

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt –IX C 57 Berlin

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

Landesamt für Umwelt Brandenburg, Potsdam

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

Vergabe Nr. IX C 57 - 16082016

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

Abschlussbericht 30.11.2017

Projektlaufzeit: 14.10.2016 bis 30.11.2017

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

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS)

Abteilung Chemie der Atmosphäre (ACD)

Permoserstr. 15

04318 Leipzig

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	5
Tabellenverzeichnis	12
Abkürzungsverzeichnis	13
1 Aufgabenstellung und Ziele.....	15
2 Beschreibung des Datensatzes.....	16
2.1 Beschreibung und Klassifizierung der Messstationen.....	16
2.2 Auswahlkriterien Sondermessungen (Meteorologie)	21
2.3 Probenahme und Analyse von Levoglucosan	22
2.4 Zuordnung von Belastungskategorien	23
2.4.1 Anströmung nach AIWE (Air Mass Inflow West/East)	24
2.4.2 Raumskala separiert nach „Regional“ und „Fern“	29
2.4.3 Unterscheidung nach Grenztemperatur in „Warm“ und „Kalt“	33
2.4.4 Auswirkungen der Grenzschichthöhe	35
2.4.5 Auswirkungen der Witterung.....	40
2.4.6 Zusammenfassung Anzahl und Häufigkeit der Belastungskategorien und der Tage mit PM10- Grenzwertüberschreitung	42
2.5 Zuordnung zu Großwetterlagen	46
3 Ergebnisse und Diskussion	55
3.1 Zeitliche Verläufe der PM10- Massekonzentration und ausgewählter Inhaltsstoffe (tägliche Werte)	55
3.1.1 PM10- Massekonzentration	55
3.1.2 Verhältnis PM2,5 / PM10	58
3.1.3 OC	60
3.1.4 EC.....	61
3.1.5 Sulfat	64
3.1.6 Nitrat	66
3.1.7 Levoglucosan	68

3.1.8	BaP.....	70
3.2	PM10- Massekonzentration und ausgewählte Inhaltsstoffe in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik, den Belastungskategorien und den Großwetterlagen.....	72
3.2.1	PM10- Massekonzentration.....	72
3.2.2	Verhältnis PM2,5 / PM10.....	75
3.2.3	OC.....	77
3.2.4	EC.....	79
3.2.5	Sulfat.....	81
3.2.6	Nitrat.....	83
3.2.7	Levoglucosan.....	85
3.2.8	BaP.....	87
3.2.9	PM10- Massenanteile der Inhaltsstoffe.....	89
3.2.10	PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Großwetterlagen.....	90
3.3	Quellzuordnung.....	94
3.3.1	Lenschow- Ansatz.....	94
3.3.2	Kombinierte Belastungskategorien.....	99
3.3.3	Clusteranalyse Rückwärtstrajektorien.....	107
3.3.4	Räumliche Quellzuordnung mit Trajektorienstatistik.....	113
3.3.5	Positive Matrixfaktorisierung (PMF).....	115
3.3.5.1	Identifizierung von Quellkategorien.....	117
3.3.5.2	Vergleich der PMF-Läufe.....	125
3.3.5.3	Mittlere Quellbeiträge im Untersuchungszeitraum.....	131
3.3.5.4	Räumliche Zuordnung der Quellbeiträge.....	139
3.3.5.5	Quellbeiträge in den Belastungskategorien und Inkrement Ost.....	140
4	Zusammenfassung.....	148
5	Literaturverzeichnis.....	151

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Übersicht der ausgewählten Messstationen, unterschieden nach ländlicher Hintergrund- (grün), städtischer Hintergrund- (blau) und Verkehrsstation (rot) in PM-OST (Quelle: OpenStreetmap®).....	16
Abbildung 2:	Geographische Häufigkeitsverteilung für alle 96h- Rückwärtstrajektorien im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.	26
Abbildung 3:	Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „West“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.	27
Abbildung 4:	Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Ost“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.	28
Abbildung 5:	Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Regional“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.	31
Abbildung 6:	Geographische Häufigkeitsverteilungen für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Fern“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.	32
Abbildung 7:	Tagesmittel der Mischungsschichthöhe für jede Messstation im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	36
Abbildung 8:	Korrelationsmatrizen für die verschiedenen Versionen der Mischungsschichthöhe an 4 ausgewählten Stationen.	37
Abbildung 9:	Korrelationsmatrix für die Mischungsschichthöhe aus dem COSMO-CLM Modell zwischen den Stationen.	37
Abbildung 10:	Verteilung der mittleren Anzahl von Messtagen entsprechend der Belastungskategorien für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum.....	42

Abbildung 11:	Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa.	49
Abbildung 12:	Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform.	52
Abbildung 13:	Tägliche PM10- Massekonzentrationen für alle Messstationen im Untersuchungszeitraum; rote Punkte markieren Grenzwert- Überschreitungstage; SMT grau hinterlegt.	56
Abbildung 14:	Verlauf der täglichen PM10- Massekonzentration an der Station SNMEL seit 1992. Die Ergebnisse der 212 Tage des PM-OST Projektes sind in rot gezeigt.	57
Abbildung 15:	Verhältnis PM2,5 / PM10 im Untersuchungszeitraum für die einzelnen Messstationen; SMT grau hinterlegt.	59
Abbildung 16:	Tägliche Konzentration von OC im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	60
Abbildung 17:	Tägliche Konzentration von EC im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	62
Abbildung 18:	Jahreszeitenmittel für EC (Sommer und Winter), Einordnung nach Anströmung (Ost/West) und Jahreszeit (Sommer/Winter) AIWE, vergleiche Kapitel 2.4.1. Für 2015, 16 und 17 wurden die EC- Konzentrationen für das thermographische Verfahren nach VDI ausgehend vom thermooptischen Verfahren (Temperaturprotokoll EUSAAR2 und Transmission) abgeschätzt. Für den Winter 2016/17 im Projektzeitraum wurden nur 5 Monate (NDJFM) gemittelt.	63
Abbildung 19:	Tägliche Konzentration von Sulfat im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	65
Abbildung 20:	Verlauf der täglichen Sulfatkonzentration in PM10 an der Station SNMEL seit 1992. Die Ergebnisse der 212 Tage des PM-OST Projektes sind in grün gezeigt.	66
Abbildung 21:	Tägliche Konzentration von Nitrat im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	67
Abbildung 22:	Tägliche Konzentration von Levoglucosan im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	69
Abbildung 23:	Tägliche Konzentration von Benzo(a)pyren im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.	71

Abbildung 24:	PM10- Massekonzentration für alle Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.	74
Abbildung 25:	Verhältnis der PM2,5 / PM10- Massekonzentration für „Alle“ Messtage, in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für die Messstationen BBPOT, BBCOT, BBHAS und MVLOE. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messtage.	76
Abbildung 26:	OC für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.....	78
Abbildung 27:	EC für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.....	80
Abbildung 28:	Sulfat für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.....	82
Abbildung 29:	Nitrat für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.....	84
Abbildung 30:	Levoglucosan für „Alle“ Sondermesstage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.	86
Abbildung 31:	BaP für „Alle“ Sondermesstage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.....	88
Abbildung 32:	Massenbilanz für alle Messtage, in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien. Massenanteile < 10% sind nicht als Zahl angegeben, die schwarzen Zahlen stehen für die mittleren Konzentrationen in $\mu\text{g m}^{-3}$. OC wurde zu OM mit dem Faktor 1,6 konvertiert.....	89

Abbildung 33:	PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa für alle 10 Messstationen.	91
Abbildung 34:	PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform für alle 10 Messstationen.	93
Abbildung 35:	Massenanteil PM10 und Inhaltsstoffe der Inkremente Verkehr, Stadt und Land für alle Messtage (Alle) und gruppiert entsprechend der Tagescharakteristik und der Belastungskategorie unter Auswertung der PM10- Masse der Messstationen BEFRA, BENAN und BBHAS im Untersuchungszeitraum. Die schwarzen Zahlen über den Boxen repräsentieren die gemittelte PM10- Massekonzentration an der Verkehrsstation BEFRA in $\mu\text{g m}^{-3}$, unter den Boxen die Anzahl der Messtage. Die weißen Zahlen in den Säulen geben den berechneten prozentualen Anteil der Inkremente an der Gesamtmasse wieder.	95
Abbildung 36:	Mittelwerte der Parameter T, ND und MSH für alle Messstationen in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und der Belastungskategorie.	99
Abbildung 37:	Mittelwerte der Parameter T, ND und MSH für die 6 ländlichen Hintergrundstationen in Abhängigkeit von der Anströmung („West“ vs. „Ost“) in den kombinierten Belastungskategorien.	100
Abbildung 38:	Mittlere Konzentrationen an PM10 für die einzelnen Stationen in den kombinierten Kategorien. Die kombinierten Kategorien sind nach Größe der PM10- Massekonzentration sortiert.	102
Abbildung 39:	Mittlere Beiträge des grenzüberschreitenden Ferneintrages von PM10 aus östlicher Richtung ins Untersuchungsgebiet (Inkrement Ost). Schwarze Zahlen über den Balken geben die mittlere Konzentration bei Ostanströmung in $\mu\text{g m}^{-3}$ an, weiße Zahlen die Anteile des Hintergrundniveaus (West) und des zusätzlich antransportierten Beitrages (Ost) unter den jeweiligen meteorologischen Bedingungen, jeweils gemittelt nach Stationstyp.	106
Abbildung 40:	Clusteranalyse für die Station BEFRA im Untersuchungszeitraum mit den Clustern:	109
Abbildung 41:	Überströmte Gebiete in Europa, Trajektorien ausgehend von BEFRA in den Clustern C1 bis C5 (vgl. auch Abbildung 40).....	110

Abbildung 42:	Überblick über das Ergebnis der separaten Clusteranalyse für jede der 10 Stationen im Untersuchungsgebiet mit jeweils 5 Clustern. Die Farben der Trajektoriencluster weichen hier teilweise im Vergleich zu Abbildung 40 ab.	111
Abbildung 43:	Mittlere Konzentrationen in den Clustern C1-C5 im Untersuchungszeitraum, gezeigt für alle Stationen für PM10- Massenkonzentration und die Hauptinhaltsstoffe. ...	112
Abbildung 44:	CWT- Plots für die Projektlaufzeit, Beispiel für BBHAS, MVLOE und UBNEU.	114
Abbildung 45:	Quellprofile der 6 Faktoren des Level 1 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).	119
Abbildung 46:	Quellprofile der 6 Faktoren des Level 2 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).	120
Abbildung 47:	Quellprofile der 6 Faktoren des Level 3 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).	121
Abbildung 48:	Quellprofile der 7 Faktoren des Level 4 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).	122
Abbildung 49:	Quellprofile der 9 Faktoren des Level 5 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).	123
Abbildung 50:	Quellprofile aller PMF-Faktoren in den Levels 1 – 5 im Vergleich.	126
Abbildung 51:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor frisches Salz im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.	127
Abbildung 52:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor gealtertes Salz im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.	127

Abbildung 53:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den sek. Quellfaktor I (AN) im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.	128
Abbildung 54:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den sek. Quellfaktor II (AS+OC) im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.	128
Abbildung 55:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor Verbrennung im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.	129
Abbildung 56:	Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor Verkehr im direkten Vergleich der 5 PMF Levels..	129
Abbildung 57:	Vergleich der gemessenen PM10- Massekonzentration mit der durch PMF zugeordneten Konzentration an allen Stationen und für alle PMF Levels (Spalten). Die rote Linie zeigt die 1:1 Gerade.	130
Abbildung 58:	Anteile der auf PMF- Level 1 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.	131
Abbildung 59:	Anteile der auf PMF Level 2 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.	133
Abbildung 60:	Anteile der auf PMF Level 4 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.	134
Abbildung 61:	Anteile der auf PMF Level 5 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der beiden Berliner Stationen.	136
Abbildung 62:	Übersicht über die relativen Beiträge verschiedener Quellkategorien zur PM10- Gesamtkonzentration für die PMF Level 1 – 5 und für die verschiedenen Messstationen.	138
Abbildung 63:	CWT Plots für Quellbeiträge PMF für die Station UBNEU. Von links oben nach rechts unten sind gezeigt: Salz (frisch), Salz (gealtert), sekundäres Ammoniumnitrat, sekundäres Ammoniumsulfat und OC, Aerosol aus Verbrennung. Die negativen Zahlen an der Ordinate für Salz (frisch) oben links entstehen dadurch, dass die PMF dem Sulfat negative Konzentrationen zuordnet.	139

Abbildung 64:	Quellbeiträge der 6 Faktoren in Abhängigkeit von den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen.....	140
Abbildung 65:	Massenanteil der Quellkategorien für die aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) in Abhängigkeit von der Anströmung, dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1. 142	
Abbildung 66:	Inkrement Ost der Quellkategorien (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) für die aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentrationen dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.....	143
Abbildung 67:	Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.....	144
Abbildung 68:	Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien, dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.	145
Abbildung 69:	Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien, dargestellt für die Stationstypen Verkehr (= BEFRA), Stadt und Land.	146

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Übersicht Messstationen und spezifische Charakteristiken.....	17
Tabelle 2:	Messdaten, die den Auswertungen in PM-OST zu Grunde gelegt wurden.	18
Tabelle 3:	Übersicht der verfügbaren PAK- und Metall- Messdaten an den SMT bzw. für den gesamten Untersuchungszeitraum.	19
Tabelle 4:	Übersicht der fehlenden Messdaten im Untersuchungszeitraum.	20
Tabelle 5:	Auswahl und Anzahl der Sondermesstage für die einzelnen Monate im Projektzeitraum September 2016 bis März 2017.	22
Tabelle 6:	Anzahl und Häufigkeit der Anströmung aus West und Ost nach AIWE im Untersuchungszeitraum.	25
Tabelle 7:	Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu Raumskala Regional und Fern im Untersuchungszeitraum.	30
Tabelle 8:	Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Warm“ und „Kalt“ im Untersuchungszeitraum.....	34
Tabelle 9:	Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Hoch“ (H) und „Niedrig“ (Ni) im Untersuchungszeitraum.....	39
Tabelle 10:	Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Trocken“ und „Nass“ im Untersuchungszeitraum.....	41
Tabelle 11:	Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung der Messtage zu den Belastungskategorien der Messstationen im Untersuchungszeitraum.	44
Tabelle 12:	Anzahl der Grenzwertüberschreitungstage in den Belastungskategorien der Messstationen im Untersuchungszeitraum.	45
Tabelle 13:	Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa.	50
Tabelle 14:	Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform.....	53
Tabelle 15:	Inkrement Ost berechnet durch Differenzbildung der mittleren PM10- Massekonzentration für die Anströmung aus West (W) und Ost (O) in Abhängigkeit von der Stationscharakteristik und den kombinierten Belastungskategorien.....	104
Tabelle 16:	Inkrement Ost berechnet durch Differenzbildung der mittleren PM10- Massekonzentration für Grenzwertüberschreitungstage mit Anströmung aus West (W) und Ost (O) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien.....	107

Abkürzungsverzeichnis

AIWE	air mass inflow West/East
AN	Ammoniumnitrat
AP	Arbeitspaket
AS	Ammoniumsulfat
BaA	Benzo(a)anthrazen
BaP	Benzo(a)pyren
BbF	Benzo(b)fluoranthen
BC	schwarzer Kohlenstoff
BghiP	Benzo(ghi)perylen
BjF	Benzo(j)fluoranthen
BkF	Benzo(k)fluoranthen
CHR	Chrysen
CO	Kohlenmonoxid
COR	Coronen
CWT	Concentration-Weighted Trajectory
DBahA	Dibenzo(a,h)anthrazen
DWD	Deutscher Wetterdienst
EDM	Environmental Dust Monitor
EC	elementarer Kohlenstoff
GS	Globalstrahlung
HYSPLIT	Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model
IndP	Indeno(1,2,3-cd)pyren
IC-PAD	Ionenchromatographie gekoppelt mit gepulster amperometrischer Detektion
IQR	interquartile range
LD	Luftdruck
MSH	Mischungsschichthöhe
N	Nord
ND	Niederschlag
NO	Stickstoffmonoxid
NO ₂	Stickstoffdioxid
NO _x	Stickoxide

O	Ost
OC	organischer Kohlenstoff
OM	organisches Material
OWTC	objektive Wetterlagenklassifizierung des DWD
O ₃	Ozon
PAK	polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe
PM	Particulate Matter
PMF	Positive Matrixfaktorisierung
PC	pyrolytischer Kohlenstoff
PHE	Phenanthren
PYR	Pyren
RF	relative Feuchte
S	Süd
SHBC	subjektive Wetterlagenklassifizierung nach Hess-Brezowsky
SMT	Sondermesstage
SO ₂	Schwefeldioxid
T	Temperatur
TEOM-FDMS	Tapered Element Oscillating Microbalance, Filter Dynamics Measurement-System
UBA	Umweltbundesamt
UTC	Coordinated Universal Time
W	West
WG	Windgeschwindigkeit
WR	Windrichtung

1 Aufgabenstellung und Ziele

Im Projekt PM-OST wurde eine detaillierte Ursachenanalyse von PM₁₀- Feinstaub-Immissionen für ausgewählte Messstationen der Länder Brandenburg, Berlin, Sachsen, Mecklenburg-Vorpommern und des Umweltbundesamtes (UBA) durchgeführt. Der Anteil verschiedener Quellen an der Feinstaubbelastung wurde hierfür anhand der chemischen Inhaltsstoffe und durch Rezeptormodellierung herausgearbeitet.

Das Ziel war es, auf Basis einer vereinheitlichten und in Bezug auf die im Routinebetrieb der Messnetze erfassten Inhaltsstoffe erweiterten Probenahme wesentliche Informationen zur Beurteilung der Luftqualität, insbesondere für die Erklärung des Zustandekommens von PM₁₀- Grenzwertüberschreitungen im Untersuchungsgebiet zu liefern. Das Hauptaugenmerk lag dabei auf der Bestimmung des Beitrages der grenzüberschreitenden Luftverschmutzung an Grenzwertüberschreitungen im Osten Deutschlands.

Als Grundlage der Untersuchungen dienten die von den jeweiligen Landesämtern und dem Umweltbundesamt zur Verfügung gestellten Datensätze für den Zeitraum September 2016 bis März 2017 an insgesamt 9 Messstationen in den o. g. Bundesländern. Diese umfassten Tagesmittelwerte der Konzentrationen von PM₁₀- Gesamtmasse und den ausgewählten Inhaltsstoffen elementarer Kohlenstoff (EC), organischer Kohlenstoff (OC), wasserlösliche anorganische Ionen, sowie für 80 Sondermessstage polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK), Levoglucosan und z.T. Metalle. Die Anzahl der Stationen wurde zusätzlich um die vom TROPOS betriebene Messstation in Melpitz, Sachsen erweitert.

Der vorliegende Bericht stellt die durchgeführten Auswertungen und die erhaltenen Ergebnisse im Detail dar. Nach einer Beschreibung des Datensatzes werden meteorologische Belastungskategorien definiert, die unterschiedlichen Einfluss auf beobachtete Immissionswerte haben können. Im Ergebnisteil wird der Datensatz für PM₁₀-Massekonzentration und ausgewählte Inhaltsstoffe zunächst phänomenologisch bzgl. der zeitlichen Variabilität und des Einflusses der Belastungskategorien dargestellt und diskutiert. Anschließend werden die Ergebnisse umfangreicher Ursachenanalysen berichtet, deren zentrale Elemente (i) der Lenschow-Ansatz zur Zuordnung der an einem stark belasteten Standort gemessenen Konzentrationen zu verschiedenen Raumskalen, (ii) die Berechnung eines „Inkrement Ost“ in kombinierten Belastungskategorien als Maß für den grenzüberschreitenden Ferneintrag, sowie (iii) statistische Rezeptormodellierung zur quantitativen Aufklärung der Quellkategorien waren. Die zentralen Ergebnisse werden am Ende zusammengefasst.

2 Beschreibung des Datensatzes

2.1 Beschreibung und Klassifizierung der Messstationen

Im Projekt wurde für den Messzeitraum September 2016 bis März 2017 ein einheitlicher und über die im Routinebetrieb der Luftgütemessnetze der Länder erhobenen Daten hinausgehender Datensatz für ein bundesländerübergreifendes Teilgebiet der Bundesrepublik Deutschland erhoben und nach einheitlichen Kriterien ausgewertet. Das Untersuchungsgebiet umfasste die Länder Berlin, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen mit 10 ausgewählten Messstationen, die in Abbildung 1 gezeigt sind. Jeweils 2 Stationen repräsentierten dabei stark von Verkehr beeinflusste Orte, sowie den städtischen Hintergrund. Sechs weitere Stationen lagen im ländlichen Hintergrund.



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

In Tabelle 1 bis Tabelle 4 sind die für dieses Projekt ausgewählten Messstationen, ihre Klassifizierung, die vorhandenen Messgeräte und die im Projekt final verfügbaren bzw. aus verschiedenen Gründen fehlenden Daten zusammengestellt.

Tabelle 1: Übersicht Messstationen und spezifische Charakteristiken.

Bundesland	Berlin		Brandenburg			UBA / Brandenburg	Mecklenburg- Vorpommern	Sachsen	TROPOS / Sachsen	
Station	Frankfurter Allee	Nansenstr.	Potsdam	Hasenholz	Cottbus	Neuglobsow	Löcknitz	Brockau	Niesky	Melpitz
Abkürzung	BEFRA	BENAN	BBPOT	BBHAS	BBCOT	UBNEU	MVLOE	SNBRO	SNNIE	SNMEL
Stationscode	DEBE065	DEBE034	DEBB054	DEBB053	DEBB064	DEUB030	DEMV012	DESN093	DESN079	EMEP DE44
Start der Messungen	9/1/1993	3/1/1986	3/7/2001	11/21/2000	12/10/2002	1/1/1999	1/15/1994	1/1/2011	5/5/2003	11/1/1992
Geogr. Breite	52,514072	52,489451	52,393932	52,563835	51,746344	53,142367	53,520456	50,608136	51,285356	51,528177
Geogr. Länge	13,469931	13,430844	13,037474	14,015252	14,334550	13,03233	14,257407	12,211112	14,749731	12,938227
Höhe (m)	40	35	31	88	75	65	17	430	148	86
Filtermaterial	Qf ¹	Qf ¹	Qf/Gf/TF ²	Qf/Gf/TF ²	Qf/Gf/TF ²	Qf/Gf ⁵	Qf ⁴	Qf/Gf ^{3,9}	Qf/Gf ^{3,9}	Qf ⁴
Probenahmegerät	Kfg ⁶	Kfg ⁶	Kfg ⁷	Kfg ⁷	Kfg ⁷	HVS ⁸	Kfg ⁶	HVS ⁸	HVS ⁸	HVS ⁸
Stationscharakter	Verkehr	St.Hint ¹⁰	Verkehr	L.Hint ¹¹	St.Hint ¹⁰	L.Hint ¹¹	L.Hint ¹¹	L.Hint ¹¹	L.Hint ¹¹	L.Hint ¹¹

¹ vom Typ MN QF-10 (Fa. Macherey & Nagel)

² alle in Brandenburg durchgeführten Beprobungen erfolgten auf Glasfaserfiltern (MN QF-10, Macherey & Nagel), wenn nur PM10 ermittelt wurde; auf Quarzfaserfiltern (Whatman QF20, Schleicher & Schuell) für die Analyse von Inhaltsstoffen/Ruß/PAK sowie auf Teflonfiltern (R2PJ2.0, Pall) für die Bestimmung der Ionen

³ Ø150 mm; Albet LabScience / Hahnemühle in Dassel; an Tagen ohne Routine-Inhaltsstoffbestimmung: Glasfaserfilter MN85/90 Ø150 mm

⁴ Typ MK360 (Fa. Munktell/Ahlstrom) 47mm

⁵ Glasfaserfilter für Masse (MN85/90, Ø150 mm), Quarzfaser für Inhaltsstoffe

⁶ Kleinfiltergerät, Fa. S. Leckel FILTERWECHSLER SEQ47/50 (DIN EN 12341:2014)

⁷ Kleinfiltergerät, Fa. Derenda oder Leckel (DIN EN 12341:2014)

⁸ Digital High-Volume-Sampler (DH80)

⁹ Alle in Sachsen durchgeführten Beprobungen im Routine-Betrieb erfolgten auf Glasfaserfiltern, wenn nur PM10 ermittelt wurde, auf Quarzfaserfiltern im 2-, 3- oder 6-Tagesrhythmus, wenn PM10- Inhaltsstoffe zu bestimmen waren; die zusätzlich durchgeführten Beprobungen im vorliegenden Projekt erfolgten auf Quarzfaserfiltern.

¹⁰ Städtischer Hintergrund

¹¹ Ländlicher Hintergrund

Qf = Quarzfaserfilter, Gf = Glasfaserfilter, TF = Teflonfilter

Tabelle 2: Messdaten, die den Auswertungen in PM-OST zu Grunde gelegt wurden.

Messtation	BEFRA	BENAN	BBPOT	BBHAS	BBCOT	UBNEU	MVLOE	SNBRO	SNNIE	SNMEL
<u>Massenkonzentrationen</u>										
PM10, 24 h	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
PM10, 60 min	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
PM2,5, 24 h	X	X	--	X	X	--	--	--	--	X
PM2,5, 60 min	--	--	X	X	X	--	X	--	--	--
<u>PM10- Inhaltsstoffe (tägliche 24 h- Werte)</u>										
Ionen	X	X	--	X	X	X	X	X	X	X
OC / EC	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
PAK* (SMT)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Levoglucosan (SMT)	X	X	--	X	--	X	X	--	X	X
<u>Meteorologie (60 min)</u>										
(WG, WR, RF, T, GS)	--	--	--	X	X	X	X	X	X	X
<u>Weitere verfügbare Daten</u>										
Ozon (O ₃)	--	X	--	X	X	--	X	--	X	X
Stickoxide (NO _x)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Schwefeldioxid (SO ₂)	X	--	--	--	X	X	X	--	--	X
Kohlenstoffmonoxid (CO)	X	--	X	--	--	--	--	--	--	--
Black Carbon (BC)	X	X	--	--	--	--	--	--	--	--

„--“: nicht vorgesehen

SMT: Sondermesstage

*: Einzelspeziesübersicht in Tabelle 3

Tabelle 3: Übersicht der verfügbaren PAK- und Metall- Messdaten an den SMT bzw. für den gesamten Untersuchungszeitraum.

Messtation	BEFRA	BENAN	BBPOT	BBHAS	BBCOT	UBNEU	MVLOE	SNBRO	SNNIE	SNMEL
<u>PAK</u>										
Benzo(a)anthrazen	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Benzo(a)pyren	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Benzo(b)fluoranthen	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Benzo(j)fluoranthen	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Benzo(k)fluoranthen	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Dibenzo(a,h)anthrazen	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Indeno(1,2,3-cd)pyren	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X
Coronen	--	--	--	--	--	--	X	--	--	--
Chrysen	--	--	--	--	--	--	X	--	--	--
Pyren	--	--	--	--	--	--	X	--	--	--
Benzo(ghi)perylen	--	--	--	--	--	--	X	--	--	--
Phenanthren	--	--	--	--	--	--	X	--	--	--
<u>Metalle</u>										
Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co,	X	X	--	--	--	--	--	--	--	--
Ni, Cu, Zn, As, Se, Sr,	X	X	--	--	--	--	--	--	--	--
Sn, Sb, Ba, Pb	X	X	--	--	--	--	--	--	--	--

„--“: nicht vorgesehen

2.2 Auswahlkriterien Sondermessungen (Meteorologie)

An 80 Tagen im Messzeitraum September 2016 – März 2017 fanden Sondermessungen von PAK und Levoglucosan (an ausgewählten Stationen) von den PM10- Tagesproben statt.

Diese Tage wurden nach Ablauf der ersten zwei Projektmonate (September und Oktober 2016) und dann jeweils zum Monatsbeginn für den vergangenen Monat ausgewählt. Dieses Vorgehen war notwendig, um den zeitnahen Fortgang der Analysen, speziell für die PAK und Levoglucosan im Projekt zu gewährleisten.

Für die Auswahl der Sondermesstage (SMT) war es wichtig, einen ausgewogenen Anteil von Tagen mit maritimer West- oder kontinentaler Ostanströmung zu finden. Andererseits galt es aber auch Tage mit stagnierender Luftströmung zu berücksichtigen. Dabei war es nicht notwendig, die langjährige statistische Verteilung zwischen Tagen mit östlicher und westlicher Anströmung abzubilden. Vielmehr sollten gerade Wintertage mit östlicher Anströmung bevorzugt werden, da diese seltener auftreten, aber hohe Konzentrationen für PM10 mit den typischen Markerverbindungen für anthropogene Emissionen erwarten lassen. Tage mit einer kompletten relativ gleichmäßigen Überregnung des Untersuchungsgebietes wurden ebenso wie Tage mit Frontdurchgängen nicht berücksichtigt. Der 31.12. 2016 (Silvester) und der 01.01.2017 (Neujahr) wurden aufgrund des Einflusses des Silvesterfeuerwerks ebenfalls ausgeschlossen.

Die Auswahl der Tage mit Sondermessungen erfolgte orientierend an der subjektiven Zuordnung für West- oder Ostanströmung für die TROPOS- Forschungsstation Melpitz (Schlimper 2010; Spindler et al. 2010; Spindler et al. 2013) und die übrigen Messstationen, aber unbeeinflusst von den objektiven Wetterlagenklassifizierungen des DWD (Bissolli und Dittmann 2001) oder den subjektiven Wetterlagenklassifizierungen nach Hess-Brezowsky (Gerstengarbe und Werner 1993; Werner und Gerstengarbe 2010). Für einen Überblick der Luftmassenanströmung standen stündlich 96- Stunden-Rückwärtstrajektorien aus HYSPLIT, sowie die der Freien Universität Berlin (<http://page.met.fu-berlin.de/trumf/trajektorien/>) zur Verfügung. Zusätzlich wurden die täglichen Karten zur PM10- Belastung des Umweltbundesamtes (<http://www.umweltbundesamt.de/daten/luftbelastung/aktuelle-luftdatenin>) in Verbindung mit sofort verfügbaren meteorologischen Daten (z. B. <http://www1.wetter3.de>), sowie weitere an der Forschungsstation Melpitz erhobene Daten (Meteorologie, Spurengase, PM10- Masse und stündliche Inhaltsstoffe) genutzt. Tage mit einer Überschreitung des Grenzwertes von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ PM10 an einer der 10 Stationen im hier betrachteten Untersuchungsgebiet wurden besonders auf eine Einbeziehung als Sondermesstage geprüft.

In Tabelle 5 sind die ausgewählten Sondermesstage für den Projektzeitraum 01.09.2016 – 31.03.2017 zusammengefasst.

Tabelle 5: Auswahl und Anzahl der Sondermesstage für die einzelnen Monate im Projektzeitraum September 2016 bis März 2017.

2016				2017		
Sept.	Okt.	Nov.	Dez.	Jan.	Febr.	März
02.09.	02.10.	09.11.	02.12.	06.01.	01.02.	10.03.
10.09.	13.10.	10.11.	03.12.	20.01.	02.02.	12.03.
12.09.	16.10.	11.11.	04.12.	21.01.	03.02.	13.03.
13.09.	23.10.	12.11.	05.12.	22.01.	04.02.	14.03.
14.09.	24.10.	13.11.	06.12.	23.01.	05.02.	15.03.
16.09.	25.10.	21.11.	07.12.	24.01.	06.02.	16.03.
23.09.	26.10.	22.11.	08.12.	25.01.	07.02.	27.03.
24.09.	27.10.	23.11.	09.12.	26.01.	08.02.	28.03.
29.09.	28.10.		17.12.	27.01.	09.02.	29.03.
			20.12.	28.01.	10.02.	30.03.
			21.12.	30.01.	11.02.	
				31.01.	12.02.	
					13.02.	
					14.02.	
					15.02.	
					16.02.	
					17.02.	
					18.02.	
					26.02.	
					27.02.	
					28.02.	

9 Tage 9 Tage 8 Tage 11 Tage 12 Tage 21 Tage 10 Tage

2.3 Probenahme und Analyse von Levoglucosan

Levoglucosan ist die wichtigste Markerverbindung für primäre Emissionen aus Biomasseverbrennung, vor allem aus der auch in Städten zunehmend zum Problem werdenden Holzfeuerung (Birmili et al. 2008). Zur Identifizierung und Quantifizierung dieser Quelle wurde Levoglucosan für die Sondermesstage an folgenden ausgewählten Stationen analysiert:

Berlin	Frankfurter Allee / BEFRA
Berlin	Nansenstraße / BENAN
Brandenburg	Hasenholz / BBHAS
UBA / Brandenburg	Neuglobsow / UBNEU
Mecklenburg-Vorpommern	Löcknitz / MVLOE
Sachsen	Niesky / SNNIE
Sachsen	Melpitz / SNMEL

Die Stationen BEFRA, BENAN und BBHAS wurden aufgrund ihrer Eignung für den Lenschow- Ansatz ausgewählt. Darüber hinaus eigneten sich vergleichend, aufgrund ihrer Grenznähe die Stationen MVLOE und SNNIE, sowie durch ihre Lage im Landesinneren die Stationen SNMEL und UBNEU.

Die Bestimmung von Levoglucosan erfolgte am TROPOS unter Verwendung einer Ionenchromatographie gekoppelt mit gepulster amperometrischer Detektion (IC-PAD) (Inuma et al. 2009).

Die Stationen in Berlin und Sachsen lieferten in PM-OST Filterstücke, die am TROPOS wässrig extrahiert wurden. Für die Routinebestimmung von Ionen und Levoglucosan am TROPOS wurden mit Hilfe von Stanzwerkzeugen mit definiertem Durchmesser (20 mm) hergestellte Filterspots in Wasser extrahiert.

Die Stationen in Brandenburg und Mecklenburg-Vorpommern sendeten den durch einen 0,45 µm Spritzenfilter filtrierten wässrigen Extrakt direkt zur Analyse ans TROPOS.

2.4 Zuordnung von Belastungskategorien

Zur Beurteilung des meteorologischen Einflusses auf die Luftqualität im Untersuchungsgebiet wurden die Proben der verschiedenen Messstationen folgenden meteorologischen Belastungskategorien zugeordnet:

- (i) Anströmungsrichtung (West / Ost),
- (ii) Raumskala der Anströmung (Regional / Ferntransport),
- (iii) Temperatur (Warm / Kalt),
- (iv) Grenzschichthöhe (Hoch / Niedrig) und
- (v) Witterung (Trocken / Nass).

