

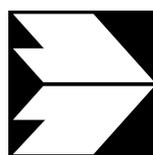


Niedersächsisches  
Landesamt für  
Ökologie



3. Materialienband für Maßnahmenpläne  
nach der EU-Richtlinie zur Luftqualität

## Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet in Niedersachsen



**Ingenieurbüro  
Dr.-Ing. Achim Lohmeyer  
Karlsruhe und Dresden**  
Strömungsmechanik  
Immissionsschutz  
Windkanaluntersuchungen

An der Roßweid 3  
76229 Karlsruhe

Telefon: 0721 / 6 25 10 -0  
Telefax: 0721 / 6 25 10 30  
E-Mail: info.ka@lohmeyer.de  
USt-IdNr.: DE 143545044

### **3. Materialienband für Maßnahmenpläne nach der EU-Richtlinie zur Luftqualität**

## **AEROSOLBUDGET IN EINEM LANDWIRTSCHAFTLICH GEPRÄGTEN GEBIET IN NIEDERSACHSEN**

Auftraggeber: Niedersächsisches Landesamt  
für Ökologie NLÖ  
Göttinger Straße 14  
30449 Hannover

In Zusammenarbeit

**Ing.-Büro  
Dr.-Ing. Achim Lohmeyer,  
Karlsruhe**

Dr.-Ing. W. Bächlin  
Dr.-Ing. A. Lohmeyer

**IUTA, Duisburg**  
Dr.rer.nat. T. Kuhlbusch

**Institut für Verfahrenstechnik  
und Dampfkesselwesen,  
Universität Stuttgart**  
Dipl.-Ing. A. Dreiseidler  
Prof. Dr.-Ing. G. Baumbach

**Niedersächsisches Lan-  
desamt für Ökologie NLÖ,  
Hannover**

Dr. K.-P. Giesen  
Dr. B. Heits  
Dipl.-Met. W.J. Müller  
Dipl.-Ing. E. Klasmeier  
CTA Heike Schmidt

Dezember 2003

Projekt 1890

**INHALTSVERZEICHNIS**

<b>1 EINLEITUNG</b> .....	<b>1</b>
<b>2 AUSGANGSSITUATION EU-RICHTLINIEN</b> .....	<b>3</b>
<b>3 VORGEHENSWEISE – BESCHREIBUNG DER METHODIK</b> .....	<b>5</b>
<b>4 EINGANGSDATEN UND ÖRTLICHE VERHÄLTNISSE</b> .....	<b>7</b>
4.1 Lage der Untersuchungsgebiete .....	7
4.1.1 Landwirtschaftlich geprägtes Gebiet – Bösel.....	7
4.1.2 Städtisch geprägtes Gebiet – Hannover.....	7
4.2 Beschreibung der Stationen .....	12
4.2.1 Station Bösel (BLWW).....	12
4.2.2 Station Hannover (HRSW).....	12
4.3 Meteorologische Daten .....	12
4.4 Sonstige Daten.....	12
<b>5 MESSTECHNISCHE UNTERSUCHUNGEN</b> .....	<b>16</b>
5.1 Gravimetrie.....	16
5.1.1 Digital DHA-80 und Filtermaterial.....	16
5.1.2 Filterkonditionierung und Gravimetrie.....	18
5.2 Analysemethoden.....	19
5.2.1 Bestimmung von EC und OC .....	19
5.2.2 Chemische Analyseverfahren.....	21
5.2.3 Berücksichtigung der Blindwerte und Nachweisgrenzen.....	21
5.2.4 Qualitätssicherung Filteranalysen - Vergleich mit Daten aus anderen Projekten .....	27
5.3 Optische Partikelzähler .....	32
5.3.1 Beschreibung Optische Partikelzähler.....	32
5.3.2 Qualitätssicherung – Optische Partikelzähler.....	33
<b>6 DURCHFÜHRUNG DER MESSUNGEN</b> .....	<b>38</b>
6.1 Filterauswahl .....	38
6.2 Intensivmessphasen - Optische Partikelzähler.....	38

<b>7 MESSERGEBNISSE</b> .....	<b>39</b>
7.1 Meteorologie.....	39
7.2 PM10-Massenkonzentrationen.....	39
7.2.1 PM10-Konzentrationen in Bösel.....	39
7.2.2 PM10-Konzentrationen in Hannover.....	39
7.2.3 Vergleich PM10-Massenkonzentrationen in Bösel und in Hannover.....	44
7.2.4 Vergleich PM10-Massenkonzentrationen mit anderen Stationen.....	46
7.2.5 Vergleich gravimetrische und radiometrische Ergebnisse.....	47
7.2.6 Zusammenfassende Anmerkungen.....	47
7.3 Analyse der Inhaltsstoffe.....	50
7.3.1 Mittlere Massenkonzentrationen und Zeitreihen.....	50
7.3.2 Ionenbilanz $\text{NO}_3^-$ , $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NH}_4^+$ .....	53
7.3.3 Chemische Zusammensetzung von PM10.....	53
7.3.4 Element-/Molekülkonzentrationsdifferenzen von Bösel und Hannover....	57
7.4 Partikelgrößenverteilung.....	58
7.4.1 Statistische Kenngrößen.....	58
7.4.2 Meteorologische und zeitperiodische Einflüsse.....	61
7.4.3 Fazit der Messungen zur Partikelgrößenverteilung.....	83
<b>8 ZUSAMMENFASSUNG UND FAZIT</b> .....	<b>84</b>
<b>9 LITERATUR</b> .....	<b>87</b>
<b>ANHANG A: Partikelgrößenverteilungen – Korrelationen mit Windgeschwindigkeit und Windrichtung</b> .....	<b>90</b>
<b>ANHANG B: Bericht des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen, LÜN: Gleichmäßige PM10-Belastung im Raum Westliches Niedersachsen während des Zeitraumes April 2002 bis März 2003</b> .....	<b>92</b>
<b>ANHANG C: Bericht des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen, LÜN: Durchführung von kontinuierlichen Ammoniak-Immissionsmessungen im Gebiet Bösel, Landkreis Cloppenburg 2002/2003</b> .....	<b>104</b>

Hinweise:

Die Tabellen und Abbildungen sind kapitelweise durchnummeriert.

Literaturstellen sind im Text durch Name und Jahreszahl zitiert. Im Kapitel Literatur findet sich dann die genaue Angabe der Literaturstelle.

Es werden Dezimalpunkte (= wissenschaftliche Darstellung) verwendet, keine Dezimalkommas. Eine Abtrennung von Tausendern erfolgt durch Leerzeichen.

## 1 EINLEITUNG

Die Europäische Union definiert derzeit die Beurteilungsmaßstäbe von Luftschadstoffimmissionen neu. Die EU-Richtlinie zur Luftqualität (96/62/EG), zusammen mit ihren drei Tochter-Richtlinien und dem Entwurf der 4. Tochterrichtlinie geben Grenzwerte und Richtwerte für Komponenten der Luftgüte vor, dazu zählt auch Feinstaub (PM10) und die Partikelinhaltsstoffe wie z.B. Blei (Pb), Arsen (As), Cadmium (Cd), Nickel (Ni).

Während für die bisher üblicherweise erfassten Schadstoffe wie z.B. Stickstoffoxide oder Schwefeldioxid lange Messreihen existieren und somit auch Informationen über die Entstehungsmechanismen und mögliche Reduktionen vorliegen, gibt es für Feinstaub (PM10) bisher nur kurze Messreihen. Die Grenzwerte für PM10 Partikel

- Jahresmittelwert von 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Überschreitungshäufigkeit von 35 Tagen pro Jahr für einen Tagesmittelwert von 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (sog. Kurzzeitwert)

werden landesweit überschritten, der Grenzwert für den Jahresmittelwert in der Regel nur an Verkehrsstationen (Hot Spots), der Kurzzeitgrenzwert auch an städtisch und ländlich geprägten Stationen. Deshalb bedarf es für die Feinstaub-Belastung PM10 einer detaillierteren Betrachtung der Ursachen.

Die vorliegende Untersuchung hat das Ziel, das Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet näher zu beschreiben und mit dem eines städtisch geprägten Gebietes zu vergleichen. Dabei sollen die qualitativen und quantitativen Unterschiede von Feinstaub PM10 für einen Standort, der durch landwirtschaftliche Aktivitäten, insbesondere Tierhaltung geprägt wird und einen Standort in einem Ballungsgebiet, der hinsichtlich seiner PM10-Belastung städtisch geprägt und somit vorwiegend durch den Kraftfahrzeugverkehr dominiert wird, dargestellt und miteinander verglichen werden. Der Vergleich bezieht sich auf die Partikelmassenkonzentrationen und auf die Inhaltsstoffe des Feinstaubes.

Neben der durch die EU-Richtlinien zur Luftqualität vorgegebenen Ermittlung der Partikelmassenkonzentration PM10 gewinnt auch die Betrachtung der Partikelanzahlkonzentration und ihrer Größenverteilung immer mehr an Bedeutung. Dies begründet sich durch zwei wesentliche Aspekte. Zum einen wird derzeit diskutiert, ob hinsichtlich der gesundheitsschädigenden Wirkung von Partikeln eher ein Zusammenhang zwischen der Partikelmassenkonzentration oder der Partikelanzahlkonzentration besteht. Des weiteren kann die Anzahlgrößenverteilung der Partikel Hinweise auf mögliche Quellprozesse geben. Die Untersuchung der Partikelanzahlkonzentration und der Partikelgrößenverteilung wurde in den Untersuchungsauftrag mit aufgenommen. Sie erweitert den Kenntnisstand zur Charakterisierung von Partikelimmissionssituationen an einem Standort bzw. beim Vergleich verschiedener Standorte.

Zur Erfassung der landwirtschaftlich geprägten Verhältnisse wurde durch das Lufthygienische Überwachungssystem Niedersachsen (LÜN) eine neue Station in Bösel (LÜN-Bez.: BLWW) eingerichtet. Als geeignete städtisch geprägte Messstelle wurde die Station in Hannover-Linden (HRSW) ausgewählt. An beiden Stationen werden die derzeit zulässigen Überschreitungshäufigkeiten des Tagesmittelwertes PM10 deutlich überschritten.

## 2 AUSGANGSSITUATION EU-RICHTLINIEN

Die EU-Richtlinie zur Luftqualität (96/62/EG), zusammen mit ihren drei Tochter-Richtlinien (99/30/EG, 2000/69/EG, 2002/3/EG) und dem Entwurf der 4. Tochterrichtlinie geben Grenzwerte und Richtwerte für Luftschadstoffe vor, wie z.B. Stickstoffoxide, Schwefeldioxid, Ozon, Benzol, Kohlenmonoxid, Feinstaub (PM10) oder auch Partikelinhaltsstoffe wie z.B. Blei (Pb), Arsen (As), Cadmium (Cd), Nickel (Ni). Die bereits verabschiedeten EU-Richtlinien wurden bzw. werden in Form der siebten Änderung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes sowie der 22. Bundes-Immissionsschutzverordnung (22. BImSchV, 2002) in nationales Recht umgesetzt.

Nach derzeitigen Messungen und Abschätzungen wird vor allen Dingen die zulässige Überschreitungshäufigkeit des zukünftigen Kurzzeitgrenzwertes für Feinstaub (PM10) an mehreren Messstellen z.T. deutlich überschritten. Deshalb besteht Handlungsbedarf speziell hinsichtlich der Minderung von Feinstaub bzw. hinsichtlich von Maßnahmenplanungen.

In **Tab. 2.1** sind die relevanten Werte für PM10 dargestellt. Zum Schutz von Ökosystemen oder der Vegetation sind weitere Grenzwerte festgelegt worden.

Luftgütekomponente	Mittelungszeitraum für jeweiligen Grenzwert	Grenzwert	max. erlaubte Anzahl der Überschreitungen	Zeitpunkt zum Erreichen des Grenzwertes
<b>Partikel (PM10), Stufe 1</b>	24 Stunden	50 µg/m <sup>3</sup>	35	01.01.2005
	Kalenderjahr	40 µg/m <sup>3</sup>	-	01.01.2005
	24 Stunden	30 µg/m <sup>3</sup>	7	Obere Beurteilungsschwelle <sup>1</sup>
	24 Stunden	20 µg/m <sup>3</sup>	7	Untere Beurteilungsschwelle <sup>2</sup>
	Kalenderjahr	14 µg/m <sup>3</sup>	-	Obere Beurteilungsschwelle
	Kalenderjahr	10 µg/m <sup>3</sup>	-	Untere Beurteilungsschwelle
<b>Partikel (PM10), Stufe 2<sup>3</sup></b>	24 Stunden	50 µg/m <sup>3</sup>	7	01.01.2010
	Kalenderjahr	20 µg/m <sup>3</sup>	-	01.01.2010

Tab. 2.1: Immissions-Grenzwerte (Richtlinie 1999/30/EG) und 22. BImSchV (2002)

<sup>1</sup> Die obere Beurteilungsschwelle gibt einen Wert gemäß Anhang V der Richtlinie 1999/30/EG, unterhalb dessen nach Artikel 6 Absatz 3 der Richtlinie 96/62/EG eine Kombination von Messungen und Modellrechnungen zur Beurteilung der Luftqualität angewandt werden kann.

<sup>2</sup> Die untere Beurteilungsschwelle gibt einen Wert gemäß Anhang V der Richtlinie 1999/30/EG, unterhalb dessen nach Artikel 6 Absatz 4 der Richtlinie 96/62/EG für die Beurteilung der Luftqualität nur Modellrechnungen oder Techniken der objektiven Schätzung angewandt zu werden brauchen.

<sup>3</sup> Die in der Richtlinie 99/30/EG für das Jahr 2010 genannten PM10-Werte der 2. Stufe in **Tab. 2.1** sind nicht in die 22.BImSchV übernommen worden. Laut EG-Richtlinie sind diese Werte der 2. Stufe als Richtgrenzwerte aufzufassen, die nach Artikel 10 der EG-Richtlinie im Rahmen der Revision hinsichtlich Verbindlichkeit zu überprüfen sind.

Der in der alten 22. BImSchV festgelegte Grenzwert für Gesamtstaub wird nun in den neuen Vorschriften durch einen Grenzwert für PM10 (Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner  $10\ \mu\text{m}$ ) ersetzt. Hiermit wird epidemiologischen Untersuchungen Rechnung getragen, die insbesondere Feinstaub für gesundheitlich relevant erachten (Dockery et al., 1993).

Anhand der Graphik in **Abb. 2.1** wird gezeigt, wie sich die Grenzwerte und weitere relevante Beurteilungsgrößen für PM10 in der Richtlinie 1999/30/EG bzw. in der Novellierung der 22. BImSchV darstellen. Als Zeitpunkt zum Erreichen des Grenzwertes ist für PM10 das Jahr 2005 vorgesehen. Bis zum Jahr 2005 sind Toleranzmargen zulässig. Dies sind Prozentsätze des Grenzwertes, um den dieser unter den in der Richtlinie festgelegten Bedingungen überschritten werden darf. In der folgenden Abbildung sind diese Toleranzmargen mit berücksichtigt.

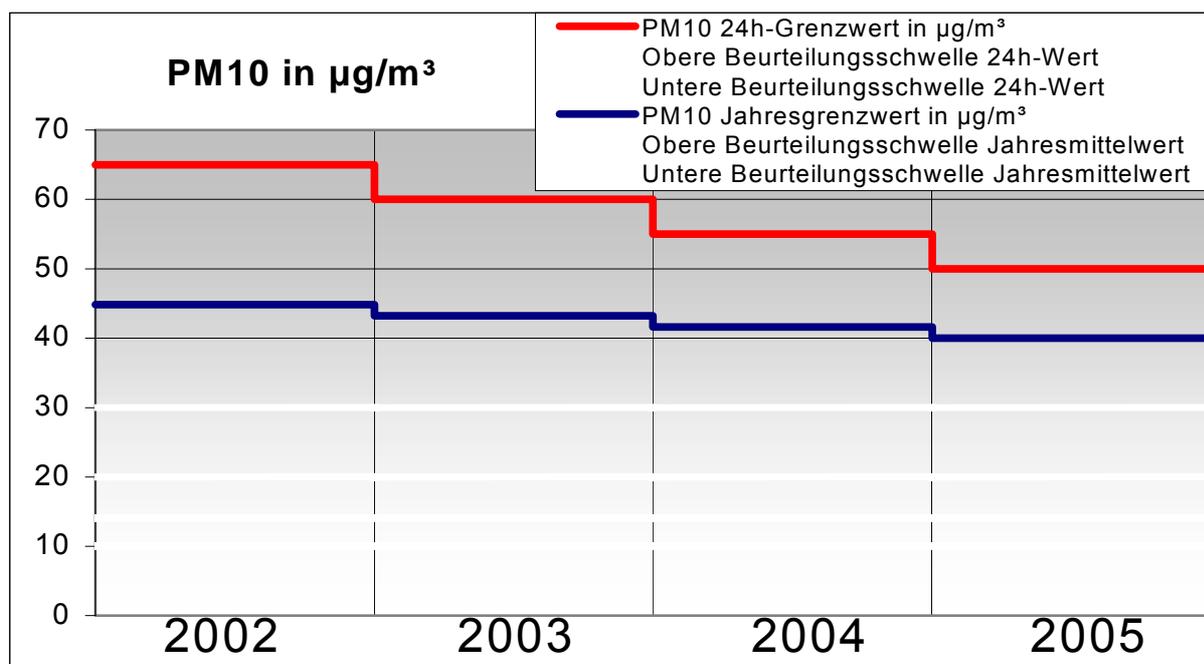


Abb. 2.1: Grenzwert plus Toleranzmargen sowie Beurteilungsschwellen bis zum Jahre 2005

### 3 VORGEHENSWEISE – BESCHREIBUNG DER METHODIK

Ziel der Untersuchung ist die Darstellung der qualitativen und quantitativen Unterschiede von PM10 an den zwei ausgewählten Standorten. Für die gravimetrischen Untersuchungen des Feinstaubes wurden an jedem der beiden Standorte jeweils zwei Digital DHA-80-Sammler mit PM10-Probenahmesystemen betrieben. Über einen Zeitraum von einem Jahr, vom 01.04.2002 bis zum 31.03.2003, wurden Tagesproben auf Filter gezogen. Es wird somit eine Vegetationsperiode repräsentativ abgedeckt.

Die beiden Sammler an einem Standort wurden mit zwei unterschiedlichen Filtermaterialien betrieben, um die Erfordernisse der Stoffanalyse bezüglich des Filtermaterials zu erfüllen. Zum Einsatz kamen Quarzfaser- (QF) und Cellulose-Nitrat-Filter (CNF).

Die Analyse der Staubproben soll eine weitgehende Massenbilanzierung der Inhaltsstoffe mit Blick auf den Massenanteil von Sekundärpartikeln ermöglichen.

Folgende Stoffgruppen bzw. Parameter wurden bestimmt:

- Staubmasse, gravimetrisch unter Beachtung flüchtiger Bestandteile
- Kohlenstoff, differenziert nach EC und OC
- Anionische Stoffe und Ammonium,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$  und  $\text{NH}_4^+$
- Metalle und Halbmetalle, Ca, Mg, Al, Fe, Na, K
- Toxische Spurenmetalle Pb, Cd, Ni, As, Mn, Sb, Cu, Zn.

In Abstimmung mit dem Auftraggeber NLÖ wurde folgende Vorgehensweise gewählt:

Die Cellulose-Nitrat-Filter wurden eingesetzt für

- As, Sb, Ni, Cd, Pb und Mn mit AAS nach Druckaufschluss  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}/\text{HF}$  und
- Ca, Mg, Al, Fe, Na, K, Cu, und Zn mit ICP-OES nach Druckaufschluss  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}/\text{HF}$

und die Quarzfaser-Filter wurden eingesetzt für die Analyse von:

- $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$  nach wässriger Extraktion ionenchromatographisch
- $\text{NH}_4^+$  nach wässriger Extraktion photometrisch
- OC, EC mittels thermischer Desorption

Des Weiteren wurde bezüglich der Auswahl von Filter für die spätere Analyse eine Aufteilung in drei Blöcke vorgesehen:

- Tage mit PM10-Massenkonzentrationen  $> 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- Tage mit PM10-Massenkonzentrationen  $< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und
- Tage mit auffälligen Differenzen zwischen den PM10-Massenkonzentrationen Bösel und Hannover

Neben den gravimetrischen Anteilen und Inhaltsstoffen sind bei der Betrachtung des Feinstaubes und der damit verbundenen Ursachenforschung auch Kenntnisse über die Größenverteilung der emittierten und aus den Vorläufersubstanzen gebildeten Feinstäube (Teilchendurchmesser  $D_p < 10 \mu\text{m}$  und Teilchendurchmesser  $D_p < 1 \mu\text{m}$ ) erforderlich. Prozesse mit hohem Temperaturniveau, wie Verbrennungsprozesse, erzeugen in erster Linie kleine Partikel im Bereich unter  $1 \mu\text{m}$  Durchmesser. Auch Aerosole aus gasförmigen Vorläuferstoffen, wie z.B. Nitrat- oder Sulfatpartikel bestehen in erster Linie aus Partikeln mit einem Durchmesser kleiner  $1 \mu\text{m}$ . Mechanisch erzeugte Partikel im Schwebstaub besitzen im allgemeinen Durchmesser von größer  $1 \mu\text{m}$ . Partikelquellen aufgrund mechanischer Prozesse sind beispielsweise Zerkleinerungs- und Abriebsprozesse. Zu den Abriebsprozessen gehören z.B. der Verschleiß von Bremsbelägen, Reifenprofil und Fahrbahnbelag. Als Quelle von Partikeln gelten die zuvor genannten Verschleißprodukte auch in Form von sich wiederholenden Aufwirbelungsprozessen. Hierbei unterscheidet man zwischen Aufwirbelung aufgrund der natürlichen Luftbewegungen und der durch vorbeifahrende Fahrzeuge verursachten Aufwirbelung (kfz-induzierte Resuspension).

Mit Hilfe zweier optischer Partikelzähler werden Ähnlichkeiten und Unterschiede hinsichtlich der Anzahlkonzentration und der Partikelgrößenverteilung zwischen den beiden Standorten Hannover-Linden und Bösel aufgezeigt. Entscheidend hierbei sind die Gesamtanzahlkonzentrationen im Bereich von  $0.3$  bis  $10 \mu\text{m}$  und die Größenverteilung der Partikel.

Zur Ergänzung des gravimetrischen Programms zur PM10-Konzentrations- und PM10-Inhaltsstoffbestimmung fanden innerhalb des betrachteten Zeitraumes vom 01.04.2002 bis zum 31.03.2003 zwei 14-tägige Intensivmessphasen (April/Mai 2002 und August 2002) mit optischen Partikelzählern statt. Mit einer Zeitauflösung von mindestens 30 Minuten wurden Messungen parallel an beiden Standorten durchgeführt.

Die Auswertung der Daten erfolgt zum einen als direkter Vergleich zwischen beiden Standorten. Zum anderen werden die beiden Messphasen April/Mai und August am jeweiligen Standort miteinander verglichen.

## 4 EINGANGSDATEN UND ÖRTLICHE VERHÄLTNISSE

### 4.1 Lage der Untersuchungsgebiete

#### 4.1.1 Landwirtschaftlich geprägtes Gebiet – Bösel

Als Standort für die Messstelle im landwirtschaftlich geprägten Gebiet wurde eine Station in der Gemeinde Bösel eingerichtet. Bösel ist ein Ort mit ca. 7 500 Einwohnern und liegt im Regierungsbezirk Weser-Ems im Kreis Cloppenburg nördlich der Stadt Cloppenburg und südwestlich von Oldenburg. **Abb. 4.1** zeigt zur Orientierung eine Übersichtskarte. Die eingerichtete Messstelle des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen LÜN liegt am südwestlichen Rand der Gemeinde auf einem freien Platz in unmittelbarer Nähe eines Wohnhauses (siehe **Abb. 4.2**). Die Kennung für diese Station im LÜN-Messnetz ist BLWW.

#### 4.1.2 Städtisch geprägtes Gebiet – Hannover

Die Station Hannover befindet sich auf dem Dach des Gebäudes des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie (NLÖ) in der Göttinger Straße im Stadtteil Linden im Südwesten von Hannover. **Abb. 4.3** zeigt einen Ausschnitt aus dem Lageplan mit der Göttinger Straße.

Die Umgebung westlich der Göttinger Straße ist geprägt durch das frühere Hanomag-Industriegelände, heute Fa. Komatsu-Hanomag AG, und östlich der Göttinger Straße durch städtische 4-6 stöckige Bebauung (siehe **Abb. 4.4**). Teile der Industriegebäude wurden in den letzten Jahren zurückgebaut, es haben sich Baumärkte und Speditionen mit großen Frei- und Parkplatzflächen angesiedelt (vgl. **Abb. 4.5**). Das Dach des NLÖ-Gebäudes ist ein Flachdach mit einer Höhe von ca. 32 m auf dem sich die Station befindet. Die Kennung für diese Station im LÜN-Messnetz lautet HRSW.

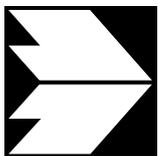


Abb. 4.1: Übersichtskarte zum Standort Bösel



Station Bösel (BLWW)



Abb. 4.2: Gemeinde Bösel und nähere Umgebung - Standort Station Bösel (BLWW)



Abb 4.3: Ausschnitt aus Stadtplan Hannover mit der Göttinger Straße und Standorte der Stationen HRSW (über Dach) und HRVS (Straßenschlucht)



Abb. 4.4: Blick vom Dach des NLÖ-Gebäudes nach Nordosten in Richtung Zentrum Hannover



Abb. 4.5: Blick vom Dach des NLÖ-Gebäudes nach Südwesten

## 4.2 Beschreibung der Stationen

### 4.2.1 Station Bösel (BLWW)

Die Station Bösel (BLWW) steht am Ortsrand, die nächsten landwirtschaftlichen Anwesen finden sich in ca. 200-300 m Entfernung. **Abb. 4.6 oben** zeigt den Messcontainer mit Blick aus Nordwest, **Abb. 4.6 unten** mit Blick aus Südost. Im Hintergrund sind die nächsten landwirtschaftlichen Anwesen erkennbar. Die Messstation Bösel ist in Ergänzung zur Standardausrüstung als LÜN-Station mit zwei Digital DHA-80-Sammlern mit PM10-Probenahmesystem ausgestattet. Die Ansaugöffnungen der beiden Geräte befinden sich in ca. 3 m Höhe. Ein Gerät ist mit Quarzfaser-Filtern bestückt, das andere mit Cellulose-Nitrat-Filtern. Zusätzlich werden seit Mitte 2002 orientierende Ammoniak-Messungen mit kontinuierlich arbeitenden Messgeräten und mit verschiedenen Passivsammlern durchgeführt. Erste Ergebnisse dieses Programms werden im Anhang C kurz beschrieben.

### 4.2.2 Station Hannover (HRSW)

In unmittelbarer Nähe (ca. 20 m Abstand) zur LÜN-Station HRSW wurden auf dem Flachdach des NLÖ-Gebäudes zwei Digital DHA-80-Sammler mit PM10-Probenahmesystem aufgestellt. Die Ansaugöffnungen befinden sich in ca. 2 m Höhe über Dachniveau, die beiden Geräte sind in **Abb. 4.7** dargestellt. Auch hier wird ein Gerät mit Quarzfaser-Filtern und das andere mit Cellulose-Nitrat-Filtern betrieben.

## 4.3 Meteorologische Daten

Die meteorologischen Größen Windgeschwindigkeit und Windrichtung werden an der Station Bösel (BLWW) mittels eines Schalenkreuzanemometers (Fa. Thies) in 10 m Höhe erfasst. An der Station Hannover (HRSW) wird ebenfalls ein Schalenkreuzanemometer eingesetzt, das Messgerät befindet sich ca. 10 m über dem Flachdach in 42 m Höhe bezogen auf das Straßenniveau.

Die Messwerte wurden als Halbstundenmittelwerte abgelegt und daraus für die vorliegende Studie die Tagesmittelwerte gebildet. Die Windrichtung wurde vektoriell gemittelt.

## 4.4 Sonstige Daten

In Ergänzung zu den beiden beschriebenen Stationen wurden weitere Datensätze anderer Stationen zum Vergleich herangezogen. Es sind dies zwei Stationen aus dem niederländischen Messnetz des RIVM, Bilthoven, gekennzeichnet mit den Nummern NL 722, Station Eibergen und NL 929, Station Valthermond, und die durch das Umweltbundesamt betriebenen Stationen Bassum und Waldhof in Niedersachsen. Die **Abb. 4.8** gibt einen Überblick über die geographische Lage der Stationen.

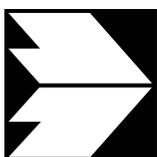


Abb. 4.6: Messstation Bösel in landwirtschaftlich geprägtem Gebiet  
oben : Blick aus Nordwest  
unten: Blick aus Südost

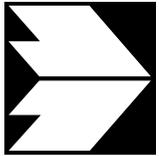


Abb. 4.7: Digital-Sammler auf dem Dach des NLÖ-Gebäudes in Hannover (HRSW) - Blick aus Nordwest

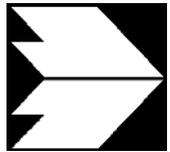
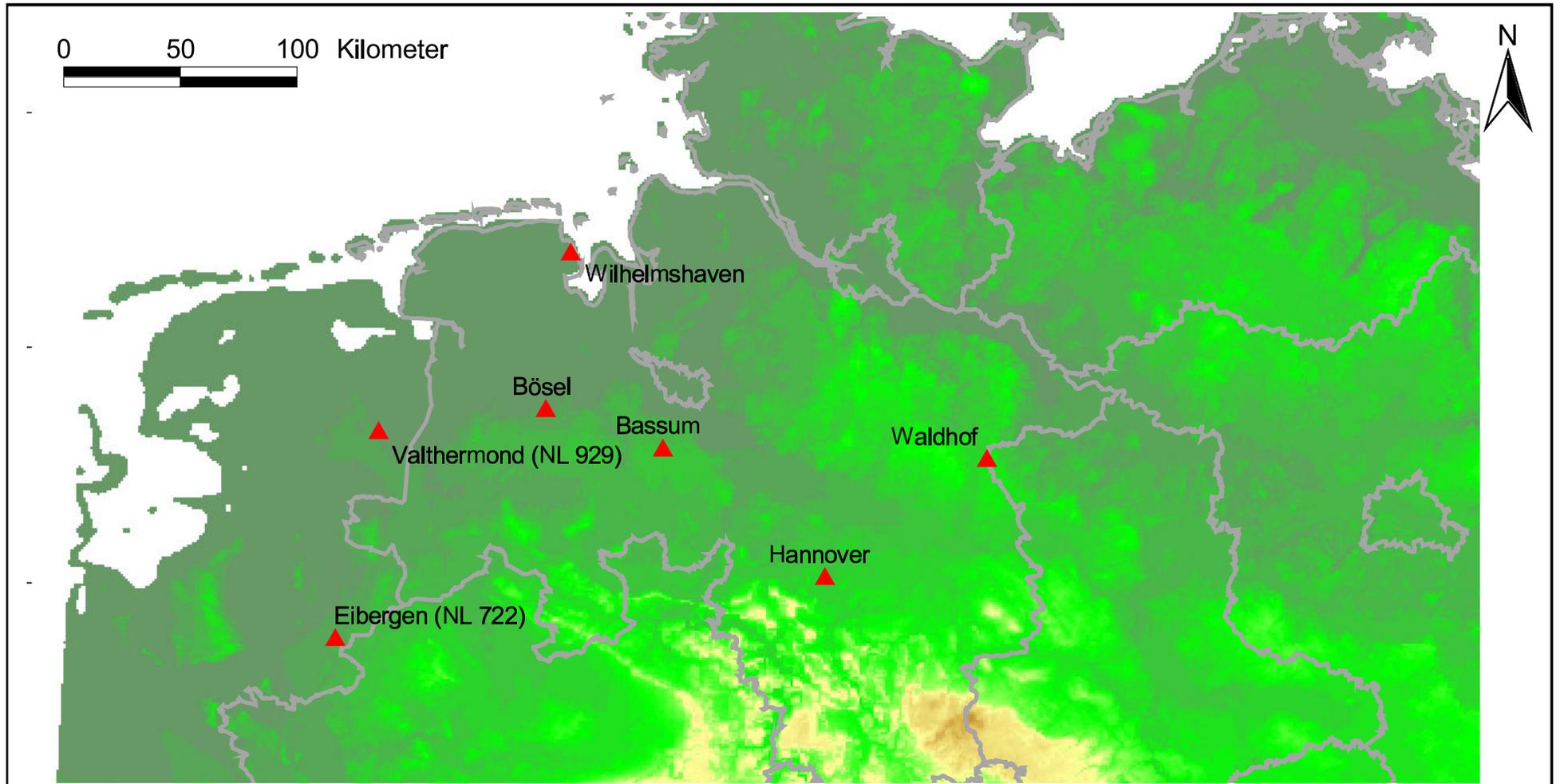


Abb. 4.8: Lageplan der Messstellen - Bösel (BLWW) R 342908 H 587447 - Hannover (HRSW) R 354870 H 580310

## 5 MESSTECHNISCHE UNTERSUCHUNGEN

### 5.1 Gravimetrie

Zur Bestimmung der PM10-Massenkonzentrationen wurden an jedem Standort zwei handelsübliche „High Volume Sampler“ des Typs DIGITEL DHA-80 mit einem fraktionierenden PM10-Probenahmesystem aufgestellt. Die Probenahme, d. h. die Höhe der Probenluftansaugung liegt in Bösel (BLWW) etwa 3 m über Grund und an der Messstation in Hannover (HRSW) etwa 2 m über der Dachfläche des NLÖ-Gebäudes, d.h. in ca. 34 m Höhe bezogen auf das Straßenniveau. Diese Messungen wurden durch das Niedersächsische Landesamt für Ökologie durchgeführt.

#### 5.1.1 Digital DHA-80 und Filtermaterial

Bei dem DIGITEL handelt es sich um einen vollautomatischen Staubsammler mit geregelter Probenluftvolumenstrom. Der Regelbereich des Volumenstromes ist so bemessen, dass eine fraktionierende Probenahme mit einstufigen Impaktoren durchgeführt werden kann. Für den Einsatz von PM10-Ansaugsonden ist ein Luftvolumenstrom von 30 m<sup>3</sup>/h einzustellen, bezogen auf die zum Zeitpunkt der Messung herrschenden Zustandsbedingungen der Umgebungsluft.

Die Probenahme mit dem High Volume Sampler DIGITEL wird in der Richtlinie VDI 2463 Blatt 11 ausführlich beschrieben. Bei der PM10-Probenahme werden die entsprechenden Schwebstaubanteile der angesaugten Probeluft auf Filtern abgeschieden, nachdem eine Vorabscheidung der größeren Partikel am Probeneingang erfolgt ist. Anhand der Fragestellung nach weiteren, sich anschließenden Untersuchungen des abgeschiedenen Staubes können unterschiedliche Filtermaterialien zum Einsatz kommen. Für den automatischen Betrieb der Einzelfilter-Probenahme werden die konditionierten und gewogenen Filter in Filterhalterungen eingespannt und in ein Vorratsmagazin im Messgerät eingelegt. Der automatische Wechsel eines neuen Filters in die Bestromungsposition erfolgte immer um 00.00 Uhr.

Durch die Aufgabenstellung im vorliegenden Projekt waren unterschiedliche Filtermaterialien notwendig, um den relevanten Anteil der Staubinhaltsstoffe (organischer und elementarer Kohlenstoff, Anionen, Ammonium, Schwermetalle) für eine Massenbilanz abschätzen zu können. An den Standorten Hannover und Bösel wurden deshalb Doppelbestimmungen mit DIGITEL-Geräten durchgeführt. Jeweils ein Gerät pro Standort wurde dabei mit Cellulose-Nitrat-Filtern (CNF) bestückt, die anderen mit Quarzfaser-Filtern (QF). Die Einzelprobenahme war auf 24 Stunden begrenzt.

Ein wesentlicher Nachteil der Quarzfaser-Filter sind deren relativ hohen Blindwerte für verschiedene Metalle. Aus diesem Grunde sind in der entsprechenden VDI Richtlinie u.a. auch explizit Cellulose-Nitrat-Filter vorgeschrieben.

#### **5.1.1.1 Kalibrierung des Luftvolumenstroms**

Vor dem Start der einjährigen Messperiode wurden die Probenluftvolumenströme der DIGITEL-Geräte kalibriert. Hierzu wurde ein Balgengaszähler G40 ( $Q_{\min} = 0,4 \text{ m}^3/\text{h}$ ;  $Q_{\max} = 65 \text{ m}^3/\text{h}$ ) an den Probeneingang angeschlossen. Die Messgeräte wurden entsprechend der Probenahmeanforderungen mit den unterschiedlichen Filtermaterialien bestückt.

#### **5.1.1.2 Filterprobenahme mit dem DIGITEL**

Nach der Einwaage werden die Filter in speziellen Filterhaltern fixiert. Jeweils zweimal im Monat wurden 15 Filterhalter mit vorgewogenen Filtern in die dafür vorgesehenen Magazine eingelegt. Zu diesem Zeitpunkt wurde eine entsprechende Anzahl an beaufschlagten Filtern den Geräten entnommen und zur gravimetrischen Analyse ins Labor gebracht. Die Rückwaage erfolgte in exakt der gleichen Weise wie die Einwaage. Durch Differenzbildung beider Wäageergebnisse und der Feuchtigkeitskorrektur erhält man die absolute PM10-Masse einer Tagesprobe, die dividiert durch das protokollierte Probenluftvolumen die relative PM10-Konzentration ergibt.

#### **5.1.1.3 Qualitätssicherung der Doppelbestimmungen**

Für die Bilanzierung der Massenanteile aus zwei unabhängigen Probenahmen zu einem Gesamtergebnis ist es wichtig, dass das Messobjekt durch Doppelbestimmungen gleichwertig repräsentiert wird. Seitens der Gravimetrie war, besonders auch durch die Feuchtekorrektur, eine signifikante Vergleichbarkeit der Ergebnisse bestätigt worden. Im Nachhinein wurde durch zusätzliche Tests die Wiederholbarkeit der Wäageergebnisse und die statistische Betrachtung von Doppelbestimmungen im Vergleich mit Verfahrenskenngrößen der Richtlinie geprüft. Die statistische Auswertung der Doppelbestimmungen, im vorliegenden Fall zeit- und ortsgleiche Probenahmen auf unterschiedlichem Filtermaterial, ergab eine sehr geringe Standardabweichung ( $S_D$ ). Selbst wenn die über den Zeitraum von einem Jahr zu vergleichenden Ergebnisse in Bösel ( $S_D = 1,4 \text{ } \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) noch deutlich besser waren als in Hannover ( $S_D = 2,3 \text{ } \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), so liegen beide standortbezogenen Standardabweichungen noch unterhalb der Vergleichsmessungen, bei denen beides mal das gleiche Filtermaterial (Glasfaser-Filter) zum Einsatz gekommen war (Richtlinie VDI 2463 Blatt 11).

#### 5.1.1.4 Wartung und Instandhaltung der Geräte

Im laufenden Betrieb wurden vierzehntägig die gefetteten Prallplatten der PM10-Probenahmesysteme zur Optimierung der Vorabscheidung gewechselt. Die Reinigung des probenluftführenden Systems wurde vierteljährlich durchgeführt. Die Kontrolle der Lichtschrankenposition zur Volumenstromregelung erfolgte bei jedem Filternachlegen. Anhand von Erfahrungswerten kann von der Stabilität der Volumenstromkalibrierung über mehr als ein Jahr ausgegangen werden.

#### 5.1.2 Filterkonditionierung und Gravimetrie

Der Filtereinsatz erforderte im Hinblick auf die sich anschließende analytische Aufarbeitung schon bei der Konditionierung eine unterschiedliche Behandlungsweise. Die Cellulose-Nitrat-Filter zur Schwermetallanalytik sind bei einem offenen säureoxidierenden Aufschluss seitens des Filtermaterials praktisch blindwertfrei. Voraussetzung für die gravimetrische Analyse ist ein relativ gleichbleibendes Klima im Wägelabor. Schwankende Luftfeuchtigkeit beeinträchtigt das Wäageergebnis. Im hier beschriebenen Fall musste aufgrund einer fehlenden Feuchtigkeitsregelung eine Massekorrektur von 2 mg pro 10 % Luftfeuchtigkeitsänderung berücksichtigt werden.

Die Quarzfaser-Filter mussten vor Gebrauch von anhaftenden Fusseln, die aus dem Stanzprozess resultieren, befreit werden. Danach wurden die Filter in schuppenförmiger Einzelauslage über vier Stunden bei 840 °C im Muffelofen geglüht. Die Äquilibrierung ist unabhängig vom Filtermaterial. Sie muss grundsätzlich immer über mindestens 48 Stunden durchgeführt werden. Danach kann die Masse der Filter bestimmt werden.

Zum Einsatz kam eine „Halbmikrowaage“ der Firma Sartorius vom Typ MC 210 P mit einem Messbereich von 210 Gramm. Der Wägeteller ist ausreichend groß, so dass die im Durchmesser 150 mm großen Filter plan aufliegen. Bei Filter-Massen von ca. 0.6 bis 1.5 g der beiden verwendeten Filtermaterialien reichte eine Auflösung von 10 µg in Bezug auf die Fragestellung aus.

Zur Qualitätssicherung der Wäageergebnisse wird grundsätzlich bei jeder Ein- und Rückwaage, ob Einzelfilter oder Filterreihe, ein unbestaubtes sogenanntes „Referenzfilter“ (gleiches Filtermaterial) mitgewogen. Diese Maßnahme dient der Korrektur der Masse, die nicht durch das Messobjekt definiert ist. Bei Quarzfaser-Filtern beträgt die Abweichung der Massen entsprechend der o.g. Parameter jedoch nur 0.2 mg. Im Rahmen der Ergebnisdarstellung spielt die Korrektur bei Quarzfaser-Filtern keine Rolle.

## 5.2 Analysemethoden

### 5.2.1 Bestimmung von EC und OC

Die Kohlenstoffanalytik wurde vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie (NLÖ) durchgeführt. Das Messprinzip basiert auf der Thermographischen Desorption des Kohlenstoffs, wobei dieser gegliedert wird in zwei organische (OC I und OC II) und eine elementare Fraktion (EC). Mit diesem anerkannten Verfahren kam als Messsystem ein Rußanalysator „RA 10 M“ der Fa. IHW System Technik, Berlin zum Einsatz. Die Analytik für oben genannte Aufgabenstellung wird in der Richtlinie VDI 2465 Blatt 2 beschrieben.

#### 5.2.1.1 Vorgehensweise

Eingesetzt wurde ein Quarzfaser-Filter (QF 20, Ref.-Nr. 10373208) der Fa. Schleicher & Schuell mit einem Durchmesser von 150 mm. Vor ihrem Einsatz zur Probenahme müssen die Filter konditioniert werden, indem sie eine thermische Behandlung im Muffelofen erfahren. Dieses Vorgehen sichert ein erfolgreiches Entfernen von Kohlenstoffspuren auf den Quarzfaser-Filtern, besonders im Hinblick auf die organischen Kohlenstoffanteile.

Nach dieser Prozedur erfolgt die Aufbewahrung bis zum nächsten Arbeitsschritt in einer Petrischale. Nach der 24 Stunden dauernden Beaufschlagung ist zunächst die Betrachtung der Proben hinsichtlich ihrer homogenen Belegung und eventueller Verunreinigungen von Bedeutung. Nach dieser Prüfung werden der Gesamtprobe Teilproben mit einer Keramikstanze von  $\varnothing$  39 mm entnommen. Als Schneidunterlage dient eine entsprechende Teflonplatte. Jeweils zwei solcher ausgestanzter Filter kommen bis zur analytischen Aufarbeitung mit der beaufschlagten Fläche zueinander in eine Petrischale zur Aufbewahrung bei ca. 4 °C in einen Kühlschrank.

Die Inbetriebnahme des Rußanalysators „RA 10 M“ erfolgt nach den Angaben des Herstellers. Die Kohlenstoffanalytik ist hier eine Relativmethode, so dass grundsätzlich vor jeder Analytik der NDIR-CO<sub>2</sub>-Detektor zu kalibrieren ist. Zur Kalibrierung wird als Standard gereinigtes CO<sub>2</sub>-Gas verwendet. Damit werden sowohl die Konzentrationen der zwei organischen Kohlenstofffraktionen als auch die Konzentrationen der elementaren Kohlenstofffraktion vorgegeben. Für die anstehenden Analysen ist der niedrigste Messbereich = 0-500 ppm CO<sub>2</sub> des Detektors in einer 3-Punkt-Kalibrierung vorbereitet worden. Die Injizierung des gasförmigen CO<sub>2</sub> in das Messsystem erfolgt mit einer gasdichten Spritze über ein Septum in den Trägergasstrom.

Den anstehenden Teilfiltern von  $d = 39$  mm werden nochmals mittels eines runden Stanzmessers aus Stahl (St37) auf einer mit Aluminiumfolie ausgestatteten Metallplatte zur Doppelbestimmung zwei Proben à 9 mm für diese Kohlenstoffanalyse entnommen. Jedes 9 mm

im Durchmesser große Filterstück wird einzeln dem IR–Ofen in einem V4A–Schiffchen über eine Probenschleuse zugeführt. Ein erstelltes Temperaturprogramm wird aktiviert und ermöglicht den weiteren hintereinander ablaufenden Prozess im IR-Ofen:

- der OC I–Anteil wird in einer inerten 100%igen Heliumatmosphäre zwischen 80–350 °C während ca. 1 Minute 50 Sekunden verdampft bzw. desorbiert;
- der OC II–Anteil in einer inerten 100%igen Heliumatmosphäre von 350–620 °C während der nächsten ca. 3 Minuten pyrolysiert bzw. desorbiert;
- der EC–Anteil in einem Gemisch aus dem Inertgasstrom plus bis zu 20 % zugesetztem Sauerstoff bei 400–620 °C in weiteren 3 Minuten kontrolliert verbrannt

Die Auftrennung der organischen Kohlenstoffanteile in zwei Fraktionen (OC I = leicht flüchtig & OC II = schwerer flüchtig) stellt das Besondere an diesem Messprinzip da.

