum Pilot-Ort für die Etablierung fortgeschrittener Abgasreinigungstechnik zu etablieren, um den konkreten Einfluss moderner Technologien zur Emissionsminderung auf die Immissionssituation vor Ort zu untersuchen. Voraussetzungen hierfür wären technische Machbarkeit, kommerzielle Verfügbarkeit entsprechender Systeme, Finanzierungsmöglichkeiten, sowie nicht zuletzt die Mitwirkungsbereitschaft der Ortsbevölkerung.

5 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In den vergangenen Jahren wurde der Ersatz fossiler Brennstoffe durch erneuerbare Energien in Deutschland und der EU als klimafreundliche Technologie politisch gefördert. Biomasse und speziell Holz werden immer häufiger als regenerative Energie- und v.a. Wärmequellen eingesetzt und sind aufgrund ihrer angenehmen Effekte auf das Wohngefühl beliebt. Allerdings sind die Schadstoffemissionen aus der Holzverbrennung erheblich und ihre Auswirkungen auf die Luftqualität daher seit einigen Jahren ein zunehmend wichtigeres Umwelt- und Gesundheitsproblem, nicht nur in stark urban geprägten Gegenden oder alpinen Gebieten mit langer Tradition des Heizens mit Holz, sondern auch im ländlichen Flachland Deutschlands.

Es ist zu erwarten, dass die Nutzung von Biomasse zur Energieerzeugung auch in Zukunft eine bedeutende Rolle spielen wird, sie wird auch in der 2018 überarbeiteten EU-Richtlinie zur Förderung der Nutzung von Energie aus erneuerbaren Quellen (EU-RL 2018/2001) als ein Baustein zur Erreichung des verbindlichen Zielwertes von mind. 32 % Anteil aus erneuerbaren Quellen am Bruttoendenergieverbrauch der Europäischen Union betrachtet.

Für die weitere Entwicklung von Strategien zur Bekämpfung der negativen Auswirkungen insbesondere der Holzverbrennung ist daher ein besseres Verständnis des Einflusses der Holzfeuerung auf die Immissionen vor Ort von großer Bedeutung und an dieser Stelle setzte das in diesem Bericht beschriebene Forschungsprojekt an.

Das Ziel des Vorhabens „Zusatzbelastung aus Holzheizungen“ war, ein Immissionskonzept für das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) zu erproben, welches umfassende Außenluftmessungen zur chemischen und physikalischen Charakterisierung der PM- Zusatzbelastung aus Holzheizungen vorsah.

Die Messungen basierten auf einem „twin-site“ Messkonzept mit einer Referenz- Hintergrundstation und einer „Hotspot“- Station, die stark durch Emissionen aus der Holzverbrennung beeinflusst war und an denen parallel mit identischer Instrumentierung über ein volles Jahr gemessen wurde. Die Stationen waren angesiedelt in Melpitz, Sachsen, das ländlich, wenig orografisch gegliedert und nur wenigen, nicht sehr intensiven Störquellen ausgesetzt ist. Die „Hotspot“- Messstation wurde direkt im Zentrum des Ortes Melpitz installiert und als Hintergrundstation wurde die 300 m westlich von Melpitz gelegene Forschungsstation des Leibniz-Instituts für Troposphärenforschung (TROPOS) verwendet.

Zu den wichtigsten Messparametern gehörten die stündlichen Konzentrationen von Partikelanzahl und daraus berechneter Partikelmasse, äquivalentem schwarzen Kohlenstoff (eBC) als Maß für Ruß und Stickoxiden (NO, NO₂, NO_x), sowie Tagesmittelwerte von PM₁₀- Gesamtmasse und folgende Partikelinhaltsstoffe: Ionen, organischer und elementarer Kohlenstoff (OC/EC), die Anhydromonosaccharide Levoglucosan, Mannosan und Galactosan als Markerverbindungen für Holzverbrennung, sowie polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) als stark gesundheitsschädliche Stoffe.