Die Ausprägungen der einzelnen Belastungskategorien und die korrespondierenden Häufigkeiten ihres Auftretens im Untersuchungszeitraum sind nachfolgend definiert und zusammengefasst. Die Auswertung der Ergebnisse entsprechend dieser Belastungskategorien bzw. hinsichtlich ihrer Wechselwirkung untereinander dient im weiteren Verlauf der Identifizierung von Quellen und Quantifizierung von Quellbeiträgen.

2.4.1 Anströmung nach AIWE (Air Mass Inflow West/East)

Zur Beurteilung der Anströmung wurden stündliche mit dem HYSPLIT Trajektorienmodell berechnete 96-h Rückwärtstrajektorien (NOAA Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectories, (Draxler und Rolph 2003; Stein et al. 2015)) genutzt, um nach Spindler et al. (2012) eine subjektive Zuordnung der großräumigen Hauptanströmungsrichtung zu erstellen. Die Rückwärtstrajektorien ermöglichen die Beurteilung, ob die Anströmung über den Tag aus einem breiten Sektor West (210° bis 320° , maritime Anströmung) oder Ost (35° bis 140° , kontinentale Anströmung) erfolgt. Wenn die Anströmung aus den beiden verbleibenden Sektoren (Nord oder Süd), und aus stark wechselnder Richtung erfolgt oder die Trajektorien sich vor Ort drehen, wurde dieser Tag der Kategorie „X“ zugeordnet.

Die Charakterisierung nach AIWE wird seit vielen Jahren am TROPOS für die Forschungsstation Melpitz genutzt und wurde auch in diesem Vorhaben angewandt. Da die AIWE- Klassifizierung zwischen den Stationen des Untersuchungsgebietes variiert, wurde sie für alle Stationen einzeln vorgenommen. Im Resultat ergab sich für die 212 Messtage die in Tabelle 6 zusammengestellte Anzahl und Häufigkeit der jeweiligen Kategorie für jede Messstation einzeln nach Monaten sortiert.

An den 10 Stationen wurden zwischen 83 und 93 Tage (40 bis 44%) einer Westanströmung und zwischen 36 und 50 Tagen (19 und 24%) einer Ostanströmung zugeordnet. Nicht zugeordnet wurden damit zwischen 33 und 40% der Tage. Im Gesamtergebnis wurde ermittelt, dass das Untersuchungsgebiet an 66 Tagen einheitlich aus Richtung West und an 23 Tagen aus Richtung Ost angeströmt wurde, das sind 42% der Gesamtzeit. Damit ergab sich eine Anzahl von 89 Tagen mit einer einheitlichen Zuordnung aller Messstationen für West- und Ostanströmung im Untersuchungsgebiet.

In den nachfolgenden Abbildungen wird die Häufigkeit des Auftretens der 96- h- Rückwärtstrajektorien aus Tabelle 6 für die Kategorien „Alle“ (Abbildung 2), „West“ (Abbildung 3) und „Ost“ (Abbildung 4) an der jeweiligen Messstation für den gesamten Untersuchungszeitraum dargestellt.

Die Hauptanströmungsrichtungen West und Ost sind hier jeweils sehr gut erkennbar.

Tabelle 6: Anzahl und Häufigkeit der Anströmung aus West und Ost nach AIWE im Untersuchungszeitraum.

	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost	West / Ost
Sept.	8 / 14	8 / 13	8 / 14	7 / 15	8 / 13	8 / 14	8 / 13	7 / 7	7 / 13	8 / 12
Okt.	7 / 10	8 / 10	8 / 10	9 / 8	7 / 10	7 / 13	7 / 12	11 / 6	11 / 7	11 / 9
Nov.	10 / 2	10 / 2	10 / 2	10 / 2	11 / 2	12 / 2	12 / 2	11 / 3	12 / 3	13 / 5
Dez.	22 / 1	21 / 1	22 / 1	18 / 2	22 / 1	22 / 1	23 / 1	20 / 2	16 / 3	19 / 3
Jan.	10 / 6	9 / 6	11 / 6	9 / 6	10 / 6	13 / 4	10 / 3	9 / 8	7 / 9	7 / 8
Febr.	12 / 10	13 / 10	12 / 10	12 / 9	12 / 10	12 / 10	12 / 10	15 / 9	15 / 9	16 / 9
März	19 / 0	19 / 0	19 / 0	18 / 2	18 / 0	19 / 2	19 / 1	18 / 1	17 / 4	19 / 4
Anzahl West	88	88	90	83	88	93	91	91	85	93
Anzahl Ost	43	42	43	44	42	46	42	36	48	50
Häufigkeit West / %	42	42	42	39	42	44	43	43	40	44
Häufigkeit Ost / %	20	20	20	21	20	22	20	17	23	24

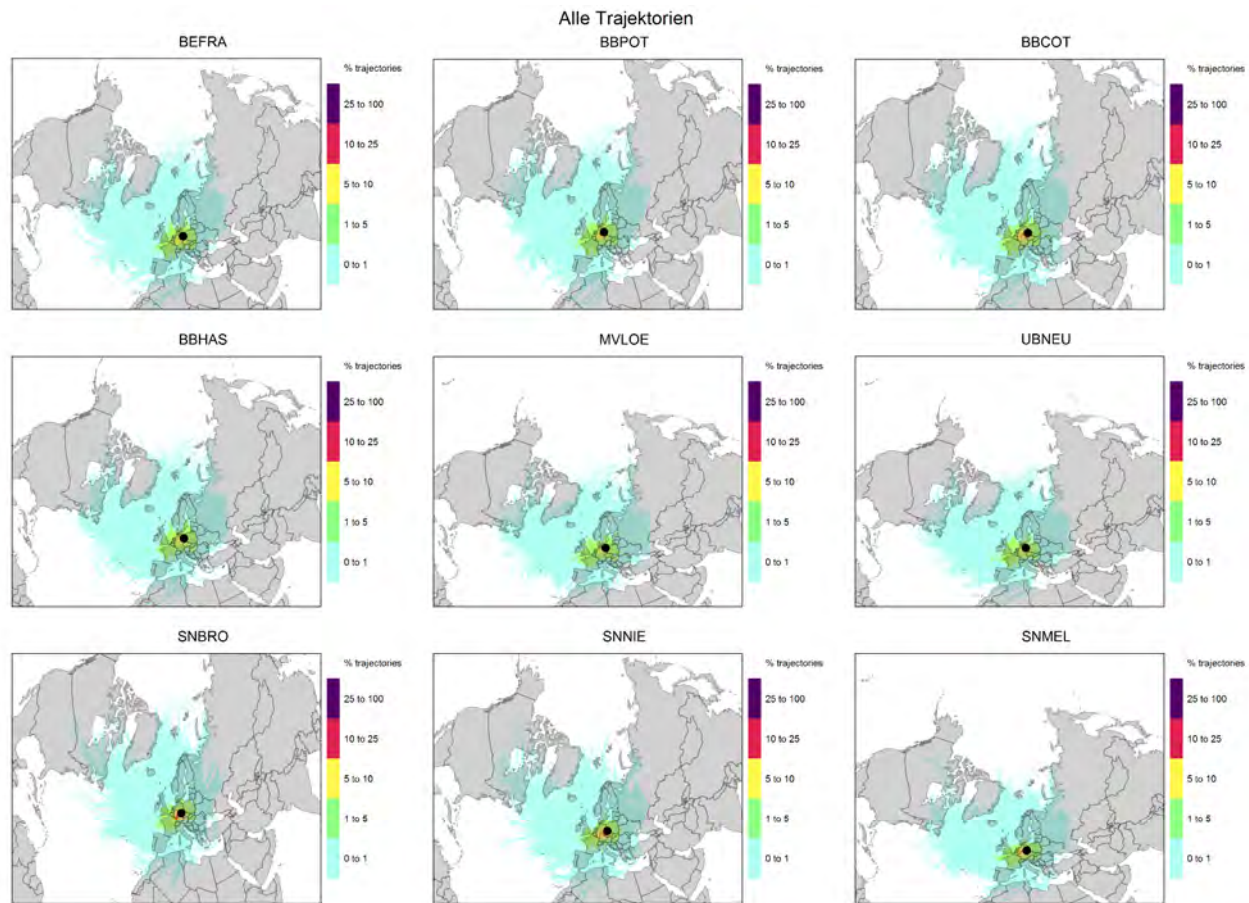


Abbildung 2: Geographische Häufigkeitsverteilung für alle 96h- Rückwärtstrajektorien im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.

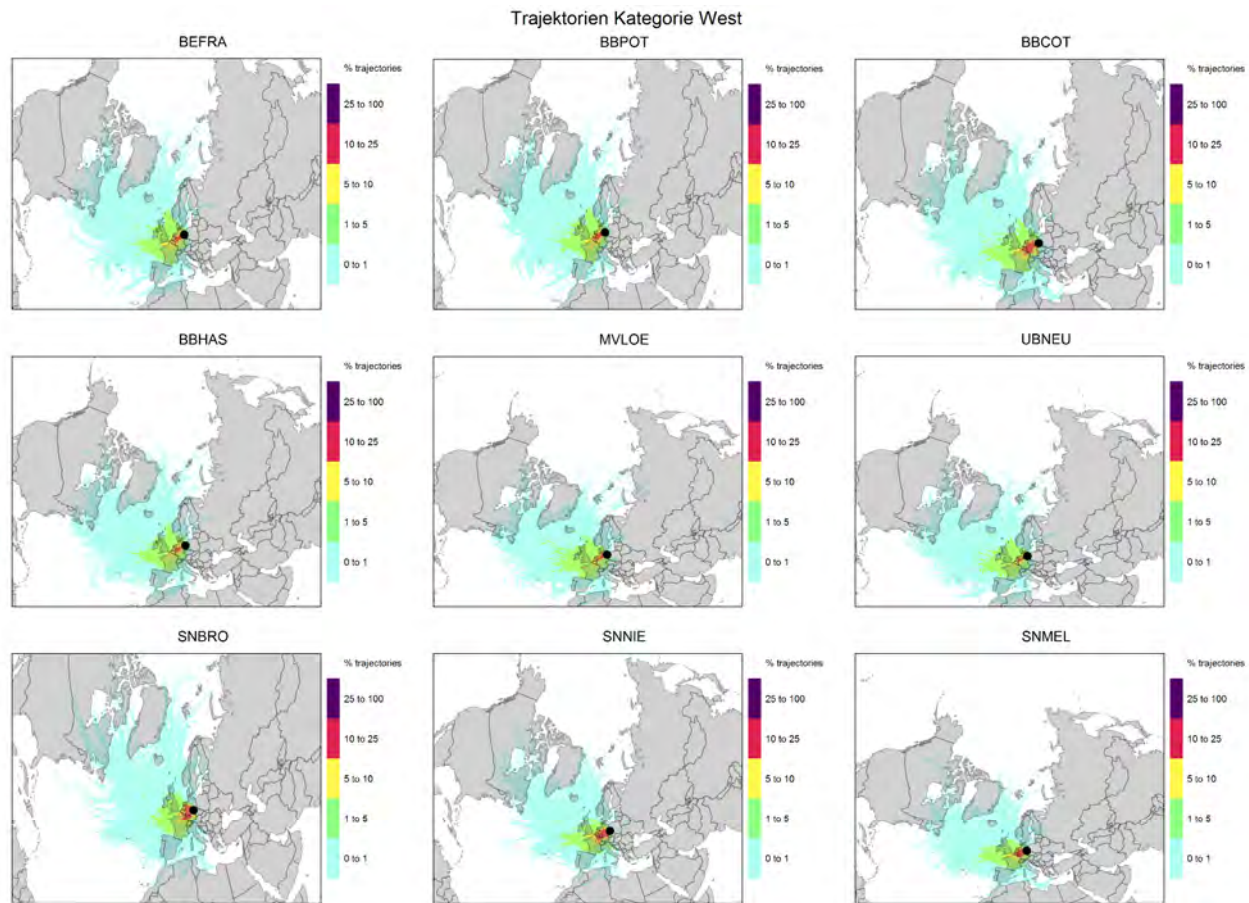


Abbildung 3: Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „West“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.

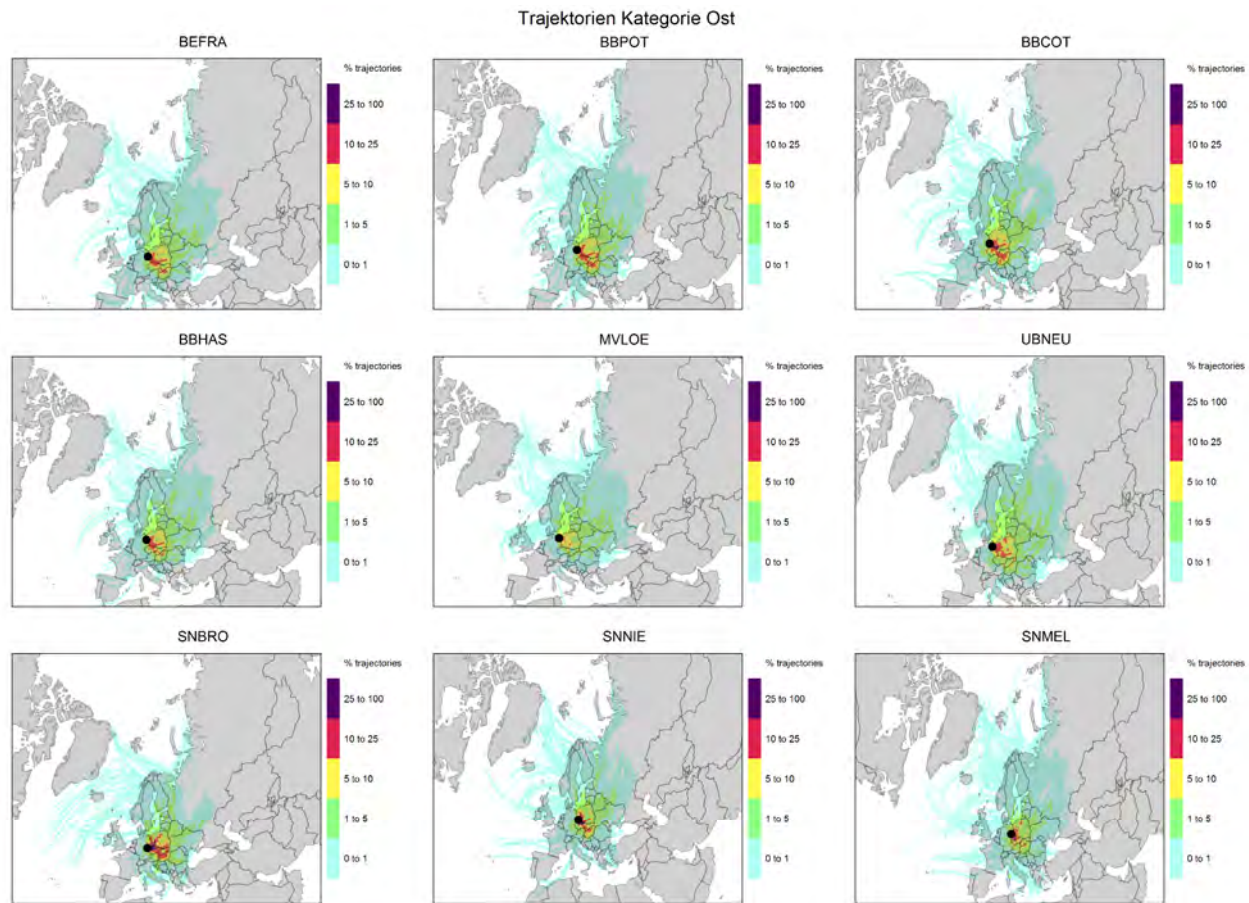


Abbildung 4: Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Ost“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.

2.4.2 Raumskala separiert nach „Regional“ und „Fern“

Für den vorliegenden Datensatz wurde zusätzlich zur Einordnung nach AIWE eine weitere subjektive Tageszuordnung bezüglich der Raumskala der Rückwärtstrajektorien durchgeführt. Durch Sichtung der stündlichen 96- Stunden-Rückwärtstrajektorien wurden Tage mit eher stagnierenden Luftmassen oder einer eher zirkulierenden Anströmung (stark gekrümmte, kurze Trajektorien mit Streuung im Raum) von denen mit typischen Ferntransportmerkmalen (lange Trajektorien von denen mehrere dicht beieinander liegen) separiert. Bei dieser subjektiven Zuordnung blieb die Anströmungsrichtung unberücksichtigt. Damit ergaben sich 2 weitere Belastungskategorien: R = Regional, F = Fern, sowie Tage, die sich aufgrund eines gemischten Anströmungsverhaltens nicht eindeutig einordnen ließen („X“). Im Resultat ergab sich für die 212 Messtage die in Tabelle 7 zusammengestellte Anzahl und Häufigkeit der jeweiligen Kategorie für jede Messstation einzeln nach Monaten sortiert.

An den 10 Messstationen wurden zwischen 116 und 137 Tage (55 bis 65%) dem Ferntransport und zwischen 23 und 44 Tage (11 bis 21%) als eher regional angeströmt zugeordnet. Je nach Station konnten 24 bis 28% der Tage nicht eindeutig dem Ferntransport bzw. der regionalen Raumskala zugeordnet werden.

In den nachfolgenden Abbildungen wird die Häufigkeit des Auftretens der 96- h- Rückwärtstrajektorien aus Tabelle 7 für die Kategorien „Regional“ (Abbildung 5) und „Fern“ (Abbildung 6) an der jeweiligen Messstation für den gesamten Untersuchungszeitraum dargestellt. Die Kategorie „Alle“ wurde bereits in Kapitel 2.4.1, Abbildung 2 gezeigt.

Es ist ersichtlich, dass für die Kategorie „Regional“ die Aufenthaltshäufigkeit der Trajektorien über Deutschland und den direkten östlichen Nachbarländern sehr viel höher war als in der Kategorie „Fern“. Hier dominierten weit zurückgehende Trajektorien mit entsprechend kürzeren Aufenthaltszeiten über Deutschland und den Nachbarländern.

Tabelle 7: Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu Raumskala Regional und Fern im Untersuchungszeitraum.

	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern	Regional / Fern
Sept.	10 / 16	11 / 16	10 / 16	9 / 17	8 / 16	7 / 17	8 / 16	12 / 13	10 / 14	11 / 14
Okt.	6 / 21	6 / 21	6 / 21	6 / 21	6 / 21	4 / 20	4 / 21	5 / 21	4 / 21	5 / 21
Nov.	6 / 22	6 / 22	5 / 22	6 / 21	6 / 22	4 / 20	5 / 21	7 / 18	2 / 20	3 / 22
Dez.	3 / 17	3 / 16	2 / 16	6 / 14	2 / 17	2 / 22	2 / 21	8 / 14	10 / 13	6 / 15
Jan.	1 / 15	2 / 15	2 / 14	2 / 15	2 / 15	3 / 17	2 / 17	6 / 11	5 / 11	3 / 14
Febr.	0 / 23	0 / 23	0 / 23	2 / 22	1 / 22	2 / 23	1 / 24	1 / 21	2 / 22	1 / 22
März	1 / 19	1 / 19	1 / 19	1 / 19	1 / 19	2 / 18	1 / 17	5 / 18	2 / 16	3 / 18
Anzahl Regional	27	29	26	32	26	24	23	44	35	32
Anzahl Fern	133	132	131	129	132	137	137	116	117	126
Häufigkeit Regional / %	13	14	12	15	12	11	11	21	17	15
Häufigkeit Fern / %	63	62	62	61	62	65	65	55	55	59

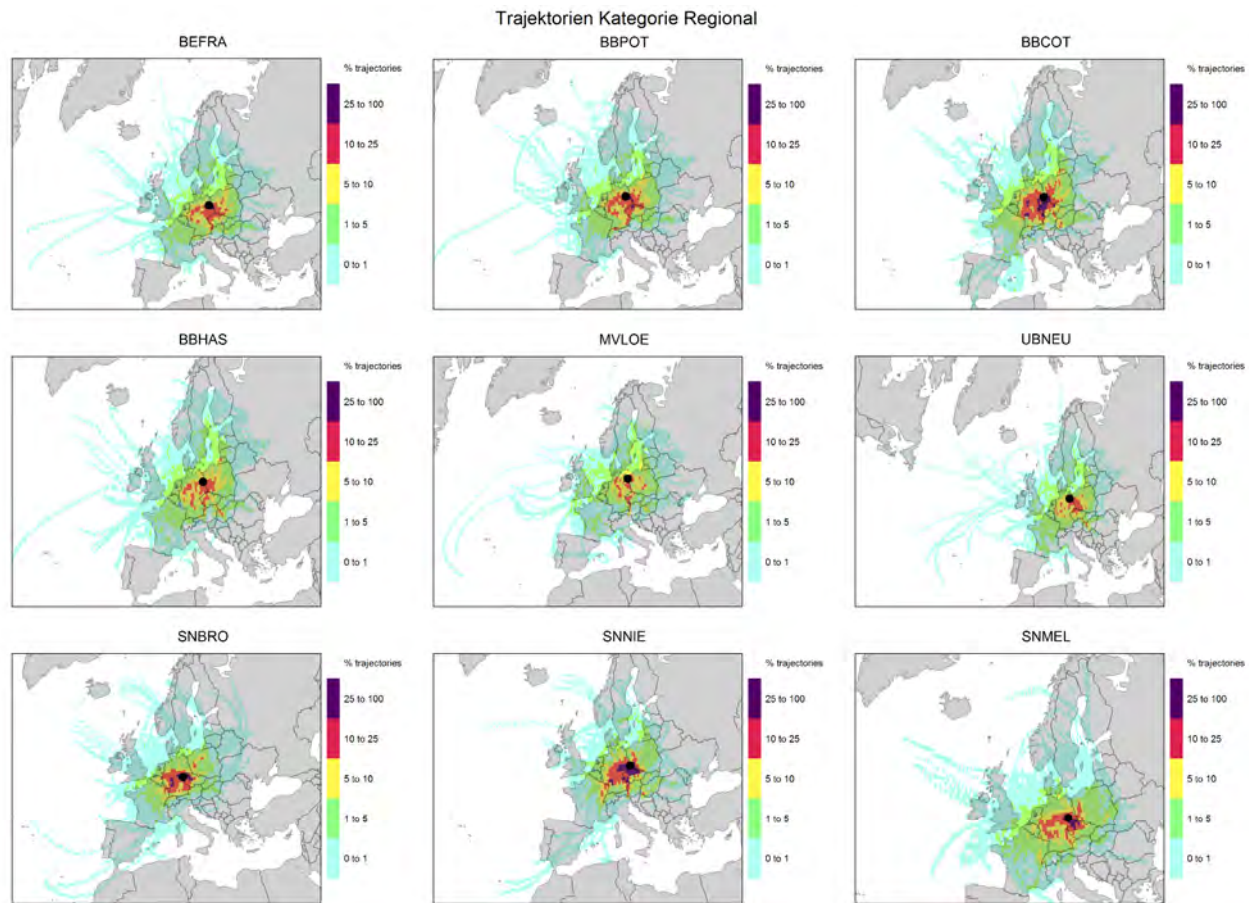


Abbildung 5: Geographische Häufigkeitsverteilung für 96h-Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Regional“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.

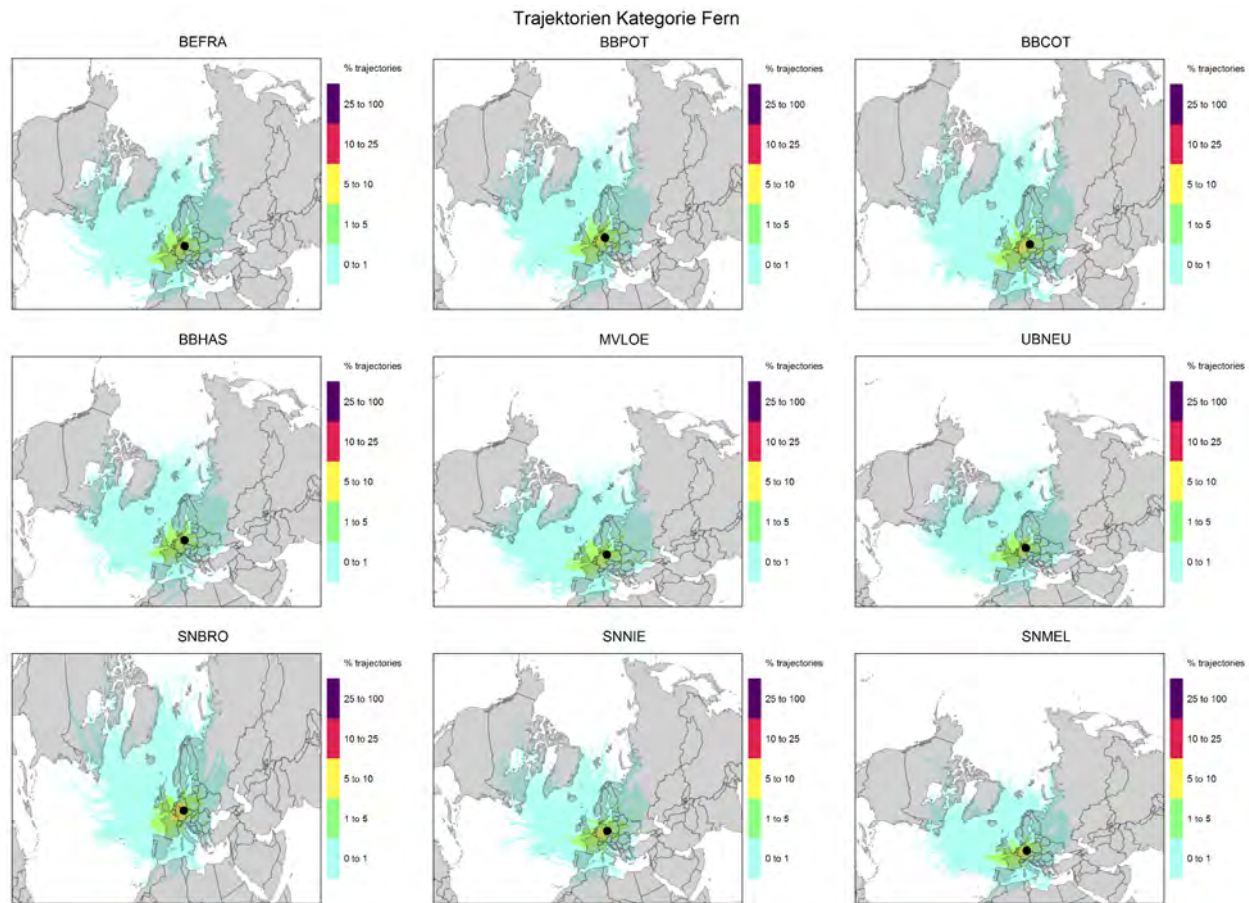


Abbildung 6: Geographische Häufigkeitsverteilungen für 96h- Rückwärtstrajektorien der Kategorie „Fern“ im Untersuchungszeitraum. Auf die Darstellung der Messstation BENAN wurde aufgrund der lokalen Nähe zur Messstation BEFRA verzichtet.

2.4.3 Unterscheidung nach Grenztemperatur in „Warm“ und „Kalt“

Als weitere Kategorie wurde eine Grenztemperatur zur Unterscheidung der Messtage in „Warm“ und „Kalt“ eingeführt. Für alle Monate wurde als Grenztemperatur $5,54^{\circ}\text{C}$ festgelegt, die dem Median der Tagesmitteltemperaturen über alle Stationen im gesamten Projektzeitraum entspricht.

Die Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung an Tagen zu den Kategorien „Warm“ und „Kalt“ im Untersuchungszeitraum sind in Tabelle 8 für die einzelnen Stationen zusammengestellt.

Die Verwendung des Medians hat zur Folge, dass der Zeitraum etwa zu gleichen Teilen mit „warmen“ und „kalten“ Tagen besetzt ist. Nach Monaten getrennt ergibt sich, dass die Monate September, Oktober und März vorwiegend die „warmen“ Tage, dagegen die Monate Dezember, Januar und Februar die „kalten“ Tage stellen. Der Monat November 2016 ist ein „Übergangsmonat“ geprägt durch eine relativ gleichmäßige Verteilung der „warmen“ und „kalten“ Tage.

Eine ausgeprägte geographische Präferenz der Rückwärtstrajektorien der warmen und kalten Tage zeigte sich nicht.

Tabelle 8: Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Warm“ und „Kalt“ im Untersuchungszeitraum.

	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt	Warm / Kalt
Sept.	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0	30 / 0
Okt.	31 / 0	31 / 0	31 / 0	31 / 0	31 / 0	30 / 1	31 / 0	27 / 4	31 / 0	30 / 1
Nov.	12 / 18	12 / 18	12 / 18	12 / 18	10 / 20	10 / 20	7 / 23	8 / 22	14 / 16	11 / 19
Dez.	6 / 25	6 / 25	6 / 25	6 / 25	7 / 24	8 / 23	9 / 22	1 / 30	6 / 25	7 / 24
Jan.	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31	0 / 31
Febr.	9 / 19	9 / 19	9 / 19	9 / 19	7 / 21	7 / 21	7 / 21	5 / 23	9 / 19	7 / 21
März	26 / 5	26 / 5	26 / 5	26 / 5	20 / 11	21 / 10	16 / 15	19 / 12	26 / 5	26 / 5
Anzahl Warm	114	114	114	114	105	106	100	90	116	111
Anzahl Kalt	98	98	98	98	107	106	112	122	96	101
Häufigkeit Warm / %	54	54	54	54	50	50	47	42	55	52
Häufigkeit Kalt / %	46	46	46	46	50	50	53	58	45	48

2.4.4 Auswirkungen der Grenzschichthöhe

Die Höhe der Grenzschicht bestimmt das Luftvolumen, in dem sich Emissionen durchmischen. Sie variiert mit der Temperatur und ist i.d.R. im Winter, und hier besonders bei Inversionswetterlagen, niedriger als im Sommer. Dies kann zu einer geringeren Dispersion und Durchmischung der Emissionen und damit höheren Immissionskonzentrationen führen, weshalb sie als weiterer Parameter in den Auswertungen berücksichtigt wurde. Da aus Messdaten (z. B. Temperatur- oder Rückstreuprofilen) abgeleitete Mischungsschichthöhen generell nicht leicht zugänglich und für die Stationen des Projektes nicht vorhanden waren, wurde hier auf Modelldaten zurückgegriffen, die aus vier verschiedenen Quellen stammten:

- 1) COSMO-DE, Modell des Deutschen Wetterdienstes (DWD), 2,8 km Auflösung, Grenzschichthöhe aus Modelloutput ausgelesen, 3- stündliche Auflösung
- 2) COSMO-CLM, Klimamodell, basierend auf ECMWF ERA-Interim Antriebsdaten, Grenzschichthöhen bereitgestellt von der Freien Universität Berlin (FUB), 1- stündliche Auflösung
- 3) ERA-Interim, globaler Reanalysedatensatz des European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF), $0.125^\circ \times 0.125^\circ$ (ca. 9×14 km) Auflösung, Grenzschichthöhen aus frei verfügbaren Daten ausgelesen, 3- stündliche Auflösung
- 4) GDAS, globaler Reanalysedatensatz des National Center for Environmental Prediction (NCEP), $1^\circ \times 1^\circ$ (ca. 70×111 km) Auflösung, Antriebsdaten zur Berechnung der HYSPLIT Rückwärtstrajektorien, Grenzschichthöhen werden dabei mit ausgegeben, 1- stündliche Auflösung

In Abbildung 7 sind Zeitreihen der aus den verschiedenen Versionen erhaltenen Tagesmittelwerte der Grenzschichthöhe gezeigt, die in ihren Trends überwiegend gut vergleichbar sind, wobei die COSMO-DE Zeitreihe eine deutlich abgeschwächte Dynamik der Grenzschichthöhe zeigt. Dementsprechend ergeben sich für die COSMO-DE Variante in den in Abbildung 8 beispielhaft für 4 Hintergrundstationen gezeigten Korrelationsmatrizen relativ niedrige Korrelationskoeffizienten von ca. 0,5 – 0,6 mit den anderen Varianten, wohingegen die übrigen 3 Varianten i.d.R. mit $r \geq 0,9$ miteinander korreliert sind. Für die weiteren Auswertungen wurden die von der FUB bereitgestellten Grenzschichthöhen aus COSMO-CLM verwendet.