Die auf diese Weise erhaltenen Kohlenwasserstoffe und die gasförmigen Verbrennungsprodukte gelangen in einen auf 900 °C temperierten CO<sub>2</sub>–Oxidationskatalysator und zur Bestimmung in einen Nichtdispersiven–Infrarot–CO<sub>2</sub>–Detektor. Die Auswertung der Kalibrierungen und der Filterproben geschieht über ein speziell für dieses Verfahren aus der Chromatographie erstelltes Softwareprogramm, der Flächenintegration der erhaltenen Peaks.

Für die Kalibrierung heißt das: Das Messsignal wird in mV\*min. über die Kalibriergerade umgerechnet in das CO<sub>2</sub>–Volumen.

Für die Teilproben heißt das: die Kohlenstoffmasse des Gesamtfilters [µg/Filter] erfolgt aus der Umrechnung der Messergebnisse von [mV\*min] über die Kalibriergerade und der Hochrechnung auf die Gesamtfläche des Filters mit einem wirksamen Durchmesser von 140 mm. Die Rußkonzentration wird später im Bericht auf ein normiertes Luftvolumen angegeben.

Das zur Anwendung gekommene Temperaturprogramm ist in **Abb. 5.1** dargestellt, der schematische Aufbau des Rußanalysators RA 10 M ist in **Abb. 5.2** gezeigt.

### 5.2.1.2 Qualitätssicherung

Die Qualitätssicherung umfasst im allgemeinen umfangreiche Maßnahmen, die nachfolgend aufgelistet sind:

- Einweisung und kontinuierliche Besprechungen mit den Projektbeteiligten
- regelmäßige Wartung des Messsystems
- Kalibrierungen

- entsprechende Behandlung und Lagerung des zu untersuchenden Materials
- die regelmäßige Bestimmung von Kohlenstoff bei Leerwertfiltern der zum Einsatz gekommenen Quarzfaser-Filter
- die kontinuierliche Untersuchung an Teilproben eines Referenzfilters mit bekanntem Rußgehalt

Die Qualitätssicherung im besonderen:

- Es werden regelmäßig Vergleichsmessungen auf der Basis von Ringversuchen mit anderen Laboratorien durchgeführt. Mehrere Teilnahmen an Ringversuchen haben gezeigt, dass die Kohlenstoffanalytik, wie sie im Dezernat 4.6 – Luftreinhaltung – NLÖ praktiziert wird, im Vergleich gut abschneidet.

### 5.2.2 Chemische Analyseverfahren

Die weiteren chemischen Analysen wurden durch das Institut für Energie- und Umwelttechnik e.V., IUTA, Duisburg durchgeführt, das wiederum Unteraufträge an die Analyselaboratorien UCL und ALGE vergeben hat. Die Filter für die chemische Analyse wurden auf dem gesamten Transportweg gekühlt ( $< 20^{\circ}\text{C}$ ), um das Verdampfen semivolatiler Verbindungen, insbesondere von Ammoniumnitrat ( $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ), zu vermeiden. Die Lieferung der beprobten Filter erfolgte in 4 Chargen, die separat auf die chemischen Inhaltsstoffe analysiert wurden. In **Tab. 5.1** sind die Methoden der chemischen Analytik für die einzelnen Chargen zusammengefasst. In Abschnitt 5.2.4 sind die Ergebnisse von Vergleichsmessungen zwischen dem IUTA und dem NLÖ für alle Komponenten dargestellt.

Mit jeder Charge wurden auch jeweils ein Blindwertfilter pro Station und Filtermaterial (CNF und QF) geliefert und chemisch analysiert. Es wurden also 8 Blindwertfilter pro Filtermaterial untersucht.

Insgesamt zeigten alle Vergleiche (IUTA/NLÖ und IUTA/UCL sowie IUTA/ALGE) gute Übereinstimmungen. Die Werte aus den Doppel- und den Blindwertfilterbestimmungen bilden die Basis für die Berechnung der Nachweisgrenzen und der Unsicherheiten.

### 5.2.3 Berücksichtigung der Blindwerte und Nachweisgrenzen

**Tab. 5.2** und **Tab. 5.3** geben eine Übersicht über die Konzentrationen der Ionen und Metalle auf den Blindwertfiltern.

Bei den Blindwerten zeigte sich bis auf die Ionen  $\text{Cl}^-$  und  $\text{NH}_4^+$  kein signifikanter Unterschied zwischen den einzelnen Chargen. Die in der **Tab. 5.2** und **Tab. 5.3** aufgeführten mittleren Blindwertkonzentrationen wurden von den Messwerten abgezogen, wobei bei der Charge 1 für die Ionen  $\text{Cl}^-$  und  $\text{NH}_4^+$  die mittleren Blindwerte dieser Charge verwendet wurden.

<b>Rampen - Nr.</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>3</b>	<b>4</b>	<b>5</b>	<b>6</b>	<b>7</b>	<b>8</b>
<b>Kohlenstofffraktion</b>	<b>OC</b>						<b>EC</b>	
<b>Integrationsfenster</b>								

<b>Temperaturgradient [°C / min]</b>	0	600	600	600	1500	600	400	1500
<b>Temperaturniveau [°C]</b>	80	350	620	620	400	300	700	80
<b>Haltezeit [min]</b>	0.2	1.2	1.2	0.6	0.3	0.5	0.9	Ende
<b>Beginn der Haltezeit [min]</b>	0	0.65	2.3	3.5	4.25	4.71	6.21	7.53
<b>Ende der Haltezeit [min]</b>	0.2	1.85	3.5	4.1	4.55	5.21	7.11	7.53
<b>Gase</b>	<b>Helium (Inertgas )</b>					<b>Helium / Sauerstoff</b>		

**Erklärungen:**

**Rampe 1** = stellt die Anfangstemperatur dar

**Rampe 5+6** = wird zur Umstellung von 100 % Helium auf ein Gasgemisch von Helium plus bis zu 20 %iger Sauerstoffzufuhr benötigt

**Rampe 8** = signalisiert das Analysenende

**Rampe 2,3,4** = regelt den Analysenablauf für die Bestimmung des organischen Kohlenstoffs

**Rampe 7** = regelt den Analysenablauf für die Bestimmung des elementaren Kohlenstoffs

Abb. 5.1: Temperatur–Zeitprogramm der thermographischen Kohlenstoffanalyse für Immissionsstaubproben

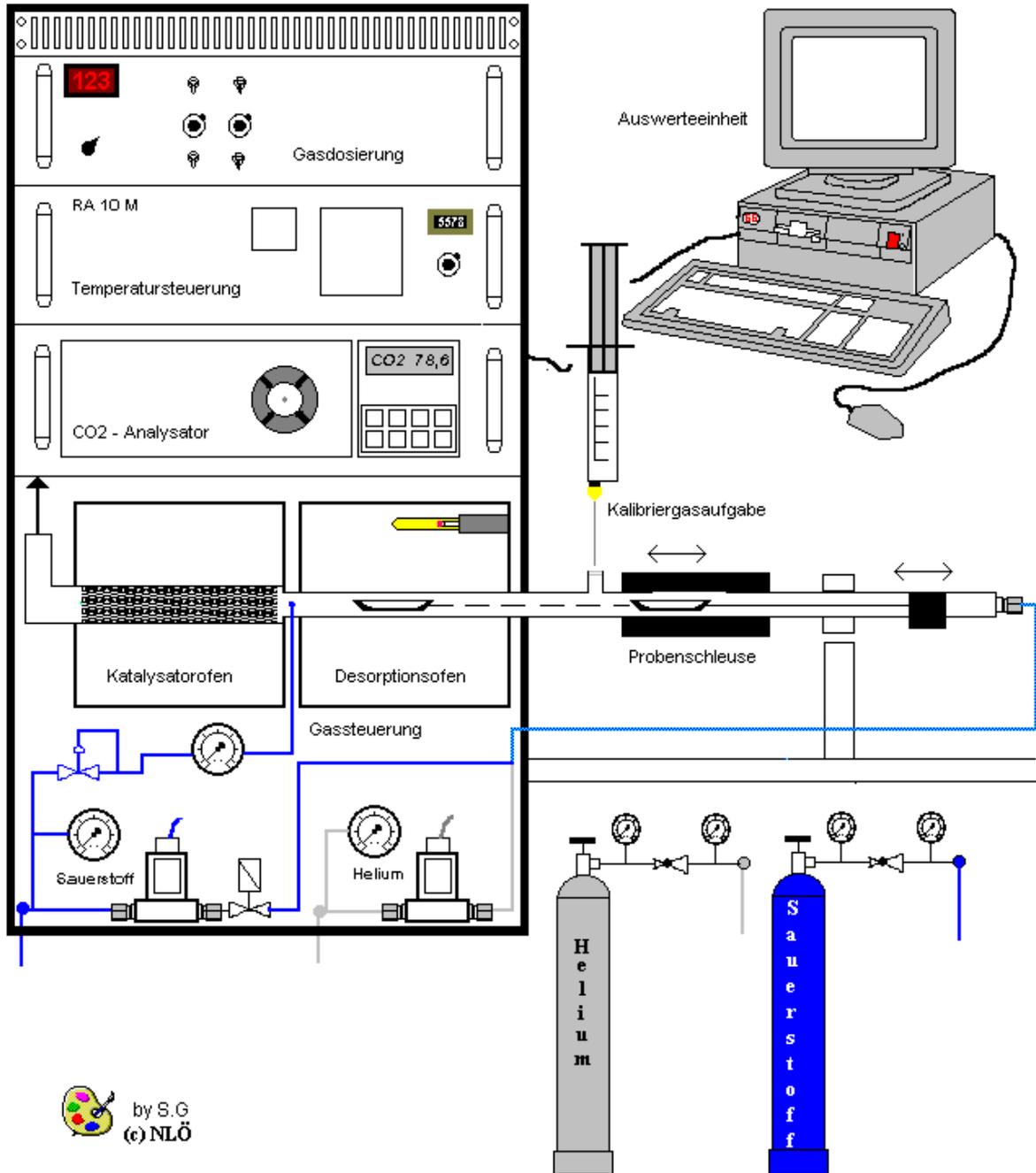


Abb. 5.2: Aufbau des Analysenmessgerätes RA 10 M

	<b>Anionenbestimmung</b>	<b>Ammoniumbestimmung</b>	<b>Bestimmung der Metalle</b>
<b>1. Charge</b> Bearbeitung durch IUTA	1 Teilfilter a 50 mm ø in 5 ml Wasser geschüttelt  Analyse mit IC gemäß DIN EN ISO 10304	1 Teilfilter a 50 mm ø in 5 ml Wasser geschüttelt  Analyse photometrische Bestimmung gemäß DIN 38406 E 5*	1 Teilfilter a 50 mm ø in 10 ml Aufschluss gemäß VDI 2267 (Mikrowelle, Zugabe von HF)  ICP-OES für Al, Ca, Mg, Na, K, Fe, Zn AAS für As, Cd, Sb, Mn, Cu, Pb, Ni gemäß VDI 2267 und VDI 2268
<b>2. Charge</b> Bearbeitung IUTA UCL/ALGE	UCL 2 Teilfilter a 50 mm ø in 15 ml Wasser, 15 min Ultraschall  Analyse mit IC gemäß DIN EN ISO 10304	UCL Einsatz des Eluates der Anionenbestimmung  Analyse FIA-photometrische Bestimmung gemäß DIN EN ISO 11732	IUTA 2 Teilfilter a 50 mm ø in 10 ml Aufschluss gemäß VDI 2267 (Mikrowelle, Zugabe von HF) ALGE ICP-OES für Al, Na, K, Ca, Mg, Fe, Mn, Cu, Zn ICP-MS für Sb, Cd, As, Pb, Ni gemäß VDI 2267 und DIN 38406 E29
<b>3. Charge</b> Bearbeitung UCL/ALGE	UCL 2 Teilfilter a 39 mm ø in 15 ml Wasser, 15 min Ultraschall  Analyse mit IC gemäß DIN EN ISO 10304	UCL Einsatz des Eluates der Anionenbestimmung  Analyse FIA-photometrische Bestimmung gemäß DIN EN ISO 11732	ALGE 2 Teilfilter a 39 mm ø in 10 ml Aufschluss gemäß VDI 2267 (Mikrowelle, Zugabe von HF)  ICP-OES für Al, Na, K, Ca, Mg, Fe, Mn, Cu, Zn ICP-MS für Sb, Cd, As, Pb, Ni gemäß VDI 2267 und DIN 38406 E29
<b>4. Charge</b> Bearbeitung UCL/ALGE	UCL 3-4 Teilfilter a 39 mm ø in 15 ml Wasser, 15 min Ultraschall  Analyse mit IC gemäß DIN EN ISO 10304	UCL Einsatz des Eluates der Anionenbestimmung  Analyse FIA-photometrische Bestimmung gemäß DIN EN ISO 11732	ALGE 2 Teilfilter a 39 mm ø in 10 ml Aufschluss gemäß VDI 2267 (Mikrowelle, Zugabe von HF)  ICP-OES für Al, Na, K, Ca, Mg, Fe, Mn, Cu, Zn ICP-MS für Sb, Cd, As, Pb, Ni gemäß VDI 2267 und DIN 38406 E29

\* Die Lösungen zur photometrischen Bestimmung waren unauffällig (nicht gefärbt)

Tab. 5.1: Methodik der chemischen Analysen der 4 Filterchargen

	<b>Cl<sup>-</sup></b> <b>µg/Filter</b>	<b>NO<sub>3</sub><sup>-</sup></b> <b>µg/Filter</b>	<b>SO<sub>4</sub><sup>2-</sup></b> <b>µg/Filter</b>	<b>NH<sub>4</sub><sup>+</sup></b> <b>µg/Filter</b>
Mittelwert nur 1. Charge	62.5			44.4
Mittelwert Chargen	13.4 (2-4)	23.4 (1-4)	27.6 (1-4)	3.0 (2-4)
Median	12.7	21.2	30.0	1.0
STABW abs	3.7	13.2	12.8	4.4
STABW %	28 %	57 %	47 %	148 %
3fache STABW = NG	11.2	39.7	38.5	13.2
Min	10.0	10.0	10.0	1.0
Max	19.9	49.7	41.1	11.9
Bemerkung	1. Charge ver- schieden		1 Ausreißer	1. Charge ver- schieden

Tab. 5.2: Blindwerte der Ionenbestimmungen (Quarzfaser-Filter)

	<b>Al</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Ca</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Mg</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Na</b> <b>µg/Filter</b>	<b>K</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Fe</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Mn</b> <b>µg/Filter</b>
Mittelwert	8.13	92.66	14.94	388.38	21.95	10.85	0.297
Median	7.26	87.45	15.12	349.72	22.43	9.37	0.199
STABW abs	3.24	14.30	3.26	87.57	10.29	4.11	0.176
STABW %	40 %	15 %	22 %	23 %	47 %	38 %	59 %
3fache STABW = NG	9.73	42.91	9.78	262.70	30.87	12.34	0.527
Min	4.84	80.66	11.29	311.53	3.31	7.29	0.13
Max	14.52	123.95	21.21	540.40	37.91	18.23	0.56
Ausreißer	1	0	0	0	0	2	1
	<b>Sb</b> <b>µg/Filter</b>	<b>As</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Ni</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Cd</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Cu</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Zn</b> <b>µg/Filter</b>	<b>Pb</b> <b>µg/Filter</b>
Mittelwert	0.020	0.124	0.655	0.012	0.489	2.840	0.084
Median	0.017	0.040	0.683	0.012	0.331	1.876	0.067
STABW abs	0.011	0.139	0.134	0.009	0.338	2.107	0.029
STABW %	53 %	112 %	20 %	74 %	69 %	74 %	34 %
3fache STABW = NG	0.032	0.417	0.401	0.026	1.014	6.322	0.086
Min	0.010	0.017	0.488	0.002	0.265	0.86	0.067
Max	0.033	0.324	0.807	0.025	1.213	6.58	0.136
Ausreißer	0	0	2	0	1	2	0

Tab. 5.3: Blindwerte der Metalle (Cellulose-Nitrat-Filter)

Bis auf Chlorid (**Tab. 5.4**) liegen die mittleren Blindwerte deutlich unterhalb der (unkorrigierten) Messwerte der jeweiligen Charge (maximaler Anteil 39 % bei Nitrat 2. Charge). Bei Chlorid sind teilweise hohe Anteile des Blindwertes an den bestimmten Konzentrationen aufgetreten. Dieses liegt zum einen an dem relativ hohen Blindwert in Charge 1 und an den z.T. sehr niedrigen Konzentrationen für Chlorid. Bei Wetterlagen mit Luftmassen kontinentaler Herkunft liegen die Chloridwerte häufig sehr niedrig oder unterhalb der Nachweisgrenze.

		Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
<b>1. Charge</b>	Mittelwert	59 %	2 %	1 %	3 %
	Min	<b>134 %</b>	18 %	2 %	26 %
	Max	11 %	0 %	0 %	1 %
<b>2. Charge</b>	Mittelwert	15 %	5 %	1 %	0 %
	Min	<b>110 %</b>	39 %	3 %	6 %
	Max	1 %	0 %	0 %	0 %
<b>3. Charge</b>	Mittelwert	4 %	1 %	1 %	0 %
	Min	67 %	34 %	7 %	8 %
	Max	1 %	0 %	0 %	0 %
<b>4. Charge</b>	Mittelwert	3 %	0 %	0 %	0 %
	Min	90 %	12 %	6 %	3 %
	Max	1 %	0 %	0 %	0 %

Tab. 5.4: Anteil der Ionen-Blindwerte an den Messwerten (Mittelwert, Minimum und Maximum) der jeweiligen analysierten Chargen

**Tab. 5.5** gibt für die Metalle eine Übersicht über die Anteile der Blindwerte an den gemessenen Konzentrationen in den einzelnen Chargen. Anhand der Tabelle ist zu erkennen, dass hauptsächlich die Konzentrationsminima von Natrium und Arsen unterhalb der Blindwerte liegen. Dies liegt an den relativ hohen Blindwerten für Natrium und Arsen und den teilweise niedrigen Konzentrationen der entsprechenden Elemente in der PM10-Fraktion.

Elemente		Al	Ca	Mg	Na	K	Fe	Mn	Sb	As	Ni	Cd	Cu	Zn	Pb
<b>1. Charge</b>	Mittelwert	9 %	50 %	24 %	47 %	19 %	5 %	5 %	0 %	3 %	23 %	7 %	9 %	11 %	2 %
	Min	44 %	<b>125 %</b>	98 %	<b>105 %</b>	63 %	27 %	23 %	1 %	<b>154 %</b>	74 %	15 %	55 %	35 %	7 %
	Max	3 %	19 %	9 %	27 %	9 %	1 %	1 %	0 %	1 %	10 %	3 %	3 %	4 %	1 %
<b>2. Charge</b>	Mittelwert	5 %	26 %	20 %	70 %	8 %	4 %	3 %	1 %	19 %	39 %	7 %	8 %	10 %	1 %
	Min	70 %	90 %	48 %	<b>111 %</b>	32 %	45 %	35 %	28 %	<b>104 %</b>	<b>111 %</b>	<b>101 %</b>	90 %	71 %	22 %
	Max	1 %	10 %	8 %	20 %	4 %	2 %	1 %	0 %	9 %	11 %	2 %	3 %	3 %	0 %
<b>3. Charge</b>	Mittelwert	8 %	40 %	28 %	68 %	9 %	4 %	4 %	1 %	7 %	28 %	3 %	6 %	6 %	1 %
	Min	63 %	94 %	65 %	<b>174 %</b>	37 %	50 %	35 %	10 %	<b>191 %</b>	59 %	21 %	49 %	68 %	12 %
	Max	3 %	17 %	9 %	25 %	2 %	1 %	2 %	0 %	2 %	12 %	1 %	2 %	2 %	0 %
<b>4. Charge</b>	Mittelwert	8 %	35 %	23 %	56 %	10 %	4 %	4 %	1 %	7 %	13 %	3 %	6 %	7 %	1 %
	Min	53 %	94 %	90 %	<b>115 %</b>	42 %	20 %	17 %	10 %	97 %	40 %	22 %	33 %	25 %	8 %
	Max	1 %	12 %	9 %	23 %	2 %	1 %	1 %	0 %	2 %	4 %	1 %	2 %	3 %	0 %

Tab. 5.5: Anteil der Blindwerte der Metalle an den Messwerten (Mittelwert, Minimum und Maximum) der jeweiligen analysierten Chargen

Unter Einbezug der in **Tab. 5.2** und **Tab. 5.3** gegebenen Nachweisgrenzen ergeben sich die in **Tab. 5.6** für die Elemente/Moleküle aufgeführte Anzahl der Tage unterhalb der Nachweisgrenze.

**Tab. 5.6** zeigt, dass insbesondere bei Na und Cl<sup>-</sup> nur 36 %-62 % der Werte höher als die Nachweisgrenzen liegen. Auch bei Arsen liegen nur 55 % (Bösel) bzw. 59 % (Hannover) der Werte oberhalb der Nachweisgrenze. Von den anderen Elementen liegen zumeist 90 %-100 % der Werte oberhalb der Nachweisgrenze.

	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca	Mg	Al	Fe	Na	K	Pb	Cd	Ni	As	Mn	Sb	Cu	Zn
<b>Bösel</b>																		
Anzahl < NG	37	0	0	0	23	4	6	1	62	1	0	7	8	44	0	13	10	10
% > NG	62	100	100	100	76	96	94	99	36	99	100	93	92	55	100	87	90	90
<b>Hannover</b>																		
Anzahl < NG	57	2	0	0	8	3	0	0	58	1	0	4	4	40	0	12	1	3
% > NG	41	98	100	100	92	97	100	100	40	99	100	96	96	59	100	88	99	97

Tab. 5.6: Tage unterhalb der Nachweisgrenze (von 97 Messtagen)

**Tab. 5.7** gibt eine Übersicht der Nachweisgrenzen für die einzelnen Elemente und Verbindungen, bezogen auf ein Probevolumen von 700 m<sup>3</sup>.

	Cl <sup>-</sup> µg/m <sup>3</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> µg/m <sup>3</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> µg/m <sup>3</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> µg/m <sup>3</sup>	Ca ng/m <sup>3</sup>	Mg ng/m <sup>3</sup>	Al ng/m <sup>3</sup>	Fe ng/m <sup>3</sup>	Na ng/m <sup>3</sup>
NG	0.01	0.03	0.06	0.02	61	14	14	18	375
	K ng/m <sup>3</sup>	Pb ng/m <sup>3</sup>	Cd ng/m <sup>3</sup>	Ni ng/m <sup>3</sup>	As ng/m <sup>3</sup>	Mn ng/m <sup>3</sup>	Sb ng/m <sup>3</sup>	Cu ng/m <sup>3</sup>	Zn ng/m <sup>3</sup>
NG	44.1	0.12	0.04	0.57	0.60	0.75	0.045	1.4	9.0

Tab. 5.7: Nachweisgrenzen bezogen auf 700 m<sup>3</sup> Probevolumen

#### 5.2.4 Qualitätssicherung Filteranalysen - Vergleich mit Daten aus anderen Projekten

Im Rahmen der Qualitätssicherung wurden mehrere Filterteile vom NLÖ sowie dem IUTA e.V. auf deren Inhaltsstoffe untersucht. Dieser Vergleich soll zum einen der Qualitätssicherung eines Labors dienen, aber auch eine Vergleichbarkeit des hier erhobenen Datensatzes mit anderen qualitätsgesicherten Datensätzen gewährleisten.

Im Rahmen einer ersten Serie von Vergleichsmessungen mit fünf CN-Filtern ergaben sich die im ersten Teil der **Tab. 5.8** gezeigten Ergebnisse. Der Regressionskoeffizient R<sup>2</sup> ist ein

Maß für die Streuung der Messwerte. Generell liegt der Regressionskoeffizient deutlich über 0.9. Bei As, Sb und Pb zeigten sich jedoch deutlich niedrigere Regressionskoeffizienten und deutliche Abweichungen in den Steigungen und den Verhältnissen der bestimmten mittleren Massenkonzentrationen.

Da diese Differenzen vorrangig bei den Elementen mit sehr niedrigen Massenkonzentrationen bestimmt wurden und die Messwerte nahe an den jeweiligen Nachweisgrenzen liegen, wurde eine zweite Vergleichsserie mit 10 CN-Filtern mit deutlich höherer Belegung durchgeführt. Die Ergebnisse der 2. Vergleichsreihe sind im zweiten Teil der **Tab. 5.8** aufgeführt. Bei dieser zweiten Reihe ergaben sich bessere Vergleichbarkeiten. Alle Regressionskoeffizienten liegen über 0.9 und für die Erdalkalimetalle und Aluminium bei 0.99. Sowohl bei den Steigungen als bei den Massenverhältnissen liegen fast alle Werte im Bereich um  $1.0 \pm 0.3$ .

**Abb. 5.3** zeigt graphisch die Vergleichbarkeit der Massenkonzentrationsverhältnisse (IUTA zu NLÖ). Für die Elemente Cd und Cu zeigt die 2. Vergleichsserie deutlich bessere Ergebnisse, wohingegen bei den Elementen As, Ni und Pb das Verhältnis deutlich unter 1 bei etwa 0,8 bleibt. Unter Berücksichtigung, dass die hier durchgeführten Vergleiche für sehr niedrige Konzentrationen durchgeführt wurden und die Probenaufbereitungsschritte beinhalten, ist die Vergleichbarkeit der Messergebnisse für die hier gezeigten Elemente zwischen den beiden beteiligten Laboratorien als gut bis sehr gut zu beurteilen.

Da die Analysen der Metalle der Chargen 2-4 an ein Fremdlabor (ALGE) vergeben wurden, wurden mit diesem Labor auch Vergleichsuntersuchungen der Komplettanalysen (inkl. Aufschluss) durchgeführt. Hierzu wurden 5 belegte CN-Filter und 1 CNF-Blindwertfilter verwendet. Die Ergebnisse des Vergleiches sind in **Tab. 5.9** zusammengefasst. Maße der Vergleichbarkeit der Messungen sind der Regressionskoeffizient, die Steigung, das Verhältnis der Mittelwerte und die Schwankungsbreite (absolute Differenz der Doppelbestimmung dividiert durch den Mittelwert). Die Schwankungsbreite wird hier als Maß der Unsicherheit der Messwerte verwendet.

Insgesamt zeigt sich eine gute Vergleichbarkeit der Messungen. Bei Zink lagen die Messwerte des IUTA um 30 % höher als bei ALGE (Steigung und Verhältnis ALGE/IUTA) und bei Mangan zeigt die Steigung eine Differenz von 44 %. Letzteres liegt an dem höchsten, exponierten Messwert der Messreihe, der die Ausgleichsgerade nach oben zieht.

1. Serie	X-NLÖ	Filter- typ	R <sup>2</sup>	Steigung	Y-Achsen abschnitt	Mittlere Konzen- tration ng/m <sup>3</sup> (NLÖ)	Verhältnis der Mittel- werte (IUTA/NLÖ)
	Na	CNF	0.937	1.06	-8.063	1 326	1.052
	K	CNF	0.974	1.24	-11.531	121	1.149
	Mg	CNF	0.993	1.25	-14.916	121	1.123
	Ca	CNF	0.935	0.97	10.970	217	1.020
	Al	CNF	0.971	1.01	4.797	28	1.185
	As	CNF*	0.500	0.25	0.141	0.320	0.673
	Cd	CNF*	0.985	0.60	-0.014	0.200	0.395
	Cu	CNF*	0.990	0.77	-0.114	4.580	0.567
	Fe	CNF*	0.990	1.19	-13.575	297	1.241
	Mn	CNF	0.967	1.77	-2.331	6.160	1.387
	Ni	CNF*	0.910	1.00	-0.328	2.020	0.830
	Pb	CNF	0.724	0.61	0.556	3.800	0.757
Sb	CNF	0.328	0.66	6.617	0.88	8.180	
Zn	CNF	0.992	1.36	0.594	13.00	1.401	

2. Serie	X-NLÖ	Filter- typ	R <sup>2</sup>	Steigung	Y-Achsen abschnitt	Mittlere Konzen- tration ng/m <sup>3</sup> (NLÖ)	Verhältnis der Mittel- werte (IUTA/NLÖ)
	Na	CNF	0.993	1.156	-132.3	749	0.98
	K	CNF	0.991	1.208	-14.6	147	1.11
	Mg	CNF	0.991	1.243	-17.5	103	1.07
	Ca	CNF	0.998	1.219	-60.3	532	1.11
	Al	CNF	0.998	1.384	-10.7	173	1.32
	As	CNF	0.908	0.851	-0.05	0.86	0.79
	Cd	CNF*	0.925	1.304	-0.02	0.20	1.21
	Cu	CNF	0.980	1.008	1.64	61.2	1.03
	Fe	CNF	0.932	1.073	190.7	1050	1.25
	Mn	CNF	0.963	1.174	0.30	16.2	1.19
	Ni	CNF*	0.901	0.754	-0.13	2.92	0.72
	Pb	CNF*	0.903	0.893	-0.42	12.3	0.85
	Sb	CNF	0.970	0.921	0.03	11.5	0.94
Zn	CNF	0.963	1.326	-13.3	42.4	1.01	

\*: Ein Ausreißer der 10 Messwerte wurde bei den Berechnungen nicht berücksichtigt.

Tab. 5.8: Geometrische und arithmetische Ergebnisse der Vergleichsmessungen für Metalle (Ergebnisse bezogen mit NLÖ-Messwerten auf der X-Achse)

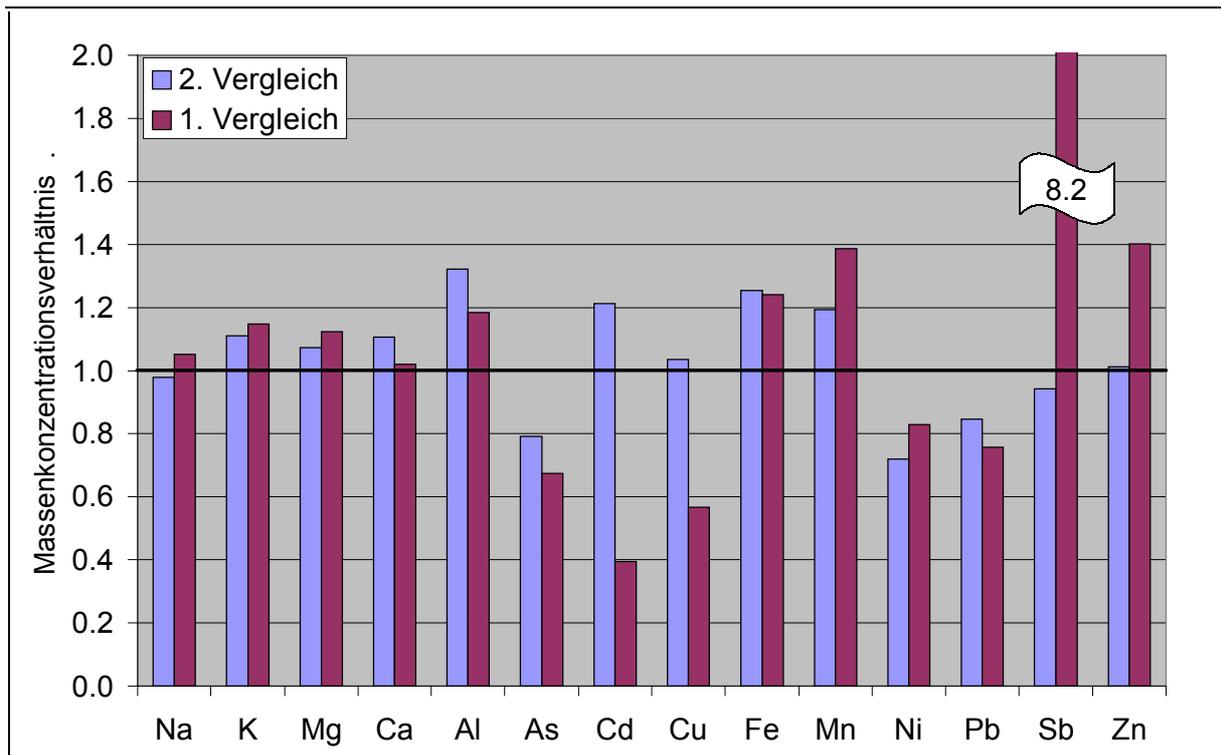


Abb. 5.3: Massenkonzentrationsverhältnisse der 1. und 2. Vergleichsmessungen

X-IUTA	Filter-typ	R <sup>2</sup>	Steigung	Y-Achsenabschnitt	Mittlere Konzentration ng/m <sup>3</sup> (IUTA)	Verhältnis der Mittelwerte (ALGE/IUTA)	Schwankungsbreite	Bemerkung
Na	1	1.00	1.05	16.448	886	1.07	6.7 %	
K	2	1.00	1.03	-6.649	342	1.01	4.5 %	
Mg	3	0.99	0.95	-4.673	92	0.90	7.9 %	ohne BW
Ca	4	0.97	1.20	-54.195	314	1.03	7.4 %	
Al	5	0.99	0.88	-2.293	190	0.86	15.2 %	ohne BW
As	6	1.00	1.13	-0.762	4.5	0.96	52.7 %	
Cd	7	0.99	1.16	-0.189	1.1	0.99	17.4 %	
Cu	8	0.99	0.84	1.198	16	0.92	10.5 %	
Fe	9	1.00	1.10	-41.306	446	1.01	4.6 %	ohne BW
Mn	10	0.98	1.44	-3.919	11	1.09	8.1 %	ohne BW
Sb	11	0.76	1.06	-0.686	5.5	0.93	16.1 %	
Ni	12	0.89	0.86	0.568	3.2	1.04	16.1 %	
Zn	13	0.96	0.73	-2.779	113	0.71	33.4 %	ohne BW
Pb	14	1.00	0.95	2.310	22	1.05	11.8 %	

Tab. 5.9: Korrelationen und arithmetische Ergebnisse der Vergleichsmessungen für die Metalle (Ergebnisse bezogen auf IUTA-Messwerte auf der X-Achse)

**Tab. 5.10** zeigt die Vergleichbarkeit der Messungen der Ionen zwischen dem IUTA und NLÖ basierend auf Doppelbestimmungen von 5 verschiedenen Filtern. Insgesamt zeigt sich eine gute Vergleichbarkeit der Messwerte.

X-NLÖ	Filtertyp	R <sup>2</sup>	Steigung	Y-Achsenabschnitt	Mittlere Konzentration $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (NLÖ)	Verhältnis der Mittelwerte (IUTA/NLÖ)
Cl <sup>-</sup>	QF	0.999	0.90	0.27	0.67	1.30
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	QF	0.999	1.01	-0.03	1.92	1.00
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	QF	0.994	1.05	-0.19	2.82	0.99
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	QF	0.999	0.83	0.04	2.30	0.87

Tab. 5.10: Korrelationen und arithmetische Ergebnisse der Vergleichsmessungen für die Ionen (Ergebnisse bezogen auf NLÖ-Messwerte auf der X-Achse)

**Tab. 5.11** gibt eine Übersicht über die Ergebnisse der Doppelbestimmungen zwischen IUTA und UCL. Auch hier zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Messwerte. Hierbei liegen die Schwankungsbreiten als Maß der Unsicherheit der Messwerte zwischen 4 % und 17 % (Chlorid nicht berücksichtigt, da nur ein Wert oberhalb der Nachweisgrenze).

X-IUTA	Filtertyp	R <sup>2</sup>	Steigung	Y-Achsenabschnitt	Verhältnis der Mittelwerte (UCL/IUTA)	Schwankungsbreite
Cl <sup>-</sup>	QF	1 Messwert > NG			1,01	1,1 %
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	QF	0.90	0.90	-0.002	0.89	12.8 %
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	QF	0.96	1.04	0.011	1.10	16.8 %
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	QF	1.00	0.99	0.005	1.01	4.4 %

Tab. 5.11: Korrelationen und arithmetische Ergebnisse der Vergleichsmessungen für die Ionen (Ergebnisse bezogen auf IUTA-Messwerte auf der X-Achse)

Die Schwankungsbreiten bei den Doppelbestimmungen zwischen NLÖ und IUTA lagen bei 5 % (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>), 5 % (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), 16 % (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) und 31 % (Cl<sup>-</sup>).

Basierend auf den in diesem Abschnitt dargestellten Werten wird die Unsicherheit aller Messwerte mit  $\pm 20$  % des Messwertes angegeben.

## 5.3 Optische Partikelzähler

### 5.3.1 Beschreibung Optische Partikelzähler

Neben der Bestimmung der Massenkonzentrationen von PM<sub>10</sub> und nachfolgender Filteranalysen wurden Untersuchungen zur Partikelanzahlkonzentrationsverteilung (Anzahl Partikel/dm<sup>3</sup>) durchgeführt. Für diesen Teil der Untersuchung zeichnet das Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart verantwortlich. Zum Einsatz kamen hierbei Optische Partikelzähler, die in insgesamt 15 Kanälen ein Partikelgrößenspektrum von 0.3 µm bis > 10 µm umfassen. Dies ist der im allgemeinen bei Immissionsmessungen interessante Bereich, der zur Beschreibung der Massenkonzentrationen wie PM<sub>2.5</sub> und PM<sub>10</sub> relevant ist. **Tab. 5.12** zeigt den Partikelgrößenbereich der Kanäle. Soweit nicht explizit bezeichnet, erfolgt die Angabe der Partikelkonzentrationen der Optischen Partikelzähler als Partikelanzahlkonzentration pro dm<sup>3</sup> (Luftvolumen).

Kanal	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
untere Grenze (µm)	0.3	0.4	0.5	0.65	0.8	1.0	1.6	2.0	3.0	4.0	5.0	7.5	10	15	20
obere Grenze (µm)	0.4	0.5	0.65	0.8	1.0	1.6	2.0	3.0	4.0	5.0	7.5	10	15	20	30

Tab. 5.12: Partikelgrößenkanäle der eingesetzten optischen Partikelzähler

Das Messprinzip der Optischen Partikelzähler beruht auf dem Prinzip der Streulichtmessung am Einzelpartikel. Die Partikel gelangen einzeln in ein intensiv beleuchtetes Messvolumen. Als Lichtquelle zur Erzeugung des Messvolumens wird eine Laserdiode verwendet. Der das Messvolumen durchquerende Partikel erzeugt ein Streulicht, das in einem bestimmten Winkel von einer Empfängerapertur gesammelt und auf einen Detektor geleitet wird. Die Intensität, mit der das Streulicht auf den Detektor trifft, ist ein Maß für die Partikelgröße. Die Anzahl der Streulichtimpulse – bei bekanntem Probevolumenstrom – gibt eine Aussage über die Partikelanzahlkonzentration. **Abb. 5.4** zeigt das Prinzip eines optischen Partikelzählers.

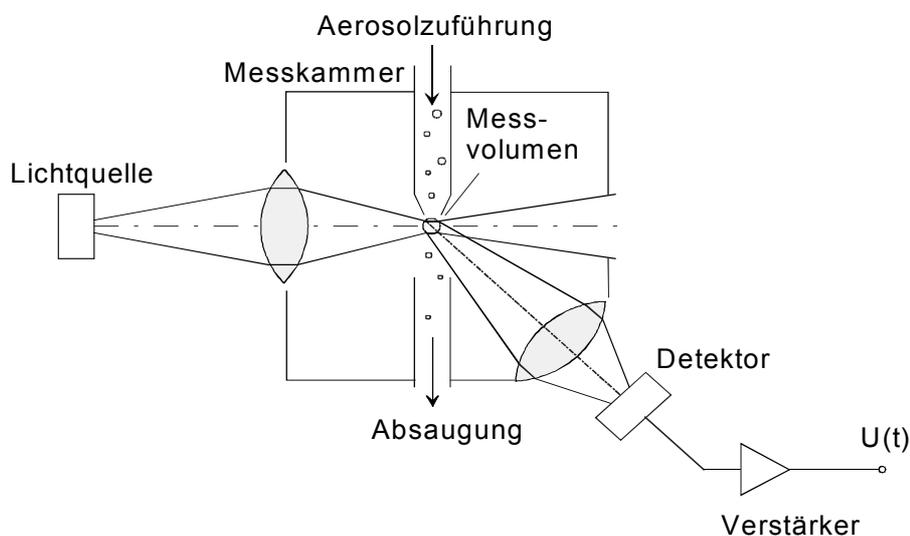


Abb. 5.4: Prinzipskizze eines optischen Partikelzählers nach Fissan (1998)

### 5.3.2 Qualitätssicherung – Optische Partikelzähler

Es kamen zwei baugleiche Optische Partikelzähler der Fa. Grimm zeitparallel zum Einsatz. Zur Qualitätssicherung der Daten, die mit Hilfe der optischen Partikelzähler erfasst wurden, erfolgten jeweils zwei Qualitätssicherungs-Messphasen, direkt vor sowie direkt nach den Intensivmessphasen (Beschreibung der Intensivmessphasen s. Kap. 6). Zur Durchführung der Qualitätssicherung wurde jeweils einer der beiden optischen Partikelzähler als Referenzgerät verwendet und die Werte des anderen optischen Partikelzählers damit verglichen.

Eine Qualitätssicherungs-Messphase erfolgte als eine Vergleichsmessung an einem Standort über einen Zeitraum von mehreren Tagen. Diese Vergleichsmessungen dienten dazu, etwaige Abweichungen der Partikelgrößenkanäle der optischen Partikelzähler über die Bildung von Korrekturfaktoren abzugleichen, sowie den Vertrauensbereich bzw. die Messunsicherheit festzulegen, um später die Differenzen der optischen Partikelzähler an den verschiedenen Standorten miteinander vergleichen zu können.

Im allgemeinen wurden nicht alle Partikelgrößenkanäle einzeln betrachtet, sondern zur besseren Veranschaulichung drei Partikelgrößenklassen gebildet. Die Festlegung der Partikelgrößenklassen ist in **Tab. 5.13** zusammengefasst.

Partikelgrößenklasse	„klein“	„mittel“	„groß“
von (in $\mu\text{m}$ )	0.3	0.5	2.0
bis (in $\mu\text{m}$ )	0.5	2.0	10.0

Tab. 5.13: Zusammenfassung der Partikelgrößenkanäle der optischen Partikelzähler in Partikelgrößenklassen

Die nachfolgenden **Abbildungen 5.5 bis 5.10** zeigen die Korrelationen zwischen den verwendeten Messgeräten für die verschiedenen Qualitätssicherungsphasen und Partikelgrößenklassen.