Es wurde eine umfangreiche Analyse und Auswertung der Messparameter in Konzentrations- Zeitreihen und zeitlichen Variationen, sowie als Inkremente nach Bilanzierung im Lenschow- Ansatz unter Berücksichtigung von Jahreszeiten und meteorologischer Einflussgrößen durchgeführt. Zudem wurde über zwei Quellzuordnungsansätze der PM- Anteil aus der Holzverbrennung bestimmt, um im Ergebnis detaillierte Schlussfolgerungen hinsichtlich der PM- Zusatzbelastung aus Holzheizungen abzuleiten.

Die Auswertung der meteorologischen Messdaten ergab keine besonderen Auffälligkeiten, so dass von einem für das Untersuchungsgebiet „typischen“ Jahr gesprochen werden kann, wobei die Einordnung in die an der Forschungsstation schon lange bestehende Messreihe zeigte, dass der Winter im Untersuchungszeitraum vergleichsweise hohe Temperaturen aufwies.

Beide Messstationen zeigten eine hohe Variabilität in den Zeitreihen der einzelnen Messparameter, bei aber grundsätzlich sehr ähnlichen Konzentrationsmustern und typischen zeitlichen Variationen in den mittleren Tages-, Wochen- und Jahresgängen.

Zur Bestimmung der lokalen Zusatzbelastung aus Holzheizungen wurde durch Differenzbildung der Konzentrationen von Ort und Station das sogenannte „Inkrement Holzheizung“ berechnet und dessen zeitliche Variationen sowie seine Abhängigkeit von verschiedenen Einflussparametern untersucht. Dieses Inkrement war im Winter für die stündlichen Konzentrationen von PM- Masse und eBC v.a. bei westlicher Anströmung der Messstationen deutlich positiv und wurde bei östlicher Anströmung teilweise negativ, was mit der Lage und der Beeinflussung der beiden Stationen durch örtliche Emissionen gut zusammenpasst.

Für PM₁₀- Masse und alle Inhaltsstoffe, die bei der Verbrennung von Holz relevant sind, wurden deutlich messbare Zusatzbelastungen im Winter gemessen, die im Mittel über die Monate Dezember–Februar bei 1,2 µg m⁻³ für PM₁₀, 0,7 µg m⁻³ für OC, 0,3 µg m⁻³ für EC, 0,04 µg m⁻³ für Kalium, 0,1 µg m⁻³ für Levoglucosan und 0,4 ng m⁻³ für Benzo(a)pyren lagen. Diese Zusatzbelastungen zeigten im Wochengang teilweise etwas erhöhte Werte am Samstag, insgesamt aber keinen stark ausgeprägten Wochenendeffekt, was darauf hindeutet, dass Holzheizungen im Ort Melpitz unabhängig vom Wochentag ähnlich intensiv genutzt werden.

Für die Zusatzbelastungen wurden in den verschiedenen Jahreszeiten plausible und gut erklärbare Zusammenhänge mit Windgeschwindigkeit, Temperatur und Mischungsschichthöhe beobachtet. Die örtlichen Emissionen wurden unabhängig von der Windgeschwindigkeit von der Messstation in der Ortsmitte erfasst, waren v. a. in den Übergangsjahreszeiten an die außentemperaturabhängige temporäre Nutzung von Holzheizungen gekoppelt und reicherten sich an Tagen mit niedrigen Mischungsschichthöhen besonders stark an.

Zur Validierung des direkt gemessenen Inkrements für die PM₁₀- Gesamtmasse wurde das aus der Biomasseverbrennung stammende PM mittels Makrotraceransatz unter Verwendung von Levoglucosan als Markerverbindung, sowie über Rezeptormodellierung mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) berechnet. Die beiden sehr unterschiedlichen Methoden ergaben mit 1,0 µg m⁻³ winterlicher Zusatzbelastung über Makrotraceransatz und 1,8 µg m⁻³ über PMF leicht unterschiedliche Ergebnisse. Allerdings wurde auch der an der Hintergrundstation schon vorhandene Quellbeitrag aus Holzverbrennung ähnlich verschieden von den beiden Methoden abgeschätzt, so dass sich in beiden Varianten eine Zunahme der Hintergrundkonzentration von Biomasseverbrennungs- PM um ca. 60% ergab. In Anbetracht der Größe des Ortes mit nur wenigen hundert Einwohnern erscheint dies als ein nicht unerheblicher Wert.