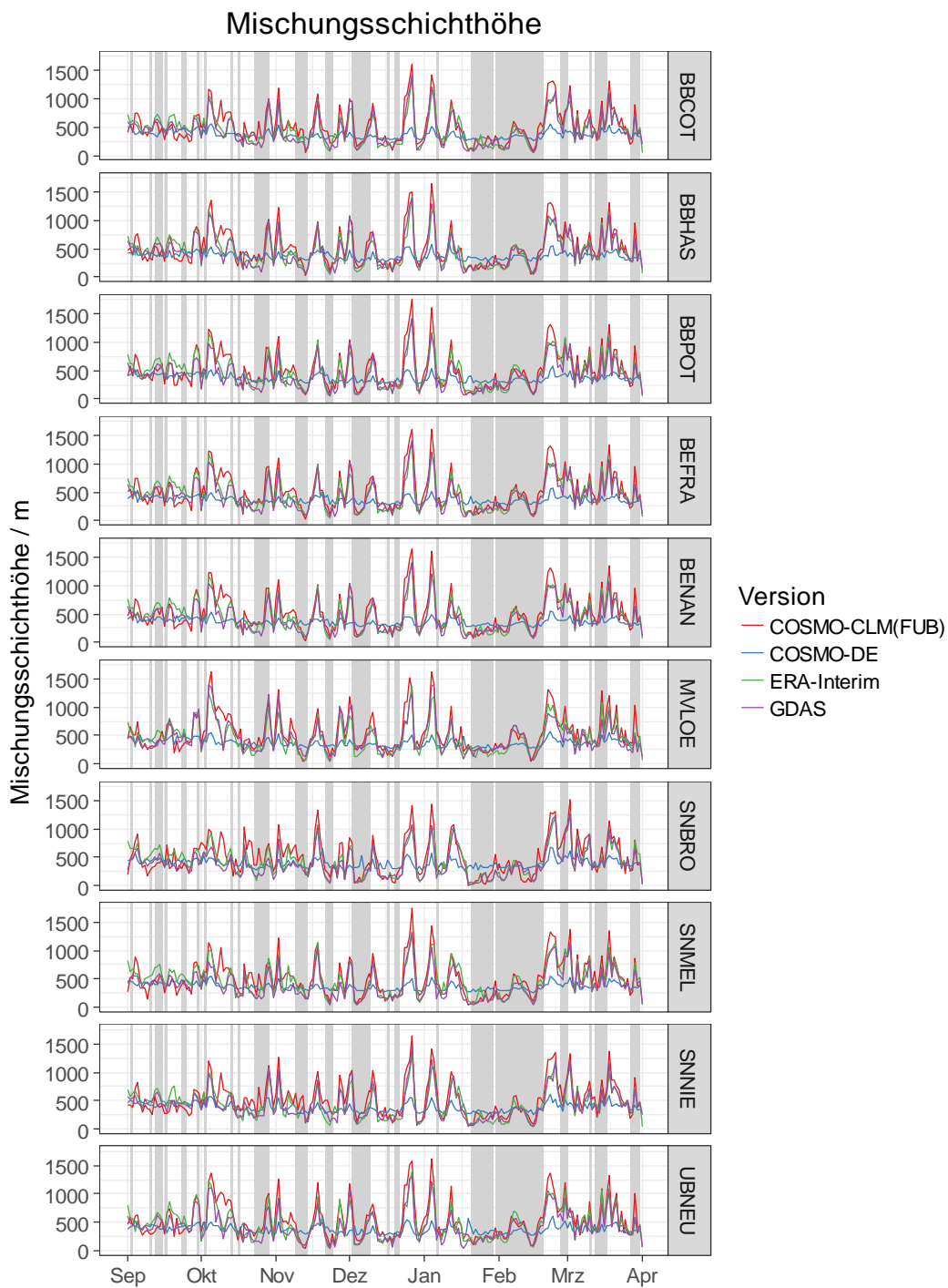


Abbildung 7: Tagesmittel der Mischungsschichthöhe für jede Messstation im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

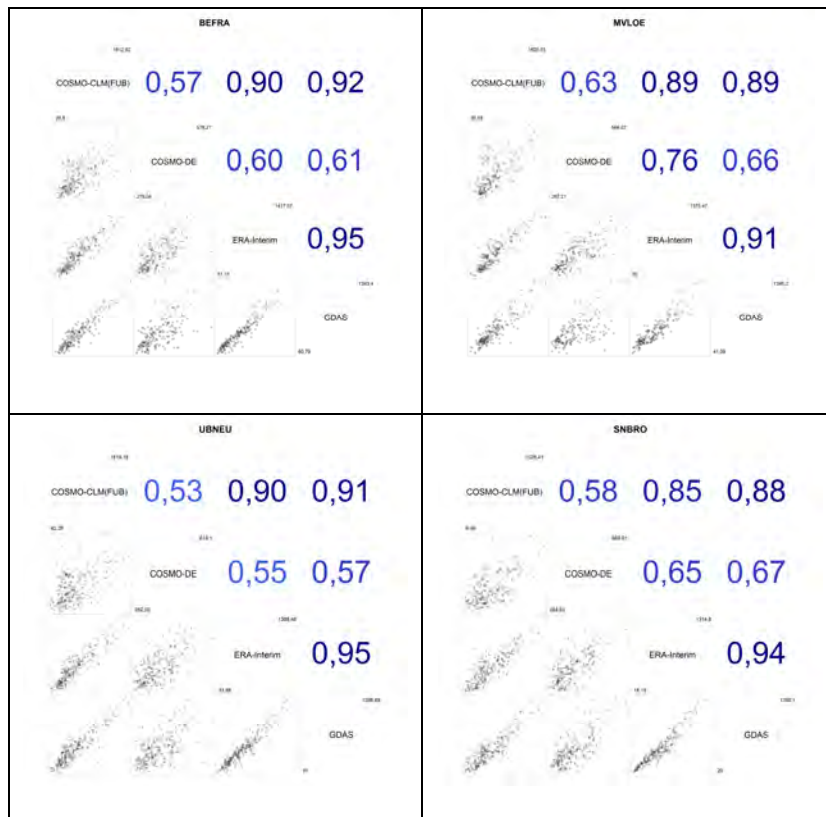


Abbildung 8: Korrelationsmatrizen für die verschiedenen Versionen der Mischungsschichthöhe an 4 ausgewählten Stationen.

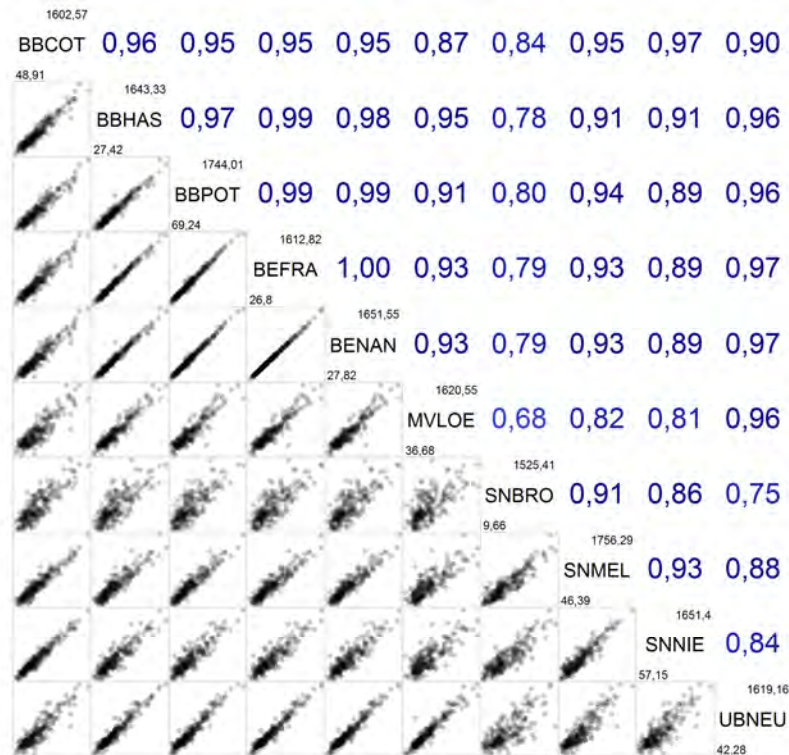


Abbildung 9: Korrelationsmatrix für die Mischungsschichthöhe aus dem COSMO-CLM Modell zwischen den Stationen.

In Abbildung 9 sind die Korrelationen der aus COSMO-CLM berechneten Tagesmittel der Grenzschichthöhen zwischen den 10 Stationen des Projektes gezeigt. Die Korrelationskoeffizienten liegen meistens zwischen ca. 0,9 und 1, was die großräumige Ähnlichkeit der Grenzschichthöhe und damit des Mischungsvolumens zeigt. Eine Ausnahme stellt die Station SNBRO dar, deren berechnete Grenzschichthöhen – vermutlich aufgrund der etwas erhöhten Lage auf 430 m – etwas weniger stark mit den Werten der anderen Stationen korreliert ist (ca. 0,7 – 0,9).

Für die Einteilung der Messtage in die Grenzschichthöhe-Kategorien „Hoch“ und „Niedrig“ wurde der Median der Tagesmittelwerte aller Stationen im Untersuchungszeitraum als Grenzwert festgelegt, der bei 443 m lag.

Die Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung an Tagen zu den Kategorien „Hoch“ und „Niedrig“ im Untersuchungszeitraum sind in Tabelle 9 für die einzelnen Stationen zusammengestellt. Über den gesamten Projektzeitraum gesehen verteilen sich die Messtage an allen Stationen etwa jeweils zur Hälfte in die Kategorien „Hoch“ und „Niedrig“. Dies gilt vor allem für die Monate September, Oktober, November 2016 und zum Teil Februar 2017. Deutlich anders verteilen sich die Messtage im Dezember 2016 und Januar 2017, mit wesentlich mehr Tagen mit einer niedrigen Grenzschichthöhe. Im März 2017 dagegen lag der Anteil von Tagen mit niedriger Grenzschichthöhe bei lediglich einem Drittel.

Tabelle 9: Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Hoch“ (H) und „Niedrig“ (Ni) im Untersuchungszeitraum.

	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig	Hoch / Niedrig
Sept.	15 / 15	15 / 15	15 / 15	15 / 15	14 / 16	12 / 18	12 / 18	11 / 19	9 / 21	13 / 17
Okt.	16 / 15	18 / 13	16 / 15	18 / 13	17 / 14	21 / 10	18 / 13	20 / 11	19 / 12	21 / 10
Nov.	16 / 14	15 / 15	16 / 14	18 / 12	16 / 14	17 / 13	18 / 12	17 / 13	20 / 10	17 / 13
Dez.	12 / 19	12 / 19	12 / 19	12 / 19	12 / 19	13 / 18	13 / 18	9 / 22	12 / 19	12 / 19
Jan.	10 / 21	10 / 21	10 / 21	11 / 20	11 / 20	11 / 20	10 / 21	12 / 19	10 / 21	10 / 21
Febr.	16 / 12	16 / 12	16 / 12	15 / 13	16 / 12	16 / 12	17 / 11	12 / 16	14 / 14	15 / 13
März	19 / 12	19 / 12	19 / 12	22 / 9	20 / 11	19 / 12	18 / 13	19 / 12	22 / 9	21 / 10
Anzahl Hoch	104	105	104	111	106	109	106	100	106	109
Anzahl Niedrig	108	107	108	101	106	103	106	112	106	103
Häufigkeit Hoch / %	49	50	49	52	50	51	50	47	50	51
Häufigkeit Niedrig / %	51	50	51	48	50	49	50	53	50	49

2.4.5 Auswirkungen der Witterung

Eine weitere zu berücksichtigende Belastungskategorie ist die Tagessumme des gefallenen Regens an einer Station. Es wurden Tage mit einer Niederschlags-summe größer 0,2 mm als „Nass“ und die darunter als „Trocken“ eingeordnet.

Da Messungen des Niederschlages nur für die Stationen UBNEU und SNMEL vorlagen, wurde zur Einordnung der Tage für alle Stationen auf RADOLAN Daten (Radar-Online-Aneichung) des DWD zurückgegriffen, die mit stündlicher Auflösung aus radar- und stationsbasierten Messungen generiert werden (www.dwd.de/RADOLAN). Die öffentlich bereitgestellten Daten sind zwar nicht exakt für die Koordinaten der Stationen des Projektes verfügbar, allerdings lagen aufgrund der hohen räumlichen Auflösung der RADOLAN Daten die nächstgelegenen Gitterpunkte nur zwischen 200 und 1500 m von den Stationen entfernt und können somit als gute Näherung für den Niederschlag an der Station verwendet werden.

Aus Tabelle 10 geht hervor, dass für den gesamten Untersuchungszeitraum betrachtet etwa 2/3 aller Messtage der Kategorie „Trocken“ und nur 1/3 der Kategorie „Nass“ zugeordnet wurden. Geprägt wird diese Verteilung in erster Linie durch die Monate November 2016 bis März 2017. Die erkennbare ähnliche Verteilung für alle Messstationen ist dabei ein wichtiger Faktor bei der späteren Bewertung der Auswirkungen dieser Belastungskategorie. Ausnahmen bezüglich dieser Verteilung stellen lediglich die Monate September und Oktober 2016 dar. Dabei ist der Monat September 2016 mit durchschnittlich 26 trockenen Tagen (gemittelt über alle Stationen) der mit Abstand trockenste Monat im Projektzeitraum. Im Oktober 2016 verteilen sich trockene und nasse Tage dagegen etwa zu gleichen Teilen an den Messstationen im Untersuchungsgebiet, mit Ausnahme von UBNEU und SNBRO. An diesen Stationen zeigt sich bereits im Oktober die am häufigsten auftretende 2/3 zu 1/3 Verteilung trockener und nasser Messtage im Untersuchungszeitraum.

Tabelle 10: Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung zu „Trocken“ und „Nass“ im Untersuchungszeitraum.

	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass	Trocken / Nass
Sept.	26 / 4	26 / 4	26 / 4	25 / 5	26 / 4	27 / 3	28 / 2	25 / 5	26 / 4	26 / 4
Okt.	14 / 17	15 / 16	13 / 18	13 / 18	15 / 16	17 / 14	19 / 12	20 / 11	16 / 15	15 / 16
Nov.	17 / 13	19 / 11	18 / 12	16 / 14	20 / 10	16 / 14	18 / 12	18 / 12	18 / 12	19 / 11
Dez.	21 / 10	20 / 11	22 / 9	19 / 12	21 / 10	20 / 11	22 / 9	26 / 5	22 / 9	21 / 10
Jan.	21 / 10	23 / 8	20 / 11	21 / 10	19 / 12	19 / 12	20 / 11	23 / 8	20 / 11	22 / 9
Febr.	18 / 10	17 / 11	18 / 10	16 / 12	18 / 10	17 / 11	17 / 11	17 / 11	20 / 8	22 / 6
März	17 / 14	18 / 13	18 / 13	20 / 11	20 / 11	21 / 10	20 / 11	22 / 9	18 / 13	18 / 13
Anzahl Trocken	134	138	135	130	139	137	144	151	139	141
Anzahl Nass	78	74	77	82	73	75	68	61	73	71
Häufigkeit Trocken / %	63	65	64	61	66	65	68	71	66	67
Häufigkeit Nass / %	37	35	36	39	34	35	32	29	34	33

2.4.6 Zusammenfassung Anzahl und Häufigkeit der Belastungskategorien und der Tage mit PM10- Grenzwertüberschreitung

In Abbildung 10 ist die gesamte Verteilung der Anzahl an Messtagen entsprechend der zuvor beschriebenen Belastungskategorien noch einmal graphisch zusammengefasst. Die prozentuale Verteilung ist ergänzend in Tabelle 11 aufgeführt.



Abbildung 10: Verteilung der mittleren Anzahl von Messtagen entsprechend der Belastungskategorien für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum.

Aus Abbildung 10 wird ersichtlich, dass die Anzahl der Tage unabhängig von der Belastungskategorie über alle Messstationen ähnlich verteilt ist. Dagegen zeigen sich im Vergleich der Belastungskategorien untereinander eindeutige Unterschiede. Für die Anströmung wird offensichtlich, dass Ostanströmungen in deutlich geringerer Anzahl auftreten als Westanströmungen. Der Anteil der

nicht eindeutig zuordenbaren Tage ist an der Station SNMEL am kleinsten in SNBRO am größten. Für die Raumskala nimmt der Unterschied zwischen „Fern“ und „Regional“ noch weiter zu, was den hohen Anteil des Ferntransportes in das Untersuchungsgebiet zeigt. Bei der Unterscheidung der Temperatur und der Grenzschichthöhe ist die Anzahl der Tage zwischen „Warm“ und „Kalt“ bzw. „Hoch“ und „Niedrig“ etwa ausgeglichen. Trockene Tage treten gegenüber nassen Tagen wesentlich häufiger auf.

Ergänzend dazu, sind in Tabelle 12 die Anzahl und Häufigkeit der Tage mit PM10- Grenzwertüberschreitungen (Tagesmittel) in Abhängigkeit der Tagescharakteristik und von den Belastungskategorien dargestellt. Bei der Betrachtung der Grenzwertüberschreitungstage ohne Bezug zu Tagescharakteristiken oder Belastungskategorien zeigt sich der zu erwartende Trend, dass die Häufigkeit des Auftretens an den Stationen im ländlichen Hintergrund (im Mittel 8 Tage), über die im städtischen Hintergrund (im Mittel 15 Tage) bis hin zu Verkehrsstationen (im Mittel 27 Tage) zunimmt. Trennt man diese Tage weiter entsprechend Montag bis Freitag im Vergleich zu den Tagen Samstag, Sonntag und Feiertagen auf, so verschwindet dieser Trend. Lediglich die Sonderstellung der Verkehrsstationen an Werktagen, in diesem Kontext Mo-Fr, wird erneut offensichtlich. Allerdings zeigt sich sehr deutlich, dass im Vergleich der Tagescharakteristiken untereinander mehr als 70% aller Grenzwertüberschreitungstage auf den Zeitraum Mo-Fr entfallen. Die Messstationen UBNEU (4) und SNBRO (2) weisen sogar ausschließlich für diesen Zeitraum Überschreitungen auf.

Das Auftreten der Grenzwertüberschreitungstage in Abhängigkeit von den zuvor definierten Belastungskategorien gibt nachfolgend bereits erste Hinweise auf mögliche PM10 Quellen. In der Kategorie Anströmung treten die häufigsten Grenzwertüberschreitungen bei Ost und bei nicht eindeutig zuordenbaren Luftmassen auf. Dies zeigt sich insbesondere für die Messstationen im ländlichen Hintergrund. Aufgrund des zusätzlichen auftretenden lokalen Einflusses der städtischen und Verkehrsstationen kommt es an diesen Stationstypen auch bei Westanströmung zu Grenzwertüberschreitungen (BEFRA: 7 West vs. 10 Ost vs. 15 X). In diesem Kontext muss ergänzend der Einfluss der Raumskala betrachtet werden. Hier zeigt sich, dass vor allem durch Ferntransport bzw. nicht eindeutig zuordenbare Luftmassen geprägte Tage häufig auftreten. Der Anteil bei regionaler Anströmung ist über alle Stationen am geringsten. Die weiteren Belastungskategorien Temperatur, Grenzschichthöhe und Witterung zeigen eine sehr ähnliche Verteilung und können daher zusammengefasst betrachtet werden. Etwa 90% aller Grenzwertüberschreitungen treten an kalten und trockenen Tagen mit einer niedrigen Grenzschichthöhe auf.

Tabelle 11: Anzahl und Häufigkeit der Zuordnung der Messtage zu den Belastungskategorien der Messstationen im Untersuchungszeitraum.

Kategorie	BEFRA	BBPOT	BENAN	BBCOT	BBHAS	MVLOE	UBNEU	SNBRO	SNNIE	SNMEL
Anströmung_West	88 / 42%	88 / 42%	90 / 42%	83 / 39%	88 / 42%	93 / 44%	91 / 43%	91 / 43%	85 / 40%	93 / 44%
Anströmung_Ost	81 / 38%	82 / 39%	79 / 37%	85 / 40%	82 / 39%	73 / 34%	79 / 37%	85 / 40%	79 / 37%	69 / 33%
Anströmung_X	43 / 20%	42 / 20%	43 / 20%	44 / 21%	42 / 20%	46 / 22%	42 / 20%	36 / 17%	48 / 23%	50 / 24%
Raumskala_Regional	27 / 13%	29 / 14%	26 / 12%	32 / 15%	26 / 12%	24 / 11%	23 / 11%	44 / 21%	35 / 17%	32 / 15%
Raumskala_Fern	133 / 63%	132 / 62%	131 / 62%	129 / 61%	132 / 62%	137 / 65%	137 / 65%	116 / 55%	117 / 55%	126 / 59%
Raumskala_X	52 / 25%	51 / 24%	55 / 26%	51 / 24%	54 / 25%	51 / 24%	52 / 25%	52 / 25%	60 / 28%	54 / 25%
Temperatur_Warm	114 / 54%	114 / 54%	114 / 54%	114 / 54%	105 / 50%	106 / 50%	100 / 47%	90 / 42%	116 / 55%	111 / 52%
Temperatur_Kalt	98 / 46%	98 / 46%	98 / 46%	98 / 46%	107 / 50%	106 / 50%	112 / 53%	122 / 58%	96 / 45%	101 / 48%
Grenzschichthöhe_Hoch	104 / 49%	105 / 50%	104 / 49%	111 / 52%	106 / 50%	109 / 51%	106 / 50%	100 / 47%	106 / 50%	109 / 51%
Grenzschichthöhe_Niedrig	108 / 51%	107 / 50%	108 / 51%	101 / 48%	106 / 50%	103 / 49%	106 / 50%	112 / 53%	106 / 50%	103 / 49%
Witterung_Trocken	134 / 63%	138 / 65%	135 / 64%	130 / 61%	139 / 66%	137 / 65%	144 / 68%	151 / 71%	139 / 66%	141 / 67%
Witterung_Nass	78 / 37%	74 / 35%	77 / 36%	82 / 39%	73 / 34%	75 / 35%	68 / 32%	61 / 29%	73 / 34%	71 / 33%

Tabelle 12: Anzahl der Grenzwertüberschreitungstage in den Belastungskategorien der Messstationen im Untersuchungszeitraum.

Station	Gesamt	Mo-Fr	Sa/So/Feiertage	Anströmung			Raumskala			Temperatur		Grenzschicht		Witterung	
				West	OST	X	Regional	Fern	X	Warm	Kalt	Hoch	Niedrig	Trocken	Nass
BEFRA	32	25	7	7	10	15	5	13	14	8	24	3	29	29	3
BBPOT	22	17	5	3	10	9	4	11	7	2	20	2	20	18	4
BENAN	14	10	4	1	8	5	1	7	6	1	13	2	12	13	1
BBCOT	15	10	5	3	8	4	1	9	5	1	14	2	13	12	3
BBHAS	11	9	2	0	7	4	2	4	5	0	11	1	10	11	0
MVLOE	12	11	1	2	4	6	2	4	6	1	11	0	12	9	3
UBNEU	4	4	0	0	1	3	1	2	1	0	4	1	3	3	1
SNBRO	2	2	0	0	2	0	0	0	2	0	2	0	2	2	0
SNNIE	8	5	3	0	7	1	0	6	2	1	7	1	7	8	0
SNMEL	11	8	3	0	8	3	1	5	5	0	11	1	10	11	0

2.5 Zuordnung zu Großwetterlagen

Für den Projektzeitraum von 212 Tagen sollten die objektive Wetterlagenklassifizierung des DWD (OWTC) (Bissolli und Dittmann 2001) und die subjektive Wetterlagenklassifizierung nach Hess und Brezowsky (SHBC) (Gerstengarbe und Werner 1993; Werner und Gerstengarbe 2010) auf ihre Anwendbarkeit untersucht werden. Beide Klassifizierungen gelten für ganz Mitteleuropa und somit für das gesamte Untersuchungsgebiet. Im Gegensatz zur Charakterisierung der Tage über den Luftmassenzufluss nach AIWE (vgl. Kapitel 2.4.1), mit nur 3 Klassen bei Unterscheidung West- und Ostanströmung und zusätzlich X für nicht zuzuordnen, gibt es für die OWTC 40 und für die SHBC 30 Klassen (ohne Berücksichtigung einer jahreszeitlichen Unterscheidung). Bei SHBC werden vom Verfahren nicht zugeordnete Tage vom Charakter X in einer Klasse „U“ zusammengefasst, sind allerdings sehr selten und werden daher im vorliegenden Untersuchungszeitraum auch nicht besetzt. Auf eine ausführliche Beschreibung der zwei Wetterlagenklassifizierungen und ihrer meteorologischen Hintergründe wird an dieser Stelle, unter Verweis auf die oben genannte Literatur, verzichtet.

Dennoch sollen zum besseren Verständnis kurz die Grundlagen für eine Zuordnung einzelner Tage zu den einzelnen Großwetterlagen nach OWTC (vgl. Abbildung 33 und Tabelle 13) und SHBC (vgl. Abbildung 34 und Tabelle 14) beschrieben werden. Das OWTC-Verfahren nutzt Ergebnisse des operationellen numerischen Wetteranalysen- und Vorhersagesystems des DWD. Es ordnet einmal täglich die Wetterlage über Mitteleuropa einer von 40 möglichen Klassen zu. Die tägliche Datengrundlage bildet die numerische Wetteranalyse (der modellierte Ist-Zustand der Wetterdaten) eines der operationellen Vorhersagemodelle des DWD zum Zeitpunkt 12 UTC. Die bestimmte Wetterlagenklasse ist eindeutig und gilt für den gesamten Tag. Die objektive Wetterlagenklasse wird über 5 Buchstaben definiert. Als erstes meteorologisches Kriterium wird die Windrichtung (Advektionsrichtung der Luftmassen) eingeführt, erste zwei Stellen. Dieser Windindex (700 hPa) wird in 5 Klassen eingeordnet (vgl. Tabelle 13, Spalte 1) und folgendermaßen definiert: XX undefiniert, NO Nordost, SO Südost, SW Südwest und NW Nordwest. Die Zyklonalität in 950 und 500 hPa, antizyklonal A oder zyklonal Z, steht an 3. und 4. Stelle der Wetterlagenbezeichnung. Die Feuchtigkeit der Atmosphäre (feucht F und trocken T) wird an 5. Stelle der Wetterlagenklasse angegeben. Damit ergeben sich die 5-stelligen Kennungen der Großwetterlagen, wie sie in Tabelle 13 angegeben sind. So bedeutet z. B. XXAAT, eine Wetterlage mit unbestimmter Anströmung, die in 950 und 500 hPa antizyklonal ausgeprägt und feucht ist. Die Wetterlagenbezeichnung NOAZT steht dagegen für Nordostanströmung, antizyklonal (950 hPa), zyklonal (500 hPa) und trocken.

In Deutschland ist die SHBC weit verbreitet, sie ist besonders zur Anwendung auf das Gebiet Mitteleuropa geeignet. Ein Experte urteilt darüber, zu welcher

Wetterlage eine bestimmte meteorologische Situation zählt. Großwetterlagen werden so nach Charakter in die zonale (CY), die meridionale (AC) und die gemischte Zirkulationsform (MC) eingeteilt (vgl. Tabelle 14). Die einzelnen täglichen Wetterlagenklassen sind jeweils beschrieben, die Abkürzungen aus Tabelle 14 stehen dabei für:

Zonale Zirkulation (CY)

WA: Westlage, antizyklonal: WZ: Westlage, zyklonal
WS: Südliche Westlage WW: Winkelförmige Westlage

Meridionale Zirkulation (AC)

NA: Nordlage, antizyklonal NZ: Nordlage, zyklonal
HNA: Hoch Nordmeer-Island, antizyklonal
HNZ: Hoch Nordmeer-Island, zyklonal
HB: Hoch britische Inseln TRM: Trog Mitteleuropa
NEA: Nordostlage, antizyklonal NEZ: Nordostlage, zyklonal
HFA: Hoch Fennoskandien, antizyklonal
HFZ: Hoch Fennoskandien, zyklonal
HNFA Hoch Nordmeer-Fennoskandien, antizyklonal
HNFZ Hoch Nordmeer-Fennoskandien, zyklonal
SEA: Südostlage, antizyklonal SEZ: Südostlage, zyklonal
SA: Südlage, antizyklonal SZ: Südlage, zyklonal
TB: Tief Britische Inseln TRW Trog westeuropa

Gemischte Zirkulation (MC)

SWA Südwestlage, antizyklonal SWZ Südwestlage, zyklonal
NWA Nordwestlage, antizyklonal NWZ Nordwestlage, zyklonal
HM Hoch Mitteleuropa BM Hochdruckbrücke Mitteleuropa
TM Tief Mitteleuropa

Nicht zuzuordnen (X)

U „unbestimmt“

Zum Vergleich sei hier kurz das Ergebnis für die Langzeitmessreihe von SNMEL (TROPOS-Forschungsstation Melpitz) angeführt. Für den Zeitraum von 24 Jahren (November 1992 bis Oktober 2016) wurden 80,8% der Tage den

Windrichtungen der OWTC (NW, NO, SW und SO) zugeordnet. Der Rest wurde keiner eindeutigen Windrichtung (XX) zugeordnet. Für die SHBC konnten 64,1% der Tage der zonalen (CY) und der meridionalen Zirkulation (AC), zugeordnet werden. Der Rest der Wetterlagenklassen der SHBC zeigt eine gemischte Zirkulation (MC).

Wendet man die beiden Wetterlagenklassifizierungen OWTC und SHBC auf den nur 212 Tage umfassenden Datensatz dieses Vorhabens an, so ergibt sich das Problem, dass nicht alle der 40 bzw. 30 Klassen besetzt werden. Die Verteilung der Ergebnisse in die entsprechenden Wetterlagen ist in Abbildung 11 und Abbildung 12 graphisch dargestellt. Eine detaillierte monatliche Übersicht zur Anzahl der Tage und ihrer Zuordnung ist ergänzend in Tabelle 13 und Tabelle 14 gegeben. Bei den in Tabelle 13 zusammengestellten objektiven Wetterlagenklassen (OWTC) treten die Klassen NWAAF, NWAAT und XXAAT mit 30, 25 und 18 Tagen am häufigsten auf. Damit wird die hohe Häufigkeit einer nordwestlichen Anströmung (NWAAF und NWAAT) abgebildet. Mit 18 Tagen treten auch Wetterlagen ohne eindeutige Anströmungszuordnung häufig auf. Relativ stark anthropogen belastete Luftmassen sind bei Südostanströmung (SO) zu erwarten, 12 Tage können dieser Anströmung bei unterschiedlicher Zyklonalität und Feuchte zugeordnet werden. Eher moderate anthropogen belastete Luftmassen sind bei Südwestanströmung (SW) zu erwarten. Tatsächlich treten die objektiven Wetterlagenklassen SWZAF an 14 Tagen und SWAAF an 10 Tagen im Untersuchungszeitraum auf.

Bei den subjektiven Wetterlagenklassen (SHBC), zusammengestellt in Tabelle 14, werden 33 Tage des Untersuchungszeitraumes der Wetterlage „Hoch Mitteleuropa“ (HM) und 26 Tage der Wetterlage „Hochdruckbrücke Mitteleuropa“ (BM) zugeordnet. Es herrscht eine gemischte Zirkulationsform. Bei diesen Wetterlagen können Tage mit geringen Mischungsschichthöhen bevorzugt auftreten. 27 Tage werden der Wetterlage „Westlage, zyklonal“ (WZ) zugeordnet und 16 Tage der Wetterlage „West, antizyklonal“ (WA). Es bilden sich hier zwei sehr häufig auftretende subjektive Wetterlagenklassen ab, die mit geringer anthropogener Belastung und sehr guter Durchmischung verbunden sind.

Die wenigen Beispiele zeigen, dass es möglich ist, für diesen begrenzten Datensatz als Beispiel mittlere Konzentrationen von PM10-Masse für Wetterlagen zu berechnen, die im begrenzten Messzeitraum auftraten. Für diesen Zeitraum von 212 Tagen treten 14 von 40 Wetterlagenklassen nach OWTC und für die 30 Wetterlagenklassen von SHBC treten 12 nicht auf.

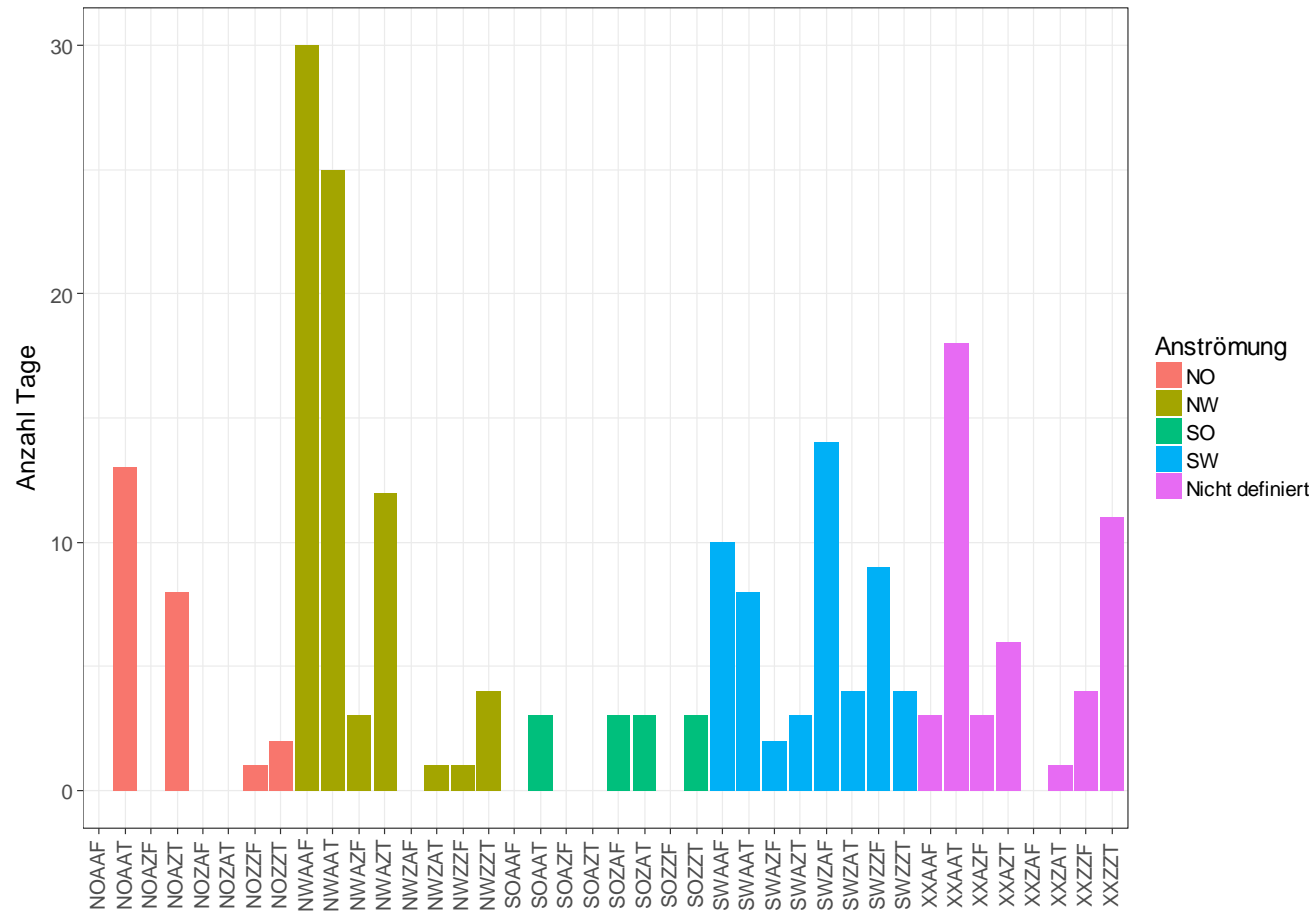


Abbildung 11: Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa.

Tabelle 13: Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa.