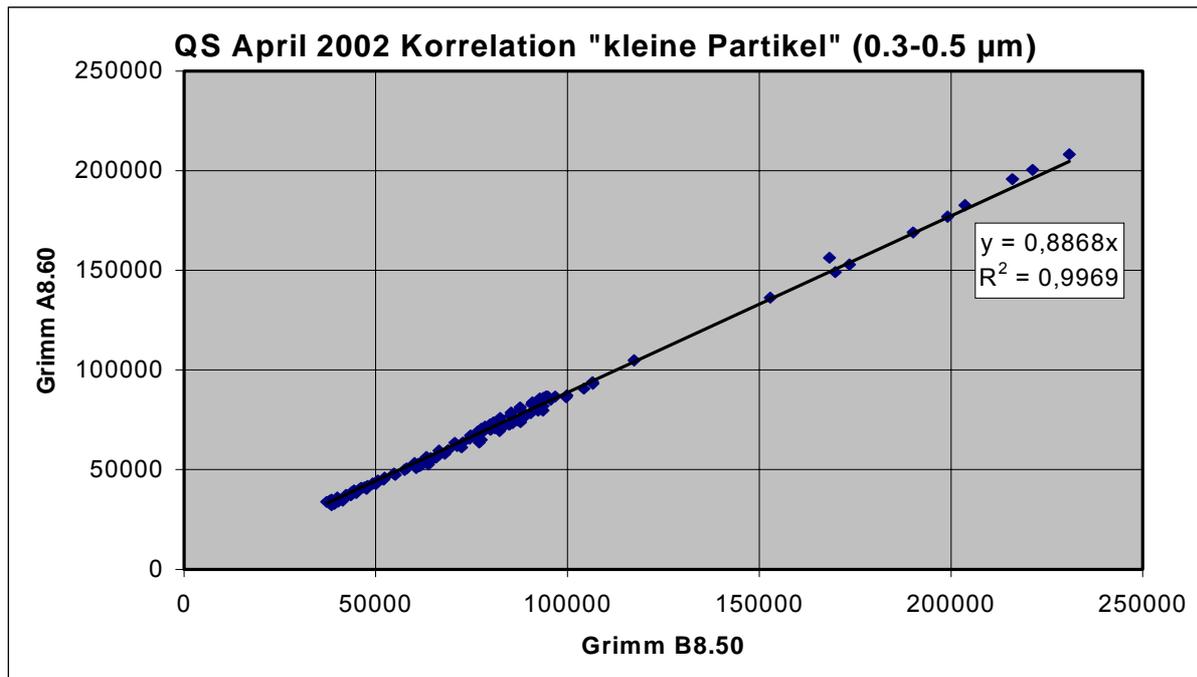


Abb. 5.5: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im April 2002 für kleine Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=128)

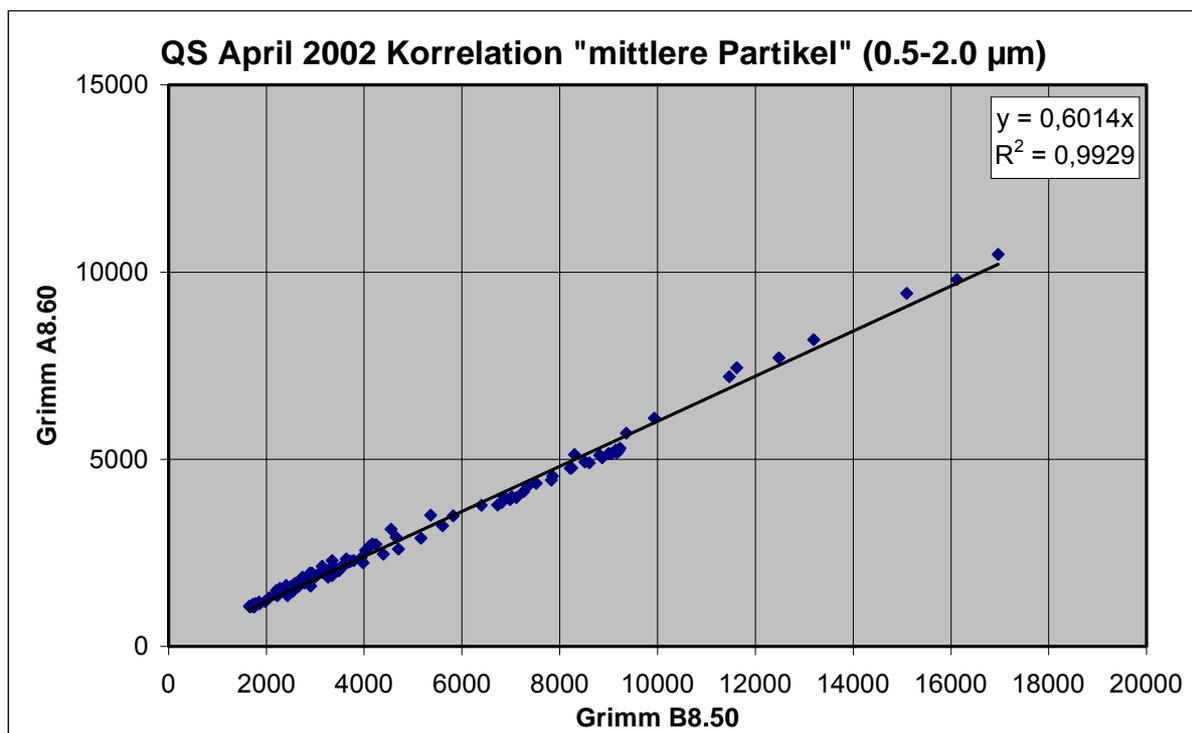


Abb. 5.6: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im April 2002 für mittlere Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=128)

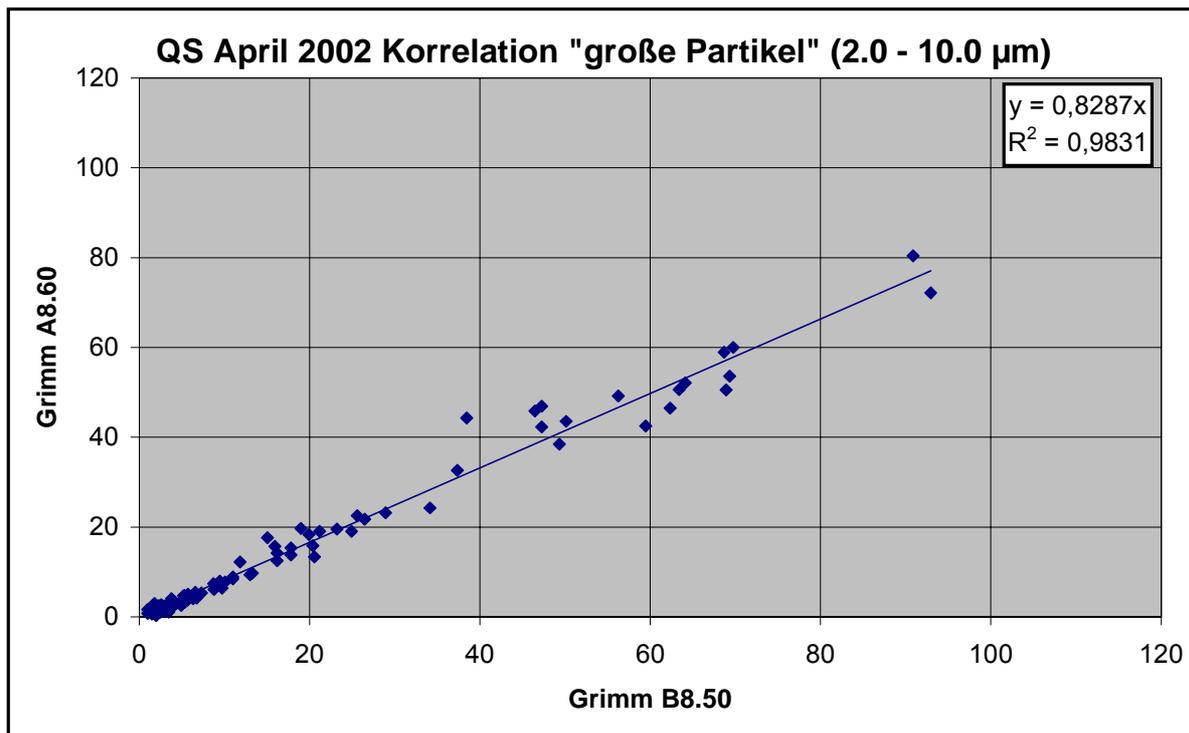


Abb. 5.7: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im April 2002 für große Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=128)

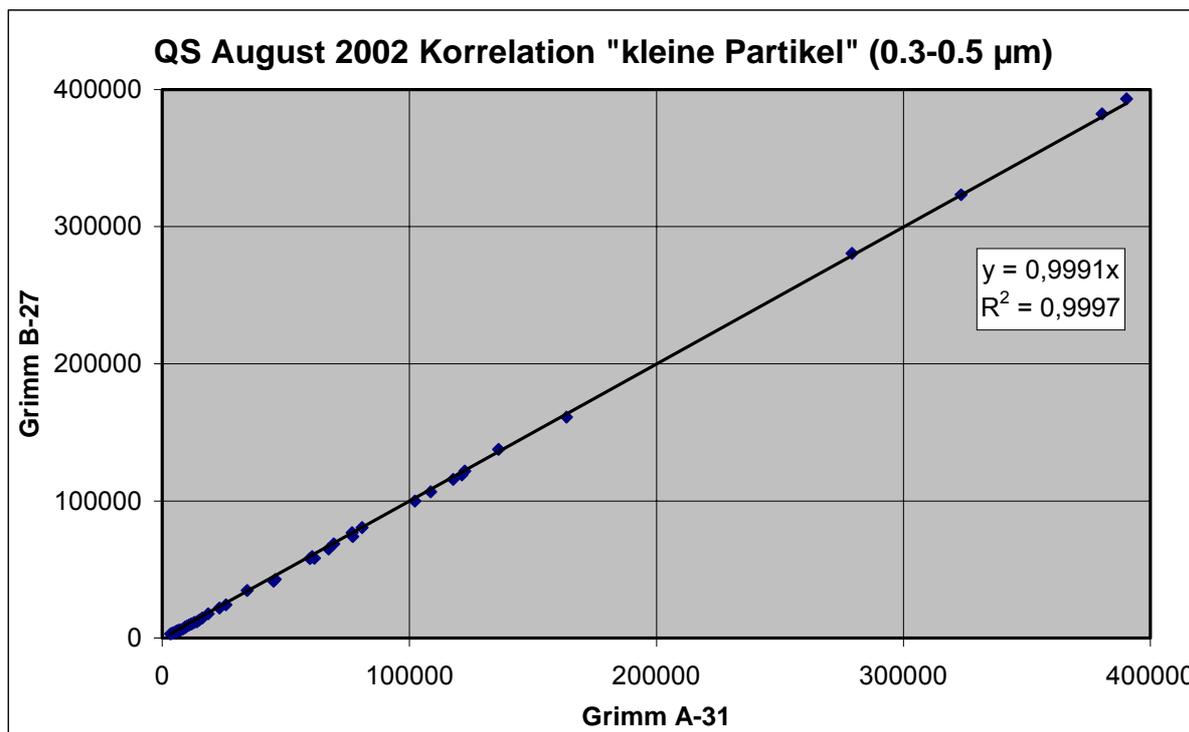


Abb. 5.8: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im August 2002 für kleine Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=128)

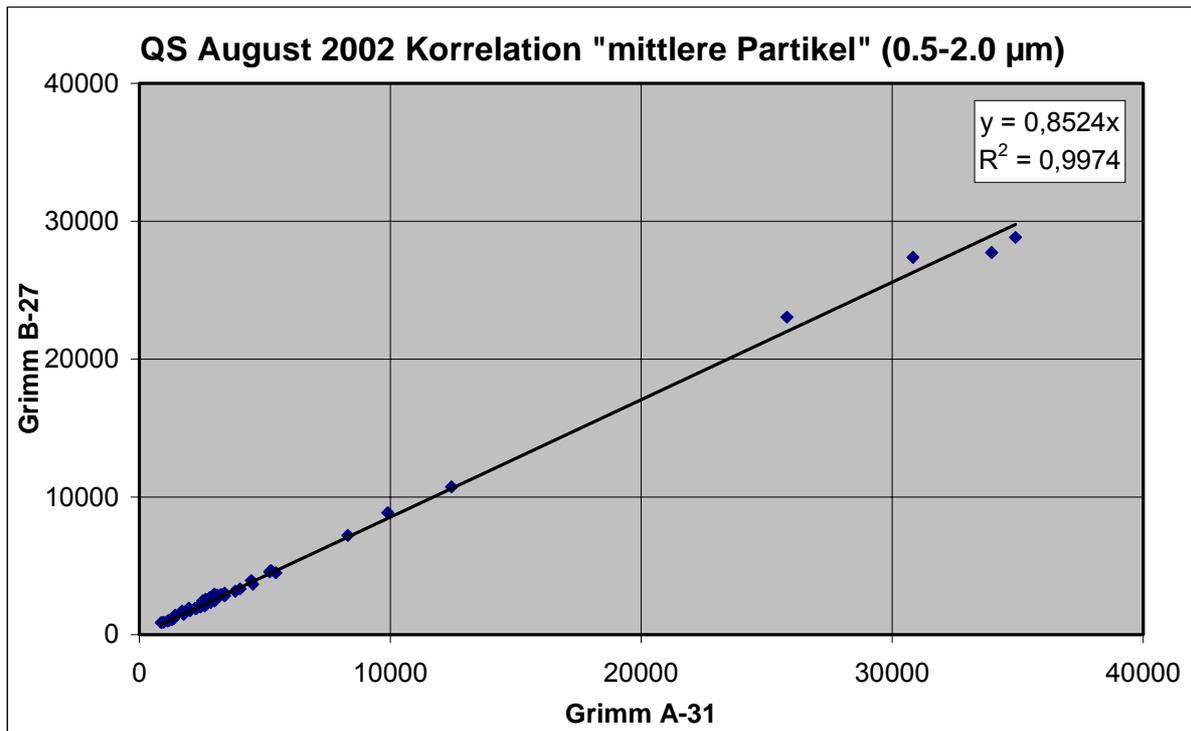


Abb. 5.9: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im August 2002 für mittlere Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=128)

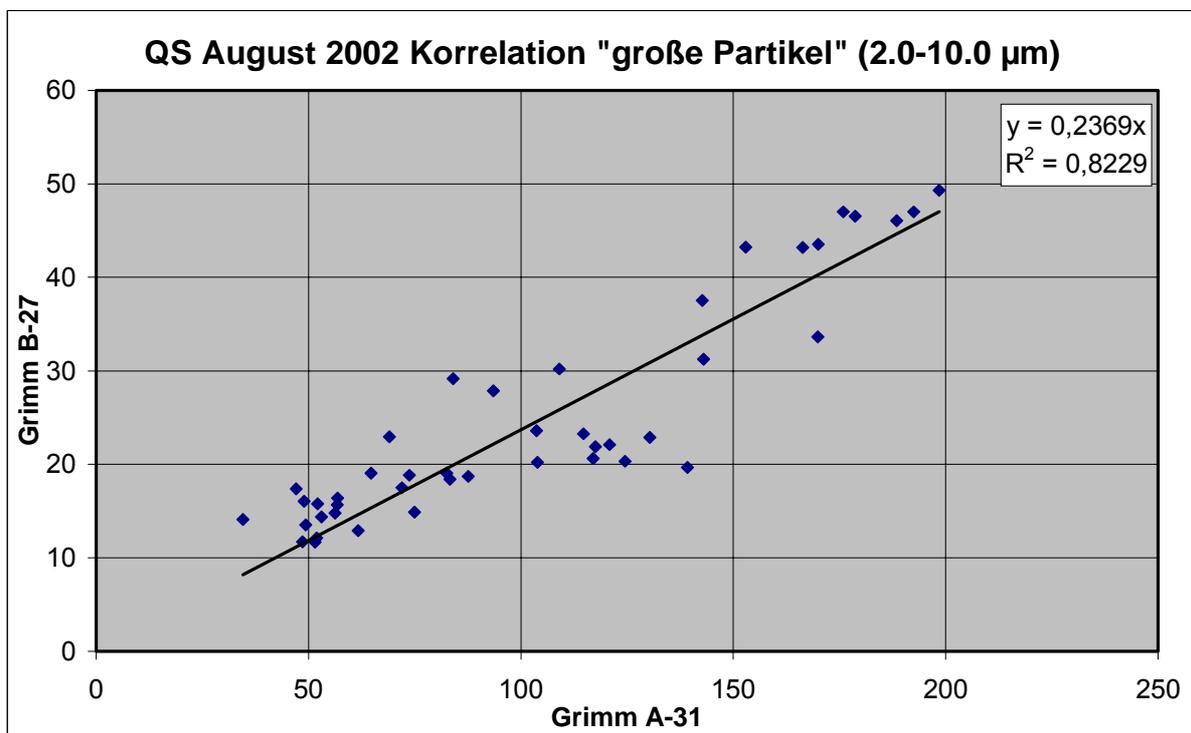


Abb. 5.10: Korrelation zwischen den beiden optischen Partikelzählern während der Qualitätssicherungsphase im August 2002 für große Partikel (30-Minuten-Mittelwerte, N=44)

Die verwendeten Optischen Partikelzähler in der Intensivmessphase April 2002 sind nicht identisch mit den in der Intensivmessphase August 2002 verwendeten Geräten. Anhand der in **Abb. 5.5** bis **Abb. 5.10** dargestellten linearen Regressionsgeraden und Bestimmtheitsmaße für die verschiedenen Qualitätssicherungsphasen und Partikelgrößenklassen lassen sich folgende Aussagen treffen.

1. Das Bestimmtheitsmaß zwischen zwei Geräten und der Partikelgrößenklassen „kleine Partikel“ und „mittlere Partikel“ ist sehr gut ( $R^2 > 0.99$ ).
2. Das Bestimmtheitsmaß für „große Partikel“ zeigt ebenfalls sehr gute Ergebnisse für die Qualitätssicherung, die der ersten Intensivmessphase ( $R^2 = 0.98$ ) zuzuordnen ist. Das Bestimmtheitsmaß für die Qualitätssicherung zur zweiten Intensivmessphase beträgt jedoch nur  $R^2 = 0.83$ .
3. Die Steigung für „kleine Partikel“ zeigt gute Ergebnisse (QS April:  $y=0.89x$ ; QS August:  $y=1.00x$ ) die auch nach dem Geräteabgleich (Faktorisierung des Vergleichsgerätes zum Referenzgerät) Vergleiche zwischen den beiden Intensivmessphasen zulassen.
4. Die Steigung für „mittlere Partikel“ zeigt befriedigende Ergebnisse, während die Steigung für „große Partikel“ vor allem in der Qualitätssicherungsphase August deutlich von der idealen Steigung ( $y=1.00x$ ) abweicht. Quantitative Vergleiche zwischen den beiden Intensivmessphasen für mittlere und große Partikel sind daher nicht belastbar, so dass hier lediglich Tendenzen und qualitative Vergleiche durchgeführt werden können.

## 6 DURCHFÜHRUNG DER MESSUNGEN

Der Messzeitraum erstreckte sich über ein Jahr, vom 01.04.2002 bis 31.03.2003, um eine komplette Vegetationsperiode zu erfassen. An den beiden beschriebenen Standorten in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) erfolgten Messungen mit jeweils zwei DIGITEL mit jeweils unterschiedlicher Filterbestückung, wie in Kap. 5 beschrieben. Ergänzend zu diesen Messungen wurden an beiden Standorten während zweier Intensivmessphasen optische Partikelzähler eingesetzt, um Informationen zur Anzahl und Größe der Partikel zu erhalten.

### 6.1 Filterauswahl

Während des Messzeitraums wurden Tageswerte gemessen. Alle während des Jahres erfassten Filterproben wurden gravimetrisch ausgewertet. Aus diesen Proben wurden 100 Filter pro Messgerät ausgewählt für die chemische Analyse. Dabei wurden 60 Proben überdurchschnittlich hoher Belastung und 40 Proben mit niedriger bis mittlerer Belastung ausgewählt.

Bei den 60 Proben mit hoher Belastung wurde darauf geachtet, dass Proben mit Gleichgang zwischen den beiden Stationen Bösel und Hannover und auch solche mit großen Unterschieden zwischen den Stationen enthalten waren. Weiterhin wurde darauf geachtet, dass auch alle Wochentage repräsentativ vertreten waren.

### 6.2 Intensivmessphasen - Optische Partikelzähler

Zu Beginn und nach der Hälfte der Projektlaufzeit wurden zu weiteren Sensitivitätsbetrachtungen Messungen mit Optischen Partikelzählern durchgeführt. Die Optischen Partikelzähler wurden an den Messstationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) in der Nähe der High-Volume-Sampler aufgestellt, die Messungen an beiden Stationen zeitgleich durchgeführt. Als Resultate erhielt man hoch zeitaufgelöste Daten über die Partikelanzahlkonzentrationen und -größenverteilungen im Bereich von 0.3 bis 10  $\mu\text{m}$ . Die Zeiträume der Intensivmessphasen sind in **Tab. 6.1** dargestellt.

Messphasenbezeichnung	Messzeitraum
Intensivmessphase April 2002	26.04.-24.05.2002
Intensivmessphase August 2002	16.08.-30.08.2002

Tab. 6.1: Zeiträume der Intensivmessphasen, an denen an den Standorten Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) zeitgleich die Partikelanzahlgrößenverteilungen mittels Optischer Partikelzähler erfasst wurde

## 7 MESSERGEBNISSE

### 7.1 Meteorologie

An den Stationen in Bösel (BLWW) und in Hannover (HRSW) wurden während des Betrachtungszeitraums vom 1.4.2002 bis 31.3.2003 Windmessungen durchgeführt. Die jeweils gemessenen Windverteilungen sind in **Abb. 7.1** und **Abb. 7.2** dargestellt.

Die beiden erfassten Windverteilungen unterscheiden sich. Während in Bösel Winde aus Süd-Südwest und Ost-Südost vorherrschen, ergeben sich für Hannover vorwiegend Winde aus West bis West-Nordwest und aus Ost-Südost. Die mittlere Geschwindigkeit in Bösel lag bei 2.2 m/s in 10 m über Grund, in Hannover bei 3.4 m/s in 42 m über Grund bzw. 10 m über Dach.

### 7.2 PM10-Massenkonzentrationen

An den beiden Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) wurden die Filterbeladungen als Tagesmittelwerte gravimetrisch ausgewertet. Nachfolgend sind diese Ergebnisse sowie der Vergleich mit anderen Stationen aufgezeigt. Ergänzend folgt eine Gegenüberstellung der gemessenen, gravimetrisch bestimmten Filterbeladungen mit radiometrischen Ergebnissen (Beta-Staubmonitore FH62 IN).

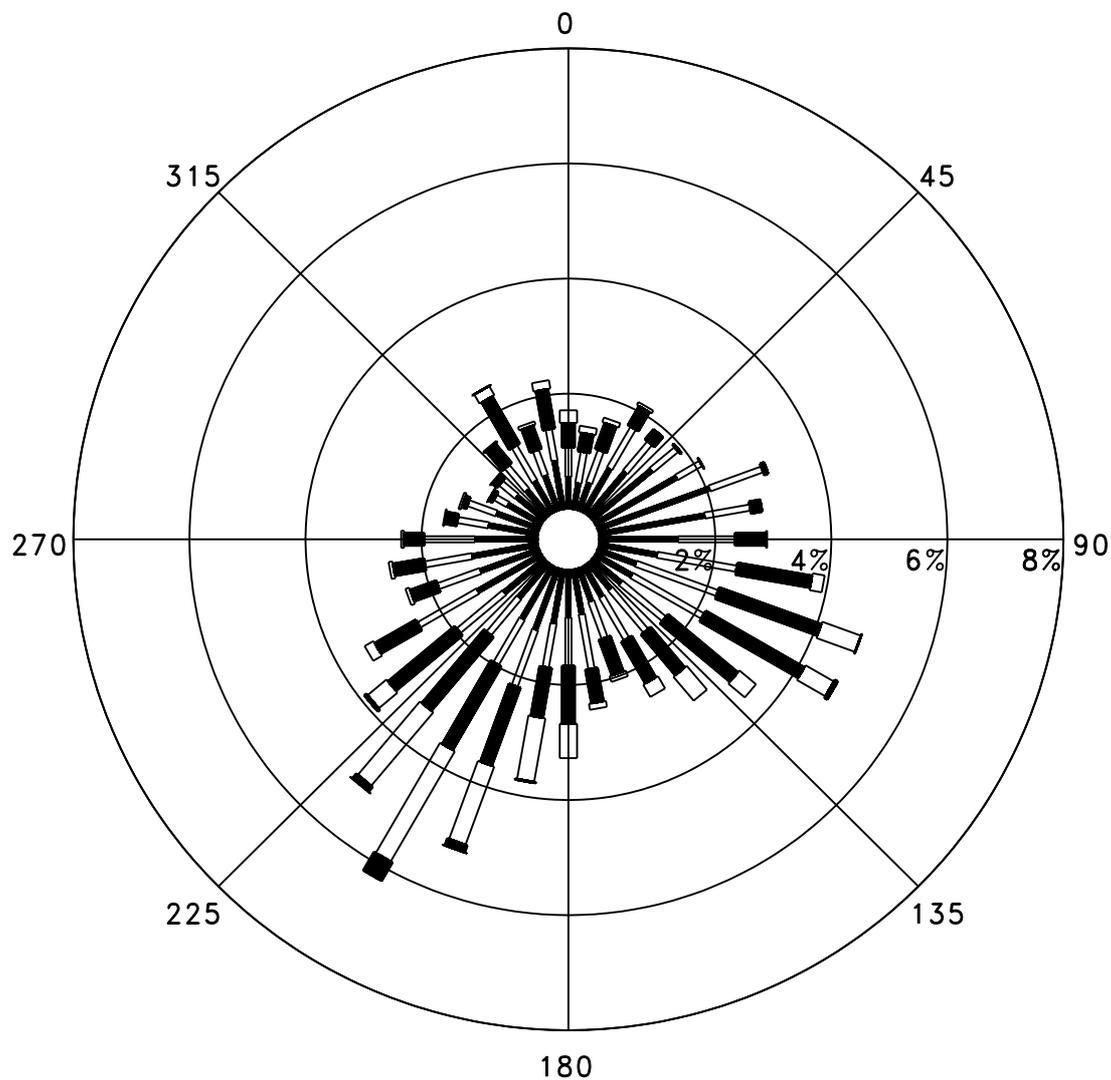
#### 7.2.1 PM10-Konzentrationen in Bösel

An der Station Bösel (BLWW) wurden zeitgleich zwei Digitaler in ca. 3 m Höhe mit unterschiedlichem Filterbesatz betrieben und anschließend gravimetrisch ausgewertet. **Abb. 7.3 oben** zeigt den Verlauf der gemessenen Massenkonzentrationen während des Messjahres für die Cellulosenitrat- und die Quarzfaser-Filter. In **Abb. 7.3 unten** sind die Werte gegeneinander aufgetragen. Die gute Übereinstimmung ist an der berechneten Steigung (0.97) und dem Bestimmtheitsmaß ( $R^2 = 0.99$ ) zu erkennen. Die ermittelten Jahreskenngrößen für den Untersuchungszeitraum vom 01.04.2002 bis 31.03.2003 sind in **Tab. 7.1** zusammengefasst.

#### 7.2.2 PM10-Konzentrationen in Hannover

An der Station Hannover (HRSW) wurde mit zwei Digitaler auf dem Dach des NLÖ-Gebäudes in ca. 34 m Höhe (bezogen auf Straßenniveau) ebenfalls mit unterschiedlichem Filterbesatz die PM10-Konzentration gemessen. In **Abb. 7.4 oben** ist der zeitliche Verlauf der Konzentrationen für beide Filtertypen dargestellt. Es zeigt sich auch hier eine gute Übereinstimmung der beiden Zeitreihen. Die in **Abb. 7.4 unten** dargestellte Korrelation zeigt eine Steigung von 0.97 bei einem Bestimmtheitsmaß  $R^2$  von 0.97. Die berechneten Jahreskenngrößen sind in **Tab. 7.1** zusammengefasst.

### Windrichtungs- und -geschwindigkeitshäufigkeiten in Prozent



Station : blww\_j2-3  
 Höhe : 10 m  
 Rechtswert: m  
 Hochwert : m  
 Wind.Geschw. 2.2 m/s

- kleiner 1.4 m/s
- ▬ 1.4 bis 2.3 m/s
- 2.4 bis 3.8 m/s
- 3.9 bis 6.9 m/s
- 7.0 bis 10 m/s
- größer 10 m/s

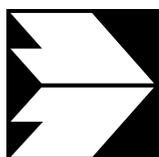
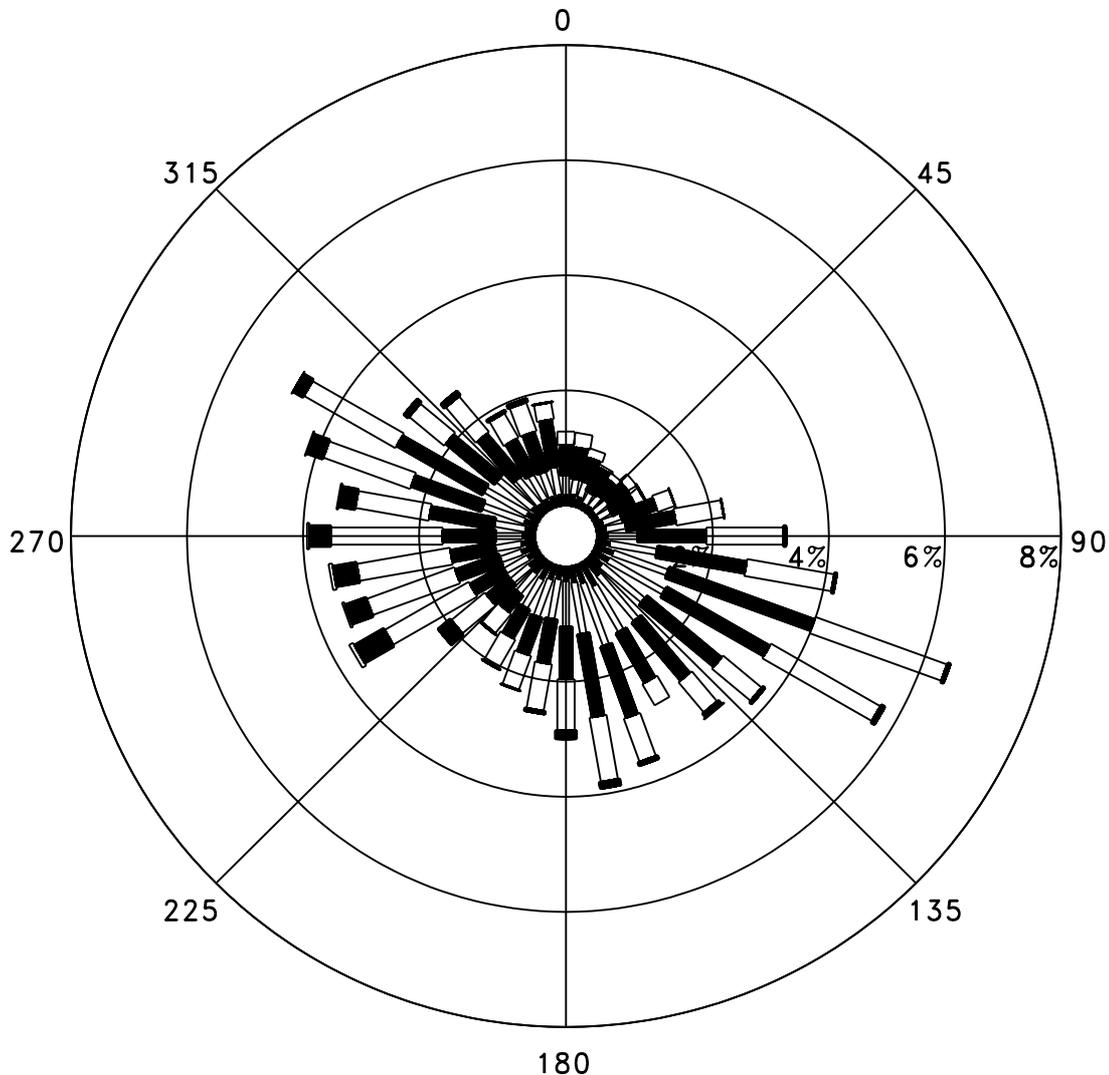


Abb. 7.1: Windrichtungs- und -geschwindigkeitsverteilung Bösel (BLWW) für den Zeitraum 1.4.02 bis 31.3.03  
 R 342908 H 587447

### Windrichtungs- und -geschwindigkeitshäufigkeiten in Prozent

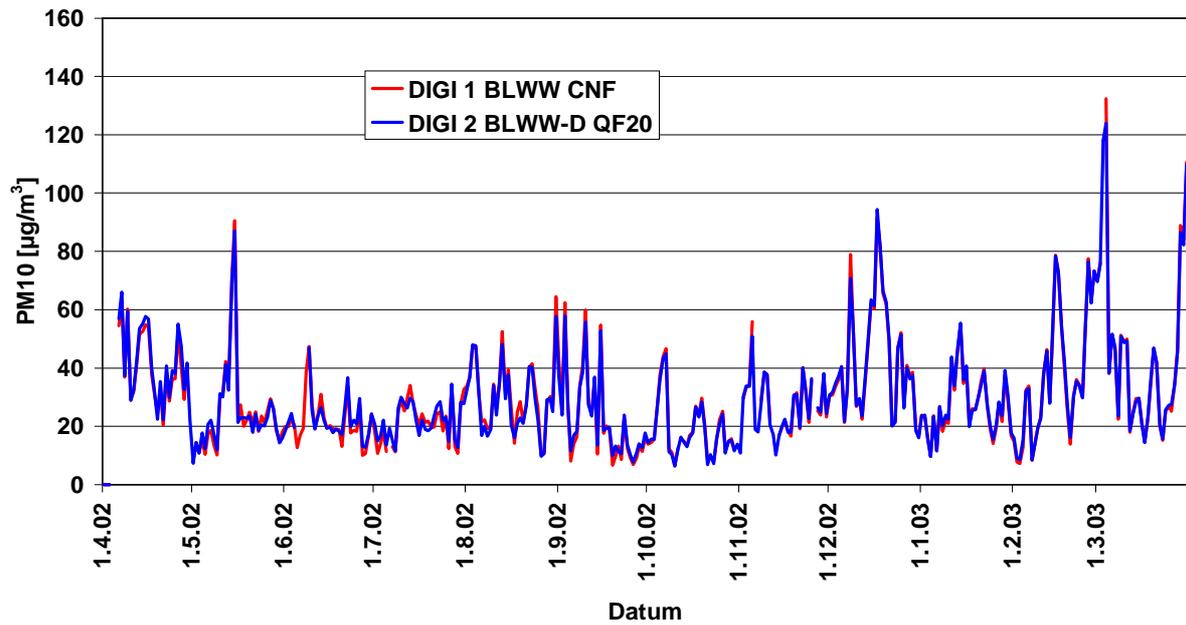


Station : hrsw\_j2-3  
 Höhe : 42 m  
 Rechtswert: 354870  
 Hochwert : 580310  
 Wind.Geschw. 3.4 m/s

- kleiner 1.4 m/s
- ▬ 1.4 bis 2.3 m/s
- 2.4 bis 3.8 m/s
- 3.9 bis 6.9 m/s
- 7.0 bis 10 m/s
- größer 10 m/s



Abb. 7.2: Windrichtungs- und -geschwindigkeitsverteilung Hannover (HRSW) für den Zeitraum 1.4.02 bis 31.3.03  
 R 354870 H 580310



Vergleich CNF- und QF-Filter Bösel

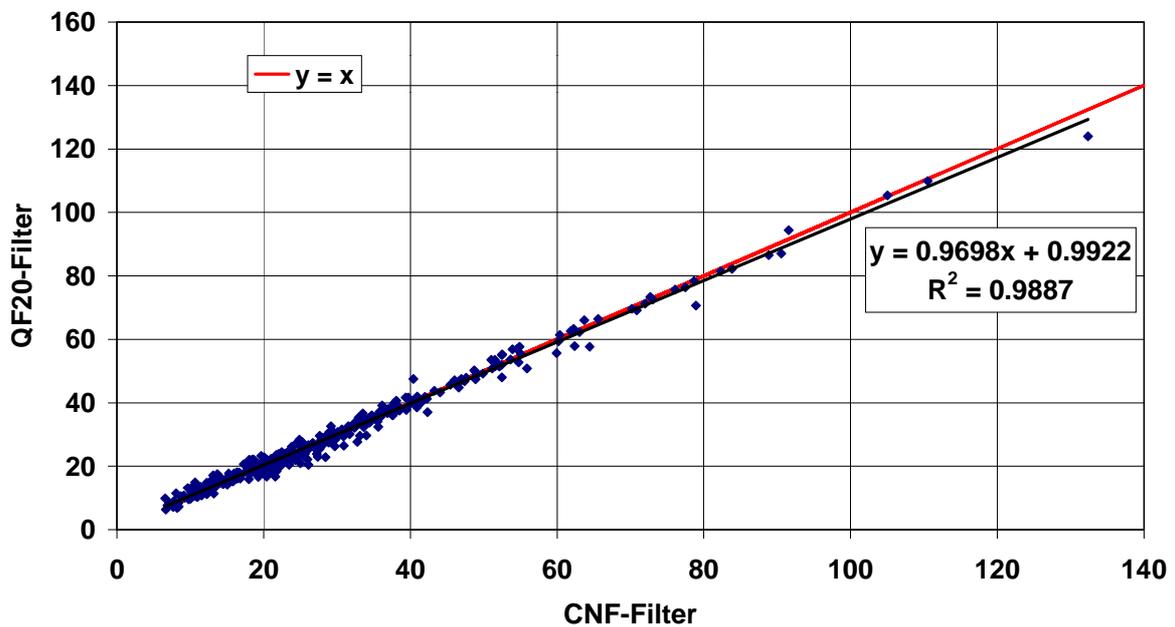
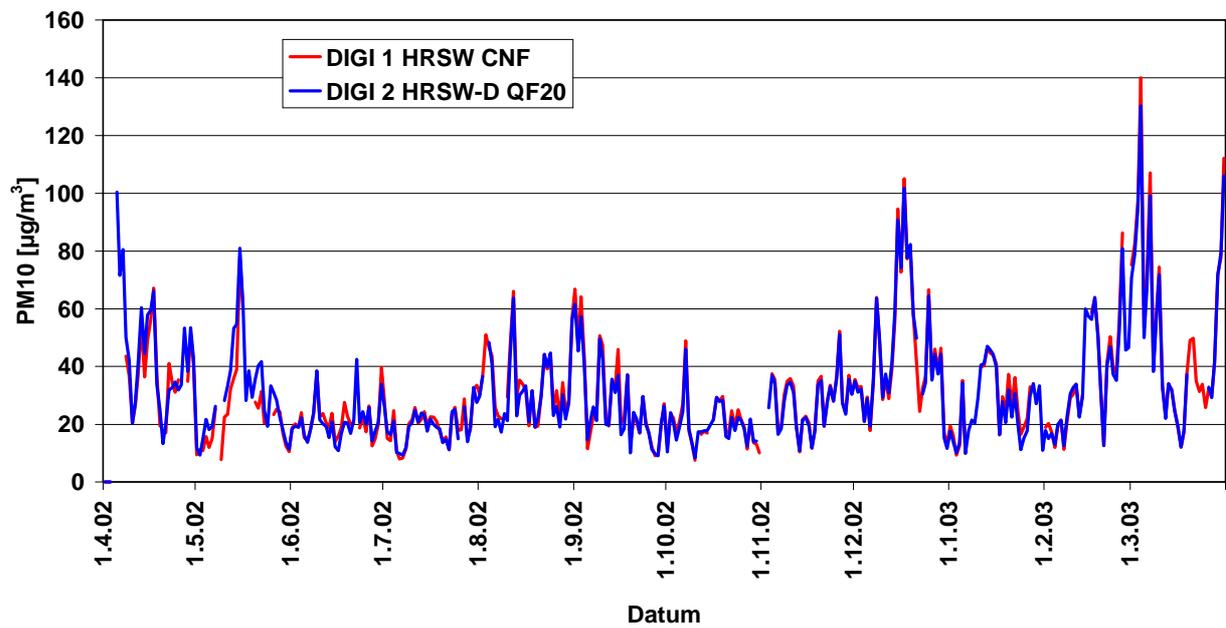


Abb. 7.3: Vergleich Station Bösel (BLWW) für beide Filtermaterialien  
oben : Zeitreihen  
unten: Korrelation



### Vergleich CNF- und QF-Filter Hannover

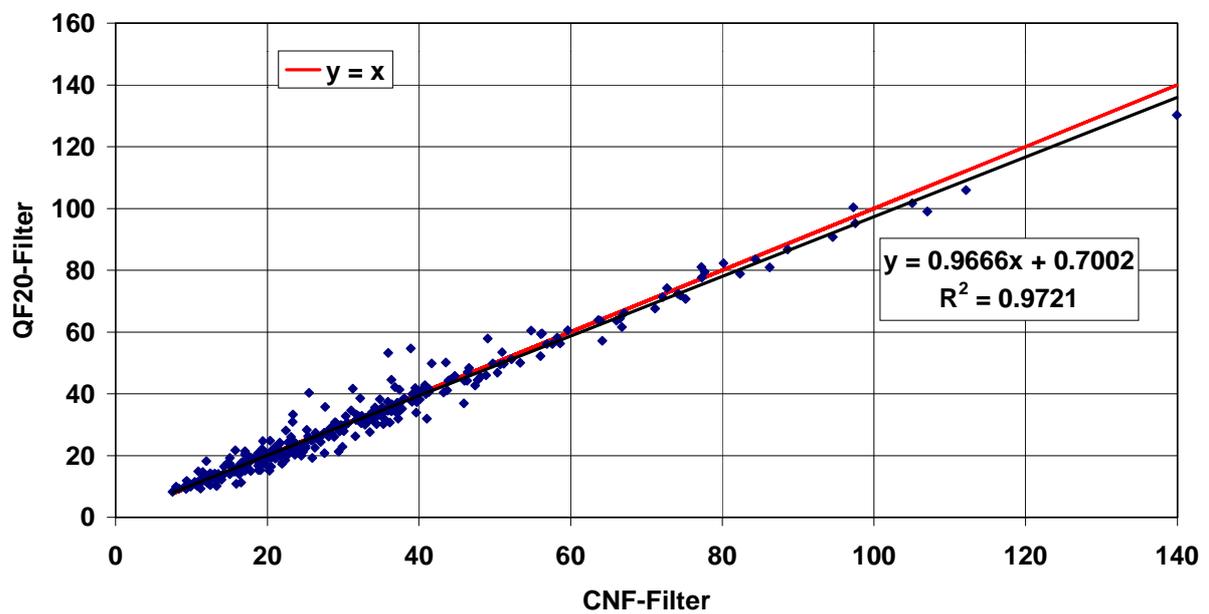


Abb. 7.4: Vergleich Station Hannover (HRSW) für beide Filtermaterialien  
oben : Zeitreihen  
unten: Korrelation

Die Jahresmittelwerte bezogen auf den Untersuchungszeitraum liegen an beiden Stationen unter dem Grenzwert von  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Die Anzahl der Überschreitungen der zulässigen Tagesmittelwerte (bezogen auf Tagesmittelwert  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) liegt dahingegen mit 45 in Hannover und 44 in Bösel deutlich über den zulässigen 35 Überschreitungen.

Die ermittelten Jahresmittelwerte für die einzelnen Filtertypen unterscheiden sich in Bösel und in Hannover praktisch nicht. Die Mittelwerte aus beiden Filtermaterialien stimmen bezogen auf den Jahresmittelwert an beiden Standorten gut überein. Anhand von Aufzeichnungen wurden Ergebnisse, die bei gestörtem Betrieb angefallen sind, als auch solche, die bei einem nachgeschalteten Plausibilitätstest auffällig waren, aus dem jeweiligen Datenkollektiv entfernt.

	Hannover (HRSW)			Bösel (BLWW)		
	DIGI 1	DIGI 2	Mittelwert	DIGI 1	DIGI 2	Mittelwert
Jahresmittelwerte:	31.8	31.8	32	30.3	30.3	30
Anzahl Überschreitungen von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$			45			44
Min.-Wert:	7.5	8.3	8	6.6	6.4	7
Max.-Wert:	139.9	130.2	135	132.4	124.0	128

Tab. 7.1: Jahreskennwerte für den Zeitraum 01.04.2002 bis 31.03.2003

### 7.2.3 Vergleich PM10-Massenkonzentrationen in Bösel und in Hannover

Der Vergleich der aus beiden Filtertypen gemittelten Jahreszeitreihen für die Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) ist in der **Abb. 7.5 oben** gezeigt. Es ergibt sich für beide Stationen ein optisch ähnliches Bild, die Spitzenwerte treten an beiden Stationen nahezu gleichzeitig auf. In **Abb. 7.5 unten** sind die Korrelationen zwischen beiden Stationen dargestellt. Die berechnete Steigung aus einer linearen Regression ergibt sich zu 0.85 bei einem Offset von 3.34, das Bestimmtheitsmaß  $R^2$  liegt bei 0.76. Die Ähnlichkeit der Zeitreihe zeigt den großen Einfluss der Meteorologie auf die Varianz der PM10-Massenkonzentrationen. Die Frage, ob die erhöhten PM10-Massenkonzentrationen hauptsächlich auf sekundär gebildete Partikel, und damit eventuell auf fernliegende Emittenten zurückführbar sind, oder auf primäre Partikel eher lokalen Ursprungs zurückgeführt werden können, ist mit Hilfe der chemischen Zusammensetzung während dieser Zeiträume in Kombination mit der Betrachtung von Rückwärtstrajektorien zu klären.

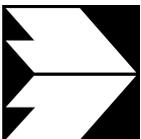
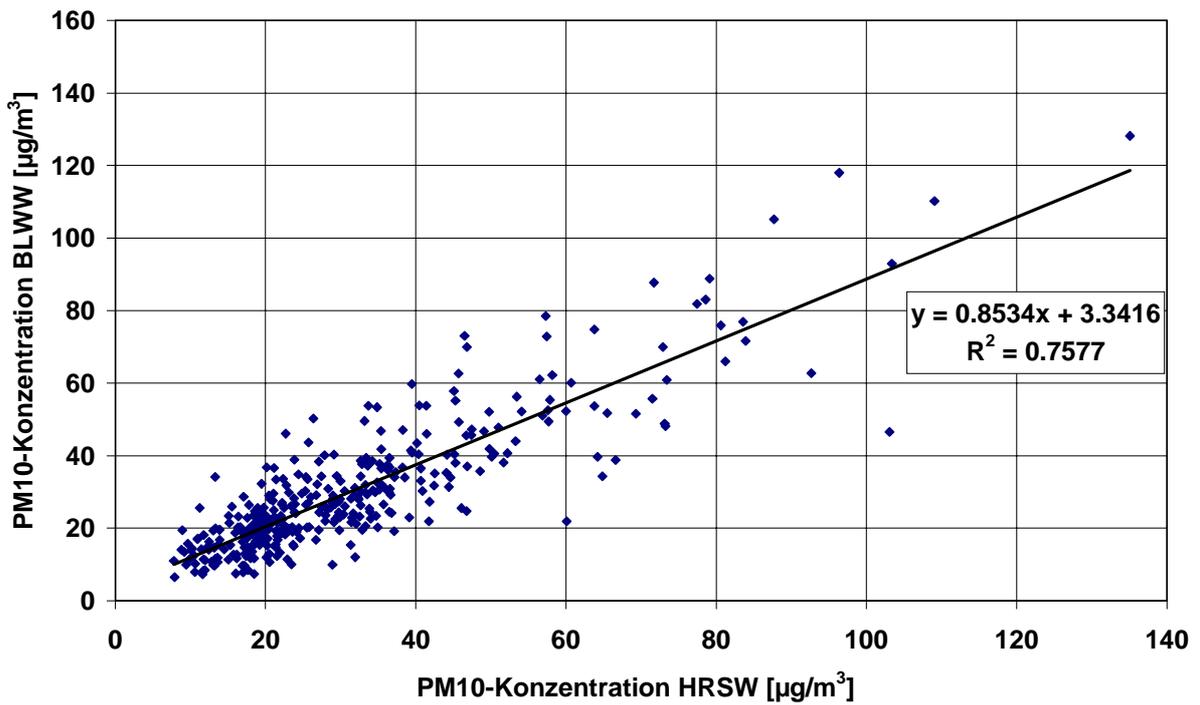
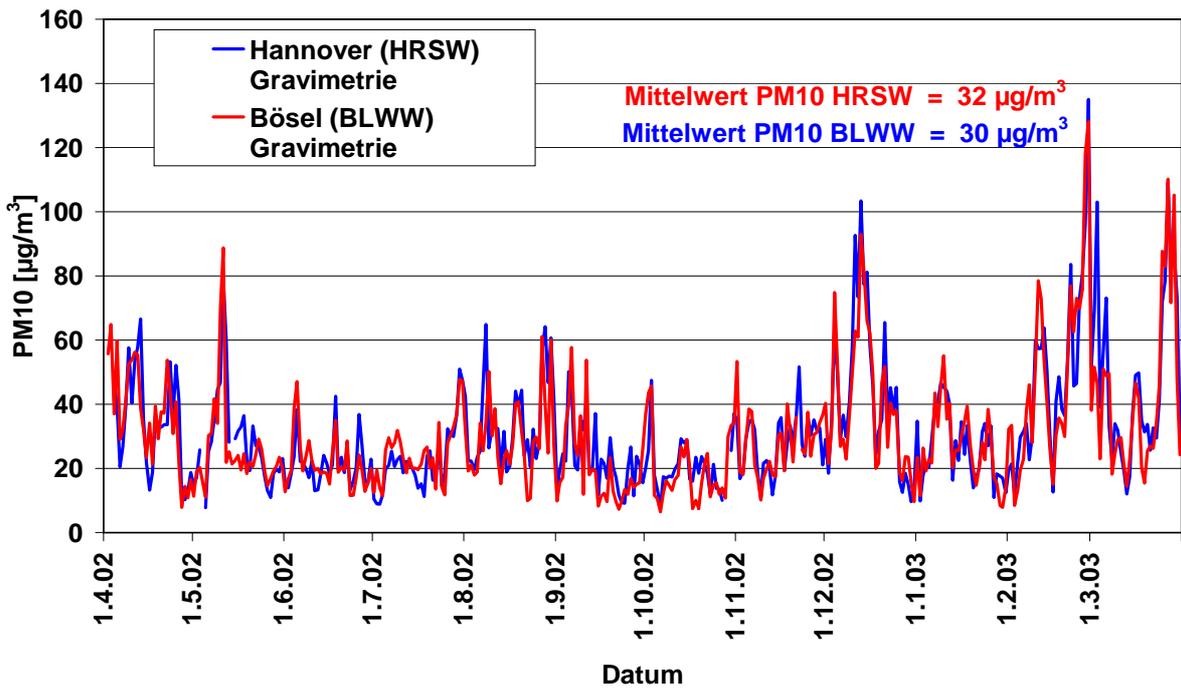


Abb. 7.5: Vergleich der aus beiden Filtertypen gemittelten Zeitreihen für die Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW)  
 oben : Zeitreihen  
 unten: Korrelation

#### 7.2.4 Vergleich PM10-Massenkonzentrationen mit anderen Stationen

Aufgrund der Ergebnisse des Vergleiches der Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) und des ähnlichen Verlaufs der Zeitreihen wurde anhand weiterer Stationen überprüft, ob diese ähnlichen Verläufe auch an anderen Stellen Bestätigung finden. Herangezogen wurden die durch das Umweltbundesamt betriebenen Stationen Bassum und Waldhof, zwei Messstellen aus den Niederlanden, gekennzeichnet mit den Nummern NL 722 (Eibergen) und NL 929 (Valthermond) und weitere Messstationen des LÜN. Es sei hier angemerkt, dass die kontinuierlich erfassten Daten der niederländischen Stationen mit einem Faktor 1.33 korrigiert sind. Die gleiche Vorgehensweise wird im LÜN-System angewandt. Im Anhang B wird die gleichmäßige PM10-Belastung des westlichen und mittleren Bereiches Niedersachsens ausführlich dargestellt.