Insgesamt lässt sich schlussfolgern, dass das im Projekt implementierte „twin-site“ Konzept zur Ermittlung der lokalen Zusatzbelastung aus Holzheizung in einer kleinen Ortschaft sehr gut funktionierte. Die im Winter bestimmte Zusatzbelastung von ca. 1 – 2 µg m⁻³ PM₁₀ stellt eine deutliche Erhöhung der Konzentrationen im Hintergrund dar. Da die lokalen Zusatzbelastungen durch Transport und atmosphärische Durchmischung mit denen vieler weiterer Orte und Städte akkumulieren, ist es sehr plausibel, dass die Verbrennung von Holz einen erheblichen Anteil an den Quellbeiträgen aus Verbrennungsprozessen ausmachen, die im ländlichen Raum in Ostdeutschland typischerweise ca. 20% der Gesamt- PM₁₀- Konzentrationen ausmachen.

Aufgrund der durch diese Emissionen von PM, Ruß und toxischen Inhaltsstoffen ausgehenden Gesundheitsgefährdung erscheint es ratsam, bestehende gesetzliche Vorgaben zu den Emissionen aus Holzöfen weiterzuentwickeln. Die „twin-site“-Messungen in Melpitz könnten in kleinerem Umfang gut geeignet sein, die Auswirkungen möglicher zukünftiger Regulierungen zu dokumentieren.

Literaturverzeichnis

- ABBASZADE, G., BRANDT, C., DIEMER, J., DOBMEIER, B., GADERER, M., KUNDE, R., ORASCHE, J., OTT, H., SCHMOECKEL, G., SCHNELLE-KREIS, J., VOLZ, F. 2009: Einfluss der Gebäudeheizung auf Feinstaubimmissionen im Raum Augsburg Bayerisches Landesamt für Umwelt, bifa Umweltinstitut GmbH, Bayerisches Zentrum für angewandte Energieforschung e.V. (ZAE Bayern), Universität Augsburg
- ALVES, C., GONÇALVES, C., FERNANDES, A. P., TARELHO, L., PIO, C.: Fireplace and woodstove fine particle emissions from combustion of western Mediterranean wood types. *Atmospheric Research* 101(2011), S. 692-700, doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2011.04.015>
- BEHNKE, A. 2007: Die Nebenwirkungen der Behaglichkeit: Feinstaub aus Kamin und Holzofen. Umweltbundesamt
- BEHNKE, A. 2010: Novellierung der Verordnung über kleine und mittlere Feuerungsanlagen. Umweltbundesamt
- BIRMILI, W., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., HERRMANN, H., IINUMA, Y., MÜLLER, K., POULAIN, L., WEINHOLD, K., WIEDENSOHLER, A. 2008: Einfluss kleiner Holzfeuerungen auf die Immissionsituation – Teil Immissionsmessung. Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Leipzig im Auftrag des Sächsischen Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft vertreten durch das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie
- CALVO, A. I., MARTINS, V., NUNES, T., DUARTE, M., HILLAMO, R., TEINILÄ, K., PONT, V., CASTRO, A., FRAILE, R., TARELHO, L., ALVES, C.: Residential wood combustion in two domestic devices: Relationship of different parameters throughout the combustion cycle. *Atmospheric Environment* 116(2015), S. 72-82, doi: [10.1016/j.atmosenv.2015.06.012](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.06.012)
- CASTRO, A., CALVO, A. I., BLANCO-ALEGRE, C., ODUBER, F., ALVES, C., COZ, E., AMATO, F., QUEROL, X., FRAILE, R.: Impact of the wood combustion in an open fireplace on the air quality of a living room: Estimation of the respirable fraction. *Science of The Total Environment* 628-629(2018), S. 169-176, doi: [10.1016/j.scitotenv.2018.02.001](https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.02.001)
- 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, doi: [10.5194/amt-3-79-2010](https://doi.org/10.5194/amt-3-79-2010)
- DRINOVEC, L., MOČNIK, G., ZOTTER, P., PRÉVÔT, A. S. H., RUCKSTUHL, C., COZ, E., RUPAKHETI, M., SCIARE, J., MÜLLER, T., WIEDENSOHLER, A., HANSEN, A. D. A.: The "dual-spot" Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation. *Atmospheric Measurement Techniques* 8(2015), S. 1965-1979, doi: [10.5194/amt-8-1965-2015](https://doi.org/10.5194/amt-8-1965-2015)
- DUH, DEC 2016. Residential wood burning Environmental impact and sustainable solutions. In: Background Paper - Clean Heat. Deutsche Umwelthilfe and Danish Ecological Council.
- EEA 2016. Air quality in Europe - 2016 report. European Environment Agency
- FABBRI, D., TORRI, C., SIMONEIT, B. R. T., MARYNOWSKI, L., RUSHDI, A. I., FABIAŃSKA, M. J.: Levoglucosan and other cellulose and lignin markers in emissions from burning of Miocene lignites. *Atmospheric Environment* 43(2009), S. 2286-2295, doi: [10.1016/j.atmosenv.2009.01.030](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.01.030)
- FINE, P. M., CASS, G. R., SIMONEIT, B. R. T.: Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Woods Grown in the Southern United States. *Environmental Science & Technology* 36(2002), S. 1442-1451, doi: [10.1021/es0108988](https://doi.org/10.1021/es0108988)
- GONÇALVES, C., ALVES, C., PIO, C.: Inventory of fine particulate organic compound emissions from residential wood combustion in Portugal. *Atmospheric Environment* 50(2012), S. 297-306, doi: [10.1016/j.atmosenv.2011.12.013](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.12.013)
- HAUSMANN, A. 2010: Holzkleinfeuerungsanlagen in Sachsen. Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie; Abteilung Klima, Luft, Lärm, Strahlen; Referat Luftqualität