Wetterlagenklasse		Sept.	Okt.	Nov.	Dez.	Jan.	Febr.	März	Anzahl	Anteil
Nach Windindex für 700 hPa	OWTC	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Gesamt	%
NO	NOAAF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NOAAT	1	2	2	1	5	1	1	13	6
	NOAZF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NOAZT	1	3	0	0	3	1	0	8	4
	NOZAF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NOZAT	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NOZZF	1	0	0	0	0	0	0	1	0
NOZZT	0	2	0	0	0	0	0	2	1	
NW	NWAAF	4	2	3	9	1	5	6	30	14
	NWAAT	2	4	3	9	3	0	4	25	12
	NWAZF	1	0	0	0	0	1	1	3	1
	NWAZT	0	0	1	3	3	2	3	12	6
	NWZAF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NWZAT	0	0	0	0	1	0	0	1	0
	NWZZF	0	1	0	0	0	0	0	1	0
NWZZT	0	0	2	0	2	0	0	4	2	
SO	SOAAF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	SOAAT	0	0	0	0	2	1	0	3	1
	SOAZF	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	SOAZT	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	SOZAF	3	0	0	0	0	0	0	3	1
	SOZAT	0	0	0	1	1	1	0	3	1
	SOZZF	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Wetterlagenklasse		Sept.	Okt.	Nov.	Dez.	Jan.	Febr.	März	Anzahl	Anteil
Nach Windindex für 700 hPa	OWTC	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Gesamt	%
	SOZZT	0	1	0	1	0	1	0	3	1
SW	SWAAF	5	0	1	0	0	1	3	10	5
	SWAAT	0	0	0	3	1	1	3	8	4
	SWAZF	0	1	0	0	0	0	1	2	1
	SWAZT	0	0	1	0	1	0	1	3	1
	SWZAF	0	4	3	0	0	4	3	14	7
	SWZAT	1	0	1	0	2	0	0	4	2
	SWZZF	2	1	3	0	1	2	0	9	4
	SWZZT	0	2	2	0	0	0	0	4	2
	X	XXAAF	1	0	2	0	0	0	0	3
XXAAT		6	1	1	4	2	0	4	18	8
XXAZF		0	0	0	0	0	3	0	3	1
XXAZT		1	1	3	0	1	0	0	6	3
XXZAF		0	0	0	0	0	0	0	0	0
XXZAT		0	0	0	0	0	1	0	1	0
XXZZF		1	0	0	0	1	1	1	4	2
XXZZT		0	6	2	0	1	2	0	11	5

X: nicht eindeutig zuzuordnen

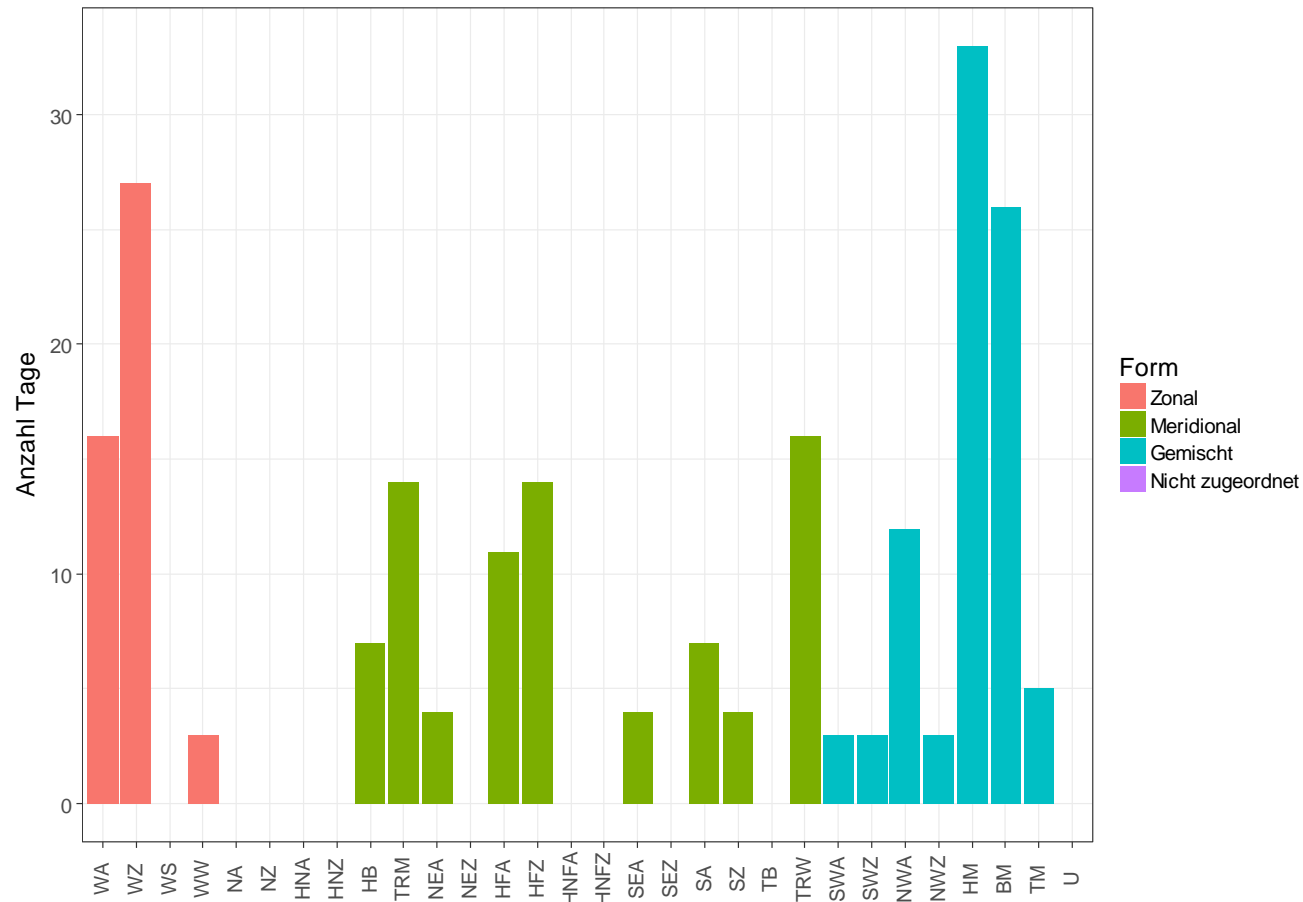


Abbildung 12: Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform.

Tabelle 14: Anzahl der Messtage in den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform.

Wetterlagenklasse		Sept.	Okt.	Nov.	Dez.	Jan.	Febr.	März	Anzahl	Anteil
Nach Zirkulationsform	SHBC	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Gesamt	%
Zonal (CY)	WA	5	0	0	11	0	0	0	16	8
	WZ	2	2	3	0	0	13	7	27	13
	WS	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	WW	3	0	0	0	0	0	0	3	1
Meridional (AC)	NA	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	NZ	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	HNA	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	HNZ	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	HB	0	0	4	0	0	0	3	7	3
	TRM	0	0	4	0	6	0	4	14	7
	NEA	0	4	0	0	0	0	0	4	2
	NEZ	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	HFA	4	3	0	0	0	4	0	11	5
	HFZ	3	7	0	0	0	4	0	14	7
	HNFA	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	HNFZ	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	SEA	0	4	0	0	0	0	0	4	2
	SEZ	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Wetterlagenklasse		Sept.	Okt.	Nov.	Dez.	Jan.	Febr.	März	Anzahl	Anteil
Nach Zirkulationsform	SHBC	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Anzahl Tage	Gesamt	%
	SA	4	0	0	0	3	0	0	7	3
	SZ	0	0	0	0	0	4	0	4	2
	TB	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	TRW	0	0	9	0	0	0	7	16	8
Gemischt (MC)	SWA	3	0	0	0	0	0	0	3	1
	SWZ	0	0	0	0	3	0	0	3	1
	NWA	0	3	6	3	0	0	0	12	6
	NWZ	0	0	0	0	3	0	0	3	1
	HM	6	0	4	13	1	3	6	33	16
	BM	0	3	0	4	15	0	4	26	12
	TM	0	5	0	0	0	0	0	5	2
X	U	0	0	0	0	0	0	0	0	0

X: nicht eindeutig zuzuordnen

3 Ergebnisse und Diskussion

In Kapitel 3.1 werden zunächst die zeitlichen Verläufe der PM10- Massekonzentrationen und ausgewählter Inhaltsstoffe an den 10 Messstationen präsentiert. Anschließend werden die gemittelten Messwerte in den zuvor definierten Belastungskategorien vergleichend ausgewertet (Kapitel 3.2). Die Identifikation des Anteils verschiedener Quellen an der Feinstaubbelastung im Untersuchungsgebiet erfolgt abschließend in Kapitel 3.3 unter Verwendung des Lenschow-Ansatzes, kombinierter Belastungskategorien, statistischer Trajektorienauswertungen und der Positiven Matrixfaktorisierung.

3.1 Zeitliche Verläufe der PM10- Massekonzentration und ausgewählter Inhaltsstoffe (tägliche Werte)

Im Folgenden werden zeitliche Verläufe der täglichen PM10- Massekonzentration, des PM_{2,5} / PM₁₀- Verhältnisses und der Partikelmassekonzentrationen ausgewählter Spezies im PM₁₀: OC, EC, Sulfat, Nitrat, Levoglucosan und BaP für alle Stationen im Untersuchungsgebiet diskutiert (Abbildung 13 bis Abbildung 23). Die Einzelbilder der Stationen im Untersuchungsgebiet sind in jeder Abbildung in der Reihenfolge Verkehrsstationen, städtischer Hintergrund und ländlicher Hintergrund sortiert. In grau hinterlegt sind die ausgewählten Sondermesstage (SMT) im Untersuchungszeitraum. Die Ergebnisdarstellungen zu den weiteren Inhaltsstoffen und korrespondierende Polardiagramme sind im Anhang in Abbildung A 18 bis Abbildung A 91 hinterlegt.

3.1.1 PM10- Massekonzentration

Die Auswertung der gravimetrischen PM₁₀- Messungen an den verschiedenen Messstationen der Bundesländer ist die Grundlage zur Identifikation des Anteils verschiedener Quellen an der Feinstaubbelastung. In Abbildung 13 sind die ermittelten täglichen PM₁₀- Massekonzentrationen für alle Messstationen über den gesamten Untersuchungszeitraum dargestellt.

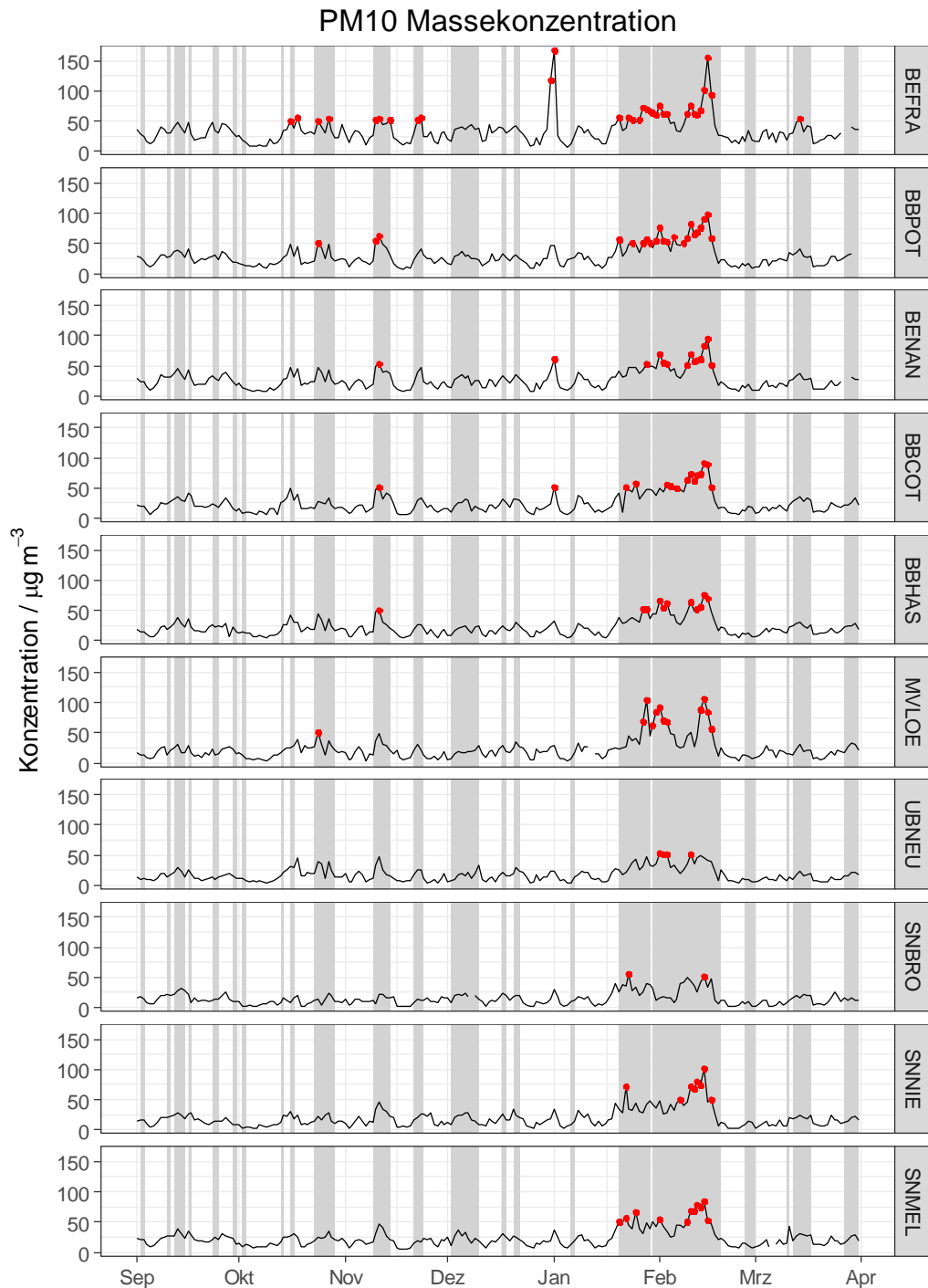


Abbildung 13: Tägliche PM10- Massekonzentrationen für alle Messstationen im Untersuchungszeitraum; rote Punkte markieren Grenzwert-Überschreitungstage; SMT grau hinterlegt.

Die Ergebnisse für die Monate September, Oktober und März weisen geringere Konzentrationen als die Wintermonate Januar und Februar auf, hier waren viele SMT auch durch kontinentale Luftmassen (Anströmung aus östlichem Sektor) gekennzeichnet. PM- Ereignisse treten unterschiedlich stark ausgeprägt an allen

Stationen gleichzeitig auf. In Brockau (SNBRO) und Neuglobsow (UBNEU) sind die täglichen PM10- Massekonzentrationen kleiner als an den anderen Stationen. An den Verkehrsstationen BEFRA und im geringeren Maße BBPOT werden kurzzeitig höhere Konzentrationen registriert, die lokal verursacht sein können (Aufwirbelung von Grobstaub). Trotz größerer Entfernungen zwischen den Stationen werden sich ähnelnde Muster ausgeprägt, was auf überwiegend ähnliche Luftmassen und Wettersituationen schließen lässt.

Einordnung in die Langzeitmessreihe der Messstation SNMEL

Abbildung 14 zeigt die PM10- Massekonzentrationen für die Station SNMEL für den vorliegenden Projektzeitraum eingeordnet in die existierende Langzeitmessreihe an dieser Messstation im ländlichen Hintergrund.

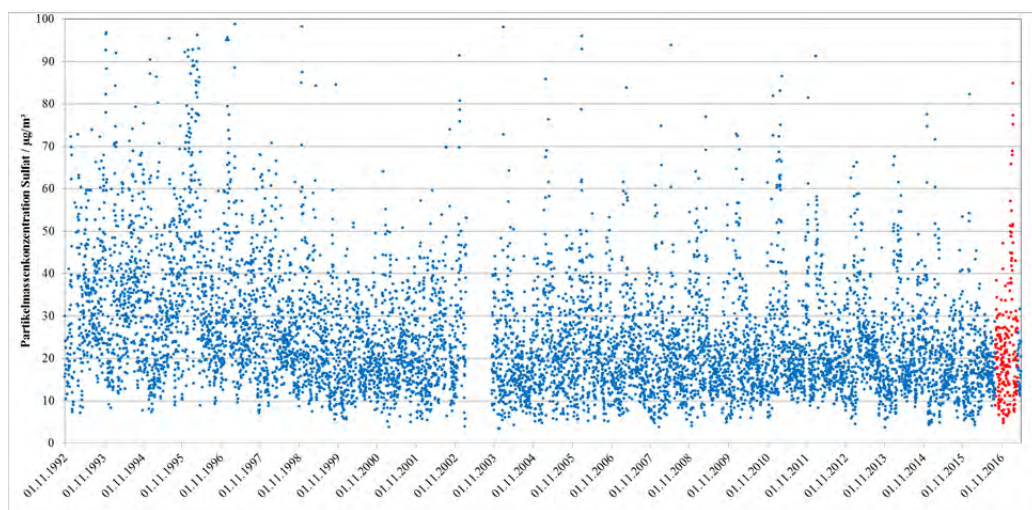


Abbildung 14: Verlauf der täglichen PM10- Massekonzentration an der Station SNMEL seit 1992. Die Ergebnisse der 212 Tage des PM-OST Projektes sind in rot gezeigt.

Es ist gut zu erkennen, dass der Projektzeitraum im Bereich langfristig leicht fallender Konzentrationen liegt, die einzelnen Tage weisen vergleichbare Konzentrationen zu den Vorjahren auf. Die im Projektzeitraum aufgetretenen elf Überschreitungstage sind gut zu erkennen und fallen in den Zeitraum Mitte Januar bis zum zweiten Drittel des Februars. In den beiden Wintern davor war eine solche Situation weniger stark ausgeprägt. Der Mittelwert der Partikelmassekonzentration PM10 beträgt für den Projektzeitraum von PM-OST $23,0 \mu\text{g m}^{-3}$. Für den gleichen Messzeitraum waren die Mittelwerte der drei vorangegangenen Jahre (2015/16, 2014/15 und 2013/14) mit 19,9, 23,6 und $21,0 \mu\text{g m}^{-3}$ ähnlich.

3.1.2 Verhältnis PM_{2,5} / PM₁₀

Das Verhältnis von PM_{2,5} zu PM₁₀ verdeutlicht den Anteil kleinerer Partikel an der Gesamtpartikelbelastung. Die Grobstaubpartikel mit Durchmessern zwischen 10 und 2,5 µm sind häufig nur lokale Stäube, die nicht weit verbreitet werden. Dazu gehören hauptsächlich Aufwirbelungen von Straßenstaub, Abrieb von Reifen und Straßenbelag durch den Verkehr. In speziellen Situationen kann aber auch Seesalz, Mineralstaub oder anderer Grobstaub durch hohe Windgeschwindigkeiten über hunderte Kilometer weit transportiert werden.

Das PM_{2,5} zu PM₁₀- Verhältnis weist große Schwankungen auf, die von meteorologischen Einflüssen, z. B. Niederschlag und Windgeschwindigkeit abhängig sind. In Zeiten höherer Temperaturen, wie im September / Oktober sind trockene Oberflächen auch für Winderosion anfällig. Landwirtschaftliche Aktivitäten sowie der Straßenverkehr liefern zu diesen Zeiten verstärkt Grobstaubpartikel, die das Verhältnis PM_{2,5} / PM₁₀ senken und durch die Variabilität der Windgeschwindigkeit hohe Schwankungen zur Folge haben. Im Winter hingegen verliert der Grobstaub durch Bodenfeuchte oder Schnee sowie in Episoden mit viel Niederschlag an Bedeutung, was hier besonders deutlich für die Messstationen BBHAS, BBCOT und MVLOE wird, während die Verkehrsstation BBPOT diesen Effekt in deutlich geringerem Maße zeigt.

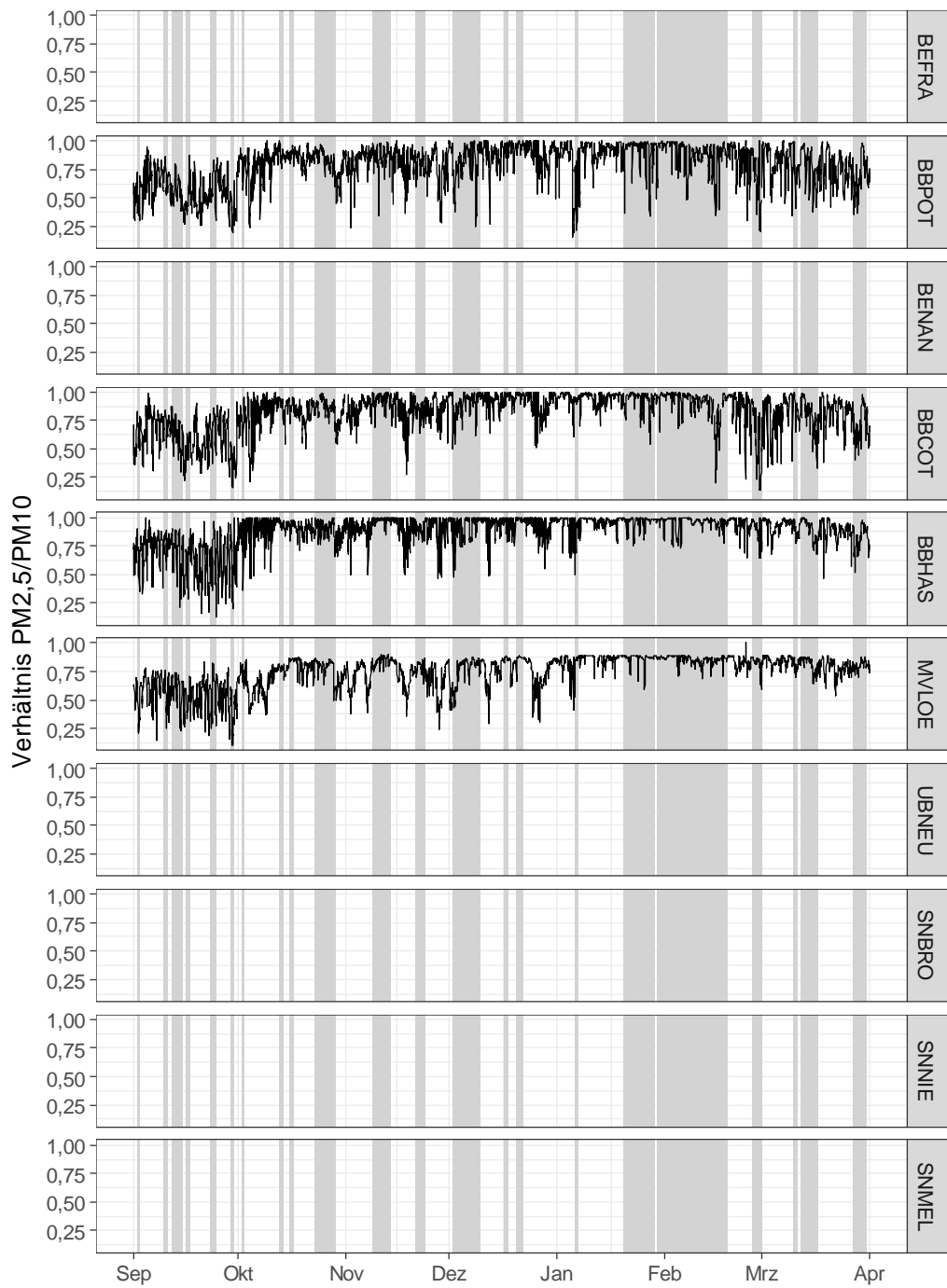


Abbildung 15: Verhältnis PM_{2,5} / PM₁₀ im Untersuchungszeitraum für die einzelnen Messstationen; SMT grau hinterlegt.

3.1.3 OC

In Abbildung 16 ist der zeitliche Verlauf der täglichen Partikelmassekonzentration von OC in PM10 gezeigt.

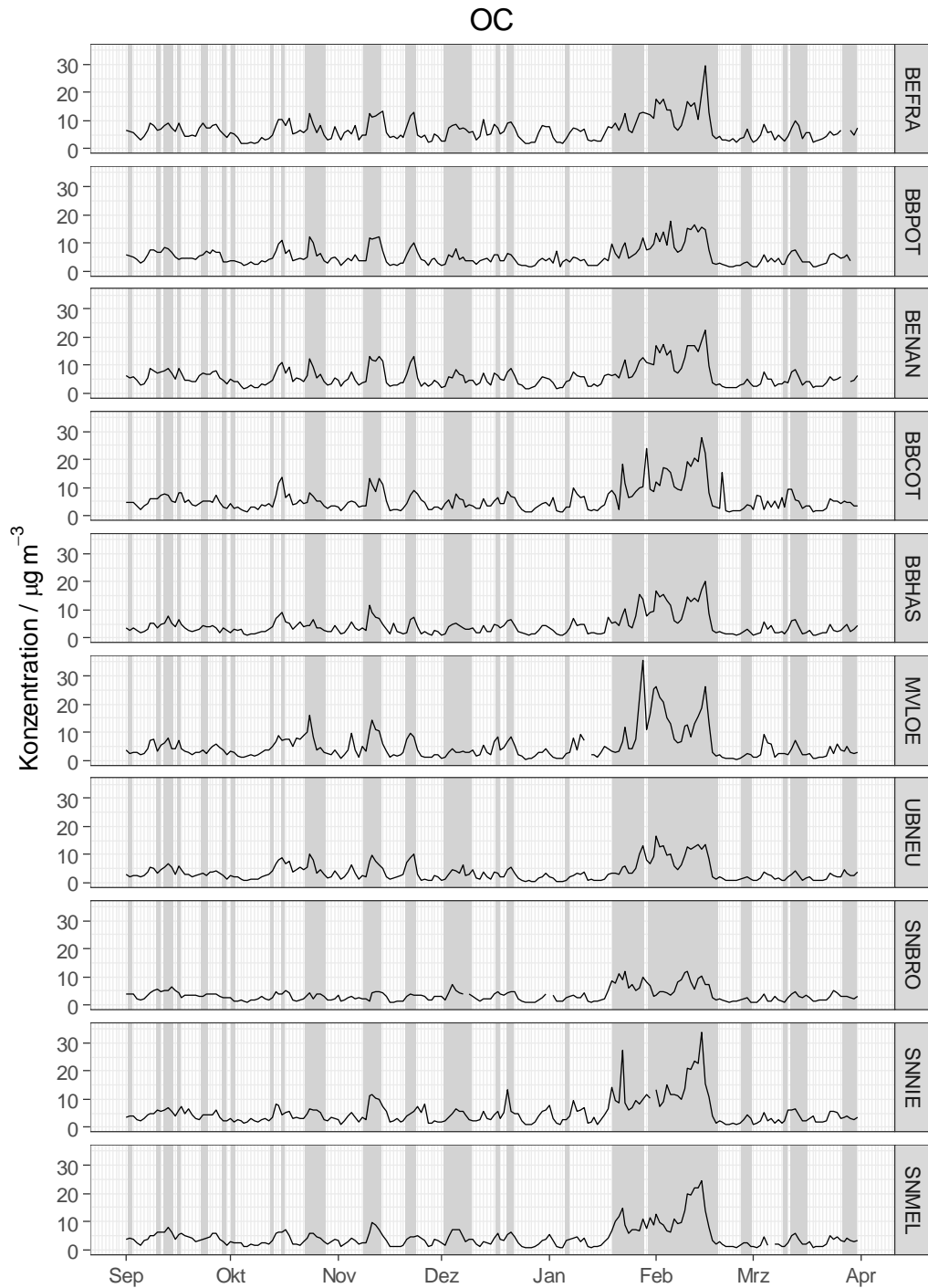


Abbildung 16: Tägliche Konzentration von OC im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

Die höchsten absoluten Konzentrationen treten an den Verkehrsstationen BEFRA und BBPOT auf. Auch die Stationen im städtischen Hintergrund (BENAN, BBCOT) zeigen erhöhte Konzentrationen, die sowohl lokal als auch durch Ferntransport verursacht sein können. Schaut man auf die verbleibenden Stationen im ländlichen Hintergrund, sind die Konzentrationen an den Stationen, die im Untersuchungsgebiet weiter östlich liegen (MVLOE, SNNIE, SNMEL) verglichen mit den anderen höher. Dies ist deutlich an den SMT im Januar und Februar zu sehen. Hier wird OC wahrscheinlich zu einem großen Teil mit ferntransportierten Luftmassen aus östlicher Richtung ins Untersuchungsgebiet verfrachtet. Wie auch bei der PM10- Massekonzentration (vgl. Abbildung 13) sind die OC-Konzentrationen für UBNEU und SNBRO am geringsten. Auch für OC zeigt sich, wie schon bei der Partikelmasse, ein über alle Stationen im Untersuchungsgebiet qualitativ ähnliches Konzentrationsmuster, was auf ähnliche Luftmassen und Witterungseinflüsse schließen lässt.

3.1.4 EC

In Abbildung 17 ist der zeitliche Verlauf der täglichen Partikelmassenkonzentration von EC im PM10 gezeigt.

Die Konzentrationen sind auch hier an den SMT höher als im sonstigen Verlauf. Im Vergleich zum OC, dargestellt in Abbildung 16, bilden sich an den beiden Verkehrsstationen (BEFRA, BBPOT) über den gesamten Verlauf Tage mit höheren Konzentrationen ab. Eine Ursache dürften hier die anthropogenen Emissionen von Ruß aus mobilen Quellen sein. Die Stationen im städtischen Hintergrund (BENAN, BBCOT) zeigen schon eine geringere EC Konzentration, was sich zu den Stationen im ländlichen Hintergrund hin fortsetzt. Auch hier sind die mittleren EC- Konzentrationen noch etwas unterschiedlich. Leicht erhöhte Konzentrationen werden an den vom Ferntransport aus östlicher Richtung häufig erreichten Stationen (MVLOE, SNNIE, SNMEL) angezeigt und die geringsten EC- Konzentrationen im Untersuchungsgebiet zeigen die aufgrund ihrer geografischen Lage von EC- Emissionen fernen ländlichen Stationen UBNEU, SNBRO und BBHAS. Auch im Falle von EC lässt die Ausprägung eines qualitativ ähnlichen Konzentrationsmusters über alle Stationen im Untersuchungsgebiet auf den Einfluss ähnlicher Luftmassen und Wettersituationen schließen.

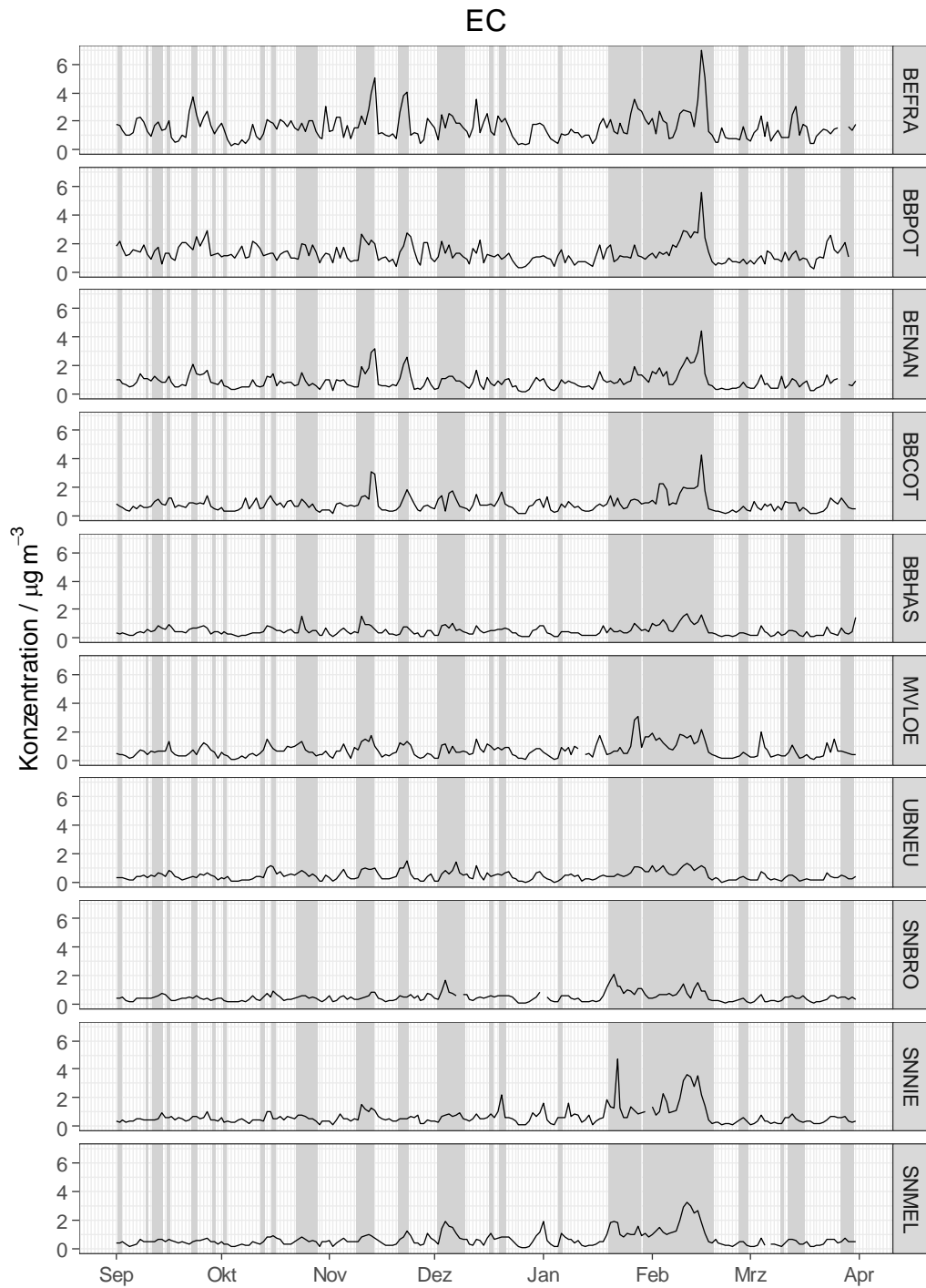


Abbildung 17: Tägliche Konzentration von EC im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

Einordnung in die Langzeitmessreihe der Messstation SNMEL

Abbildung 18 zeigt die Konzentrationen an EC in PM10 für die Station SNMEL für den vorliegenden Projektzeitraum in Ergänzung zu der existierenden Langzeitmessreihe an dieser Messstation im ländlichen Hintergrund.