Als Station, die eine Aussage über die Hintergrundbelastung geben könnte, da sie in geringerem Maße durch anthropogene Quellen belastet ist, wurde die Station Jadebusen in Wilhelmshaven gewählt. Während des Zeitraumes April 2002 bis März 2003 betrug die großflächige PM10-Belastung in Niedersachsen 30 bis 33  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  und an der Station Jadebusen 26  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Als Mittel über die letzten vier Jahre kann man einen Wert von ca. 30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  als mittlere PM10-Belastung für Niedersachsen angeben und 23  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  für den Bereich Jadebusen (LÜN-Jahresberichte 2000, 2001, 2002).

Somit kann in einem ersten Ansatz der Anteil zur PM10-Belastung der Quellen der näheren Umgebung für Bösel und Hannover auf ca. 4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  bis 7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  abgeschätzt werden. Diese Werte entsprechen ca. 13% bis 22% bezogen auf die jeweiligen Jahresmittelwerte. Auf diesen Wertebereich der PM10-Belastung kann durch Minderungsmaßnahmen in der näheren Umgebung Einfluss genommen werden. Ungefähr 80 % der Feinstaubbelastung sind nach dieser Abschätzung auf überregionale Einflüsse zurückzuführen.

Zur Umsetzung der EU-Richtlinien zur Luftqualität ist es notwendig, bei Überschreitung von Grenzwerten den lokalen/regionalen Beitrag abzuschätzen. Eine der Methoden zur Bestimmung dieses Beitrages stellt der Vergleich mit einer ausreichend nahe gelegenen, geringer belasteten Station dar, die üblicherweise als sogenannte Hintergrundstation bezeichnet wird. Wie in Anhang B begründet, wird als Hintergrundstation für den Raum Westliches Niedersachsen und für die Komponente Feinstaub PM10 die LÜN-Station Jadebusen in Wilhelmshaven herangezogen.

### 7.2.5 Vergleich gravimetrische und radiometrische Ergebnisse

An den beiden Stationen in Bösel (BLWW) und in Hannover (HRSW) wurden neben den gravimetrischen Messungen auch PM<sub>10</sub> Messungen mit Beta-Staubmonitoren FH62 IN durchgeführt. Im Sinne der Qualitätssicherung wurde ein Vergleich der Ergebnisse mit beiden Messmethoden dokumentiert. **Abb. 7.6** zeigt die Ergebnisse für beide Stationen. Die mit den Beta-Staubmonitoren gewonnenen PM<sub>10</sub>-Werte beinhalten keinerlei empirische Faktoren. An der Station Bösel stimmen die mit dem Beta-Staubmonitor erfassten Werte und die gravimetrisch ermittelten Werte sehr gut miteinander überein. In Hannover lagen die mit den Beta-Staubmetern ermittelten Werte deutlich unter den Werten aus der Gravimetrie. Das Bestimmtheitsmaß lag in beiden Fällen bei ca. 0.95. Es ist hier anzumerken, dass die zu vergleichenden Messsysteme in Hannover im Abstand von ca. 20 m aufgestellt waren. Lokale Einflüsse aufgrund der Gebäudegeometrie können nicht ausgeschlossen werden. Sonstige mögliche Erklärungen für die Unterschiede an beiden Stationen liegen derzeit noch nicht vor. Der Anhang B enthält weitere Auswertungen zu dieser Fragestellung unter besonderer Berücksichtigung der Messunsicherheiten.

### 7.2.6 Zusammenfassende Anmerkungen

Die Vergleiche zwischen den Stationen zeigen deutliche Zusammenhänge auf, die Hinweise auf überregionale Einflüsse, insbesondere der Meteorologie, liefern. Nahe liegende Korrelationen zwischen den gemessenen PM<sub>10</sub>-Werten mit lokalen meteorologischen Größen wie z.B. Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Feuchte, Niederschlag, Temperatur zeigten keine eindeutigen Zusammenhänge. Exemplarisch zeigt **Abb. 7.7** die Abhängigkeit der gemessenen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in Bösel von der Windrichtung und der Windgeschwindigkeit. Bei Anströmung aus Ost und Nord-Nordwest wurden zwar die höchsten Werte gemessen, die Streubreite ist aber sehr groß.

In einer Studie von Bächlin et al. (2003) wurde gezeigt, dass der PM<sub>10</sub>-Anteil des Verkehrs für eine Verkehrsmessstelle in der Göttinger Straße in Hannover (Station HRVS in **Abb. 4.3** in unmittelbarer Nähe der Station Hannover (HRSW)) bei ca. 35 % an den dort gemessenen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen beträgt. An der Station Jadebusen als Hintergrundstation wurde als mittlerer Wert während des Untersuchungsjahres 26 µg PM<sub>10</sub>/m<sup>3</sup> gemessen. An der Station Hannover (HRSW) über Dach wurden im gleichen Zeitraum 32 µg PM<sub>10</sub>/m<sup>3</sup> gemessen. Dies bedeutet, dass die über Dach gemessenen Konzentrationen zu ca. 80 % aus der großräumigen Hintergrundbelastung resultieren. Somit würden sich, bezogen auf die Verkehrsmessstelle, ca. 50 % als Anteil aus der großräumigen Hintergrundbelastung ergeben, die verbleibenden 15 % können als Zusatzbelastung aus dem Raum Hannover betrachtet werden.

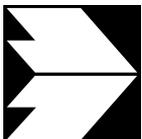
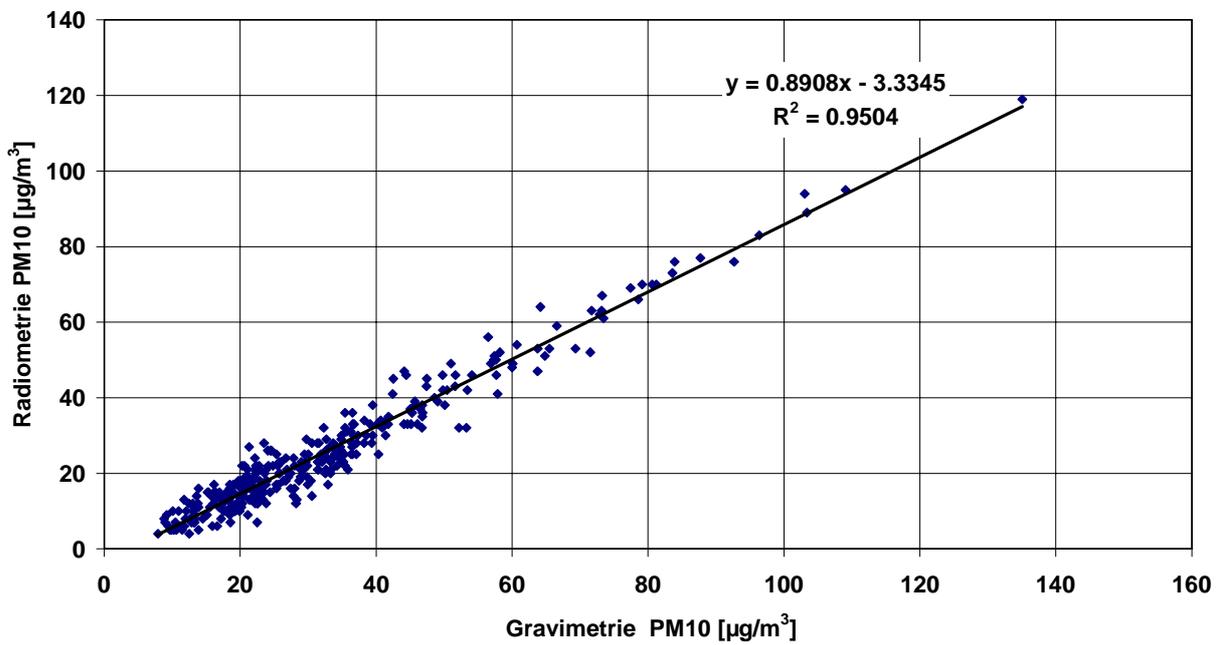
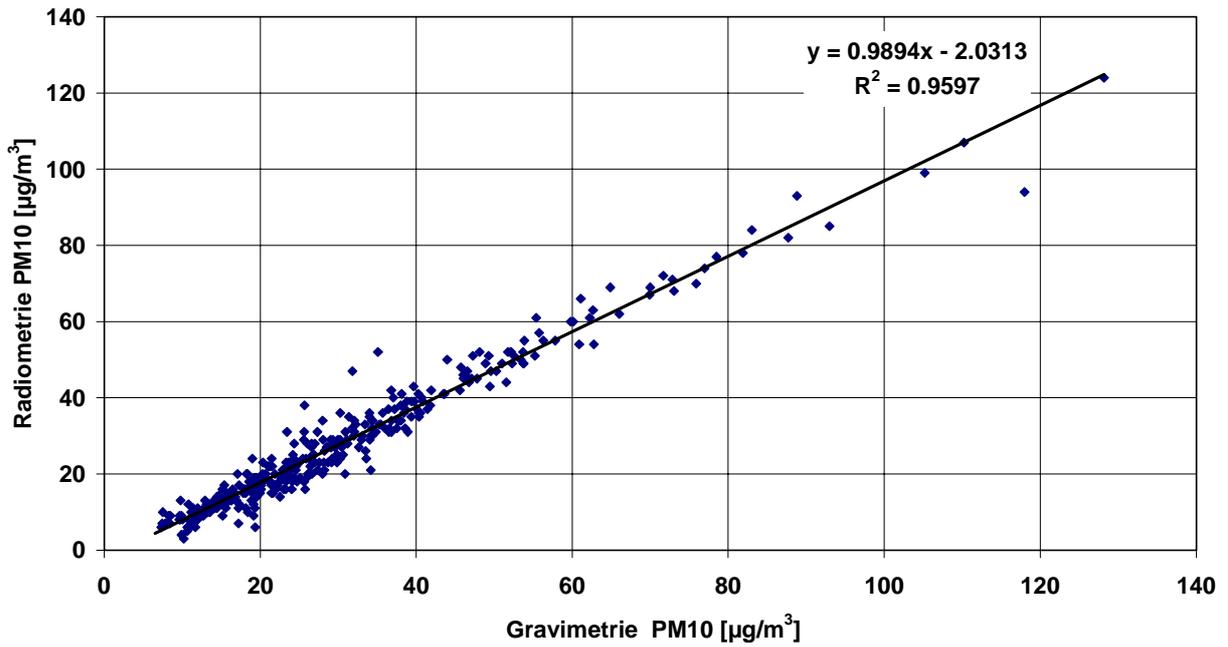


Abb. 7.6: Vergleich der Ergebnisse aus Gravimetrie und Radiometrie  
 oben : Station Bösel (BLWW)  
 unten: Station Hannover (HRSW)

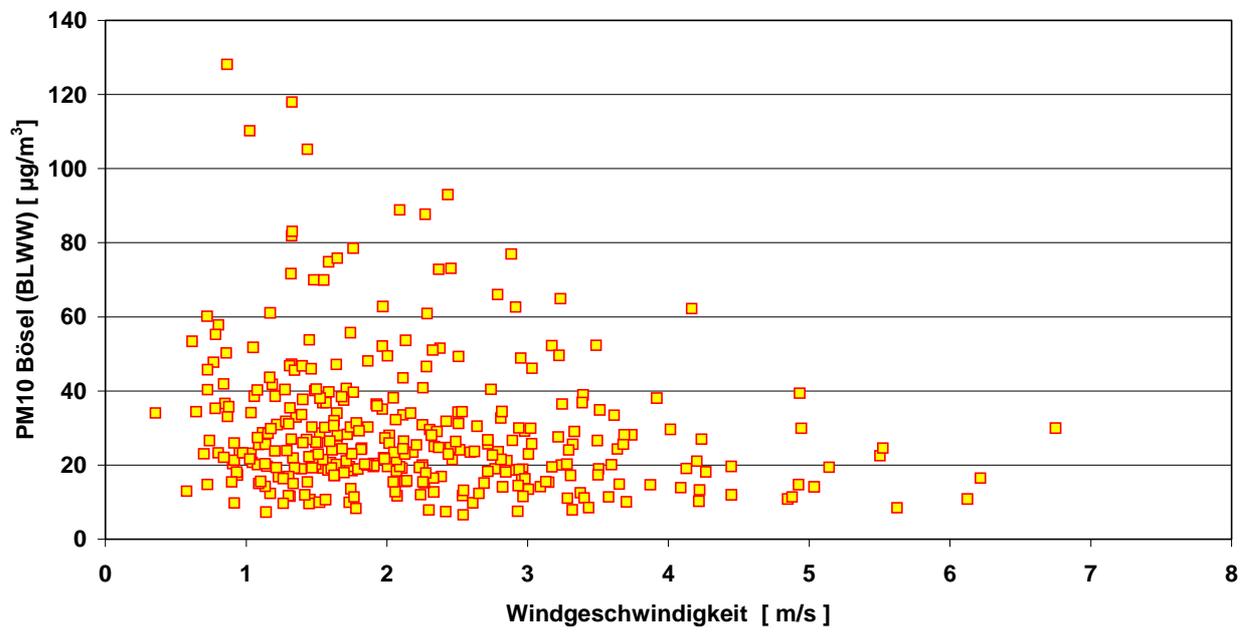
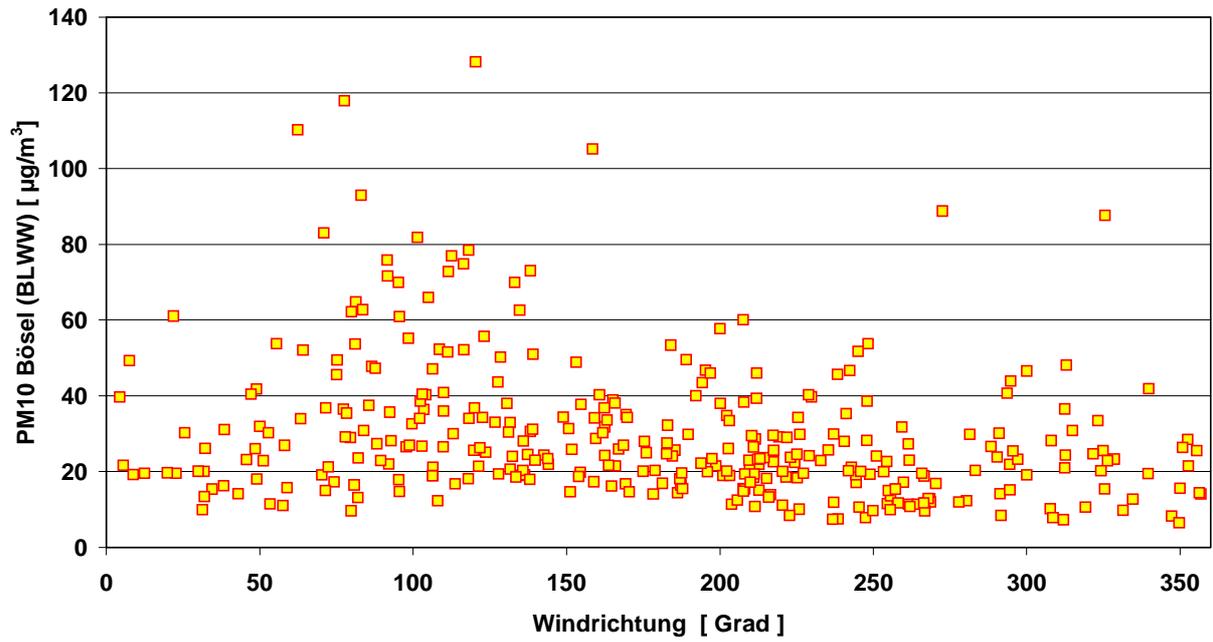


Abb. 7.7: PM10-Konzentrationswerte in Bösel (BLWW) in Abhängigkeit von  
oben : Windrichtung  
unten: Windgeschwindigkeit

Eine Bestätigung der obigen Aussagen liefert das FuE-Vorhaben MODMESS (Jakobs et al., 2004), bei dem modellgestützte Analysen der PM-Messungen an den Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) durchgeführt werden. Es wurden dort einzelne Episoden nachgerechnet und flächenhaft Bilder für ganz Europa geliefert. Exemplarisch wurde der Zeitraum 08.12.2002 bis 18.12.2002 graphisch dargestellt. Aus den dort gezeigten Abbildungen ist die großräumige Ausdehnung der PM10-Belastungen zu erkennen.

### 7.3 Analyse der Inhaltsstoffe

#### 7.3.1 Mittlere Massenkonzentrationen und Zeitreihen

Die PM10-Fractionen der beprobten Filter wurden auf Ionen und auf Elemente analysiert. **Tab. 7.2** und **Tab. 7.3** geben die Kennzahlen der chemischen Inhaltsstoffe und der PM10-Massenkonzentrationen für die Stationen Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) wieder. Alle im folgenden aufgeführten Werte beziehen sich immer nur auf die Filter, die auch chemisch analysiert worden sind.

**Abb. 7.8** zeigt exemplarisch die Zeitreihen von PM10, EC,  $\text{NO}_3^-$  und Fe für die beiden Stationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW). Die Zeitreihen von EC und Nitrat zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die PM10-Massenkonzentrationen der jeweiligen Station. Für Eisen ist diese Korrelation nicht so ausgeprägt.

Auch zwischen den Stationen zeigen sich sehr ähnliche Konzentrationsverläufe mit nur einzelnen Tagen oder kurzen Perioden, bei denen unterschiedliche Konzentrationsverläufe zu erkennen sind.

**Abb. 7.9** stellt grafisch das Verhältnis der einzelnen Komponenten zwischen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) dar. Dieser Vergleich der Mittelwerte zeigt deutlich höhere Konzentrationen an  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$  und  $\text{NH}_4^+$  für Bösel, gleiche Konzentrationsniveaus für Na, K,  $\text{SO}_4^{2-}$  und Mg, sowie höhere Konzentrationen der anderen Inhaltsstoffe für Hannover.

Der Vergleich der Stationen Hannover (HRSW) zu Bösel (BLWW) zeigt unter der Annahme, dass die Messstation in Hannover den städtischen Hintergrund widerspiegelt, dass etwa 33% der Nitrat- und 28% der Ammoniummassenkonzentration aus Emissionen im Umkreis der Station in Bösel zu erklären sind. Die erhöhten Ammoniumkonzentrationen in Bösel sind wahrscheinlich auf Emission von Ammoniak und Bindung des Ammoniaks an Anionen ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ; siehe auch Ionenbilanz in Hannover) zurückzuführen. Die erhöhten Nitratkonzentrationen in Bösel können entweder auf Emissionen aus der Landwirtschaft oder erhöhte Umsatzraten von  $\text{NO}_x$  zu Nitrat mit anschließender Neutralisierung durch Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) zurückgeführt werden. Dass Ammoniak Einfluss auf Bildungsraten von sekundären Partikeln hat, zeigen Arbeiten von Tursic et al. (2003), Behra et al. (1989) und Hermann et al. (2000).

	<b>PM10</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>OC</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>EC</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Cl<sup>-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>NO<sub>3</sub><sup>-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>SO<sub>4</sub><sup>2-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>NH<sub>4</sub><sup>+</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Ca</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Mg</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Al</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	
Mittelwert	41	6.3	4.1	0.08	4.7	7.2	2.9	358	75	180	
Median	35	5.7	3.2	0.01	1.6	6.0	2.0	265	65	108	
0.25 Perzentil	24	4.0	1.7	0.01	0.4	3.5	0.8	139	41	55	
0.75 Perzentil	50	7.9	5.0	0.05	6.5	9.3	3.8	492	98	250	
0.904 Perzentil	77	10.4	8.9	0.14	12.3	14.2	7.5	827	149	455	
	<b>Fe</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Na</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>K</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Pb</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Cd</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Ni</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>As</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Mn</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Sb</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Cu</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Zn</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>
Mittelwert	580	430	313	20.6	0.52	4.0	2.2	14.6	3.6	16.1	57.8
Median	538	199	255	13.2	0.29	3.1	0.9	13.2	3.3	15.3	43.6
0.25 Perzentil	378	195	161	7.4	0.17	1.8	0.3	8.3	1.6	9.9	29.3
0.75 Perzentil	784	600	404	25.7	0.62	5.3	1.9	20.4	5.3	20.9	67.5
0.904 Perzentil	983	1105	627	50.4	1.49	7.7	6.1	26.4	7.3	28.1	126.3

Tab. 7.2: Kennzahlen der chemischen Inhaltsstoffe für die Station Hannover (HRSW)

	<b>PM10</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>OC</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>EC</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Cl<sup>-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>NO<sub>3</sub><sup>-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>SO<sub>4</sub><sup>2-</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>NH<sub>4</sub><sup>+</sup></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Ca</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Mg</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Al</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	
Mittelwert	39	5.7	3.4	0.53	7.0	7.2	4.0	187	72	140	
Median	35	5.1	2.8	0.21	2.8	6.3	2.8	144	61	91	
0.25 Perzentil	26	3.5	1.3	0.01	0.4	3.4	1.4	66	38	38	
0.75 Perzentil	47	6.9	3.9	0.75	10.7	9.6	5.8	248	102	218	
0.904 Perzentil	69	10.2	6.4	1.46	16.2	12.3	8.9	425	134	329	
	<b>Fe</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Na</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>K</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Pb</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Cd</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Ni</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>As</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Mn</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Sb</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Cu</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>	<b>Zn</b> <b>ng/m<sup>3</sup></b>
Mittelwert	229	433	315	15.5	0.47	3.4	1.8	8.1	1.4	5.6	46.7
Median	208	198	232	11.6	0.32	2.2	0.7	7.2	1.3	5.1	40.7
0.25 Perzentil	98	192	135	5.3	0.15	1.4	0.3	4.1	0.6	2.4	20.6
0.75 Perzentil	335	553	439	20.2	0.56	3.8	1.6	10.8	1.9	7.5	63.3
0.904 Perzentil	445	1096	578	33.0	1.11	8.8	4.2	15.5	3.1	11.3	91.6

Tab. 7.3: Kennzahlen der chemischen Inhaltsstoffe für die Station Bösel (BLWW)

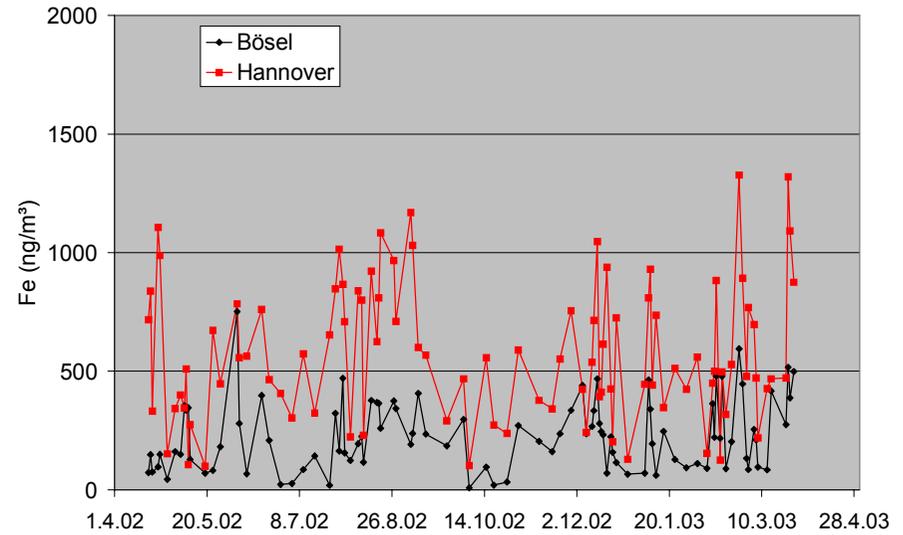
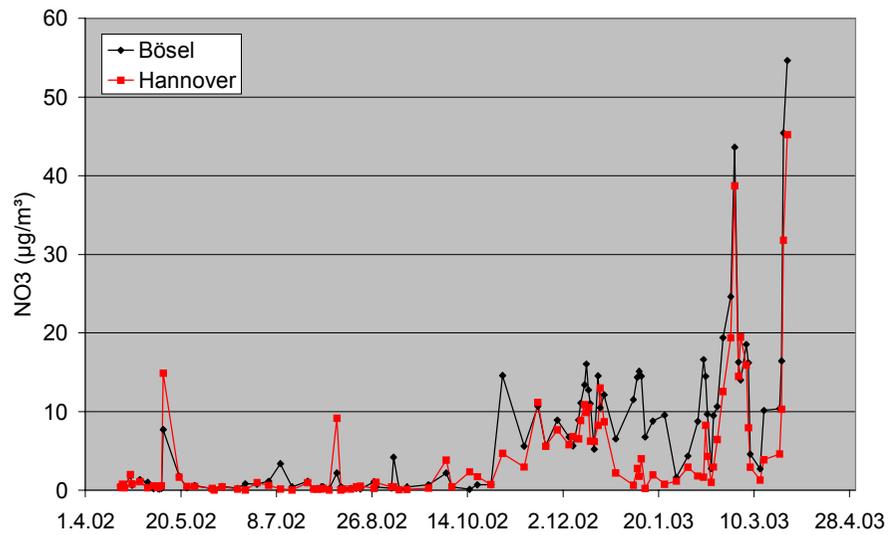
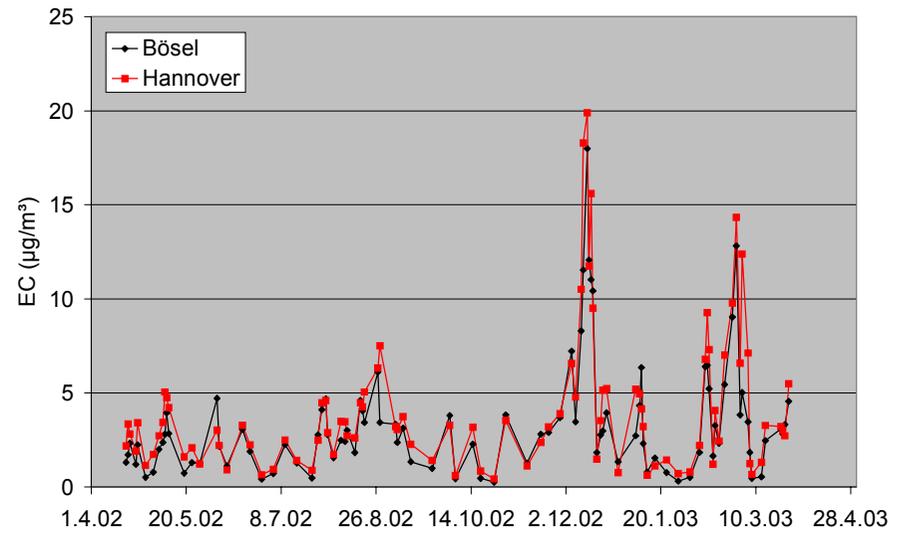
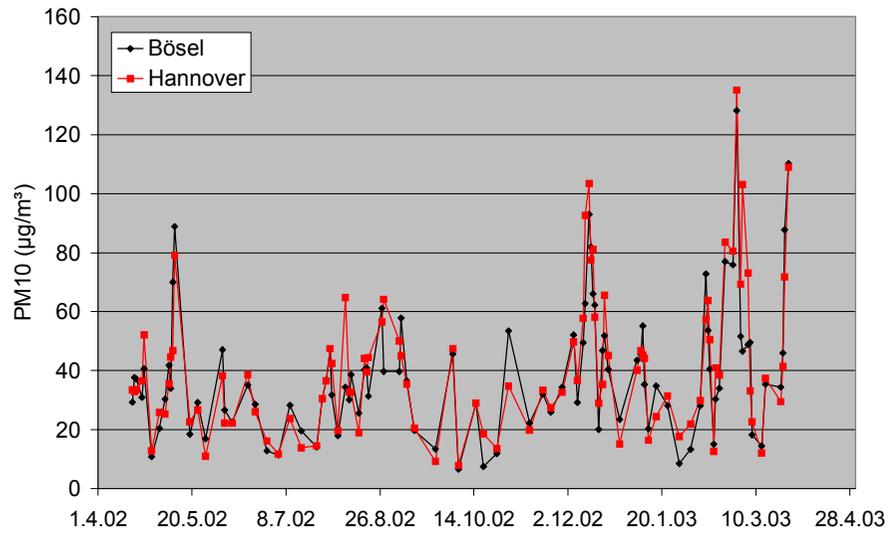


Abb. 7.8: Beispiele von Zeitreihen, PM10, EC, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> und Fe

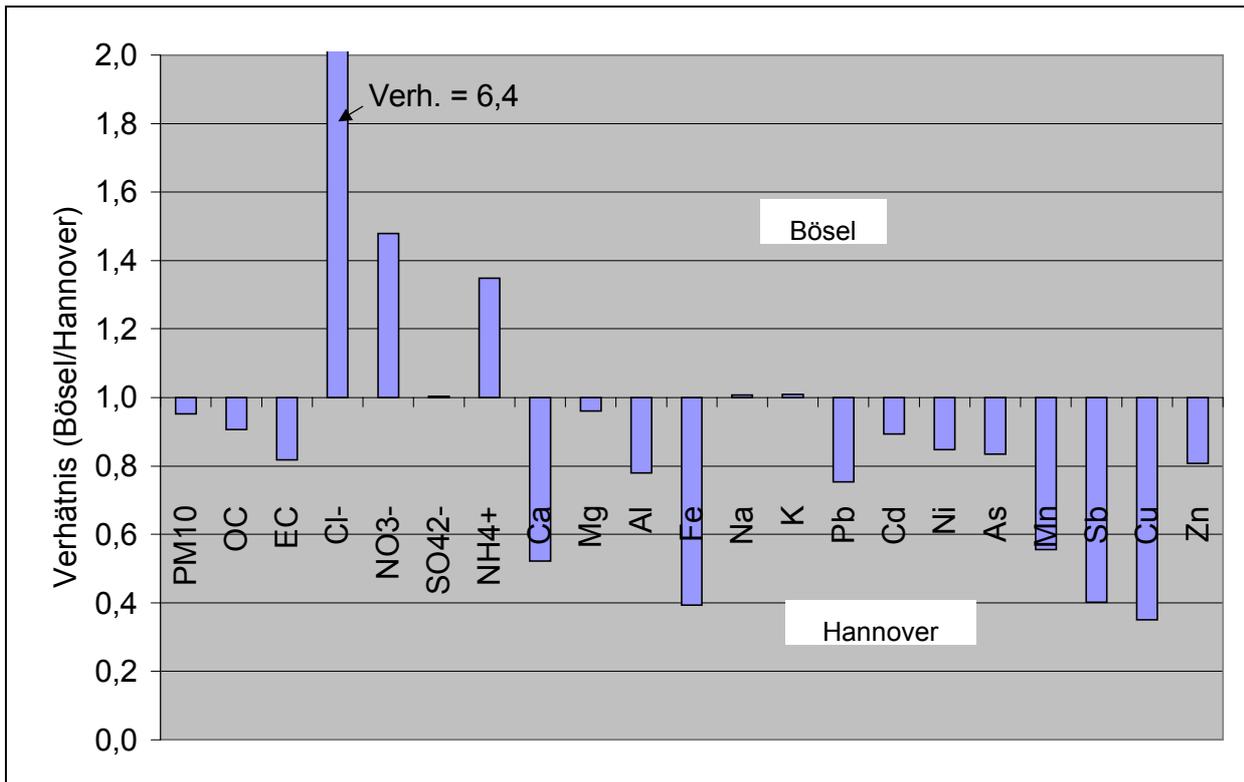


Abb. 7.9: Verhältnisse der einzelnen Komponenten zwischen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW)

### 7.3.2 Ionenbilanz $\text{NO}_3^-$ , $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NH}_4^+$

**Abb. 7.10** zeigt die Ionenbilanzen für Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) für die Verbindungen  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  und  $\text{NH}_4^+$ . Für Bösel zeigt sich eine fast ausgeglichene Ionenbilanz, wohingegen für die Station in Hannover ein etwa 16%iger Überschuss an Anionen vorhanden ist. Die Korrelationen sind sehr gut ausgeprägt. Eine Erklärung für die ausgeglichene Ionenbilanz von Bösel könnten die nahegelegenen Quellen an Ammoniak sein.

### 7.3.3 Chemische Zusammensetzung von PM10

Für die Berechnungen der chemischen Zusammensetzungen wurden die Metalle in ihre entsprechenden Oxide und der organische Kohlenstoff in „Organic Matter“ OM umgerechnet.

**Abb. 7.11** zeigt den Vergleich der chemischen Zusammensetzung zwischen den beiden Stationen für Tage mit PM10 Massenkonzentrationen  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . **Abb. 7.12** und **Abb. 7.13** zeigen die mittleren sowie die PM10-Massenkonzentrationsabhängigen chemischen Zusammensetzungen zusammengefasst für die Stationen Bösel und Hannover. Eine Zusammenfassung der **Abb. 7.12** und **Abb. 7.13** ist in **Tab. 7.4** gegeben. Es zeigt sich, dass insbesondere der prozentuale Anteil der Ionen und von EC mit steigenden PM10-Massenkonzentrationen ansteigt, wohingegen die prozentualen Anteile von OM (OC mal 1,4, organisches

Material), den Erdkrustenelementen Ca+Al, den Seesalzkomponenten Na+Mg sowie der Metalle abnehmen.

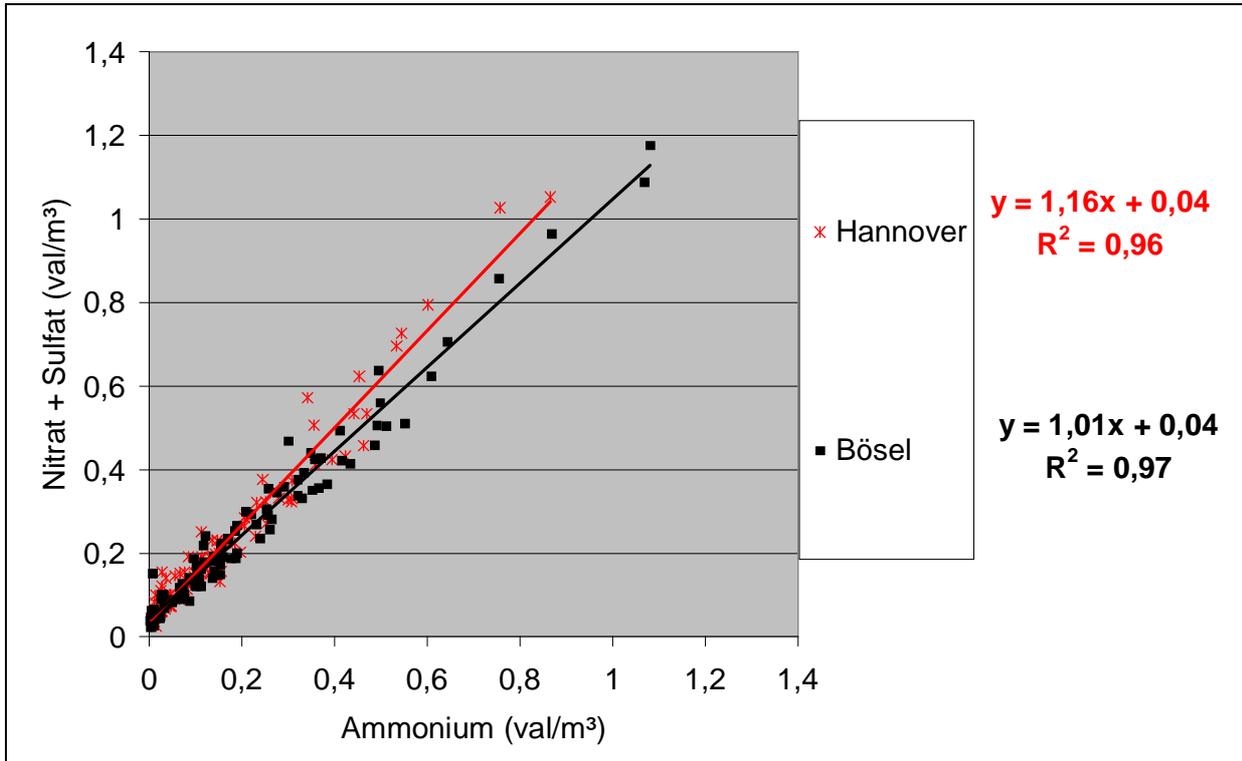


Abb. 7.10: Ionenbilanzen ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) für die Stationen Bösel und Hannover

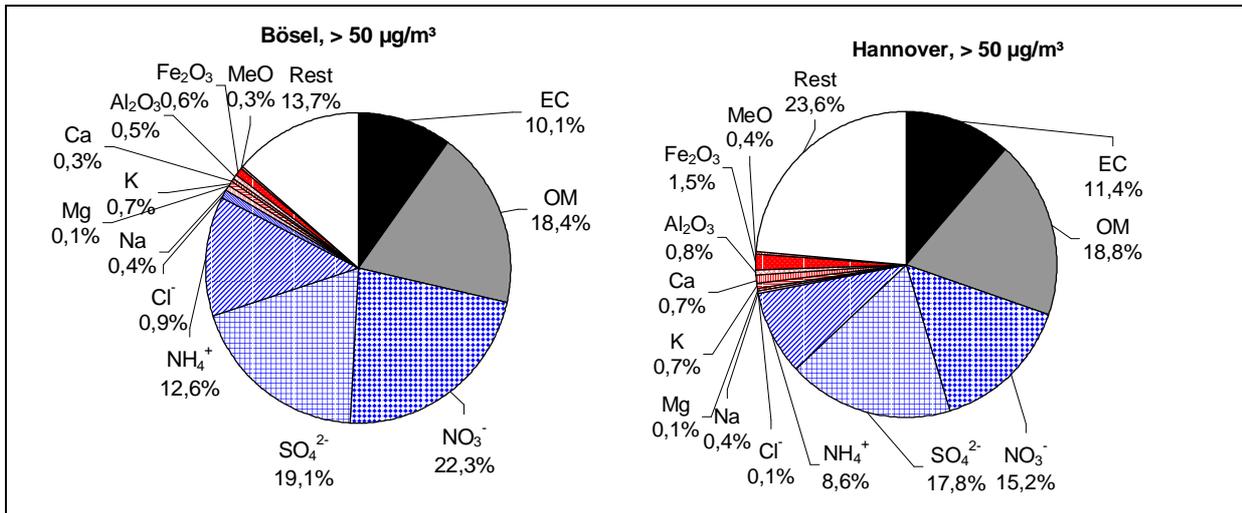


Abb. 7.11: Gegenüberstellung chemische Zusammensetzung für > 50 µg/m³ für Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW)

Die **Tab. 7.4** zeigt, dass Bösel einen deutlich höheren Anteil an Ionen im Vergleich zu Hannover, generell und insbesondere an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen aufweist. Eine detailliertere Untersuchung der einzelnen Ionen zeigt einen Anstieg der prozentualen Anteile

für  $\text{NH}_4^+$  von 210% und 240%, für  $\text{NO}_3^-$  von 180% und 230% und für  $\text{SO}_4^{2-}$  von 120% und 110% jeweils für Bösel bzw. Hannover. Somit sind Nitrat und Ammonium bei den Ionen die „Leitsubstanzen“ die am deutlichsten zum Anstieg der PM10-Massenkonzentrationen beitragen. Die Anteile der Erdkrustenelemente und der Metalle sinken mit steigenden Massenkonzentrationen.

		$\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$ %-PM10	EC %-PM10	OM %-PM10	Ca+Al %-PM10	Na+Mg %-PM10	Fe+Me %-PM10
Bösel	> 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	54 %	10 %	18 %	0.8 %	0.5 %	0.9 %
	< 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	34 %	6 %	24 %	1.2 %	4.7 %	1.2 %
Hannover	> 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	42 %	11 %	19 %	1.5 %	0.5 %	1.9 %
	< 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	26 %	8 %	28 %	2.1 %	3.8 %	3.6 %

Tab. 7.4: Vergleich der chemischen Zusammensetzung von PM10 bei verschiedenen Massenkonzentrationen

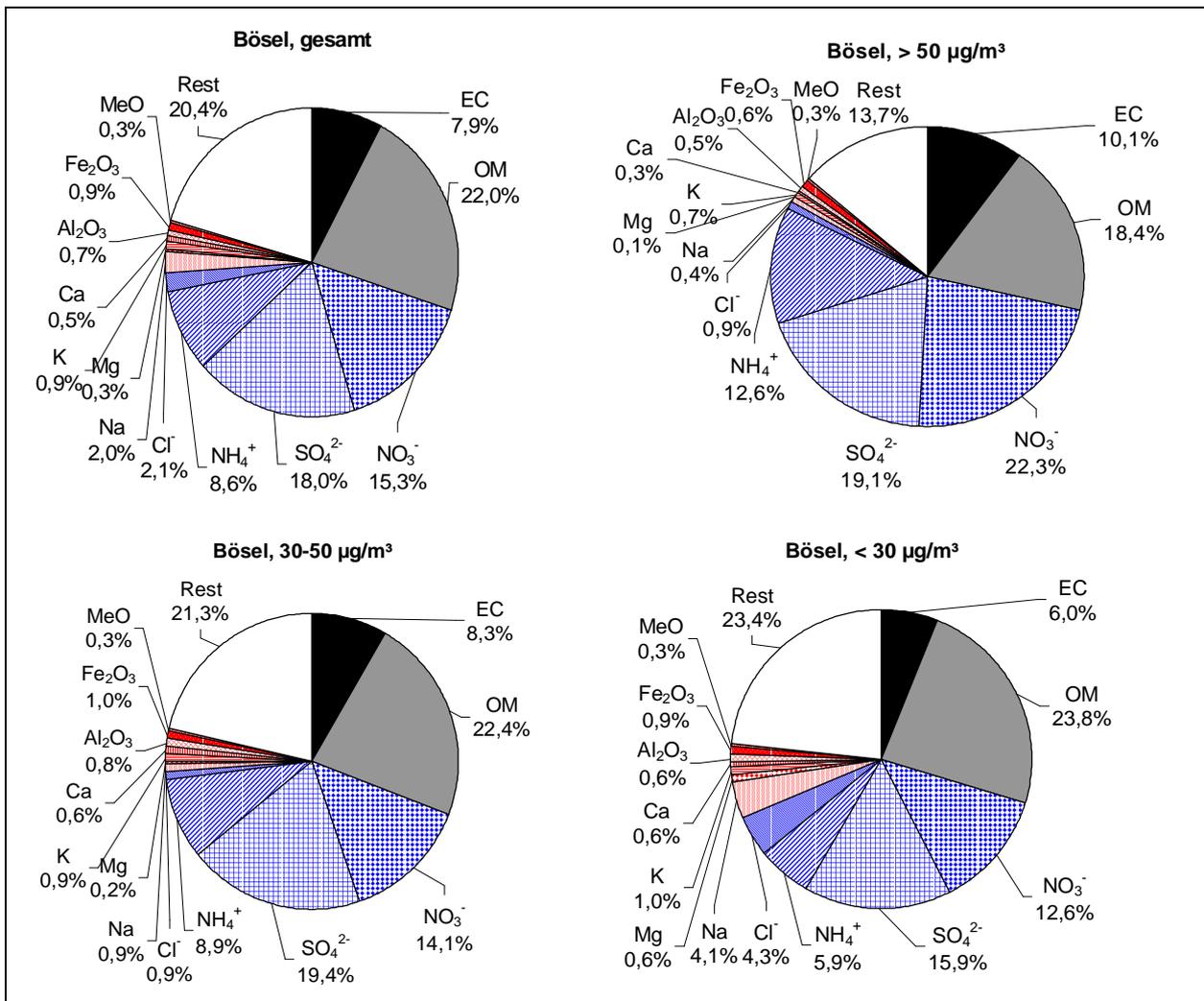


Abb. 7.12: Konzentrationsabhängige chemische Zusammensetzung von PM10 in Bösel (MeO: Metalle als Oxide)

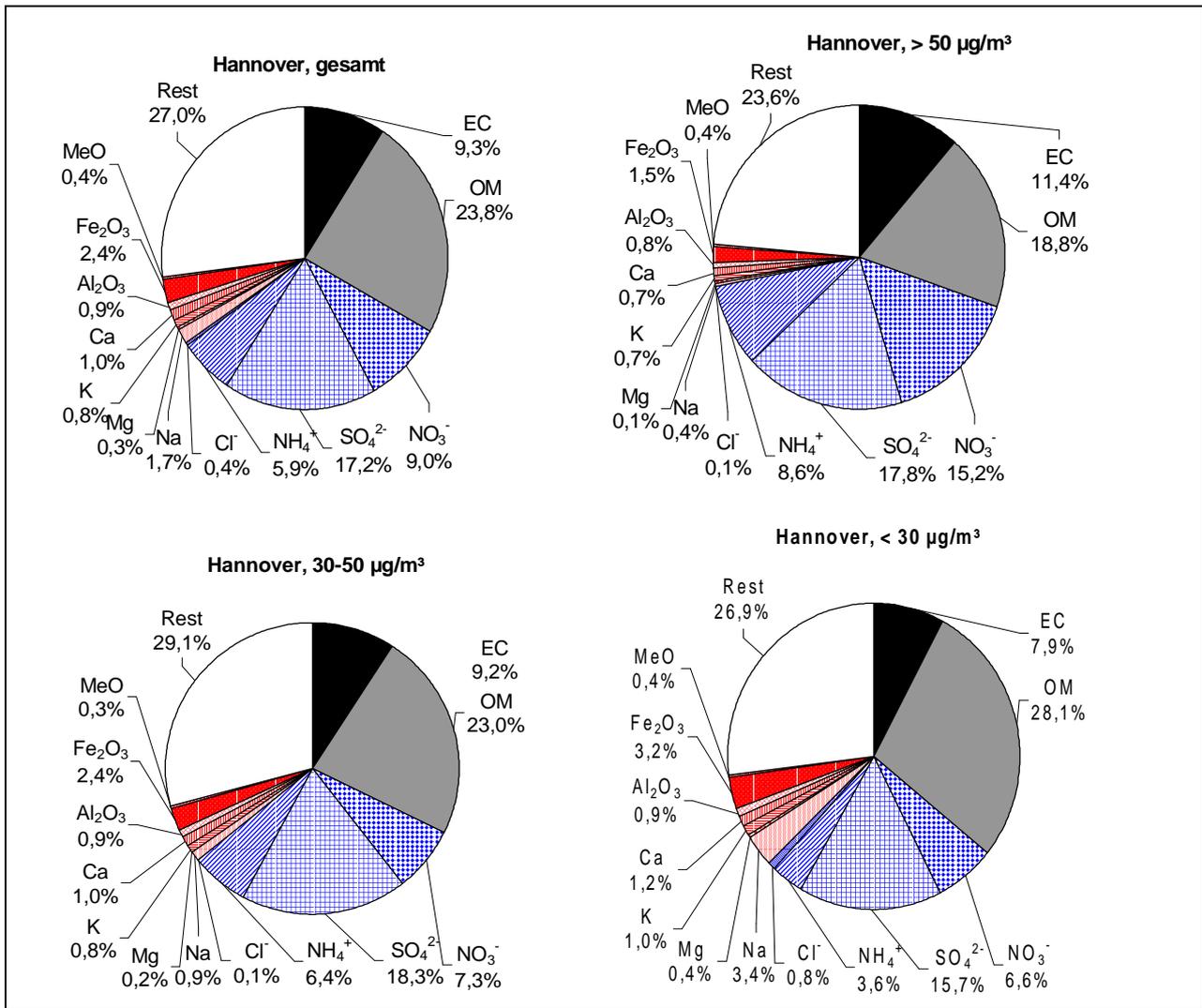


Abb. 7.13: Konzentrationsabhängige chemische Zusammensetzung von PM10 in Hannover (MeO: Metalle als Oxide)

### 7.3.4 Element-/Molekülkonzentrationsdifferenzen von Bösel und Hannover

In der **Abb. 7.14** werden exemplarisch die Differenzen der Massenkonzentrationen der Elemente und Verbindungen für die Tage, bei denen die PM10-Massenkonzentration in Hannover  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  waren, aufgeführt. Die gleichen Berechnungen wurden auch für die anderen, im vorherigen Abschnitt eingeführten Konzentrationsbereiche ( $< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $30\text{-}50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und Gesamtmittel) durchgeführt.