- HEDBERG, E., JOHANSSON, C., JOHANSSON, L., SWIETLICKI E., BRORSTRÖM-LUNDÉN, E.: Is levoglucosan a suitable quantitative tracer for wood burning? Comparison with receptor modeling on trace elements in Lycksele, Sweden. *Journal of the Air & Waste Management Association* 56(2006), S. 1669-1678, doi: 10.1080/10473289.2006.10464572
- HEDBERG, E., KRISTENSSON, A., OHLSSON, M., JOHANSSON, C., JOHANSSON, P.-Å., SWIETLICKI, E., VESELY, V., WIDEQVIST, U., WESTERHOLM, R.: Chemical and physical characterization of emissions from birch wood combustion in a wood stove. *Atmospheric Environment* 36(2002), S. 4823-4837, doi: 10.1016/S1352-2310(02)00417-X
- HEINZ, T. 2019. Messung und Bewertung von Dioxinen in Melpitz. Müller-BBM GmbH
- HOVORKA, J., POKORNA, P., HOPKE, P. K., KRUMAL, K., MIKUSKA, P., PISOVA, M.: Wood combustion, a dominant source of winter aerosol in residential district in proximity to a large automobile factory in Central Europe. *Atmospheric Environment* 113(2015), S. 98-107, doi: 10.1016/j.atmosenv.2015.04.068
- IINUMA, Y., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., MÜLLER, K., ANDREAE, 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), doi: doi:10.1029/2006JD007120
- 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, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.11.020
- KAMINSKI, P., BAYER, T., EHRLICH, C. 2017: Einfluss von Holzheizungen im innerstädtischen Bereich. vol 02. Fachinformation des Landesamtes für Umweltschutz Sachsen-Anhalt Fachbereich Immissionsschutz, Klimaschutz
- KASURINEN, S., JALAVA, P. I., HAPPO, M. S., SIPPULA, O., USKI, O., KOPONEN, H., ORASCHE, J., ZIMMERMANN, R., JOKINIEMI, J., HIRVONEN, M. R.: Particulate emissions from the combustion of birch, beech, and spruce logs cause different cytotoxic responses in A549 cells. *Environmental Toxicology* 32(2017), S. 1487-1499, doi: 10.1002/tox.22369
- KOCBACH BØLLING, A., PAGELS, J., YTTRI, K. E., BARREGARD, L., SALLSTEN, G., SCHWARZE, P. E., BOMAN, C.: Health effects of residential wood smoke particles: the importance of combustion conditions and physicochemical particle properties. *Particle and Fibre Toxicology* 6(2009), S. 29, doi: 10.1186/1743-8977-6-29
- LAUPSA, H., DENBY, B., LARSSON, S., SCHAUG, J.: Source apportionment of particulate matter (PM_{2.5}) in an urban area using dispersion, receptor and inverse modelling. *Atmospheric Environment* 43(2009), S. 4733-4744, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.07.010
- LENSCHOW, P., ABRAHAM, H. J., KUTZNER, K., LUTZ, M., PREUß, J. D., REICHENBÄCHER, W.: Some ideas about the sources of PM₁₀. *Atmospheric Environment* 35(2001), S. S23-S33, doi: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00122-4](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00122-4)
- LfU 2007. Feinstaubbelastung im Umfeld von Holz-Kleinfeuerungen und mögliche Emissionsminderungsmaßnahmen - Fachtagung des LfU am 13 November 2007. Bayerisches Landesamt für Umwelt
- LfU 2010. Anforderungen der neuen 1. BImSchV - Fragen zur Umsetzung, Fachtagung des LfU am 28.10.2010. Bayerisches Landesamt für Umwelt
- LÖSCHAU, G., WIEDENSOHLER, A., BIRMILI, W., RASCH, F., SPINDLER, G., MÜLLER, K., WOLF, U., HAUSMANN, A., BÖTTGER, M., ANHALT, M., HERRMANN, H. 2013: Umweltzone Leipzig, Teil 2 Immissionssituation 2011.
- MOTHES, F., VAN PINXTEREN, D., SPINDLER, G., GRÜNER, A., RABE, R., FOMBA, K. W., TUCH, T., MERKEL, M., WIEDENSOHLER, A., HERRMANN, H. 2018: Zusatzbelastung aus Holzheizungen. Erster Zwischenbericht des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens. Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V. (TROPOS) im Auftrag des Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) vom 15.11.2018