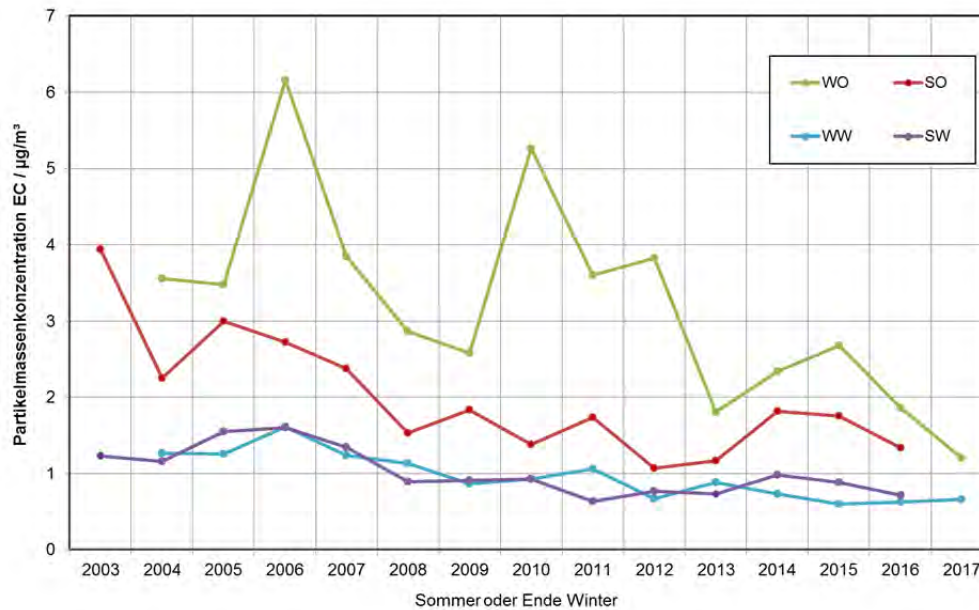


Abbildung 18: Jahreszeitenmittel für EC (Sommer und Winter), Einordnung nach Anströmung (Ost/West) und Jahreszeit (Sommer/Winter) AIWE, vergleiche Kapitel 2.4.1. Für 2015, 16 und 17 wurden die EC- Konzentrationen für das thermographische Verfahren nach VDI ausgehend vom thermooptischen Verfahren (Temperaturprotokoll EUSAAR2 und Transmission) abgeschätzt. Für den Winter 2016/17 im Projektzeitraum wurden nur 5 Monate (NDJFM) gemittelt.

Abbildung 18 zeigt, dass die Jahreszeitenmittel der EC-Konzentration mit Schwankungen zwischen den Jahren fallen. Am stärksten ausgeprägt ist das bei Ostanströmung im Winter. Bei westlicher Anströmung sind die Winter- und Sommerkonzentrationen am kleinsten und zeigen einen nur schwach fallenden Trend. Der Winter 2016/17 fällt mit fünf Monaten (NDJFM) in den Projektzeitraum, besonders bei östlicher Anströmung ist die EC-Konzentration hier im Vergleich zu den Vorjahren weiter zurückgegangen, was auf weiter gesunkene anthropogene EC-Emissionen hindeutet. Die hohe Variabilität der EC-Konzentration bei östlicher Anströmung im Winter, wird durch meteorologisch unterschiedliche Charakter der jeweiligen Winter geprägt. Kalte Winter weisen häufig östliche Anströmungen mit Transport von EC aus anthropogenen Verbrennungsprozessen auf. Einen weiteren Einfluss haben die individuellen Wege der jeweiligen Trajektorien über Areale mit hohen anthropogenen Emissionen (Ballungsgebiete) bzw. ländliche Räume mit weniger Emissionen Diese Tatsache erschwert die Vorhersage eines Winters für das Untersuchungsgebiet hinsichtlich seiner PM- Belastung

3.1.5 Sulfat

In Abbildung 19 ist der zeitliche Verlauf der täglichen Partikelmassenkonzentration für Sulfat im PM10 gezeigt.

Für BBPOT lagen keine Sulfatmessungen vor. Sulfat zeigt den typischen Verlauf für einen anthropogenen Anteil im ferntransportierten Aerosol. Sulfat entsteht hauptsächlich durch Oxidation aus primär emittiertem SO₂. Typisch dafür sind vergleichbare Konzentrationen im gesamten Untersuchungsgebiet und keine erhöhten Konzentrationen an der Verkehrsstation BEFRA. Es fallen die relativ hohen Konzentrationen an den SMT auf, insbesondere an den kalten Wintertagen im Januar und Februar. Die etwas unterschiedlichen Muster der Sulfatkonzentration an den Stationen im Untersuchungsgebiet können bedingt sein durch aus östlicher Richtung mit dem Ferntransport herangeführte Luftmassen, die auf ihrem Weg unterschiedliche Emissionsgebiete für SO₂ (bedingt z. B. durch Kohlenheizung) überströmt haben. Über den Untersuchungszeitraum zeigt sich, dass die Sulfatkonzentrationen aufgrund gut durchmischter Wetterlagen eher gering sind. Einzelne Konzentrationsspitzen werden für SO₂ und Sulfat häufig durch Aufbrechen der nächtlichen Inversionsschicht über den einzelnen Stationen beobachtet, da in größerer Höhe SO₂ und Sulfat in anthropogenen Luftmassen ferntransportiert werden.

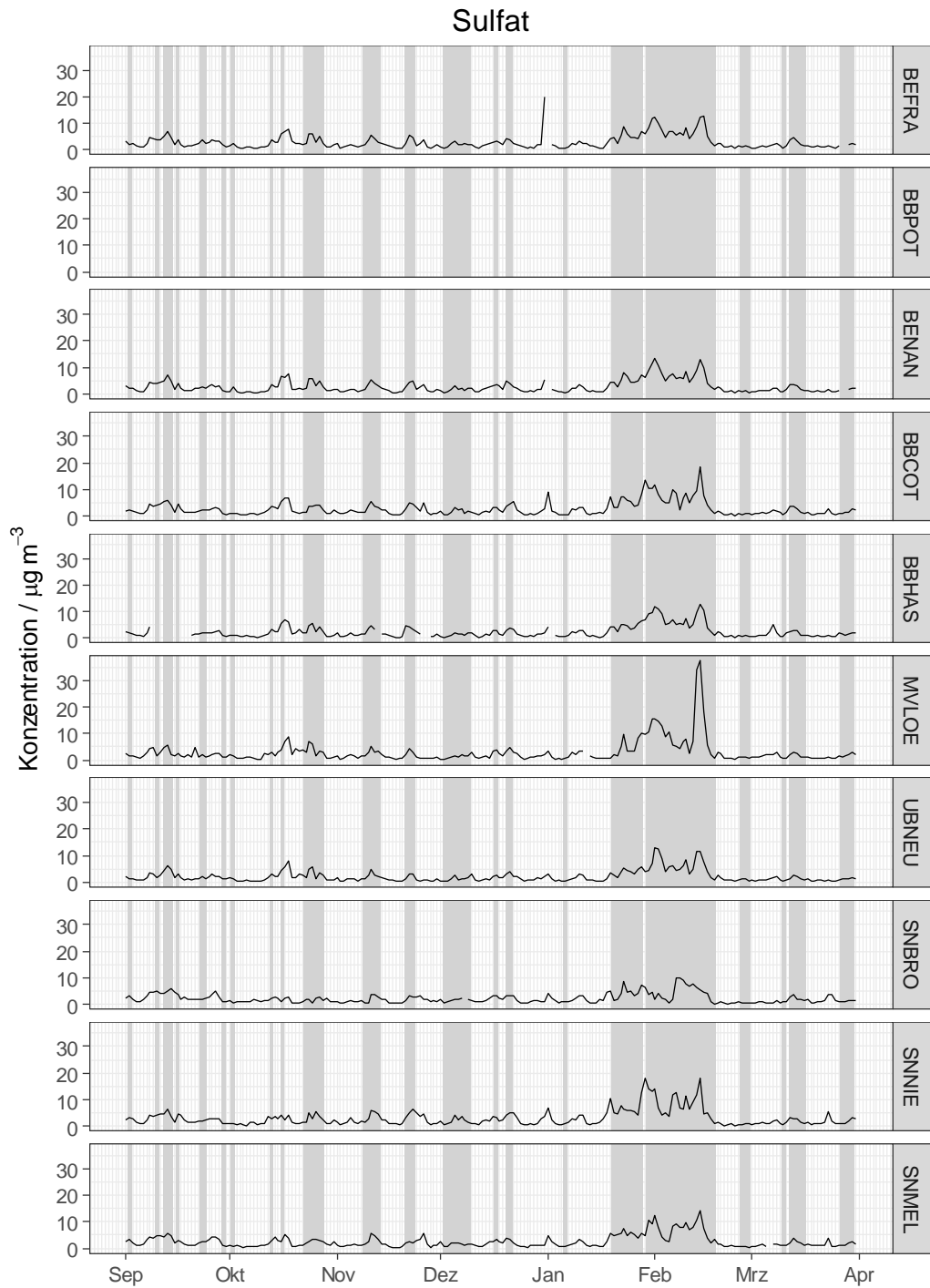


Abbildung 19: Tägliche Konzentration von Sulfat im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

Einordnung in die Langzeitmessreihe der Messstation SNMEL

Abbildung 20 zeigt die Sulfatkonzentrationen in PM10 für die Station SNMEL für den vorliegenden Projektzeitraum eingeordnet in die existierende Langzeitmessreihe an dieser Messstation im ländlichen Hintergrund.

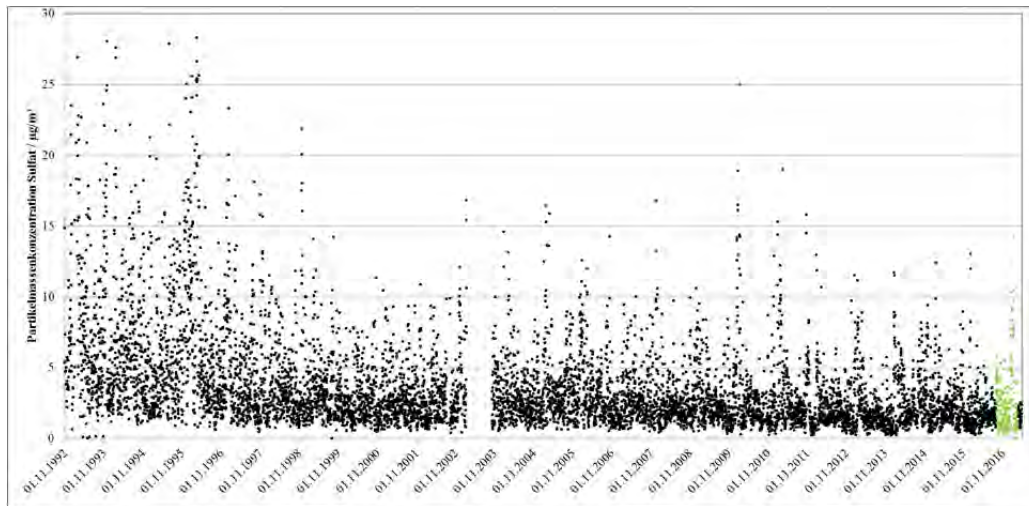


Abbildung 20: Verlauf der täglichen Sulfatkonzentration in PM10 an der Station SNMEL seit 1992. Die Ergebnisse der 212 Tage des PM-OST Projektes sind in grün gezeigt.

Wie bereits in Kapitel 3.1.1 für die PM10- Massekonzentration beobachtet, zeigt sich auch für die Sulfatkonzentration im Projektzeitraum ein leicht fallender Trend. Der Mittelwert für den Messzeitraum in PM-OST ist mit $2,5 \mu\text{g m}^{-3}$ den Ergebnissen aus den vorangegangenen Jahren 2015/16, 2014/15 und 2013/14 mit 2,05, 3,09 und $2,11 \mu\text{g m}^{-3}$ sehr ähnlich.

3.1.6 Nitrat

In Abbildung 21 ist der tägliche Verlauf der Partikelmassekonzentration von Nitrat im PM10 dargestellt.

Für BBPOT lagen keine Nitratkonzentrationen vor. Nitrat wird hauptsächlich, über die Oxidation von Stickoxiden gebildet und kann damit indirekt auf mobile Quellen (Kraftfahrzeuge) und stationäre Quellen (Kraftwerke und Heizungsanlagen) hinweisen. Ammoniumnitrat ist thermisch nicht stabil und geht bei höheren Temperaturen als Ammoniak und Salpetersäure in die Gasphase über. Gut zu erkennen ist der Anstieg der Nitratkonzentration mit Einsetzen der Heizperiode im Oktober. Davor (September bis Mitte Oktober) waren die Konzentrationen, eher gering. Ein Teil des thermisch flüchtigen Ammoniumnitrates liegt hier wegen der noch höheren Temperaturen als Ammoniak und Salpetersäure vor.

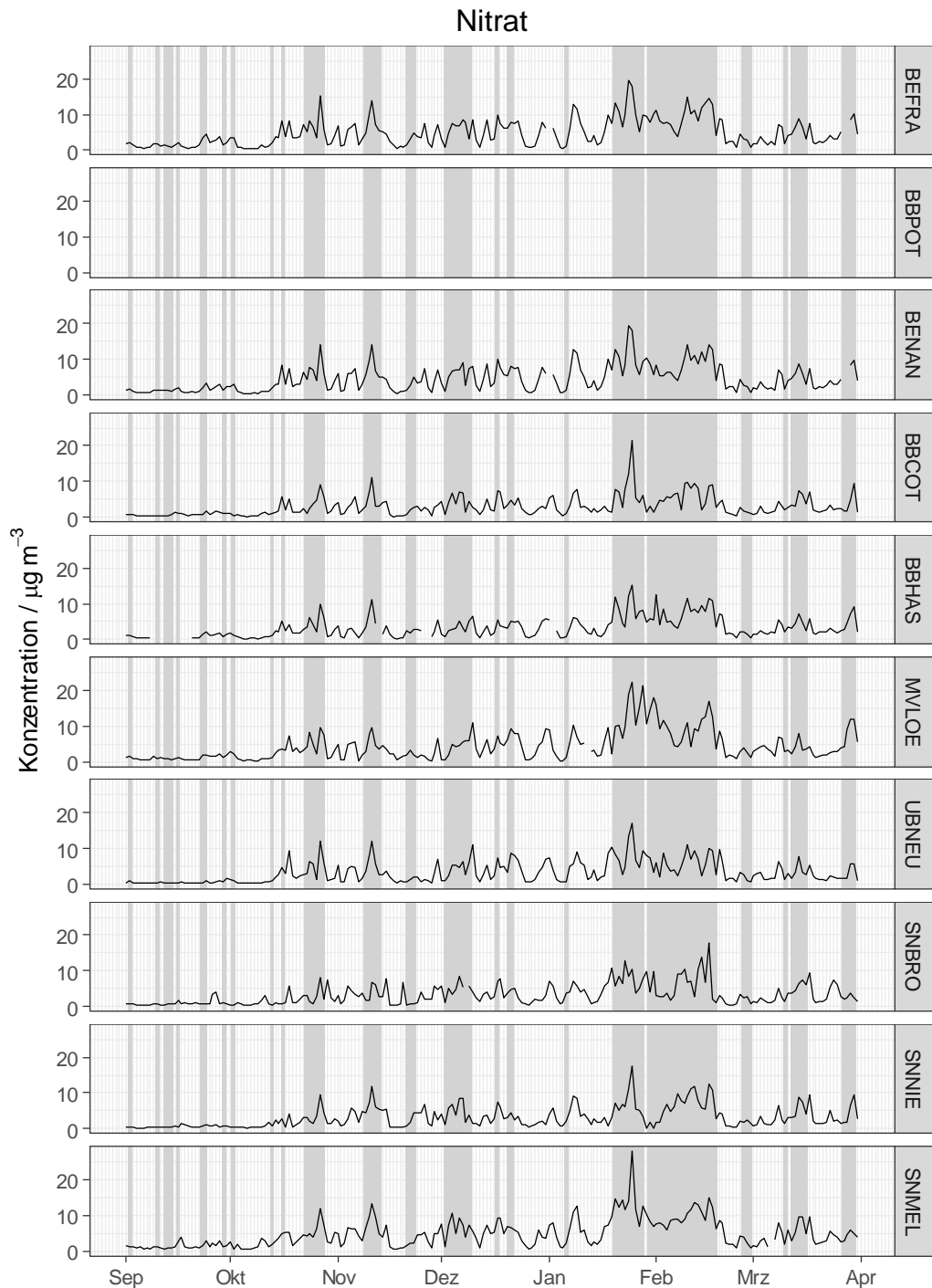


Abbildung 21: Tägliche Konzentration von Nitrat im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

Die Nitratkonzentrationen an der Verkehrsstation BEFRA sind im Vergleich zu den Stationen im ländlichen Hintergrund nur unwesentlich höher, da die lokale Bildung von Nitrat nur von untergeordneter Bedeutung ist. Generell treten höhere Nitratkonzentrationen, wahrscheinlich verursacht durch Ferntransport, im

Winter (Ende Januar/Anfang Februar) auf. Vergleicht man alle Stationen im Untersuchungsgebiet zeigt sich ein qualitativ ähnlicher Konzentrations-Zeitverlauf, was auf den Einfluss ähnliche Anströmungsverhältnisse und Luftmassen schließen lässt.

3.1.7 Levoglucosan

Abbildung 22 zeigt den Verlauf täglicher Messungen der Konzentration von Levoglucosan im PM₁₀. Levoglucosan gilt als die beste verfügbare Markerverbindung für Biomasseverbrennung z. B. Holz oder Braunkohle (Simoneit et al. 1999; Fabbri et al. 2008; Fabbri et al. 2009) und ist deshalb eine wichtige Spezies der Quellzuordnung von anthropogenen Aerosolbestandteilen. Aufgrund seiner Lebensdauer in Biomasseverbrennungsaerosolen (Henning et al. 2010) ist es nicht nur für lokale Emissionen, sondern auch für regionale oder bei kalter Witterung für Ferntransport charakteristisch.

Aus Abbildung 22 wird ersichtlich, dass nur für die Station SNMEL Daten über den gesamten Untersuchungszeitraum vorliegen. Für die anderen ausgewählten Stationen liegen Levoglucosankonzentrationen nur für die Sondermesstage vor. Für BBPOT, BBCOT und SNBRO sind keine Levoglucosanismessungen vorhanden. Die beobachteten Konzentrationen zeigen innerhalb der SMT, vor allem im Januar und Februar erhöhte Werte. Auch an den SMT der zweiten Oktoberhälfte, wie auch im November und Dezember weisen kurzzeitig erhöhte Levoglucosankonzentrationen auf einen deutlichen Biomasseverbrennungsanteil im PM₁₀-Aerosol hin. Die Station MVLOE zeigt hier die höchsten Konzentrationen, was auf Hausbrandemissionen (Braunkohleverbrennung) aufgrund ihrer Nähe zum Ballungsraum Szczecin schließen lässt. Das Muster der täglichen Levoglucosankonzentration zeigt zwar qualitative Ähnlichkeiten im Verlauf mit allen anderen Stationen, es kommt aber hier auch zwischen den Stationen im ländlichen Hintergrund zu Unterschieden, was auf die Überströmung unterschiedlicher Biomasseverbrennungsquellen während des Luftmassentransportes schließen lässt. Erwartungsgemäß niedrige Werte treten während der wärmeren Tage mit geringeren Emissionen durch Biomasseverbrennung im September und Oktober an allen Stationen auf.

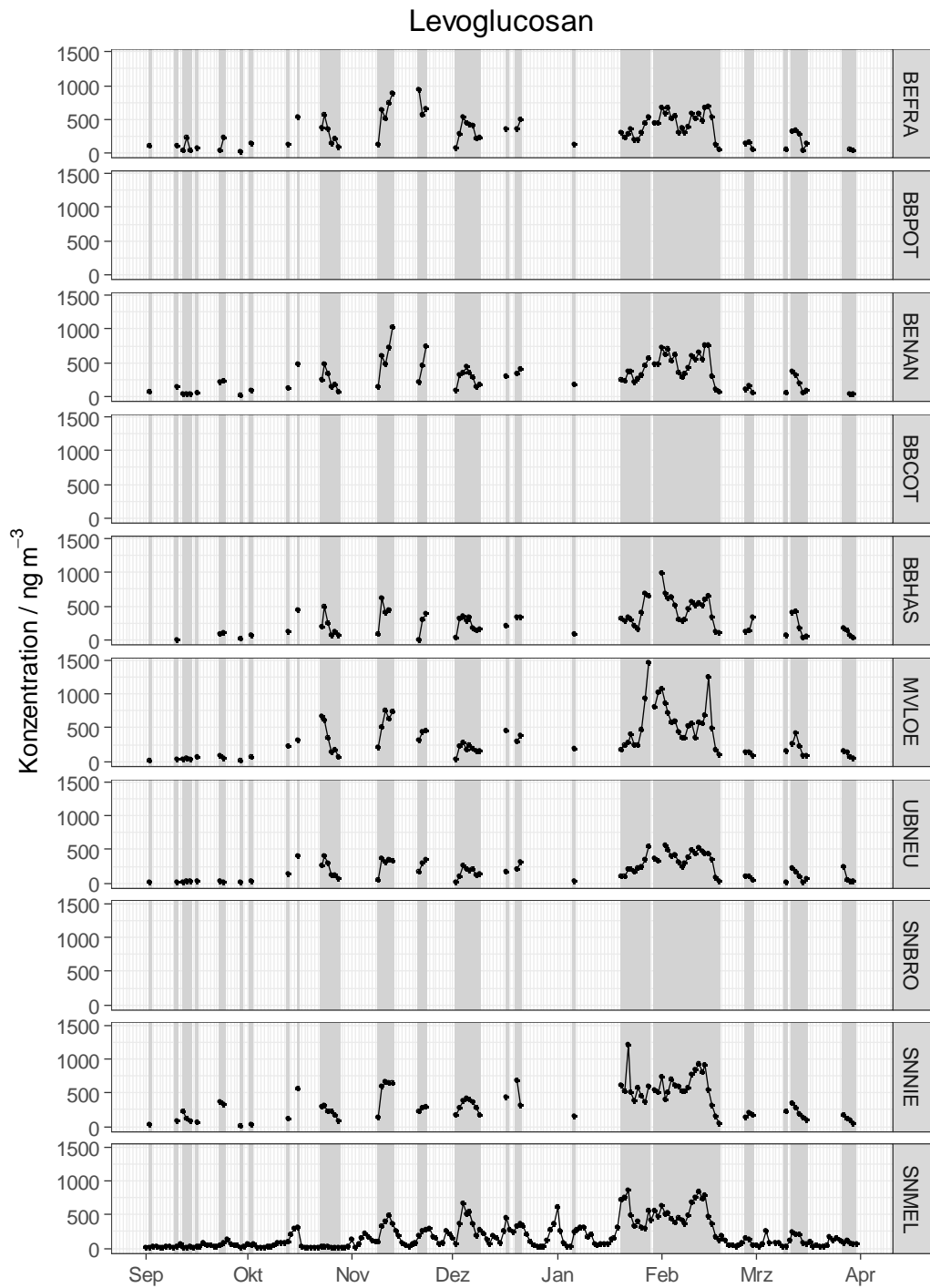


Abbildung 22: Tägliche Konzentration von Levoglucosan im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

3.1.8 BaP

Abbildung 23 zeigt den Verlauf täglicher Messungen der Konzentration von BaP im PM10, als einziger Vertreter der PAKs, der an allen Stationen gemessen wurde. Allerdings mit der Einschränkung, dass BaP nur an den 4 Stationen BBPOT, BBCOT, BBHAS und MVLOE für alle Tage des Messzeitraumes analysiert wurde. An allen anderen Stationen liegen die Ergebnisse nur für die SMT vor.

BaP, als ein typischer Verbrennungstracer tritt mit Beginn der Heizperiode (Mitte Oktober) episodenhaft in höheren Konzentrationen auf. Innerhalb der SMT im Winter an kalten Tagen werden die höchsten Konzentrationen erreicht. Für hohe Konzentrationen an BaP spielt dabei Ferntransport in Kombination mit lokalen Quellen eine große Rolle und es zeigen sich variierende Konzentrationsverläufe für die einzelnen Stationen. Verursacht werden diese Variationen höchstwahrscheinlich durch unterschiedliche Entfernungen zu unterschiedlich starken Quellen bei variierenden Mischungsschichthöhen. So sind die Konzentrationen im Zeitraum Mitte Januar bis Februar für die Stationen SNBRO und UBNEU auf Grund der geographischen Lage kleiner, als an den anderen Stationen im ländlichen Hintergrund. Dieser Effekt wurde so auch für die PM10-Partikelmassekonzentration nachgewiesen (vgl. Kapitel 3.1.1) An der Verkehrsstation BEFRA und an der urbanen Messstation BENAN sind die Konzentrationen ebenfalls auffallend kleiner. Über die Ursache kann nur spekuliert werden, wahrscheinlich addieren sich zu den Emissionen aus Verbrennungsmotoren an beiden Stationen nur geringe Mengen an auftretenden lokalen Quellen des Verbrennungsaerosols aus stationären Heizungsanlagen.

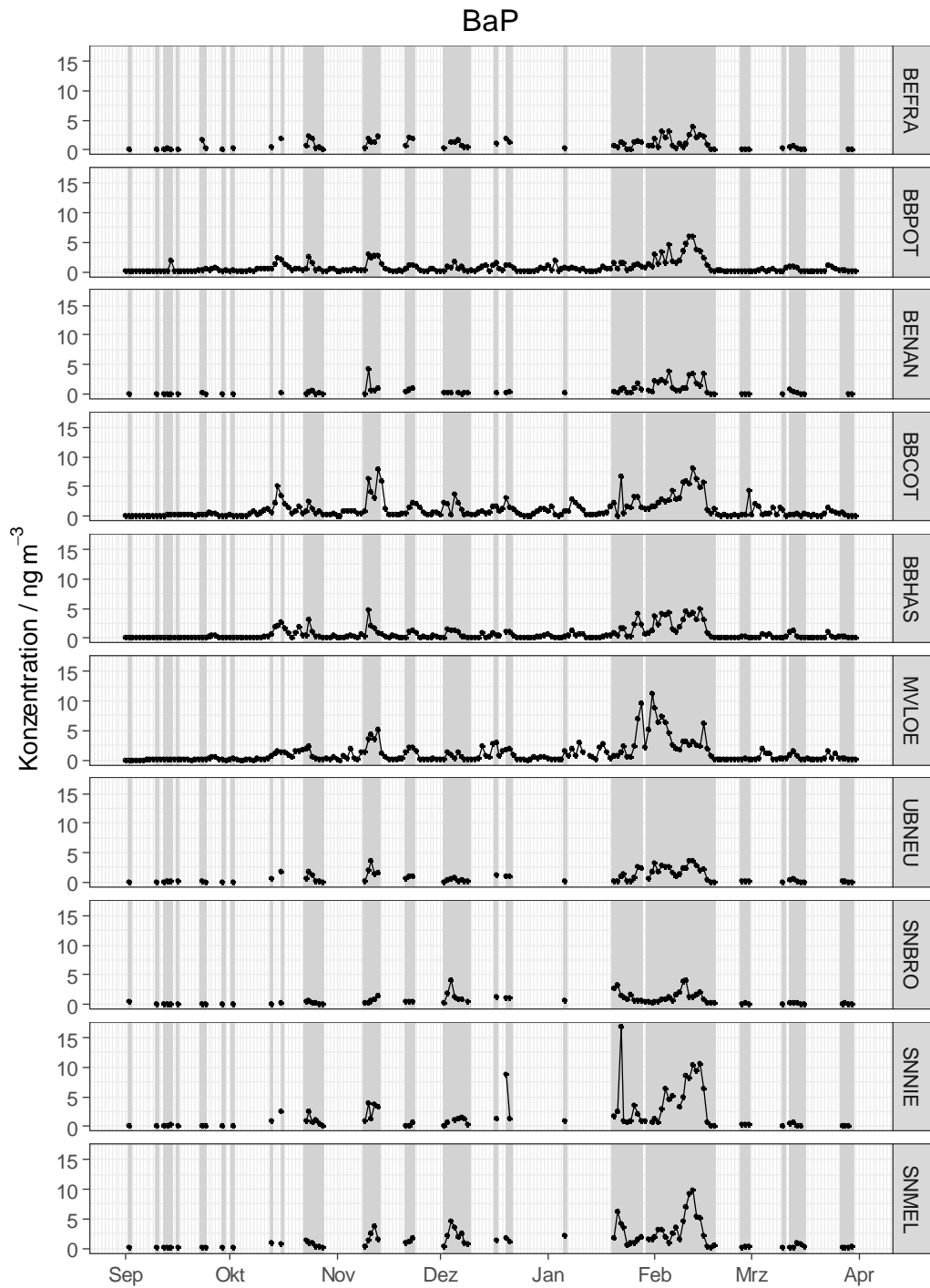


Abbildung 23: Tägliche Konzentration von Benzo(a)pyren im PM10 für die einzelnen Messstationen im Untersuchungszeitraum; SMT grau hinterlegt.

3.2 PM10- Massekonzentration und ausgewählte Inhaltsstoffe in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik, den Belastungskategorien und den Großwetterlagen

Im Folgenden werden für alle Stationen in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik: Alle Tage, (Nicht-) Überschreitungstage, Werkstage (Mo-Fr) und Wochenende (Sa/So/Feiertage) und von den Belastungskategorien diskutiert: die Partikelmassenkonzentration PM10, die Massenkonzentrationen der ausgewählten Inhaltsstoffe OC, EC, Sulfat, Nitrat, Levoglucosan und BaP. Dabei sind gegenläufige Ausprägungen in den Tagen und Kategorien jeweils benachbart dargestellt. Vergrößerte Einzelplots zur Partikelmassekonzentration und allen verfügbaren Inhaltsstoffen im PM10 an den einzelnen Stationen sind im Anhang vorhanden (Abbildung A 92 bis Abbildung A 111). Die Diskussion zum Einfluss der Großwetterlagen erfolgt abschließend in Kapitel 3.2.10 und auch ausschließlich für die Partikelmassekonzentration PM10.

Die Ergebnisdarstellung erfolgt mit Ausnahme von Abbildung 32 (Stapeldiagramm, Kapitel 3.2.9) stets als sogenannte Boxplots (auch als Box-Whisker-Plots bezeichnet). Dabei markieren das untere und obere Ende der Box (rechteckiger Kasten) das untere bzw. obere Quartil (d. h. das 25. und 75. Perzentil) der Verteilung. Die waagerechte Linie innerhalb der Box zeigt den Median (50. Perzentil) und die Enden der senkrechten Linie markieren den untersten und obersten Messwert innerhalb des 1,5 fachen Interquartilabstandes (interquartile range, IQR). Messwerte außerhalb dieses Bereiches werden als Punkte eingezeichnet und können so leicht als extrem hohe (bzw. extrem niedrige) Messwerte identifiziert werden. Diese Art der Darstellung erlaubt zum einen eine schnelle und realistische Einschätzung der Variabilität der Messwerte und zum anderen sind die Kenngrößen (Perzentile) im Vergleich zum arithmetischen Mittel allein betrachtet statistisch robuster, d. h. weniger beeinflusst durch einzelne Extremwerte. Als zusätzliche Information wird der arithmetische Mittelwert als Kreuz in den Diagrammen ebenfalls mit gezeigt.

3.2.1 PM10- Massekonzentration

Abbildung 24 zeigt die Partikelmassekonzentration PM10 an den 10 Stationen für die verschiedenen Tagescharakteristiken und Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen jeweils benachbart dargestellt sind.

Während die PM10- Massekonzentrationen aufgrund der Anzahl und Häufigkeit der Messtage für „Alle“ und die „Nichtüberschreitungstage“ recht ähnlich sind, zeigt sich erwartungsgemäß der deutlichste Unterschied in den PM10- Massekonzentrationen mit den höchsten Werten an Grenzwertüberschreitungstagen. Die Anzahl dieser Überschreitungstage ist im ländlichen Hintergrund am kleinsten und am größten an den Verkehrsstationen. Bei Betrachtung

tung der PM10- Massekonzentrationen an Werktagen (Mo-Fr) im Vergleich zu Wochenendtagen (Sa, So, Feiertage) geht aus der hier gezeigten Darstellung kein signifikanter Unterschied hervor. Für die Belastungskategorien zeigen sich Unterschiede in der PM10- Massekonzentration sowohl zwischen den Stationen als auch paarweise und qualitativ vergleichbar in den Belastungskategorien. An den Verkehrsstationen BEFRA und BBPOT und im städtischen Hintergrund BENAN und BBCOT sind die Konzentrationen größer als im ländlichen Hintergrund. Die qualitativen Unterschiede zwischen einzelnen Belastungskategorien sind an den beiden Stationen im ländlichen Hintergrund UBNEU und SNBRO, die auch im Verlauf der täglichen PM10 Massenkonzentration kleine Werte aufwiesen (vgl. Abbildung 13), stärker ausgeprägt. Für SNBRO und UBNEU ist die Massekonzentration bei östlicher Anströmung im relativen Vergleich zur westlichen Anströmung höher. Ursache dafür sind fehlende Emissionen in der Umgebung der Stationen, wodurch sich der Einfluss des Ferntransportes stärker ausprägt.