Anhand dieser Berechnungen wurden die Bilanzen in **Tab. 7.5** für Hannover und Bösel erstellt. Die Massenbilanz der Stationen zeigt, dass Hannover mit  $1\text{-}4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  höher belastet ist mit EC, OC und Metallen und mit  $1\text{-}9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  höher belastet ist mit dem ungeklärten Rest, wohingegen Bösel mit  $2\text{-}5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  höher belastet ist an den Ionen  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$  und  $\text{NH}_4^+$ .

	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\text{Cl}^-$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\text{SO}_4^{2-}$ $\mu\text{g}/\text{m}^3$	EC, OC, Metalle $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Bilanz Inhaltsstoffe $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Massenbilanz $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Mittel	1.96	-3.74	-0.03	1.93	-1.84	-3.79
$< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-0.27	-2.29	-0.31	1.09	-1.51	-1.23
$30\text{-}50 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-0.96	-4.52	-0.57	1.31	-3.78	-2.82
$> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$	9.83	-4.61	1.24	4.14	0.77	-9.06

Tab. 7.5: Massenbilanz der Differenzen

Die erste Spalte in **Tab. 7.5** gibt den PM10-Massenkonzentrationsbereich und die zweite Spalte die mittlere Differenz der PM10-Massenkonzentrationen zwischen Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) an. In der dritten Spalte wurde die Summe der Ionen gebildet, die immer höhere Werte für Bösel anzeigen. Sulfat,  $\text{SO}_4^{2-}$  zeigte keine einheitliche Tendenz und wurde daher separat in die Tabelle aufgenommen. In der fünften Spalte ist die Summe der Verbindungen und Elemente enthalten, die hauptsächlich positive Werte anzeigen und damit in Hannover in höheren Konzentrationen vorlagen. Die Spalte „Bilanz Inhaltsstoffe“ (Summe Spalten 3-5) sollte idealerweise die Differenz der PM10-Massenkonzentrationen aus Spalte 2 wiedergeben und somit die Massenbilanz (Spalte 7, Differenz von Spalte 6 und Spalte 2) Null ergeben. Es ergeben sich jedoch Differenzen (Spalte 7) von  $-1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $-9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ursache für diese nicht ausgeglichene Massenbilanz ist der nicht bestimmte Anteil der chemischen Inhaltsstoffe der PM10-Fraktion. Negative Vorzeichen bedeuten, dass der „Rest“ der Massenbilanz auf der Seite von Bösel fehlt. Ein Vergleich der chemischen Zusammensetzungen zwischen Hannover und Bösel (**Abb. 7.12** und **Abb. 7.13**) zeigt für Hannover einen grundsätzlich höheren Restanteil, der den „Rest“ der Massenbilanz somit dem nicht identifizierten Rest der Proben zuordnet.

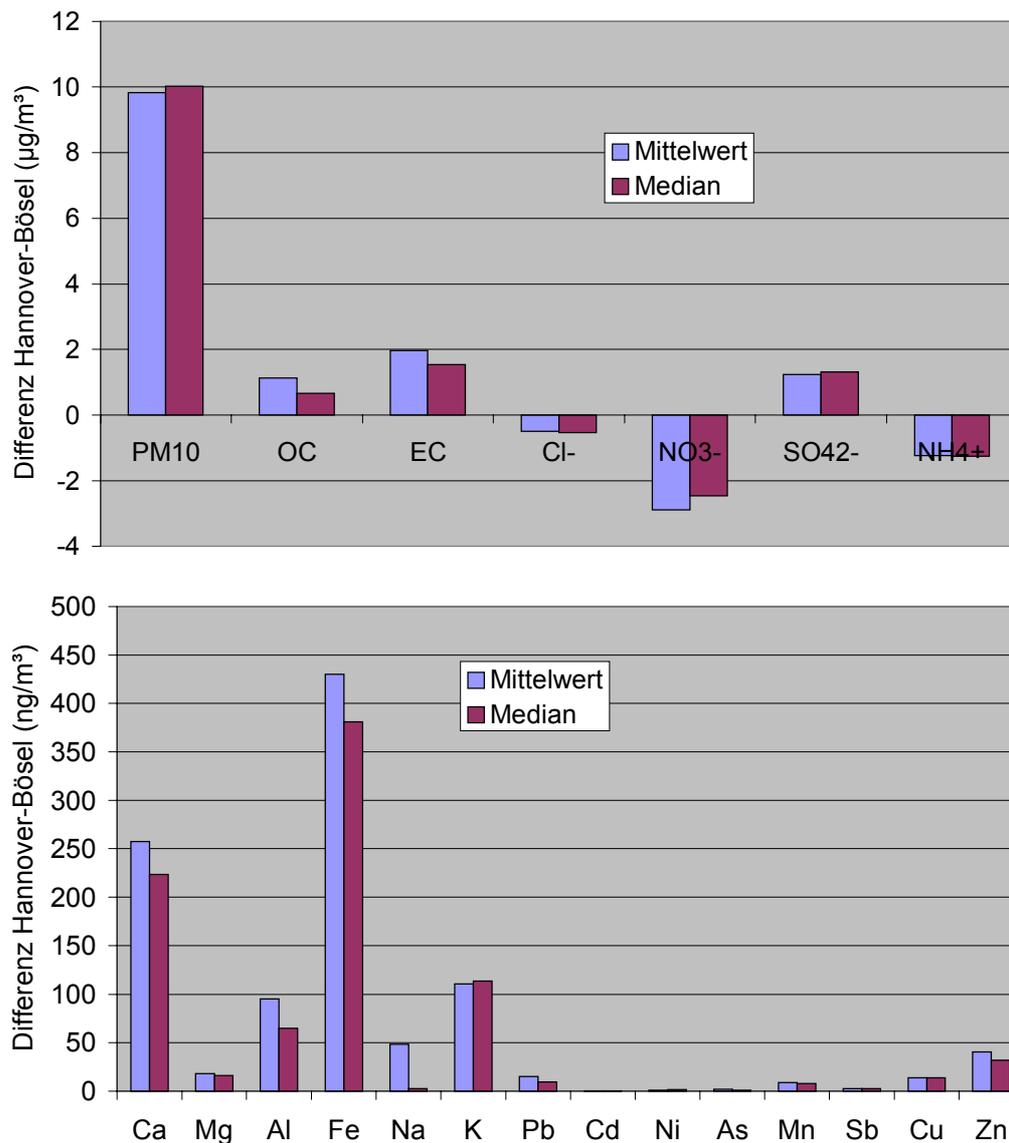


Abb. 7.14: Differenzen der Elementkonzentrationen (Hannover-Bösel) für den Konzentrationsbereich  $\text{PM}_{10} > 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$

## 7.4 Partikelgrößenverteilung

### 7.4.1 Statistische Kenngrößen

**Tab. 7.6** gibt eine Übersicht über charakteristische Anzahlkonzentrationen (Partikelanzahl pro  $\text{dm}^3$  als 30-Minuten-Mittelwerte) der kleinen ( $0.3\text{-}0.5 \mu\text{m}$ ), mittleren ( $0.5\text{-}2.0 \mu\text{m}$ ) und großen ( $2.0\text{-}10 \mu\text{m}$ ) Partikel, wie sie zu zeitgleichen Messungen in Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) mit den optischen Partikelzählern gemessen wurden. Beim Vergleich der beiden Standorte ist erkennbar, dass im allgemeinen die Partikelgrößenklassen „klein“ ( $0.3\text{-}0.5 \mu\text{m}$ ) und „mittel“ ( $0.5\text{-}2.0 \mu\text{m}$ ) höhere Konzentrationen am Standort Hannover aufweisen, während

für „große Partikel“ (2.0-10  $\mu\text{m}$ ) höhere Konzentrationen am Standort Bösel ermittelt werden. Dies zeigt sich für beide Intensivmessphasen. So ist die Partikelanzahlkonzentration für kleine Partikel in Bösel im Schnitt um 35 bis 40 % niedriger als in Hannover, die Konzentration für mittlere Partikelgrößen liegt sogar um 35 bis 60 % niedriger, legt man die Differenzen der Median- und Mittelwerte beider Standorte hierfür zu Grunde. Die Anzahlkonzentration für große Partikel hingegen liegt in Bösel (BLWW) im Mittel um 20 bis 60 % höher als in Hannover (HRSW). Dies liefert Hinweise auf unterschiedliche Entstehungsmechanismen trotz vergleichbarer Massenkonzentrationen.

Beim Vergleich der beiden Intensivmessphasen April 2002 und August 2002 ist festzustellen, dass im August erkennbar höhere Konzentrationen für kleine und mittlere Partikelgrößen an beiden Standorten auftreten, während die Anzahlkonzentration für große Partikel nahezu konstant geblieben ist. **Tab. 7.7** zeigt die Tagesmittelwerte für kleine, mittlere und große Partikel während der Intensivmessphasen für die Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW).

Standort		Hannover (HRSW)			Bösel (BLWW)			Faktor BLWW/HRSW			
Partikeldurchmesser ( $\mu\text{m}$ )		0.3-0.5	0.5-2.0	2.0-10	0.3-0.5	0.5-2.0	2.0-10	0.3-0.5	0.5-2.0	2.0-10	
April 2002	<b>Mittelwert</b>	<b>N/dm<sup>3</sup></b>	<b>124 546</b>	<b>12 874</b>	<b>159</b>	<b>86 987</b>	<b>4 998</b>	<b>240</b>	<b>0.70</b>	<b>0.39</b>	<b>1.51</b>
	95% Konfidenz u	N/dm <sup>3</sup>	117 818	11 467	153	80 497	4 394	213			
	95% Konfidenz o	N/dm <sup>3</sup>	131 273	14 282	165	93 477	5 602	266			
	5% getr. Mittel	N/dm <sup>3</sup>	110 667	8 223	151	81 251	3 991	212	0.73	0.49	1.40
	<b>Median</b>	<b>N/dm<sup>3</sup></b>	<b>98 145</b>	<b>5 123</b>	<b>142</b>	<b>69 153</b>	<b>3 331</b>	<b>169</b>	<b>0.70</b>	<b>0.65</b>	<b>1.19</b>
	Minimum	N/dm <sup>3</sup>	2 831	174	7	4 028	520	24			
	Perzentil 10	N/dm <sup>3</sup>	12 052	1 672	48	12 742	1 199	75			
	Perzentil 25	N/dm <sup>3</sup>	37 968	3 016	84	27 655	1 885	109			
	Perzentil 75	N/dm <sup>3</sup>	167 831	10 345	208	134 537	5 013	307			
	Perzentil 90	N/dm <sup>3</sup>	265 358	27 485	294	186 590	8 689	493			
Maximum	N/dm <sup>3</sup>	676 642	186 446	1 335	437 076	70 326	5 023				
August 2002	<b>Mittelwert</b>	<b>N/dm<sup>3</sup></b>	<b>285 866</b>	<b>22 886</b>	<b>167</b>	<b>207 699</b>	<b>14 103</b>	<b>212</b>	<b>0.73</b>	<b>0.62</b>	<b>1.27</b>
	95% Konfidenz u	N/dm <sup>3</sup>	270 453	21 505	157	196 798	13 129	203			
	95% Konfidenz o	N/dm <sup>3</sup>	301 278	24 267	176	218 601	15 076	221			
	5% getr. Mittel	N/dm <sup>3</sup>	278 903	21 887	162	197 119	12 869	207	0.71	0.59	1.28
	<b>Median</b>	<b>N/dm<sup>3</sup></b>	<b>253 660</b>	<b>21 055</b>	<b>150</b>	<b>168 011</b>	<b>9 213</b>	<b>193</b>	<b>0.66</b>	<b>0.44</b>	<b>1.29</b>
	Minimum	N/dm <sup>3</sup>	35 102	2 298	20	10 284	1 215	23			
	Perzentil 10	N/dm <sup>3</sup>	114 872	8 070	61	51 014	2 336	70			
	Perzentil 25	N/dm <sup>3</sup>	155 691	11 842	97	110 170	4 913	124			
	Perzentil 75	N/dm <sup>3</sup>	381 382	29 483	230	283 478	19 583	286			
	Perzentil 90	N/dm <sup>3</sup>	500 378	40 963	292	409 751	34 109	383			
Maximum	N/dm <sup>3</sup>	716 555	71 829	493	754 379	61 022	583				

Tab. 7.6: Übersicht über statistische Größen zur Charakterisierung der beiden Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) sowie der Intensivmessphasen für kleine, mittlere und große Partikel

IMP	Datum	HRSW			BLWW		
		0.3-0.5 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>	0.5-2.0 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>	2.0-10 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>	0.3-0.5 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>	0.5-2.0 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>	2.0-10 $\mu\text{m}$ N/dm <sup>3</sup>
Intensivmessphase April 2002	26.04.02	101 771	6 109	123	159 208	5 633	141
	27.04.02	23 606	3 046	68	28 017	1 602	156
	28.04.02	31 553	2 029	83			
	29.04.02	9 945	2 171	90			
	30.04.02						
	01.05.02						
	02.05.02				113 066	6 126	163
	03.05.02	212 835	10 797	137	117 090	5 308	192
	04.05.02	137 694	9 051	59	59 576	4 186	450
	05.05.02	36 591	1 249	21	54 493	2 432	187
	06.05.02	125 536	11 650	107			
	07.05.02	113 337	9 940	179			
	08.05.02	197 067	17 613	111			
	09.05.02	138 320	4 669	186			
	10.05.02	141 764	5 391	207			
	11.05.02	427 957	93 095	236			
	12.05.02	298 460	60 334	210			
	13.05.02	130 735	12 710	187			
	14.05.02	106 876	13 869	153	63 979	7 472	159
	15.05.02	53 704	6 208	272	36 144	3 494	417
	16.05.02	73 108	4 812	266			
	17.05.02	94 729	5 545	217			
	18.05.02	159 110	10 817	185			
	19.05.02	106 899	7 227	210			
20.05.02	24 899	2 794	167				
21.05.02	103 905	4 904	144				
22.05.02	93 720	3 723	122	96 078	6 742	139	
23.05.02	146 924	8 482	173	155 234	5 717	178	
24.05.02	240 439	11 649	240	185 284	7 933	765	
Intensivmessphase August 2002	16.08.02				54 159	2 731	173
	17.08.02				133 170	6 045	239
	18.08.02				287 817	14 479	345
	19.08.02				274 522	14 867	370
	20.08.02				267 961	18 465	297
	21.08.02				179 332	12 206	170
	22.08.02	183 962	18 200	117	53 708	3 936	83
	23.08.02	123 257	8 780	102	50 748	2 552	91
	24.08.02	234 199	18 267	140	192 209	12 542	130
	25.08.02	147 634	13 369	63	176 143	16 839	175
	26.08.02	197 980	15 531	108	138 910	6 124	210
	27.08.02	401 917	24 959	279	480 821	41 096	275
	28.08.02	540 135	42 079	263	331 894	25 070	233
	29.08.02	334 080	29 593	212	137 639	8 291	172
30.08.02	435 136	45 637	214	361 781	27 505	205	

Tab. 7.7: Tagesmittelwerte für kleine, mittlere und große Partikel an den Standorten Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) für beide Intensivmessphasen

## 7.4.2 Meteorologische und zeitperiodische Einflüsse

### 7.4.2.1 Windrichtung

**Abb. 7.15** zeigt die Häufigkeiten der aufgetretenen Windrichtung (Halbstundenwerte), unterteilt nach Standort und Intensivmessphase. So ist für Hannover (HRSW) April 2002 keine stark ausgeprägte Windrichtung festzustellen. Die häufigsten Windrichtungen sind in diesem Fall West-Südwest und Südost. Während der Intensivmessphase August 2002 herrschte an HRSW Windrichtung Südost vor. An der Messstation Bösel (BLWW) zeigen sich andere Windverhältnisse für die beiden Intensivmessphasen. Bei April 2002 war die Hauptwindrichtung Süd-Südwest, während bei August 2002 eine direkt entgegengesetzte Windrichtung vorherrschte (Nord-Nordost).

Die **Abb. 7.16** bis **Abb. 7.18** zeigen die gemessenen Partikelanzahlkonzentrationen für jede Partikelgrößenklasse (0.3-0.5  $\mu\text{m}$ , 0.5-2.0  $\mu\text{m}$ , 2.0-10  $\mu\text{m}$ ), aufgelöst nach Intensivmessphase und Standort. Diese Darstellungen ermöglichen einen visuellen Eindruck, ob bei einer bestimmten Windrichtung besonders hohe Konzentrationen auftreten. Eindeutige Zusammenhänge treten hierbei lediglich für den Standort Bösel (BLWW) auf. So treten während der Intensivmessphase April 2002 vor allem bei Windrichtungen aus Nord-Nordwest und Südwest höhere Partikelkonzentrationen bei großen Partikel auf (**Abb. 7.18**, links unten). Für kleine und vor allem für die mittlere Partikelgrößenklasse sind bei der Intensivmessphase August 2002 höhere Konzentrationen vor allem aus Nord-Nordost und Süd-Südwest festzustellen, wobei dies ebenfalls die vorherrschenden Hauptwindrichtungen für den Standort Bösel während der Intensivmessphase sind.

Im Anhang A sind die Mittelwerte für PM<sub>10</sub> und der Partikelgrößenklassen in Abhängigkeit von Standort und Windrichtung tabellarisch dargestellt. Für den Vergleich mit der Partikelanzahl wurden die Messergebnisse einzelnen Windrichtungsklassen zugeordnet. **Abb. 7.19** zeigt die PM<sub>10</sub>-Konzentrationen für Hannover und Bösel. Für den Standort Hannover (**Abb. 7.19** links) ist festzustellen, dass bei Windrichtung aus Nordost und Nord-Nordwest im Mittel die höchsten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen während der Intensivmessphase gemessen werden. Die geringsten Konzentrationen für PM<sub>10</sub> treten am Standort Hannover bei südwestlicher Windrichtung auf.

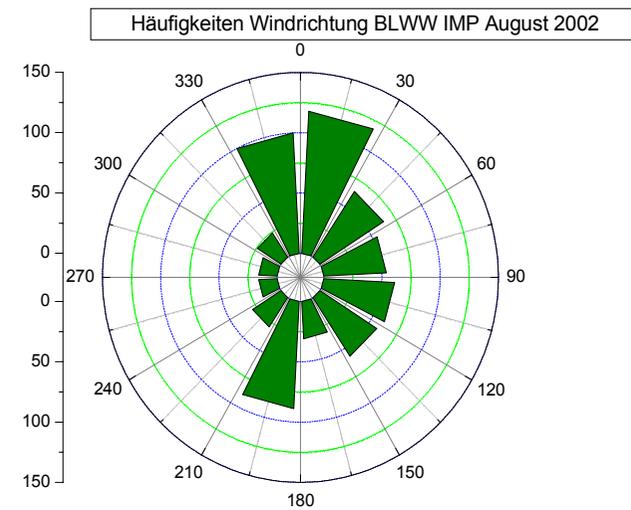
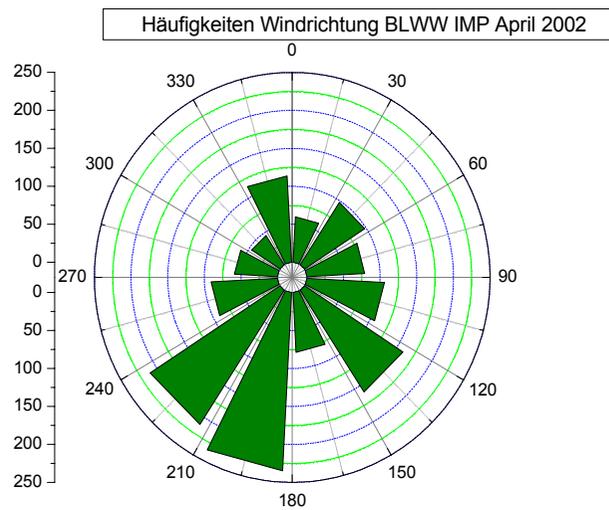
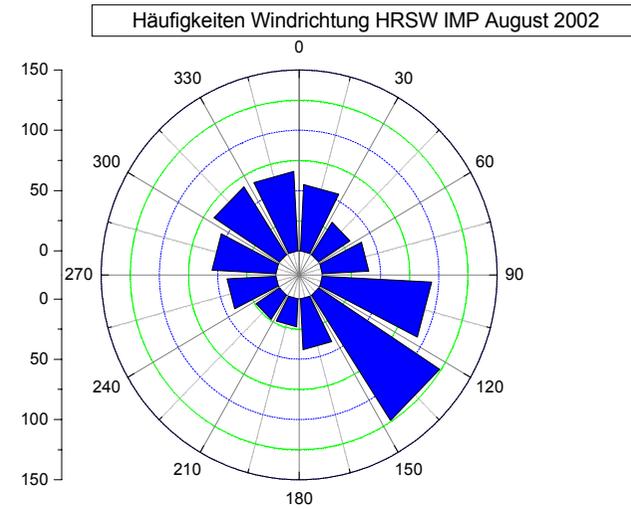
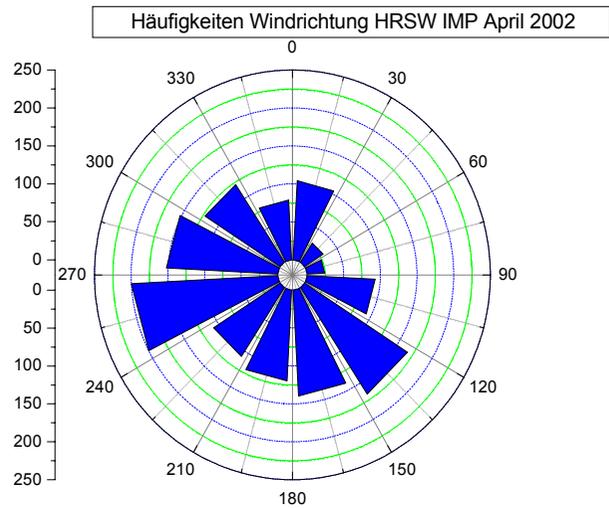


Abb. 7.15: Windrichtungshäufigkeiten in den Intensivmessphasen als Halbstunden-Mittelwerte, aufgetragen über die Windrichtung (0° entspricht Nord)

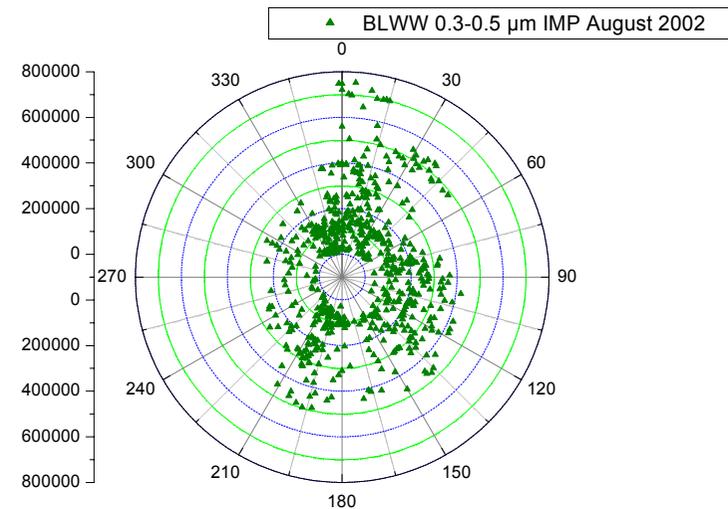
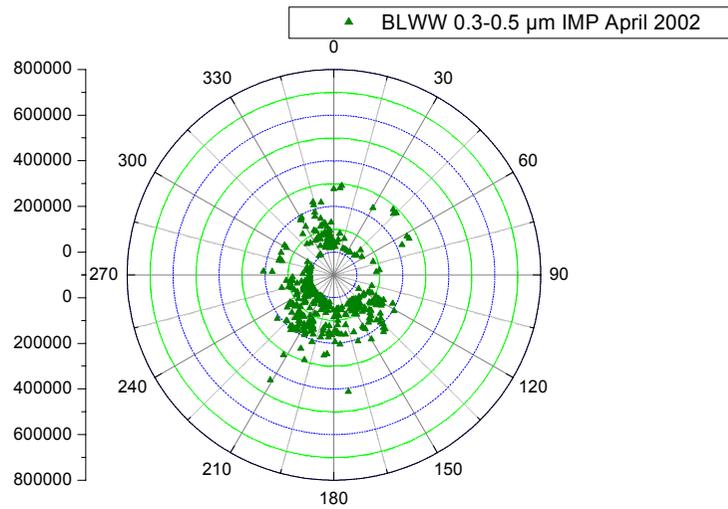
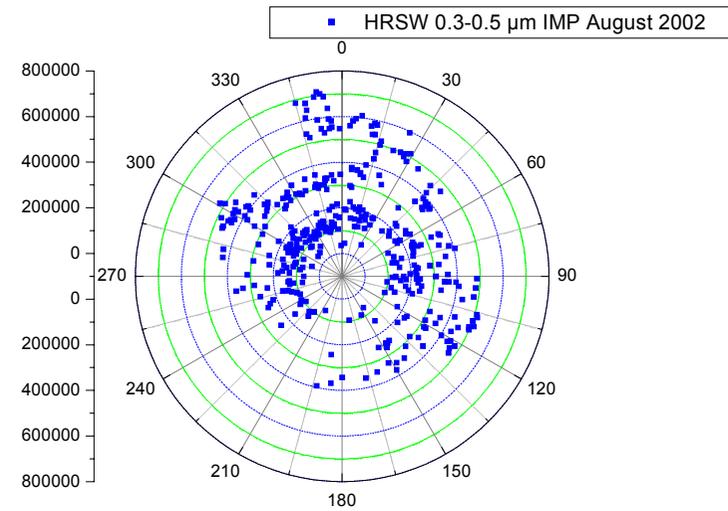
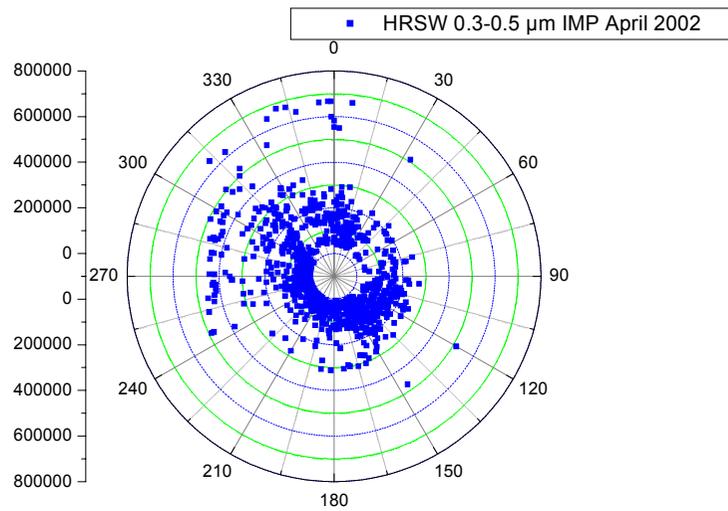


Abb. 7.16: Partikelanzahlkonzentrationen (N/dm<sup>3</sup>) in den Intensivmessphasen für kleine Partikel (0.3-0.5 µm Durchmesser), Halbstunden-Mittelwerte, aufgetragen über die Windrichtung (0° entspricht Nord)

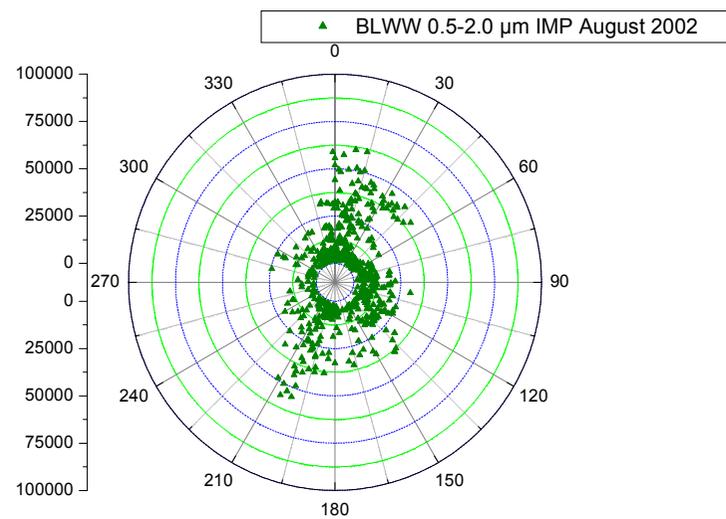
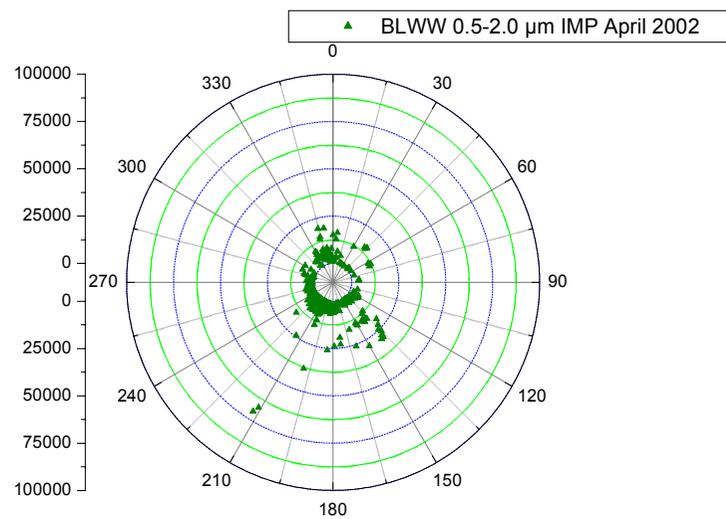
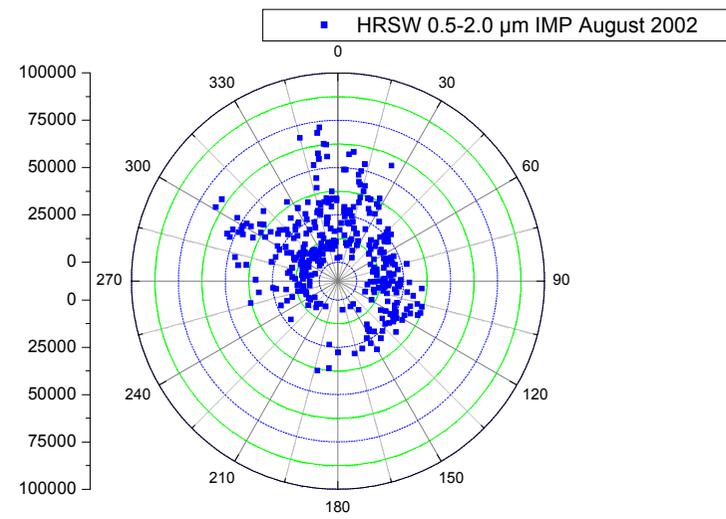
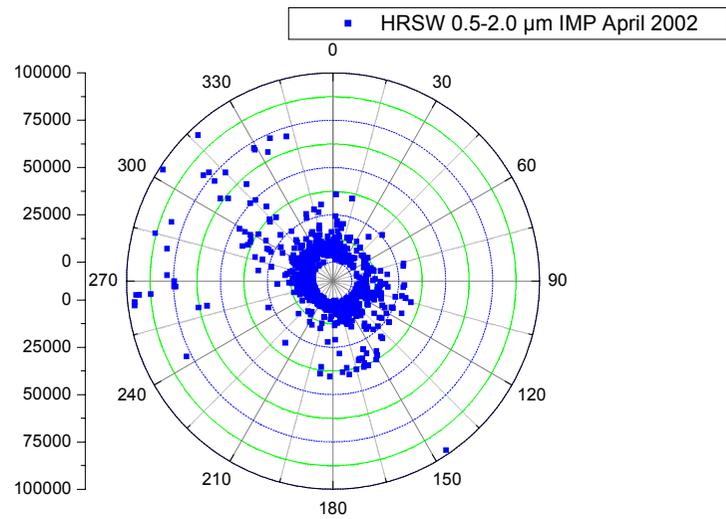


Abb. 7.17: Partikelanzahlkonzentrationen (N/dm<sup>3</sup>) in den Intensivmessphasen für mittlere Partikel (0.5-2.0 µm Durchmesser), Halbstunden-Mittelwerte, aufgetragen über die Windrichtung (0° entspricht Nord)

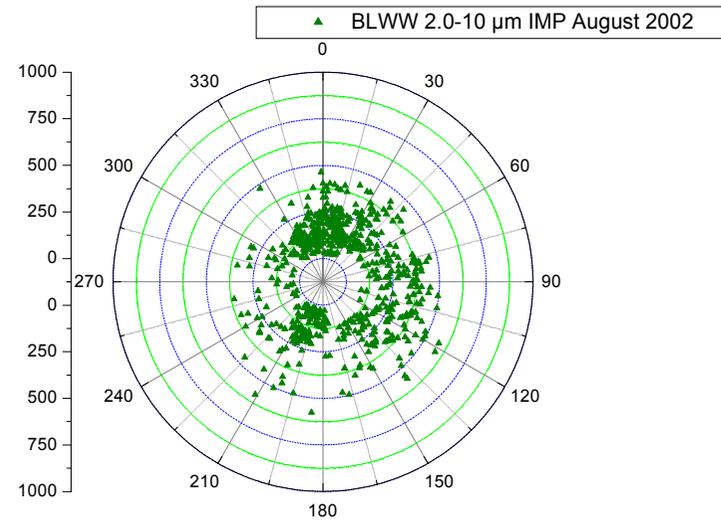
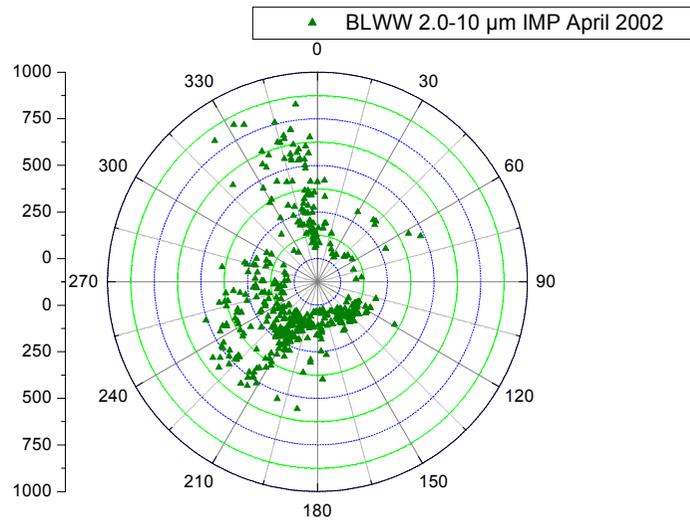
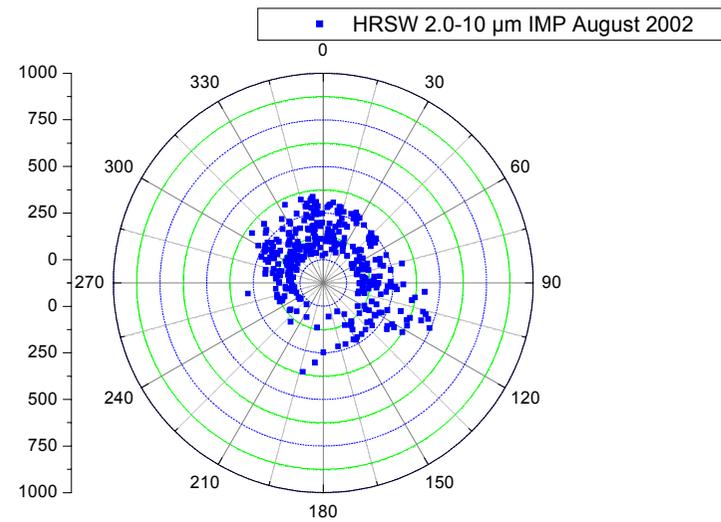
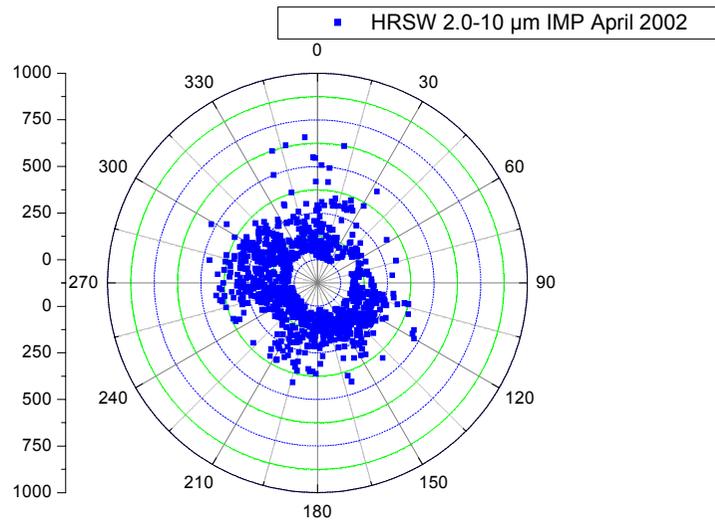
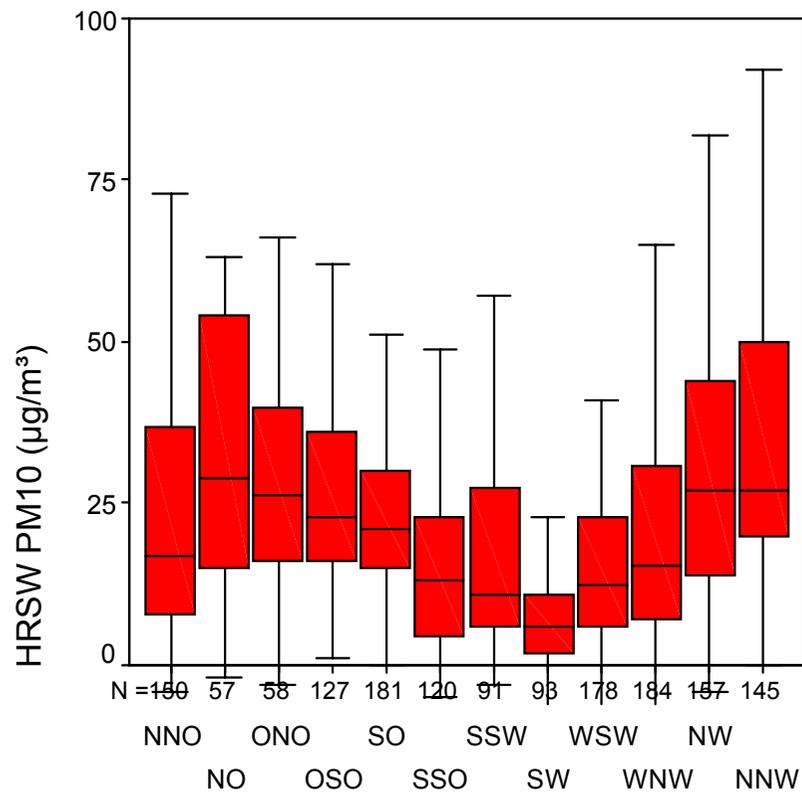
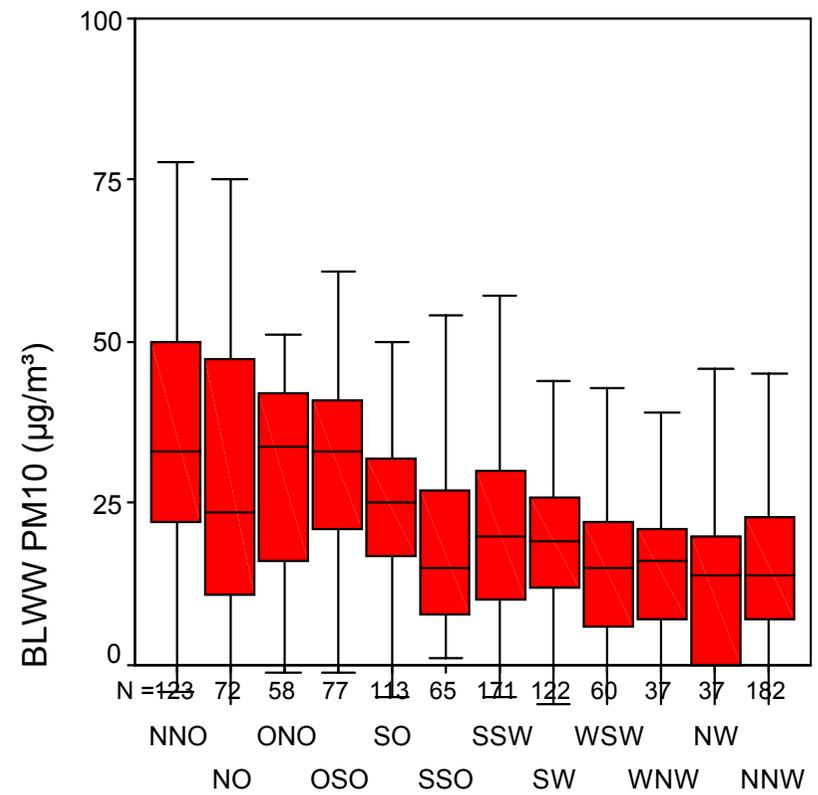


Abb. 7.18: Partikelanzahlkonzentrationen ( $N/dm^3$ ) in den Intensivmessphasen für große Partikel (2.0-10 µm Durchmesser), Halbstunden-Mittelwerte, aufgetragen über die Windrichtung (0° entspricht Nord)



Standort Hannover, Windrichtung



Standort Bösel, Windrichtung

Abb. 7.19: PM10-Konzentrationen aus Halbstundenmittelwerten (Median, 25- und 75-Perzentil sowie Standardabweichung) an den Standorten Hannover und Bösel, unterteilt in Windrichtungen

Für den Standort Hannover ist zu vermuten, dass bei nordöstlicher Anströmung die Haupt-Ablufffahne der Stadt gemessen wird, während aus südwestlicher Windrichtung eher geringer belastete Luftmassen den Standort erreichen. Aufgrund der Großräumigkeit der urbanen Ablufffahne Hannovers ist die Konzentrationshöhe nur bedingt abhängig von der Windrichtung. Auffallend ist jedoch der hohe Konzentrationsgradient, wenn der Wind von West-Nordwest auf Nordwest oder Nord-Nordwest dreht. Dieser plötzliche Konzentrationsanstieg erklärt sich nicht durch die allgemeine städtische Ablufffahne. Es ist daher zu vermuten, dass in Richtung Nord-Nordwest eine Partikelquelle zur Gesamtbelastung beiträgt.