- NOLTE, C. G., SCHAUER, J. J., CASS, G. R., SIMONEIT, B. R. T.: Highly polar organic compounds present in wood smoke and in the ambient atmosphere. *Environmental Science & Technology* 35(2001), S. 1912-1919, doi: 10.1021/es001420r
- OIKAWA, P. Y., GE, C., WANG, J., EBERWEIN, J. R., LIANG, L. L., ALLSMAN, L. A., GRANTZ, D. A., JENERETTE, G. D.: Unusually high soil nitrogen oxide emissions influence air quality in a high-temperature agricultural region. *Nature Communications* 6(2015), doi: 10.1038/ncomms9753
- OZGEN, S., CASERINI, S., GALANTE, S., GIUGLIANO, M., ANGELINO, E., MARONGIU, A., HUGONY, F., MIGLIAVACCA, G., MORREALE, C.: Emission factors from small scale appliances burning wood and pellets. *Atmospheric Environment* 94(2014), S. 144-153, doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.032>
- PETTERSSON, E., BOMAN, C., WESTERHOLM, R., BOSTRÖM, D., NORDIN, A.: Stove Performance and Emission Characteristics in Residential Wood Log and Pellet Combustion, Part 2: Wood Stove. *Energy & Fuels* 25(2011), S. 315-323, doi: 10.1021/ef1007787
- PETZOLD, A., OGREN, J. A., FIEBIG, M., LAJ, P., LI, S. M., BALTENSPERGER, U., HOLZER-POPP, T., KINNE, S., PAPPALARDO, G., SUGIMOTO, N., WEHRLI, C., WIEDENSOHLER, A., ZHANG, X. Y.: Recommendations for reporting "black carbon" measurements. *Atmos Chem Phys* 13(2013), S. 8365-8379, doi: 10.5194/acp-13-8365-2013
- PETZOLD, A., SCHÖNLINER, M.: Multi-angle absorption photometry - a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon. *Journal of Aerosol Science* 35(2004), S. 421-441, doi: 10.1016/j.jaerosci.2003.09.005
- PFEIFER, S., BIRMILI, W., SCHLADITZ, A., MÜLLER, T., NOWAK, A., WIEDENSOHLER, A.: A fast and easy-to-implement inversion algorithm for mobility particle size spectrometers considering particle number size distribution information outside of the detection range. *Atmospheric Measurement Techniques* 7(2014), S. 95-105, doi: 10.5194/amt-7-95-2014
- PFEIFER, S., MULLER, T., WEINHOLD, K., ZIKOVA, N., DOS SANTOS, S. M., MARINONI, A., BISCHOF, O. F., KYKAL, C., RIES, L., MEINHARDT, F., AALTO, P., MIHALOPOULOS, N., WIEDENSOHLER, A.: Intercomparison of 15 aerodynamic particle size spectrometers (APS 3321): uncertainties in particle sizing and number size distribution. *Atmospheric Measurement Techniques* 9(2016), S. 1545-1551, doi: 10.5194/amt-9-1545-2016
- RAUTHERBERG-WULFF, A., LUTZ, M., NULIS, E., REICHENBÄCHER, W., KETTSCHAU, A., SCHLICKUM, V., KERSCHBAUMER, A., COUTURIER, G., JARNOTT, F., GERIKE, S., LEHMING, B., ROSE, B., NOTHARD, R., GRUNOW, K., VON STÜLPNAGEL, A., PREUSS, M., HORN, B., GUTIERREZ MERINO, S. 2013. Luftreinhalteplan 2011 bis 2017 für Berlin. Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt Berlin
- SANDRADEWI, J., PRÉVÔT, A. S. H., SZIDAT, S., PERRON, N., ALFARRA, M. R., LANZ, V. A., WEINGARTNER, E., BALTENSPERGER, U.: Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter. *Environmental Science & Technology* 42(2008), S. 3316-3323, doi: 10.1021/es702253m
- SCHMOECKEL, G., BLECKMANN, F. 2011. Kaminöfen umweltfreundlich betreiben. Bayerisches Landesamt für Umwelt (LfU)
- SCHNELLE-KREIS, J., KUNDE, R., SCHMOECKEL, G., DIEMER, J., ABBASZADE, G., ORASCHE, J., ZIMMERMANN, R. 2009. Einfluss der Gebäudeheizung auf Feinstaubimmissionen im Raum Augsburg. Bayerisches Landesamt für Umwelt
- SCHREIBER, U. 2015. Luftschadstoff und Treibhausgasemissionen in Sachsen 2012. Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG)
- UBA 2017. Kleine und mittlere Feuerungsanlagen. <https://www.umweltbundesamt.de/themen/wirtschaft-konsum/industrieverbrennung/feuerungsanlagen/kleine-mittlere-feuerungsanlagen#textpart-1>, Zugriff: 30.08.2018, Umweltbundesamt
- UBA 2018. Emissionsminderung bei Kleinf Feuerungsanlagen. <https://www.umweltbundesamt.de/daten/luft/strategien-zur-emissionsminderung-von/emissionsminderung-bei-kleinf Feuerungsanlagen#textpart-1>, Zugriff: 30.08.2018, Umweltbundesamt