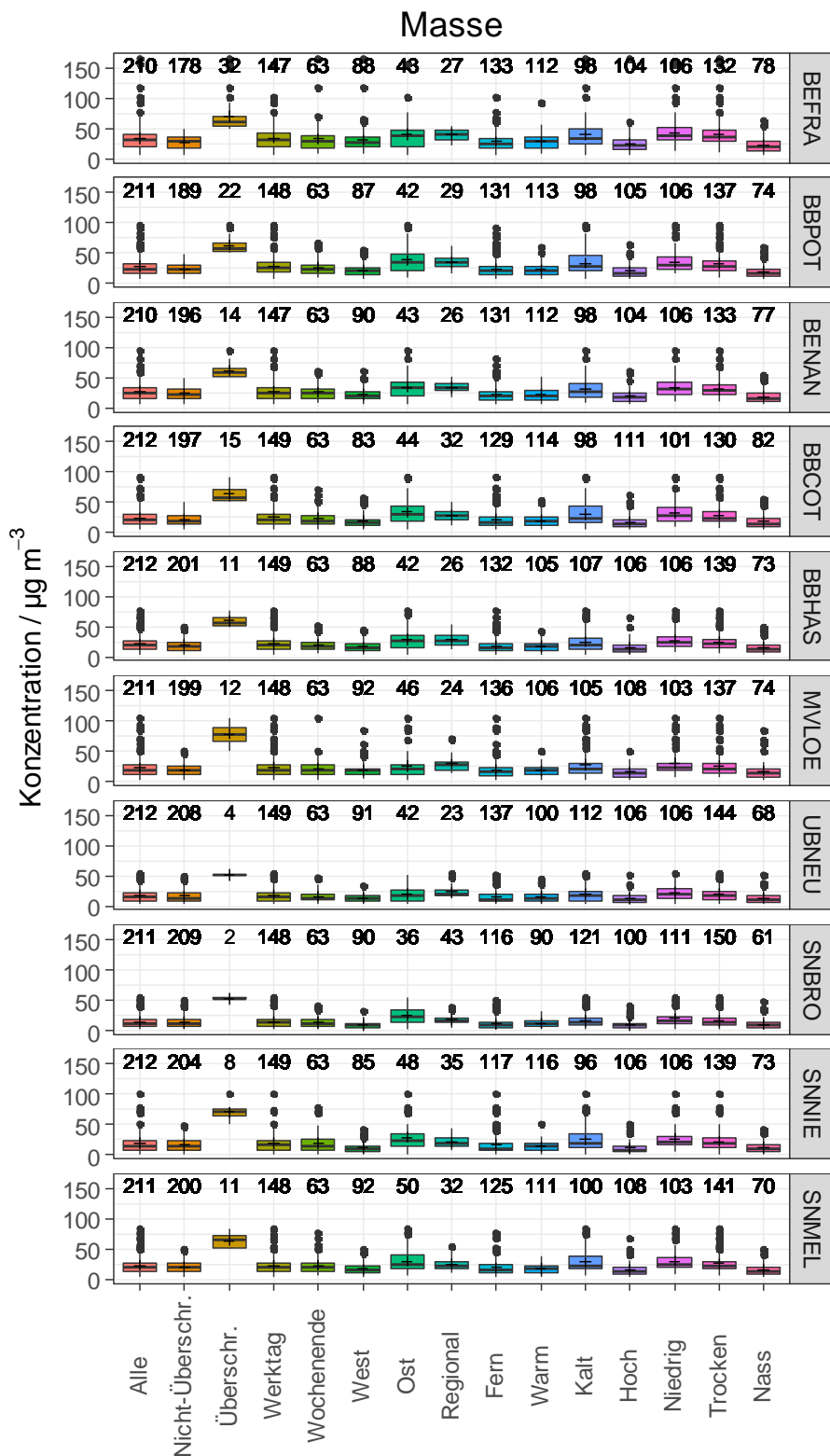


Abbildung 24: PM10- Massekonzentration für alle Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

Damit im Einklang steht auch der relativ große Unterschied zwischen „Regional“ und „Fern“ an allen Stationen. Unabhängig von Transport und Raumskala bewirkt eine hohe Grenzschicht eine stärkere Durchmischung (Verdünnung) an allen Stationen. An Tagen mit Niederschlag sind die PM10- Massekonzentrationen an allen Stationen immer geringer als an trockenen Tagen. Die Streuung der Konzentrationen der Einzelmessstage in den Kategorien Ost, Fern, Kalt, Niedrig und Trocken deutet sowohl auf einzelne Nahquellen aber auch auf Ferntransport von Luftmassen über einzelne isolierte Quellen in einer relativ schlecht durchmischten Atmosphäre hin.

3.2.2 Verhältnis PM_{2,5} / PM₁₀

Für Abbildung 25 wurden zunächst die Stundenwerte für PM_{2,5} und PM₁₀, gemessen mit einem TEOM-FDMS (Tapered Element Oscillating Microbalance, Filter Dynamics Measurement-System) oder EDM180 (Environmental Dust Monitor, Grimm), über den Tag (24 Stunden) gemittelt. Aus diesen Tagesmittelwerten wurde dann das Verhältnis berechnet. PM_{2,5} / PM₁₀ liegt für vier Stationen (BBPOT, BBCOT, BBHAS und MVLOE) vor.

Das PM_{2,5} / PM₁₀- Verhältnis zeigt an allen Stationen für Tagescharakteristik und Belastungskategorien ein ähnliches Muster und ist an der Hintergrundstation MVLOE etwas kleiner als an den anderen drei Stationen. Hinsichtlich der Tagescharakteristik ergeben sich für die „Überschreitungstage“ gegenüber den „Nicht-Überschreitungstagen“ höhere Verhältnisse (größerer Anteil PM_{2,5}). Dabei zeigen die Überschreitungstage eine geringere Streuung, was allerdings durch ihr zahlenmäßig geringeres Auftreten gegenüber „Nichtüberschreitungstagen“ bedingt ist. „Wochentage“ haben gegenüber „Wochenendtagen“ einen größeren Anteil Grobstaub PM₁₀, was sich hauptsächlich über den Einfluss des Verkehrs (Aufwirbelung) und Bautätigkeit erklären lässt. Tatsächlich ist der Unterschied an der Verkehrsstation BBPOT auch am größten. Ein Einfluss landwirtschaftlicher Aktivitäten sollte sich hier nicht bemerkbar machen, da diese auch an Samstagen, Sonn- und Feiertagen stattfinden. Beim Vergleich zwischen West- und Ostanströmung zeigt sich mit dem teilweise bei Ostanströmung kleiner werdenden Verhältnis der höhere Anteil von Grobstaub PM₁₀. Eine Ursache dürfte darin liegen, dass kontinentale Wetterlagen weniger Niederschlag als maritime Westanströmungen mit sich bringen. Von abgetrockneten Oberflächen kommt es dann eher zur Reemission von Krustenmaterial.

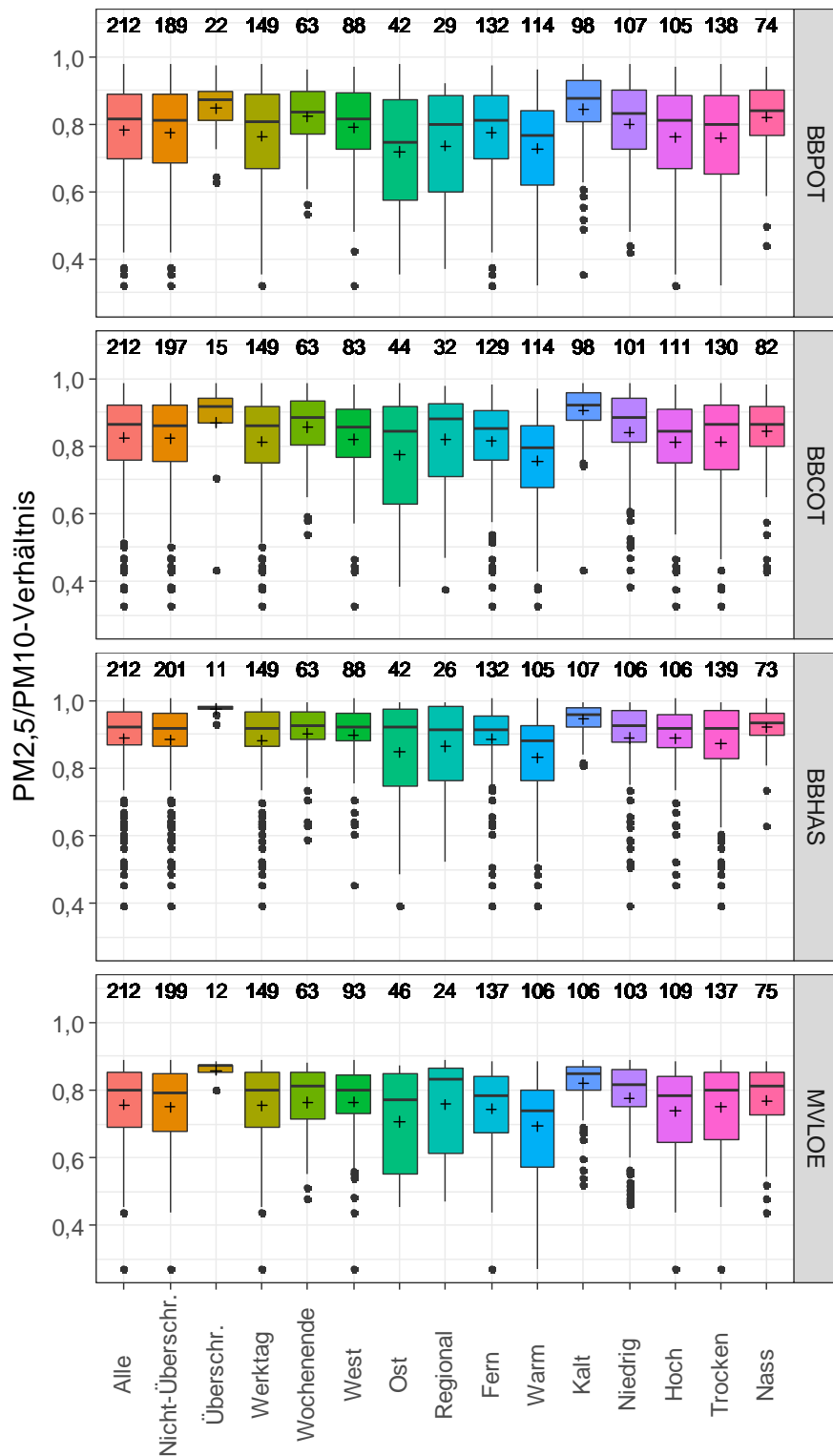


Abbildung 25: Verhältnis der PM_{2,5} / PM₁₀- Massekonzentration für „Alle“ Messtage, in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für die Messstationen BBPOT, BBCOT, BBHAS und MVLOE. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messtage.

Bei regionaler Anströmung und bei Ferntransport sind die Verhältnisse nahezu vergleichbar, allerdings ist die Verteilung bei regionaler Anströmung in Richtung kleinerer Verhältnisse verschoben, was teilweise auf den Einfluss von Grobstaub zurückgeführt werden kann (Emissionen in der Umgebung, Aufwirbelung). Bei kalter Witterung nimmt der Anteil von PM_{2,5} zu, hier können zusätzliche Emissionen von PM_{2,5} aus Heizungen wirken. Bei warmer Witterung sinkt das Verhältnis durch den zeitweisen Einfluss von Grobstaub wieder ab. Bei einem geringeren Mischungsvolumen nimmt der PM_{2,5} Anteil ebenfalls zu (Emissionen), bei besserer Durchmischung steigt der Grobstaubanteil PM₁₀ (z. B. durch Reemissionen von trockenen Oberflächen). Beim Witterungscharakter „Nass“ sinkt durch Auswaschen von PM₁₀ der Grobstaubanteil.

3.2.3 OC

Abbildung 26 zeigt die Konzentration von OC im PM₁₀ an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind.

In der Tagescharakteristik zeigt OC an den „Überschreitungstagen“ besonders hohe Konzentrationen, dieser Effekt ist im ländlichen Hintergrund (SNMEL, SNNIE, SNBRO, UBANEU, MVLOE, BBHAS) durch Ferntransport stark ausgeprägt und nimmt in Richtung der Verkehrsstationen ab. Hier machen sich zusätzlich lokale Emissionen bemerkbar. Ein Unterschied zwischen Werktagen und Wochenendtagen kann für OC im PM₁₀ hier nicht nachgewiesen werden. Allerdings zeigen sich relativ hohe OC-Konzentrationen an den Verkehrsstationen und im städtischen Hintergrund BENAN und BBCOT verglichen mit den ländlichen Stationen. Auffallend ist für alle Stationen ein relativ hoher OC-Gehalt der Luftmasse bei östlicher Anströmung, wahrscheinlich verursacht durch Ferntransport. Auch an trockenen kalten Tagen mit niedriger Grenzschicht ist die OC-Konzentration im PM₁₀ erhöht. Es zeigen sich hohe OC-Konzentrationen an allen Messstationen für die regionale Raumskala, insbesondere für die Messstation MVLOE.

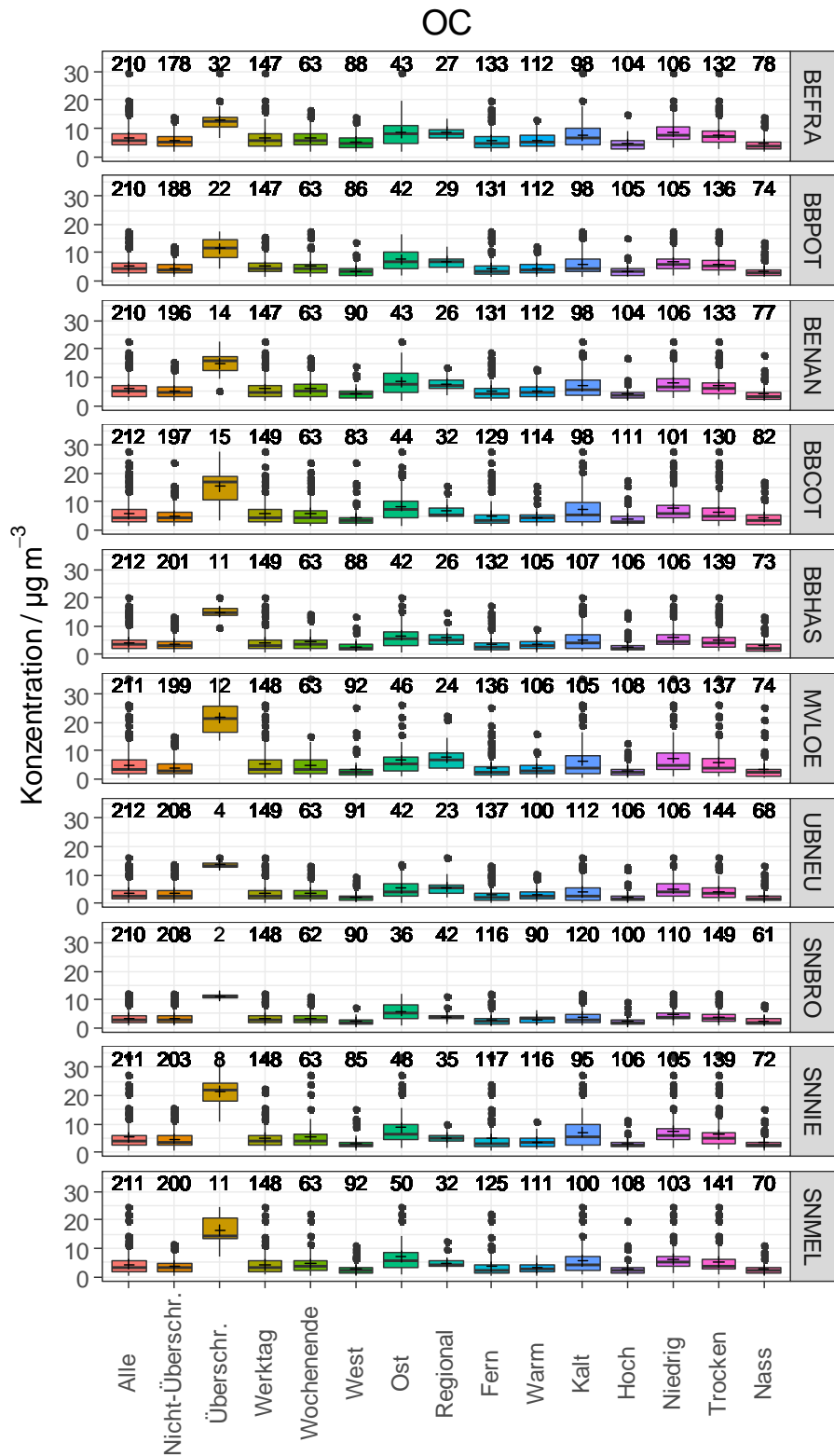


Abbildung 26: OC für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.4 EC

Abbildung 27 zeigt die Konzentration von EC im PM10 an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind.

Für „Überschreitungstage“ treten im Vergleich zu „Nicht-Überschreitungstagen“ sehr hohe EC- Konzentrationen an den weiter östlich liegenden ländlichen Stationen auf (quellnah). In der Tagescharakteristik zeigt EC als lokale Quelle hohe Konzentrationen zum städtischen Hintergrund hin. Ein wesentlicher Unterschied zwischen Werktagen und Wochenendtagen lässt sich nicht feststellen. Die höchsten EC- Konzentrationen treten bedingt durch Ruß aus Verbrennungsmotoren an den Verkehrsstationen BEFRA und BBPOT auf. Auch im städtischen Hintergrund finden sich leicht höhere Konzentrationen (BENAN und BBCOT) als im ländlichen Hintergrund. Die Variationen der EC- Konzentration im PM10 sind innerhalb der Kategorien zwischen den Eigenschaftspaaren unterschiedlich. Dabei ist die Ausprägung höherer Konzentrationen von EC bei östlicher gegenüber westlicher Anströmung oder zwischen der Temperatur „Warm“ und „Kalt“ gut zu erkennen. Für die höheren Konzentrationen bei „Kalt“ dürften stärkere Emissionen aus Heizungen die Ursache sein. Die Unterschiede für die Grenzschichthöhe zwischen „Hoch“ und „Niedrig“ sind für EC schwächer ausgeprägt als für OC (vgl. Kapitel 3.2.3). Eine Ursache dafür könnte darin liegen, dass EC- Emissionen aus Verbrennungsprozessen eher in Bodennähe auftreten. Dies könnte auch die geringere Wirkung des Auswaschprozesses für die Witterung „Nass“ teilweise erklären.

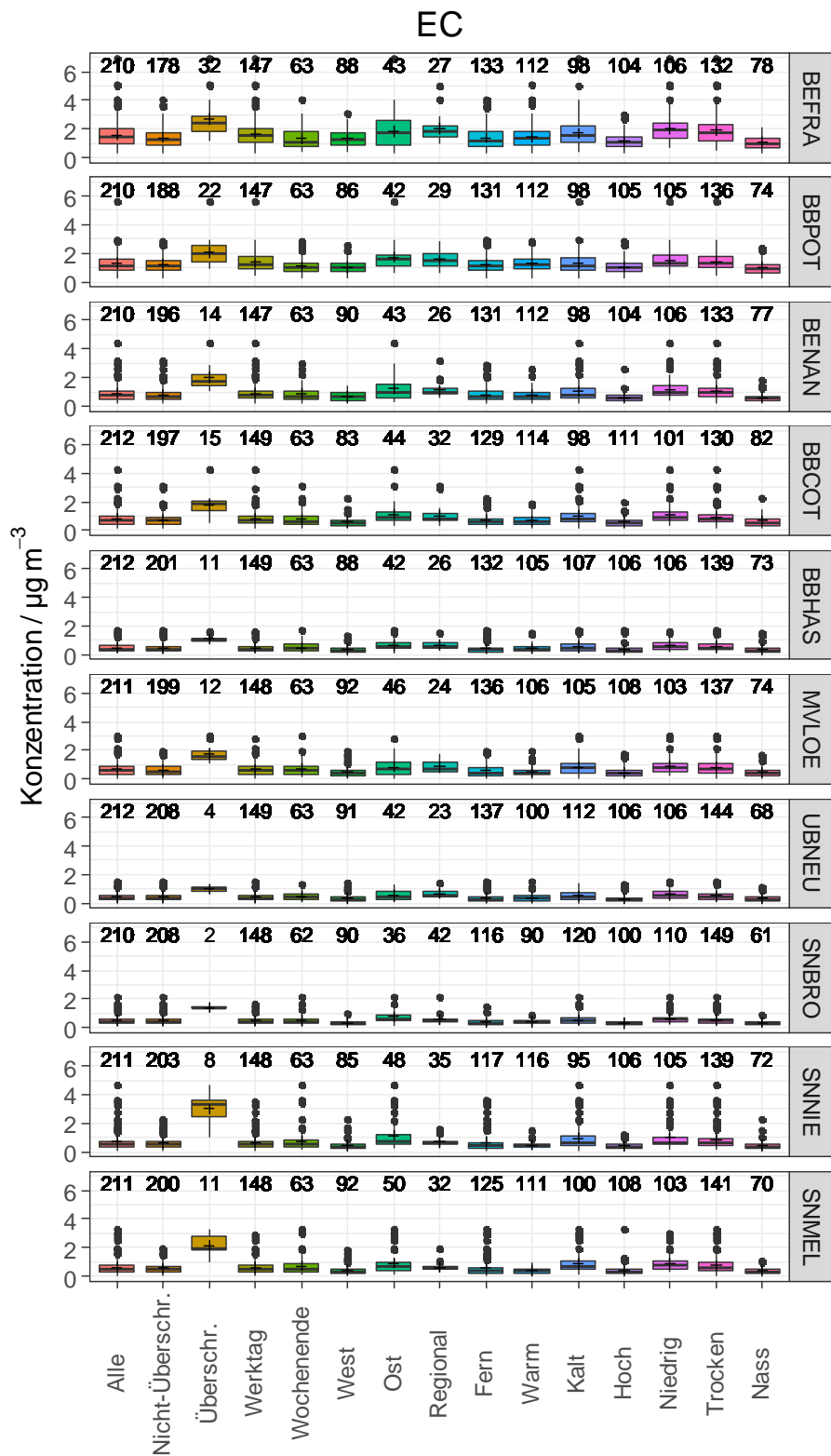


Abbildung 27: EC für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.5 Sulfat

Abbildung 28 zeigt die Konzentration von Sulfat im PM10 an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind. Sulfatkonzentrationen im PM10 liegen für die Verkehrsstation BBPOT nicht vor.

In der Tagescharakteristik für Sulfat zeigen sich keine wesentlichen Auffälligkeiten, die PM10- Sulfatkonzentration ist an „Überschreitungstagen“ größer als an „Nicht-Überschreitungstagen“. Die Unterscheidung der mittleren Konzentrationen von Wochentagen zu Wochenendtagen zeigt keine auffallende Differenz. Da die Konzentrationen für das anthropogen aus SO₂ gebildete Sulfat sehr gering sind, variiert sie zwischen den Stationen nur unwesentlich. Ein Unterschied ist in der Belastungskategorie Anströmung zu sehen, hier sind die Konzentrationen bei östlicher Anströmung höher als bei westlicher, was auf Ferntransport kontinentaler Luftmassen aus Osten schließen lässt. Dieser Effekt deckt sich damit, dass an den östlich im Untersuchungsgebiet gelegenen Stationen SNNIE und SNMEL zwischen kalter und warmer Temperatur eine größere Konzentrationsdifferenz auftritt. Bedingt durch höhere Windgeschwindigkeiten, weniger Emissionen und einem relativ starken Auswascheffekt durch Niederschlag treten bei den Eigenschaften „West“, „Warm“ und „Nass“ nur sehr geringe Sulfatkonzentrationen im PM10 auf.

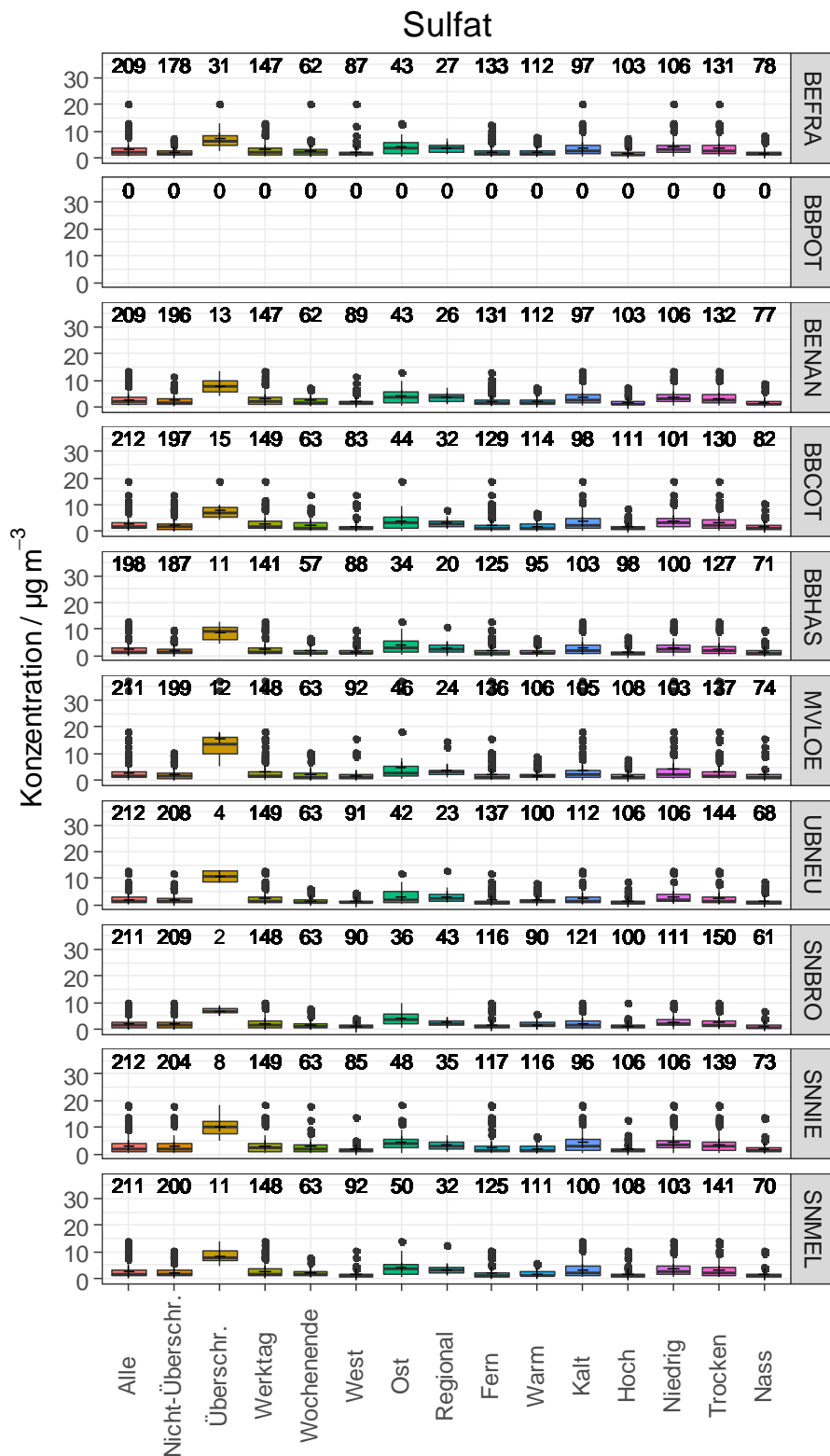


Abbildung 28: Sulfat für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.6 Nitrat

Abbildung 29 zeigt die Konzentration von Nitrat im PM10 an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind. Nitratkonzentrationen im PM10 liegen für die Verkehrsstation BBPOT nicht vor.

Auch in der Tagescharakteristik für Nitrat zeigen sich keine wesentlichen Auffälligkeiten, die PM10-Nitratkonzentration ist an „Überschreitungstagen“ größer als an „Nicht-Überschreitungstagen“. Die Unterscheidung Wochenendtage zu Wochentage ergibt keine auffallende Differenz. Dennoch zeigt, aufgrund der thermischen Instabilität von Ammoniumnitrat und anderen Verteilungen der Emissionsquellen, die Konzentration von Nitrat im PM10 ein anderes Muster als Sulfat. Zwischen den Stationen existieren keine größeren Unterschiede in der Nitratkonzentration und auch paarweise in den Kategorien sind die Unterschiede qualitativ ähnlich. Das lässt auf eine relativ gleichmäßige Verteilung von Nitrat im Untersuchungsgebiet schließen. Dafür spricht auch der relativ geringe Konzentrationsunterschied in der Kategorie Anströmung zwischen „Ost“ und „West“. Für MVLOE wird der regionale Einfluss auch für die Komponente Nitrat bestätigt, in abgeschwächter Form zeigt sich das auch für die Verkehrsstation BEFRA und die Station im städtischen Hintergrund BENAN. Die thermische Stabilität bei niedrigen Temperaturen wird durch die positive Differenz zwischen „Kalt“ und „Warm“ an allen Stationen bestätigt. Die gute Wasserlöslichkeit von Nitrat ist in guter Übereinstimmung mit der Differenz in der Kategorie Witterung zwischen „Trocken“ und „Nass“.

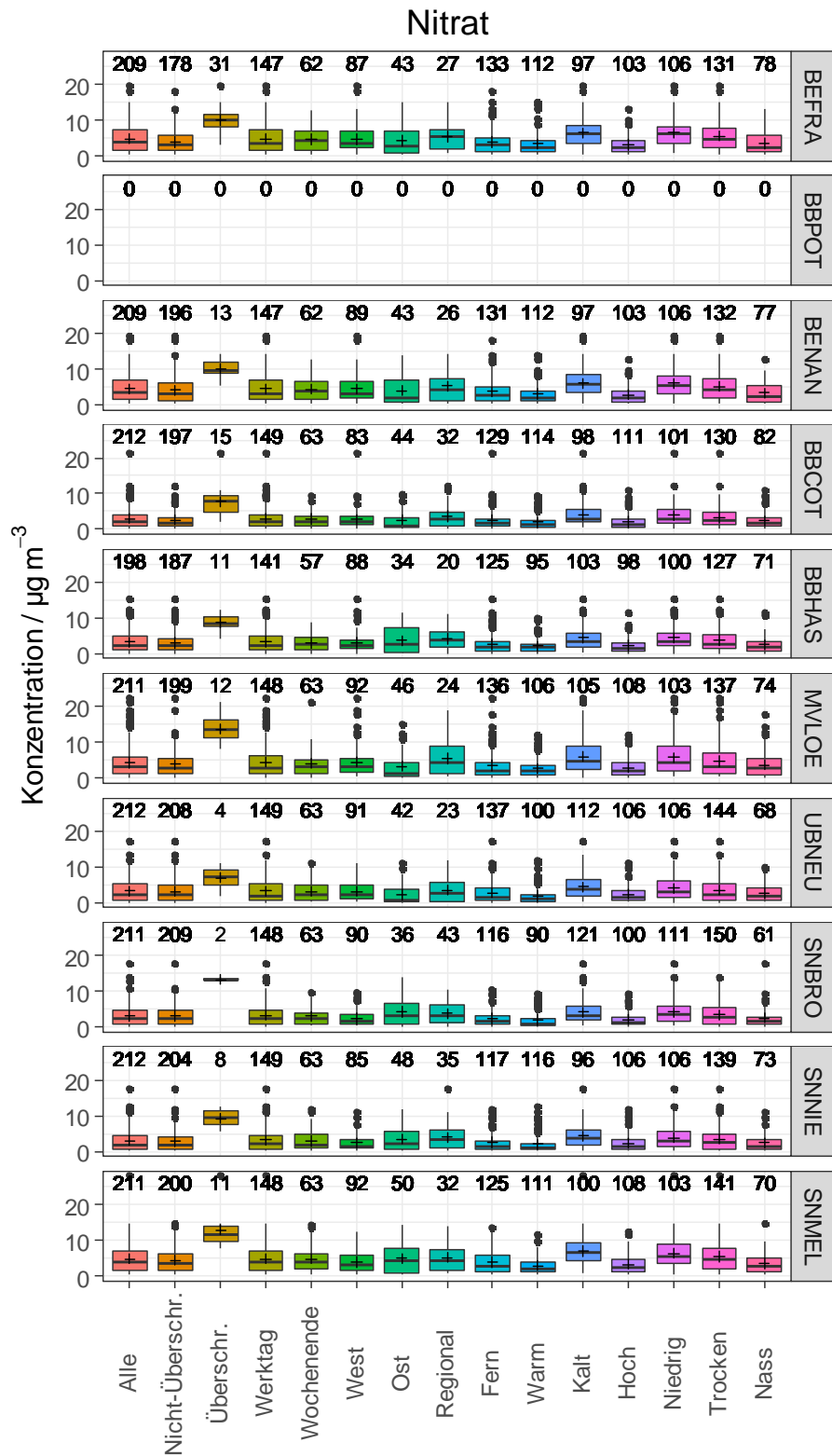


Abbildung 29: Nitrat für „Alle“ Messtage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.7 Levoglucosan

Abbildung 30 zeigt die Konzentration von Levoglucosan im PM10 an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind. Es muss darauf hingewiesen werden, dass der folgenden Auswertung nur die Sondermesstage zu Grunde liegen. Weiterhin waren für die Stationen BBPOT, BBCOT und SNBRO im vorliegenden Projekt keine Levoglucosanmessungen vorgesehen.

Levoglucosan ist ein typischer Verbrennungstracer für Biomasse, aber auch für bestimmte Arten von Braunkohle (vgl. Kapitel 3.2.7). Die mittleren Konzentrationen variieren zwischen den Stationen und in den Kategorien. An der Verkehrsstation BEFRA und im städtischen Hintergrund von BENAN sind die Konzentrationen etwas höher als im ländlichen Hintergrund. Hierfür dürften Quellen in der Stadt (Holzheizung) aber nicht der Straßenverkehr die Ursache sein. Die Tagescharakteristik für Levoglucosan zeigt höhere Konzentrationen an den „Überschreitungstagen“ im Vergleich zu den „Nicht-Überschreitungstagen“. Allerdings sind für Levoglucosan an allen Stationen höhere Konzentrationen an den Wochenendtagen verglichen mit den Wochentagen zu sehen. Dies könnte auf Emissionen im Freizeitverhalten (Kaminfeuer, Feuerschalen) durch zusätzliches Verbrennen von Holz hindeuten. Es handelt sich dabei hauptsächlich um lokale Emissionen in der näheren und weiteren Umgebung der jeweiligen Stationen. An der Station UBNEU sind die Levoglucosankonzentrationen im PM10 am kleinsten, was aus der geringen Siedlungsdichte (weniger lokale Quellen) resultieren kann. Bezüglich der Belastungskategorien zeigen sich bei Anströmung „Ost“ im Vergleich zu „West“ erhöhte Konzentrationen an allen Stationen. Hier dürfte Ferntransport kontinentaler Luftmassen, die von Emissionen aus Holz und Braunkohlenheizung betroffen waren, die Ursache sein. Dass es sich um Emissionen aus Heizungsanlagen handeln könnte, wird durch die positive Differenz zwischen kalter und warmer Temperatur belegt. Der regionale Einfluss auf MVLOE wird durch die positive Differenz zwischen regionaler und ferntransportierter Luftmasse hier erneut bestätigt. Für SNNIE, das am weitesten östlich im Untersuchungsgebiet liegt, zeigt sich aufgrund erhöhter Werte am stärksten der Einfluss des Ferntransportes. Auswaschprozesse durch Niederschlag deuten sich nur für einzelne Stationen (z. B. BENAN, SNMEL) an, haben aber generell betrachtet keine signifikanten Auswirkungen auf die Levoglucosankonzentration.