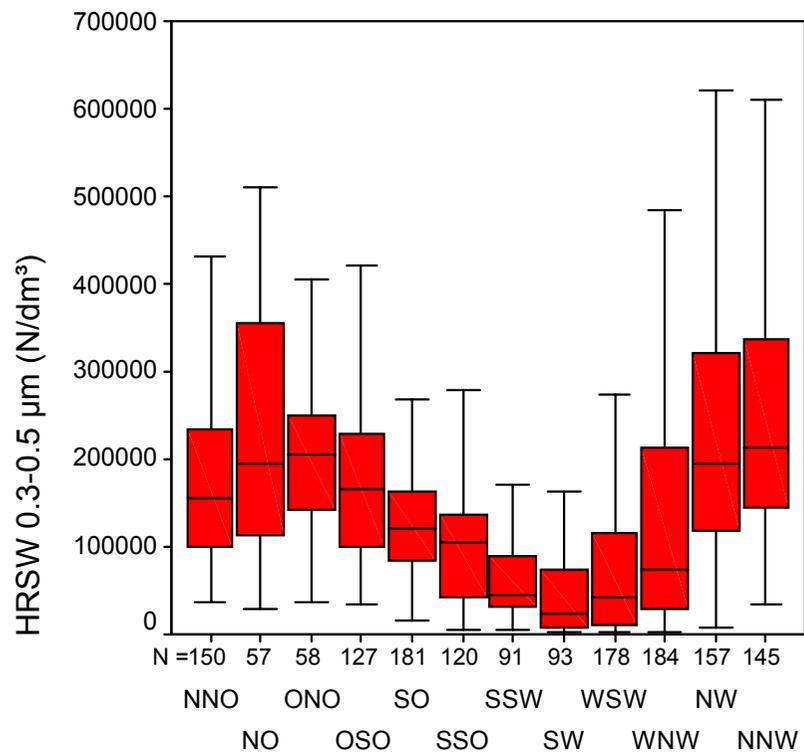
Am Standort Bösel (**Abb. 7.19** rechts) treten für die PM<sub>10</sub>-Konzentrationen höhere Werte auf, wenn eine östliche Anströmung erfolgt, niedrigere Werte sind bei westlichen Windrichtungen festzustellen. Es sind jedoch über die Windrichtungssektoren keine solch kontinuierlichen Veränderungen zu erkennen, wie sie beim Standort Hannover auftreten. Die Boxplots kennzeichnen den Median sowie das 25- und 75-Perzentil.

Hinsichtlich der Windrichtungsabhängigkeit für kleine Partikel zeigt sich ein mit den PM<sub>10</sub>-Konzentrationen der Standorte vergleichbares Bild (**Abb. 7.20**). In Hannover treten die höchsten Konzentrationen bei nördlichen Windrichtungen auf, während bei südwestlicher Anströmung die geringsten Konzentrationen ermittelt werden. Der Konzentrationsgradient zwischen den Sektoren West-Nordwest und Nordwest ist noch deutlicher ausgeprägt. Am Standort Bösel treten hohe Konzentrationen bei nordöstlicher Windrichtung auf, geringere Konzentrationen werden bei Westwinden gemessen.

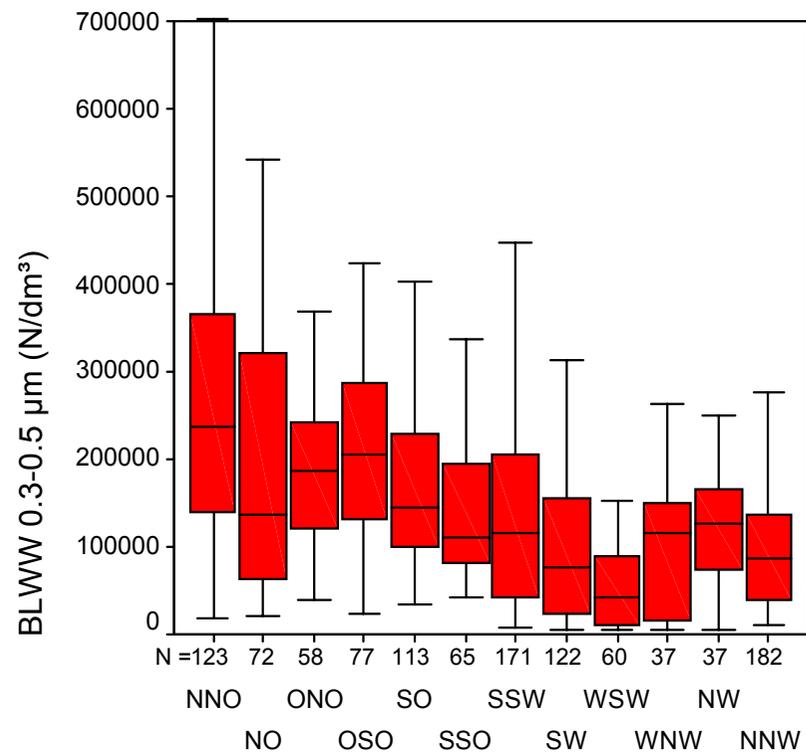
Für die mittleren Partikel (**Abb. 7.21**) ergibt sich grundsätzlich für den Standort Hannover ein mit den PM<sub>10</sub>-Konzentrationen oder auch der kleinen Partikel vergleichbarer qualitativer Konzentrationsverlauf. Auffallend sind hier die unterschiedlichen Längen der Boxplots, die das 25- und das 75-Perzentil kennzeichnen. Im allgemeinen treten bei hohen Konzentrationen deutlichere Streuungen auf als bei niedrigeren Konzentrationen. Bei Windrichtung Ost-Nordost zeigt sich jedoch nur eine geringe Streuung um den Mittelwert.

Es werden also bei Windrichtung aus Ost-Nordost gleichbleibend hohe Konzentrationen gemessen. Bei nord-nordwestlicher Windrichtung zeigt sich eine deutlich höhere Streuung, d.h. dass die hier vermutete Quelle nicht kontinuierlich Partikelemissionen erzeugt.

Für den Standort Bösel zeigen sich für die mittleren Partikel (**Abb. 7.21** rechts) erkennbare Unterschiede hinsichtlich der Windrichtung. Bei Windrichtung aus Nord-Nordost zeigen sich

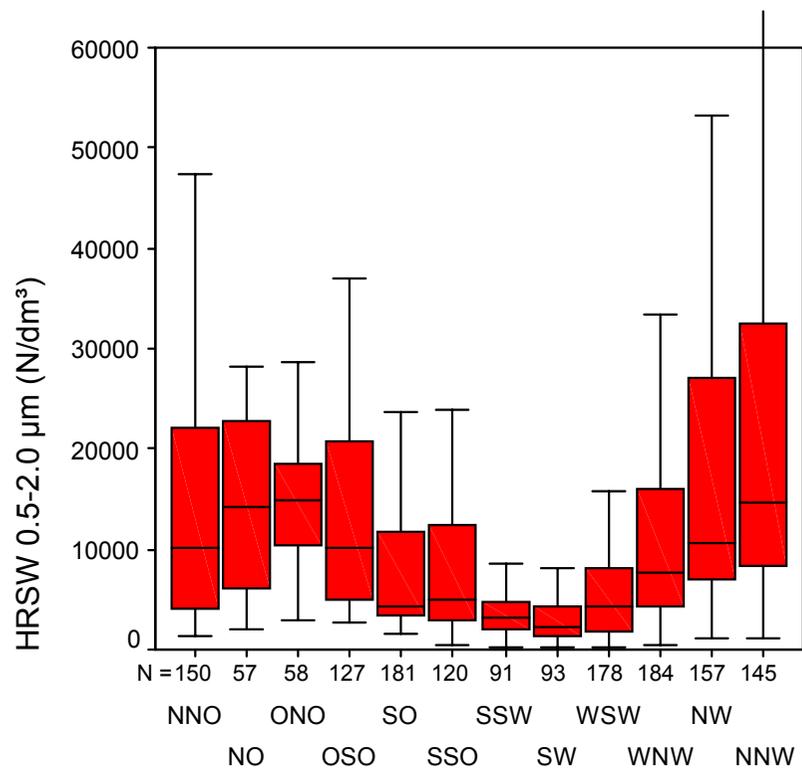


Standort Hannover, Windrichtung

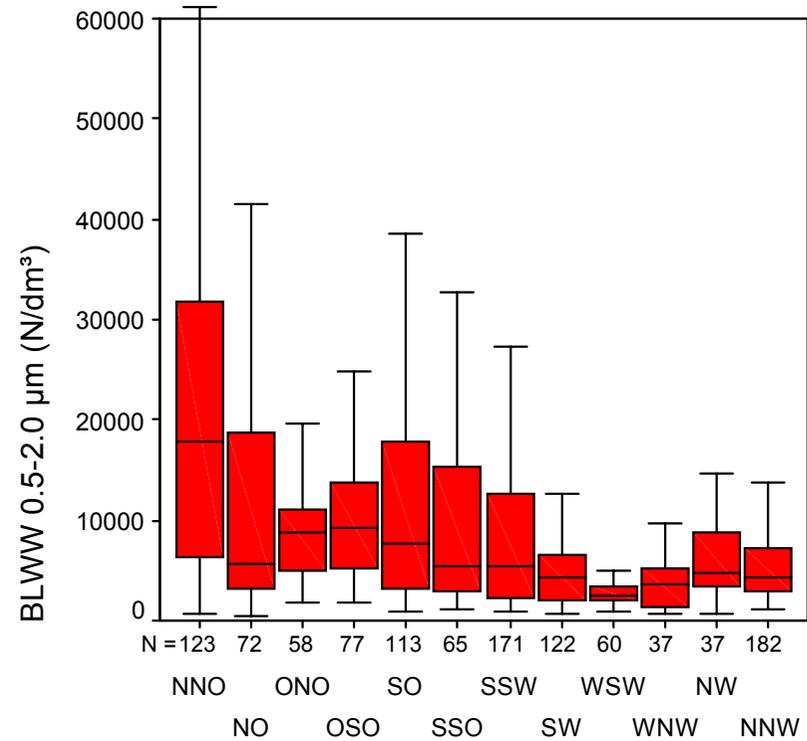


Standort Bösel, Windrichtung

Abb. 7.20: Anzahlkonzentrationen für kleine Partikel (0.3-0.5 µm) aus Halbstundenmittelwerten (Median, 25- und 75-Perzentil sowie Standardabweichung) an den Standorten Hannover und Bösel, unterteilt in Windrichtungen



Standort Hannover, Windrichtung



Standort Bösel, Windrichtung

Abb. 7.21: Anzahlkonzentrationen für mittlere Partikel (0.5-2.0 µm) aus Halbstundenmittelwerten (Median, 25- und 75-Perzentil sowie Standardabweichung) an den Standorten Hannover und Bösel, unterteilt in Windrichtungen

deutlich höhere Konzentrationen als bei allen anderen Windrichtungen. Diese Tendenz ist in **Abb. 7.20** für kleine Partikel ebenfalls erkennbar. In nord-nordöstlicher Windrichtung ist daher eine Quelle zu vermuten, die Einfluss insbesondere auf die Konzentrationen der mittleren Partikel (0.5-2.0  $\mu\text{m}$ ) hat.

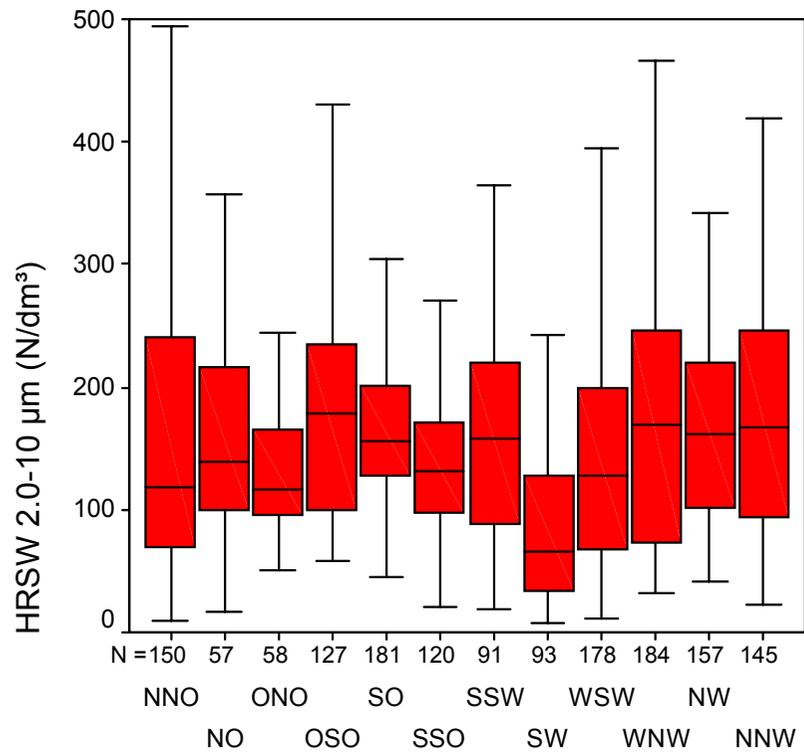
Bei Betrachtung der großen Partikel (**Abb. 7.22**) sind die Unterschiede zu den vorherigen Abbildungen am augenscheinlichsten. Für den Standort Hannover ist erkennbar, dass weiterhin aus südwestlicher Windrichtung die geringsten Konzentrationen gemessen werden. Für die weiteren Windrichtungssektoren lassen sich für den Standort Hannover keine allgemeingültigen Aussagen treffen.

Am Standort Bösel sind deutlichere Zusammenhänge zwischen Windrichtung und Anzahlkonzentration für große Partikel zu erkennen (**Abb. 7.22** rechts). Die höchsten Konzentrationen treten bei östlicher Windrichtung auf. Ein weiterer Peak tritt bei südwestlicher Windrichtung auf. Insgesamt liegt die ubiquitäre Belastung für große Partikel am Standort Bösel höher als am Standort Hannover.

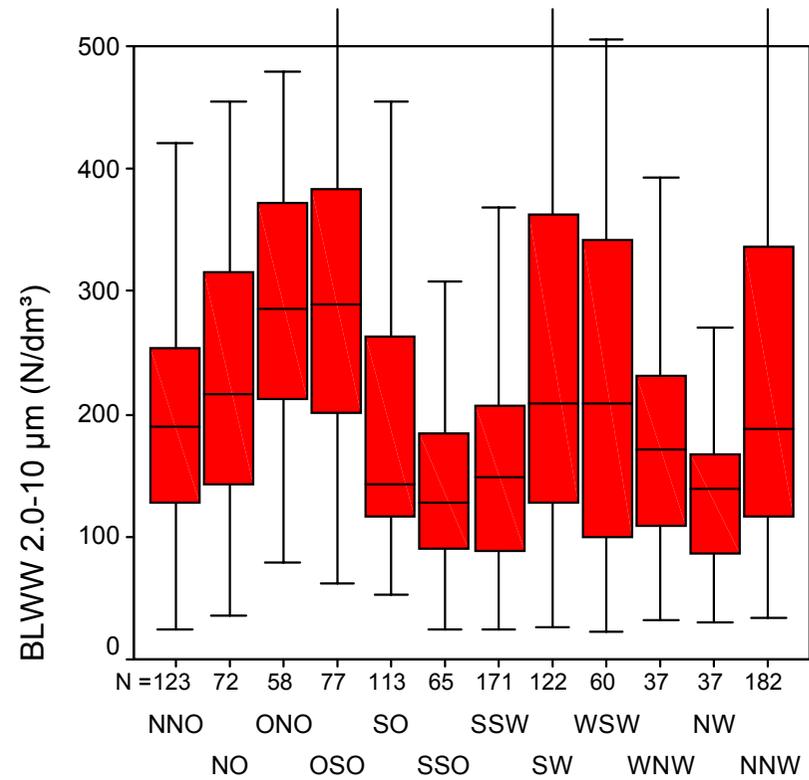
Kleine Partikel treten innerhalb der Intensivmessphase April 2002 in deutlich geringeren Konzentrationen auf. Für die Intensivmessphase August 2002 erkennt man deutlich höhere Konzentrationen an beiden Standorten. Dies bedeutet, dass insgesamt eine höhere ubiquitäre Hintergrundbelastung während der Intensivmessphase August 2002 an beiden Standorten für kleine Partikelgrößen vorliegt. Höhere Konzentrationen zeigen sich bei Windrichtungen aus Nord und Südost.

Die Ergebnisse für die windrichtungsabhängigen Mittelwerte für die Größenklasse 0.5-2.0  $\mu\text{m}$  (mittlere Partikelgröße) zeigen deutliche Unterschiede zwischen Standorten und Intensivmessphasen auf. Sie entsprechen grundsätzlich den Feststellungen, die bereits für die kleinen Partikel getroffen werden konnten.

Für große Partikel (2.0-10  $\mu\text{m}$ , **Abb. 7.22**) sind die höheren Konzentrationen am Standort Bösel erkennbar. Auch für die großen Partikel sind Unterschiede zwischen den Intensivmessphasen festzustellen. Für den Standort Bösel treten während der Intensivmessphase April 2002 höhere Konzentrationen bei Wind aus Nordwest auf, während bei Intensivmessphase August 2002 höhere Konzentrationen bei Wind aus östlicher Richtung festzustellen sind.



Standort Hannover, Windrichtung



Standort Bösel, Windrichtung

Abb. 7.22: Anzahlkonzentrationen für große Partikel (2.0-10 µm) aus Halbstundenmittelwerten (Median, 25- und 75-Perzentil sowie Standardabweichung) an den Standorten Hannover und Bösel, unterteilt in Windrichtungen

### 7.4.2.2 Windgeschwindigkeit

Im allgemeinen sinken die Partikelkonzentrationen bei steigender Windgeschwindigkeit, d. h. es besteht eine negative Korrelation der Komponenten Partikelkonzentration vs. Windgeschwindigkeit. In **Tab. 7.8** sind die Korrelationskoeffizienten zwischen Partikelkonzentration und Windgeschwindigkeit, unterteilt nach Standort und Intensivmessphase, für kleine, mittlere und große Partikel sowie für die Partikelkonzentration PM10 aufgetragen.

		Windgeschwindigkeit	0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	PM10
HRSW	April 2002	Korrelation nach Pearson	-.298(**)	-.132(**)	-.258(**)	-.233(**)
		Signifikanz (2-seitig)	0	0	0	0
		N	1177	1177	1177	1332
	August 2002	Korrelation nach Pearson	.172(**)	.109(*)	0.017	.119(**)
		Signifikanz (2-seitig)	0.001	0.035	0.736	0.002
		N	375	375	375	657
BLWW	April 2002	Korrelation nach Pearson	-.264(**)	-0.031	-0.077	-.237(**)
		Signifikanz (2-seitig)	0	0.501	0.095	0
		N	466	466	466	1330
	August 2002	Korrelation nach Pearson	.250(**)	.276(**)	-0.041	.188(**)
		Signifikanz (2-seitig)	0	0	0.298	0
		N	661	661	661	656

\*\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.01 (2-seitig) signifikant

\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.05 (2-seitig) signifikant

Tab. 7.8: Korrelationskoeffizienten Windgeschwindigkeit vs. kleine, mittlere und große Partikel sowie PM10, unterteilt nach Standort und Intensivmessphase

Während der Intensivmessphase April 2002 zeigt sich der Zusammenhang, dass bei steigender Windgeschwindigkeit eine Konzentrationsabnahme festzustellen ist. Während der Intensivmessphase August 2002 ist jedoch ein umgekehrter Zusammenhang zu erkennen, d.h., dass bei steigenden Windgeschwindigkeiten auch die Konzentrationen zunehmen. Es handelt sich jedoch in allen Fällen um sehr schwache Korrelationen ( $|R| < 0.3$ ). In Anhang A sind nähere Untersuchungen für die Korrelationen Partikel vs. Windgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Windrichtung dargestellt. Bei Unterscheidung nach Windrichtung zeigt sich, dass es bestimmte Windrichtungen gibt, die zu positiven Korrelationen zwischen Partikelkonzentrationen und Windgeschwindigkeit führen.

### 7.4.2.3 Niederschlag - Regen

Aus der Literatur ist bekannt, dass es größenspezifische Verweilzeiten und Senken für Partikel in der Atmosphäre gibt (Hinds, 1982). Die Partikelsenke für ultrafeine Partikel (Partikel  $< 0.1 \mu\text{m}$ ) sind im allgemeinen Agglomerations- und Wachstumsprozesse. Die typische Senke für Partikel mit einem Durchmesser zwischen  $0.2$  und  $2 \mu\text{m}$  ist nasse Deposition. Für gro-

ße Partikel (Durchmesser > 2 µm) ist die Hauptsenke die trockene Deposition aufgrund des über die Partikelgröße zunehmenden Einflusses der Gravitation.

Zur Untersuchung des Einflusses der nassen Deposition wurden die Zeiten der Intensivmessphasen in „Regen“ und „kein Regen“ unterteilt. Grundlage hierfür waren die Daten der Messgröße „Regendauer“ (Halbstundenwerte) der beiden LÜN-Stationen Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW). Bei einer Regendauer > 0 wurden die Halbstundenwerte als „Regen“ klassifiziert. Bei der Klassifizierung der Daten war festzustellen, dass während der zweiten Intensivmessphase weniger als 10 % der Zeit als „Regen“ klassifiziert werden konnte. Aufgrund der geringen vergleichbaren Zeitanteile für die Intensivmessphase August 2002 erfolgte lediglich eine Betrachtung für die Intensivmessphase April 2002. **Tab. 7.9** zeigt die Ergebnisse, klassifiziert nach „Regen“ und „kein Regen“ für beide Standorte.

	Meteorologie		PM2.5	PM10	0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	Verhältnis (0.3-0.5 µm)/ (2.0-10 µm)
HRSW	„kein Regen“	N	957	977	873	873	873	873
		Mittelwert	<b>12.6</b>	<b>19.1</b>	<b>120 507</b>	<b>13 444</b>	<b>172</b>	<b>3.33</b>
	„Regen“	N	354	354	303	303	303	303
		Mittelwert	<b>12.4</b>	<b>19.0</b>	<b>136 265</b>	<b>11 261</b>	<b>120</b>	<b>2.07</b>
BLWW	„kein Regen“	N		1 033	291	291	291	291
		Mittelwert		<b>22.9</b>	<b>91 159</b>	<b>5 632</b>	<b>237</b>	<b>6.11</b>
	„Regen“	N		297	175	175	175	175
		Mittelwert		<b>22.6</b>	<b>80 047</b>	<b>3 943</b>	<b>244</b>	<b>7.96</b>

Tab. 7.9: Mittelwerte verschiedener Partikelgrößen bei Unterscheidung nach „Regen“ und „kein Regen“ während der Intensivmessphase April 2002

N = Anzahl der Halbstundenwerte; Mittelwert = PM2.5 oder PM10-Konzentration in µg/m<sup>3</sup> oder mittlere Anzahl der Partikel im Halbstundenmesszeitraum

Die Klassierung der Daten in „Regen“ und „kein Regen“ ergab für die Größen PM2.5 und PM10 an beiden Standorten keinen signifikanten Unterschied. Für Partikel im Größenbereich 0.3-0.5 µm ist in Hannover (HRSW) eine leichte Zunahme (+12 %), in Bösel (BLWW) eine leichte Abnahme (- 14 %) festzustellen. Der Partikelgrößenbereich 0.5-2.0 µm zeigt an beiden Standorten eine Abnahme der Partikelanzahlkonzentration. Für große Partikel (2.0-

10 µm) ist an HRSW eine deutliche Abnahme festzustellen (- 30 %), während an BLWW keine signifikante Konzentrationsänderung für große Partikel zu erkennen ist.

Die Größenklasse der mittleren Partikel (0.5-2.0 µm) folgt damit dem oben beschriebenen Einfluss der nassen Deposition, d.h. einer Abnahme der Partikelkonzentration bei Regen. Das standortabhängige Verhalten für kleine und große Partikel lässt sich mit der unterschiedlichen Quellentfernung erklären.

Der Kfz-Verkehr an Hannover (HRSW) erzeugt, unabhängig von der Klassifizierung „Regen“/„kein Regen“ in direkter Umgebung kleine Partikel (0.3-0.5 µm), welche zumindest teilweise eine Minderung durch Agglomerations- und Wachstumsprozesse mit größeren Partikeln erfahren. Da bei Regen eine geringere Anzahlkonzentration an größeren Partikeln vorliegt, sinkt die Agglomerations- und Wachstumsgeschwindigkeit für kleine Partikel, d. h. sie liegen in größerer Konzentration vor. Für den Standort Bösel (BLWW) ist zu vermuten, dass in direkter Umgebung der Messstelle keine oder bedeutend weniger kleine Partikel erzeugt werden als in der Nähe des Standortes Hannover. In Bösel überwiegt daher bei den kleinen Partikeln die nasse Deposition als Senke.

Durch den Kfz-Verkehr werden mittels zweier grundsätzlich verschiedener Mechanismen große Partikel erzeugt. Zum einen durch mechanische Abriebsprozesse, wie Kupplungs- und Bremsabriebe oder den Abrieb zwischen Reifen und Straßenbelag. Der zweite Mechanismus ist die kraftfahrzeugbedingte Aufwirbelung von bereits auf Oberflächen deponierten Partikeln (kfz-induzierte Resuspension). Durch den nahen Straßenverkehr am Standort Hannover werden daher in der direkten Umgebung große Partikel erzeugt. Bei Regen, d. h. insbesondere bei nasser Straße, ist der Aufwirbelungsprozess der auf der Straßenoberfläche deponierten Partikel verändert. Dies führt am Standort HRSW (34 m über Grund) zu geringeren Anzahlkonzentrationen für große Partikel.

Zur Bestätigung dieser oben getroffenen Annahmen auf die Veränderung der Anzahlkonzentrationen der betrachteten Partikelgrößen sowie zur näheren Untersuchung des Einflusses von Niederschlägen auf die  $PM_x$ -Konzentrationen sind längere Messperioden (optimalerweise 1 Jahr) sinnvoll.

#### **7.4.2.4 Tagesgänge**

Der Verlauf der Partikelkonzentrationen an einem Standort ist von vielen verschiedenen Faktoren beeinflusst. Hierzu gehören meteorologische Größen genauso wie die Art und die Entfernung relevanter Quellen für einen Standort. Eine Quelle, die einen typischen Tages- und

vor allem Wochengang aufweist, ist der Verkehr. Die Quelle Verkehr ist relevant für den Standort Hannover. Für Bösel ist eine lokale Quelle Verkehr (Umkreis von 2 km von der Messstelle) vernachlässigbar. In weiterer Entfernung der Messstelle Bösel (Umkreis von 10 km) liegt eine gut befahrene vierspurige Bundesstraße. Lokale Quellen für den Standort Bösel sind landwirtschaftliche Aktivitäten (Bodenbearbeitung, Viehmast), kleinere Betriebe im nahen Industriegebiet oder auch bauliche Aktivitäten in direkter Umgebung (Abriss / Neubau von Gebäuden).

Die nachfolgenden **Abb. 7.23** bis **Abb. 7.25** zeigen die Tagesgänge für kleine, mittlere und große Partikel an beiden Standorten, unterschieden nach Werktagen (Montag bis Freitag) und Wochenenden (Samstag und Sonntag). Am Standort Hannover ist für die kleinen Partikel ein Tagesgang für einen Werktag gut zu erkennen (**Abb. 7.23** oben). Für kleine Partikel treten an den Werktagen keine nennenswerten Unterschiede zwischen den beiden Standorten Hannover und Bösel auf. Am Wochenende sind am Standort Bösel geringere Konzentrationen für kleine Partikel vor allem in den Nacht- und Morgenstunden festzustellen (**Abb. 7.23** unten).

Für mittlere Partikel (0.5-2.0  $\mu\text{m}$ ) sind werktags keine nennenswerten Unterschiede zwischen den Standorten Hannover und Bösel zu erkennen (**Abb. 7.24** oben). Der Verlauf des Tagesganges ist nur schwach ausgeprägt. Am Wochenende zeigt der Standort Hannover einen ausgeprägten Tagesgang mit deutlich höheren Konzentrationen (im Vergleich zum Werktag) (**Abb. 7.24** unten). Für den Standort Bösel sind sowohl im Vergleich zum Standort Hannover als auch im Vergleich zu den Werten des Werktages geringere Konzentrationen festzustellen.

Die Konzentrationen großer Partikel (2.0-10  $\mu\text{m}$ ) zeigen werktags einen schwach ausgeprägten Tagesgang (**Abb. 7.25** oben). Im Vergleich der beiden Standorte liegen die Werte am Standort Bösel etwas höher als in Hannover. Am Wochenende sind die Konzentrationen für große Partikel am Standort Hannover niedriger als werktags (vgl. **Abb. 7.25** unten und **Abb. 7.25** oben). Die Konzentrationen für große Partikel sind am Wochenende am Standort Bösel deutlich höher als in Hannover (**Abb. 7.25** unten). Sie zeigen einen ausgeprägten Tagesgang und liegen im Mittel am Wochenende sogar höher als werktags (vgl. **Abb. 7.25** unten und **Abb. 7.25** oben).

Die obigen Ergebnisse zeigen Tendenzen auf. Auf Grund des begrenzten Datensatzes sind vor allen Dingen die Aussagen zu den Wochenenden statistisch nicht belastbar.

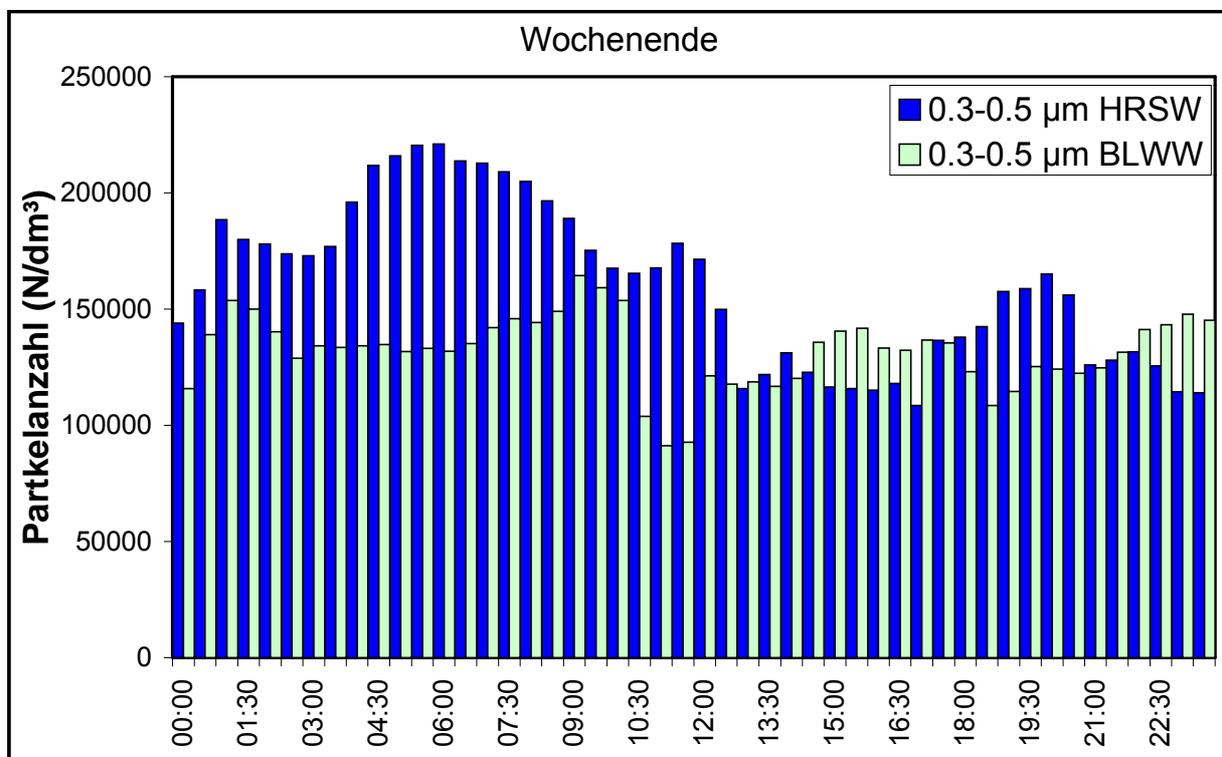
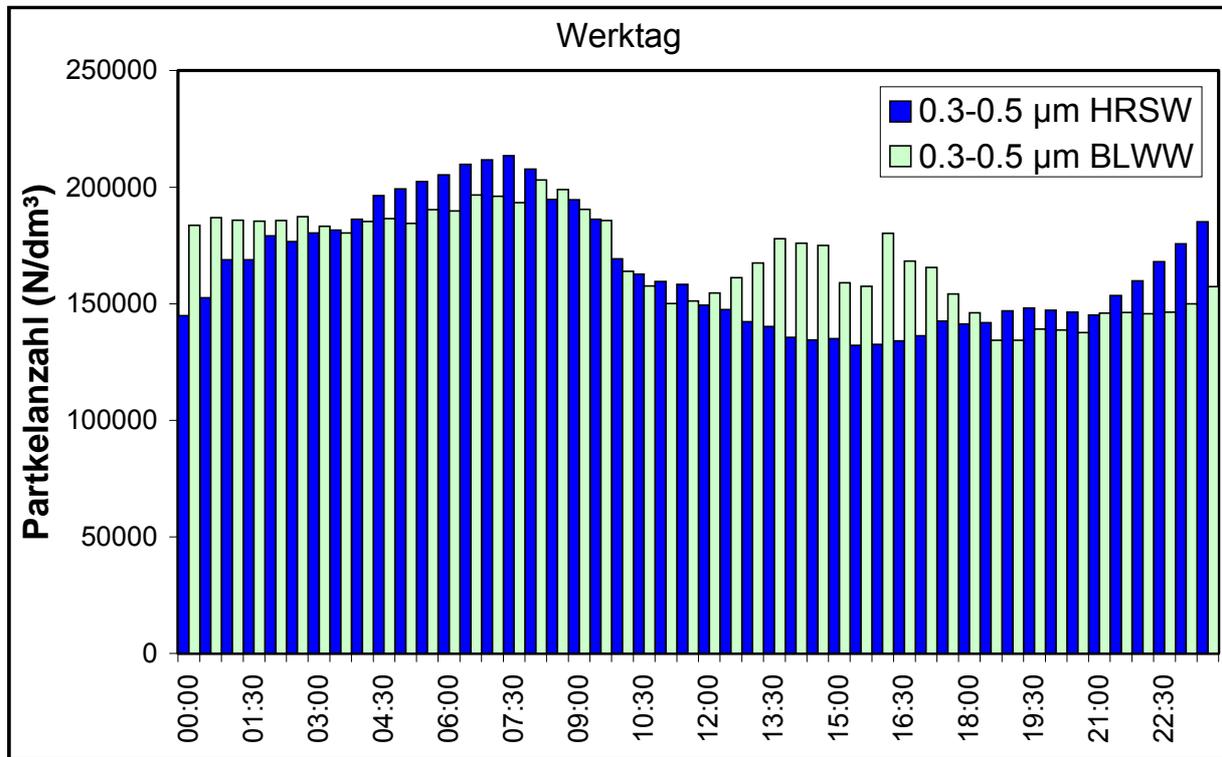


Abb. 7.23: Gemittelter Tagesgang der Konzentration kleiner Partikel (0.3-0.5 µm) während der Intensivmessphasen, Werktags und Wochenende für die Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW)

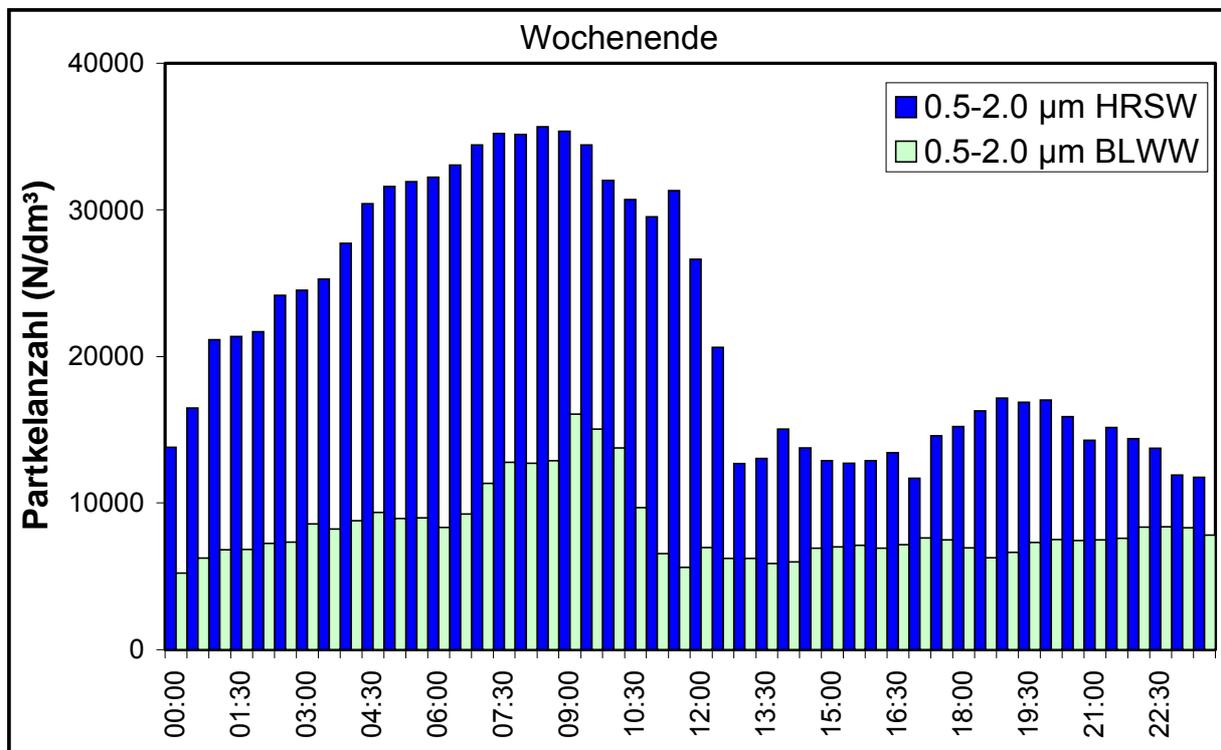
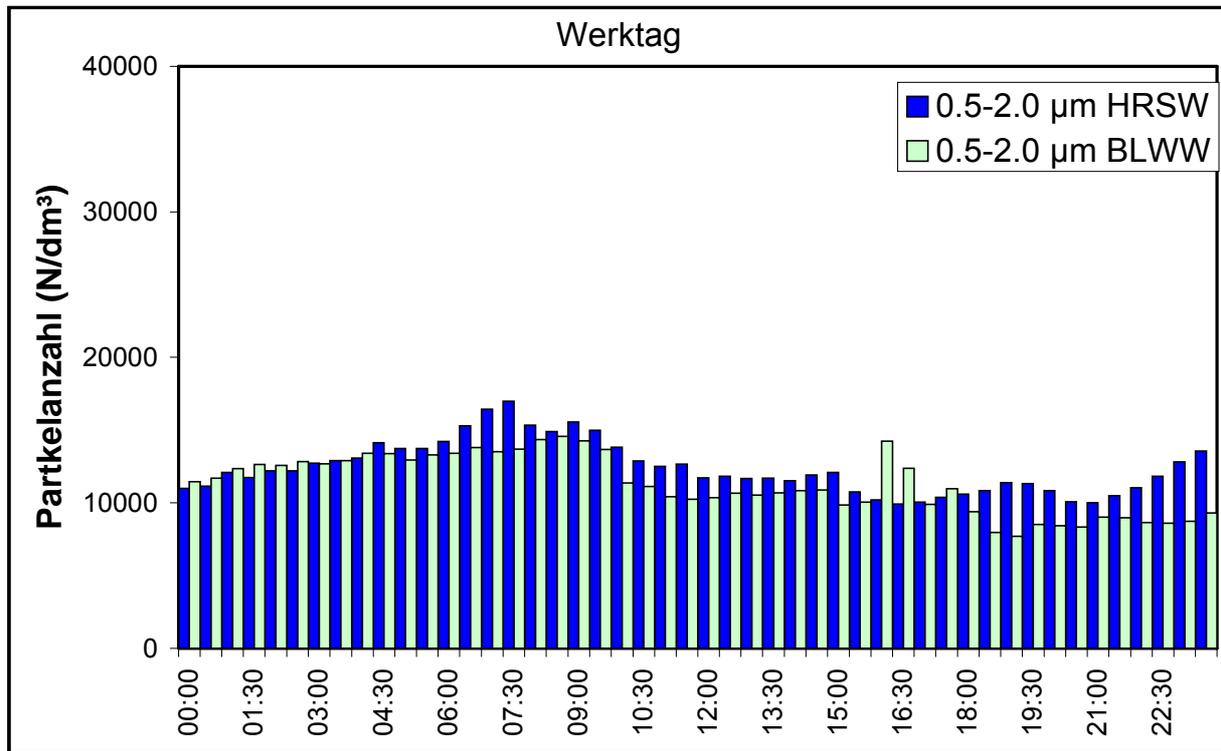


Abb. 7.24: Gemittelter Tagesgang der Konzentration mittlerer Partikel (0.5-2.0 µm) während der Intensivmessphasen, Werktags und Wochenende für die Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW)

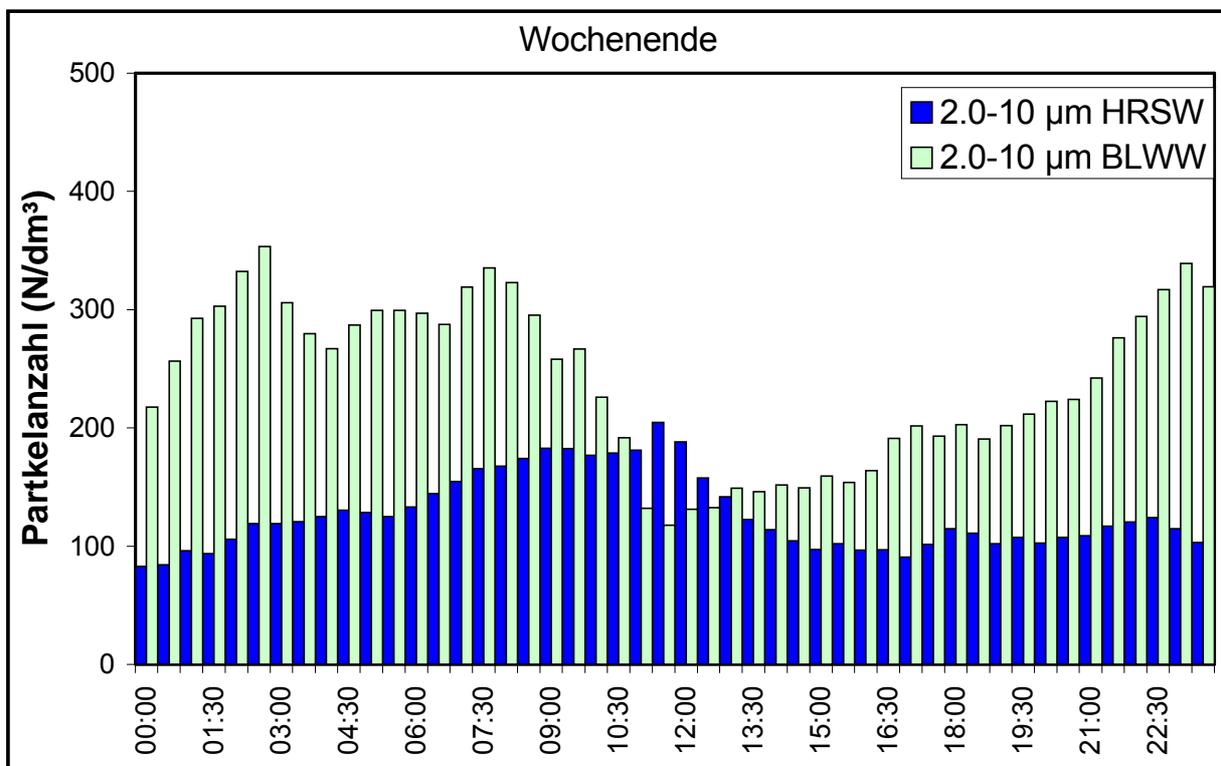
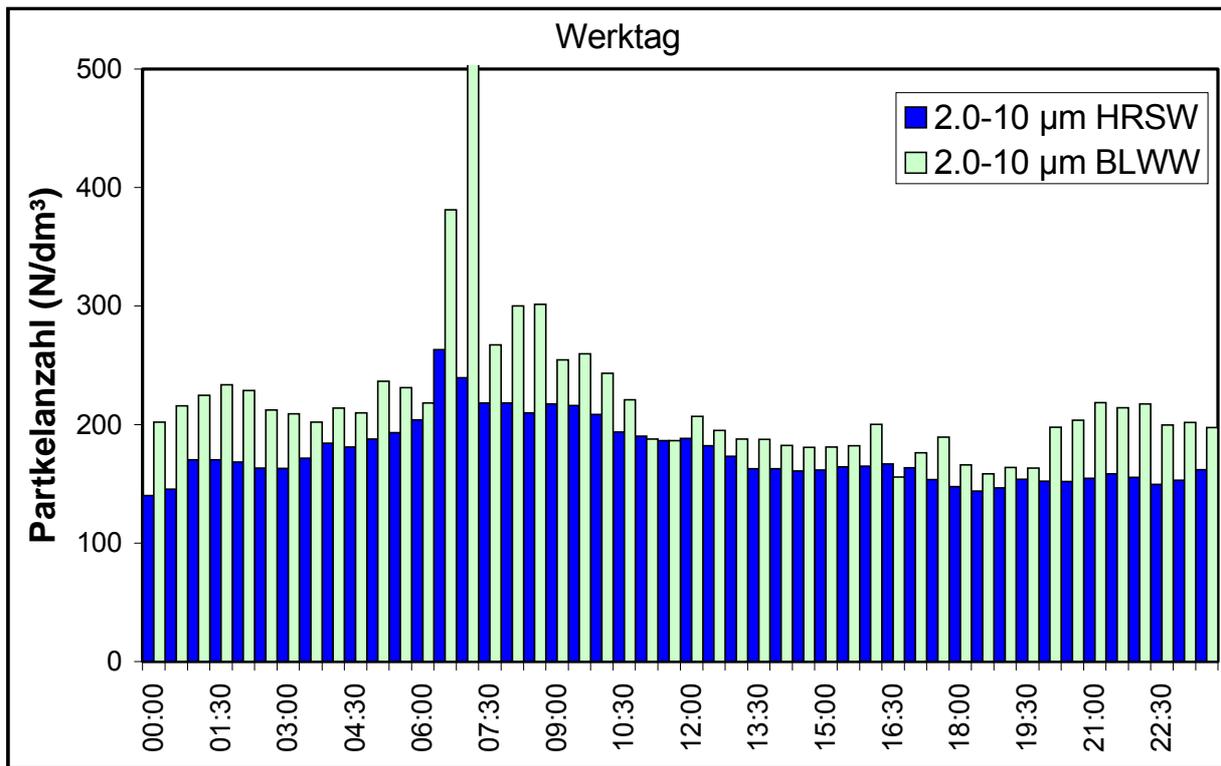


Abb. 7.25: Gemittelter Tagesgang der Konzentration großer Partikel (2.0-10 µm) während der Intensivmessphasen, Werktags und Wochenende für die Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW)

#### 7.4.2.5 Ausgewählte Analysen (Tage mit PM10-Tagesmittelwerten > 50 µg/m<sup>3</sup>)

Während der Intensivmessphasen gab es am Standort Hannover (HRSW) an insgesamt 4 Tagen PM10-Tagesmittelwerte > 50 µg/m<sup>3</sup>, am Standort Bösel (BLWW) waren es ebenfalls 4 PM10-Tagesmittelwerte > 50 µg/m<sup>3</sup>. Die Tage mit PM10-Tagesmittelwerten > 50 µg/m<sup>3</sup> sind in der nachfolgenden **Tab. 7.10** zusammengefasst.