- VAN PINXTEREN, D., MOTHES, F., SPINDLER, G., FOMBA, K. W., HERRMANN, H. 2017. 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 Rezeptormodellierung (PM-Ost). Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt –IX C 57 Berlin; Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie; Landesamt für Umwelt Brandenburg; Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern
- VAN PINXTEREN, D., MOTHES, F., SPINDLER, G., FOMBA, K. W., HERRMANN, H.: Trans-boundary PM10: Quantifying impact and sources during winter 2016/17 in eastern Germany. *Atmospheric Environment* 200(2019), S. 119-130, doi: 10.1016/j.atmosenv.2018.11.061
- VAN PINXTEREN, D., SPINDLER, G., MÜLLER, K., FOMBA, K. W., IINUMA, Y., RASCH, F., WEINHOLD, K., BIRMILI, W., WIEDENSOHLER, A., HERRMANN, H. 2016. Aerosole zur Indikation der Luftqualität im Raum Leipzig. Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG)
- VDI (1996) Verein Deutscher Ingenieure, 2465, Part 1: Measurement of soot – Chemical analysis of elemental carbon by extraction and thermal desorption of organic carbon. Beuth, Berlin
- VIANA, M., ALASTUEY, A., QUEROL, X., GUERREIRO, C., VOGT, M., COLLETTE, A., COLLETT, S., ALBINET, A., FRABOULET, I., LACOME, J.-M., TOGNET, F., DE LEEUW, F. 2016. Contribution of residential combustion to ambient air pollution and greenhouse gas emissions. ETC/ACM Technical Paper 2015/1, European Topic Centre on Air Pollution and Climate Change Mitigation.
- WIEDENSOHLER, A., BIRMILI, W., NOWAK, A., SONNTAG, A., WEINHOLD, K., MERKEL, M., WEHNER, B., TUCH, T., PFEIFER, S., FIEBIG, M., FJARAA, A. M., ASMI, E., SELLEGRI, K., DEPUY, R., VENZAC, H., VILLANI, P., LAJ, P., AALTO, P., OGREN, J. A., SWIETLICKI, E., WILLIAMS, P., ROLDIN, P., QUINCEY, P., HUGLIN, C., FIERZ-SCHMIDHAUSER, R., GYSEL, M., WEINGARTNER, E., RICCOBONO, F., SANTOS, S., GRUNING, C., FALON, K., BEDDOWS, D., HARRISON, R. M., MONAHAN, C., JENNINGS, S. G., O'DOWD, C. D., MARINONI, A., HORN, H. G., KECK, L., JIANG, J., SCHECKMAN, J., McMURRY, P. H., DENG, Z., ZHAO, C. S., MOERMAN, M., HENZING, B., DE LEEUW, G., LOSCHAU, G., BASTIAN, S.: Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions. *Atmospheric Measurement Techniques* 5(2012), S. 657-685, doi: 10.5194/amt-5-657-2012
- WIEDENSOHLER, A., WIESNER, A., WEINHOLD, K., BIRMILI, W., HERMANN, M., MERKEL, M., MULLER, T., PFEIFER, S., SCHMIDT, A., TUCH, T., VELARDE, F., QUINCEY, P., SEEGER, S., NOWAK, A.: Mobility particle size spectrometers: Calibration procedures and measurement uncertainties. *Aerosol Science and Technology* 52(2018), S. 146-164, doi: 10.1080/02786826.2017.1387229

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.lfulg.sachsen.de

Autoren:

Dominik van Pinxteren
Abteilung/Chemie der Atmosphäre
TROPOS, Permoserstr. 15, 04318 Leipzig
Telefon: + 49 341 2717-7029
E-Mail: dominik@tropos.de

Redaktion:

Gunter Löschau, Susanne Bastian, Andrea Hausmann
Abteilung 5/Referat 51
Pillnitzer Platz 3, 01326 Dresden-Pillnitz
Telefon: + 49 351 2612-5100
Telefax: + 49 351 2612-5099
E-Mail: andrea.hausmann@smul.sachsen.de

Fotos:

Gerald Spindler, TROPOS

Redaktionsschluss:

09.04.2020

ISSN:

1867-2868

Hinweis:

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

*Täglich für
ein gutes Leben.*

www.lfulg.sachsen.de