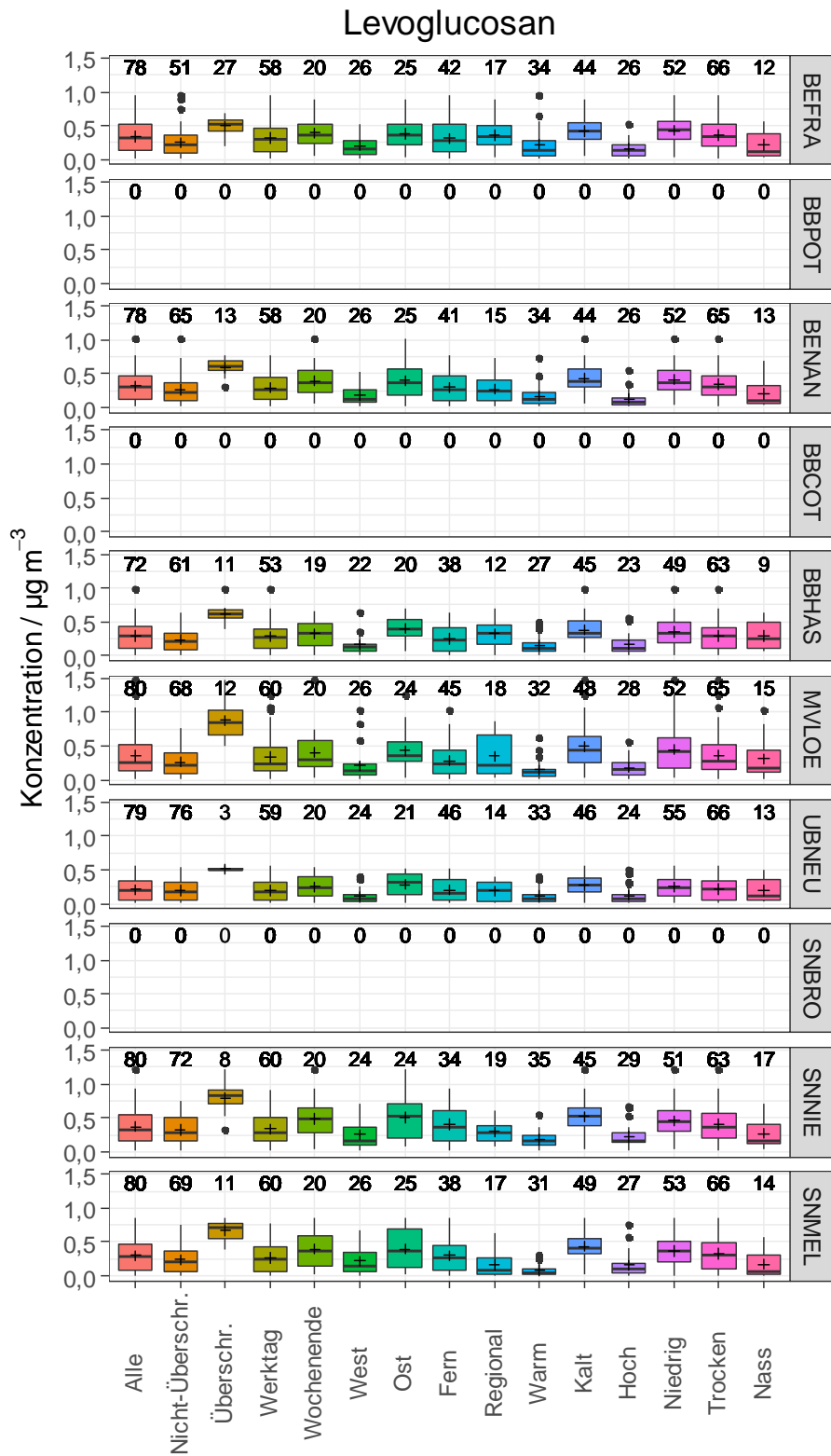


Abbildung 30: Levoglucosan für „Alle“ Sondermesstage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.8 BaP

Abbildung 31 zeigt die Konzentration von BaP im PM10 an den 10 Stationen für die Belastungskategorien, deren gegenläufige Ausprägungen in den Kategorien jeweils benachbart dargestellt sind. Es muss darauf hingewiesen werden, dass der folgenden Auswertung nur die Sondermesstage zu Grunde liegen.

BaP ist ein typischer Tracer für Verbrennungsprozesse und wird auch von Kfz- Motoren emittiert. In der Tagescharakteristik für BaP zeigen sich, wie für alle anderen Spezies, höhere Konzentrationen an den „Überschreitungstagen“ im Vergleich zu den „Nicht-Überschreitungstagen“. Aber auch für BaP sind die Konzentrationen an den Wochenendtagen im Vergleich zu den Wochentagen leicht erhöht. Dieser Effekt ist stärker an den ländlichen Stationen, verglichen mit dem städtischen Hintergrund und den Verkehrsstationen ausgeprägt. Hier können Emissionen von BaP aus Kraftfahrzeugen und ein geringfügiger Anteil Kohleheizung, die teilweise auftretenden Emissionen aus der Holzverbrennung in Kaminen und Feuerschalen (Freizeitverhalten) überlagern. Das Auftreten zusätzlicher Emissionen aus der Holzverbrennung an Wochenendtagen konnte für Levoglucosan (vgl. Kapitel 3.2.7) gezeigt werden. Hinsichtlich der Belastungskategorien fällt auf, dass die höchsten Konzentrationen bei östlicher Anströmung ferntransportierter Luftmassen auftreten und demnach die Messstationen besonders von kontinentalen Luftmassen beeinflusst werden. Als Quelle kommt hierfür höchstwahrscheinlich Kohleverbrennung zu Heizungszwecken bzw. Holzverbrennung (Poulain et al. 2011) in Frage. Verstärkt wird dieser Einfluss auf die Konzentration zusätzlich bei kalten Temperaturen und niedriger Grenzschicht. Die Konzentrationen von BaP im PM10 sind generell bei Anströmung aus Ost höher als für die Belastungskategorie „West“. Weiterhin zeigt sich insbesondere an den ländlichen Stationen SNNIE und SNMEL ein Unterschied in den Raumskalen wodurch sich der Einfluss einer Mischung aus lokalen Quellen und Ferntransport andeutet.

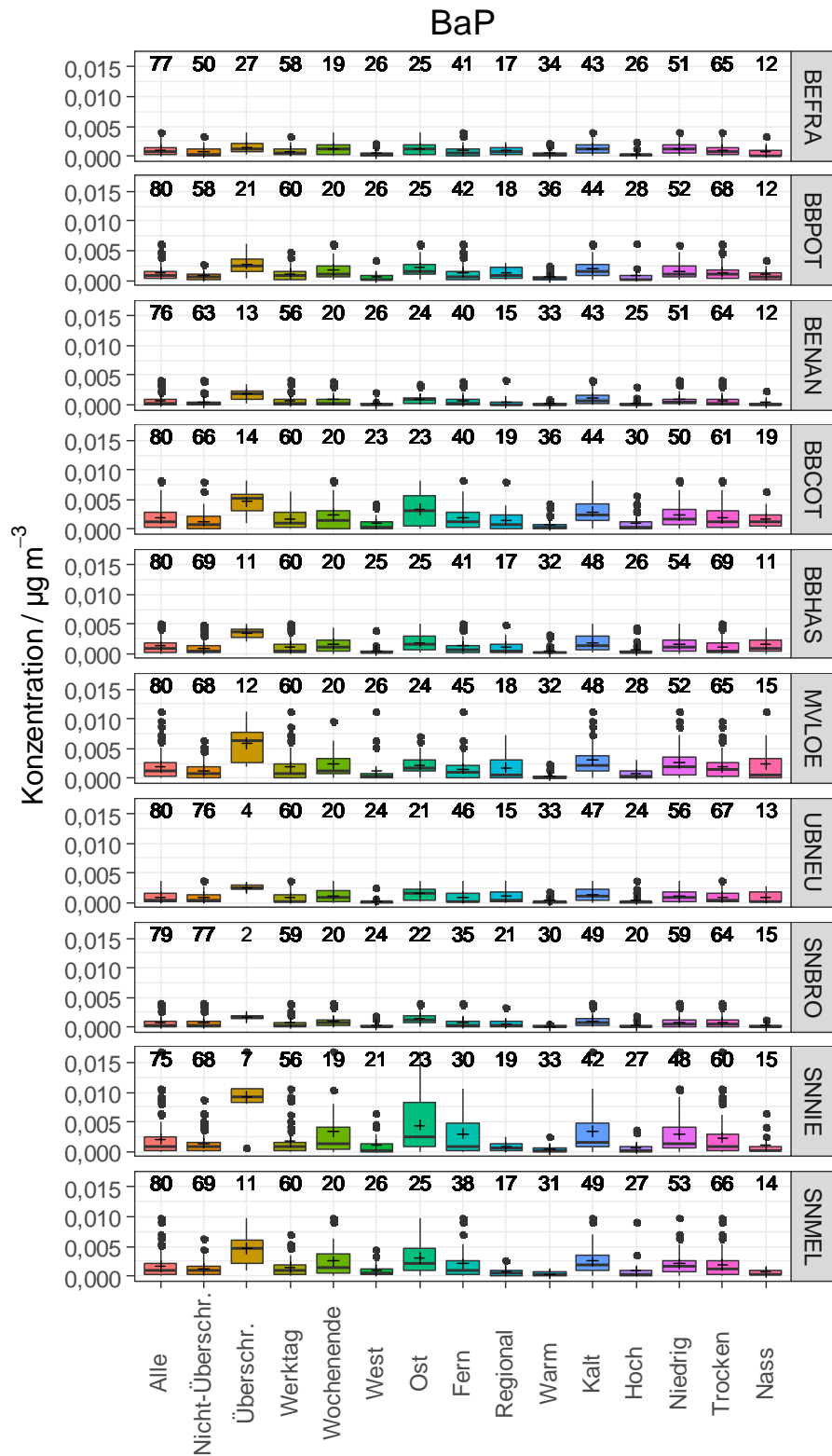


Abbildung 31: BaP für „Alle“ Sondermesstage und in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen. Die Zahlen über den Boxen kennzeichnen die Anzahl der verfügbaren Messwerte.

3.2.9 PM10- Massenanteile der Inhaltsstoffe

Abbildung 32 zeigt den Massenanteil der Inhaltsstoffe an PM10 in Prozent. Für BBPOT liegen keine Messungen wasserlöslichen Ionen vor.

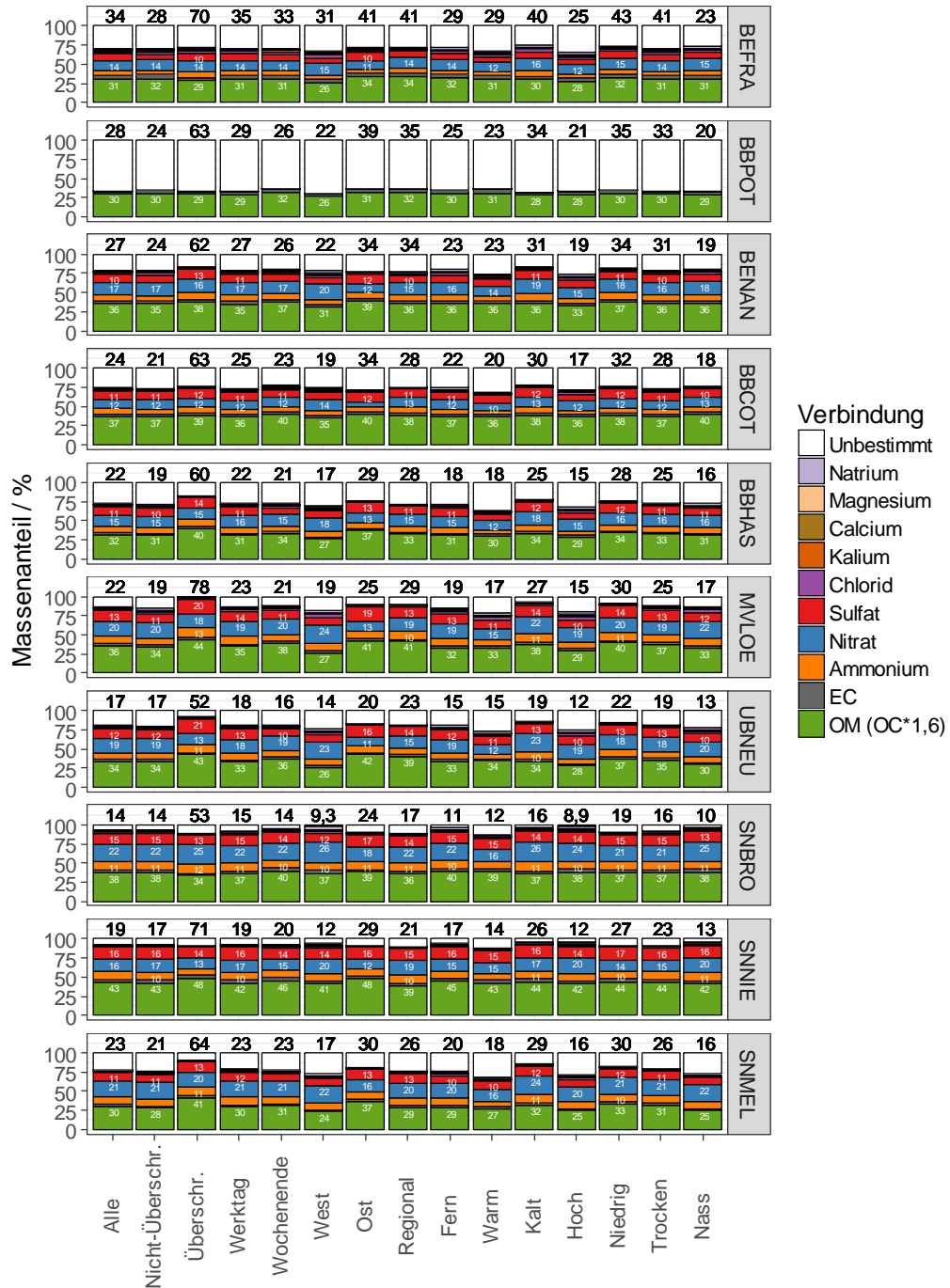


Abbildung 32: Massenbilanz für alle Messtage, in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien. Massenanteile < 10% sind nicht als Zahl angegeben, die schwarzen Zahlen stehen für die mittleren Konzentrationen in $\mu\text{g m}^{-3}$. OC wurde zu OM mit dem Faktor 1,6 konvertiert.

Es zeigen sich für alle Stationen, in allen Tagescharakteristiken und Belastungskategorien relativ ähnliche Muster. Damit wird der großräumig ähnliche Transport von Luftmassen und Spurenstoffen im Untersuchungsgebiet bestätigt. Die Ergebnisse für „Alle“ Tage und die „Nicht-Überschreitungstage“ ähneln sich. Der Anteil des unbestimmten Materials variiert zwischen den Stationen stark und ist für die ländlichen Stationen SNNIE und SNBRO, sowie MVLOE am geringsten. Für die Stationen BEFRA, BENAN und BBCOT (Verkehrsstation bzw. städtischer Hintergrund), aber auch für BBHAS und SNMEL tritt ein größerer unbestimmter Anteil auf, der auf den Eintrag wasserunlöslichen Staubes zurückzuführen ist. An den Überschreitungstagen ist besonders für die ländlichen Stationen MVLOE und UBNEU ein relativ hoher Sulfatanteil erkennbar. Der Anteil von organischem Material (OM) ist relativ hoch und in SNMEL etwas niedriger als an den anderen Stationen. In der hier gezeigten Darstellung ist kein signifikanter Unterschied zwischen „Wochentagen“ und „Wochenendtagen“ erkennbar. Bei Ostanströmung ist der Sulfatanteil für die ländlichen Stationen SNMEL, SNNIE, SNBRO, UBNEU, MVLOE und BBHAS erhöht (großräumiger Transport von Sulfat). Gut zu erkennen ist auch der höhere Anteil des thermisch labilen Ammoniumnitrats (Anteil Nitrat und Anteil Ammonium) an kalten Tagen an allen Stationen. Ein Auswascheffekt ist mit dem Witterungscharakter „Nass“ nur für SNMEL eindeutig nachweisbar.

3.2.10 PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Großwetterlagen

Wendet man die beiden Wetterlagenklassifizierungen OWTC und SHBC auf den nur 212 Tage umfassenden Datensatz dieses Vorhabens an, so ergibt sich das Problem, dass nicht alle der 40 bzw. 30 Klassen besetzt werden. Die Verteilung der Ergebnisse in die entsprechenden Wetterlagen ist in Kapitel 2.5 beschrieben. Es ist zu berücksichtigen, dass aufgrund des geringen Messzeitraumes 14 von 40 Wetterlagenklassen nach OWTC und 12 von 30 nach SHBC nicht auftreten.

Abbildung 33 zeigt die jeweils mit einer deutschlandweit „einheitlich“ auftretenden objektiven Wetterlage verbundene PM10- Massekonzentration an den einzelnen Stationen als Boxplot. Zur besseren Übersicht wurden die objektiven Wetterlagen nach der vorherrschenden Anströmung(NO, NW, SO, SW) oder einer nicht definierbaren Anströmung gruppiert.

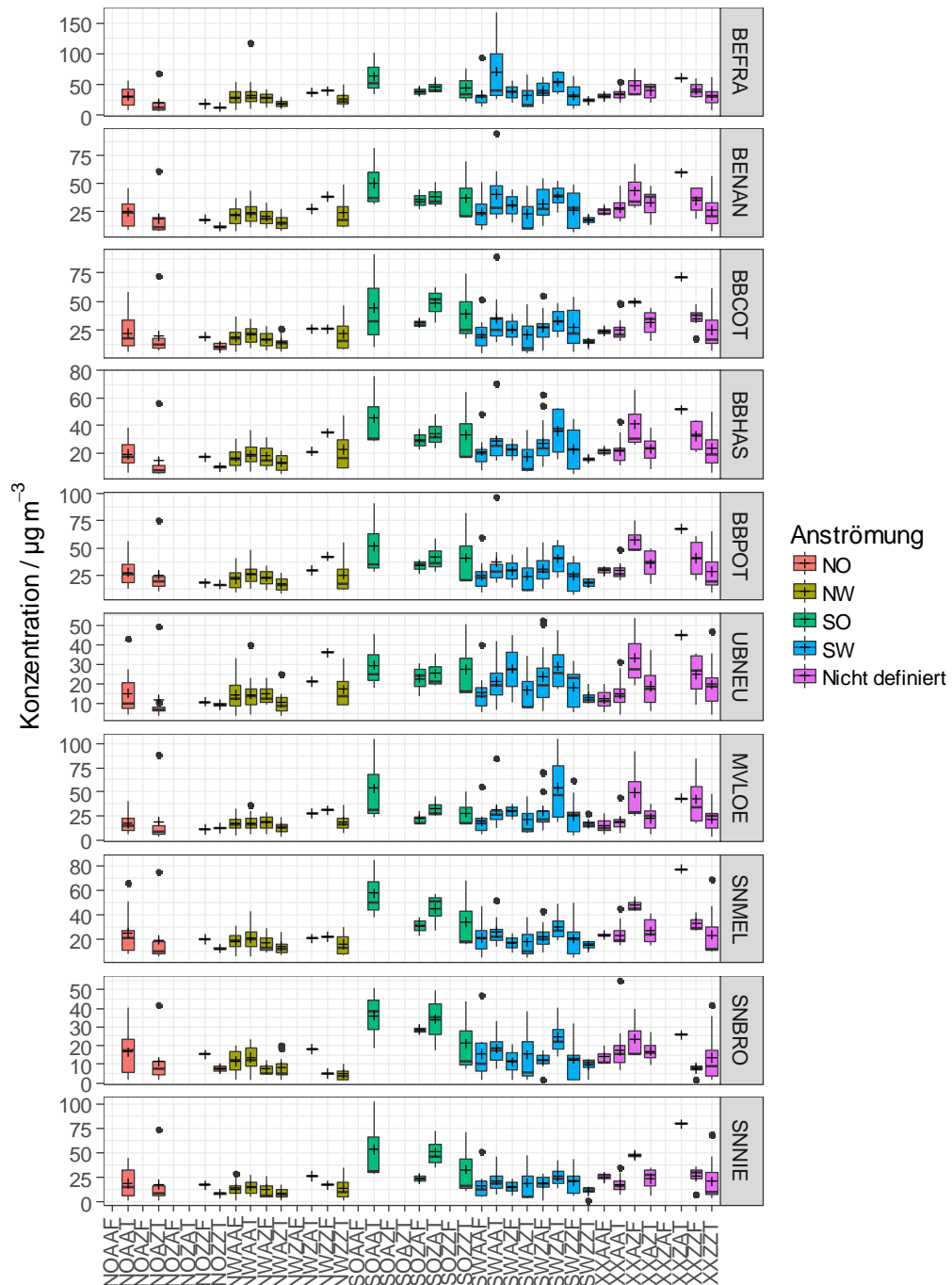


Abbildung 33: PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Wetterlagenklassen nach OWTC und Eingruppierung nach dem Windindex für 700 hPa für alle 10 Messstationen.

Es zeigt sich, dass die PM10- Massekonzentration zwischen den einzelnen objektiven Wetterlagen stark variiert, sich aber zwischen den 10 Messstandorten ein qualitativ ähnliches Muster mit den höchsten Konzentrationen an der Verkehrsstation BEFRA ausprägt. Diese treten, allerdings für eine geringere Anzahl an Tagen, bei südöstlicher Anströmung (SO) auf. Auffallend hohe Konzentrationen

onen gibt es an trockenen (T) Tagen mit antizyklonaler Anströmung bei 950 und 500 hPa (SOAAT). Hohe Konzentrationen können sich auch an Tagen mit südwestlicher und nicht definierter Anströmung ausprägen. Dabei variiert die PM10- Massekonzentration für die Wetterlage SWZAT an einzelnen Stationen (BBHAS, UBNEU, MVLOE) ähnlich wie bei SOAAT für alle Stationen. Für die nordöstliche (NO) und nordwestliche (NW) Anströmung prägen sich verglichen mit den anderen drei Anströmungen für alle Stationen geringere PM10- Massekonzentrationen aus. Die Ursache dürfte im maritimen Charakter der Luftmassen aus dieser Anströmungsrichtung und im Vorhandensein nur weniger anthropogener Quellen liegen.

Neben der objektiven Wetterlagenklassifizierung des DWD sollte für den vorliegenden Projektzeitraum von 212 Tagen auch die subjektive Wetterlagenklassifizierung nach Hess und Brezowsky (SHBC) auf ihre Anwendbarkeit untersucht werden. Abbildung 34 zeigt die jeweils mit einer deutschlandweit „einheitlich“ auftretenden subjektiven Wetterlage verbundene PM10- Massekonzentration an den einzelnen Stationen als Boxplot. Die subjektiven Wetterlagen wurden nach der vorherrschenden Zirkulation gruppiert.

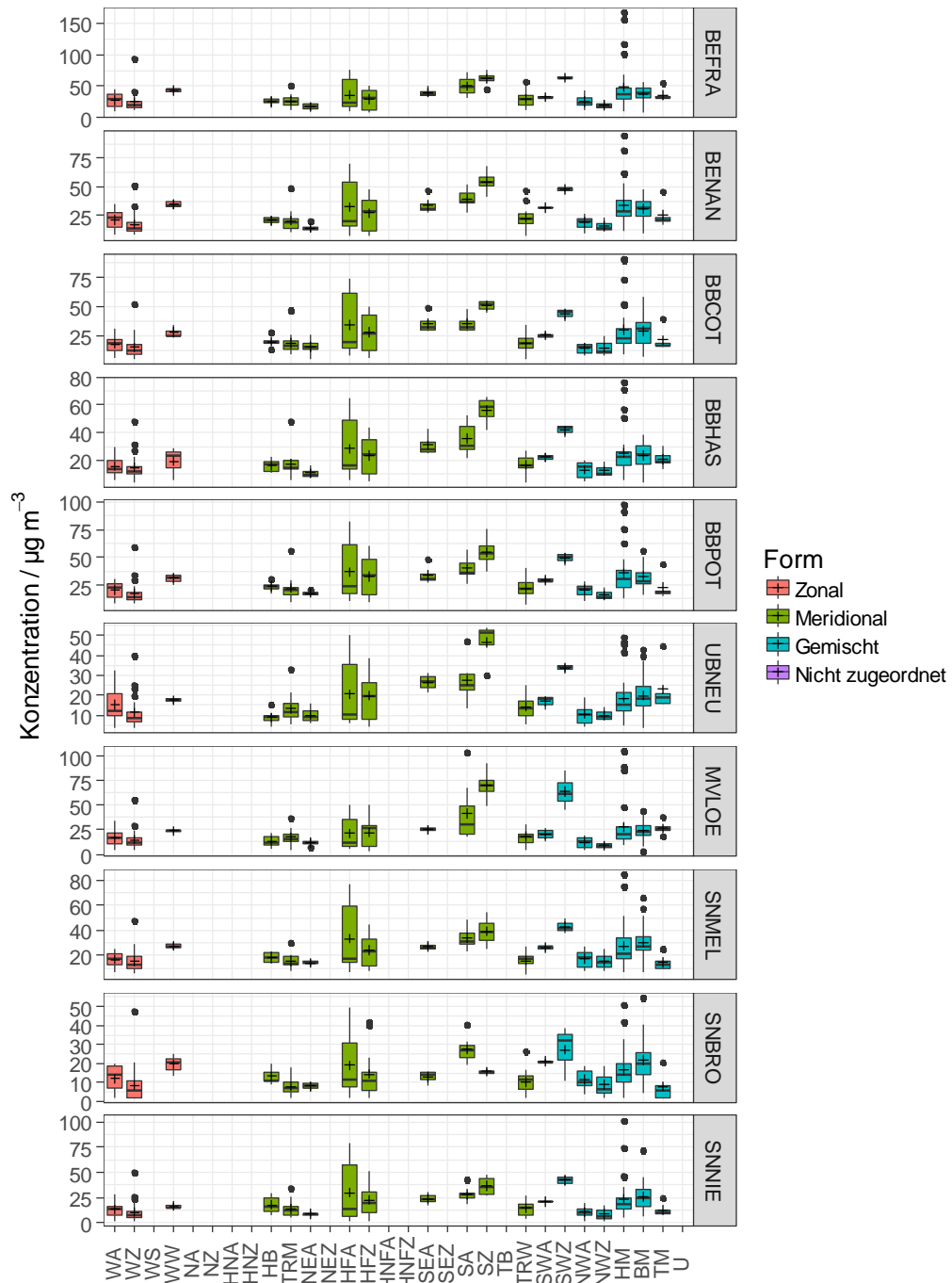


Abbildung 34: PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von den Wetterlagenklassen nach SHBC und Eingruppierung nach Zirkulationsform für alle 10 Messstationen.

Es zeigen sich starke Konzentrationsschwankungen innerhalb und zwischen den Gruppen. Dabei prägt sich ein qualitativ ähnliches Muster mit den höchsten Konzentrationen an der Verkehrsstation BEFRA aus. Eine größere Variabilität der PM10- Massekonzentration mit den subjektiven Wetterlagen ist in den Gruppen „Meridional“ und „Gemischt“ zu verzeichnen. Hier sind subjektive

Wetterlagen enthalten, bei denen hohe Konzentrationen an PM10 auftreten (SEA, SZ und SA) oder auftreten könnten (SEZ). Warum für die beiden subjektiven Wetterlagen mit typischem Hochdruckeinfluss über Fennoskandien (HFA und HFZ) in der Gruppe „Meridional“ PM10- Massekonzentrationen über einen sehr großen Bereich auftreten, muss offen bleiben. Für die Gruppe „Zonal“ treten moderate Konzentrationen auf, da hier 4 typische „Westlagen“ (WA, WZ, WS und WW) zusammengefasst sind. Während dieser Wetterlagen wird eher wenig anthropogen belastete Luft heran transportiert.

Die Ergebnisse der Klassifizierung nach Großwetterlagen zeigen den Einfluss großräumiger Luftbewegungen über Mitteleuropa auf die PM10- Massekonzentration (Langstreckentransport). Die gezeigten Einzelergebnisse sollten jedoch auf Grund der geringen Anzahl von Messtagen, die ein Jahr nicht abdecken nicht verallgemeinert werden.

3.3 Quellzuordnung

3.3.1 Lenschow- Ansatz

Im Folgenden werden die Ergebnisse des Lenschow- Ansatzes diskutiert. Dieser wurde sowohl klassisch für die PM10- Massekonzentration und ausgewählte Inhaltsstoffe durchgeführt, als auch zusätzlich entsprechend der im vorliegenden Projekt festgelegten Tagescharakteristiken und Belastungskategorien. Abbildung 35 zeigt die gesamten Ergebnisse unter Verwendung der drei Stationen BBHAS (Land, ca. 70 km östlich der Berliner Stationen), BENAN (Stadt) und BEFRA (Verkehr), die aufgrund ihrer Lage im Untersuchungsgebiet die Forderungen des Lenschow- Ansatzes nahezu ideal erfüllen.

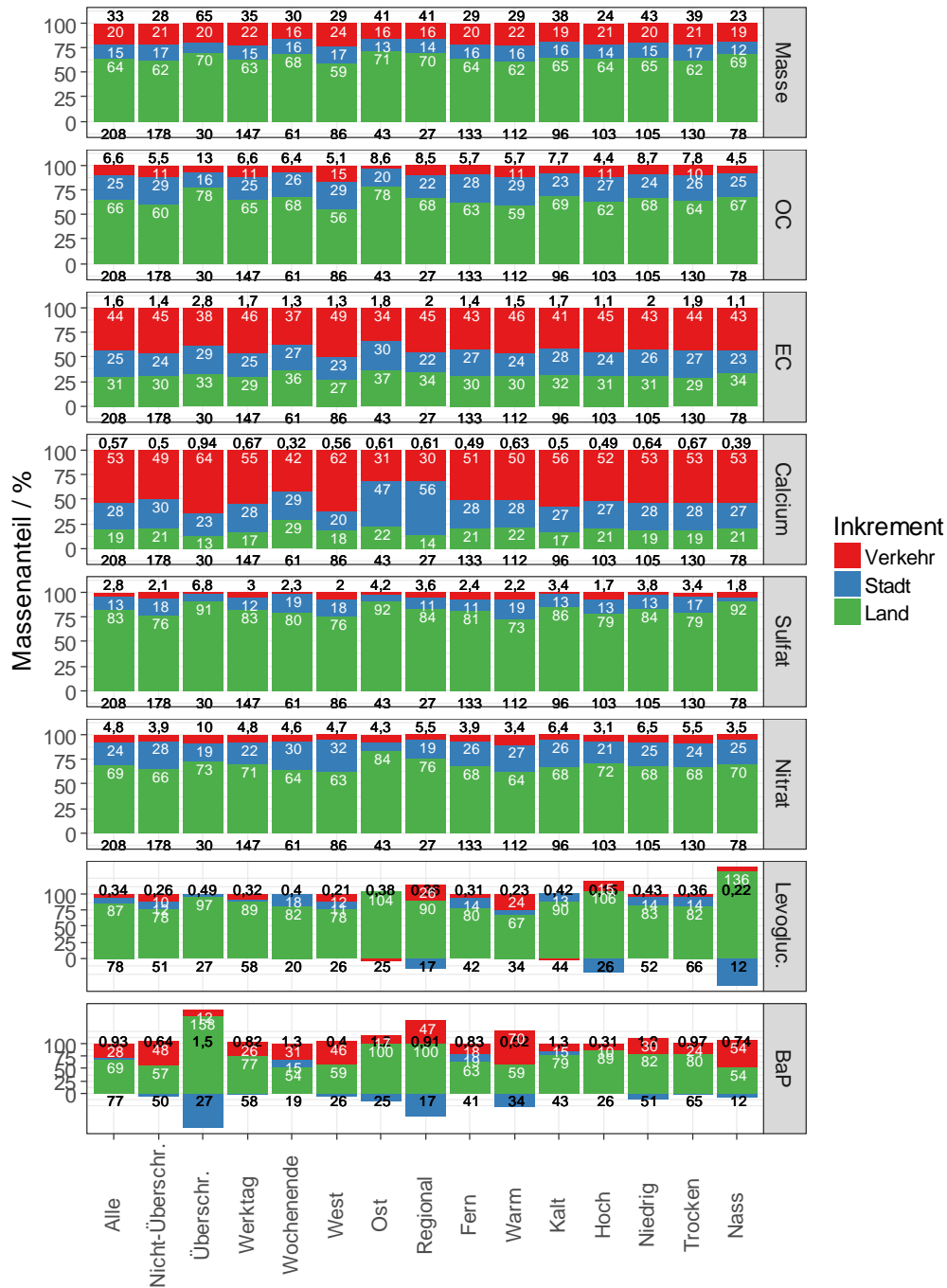


Abbildung 35: Massenanteil PM10 und Inhaltsstoffe der Inkremente Verkehr, Stadt und Land für alle Messtage (Alle) und gruppiert entsprechend der Tagescharakteristik und der Belastungskategorie unter Auswertung der PM10-Masse der Messstationen BEFRA, BENAN und BBHAS im Untersuchungszeitraum. Die schwarzen Zahlen über den Boxen repräsentieren die gemittelte PM10-Massekonzentration an der Verkehrsstation BEFRA in $\mu\text{g m}^{-3}$, unter den Boxen die Anzahl der Messtage. Die weißen Zahlen in den Säulen geben den berechneten prozentualen Anteil der Inkremente an der Gesamtmasse wieder.

Die in Abbildung 35 dargestellten Ergebnisse werden beginnend mit der PM₁₀- Massekonzentration diskutiert. Bei der Betrachtung der ersten Säule von links ergibt sich für eine Gesamtmasse PM₁₀ von 33 µg m⁻³ gemittelt über alle Messtage an der Berliner Verkehrsstation BEFRA eine Verteilung der Inkremente von 64% Land, 15% Stadt und 20% Verkehr. Diese ermittelten Inkremente sind in sehr guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen einer Studie von 2002 (John und Kuhlbusch 2004), die unter Verwendung der gleichen Messstationen im Zeitraum 08.02.-15.09.2002 eine Verteilung von 62% Hintergrund, 15% Stadt und 23% Verkehr ergab. In den Jahren 2006 bis 2010 wurden ebenfalls ähnliche Verteilungen für den Standort Berlin ermittelt (Rautherberg-Wulff et al. 2013). Demnach entfallen etwa 2/3 des PM₁₀- Massenanteils der Verkehrsstation BEFRA auf den Einfluss des ländlichen Hintergrundes, während der Einfluss des städtischen Hintergrundes und des lokal emittierten Verkehrs zu etwa gleichen Teilen den Rest ausmachen.