Intensivmessphase April 2002					Intensivmessphase August 2002				
	HRSW		BLWW			HRSW		BLWW	
Jahr 2002	Gravimetrie	Beta-Staubmeter	Gravimetrie	Beta-Staubmeter	Jahr 2002	Gravimetrie	Beta-Staubmeter	Gravimetrie	Beta-Staubmeter
10.05.	47	35	70	<b>69</b>	27.08.	56	<b>56</b>	61	<b>66</b>
11.05.	79	<b>70</b>	89	<b>93</b>	28.08.	64	<b>64</b>	40	43
					30.08.	61	<b>54</b>	60	<b>60</b>

Tab. 7.10: Tage während der Intensivmessphasen, in denen PM10-Tagesmittelwerte > 50 µg/m<sup>3</sup> mit den Beta-Staubmetern gemessen wurden. Zum Vergleich Werte gravimetrisch ermittelt.

Es handelt sich um drei Perioden mit offensichtlich überregionalem Charakter, da hohe PM10-Werte an beiden Standorten zeitparallel bzw. mit geringem Zeitversatz feststellbar sind. **Abb. 7.26** zeigt den Konzentrationsverlauf für kleine, mittlere und große Partikel.

Der zeitliche Verlauf der Partikelanzahlkonzentrationen ist gekennzeichnet durch einen starken Konzentrationsanstieg am 10.05.2002 abends für die kleinen Partikel. Die mittleren und großen Partikelfractionen erfahren zeitversetzt um etwa ein bis zwei Stunden ebenfalls einen starken Anstieg der Konzentrationen. Am 11.05.2002 13.00 Uhr erfolgt für alle Partikelgrößen ein starker Abfall. Zum Vergleich sind in **Abb. 7.27** die Verläufe der PM10-Konzentrationen in Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) aufgetragen. Auch für den PM10-Konzentrationsverlauf in Hannover bestätigt sich dieser starke Gradient für Anstieg und Abfall. Es handelt sich offenbar um eine überregionale hoch partikelbeladene Luftfracht, da sich der PM10-Konzentrationsverlauf zeitversetzt auch am Standort Bösel zeigt. Der starke Abfall der Konzentration zum Zeitpunkt 11.05.2002 13.00 Uhr erklärt sich unter anderem durch einsetzenden Regen. Anschließend erfolgt erneut der Eintrag partikelbeladener Luftmassen.

**Abb. 7.28** zeigt den Verlauf der Partikelkonzentrationen für den Standort Bösel während hoher PM10-Tagesmittelwerte innerhalb der Intensivmessphase August 2002. Zu einem besseren Vergleich mit dem Verlauf aus **Abb. 7.26** wurden die Skalierungen beibehalten.

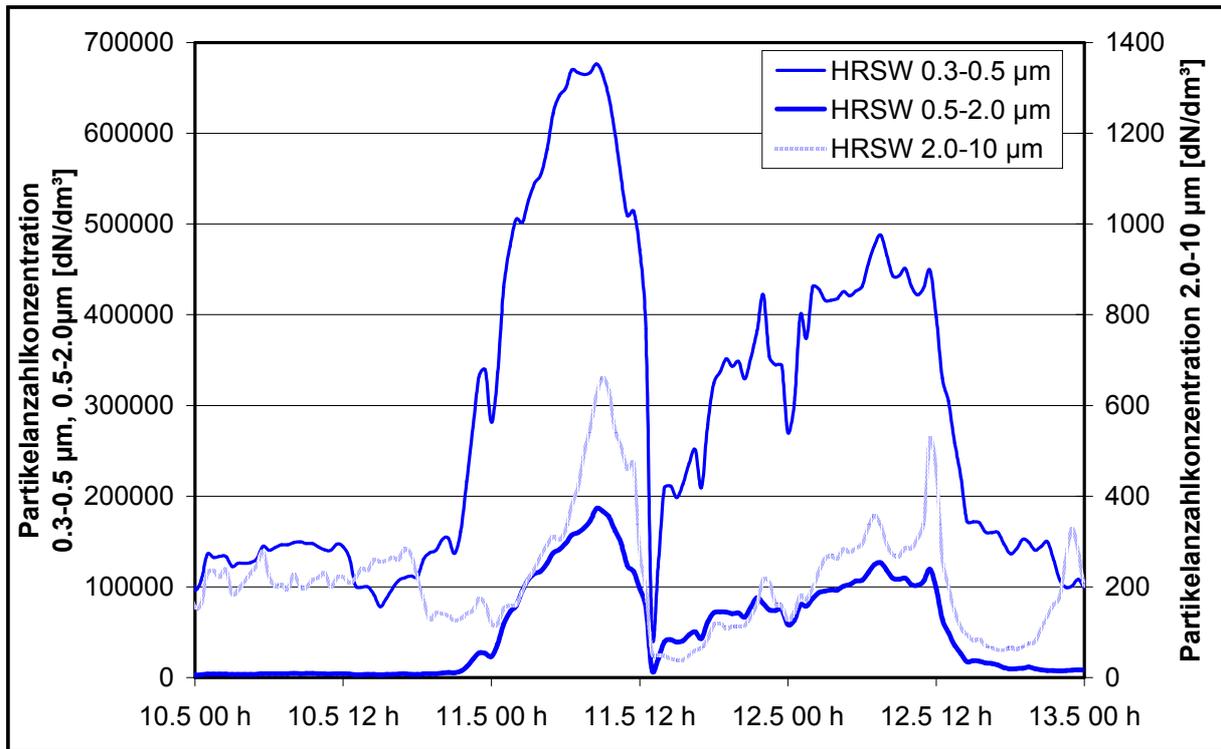


Abb. 7.26: Verlauf der Partikelanzahlkonzentration für alle Partikelfractionen in Hannover

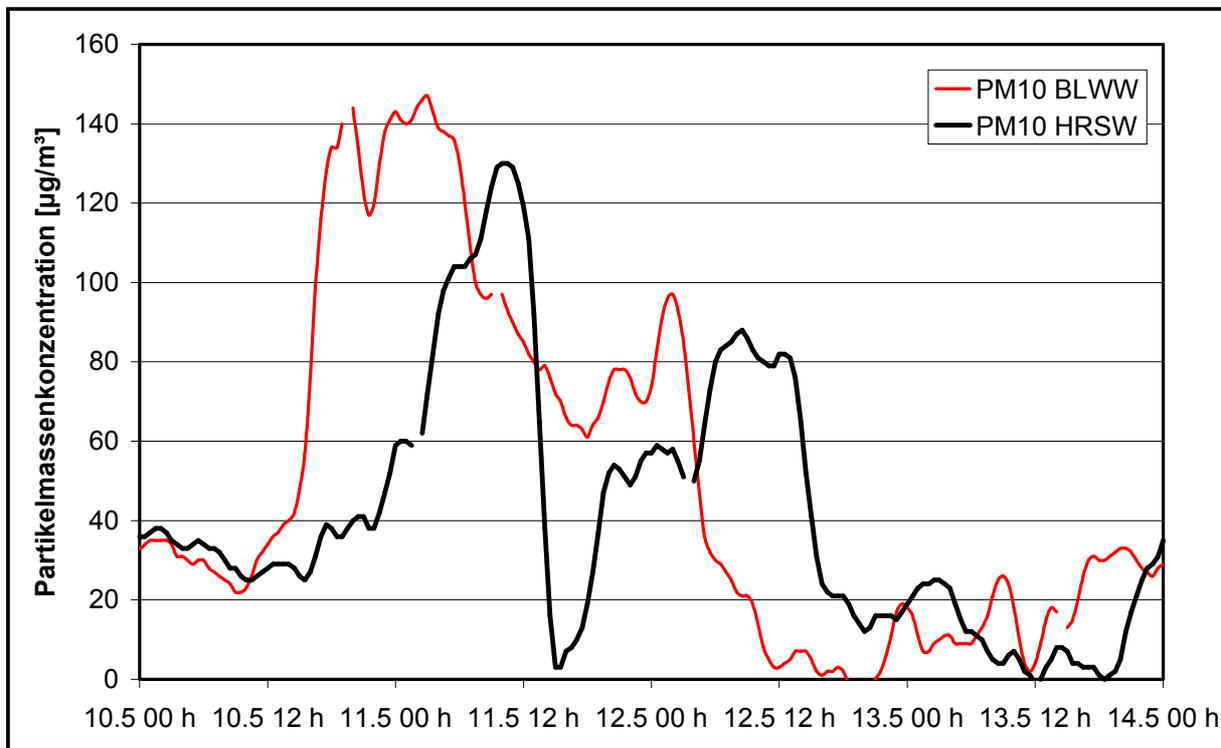


Abb. 7.27: Verlauf der PM10-Konzentrationen in Hannover und Bösel

Es zeigen sich für kleine Partikel Konzentrationserhöhungen, die aber nicht die Extremwerte aus **Abb. 7.26** erreichen. Die Anzahlkonzentrationen für mittlere Partikel sind in **Abb. 7.28** deutlich geringer, wohingegen die großen Partikel auf allgemein höherem Niveau liegen.

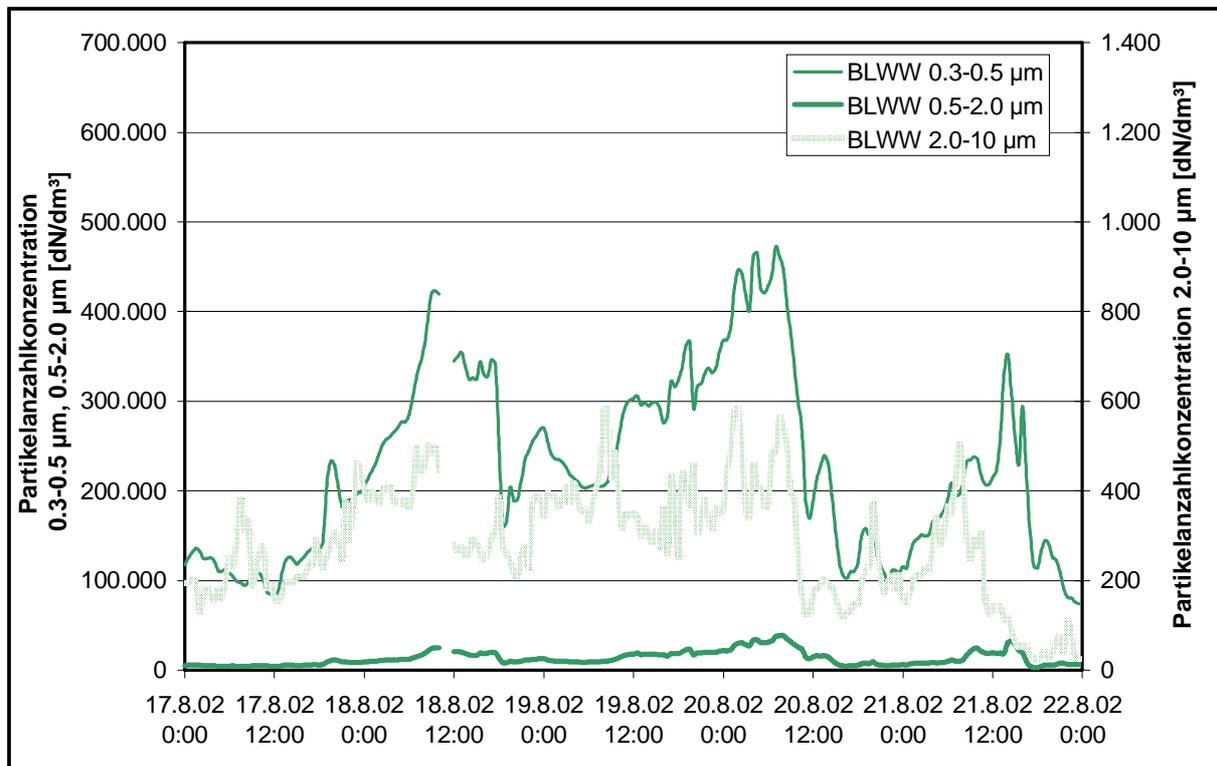


Abb. 7.28: Verlauf der Partikelanzahlkonzentration für alle Partikelfractionen in Bösel

Im allgemeinen zeigen die Standorte Hannover (HRSW) und Bösel (BLWW) ähnliche Verläufe, teilweise zeitlich versetzt, für die betrachteten Partikelgrößen. **Abb. 7.29** zeigt den Verlauf der Anzahlkonzentration von kleinen und großen Partikeln aus einem Zeitausschnitt der Intensivmessphase April 2002. Zeitlich versetzt ist in Bösel (BLWW) und anschließend in Hannover (HRSW) am Morgen des 14.05.2002 ein starker Abfall der Partikelanzahlkonzentration der kleinen Fraktion festzustellen. Die Windrichtungen in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) unterscheiden sich erneut. So hat Hannover West-Nordwest-Anströmung, in Bösel ist die Windrichtung Süd-Südwest. Auffallend ist hier jedoch der starke Anstieg der Windgeschwindigkeit und der zeitgleiche Abfall der Anzahlkonzentrationen für die kleinen Partikel. Die Windgeschwindigkeit verstärkt sich von moderaten 2 m/s in Hannover (HRSW) bzw. 3.5 m/s in Bösel (BLWW) bis zu einem 30-Minuten-Maximalwert von 9 m/s. Beim Vergleich mit Daten des LÜN zu den Stickstoffoxid-Konzentrationen ist ebenfalls eine Abnahme für diese Komponente in diesem Zeitraum an beiden Messstellen festzustellen.

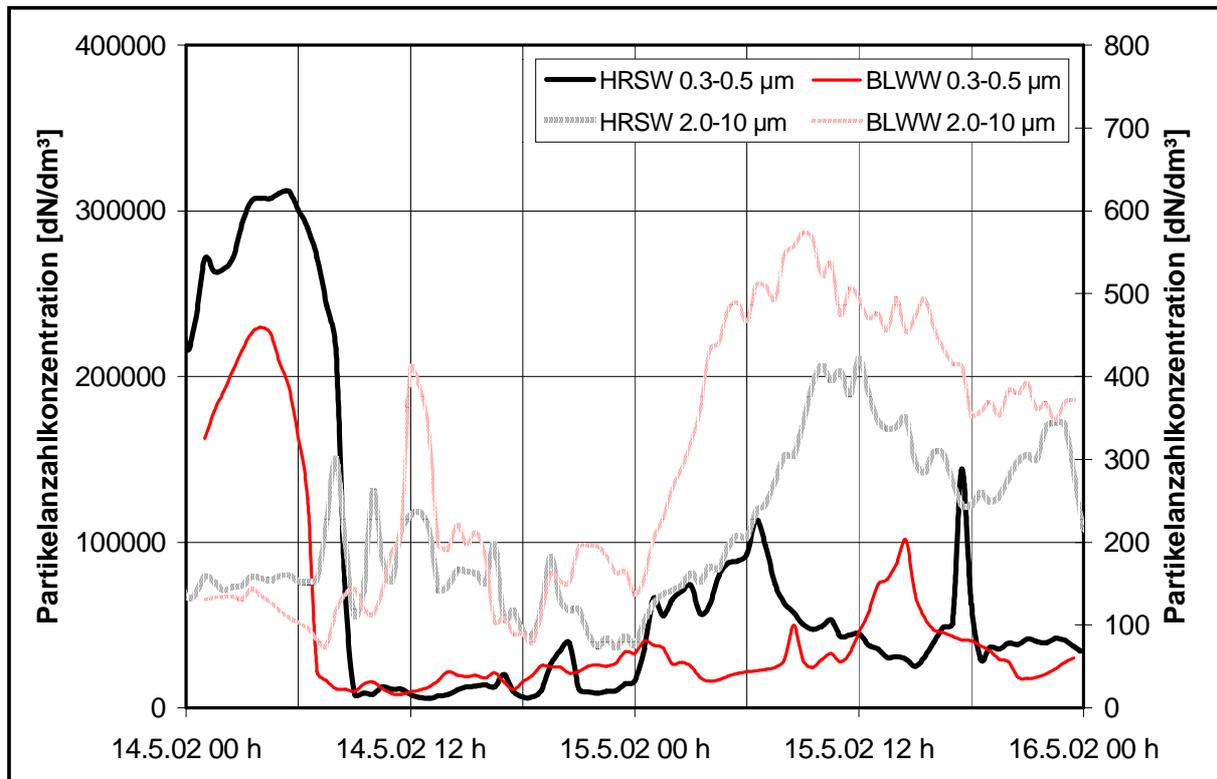


Abb. 7.29: Verlauf der Partikelanzahlkonzentration für kleine und große Partikel aus einem Zeitausschnitt der Intensivmessphase April 2002

**Abb. 7.30** zeigt ein deutliches Beispiel für eine Nicht-Übereinstimmung der Partikelanzahlkonzentration an den Messstellen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) für große Partikel. Während in Hannover eine eher konstant niedrige Anzahlkonzentration für große Partikel im Zeitraum 03.05.2002 21.00 Uhr bis 05.05.2002 09.00 Uhr gemessen wird, sind für Bösel zwei deutliche Peaks erkennbar. Ein zeitlicher Versatz des Auftretens der hohen Partikelanzahlkonzentration ist nicht feststellbar. Es ist daher anzunehmen, dass der Anstieg der Partikelkonzentration für große Partikel in diesem Zeitraum in Bösel lokal bedingt ist.

Aus den oben gezeigten und beschriebenen Abbildungen lassen sich zur Charakterisierung der Partikelanzahlkonzentrationen an den Messstationen Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) die nachfolgenden Punkte festhalten.

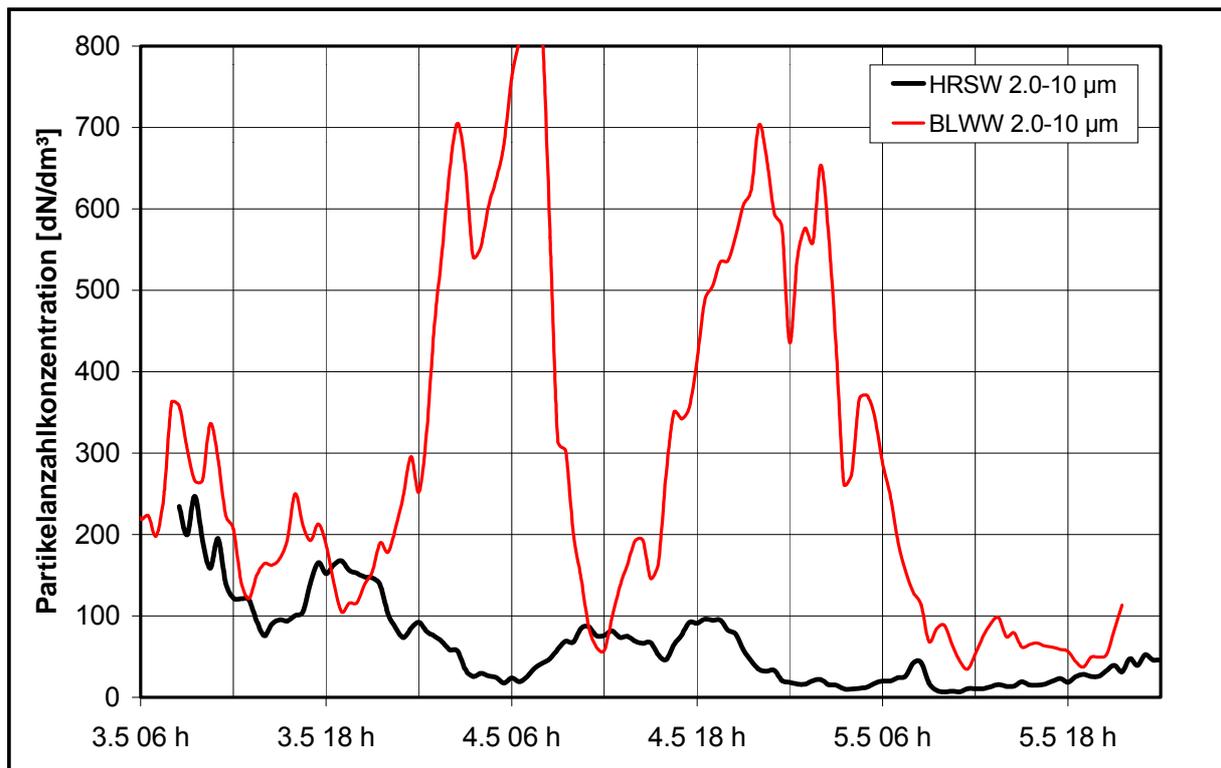


Abb. 7.30: Verlauf der Partikelanzahlkonzentration für große Partikel aus einem Zeitabschnitt der Intensivmessphase April 2002

#### 7.4.3 Fazit der Messungen zur Partikelgrößenverteilung

Im allgemeinen kann festgestellt werden, dass es einen erkennbaren grundsätzlichen Zusammenhang im zeitlichen Verlauf der Partikelanzahlkonzentrationen in Bösel und Hannover für alle betrachteten Fraktionen (0.3-0.5 µm, 0.5-2.0 µm und 2.0-10 µm) gibt. Dies lässt auf überregionale Einflüsse schließen, denn die beiden Stationen sind etwa 140 km Luftlinie voneinander entfernt. Dieser überregionale grundsätzliche Einfluss des zeitlichen Verlaufes der Partikelanzahlkonzentrationen kann jedoch von besonderen meteorologischen Bedingungen (z.B. Regen, hohe Windgeschwindigkeiten) ebenso beeinflusst werden wie auch von direkten lokalen Quellen, wie dies beispielsweise anhand von **Abb. 7.30** aufgezeigt wurde.

Im Mittel wurden für die Fraktionen 0.3-0.5 µm und 0.5-2.0 µm für die urbane Hintergrundstation Hannover (HRSW) höhere Konzentrationen festgestellt, während für die ländlich geprägte Station in Bösel (BLWW) höhere Anzahlkonzentrationen der Fraktion 2.0-10 µm ermittelt werden konnte.

Insgesamt ist anzumerken, dass diese Intensivmessphasen nur kurze Zeit andauerten und daher die Allgemeingültigkeit der Aussagen nicht gewährleistet ist.

## 8 ZUSAMMENFASSUNG UND FAZIT

Der Grenzwert für die Anzahl der Überschreitungen des PM10-Tagesmittelwertes (Tagesmittelwerte  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) wird in Niedersachsen an mehreren Messstellen überschritten (LÜN-Jahresberichte 2000, 2001, 2002). Es bedarf daher für PM10 einer detaillierteren Betrachtung der möglichen Quellen und Ursachen. Da sich diese Überschreitungen nicht nur auf städtische, verkehrsgeprägte Messstellen beziehen sondern auch im ländlichen Bereich registriert werden, wurde die vorliegende Untersuchung initiiert. Sie hat zum Ziel, das Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet näher zu beschreiben und mit dem eines städtisch geprägten Gebietes zu vergleichen. Dabei sollen die qualitativen und quantitativen Unterschiede von Feinstaub (PM10) herausgearbeitet werden für

- einen Standort, der durch landwirtschaftliche Aktivitäten, insbesondere Tierhaltung geprägt wird und
- einen Standort in einem Ballungsgebiet, der hinsichtlich seiner PM10-Belastung städtisch geprägt und somit durch den Kraftfahrzeugverkehr dominiert wird.

Ausgewählt wurden als repräsentative Standorte die beiden LÜN-Messstationen in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW). Die Station Bösel (BLWW) befindet sich am Rand der Kleinstadt Bösel. Die Station Hannover (HRSW) befindet sich auf dem Dach des Gebäudes des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie in ca. 32 m Dachhöhe und kann somit als eher städtische Hintergrundstation angesehen werden.

Die Filterproben wurden an jedem der beiden Standorte mit jeweils zwei Digital DHA-80-Sammlern mit PM10-Probenahmesystem erfasst. Über einen Zeitraum von einem Jahr, vom 01.04.2002 bis zum 31.03.2003, wurden Tagesproben gezogen. Es wird somit eine Vegetationsperiode repräsentativ abgedeckt.

Die beiden Sammler an einem Standort wurden mit zwei unterschiedlichen Filtermaterialien betrieben, um die Erfordernisse der Stoffanalyse bezüglich des Filtermaterials zu erfüllen. Zum Einsatz kamen Quarzfaser-Filter und Cellulose-Nitrat-Filter. Die Massenkonzentrationen wurden für alle Proben gravimetrisch ermittelt, ergänzend wurden diese verglichen mit den Tageswerten aus an beiden Stationen betriebenen Beta-Staubmetern FH62 IN. Eine ausgewählte Probenanzahl von 100 Filtern wurden auf die chemischen Inhaltsstoffe analysiert.

Ergänzend zu diesen Arbeiten wurden während zweier Intensivmessphasen von jeweils ca. 14 Tagen Parallelmessungen mit zwei optischen Partikelzählern durchgeführt, die Informationen über die Partikelgrößen und deren Verteilung liefern. Desweiteren wurde in Bösel ein

neuartiger Ammoniak-Messplatz betrieben, um orientierende Aussagen zur Ammoniak-Belastung in diesem ländlichen Gebiet zu erhalten.

An beiden Stationen ergaben sich bei der Gegenüberstellung der PM10-Massenkonzentrationen keine signifikanten Unterschiede, die Verläufe der Konzentrationszeitreihen waren sehr ähnlich. Die Jahresmittelwerte während des Messzeitraumes April 2002 bis März 2003 unterscheiden sich um weniger als 5 %. Die Anzahl der Überschreitungen eines Tagesmittelwertes PM10 von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Grenzwert ab 2005) lag mit 45 in Hannover (HRSW) und 44 in Bösel (BLWW) deutlich über der zulässigen Anzahl von 35 Überschreitungen im Jahr.

Der Vergleich mit anderen Stationen in Niedersachsen und in den Niederlanden zeigte ebenfalls ähnliche Verläufe der Zeitreihen, wenn sich auch die durchschnittlichen PM10-Konzentrationen regional geringfügig unterscheiden. Diese Aussage wird auch unterstützt durch die gemessenen Partikelanzahlverteilungen an den beiden Stationen. Dies führt zu dem Schluss, dass ein wesentlicher Anteil der PM10-Massenkonzentrationen durch großräumige meteorologische Verhältnisse bedingt ist. Untermuert wird diese Aussage durch Vergleich mit der als Hintergrundmessstation angenommenen LÜN-Station Jadebusen in Wilhelmshaven. Der Jahresmittelwert an der Hintergrundmessstation lag bei  $26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , während an den beiden betrachteten Stationen in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) Werte von  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bzw.  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$  gemessen wurden. Zu ähnlichen Aussagen führt auch das MODMESS-Vorhaben, bei dem modellgestützte Analysen der PM-Messungen durchgeführt wurden. Mit diesen Werten ergibt sich ein Anteil von ca. 20 % für die lokalen Quellen in Bösel. Auf diesen Anteil an der allgemeinen PM10-Belastung kann durch Minderungsmaßnahmen in der näheren Umgebung Einfluss genommen werden. Ungefähr 80 % sind nach diesen Abschätzungen im westlichen Niedersachsen auf überregionale Einflüsse zurückzuführen.

Die Konzentrationsverläufe für einige Inhaltsstoffe zeigen ebenfalls zeitlich und räumlich ähnliche Verläufe wie die PM10-Massenkonzentrationen (z.B. EC und  $\text{NO}_3^-$ ); andere wie z.B. Eisen zeigen deutliche Unterschiede. Mit steigenden PM10-Massenkonzentrationen steigt der prozentuale Anteil der Ionen und von EC an, wohingegen die prozentualen Anteile von OC, den Erdkrustenelementen Ca+Al, den Seesalzkomponenten Na+Mg sowie der Metalle abnehmen. Ein Vergleich der Summe der Inhaltsstoffkonzentrationen an beiden Stationen belegt, dass die Unterschiede der analytisch bestimmbaren Komponenten an der PM10-Massenkonzentration ca. 25 % ( $7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) ausmachen. Dieser Unterschied kann nur durch Beiträge aus Quellen der näheren Umgebung erklärt werden. Somit ist der nach dieser Methode abgeschätzte Beitrag der lokalen Quellen an der mittleren PM10-Massenkonzentrationen etwa 25 %. Insgesamt sind die Unterschiede zwischen den Stationen geringer als

erwartet. Dies wird erklärt durch den relativ hohen Anteil der Hintergrundkonzentration und der herrschenden meteorologischen Randbedingungen.

Die Vergleiche der Massenkonzentrationen und der Inhaltsstoffkonzentrationen der betrachteten Stationen liefern somit als Anteile für die Quellen der näheren Umgebung Werte zwischen 20 bis 25 %. Mit beiden Verfahren ergeben sich vergleichbare Aussagen zu den Quellenanteilen und damit zu den möglichen Minderungspotentialen in dem näheren Umfeld.

Ein weiterer Themenkreis sind die PM<sub>10</sub>-Äquivalenzmessverfahren mittels kontinuierlich registrierenden Monitoren. Es ergaben sich aus den Vergleichsmessungen zwischen der Gravimetrie und der Radiometrie unterschiedliche Bewertungsansätze. Daraus folgt, dass für PM<sub>10</sub>-Messungen zur Analyse der Ursachen von Grenzwertüberschreitungen nach EU-Richtlinie zur Luftqualität, 96/62/EG Äquivalenzmessverfahren mit der Referenzmethode (Filtermessverfahren) zu kalibrieren sind. Trotz der relativ homogenen Partikelverteilungen in den Untersuchungsgebieten sind die Kalibrierungen auf den jeweiligen Einsatzort bezogen durchzuführen. Bei der Berichtserstattung über die Ergebnisse von PM<sub>10</sub>-Messungen müssen das eingesetzte Messverfahren und die gegebenenfalls verwendeten Korrekturfaktoren angegeben werden.

Als Gesamtfazit kann festgehalten werden, dass die Unterschiede zwischen den beiden betrachteten Stationen sowohl bei den PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen als auch bei den Inhaltsstoffen geringer sind als erwartet. Ein Grund hierfür ist der große Anteil der großräumigen Hintergrundkonzentrationen, welche die PM<sub>10</sub>-Belastungen prägen. Etwa 75 % - 85 % in Hannover und Bösel beträgt der Anteil der Hintergrundbelastung im Jahresmittel.

Mit Blick auf zukünftige Maßnahmenplanungen zur Reduktion der PM<sub>10</sub>-Belastung sollte der Beitrag der großräumigen Belastung stärker in die Überlegungen mit einbezogen werden. Der Einfluss allein durch lokale Maßnahmen wird - außer an den Hot Spots des Straßenverkehrs - nur bedingt zu signifikanten Minderungen führen. Da insbesondere die Konzentrationen der sekundären Partikelbestandteile ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) an den Tagen mit erhöhten PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen ansteigen, ist zu prüfen, in wie weit überregionale Minderungen der Emissionen von Vorläuferstoffen wie z.B. Ammoniak möglich sind.

Das westliche Niedersachsen wird nicht durch einzelne, stark emittierende industrielle Quellen sondern durch eine Vielzahl relativ kleiner Quellen, den Anlagen zur Haltung und Aufzucht von Tieren, geprägt. Damit sind auch flächendeckende lokale Maßnahmen zur Minderung der Emissionen von Vorläuferstoffen des Feinstaubes notwendig.

## 9 LITERATUR

22. BImSchV (2002): Zweiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Immissionswerte). BGBl. I, Nr. 60, S. 3626 vom 17.09.2002.
- Bächlin, W., Frantz, H., Lohmeyer, A., Dreiseidler, A., Baumbach, G., Theurer, W., Heits, B., Müller, W.J., Giesen, K.-P. (2003): 1. Materialienband für Maßnahmenpläne nach der EU-Richtlinie Luftqualität: Feinstaub und Schadgasbelastungen in der Göttinger Straße, Hannover, Reihe Nachhaltiges Niedersachsen, Band 24 (2003) - Kurzfassung; ISSN 0949-8265.
- Behra, P., L. Sigg, W. Stumm, Dominating influence of  $\text{NH}_3$  on the oxidation of aqueous  $\text{SO}_2$ : The coupling of  $\text{NH}_3$  and  $\text{SO}_2$  in atmospheric water, *Atmos. Env.* 23, 2691-2707, 1989.
- DIN 38406 E29 (Mai 1999): Bestimmung von 61 Elementen durch Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS). Beuth Verlag GmbH, Berlin.
- DIN EN ISO 11732 E23 (Juli 1997): Bestimmung von Ammonium-Stickstoff mit der Fließanalyse (CFA und FIA) und spektrometrischer Detektion. Beuth Verlag GmbH, Berlin.
- DIN EN ISO 10304-1 D19 (April 1995): Bestimmung der gelösten Anionen Fluorid, Chlorid, Nitrit, Orthophosphat, Bromid, Nitrat und Sulfat mittels Ionenchromatographie. Beuth Verlag GmbH, Berlin.
- DIN 38406 E5 Teil 5 (Oktober 1983): Bestimmung des Ammonium-Stickstoffs. Beuth Verlag GmbH, Berlin.
- Dockery, D. W., C. A. Pope III, X. Xu, J. D. Spengler, J. H. Ware, M. E. Fay, B. G. Ferris Jr. and F. E. Speizer (1993): An association between air pollution and mortality in six U. S. cities, *The New England J. Medicine* Vol. 329, N° 24, Massachusetts Medical Society.
- Fissan, H. (1998): Vortrag im Rahmen des UBA-Fachgesprächs Korngrößenverteilung von Staubemissionen  $< \text{PM}_{2.5}$  und  $< \text{PM}_{10}$  vom 27.01.1998, Umweltbundesamt, Berlin.
- Herrmann, H., B. Ervens, H.-W. Jacobi, R. Wolke, P. Nowacki, R. Zellner, CAPRAM2.3: A chemical aqueous phase radical mechanism for tropospheric chemistry, *J. Atm. Chem.* 36, 231-284, 2000.
- Heits, B. et al. (1998): 20 Jahre Lufthygienisches Überwachungssystem Niedersachsen 1978 – 1997 ; Schriftenreihe Nachhaltiges Niedersachsen, Band 7, 1998; ISSN 0949-8265.

Heits, B., Helmholz, E., Rienecker, H., van der Meulen, T., van Straalen, D., van Elzakker, B.G. (2003): Field Comparison of Monitoring Networks; Schriftenreihe Nachhaltiges Niedersachsen, Band 22, 2003; ISSN 0949-8265.

Hinds, W.C. (1982): Aerosol Technology, John Wiley & Sons, USA.

Jakobs, H.J., Friese, E., Memmesheimer, M., Ebel, A., Müller W.J. (2004): 2. Materialienband für Maßnahmenpläne nach der EU-Richtlinie Luftqualität: MOD-MESS - Modellgestützte Analyse der PM- und Ozonmessungen an den Stationen Bösel und Hannover, Reihe Nachhaltiges Niedersachsen, Band 26 (2004); ISSN 0949-8265.

LÜN-Jahresberichte 2000, 2001, 2002, veröffentlicht im Internet unter [www.nloe.de](http://www.nloe.de)

Oltmanns, E. (1993): Auswahl eines Ammoniakmessgerätes zur Messung im Immissionsmessnetz, Interner Bericht NLÖ-LÜN/Fachhochschule Ostfriesland, 1993

Richtlinie 96/62/EG (1996): Richtlinie des Rates vom 23.09.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 21.11.1996, Nr. L 296/55.

Richtlinie 1999/30/EG (1999): Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22.04.1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 29.06.1999, Nr. L 163/41 ff.

Richtlinie 2000/69/EG (2000): Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates vom 16. November 2000 über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 13.12.2000, Nr. L 313/12 ff.

Richtlinie 2002/3/EG (2002): Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates vom 12. Februar 2002 über den Ozongehalt der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaft vom 09.03.2002, Nr. L 67/14.

Richtlinie VDI 2267, Blatt 1 (April 1999): Stoffbestimmung an Partikeln in der Außenluft – Messen der Massenkonzentrationen von As, Be, Cd, Co, Cr, Cu, Mn, Ni, Pb, Sb, Tl, Zn mit Hilfe der Atomabsorptionsspektrometrie (AAS) nach Probenahme und Aufschluss in oxidierendem Säuregemisch. Beuth Verlag GmbH, Berlin.

Richtlinie VDI 2268, Blatt 1 (April 1987): Stoffbestimmung an Partikeln – Bestimmung der Elemente Ba, Be, Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb, Sr, V, Zn in emittierten Stäuben mittels atom-spektrometrischen Methoden. Beuth Verlag GmbH, Berlin.

Richtlinie VDI 2463, Blatt 11 (Oktober 1996): Messen von Partikeln – Messen der Massenkonzentration (Immission)- Filterverfahren- Filterwechsler Digital DHA-80. Beuth Verlag GmbH, Berlin.

Richtlinie VDI 2465, Blatt 2 (1996): Messungen von Ruß (Immissionen – Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffes nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffes. 05/1996. Beuth Verlag GmbH, Berlin.

Tursic, J., B. Podkrajsek, I. Grgic, A. Berner, Effects of NH<sub>3</sub> on sulfate formation under haze conditions, J. Aerosol.. Science, Abstracts of the European Aerosol Conference 2003, S19-S20, 2003.

Williams, M., Bruckmann P. (2002): Guidance to Member States on PM<sub>10</sub> Monitoring and Intercomparisons with the Reference Method, Final Report der EC Working Group on Particulate Matter, 2002

### ANHANG A: Partikelgrößenverteilungen – Korrelationen mit Windgeschwindigkeit und Windrichtung

Windgeschwindigkeit		Intensivmessphase April 2002				Intensivmessphase August 2002			
HRSW		0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	PM10	0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	PM10
<b>NNO</b>	Korrelation (Pearson)	0.101	0.049	-.435(**)	-0.192	.704(**)	.664(**)	.605(**)	.687(**)
	Signifikanz (2-seitig)	0.319	0.629	0	0.055	0	0	0	0
	N	99	99	99	100	52	52	52	55
<b>NO</b>	Korrelation (Pearson)	-.501(**)	-0.333	-.437(*)	-0.262	.651(**)	.673(**)	.548(**)	.698(**)
	Signifikanz (2-seitig)	0.006	0.077	0.018	0.161	0	0	0.003	0
	N	29	29	29	30	28	28	28	31
<b>ONO</b>	Korrelation (Pearson)	0.048	0.257	-.891(**)	-0.154	0.016	0.05	-0.157	-0.104
	Signifikanz (2-seitig)	0.829	0.237	0	0.482	0.925	0.774	0.36	0.495
	N	23	23	23	23	36	36	36	45
<b>OSO</b>	Korrelation (Pearson)	-0.091	-0.101	-.521(**)	-0.185	-.352(*)	-.364(*)	-.399(*)	-0.093
	Signifikanz (2-seitig)	0.394	0.346	0	0.073	0.028	0.023	0.012	0.388
	N	89	89	89	95	39	39	39	88
<b>SO</b>	Korrelation (Pearson)	-.171(*)	-.169(*)	-.214(**)	-0.028	-0.173	-0.345	-0.056	0.028
	Signifikanz (2-seitig)	0.032	0.034	0.007	0.716	0.418	0.099	0.796	0.756
	N	158	158	158	168	24	24	24	123
<b>SSO</b>	Korrelation (Pearson)	-0.079	-0.109	-.314(**)	-0.038	0.692	0.636	0.723	0.019
	Signifikanz (2-seitig)	0.403	0.249	0.001	0.658	0.085	0.124	0.067	0.905
	N	113	113	113	139	7	7	7	42
<b>SSW</b>	Korrelation (Pearson)	-.273(*)	-0.188	-.521(**)	-.366(**)	0.94	0.936	0.911	0.204
	Signifikanz (2-seitig)	0.01	0.081	0	0	0.06	0.064	0.089	0.363
	N	87	87	87	124	4	4	4	22
<b>SW</b>	Korrelation (Pearson)	-.536(**)	-.270(*)	-.220(*)	-.228(*)	-0.366	-0.422	-0.549	-0.375
	Signifikanz (2-seitig)	0	0.012	0.043	0.019	0.373	0.298	0.159	0.071
	N	85	85	85	106	8	8	8	24
<b>WSW</b>	Korrelation (Pearson)	-.471(**)	-.347(**)	-0.119	-.343(**)	-0.048	0.016	-.477(*)	-0.302
	Signifikanz (2-seitig)	0	0	0.132	0	0.847	0.947	0.039	0.052
	N	160	160	160	199	19	19	19	42
<b>WNW</b>	Korrelation (Pearson)	-.384(**)	-.194(*)	-.380(**)	-.346(**)	0.101	0.1	-0.035	-0.066
	Signifikanz (2-seitig)	0	0.019	0	0	0.531	0.534	0.826	0.629
	N	146	146	146	151	41	41	41	56
<b>NW</b>	Korrelation (Pearson)	-0.115	0.115	-.322(**)	0.056	0.104	0.124	-0.01	0.127
	Signifikanz (2-seitig)	0.24	0.237	0.001	0.556	0.459	0.377	0.941	0.317
	N	107	107	107	114	53	53	53	64
<b>NNW</b>	Korrelation (Pearson)	-0.131	-0.116	-.418(**)	-0.136	0.068	-0.019	-0.091	0.118
	Signifikanz (2-seitig)	0.245	0.302	0	0.219	0.594	0.883	0.477	0.351
	N	81	81	81	83	64	64	64	65

\*\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.01 (2-seitig) signifikant.

\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.05 (2-seitig) signifikant.

Tab. A1: Korrelationskoeffizienten Windgeschwindigkeit vs. kleine, mittlere und große Partikel sowie PM10, unterteilt nach Windrichtung und Intensivmessphase für den Standort Hannover (HRSW)

Windgeschwindigkeit		Intensivmessphase April 2002				Intensivmessphase August 2002			
BLWW		0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	PM10	0.3-0.5 µm	0.5-2.0 µm	2.0-10 µm	PM10
<b>NNO</b>	Korrelation (Pearson)	-0.433	-0.318	-0.166	-0.224	.433(**)	.388(**)	0.175	.389(**)
	Signifikanz (2-seitig)	0.159	0.314	0.606	0.078	0	0	0.063	0
	N	12	12	12	63	114	114	114	111
<b>NO</b>	Korrelation (Pearson)	-0.102	-0.068	-0.13	0.056	0.15	0.158	-0.093	-0.149
	Signifikanz (2-seitig)	0.793	0.862	0.739	0.593	0.232	0.208	0.459	0.242
	N	9	9	9	95	65	65	65	63
<b>ONO</b>	Korrelation (Pearson)	0.442	0.318	0.44	0.139	0.073	0.069	0.012	0.042
	Signifikanz (2-seitig)	0.38	0.539	0.383	0.226	0.599	0.619	0.929	0.766
	N	6	6	6	78	54	54	54	52
<b>OSO</b>	Korrelation (Pearson)	.760(**)	.652(*)	-.681(**)	.188(*)	0.077	0.064	-0.068	0.128
	Signifikanz (2-seitig)	0.002	0.012	0.007	0.043	0.547	0.62	0.598	0.315
	N	14	14	14	116	63	63	63	64
<b>SO</b>	Korrelation (Pearson)	0.039	0.217	0.07	.479(**)	0.147	-0.026	0.023	0.185
	Signifikanz (2-seitig)	0.765	0.096	0.597	0	0.29	0.855	0.867	0.172
	N	60	60	60	150	54	54	54	56
<b>SSO</b>	Korrelation (Pearson)	0.299	.544(**)	-0.148	.223(*)	-0.197	-0.159	-0.275	-0.056
	Signifikanz (2-seitig)	0.086	0.001	0.404	0.045	0.288	0.392	0.135	0.765
	N	34	34	34	81	31	31	31	31
<b>SSW</b>	Korrelation (Pearson)	-.290(**)	-0.156	-0.162	-.208(**)	-0.088	0.094	-.427(**)	-0.105
	Signifikanz (2-seitig)	0.007	0.157	0.142	0.001	0.412	0.383	0	0.33
	N	84	84	84	241	89	89	89	88
<b>SW</b>	Korrelation (Pearson)	-.440(**)	-0.147	-0.055	-.300(**)	-0.008	0.253	-0.165	0.089
	Signifikanz (2-seitig)	0	0.161	0.602	0	0.965	0.178	0.382	0.639
	N	92	92	92	197	30	30	30	30
<b>WSW</b>	Korrelation (Pearson)	-.701(**)	-.642(**)	0.071	-.400(**)	-.622(*)	-0.487	-.649(*)	-.538(*)
	Signifikanz (2-seitig)	0	0	0.64	0	0.018	0.077	0.012	0.047
	N	46	46	46	91	14	14	14	14
<b>WNW</b>	Korrelation (Pearson)	-.551(**)	-0.43	0.064	-.315(*)	-0.265	-0.279	-.761(**)	-0.125
	Signifikanz (2-seitig)	0.01	0.052	0.783	0.015	0.321	0.295	0.001	0.646
	N	21	21	21	59	16	16	16	16
<b>NW</b>	Korrelation (Pearson)	-.806(**)	-.739(*)	-0.499	-.427(**)	-0.281	-0.301	-.618(**)	-0.243
	Signifikanz (2-seitig)	0.009	0.023	0.172	0.003	0.147	0.119	0	0.213
	N	9	9	9	46	28	28	28	28
<b>NNW</b>	Korrelation (Pearson)	-.407(**)	-0.103	-0.183	-.368(**)	.382(**)	.425(**)	.232(*)	.466(**)
	Signifikanz (2-seitig)	0	0.367	0.106	0	0	0	0.018	0
	N	79	79	79	113	103	103	103	103

\*\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.01 (2-seitig) signifikant.

\* Die Korrelation ist auf dem Niveau von 0.05 (2-seitig) signifikant.

Tab. A2: Korrelationskoeffizienten Windgeschwindigkeit vs. kleine, mittlere und große Partikel sowie PM10, unterteilt nach Windrichtung und Intensivmessphase für den Standort Bösel (BLWW)

## **ANHANG B: Bericht des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen, LÜN: Gleichmäßige PM10-Belastung im Raum Westliches Niedersachsen während des Zeitraumes April 2002 bis März 2003**

Autoren: B. Heits, W.J. Müller

### **B1. Einleitung**

Im Rahmen des LÜN werden an 21 Messorten in Niedersachsen Feinstaubmessungen mittels Betastaubmonitoren FH62 IN mit PM10-Probenahme durchgeführt (Heits et al., 1998). Die mit diesen Monitoren ermittelten Tagesmittelwerte werden in Anlehnung an die Empfehlungen der EC Working Group on Particulate Matter (Williams, 2002) und in Übereinstimmung mit der Vorgehensweise im Luftqualitätsmessnetz der Niederlande mit einem Faktor 1.33 multipliziert. Dies geschieht, um eine bessere Vergleichbarkeit der Messwerte mit der in der EU-Tochterraichtlinie 1999/30/EG festgelegten Referenzmethode zur PM10-Messung zu erreichen.

Während des Einjahreszeitraumes April 2002 bis März 2003 lagen die mit dem FH62 IN gemessenen Mittelwerte im LÜN-Messnetz recht einheitlich im Bereich 30 bis 33  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Diese Aussage gilt für die Bereiche Hannover, Braunschweig, Wolfsburg, Salzgitter, Emsland (Lingen), Süddoldenburg (Cloppenburg), Elbmündung (Cuxhaven), Altes Land (Jork), Lüneburger Heide (Lüneburg), Wendland (Lüchow), Weserbergland (Rinteln). Etwas geringer, mit Mittelwerten im Bereich 25 bis 28  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , waren die Staubbelastungen im südlichen Niedersachsen Oker/Harlingerode, Göttingen, Eichsfeld sowie an den Küstenstationen in Ostfriesland (Emden), Wesermündung (Bremerhaven) und Jadebusen (Wilhelmshaven). Die **Abb. B5** gibt einen Überblick der Messstandorte der PM10-Belastung des Zeitraumes April 2002 bis März 2004. Die in **Abb. B5** dargestellte Belastungssituation ergibt sich in ähnlicher Weise auch für die Mittelwerte PM10 über die letzten fünf Jahre. Hier ist besonders auffällig, dass der Bereich Jadebusen (LÜN-Station in Wilhelmshaven) mit 23  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  deutlich geringer belastet ist, als der mittlere Bereich Niedersachsens; hier wird an allen Stationen ein Mittelwert PM10 zwischen 28 bis 33  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  gemessen. Es erscheint gerechtfertigt, die Station Wilhelmshaven bezüglich der Feinstaubbelastung als Hintergrundstation für weite Teile Niedersachsens zu betrachten.

Die beiden Messstationen des Umweltbundesamtes in Niedersachsen Bassum (südlich von Bremen) und Waldhof (bei Gifhorn) sowie zwei benachbarte Stationen des Niederländischen Messnetzes des RIVM, Eibergen bei Enschede und Valthermond bei Emmen zeigten eine ähnliche Feinstaubbelastung mit Mittelwerten um 32  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Messmethode: FH62 IN mit Faktor 1.33).

## B2. Datenbasis

Zum Nachweis der über weite Bereiche des Westlichen Niedersachsens gleichmäßigen Feinstaubbelastung werden Korrelationen zwischen den einzelnen Stationen auf der Basis zeitgleicher Tagesmittelwerte PM10 berechnet.

Als Datenbasis standen die Tagesmittelwerte des Zeitraums April 2002 bis März 2003 zur Verfügung (RIVM-Daten ohne Februar 2003). Bei allen Daten der Messnetze UBA, RIVM und LÜN handelt es sich um vorläufige Daten, die noch nicht alle Validierungsschritte durchlaufen haben; die endgültigen Daten werden üblicherweise mit den Jahresberichten bekanntgegeben.

Als Messgeräte werden an allen Stationen Beta-Staubmonitore des Typs FH62 IN eingesetzt. Da die RIVM-Daten und die LÜN-Daten der FH62-Monitore standardmäßig mit dem Faktor 1.33 multipliziert werden, wurden die Daten der UBA-Station entsprechend behandelt. Die LÜN-Sonderstation Bösel wurde hier folgendermaßen behandelt:

Für den betrachteten Zeitraum liegen für die LÜN-Stationen Bösel und Hannover PM10-Filtermessungen mit Digital-Sammlern vor. Aus den jeweiligen Vergleichen mit den parallel betriebenen FH62-Monitoren lassen sich Faktoren bestimmen, mit denen die FH62-Messungen an das Äquivalenzverfahren Digital angepasst werden können. Die **Tab. B1a** und **Tab. B2a** zeigen diese Auswertungen klassiert für die beiden Standorte BLWW und HRSW. Als Faktoren über den gesamten Konzentrationsbereich der Tagesmittelwerte von 10 bis 140 µg/m<sup>3</sup> ergaben sich folgende Faktoren.

- Bösel:           DIGITEL / FH62 = 1.08
- Hannover:       DIGITEL / FH62 = 1.28

Für die weiteren Auswertungen wurde für Bösel ein Faktor von **1.1** und für Hannover der Standardfaktor **1.33** verwendet, mit dem die FH62-Tagesmittelwerte multipliziert wurden. Nur für die im Kap. B3 Messunsicherheit gemachten Auswertungen wurde im Falle HRSW der Faktor 1.3 genommen, um die Diskrepanz zu dem experimentell ermittelten Faktor 1.28 zu reduzieren und ähnliche Abweichungen wie im Falle BLWW (Faktor 1.1 zu experimentell 1.08) zuzulassen.

Klasse $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	Mittel DIG $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Mittel FH $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Faktor
0 - 20	103	16	11	1.41
21 - 30	95	25	18	1.35
31 - 40	67	35	28	1.28
41 - 60	44	49	41	1.21
61 - 140	28	82	69	1.19
0 - 140	337	32	25	1.28

Tab. B1a: HRSW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN (FH mit Faktor 1)

Klasse $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	Mittel DIG $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Mittel FH $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$U_a$ $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$U_{rel}$ %
0 - 20	103	16	14	3.2	<b>20.8</b>
21 - 30	95	25	24	3.9	<b>15.6</b>
31 - 40	67	35	36	4.1	<b>11.7</b>
41 - 60	44	49	53	5.1	<b>10.4</b>
61 - 140	28	82	90	7.1	<b>8.6</b>
0 - 140	337	32	33	4.3	<b>13.4</b>
40 - 140	78	60	65	5.7	<b>9.5</b>

Klasse: Konzentrationsklasse Feinstaub

Anzahl: Anzahl zeitgleicher Tagesmittelwerte Digitel und FH62

Mittel DIG: Mittelwert der Tagesmittelwerte Digitel in der Konzentrationsklasse

Mittel FH: Mittelwert der Tagesmittelwerte FH62 in der Konzentrationsklasse

Faktor: Mittel DIG / Mittel FH

$U_a$ : absolute Messunsicherheit

$U_{rel}$ : relative Messunsicherheit

Tab. B1b: HRSW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN (FH mit Faktor 1.3)

Klasse $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	Mittel DIG $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Mittel FH $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Faktor
0 - 20	118	15	13	1.16
21 - 30	104	25	22	1.13
31 - 40	63	35	34	1.05
41 - 60	44	49	48	1.03
61 - 140	26	81	76	1.07
0 - 140	355	31	28	1.08

Tab. B2a: BLWW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN (FH mit Faktor 1)

Klasse $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	Mittel DIG $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Mittel FH $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$U_a$ $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$U_{rel}$ %
0 - 20	118	15	14	2.4	16.1
21 - 30	104	25	25	3.4	13.5
31 - 40	63	35	37	4.0	11.2
41 - 60	44	49	53	3.2	6.5
61 - 132	26	81	84	6.3	7.7
0 - 140	355	31	31	3.5	11.4
40 - 140	77	59	62	4.6	7.7

Klasse: Konzentrationsklasse Feinstaub

Anzahl: Anzahl zeitgleicher Tagesmittelwerte Digital und FH62

Mittel DIG: Mittelwert der Tagesmittelwerte Digital in der Konzentrationsklasse

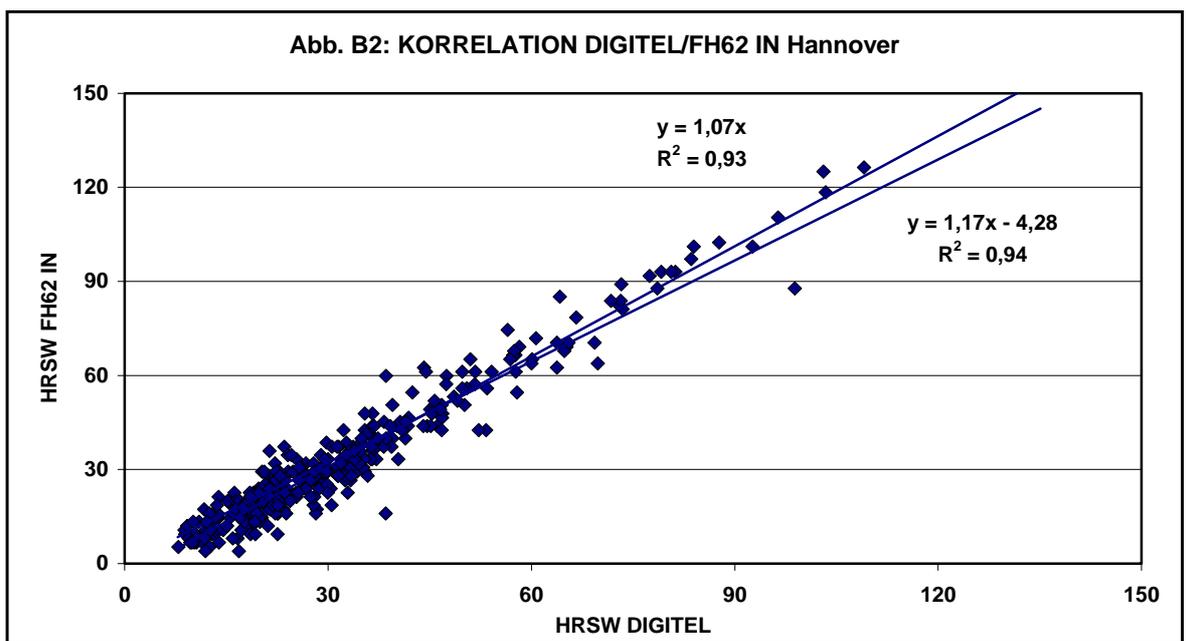
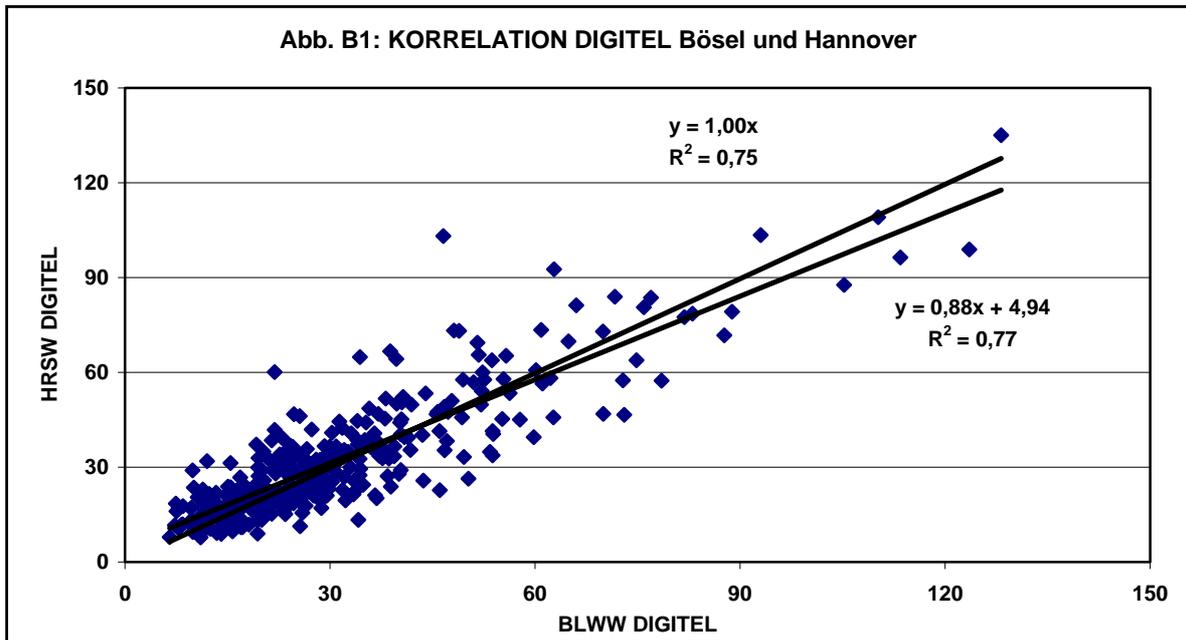
Mittel FH: Mittelwert der Tagesmittelwerte FH62 in der Konzentrationsklasse

Faktor: Mittel DIG / Mittel FH

$U_a$ : absolute Messunsicherheit

$U_{rel}$ : relative Messunsicherheit

Tab. B2b: BLWW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN (FH mit Faktor 1.1)



### B3. Messunsicherheit

Die Messunsicherheit (Uncertainty) wurde nach dem im Bericht von Heits et al. (2003) beschriebenen Verfahren bestimmt. Dabei wurden die Digital- und FH62-Messungen an den beiden Standorten jeweils als Parallelmessungen gleicher Messgeräte betrachtet. Die FH62-Tagesmittelwerte wurden mit den experimentell ermittelten, gerundeten Faktoren 1.1 (Bösel) und 1.3 (Hannover) umgerechnet. Bei dieser Vorgehensweise ergeben sich folgende relative Messunsicherheiten  $U_{rel}$  (**Tab. B1b, B2b**):

- Bösel:	Messunsicherheit	Gesamtbereich:	11 %;
		im Bereich um 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ :	8 %
- Hannover:	Messunsicherheit	Gesamtbereich:	13 %;
		im Bereich um 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ :	10 %

Diese Ergebnisse sind deutlich besser als im oben genannten Bericht über die RIVM/NLÖ-Vergleichsmessung in Osnabrück (Heits et al. (2003)). Hier wurden beim Vergleich zweier FH62 IN Monitore der beiden Messnetze des RIVM/LML und NLÖ/LÜN eine Messunsicherheit von 15 % ermittelt. Bei einer Vergleichsmessung mit einem Äquivalenzgerät (DIGITEL) erwartet man eine höhere Messgenauigkeit; somit sind die Werte von 8 % und 10 % plausibel.

Vergleicht man mit dem gleichen formalen Vorgehen die zeitgleichen Digital-Tagesmittelwerte von Bösel und Hannover miteinander (Tab. B3), so erhält man mit 21 % einen deutlich höheren Wert für die Messunsicherheit. Dieser ist aber bei Berücksichtigung der großen Entfernung zwischen den beiden Messorten von ca. 180 km erstaunlich gering. Dies kann somit als Indiz für eine recht gleichmäßige Feinstaubbelastung in dem betrachteten Raum interpretiert werden. Diese Aussage wird auch durch die Korrelation der zeitgleich ermittelten Digital-Werte an den Stationen HRSW und BLWW unterstützt, die ein relativ hohes Bestimmtheitsmaß von  $R^2 = 0.77$  ergibt (**Abb. B1**).

Die Korrelationen der FH62-Werte mit den Digital-Werten an den beiden Standorten auf der Basis von 337 (Hannover, **Abb. B2**) bzw. 355 (Bösel, **Abb. B3**) Tagesmittelwerten zeigen mit Bestimmtheitsmaßen  $R^2$  von

- Bösel:	0.95
- Hannover:	0.94

eine hervorragende Übereinstimmung der beiden unterschiedlichen Messverfahren zur Bestimmung der PM10-Belastung. Auch die Anzahl der Überschreitungen eines Tagesmittelwertes von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  wird in guter Übereinstimmung ermittelt:

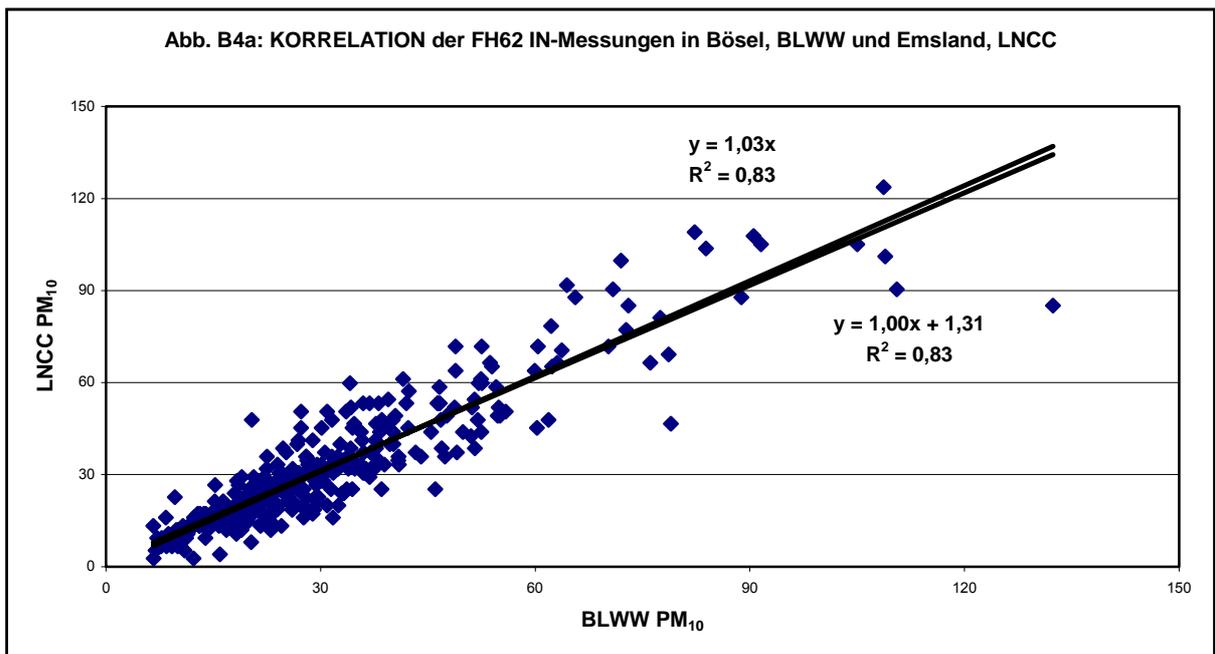
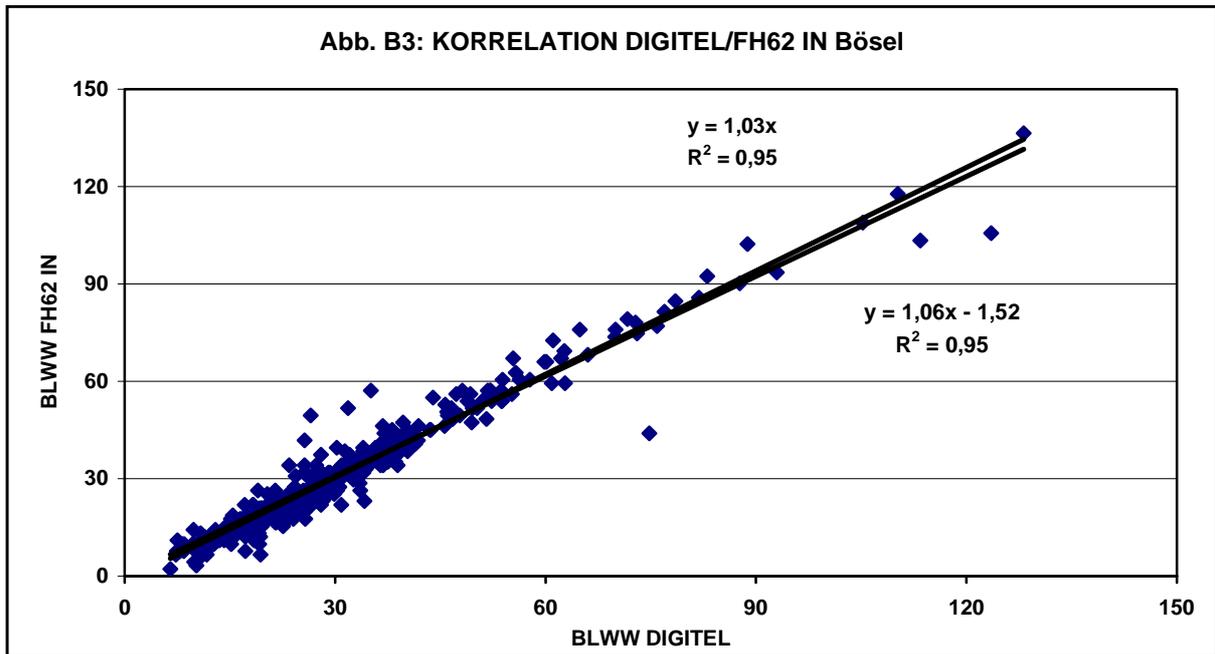
- Bösel: Anzahl der Überschreitungstage 44 (DIGITEL) und 53 (FH62 IN)
- Hannover: Anzahl der Überschreitungstage 45 (DIGITEL) und 52 (FH62 IN)

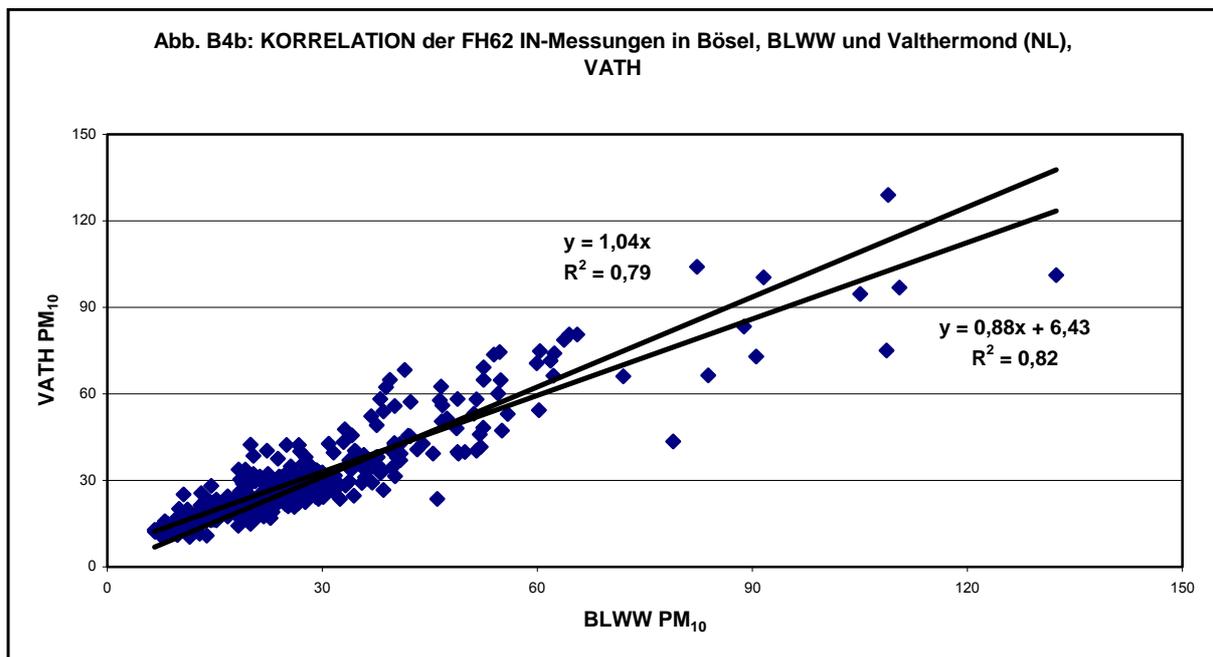
Auch für diese Auswertung wurden für die FH62-Werte die Faktoren 1.1 (Bösel) und 1.3 (Hannover) verwendet. Da die Faktoren über die Staubkonzentrationsbereiche variieren (siehe **Tab. B1a** und **Tab. B2a**), überschätzen die verwendeten gemittelten Werte die mit dem FH62 gemessenen Werte im Bereich über  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

#### **B4. Vergleich mit anderen Messorten**

Um einen Überblick der Feinstaubbelastungen in dem Raume Westliches Niedersachsen zu bekommen, werden die Daten der LÜN-Stationen mit zwei benachbarten, grenznahen Stationen der Niederländischen Messnetzes RIVM, Eibergen und Valthermond, sowie einer Station des Umweltbundesamtes in Bassum verglichen. Als Datenbasis werden die Tagesmittelwerte genommen, die von den jeweiligen Messnetzzentralen zur Verfügung gestellt werden. Auf eventuelle lokale Besonderheiten wird keine Rücksicht genommen, ein Ausreisser-test wird nicht durchgeführt. Man kann davon ausgehen, dass bei einer Datenmenge von etwa 330 zeitgleichen Tagesmittelwerten eine ausreichend gute Aussage über die Vergleichbarkeit der Belastungen gemacht werden kann.

Die Tabelle der Ergebnisse der Korrelationsberechnungen zwischen den einzelnen Stationen zeigt in der Regel ein recht hohes Bestimmtheitsmaß zwischen 0.7 und 0.9. Dieses ist meistens um so größer, je näher die Stationen benachbart sind. Das höchste Bestimmtheitsmaß tritt bei dem Vergleich von Bösel mit Cloppenburg auf. Diese Stationen sind ungefähr 25 km von einander entfernt. Am weitesten entfernt von Bösel ist die Station Eibergen; entsprechend ist das Bestimmtheitsmaß relativ gering. Die mittleren PM10-Belastungen an allen Stationen sind mit  $30$  bis  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$  sehr ähnlich. Es ist erstaunlich, dass selbst die Station Hannover bezüglich der mittleren Belastung und auch der Korrelationsbeziehungen recht gut in dieses Bild passt. Eine Zusammenstellung aller Korrelationsergebnisse (Bestimmtheitsmaß, Steigung, Achsenabschnitt) enthält die **Tab. B4**; zwei beispielhafte Plots der Korrelationen zeigen die **Abb. B4a,b**.





## B5. Zusammenfassung

Wie schon bei der Modellierung der Feinstaubbelastung im Rahmen des MODMESS-Programmes (Jakobs et al., 2004) gezeigt wurde, sind die Feinstaubbelastungen im Bereich Westliches Niedersachsen recht einheitlich ausgeprägt. Die Jahresmittelwerte liegen im Bereich von  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und die Anzahl der Überschreitungstage mit Tagesmittelwerten PM10 von mehr als  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ist in der Regel deutlich größer als 35. Dieses Ergebnis basiert auch auf den Filtermessungen nach dem Referenzverfahren an den LÜN-Stationen Bösel und Hannover. Die Messungen, die von drei Messnetzen unabhängig voneinander durchgeführt aber nach gleichen Kriterien ausgewertet wurden, belegen eine sehr zufriedenstellende Übereinstimmung der Messergebnisse.

<b>Klasse</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Anzahl</b>	<b>Mittel HRSW</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Mittel BLWW</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Faktor</b>
0 - 20	104	16	16	0.96
21 - 30	95	25	25	1.00
31 - 40	67	35	33	1.07
41 - 60	44	49	45	1.10
61 - 140	28	82	73	1.13
0 - 140	338	32	30	1.05

Tab. B3a: Vergleich DIGITEL/CNF HRSW und BLWW

<b>Klasse</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Anzahl</b>	<b>Mittel HRSW</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Mittel BLWW</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>U<sub>a</sub></b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>U<sub>rel</sub></b> <b>%</b>
0 - 20	104	16	16	3.6	22.9
21 - 30	95	25	25	5.4	21.5
31 - 40	67	35	33	7.1	20.0
41 - 60	44	49	45	7.5	15.2
61 - 140	28	82	73	14.2	17.3
0 - 140	338	32	30	6.8	21.2

Klasse: Konzentrationsklasse Feinstaub

Anzahl: Anzahl zeitgleicher Tagesmittelwerte Digital BLWW und HRSW

Mittel BLWW: Mittelwert der Tagesmittelwerte Digital in der Konzentrationsklasse

Mittel HRSW: Mittelwert der Tagesmittelwerte FH62 in der Konzentrationsklasse

Faktor: Mittel BLWW / Mittel HRSW

U<sub>a</sub>: absolute Messunsicherheit

U<sub>rel</sub>: relative Messunsicherheit

Tab. B3b: Vergleich DIGITEL/CNF HRSW und BLWW

Tagesmittelwerte FH62 I-N (FH mit Faktor 1.33)

Zeitraum: 01.04.2002 - 31.03.2003

Bösel	Station	Mittelwert $\mu\text{g}/\text{m}^3$	R <sup>2</sup>	Steigung	Achsenabschnitt $\mu\text{g}/\text{m}^3$
BLWW		31			
BLWW	CGCC	30	0.91	1.17	5.5
BLWW	LNCC	32	0.83	1.00	1.3
BLWW	BASS	32	0.85	0.93	4.3
BLWW	ENCC	28	0.77	0.93	0.1
BLWW	VATH	32	0.82	0.88	6.4
BLWW	HRSW	33	0.77	0.90	4.7
BLWW	EIBE	32	0.58	0.73	10.5

Tab. B4: KORRELATIONSTABELLE - Bösel mit Stationen des LÜN, UBA, RIVM

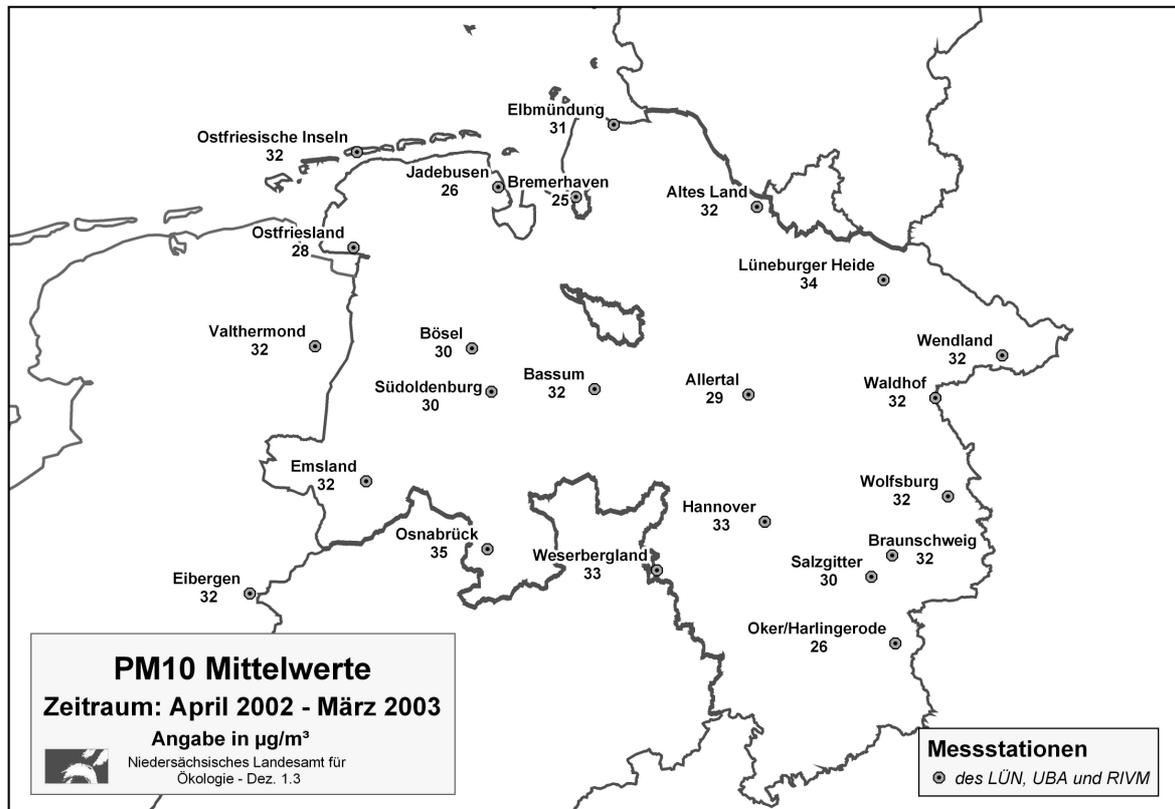


Abb. B5: Messstationen und PM10-Mittelwerte

## **ANHANG C: Bericht des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen, LÜN: Durchführung von kontinuierlichen Ammoniak-Immissionsmessungen im Gebiet Bösel, Landkreis Cloppenburg 2002/2003**

Autoren: E. Helmholz, H. Rienecker und B. Heits

### **C1. Einleitung**

Nicht nur im Nahbereich von stark befahrenen Strassen, sondern auch in den landwirtschaftlich genutzten Gebieten in Niedersachsen treten Überschreitungen des EU-Grenzwertes für Feinstaub PM<sub>10</sub> auf. Die Anzahl der Überschreitungen des Tagesmittelwertes PM<sub>10</sub> größer 50 µg/m<sup>3</sup> war in den letzten Jahren höher als 35 mal im Jahr. Im Falle von Grenzwertüberschreitungen haben die Länder die Verpflichtung, die Ursachen der Überschreitungen, also die Quellen und die Transportwege der verunreinigten Luftmassen zu identifizieren und zu quantifizieren. Auf der Basis der Ursachenanalyse sind Maßnahmepläne zu erarbeiten, die sicherstellen sollen, dass Grenzwertüberschreitungen in Zukunft nicht mehr auftreten. Mehrere Untersuchungen der Feinstaubbelastungen in Deutschland haben gezeigt, dass der Beitrag großräumiger Quellen zur Feinstaubbelastung im Mittel ungefähr 25 µg/m<sup>3</sup> beträgt. Treten lokal höhere Belastungen auf, so müssen die Quellen im näheren und weiteren Umfeld gesucht werden. Dabei besteht ein beträchtlicher Anteil des Feinstaubes aus sekundären Aerosolen, d.h. aus Feinstpartikeln (Teilchendurchmesser  $D_p$  unter 1µm), die aus gasförmigen Komponenten wie Ammoniak (NH<sub>3</sub>), Stickstoffoxiden (NO<sub>x</sub>), Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) und organischen Gasen (VOC) in der Atmosphäre entstehen. Um den Anteil dieser Sekundäraerosole an der gemessenen Feinstaubkonzentration abschätzen zu können, ist es notwendig, die chemische Zusammensetzung des Feinstaubes möglichst vollständig zu untersuchen und die Konzentrationsfelder der zur Aerosolbildung beitragenden Gase zu kennen. Mit Hilfe von Ausbreitungsmodellen, die chemische Reaktionen der Gase während des Transportes in der Atmosphäre berücksichtigen, ist es dann möglich, die Zusatzbelastung durch sekundäre Aerosolbildungsprozesse zu quantifizieren.

Ammoniak ist die am häufigsten vorkommende basische Komponente in der Atmosphäre. Durch saure Komponenten wie Salpetersäure, salpetrige Säure und Schwefelsäure wird Ammoniak neutralisiert. Die Depositionen von Ammoniak und seinen Reaktionsprodukten (Bezeichnung: NH<sub>x</sub>) tragen zu einem großen Teil zur Versauerung und Entrophierung des Ökosystems bei. Die Depositionseinträge an reduziertem Stickstoff (Ammoniak, Ammonium, NH<sub>x</sub>) sind in landwirtschaftlich genutzten Gebieten heutzutage höher als die des oxidierten Stickstoffs (Stickstoffoxide, NO<sub>x</sub>). Die wesentliche Emissionsquelle für NH<sub>x</sub> ist die Tierhal-

tung in der Landwirtschaft. Starke direkte, toxische Schäden durch hohe Ammoniak- Immissionen sind auf den näheren Umkreis von Massentierhaltung beschränkt.

Erste orientierende Ammoniakmessungen an der LÜN-Station Bösel zeigen, dass mit Jahresmittelwerten deutlich über  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  zu rechnen ist. Der in dem Bericht des LAI-UA Wirkungsfragen „Beurteilung von Ammoniak- und Ammonium-Immissionen“ zum Schutz von landwirtschaftlichen Nutzpflanzen festgelegte Jahresmittelwert von  $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$  wird nicht erreicht. Die von der ECE und der WHO vorgeschlagenen kritischen Jahresmittelwerte von  $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (ECE) bzw.  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (WHO) zum Schutz empfindlicher Ökosysteme werden jedoch mit großer Wahrscheinlichkeit überschritten.

## **C2. Durchführung der Ammoniak-Messung**

Da durch die Vielzahl von Anlagen zur Tierhaltung im Gebiet Bösel/Cloppenburg eine Erhöhung von Stickstoffeinträgen über den Luftweg zu erwarten ist, wurde in der Gemeinde Bösel im März 2002 eine Luftgüte-Messstation des Landes Niedersachsen installiert, die ab April 2002 validierte Daten liefert.

Um eine Aussage über die Ammoniak-Immission in dieser Region treffen zu können, wurden Versuche mit  $\text{NH}_3$ -Messungen, basierend auf den Erfahrungen einer Messphase 1993 in Cloppenburg (Oltmanns, 1993) auch in der Station Bösel im Sommer 2002 begonnen. Angestrebt wurde der Einsatz eines Messgerätes zur kontinuierlichen, automatischen Messung in einem bestehenden Messnetz.

Der eingesetzte Messplatz arbeitet nach dem Chemilumineszenz Verfahren mit einem zusätzlichen thermischen Konverter. Als Basisgeräte wurden weiterentwickelte  $\text{NO}/\text{NO}_x$ -Geräte TE 42 (Thermo Instruments) und AL700 (Eco Physics) verwendet. Die angestrebte Temperatur des Thermokonverters von  $870 \text{ }^\circ\text{C}$  stellt große Anforderungen an die Temperaturüberwachung. Die erreichte Temperaturstabilität liegt bei 0.25 %, das entspricht ca.  $\pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ . Das Konvertermaterial besteht aus einem Rohrwickel Inconel 825 (Rohrabmessungen  $3 \times 0.5 \text{ mm}$ , Durchmesser des Wendels ca. 35 mm, gestreckte Länge etwa 2 m).

Der Thermokonverter liefert aus thermodynamischen Gründen bei  $870 \text{ }^\circ\text{C}$  ein Gemisch aus ca. 85 %  $\text{NO}$  und ca. 15 %  $\text{NO}_2$ , unabhängig von der Zusammensetzung der Außenluft. Dies resultiert aus den Gleichgewichtsreaktionen zwischen  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  und Sauerstoff. Um dieses Gemisch möglichst vollständig zu  $\text{NO}$  zu reduzieren, wird ein zusätzlicher  $\text{NO}_2$ -Konverter nachgeschaltet.

Der mit Reinstgraphit (99,9 % C) gefüllte und bei einer Temperatur von 285 °C betriebene Konverter für NO<sub>x</sub> wurde gewählt, um bei der Reduktion des NO<sub>2</sub> zu NO mit geringeren Temperaturen (Mo-Konverter: 325 °C) arbeiten zu können. Ferner ergeben sich geringere Querempfindlichkeiten als beim Einsatz eines Molybdänkonverters. Die **Abb. C1** zeigt den prinzipiellen Aufbau des Messplatzes.

### Aufbau TE 42 - Gerät zur kontinuierlichen Messung von NH<sub>3</sub>

mit nachgeschaltetem NO<sub>2</sub> - Konverter

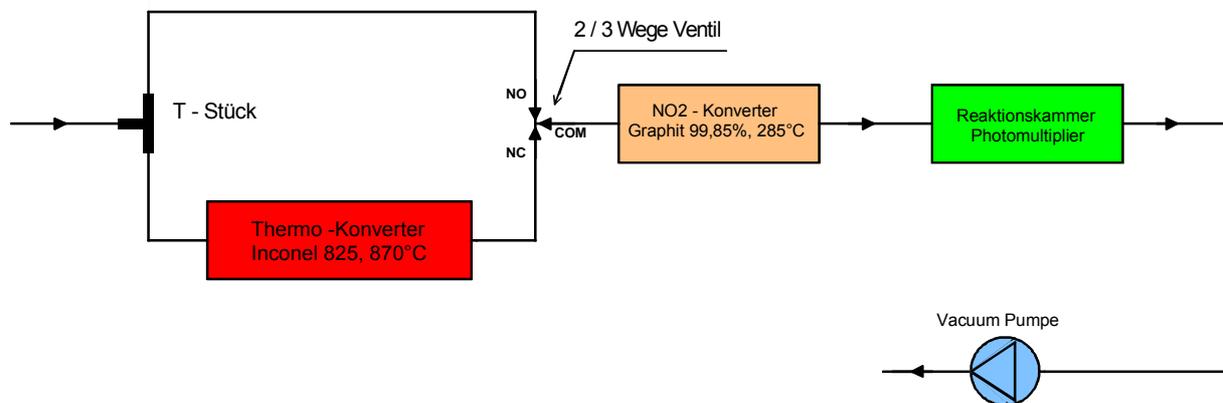


Abb. C1: Prinzipieller Aufbau des Ammoniak-Messplatzes

### C3. Jahrgang Ammoniak-Konzentrationen in Bösel

Die ersten orientierenden Ammoniak-Messungen mit diesem, im Rahmen des LÜN entwickelten Messplatzes, ergaben den in **Abb. C2** dargestellten Verlauf der Monatsmittelwerte während des Einjahreszeitraumes Juni 2002 bis Mai 2003. Als Jahresmittel wurden 15 µg/m<sup>3</sup> ermittelt. Bei den Messungen wurde eine Verfügbarkeit von 75 % erreicht. Es traten Spitzenwerte von über 300 µg/m<sup>3</sup> als Einstundenmittel auf.

Zu den durchgeführten qualitätssichernden Maßnahmen gehörten mehrmalige Vergleiche des Transferstandards (NH<sub>3</sub>-Permeationsquelle ca. 60 µg/m<sup>3</sup>) mit den Kalibrierstandards der Ländermessnetze von Mecklenburg-Vorpommern (LUNG) und den Niederlanden (RIVM). Zusätzlich wurden vergleichende Messungen mit Passivsammlern durchgeführt.

#### C4. Fazit

Auch wenn die beschriebenen ersten, orientierenden Messungen mit einer abgeschätzten Messunsicherheit von über 30 % behaftet sind, so ist die Wahrscheinlichkeit, dass die Ammoniak-Belastungen in dem betrachteten Gebiet deutlich über einem Jahresmittel von  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  liegen, recht hoch.

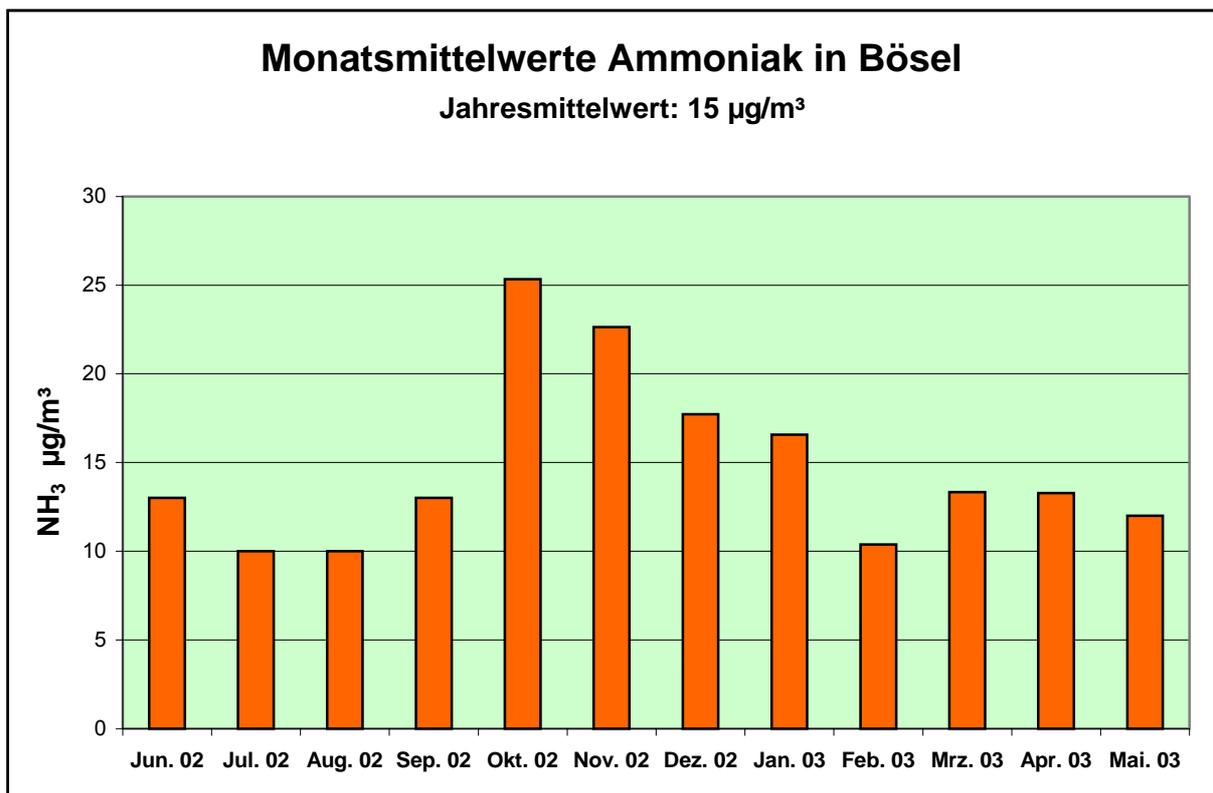


Abb. C2: Jahresgang der Ammoniak-Konzentrationen am Standort Bösel, BLWW