Dieses Verhältnis verschiebt sich für die Unterscheidung der Tage in „Überschreitungstage“ und „Nicht-Überschreitungstage“. Es muss an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass hier die „Überschreitungstage“ aufgrund ihrer Sonderstellung nicht die Tage Silvester und Neujahr beinhalten, welche die städtischen Anteile auf Kosten des regionalen Hintergrundes deutlich erhöhen würden. An Tagen mit Grenzwertüberschreitungen erhöht sich im Vergleich zu „Nicht-Überschreitungstagen“ der Anteil des ländlichen Hintergrundes um 8%, während sich das Inkrement für den städtischen Hintergrund um 7% verringert und das des Verkehrs nahezu konstant bleibt (-1%). Dies deutet einen ländlichen Einfluss auf die PM₁₀- Massekonzentration an Grenzwertüberschreitungstagen an. Die Anwendung des Lenschow- Ansatzes getrennt nach „Wochentagen“ und „Wochenendtagen“ zeigt eine zu erwartende Abnahme des Verkehrsincrementes (-6%) unter Erhöhung des ländlichen Hintergrundes an Wochenenden. Für die Belastungskategorien zeigt sich nur eine geringe Abhängigkeit, mit Ausnahme der Kategorie „Anströmung“. Unterscheidet man zwischen Messtagen in den Belastungskategorien West und Ost, so zeigt sich eine Aufspaltung der 64% Quellanteil des ländlichen Hintergrundes für „Alle“ Tage in 71% bei „Ost“ gegenüber nur 59% bei westlicher Anströmung. Bei ähnlichem Einfluss des städtischen Hintergrundes verändert sich somit der Quellanteil „Verkehr“ zu 24% bei „West“ und lediglich 16% bei „Ost“ (Vergleich 20% für „Alle“ Messtage). Für die Gegenüberstellungen in den anderen Belastungskategorien sind die Unterschiede nur minimal. Für die Raumskala „Regional“ zu „Fern“ nimmt der Quellanteil für den ländlichen Hintergrund um 6% ab und der resultierende Quellanteil des Verkehrs steigt von 16 auf 20%. Bei der Kategorie Temperatur zeigt sich zwischen „Warm“ und „Kalt“ keine signifikante Veränderung der Massenanteile. Die Änderung der Mischungsschichthöhe von „Hoch“ auf „Niedrig“ führt ebenfalls zu keiner nennenswerten Verschiebung der Massenanteile. Dagegen resultiert die Änderung des Witterungscharakters von „Trocken“

zu „Nass“ in einer Verringerung der absoluten PM10- Massekonzentration an der Station BEFRA (39 auf $23 \mu\text{g m}^{-3}$), deren Auswirkungen auf die Massenanteile von ländlichem Hintergrund und städtischen Hintergrund mit 62 zu 69% bzw. 17 zu 12% aber eher moderat sind.

Ergänzend zur PM10- Massekonzentration wurde der Lenschow- Ansatz auch für die Inhaltsstoffe OC, EC, Calcium, Sulfat, Nitrat Levoglucosan und BaP in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien durchgeführt. Für den organischen Kohlenstoff ergibt sich unter Auswertung aller Messtage eine der PM10- Massekonzentration ähnliche Verteilung von etwa 2/3 ländlicher Hintergrund und 1/3 Stadt und Verkehr. Aus dem Vergleich mit der Masse wird allerdings deutlich, dass das Verkehrsinkrement für OC etwa Faktor 2 kleiner ist. Qualitativ zeigen die Inkremente bei OC dagegen eine ähnliche Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und den Belastungskategorien wie zuvor für die PM10- Massekonzentration diskutiert. Auch hier ist das Inkrement des ländlichen Hintergrundes besonders an den Überschreitungstagen und den Tagen bei Ostanströmung erhöht. Aufgrund ihrer Quellen verändert sich die Verteilung der Inkremente für EC (primär emittierte Verbrennungsemissionen) und Calcium (vorrangig Aufwirbelung) so, dass das Inkrement für den ländlichen Hintergrund nur noch 1/3 und die Stadt zusammen mit dem Verkehr 2/3 des Massenanteils ausmachen. Dabei dominiert der Verkehr mit etwa 50% den Einfluss der Stadt, allerdings sind die Änderungen im Verkehrsinkrement bei Überschreitungstagen und bei Ostanströmung auffällig verschieden zu ihren gegenläufigen Kriterien. An Tagen mit Ostanströmung verringert sich sowohl der Anteil des Verkehrsinkrementes für EC als auch für Calcium (Einfluss ländlicher Hintergrund nimmt zu), während sich diese Verschiebung (Verringerung) an den Überschreitungstagen nur für EC nicht aber für Calcium zeigt. Die Zunahme des Verkehrsinkrementes für EC an Überschreitungstagen ist ein Hinweis auf den nicht zu vernachlässigenden Einfluss lokaler Aufwirbelungsprozesse auf die PM10- Massekonzentration. Die Anionen Sulfat und Nitrat als PM10- Inhaltsstoffe zeigen eine Inkrementverteilung in Abhängigkeit der verschiedenen Kriterien wie zuvor für OC diskutiert, allerdings generell mit etwas höheren Anteilen (70-92%) des ländlichen Hintergrundes. Dies bestätigt erneut den Einfluss des ländlichen Hintergrundes an Grenzwertüberschreitungstagen. Ähnlich verhält es sich auch für Levoglucosan als Biomasseverbrennungstracer, mit Inkrementanteilen $> 80\%$ des ländlichen Hintergrundes. Zum Teil zeigen sich sogar höhere Werte an der Messstation BBHAS im Vergleich zu Berliner Stadtstationen (negative Inkremente). Die Kriterien „Überschreitungstage“ und „Ost“ wirken sich auch auf die Inkrementverteilung für Levoglucosan deutlich aus, das ländliche Inkrement überschreitet zum Teil sogar die 100%. Erwähnenswert ist für Levoglucosan weiterhin, dass an Wochenenden ein Inkrement Stadt (18%) auftritt, welches an Wochentagen so klein ist, dass es in Abbildung 35 kaum aufgelöst werden kann. Dies ist ein Hinweis auf

zusätzlich auftretende Biomasseverbrennung im städtischen Gebiet unter Verwendung von Kaminen. BaP ist aufgrund seiner vielfältigen Quellen (Verbrennungsemissionen aus Kohle, Holz aber auch KfZ) sehr variabel und erschwert eine Auswertung nach Lenschow, dessen Ansatz auf dem Gradienten aus der Stadt in Richtung Land basiert (häufig negative Stadtinkremente für BaP). Daher wird auf eine Diskussion der Ergebnisse für BaP an dieser Stelle verzichtet.

Der Lenschow- Ansatz beschreibt welchen Einfluss die Stadt bzw. der ländliche Hintergrund auf die PM10- Massekonzentration besitzt. Durch die Ergänzung der Inhaltsstoffe konnte gezeigt werden, dass Grenzwertüberschreitungstage durch beide Inkrementtypen geprägt sind. Die Zunahme des ländlichen Hintergrundinkrementes für PM10 ist gestützt durch ein ähnliches Verhalten der vorwiegend antransportierten Inhaltsstoffe OC, Sulfat, Nitrat und Levoglucosan. Der elementare Kohlenstoff als Marker für Verbrennungsemissionen und Calcium als Tracer für Aufwirbelung deuten dagegen den Einfluss des Verkehrs auf Grenzwertüberschreitungen an. Da verkehrsbedingte Aufwirbelungsprozesse besonders zur Masse beitragen, erklärt dies den eher moderaten Unterschied der Inkrementverteilung für die PM10- Massekonzentration in Abbildung 35 (oben, 2. und 3. Säule von links). Eine Quantifizierung der Auswirkungen des ländlichen Hintergrundes im Vergleich zur Stadt hinsichtlich der Ursache für Grenzwertüberschreitungen ist unter Verwendung dieses Ansatzes nicht möglich, da die Wechselwirkung der Belastungskategorien untereinander nicht berücksichtigt wird. Die in Abbildung 36 dargestellte Abhängigkeit der meteorologischen Parameter Temperatur (T), Niederschlag (ND) und Mischungsschichthöhe (MSH) verdeutlicht, welche Interaktionen bzw. Kombinationen an Belastungskategorien berücksichtigt werden müssen.

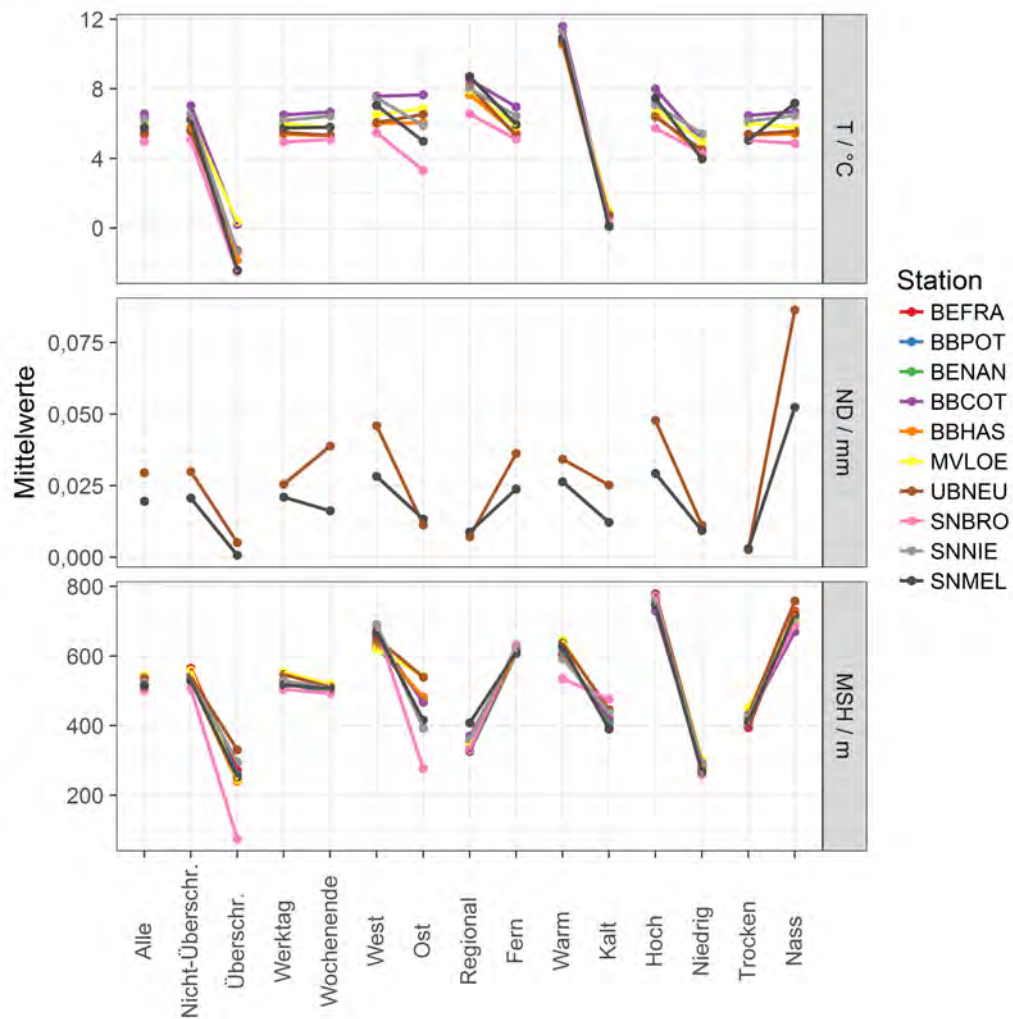


Abbildung 36: Mittelwerte der Parameter T, ND und MSH für alle Messstationen in Abhängigkeit von der Tagescharakteristik und der Belastungskategorie.

Insbesondere für die Belastungskategorien Anströmung und Raumskala zeigen sich z. B. erhebliche Unterschiede für die Mischungsschichthöhe. Während bei „West“ und „Fern“ vorwiegend Mischungsschichthöhen größer 600 m auftraten fallen die Werte für MSH bei „Ost“ bzw. „Regional“ auf zum Teil Werte unter 400 m. Daraus folgt, dass vor allem für eine Quantifizierung des grenzüberschreitenden Ferntransportes eine differenzierte Betrachtung von kombinierten Belastungskategorien notwendig ist.

3.3.2 Kombinierte Belastungskategorien

Es wurden die Kategorien Anströmung, Raumskala, Temperatur, Mischungsschichthöhe und Witterung in ihrer für den jeweiligen Messtag geltenden Ausprägung zu einer kombinierten Kategorie zusammengefasst, um dann die beobachteten PM10- Massekonzentrationen in diesen kombinierten Kategorien zu

mitteln und miteinander zu vergleichen. Die Mindestanforderung an eine Kombination von Belastungskategorien ist eine Anzahl von Messtagen in dieser Kombination von > 2. Welche Auswirkungen dieser Ansatz im Vergleich zu den Betrachtungen der einzelnen Belastungskategorien hat, ist in Abbildung 37 erneut anhand der meteorologischen Parameter gezeigt. Dargestellt ist analog Abbildung 36 die Abhängigkeit der Parameter T, ND und MSH beispielhaft für die Anströmung („West“ vs. „Ost“) in den kombinierten Belastungskategorien (gemittelt über alle 6 ländlichen Hintergrundstationen).

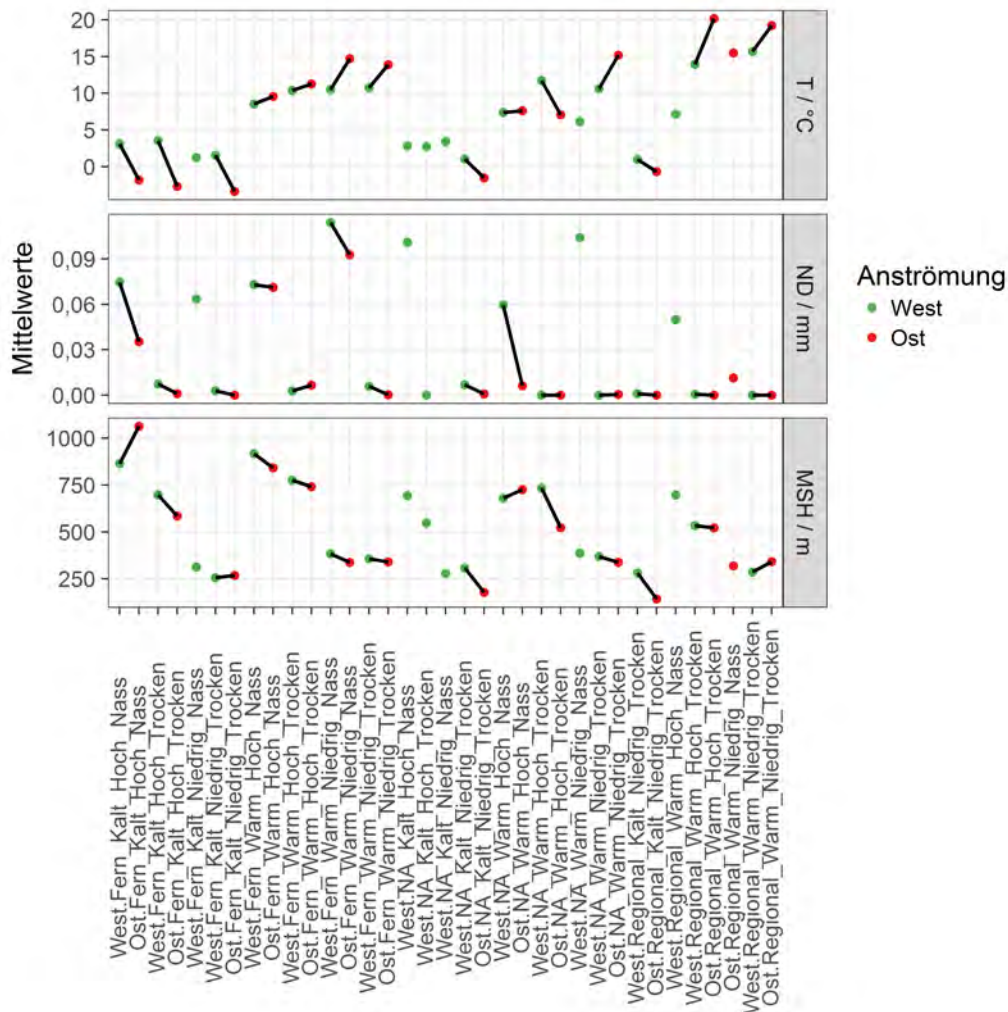


Abbildung 37: Mittelwerte der Parameter T, ND und MSH für die 6 ländlichen Hintergrundstationen in Abhängigkeit von der Anströmung („West“ vs. „Ost“) in den kombinierten Belastungskategorien.

Kombinationen an Belastungskategorien, die sich ausschließlich in der Anströmung unterscheiden, sind zur Verdeutlichung der Unterschiede stets mit einer schwarzen Linie miteinander verbunden. Es wird deutlich, dass mit dem Ansatz

kombinierter Kategorien die Unterschiede in den meteorologischen Randbedingungen beim Vergleich der beiden Hauptanströmungsrichtungen im Untersuchungsgebiet deutlich verringert werden. So liegen z. B. die mittleren Mischungsschichthöhen innerhalb der kombinierten Kategorien bei West- und Ostanströmung oft relativ nahe beieinander, unterscheiden sich zwischen den jeweils gegensätzlichen Kategorien jedoch deutlich:

West_Fern_Kalt_**Hoch**_Trocken: 700 m

Ost_Fern_Kalt_**Hoch**_Trocken: 600 m

Zum Vergleich

West_Fern_Kalt_**Niedrig**_Trocken: 250 m

Ost_Fern_Kalt_**Niedrig**_Trocken: 260 m

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

Abbildung 38 veranschaulicht, bei welchen kombinierten Kategorien (vgl. für die Zuordnung Kapitel 2.4) welche hohen bzw. geringen mittleren PM10- Massekonzentrationen an den Messstationen im Untersuchungszeitraum auftreten. Die Ergebnisse getrennt nach Messstation sind nochmals in Abbildung A 113 bis Abbildung A 122 detaillierter dargestellt.

Die größenabhängige Darstellung der mittleren PM10- Konzentration in Abhängigkeit von der Kombination der Belastungskategorien in Abbildung 38 zeigt deutlich, dass die höchsten mittleren PM10- Partikelmassekonzentrationen in den kombinierten Kategorien „Ost-Fern-Kalt-Niedrig-Trocken“ und „Ost-X-Kalt-Niedrig-Trocken“ auftreten. Nur in diesen Kategoriekombinationen wird dabei für PM10 ein Mittelwert von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ an einzelnen Stationen überschritten.

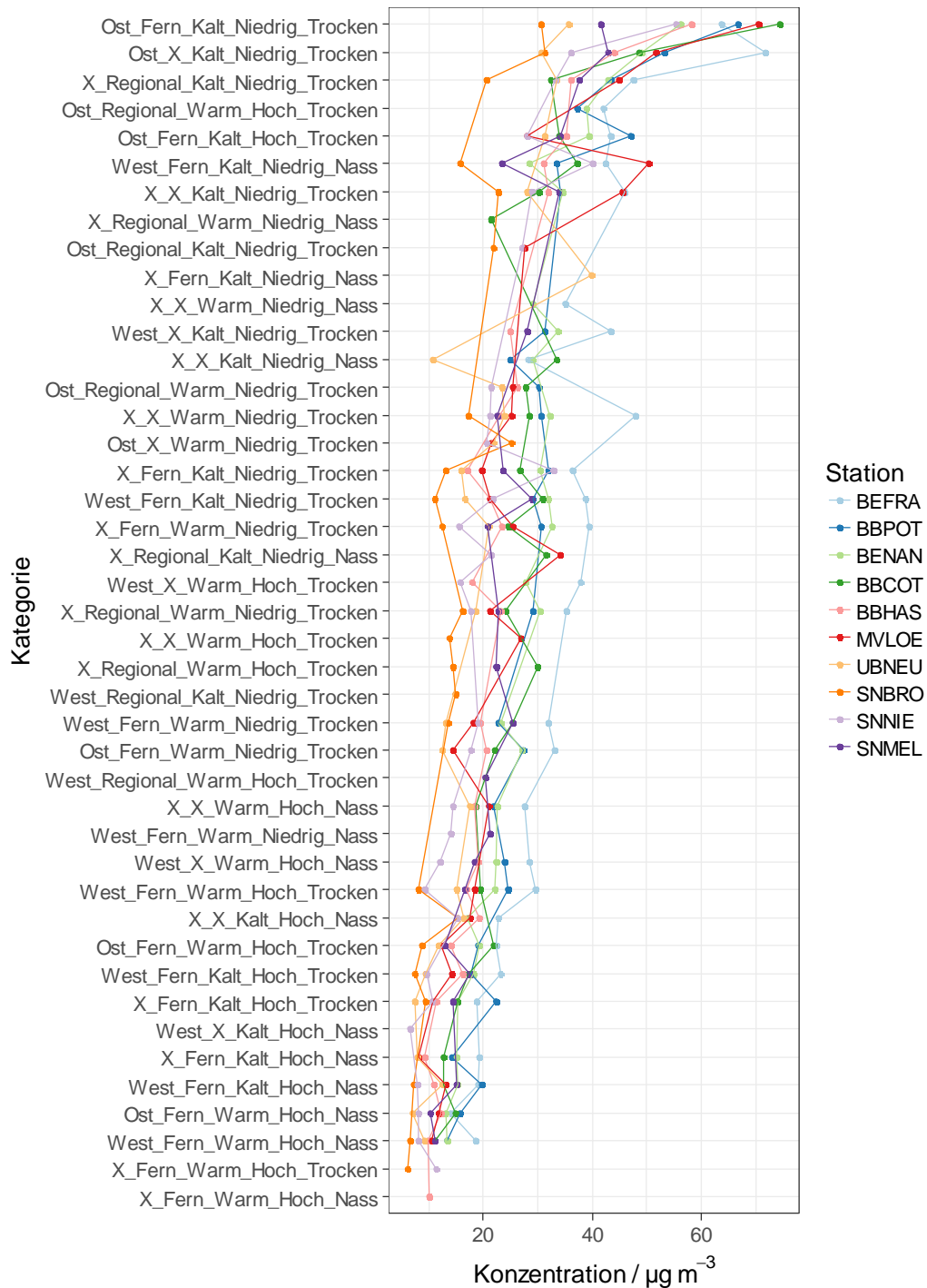


Abbildung 38: Mittlere Konzentrationen an PM10 für die einzelnen Stationen in den kombinierten Kategorien. Die kombinierten Kategorien sind nach Größe der PM10- Massekonzentration sortiert.

Es zeigt sich, dass vor allem die Kombination aus östlicher Anströmung an kalten, trockenen Tagen mit niedriger Grenzschichthöhe zu hohen Partikelmassekonzentrationen führen. Bezüglich der Raumskala sind diese Tage durch Ferntransport oder nicht eindeutig zuordenbare Trajektorien (oberste zwei Kombina-

tionen in Abbildung 38) geprägt. Im Vergleich dazu zeigen sich deutlich geringere mittlere PM10- Konzentrationen bei regionaler Anströmung ebenfalls aus östlicher Richtung an kalten, trockenen Tagen mit niedriger Grenzschichthöhe (9. Kategorie von oben). Dies ist ein Hinweis darauf, dass anthropogen belastete Luftmassen nicht nur aus den direkten Nachbarregionen Polens und Tschechiens ins Untersuchungsgebiet gelangten, sondern auch von noch weiter östlich oder süd-östlich antransportiert wurden.

Bei der Betrachtung des unteren Bereiches von Abbildung 38 ergibt sich, dass geringe mittlere PM10- Konzentrationen mit Werten unter $20 \mu\text{g m}^{-3}$ (untere 7 Kombinationen) als durchgehendes Merkmal eine hohe Grenzschicht, also ein großes Mischungsvolumen, aufweisen. 6 dieser 7 Kombinationen mit den niedrigsten mittleren PM10- Massekonzentrationen tragen weiterhin das Witterungsmerkmal „Nass“, was einen Auswascheffekt durch Niederschlag anzeigt. Der Einfluss der weiteren Belastungskategorien Anströmung, Raumskala und Temperatur fällt eher gering aus. Dennoch deutet die Reihenfolge der Kategorien an, dass die geringsten mittleren PM10- Massekonzentrationen eher an warmen durch Ferntransport gekennzeichneten Tagen auftreten. Ebenfalls auffällig ist noch, dass nur ein einziges Mal bei diesen Kombinationen die Belastungskategorie Ost auftritt.

Insgesamt betrachtet ist mit abnehmender Partikelmassekonzentration zu erkennen, dass der Anteil des Merkmals Grenzschicht „Hoch“ zunimmt. Damit wird die Bedeutung eines größeren Mischungsvolumens für geringe PM10- Massekonzentrationen angezeigt. Auch nimmt die Häufigkeit des Auftretens der Belastungskategorien Ferntransport und Anströmung West mit abnehmender PM10- Massekonzentration zu, was für Tage mit maritimer Anströmungen (über den Atlantik) ins Untersuchungsgebiet spricht.

Während in Abbildung 38 die mittleren PM10- Konzentrationen in Abhängigkeit von den Kategoriekombinationen für die einzelnen Stationen dargestellt sind, ist die Grundlage der folgenden Auswertung die Stationscharakteristik (Land vs. Stadt vs. Verkehr). Um den Einfluss der Einströmung kontinentaler im Vergleich zu maritimen Luftmassen im Untersuchungsgebiet detaillierter zu beschreiben, wurden die mittleren PM10- Konzentrationen aller Verkehrs-, städtischen und ländlichen Messstationen in Abhängigkeit von der Anströmung bestimmt, die Differenz aus Ost-West- Anströmung berechnet und entsprechend der auftretenden Kombinationen an Belastungskategorien sortiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 15 zusammengefasst.

Tabelle 15: Inkrement Ost berechnet durch Differenzbildung der mittleren PM10- Massekonzentration für die Anströmung aus West (W) und Ost (O) in Abhängigkeit von der Stationscharakteristik und den kombinierten Belastungskategorien.

Kombinierte Belastungskategorien	Land			Stadt			Verkehr		
	W/O		Inkrement Ost	W/O		Inkrement Ost	W/O		Inkrement Ost
	$\mu\text{g m}^{-3}$	Anzahl	$\mu\text{g m}^{-3} / \%$	$\mu\text{g m}^{-3}$	Anzahl	$\mu\text{g m}^{-3} / \%$	$\mu\text{g m}^{-3}$	Anzahl	$\mu\text{g m}^{-3} / \%$
Fern_Kalt_Niedrig_Trocken	20 / 46	54 / 40	26 / 132%	32 / 65	15 / 11	33 / 105%	35 / 65	21 / 12	31 / 88%
Fern_Kalt_Hoch_Trocken	12 / 32	53 / 28	20 / 163%	18 / 36	9 / 9	19 / 105%	20 / 45	8 / 9	25 / 122%
X_Kalt_Niedrig_Trocken	22 / 39	14 / 38	18 / 82%	35 / 49	9 / 14	14 / 40%	46 / 62	10 / 12	16 / 35%
Regional_Warm_Hoch_Trocken	16 / 30	11 / 6	13 / 82%	20 / 37	4 / 5	17 / 88%	35 / 40	3 / 6	4,3 / 12%
Regional_Kalt_Niedrig_Trocken	19 / 25	15 / 16	6,9 / 37%	-- / 33		--	-- / 46		-- / --%
X_Warm_Niedrig_Trocken	19 / 24	6 / 18	4,8 / 26%	--		--	--		--
Regional_Warm_Niedrig_Trocken	20 / 24	4 / 16	4,8 / 25%	-- / 28		--	-- / 33		-- / --%
Fern_Warm_Niedrig_Nass	17 / 20	12 / 6	3,7 / 23%	25 / --		--	25 / --		-- / --%
X_Warm_Hoch_Trocken	19 / 22	13 / 3	3,5 / 18%	25 / --		--	33 / --		-- / --%
Fern_Warm_Hoch_Nass	9,5 / 9,8	116 / 29	0,37 / 3,9%	12 / 14	48 / 17	1,8 / 15%	16 / 15	48 / 14	-1,3 / -7,9%
X_Warm_Hoch_Nass	16 / 15	15 / 3	-0,52 / -3,3%	21 / --		--	26 / --		-- / --%
Fern_Warm_Niedrig_Trocken	18 / 16	27 / 20	-2,2 / -12%	24 / 25	11 / 7	0,82 / 3,4%	27 / 31	11 / 7	3,2 / 12%
Fern_Warm_Hoch_Trocken	14 / 12	85 / 30	-2,3 / -16%	21 / 21	31 / 8	0,033 / 0,16%	27 / 20	28 / 10	-6,6 / -24%
Fern_Kalt_Hoch_Nass	11 / 4,2	70 / 5	-6,5 / -61%	14 / --		--	19 / --		-- / --%

„--“: Kategorie nicht besetzt

Die Reihenfolge der in Tabelle 15 dargestellten kombinierten Belastungskategorien ergibt sich aus der Größe des absoluten Ost- Inkrementes (in $\mu\text{g m}^{-3}$) der ländlichen Messstationen, beginnend mit dem höchsten Inkrement Ost von $26 \mu\text{g m}^{-3}$ für die Kombination „Fern_Kalt_Niedrig_Trocken“. Innerhalb dieser Kombination treten auch für die Stationen „Stadt“ und „Verkehr“ die höchsten Ost- Inkremente mit 33 bzw. $31 \mu\text{g m}^{-3}$ auf. Absolut betrachtet variiert das Inkrement Ost demnach nur geringfügig zwischen den Stationstypen (Mittelwert $30 \mu\text{g m}^{-3}$). Die nächst höchsten Ost- Inkremente zeigen sich erneut für trockene, kalte Messtage unter Einfluss von Ferntransport (2. Zeile von oben). Hier führt die Erhöhung der Grenzschicht (= größeres Mischungsvolumen) zu einer Verringerung der PM10- Massekonzentration auf $21 \mu\text{g m}^{-3}$ im Mittel über alle Stationstypen. Eine weitere Abnahme der Konzentration an PM10 wird durch die Änderung der Raumskala offensichtlich. Ost- Inkremente zwischen lediglich noch 4 bis $17 \mu\text{g m}^{-3}$ werden unter Einfluss von regionalen Luftmassen verzeichnet. Die Ergebnisse in Tabelle 15 belegen somit, dass PM10- Ferntransport aus weit östlich gelegenen Quellen größeren Einfluss auf die PM10- Masse im Untersuchungsgebiet besitzt, als dies für regionale Luftmassen der Fall ist. Der bereits anhand von Abbildung 38 identifizierte Einfluss nasser, warmer Messtage in Verbindung mit hohen Grenzschichten auf die PM10- Massekonzentration wird auch anhand der Ergebnisse in Tabelle 15 bestätigt. Diese Einflüsse (z. B. Auswascheffekt) führen zu den geringsten, zum Teil sogar negativen Ost- Inkrementen unabhängig vom Stationscharakter.

Die Ergebnisse aus Tabelle 15 werden in der nachfolgenden Abbildung 39 noch einmal als relative Anteile (in %) an der PM10- Massekonzentration während Ostlagen mit positivem Inkrement- Ost grafisch zusammengefasst.

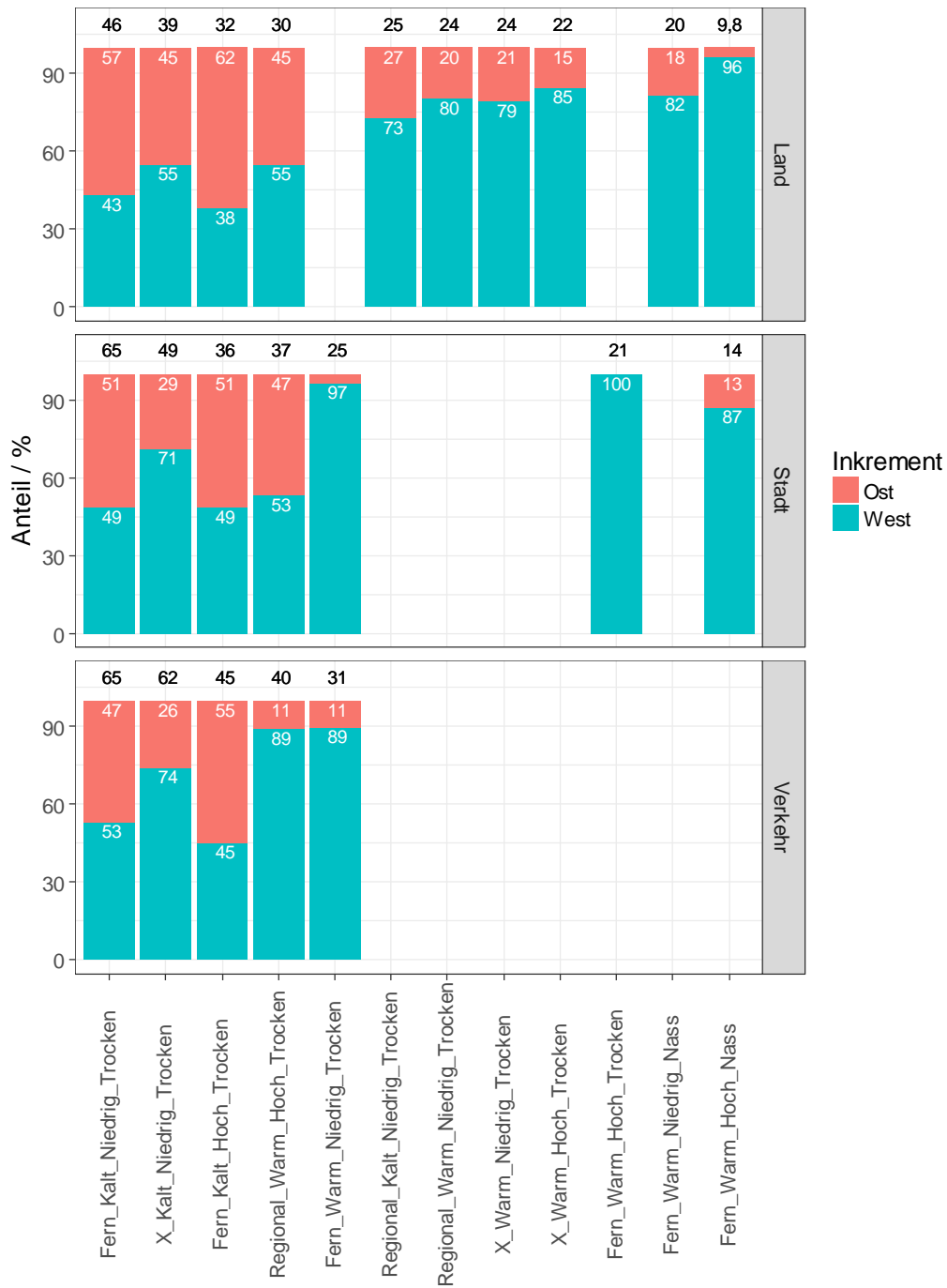


Abbildung 39: Mittlere Beiträge des grenzüberschreitenden Ferneintrages von PM10 aus östlicher Richtung ins Untersuchungsgebiet (Inkrement Ost). Schwarze Zahlen über den Balken geben die mittlere Konzentration bei Ostanströmung in $\mu\text{g m}^{-3}$ an, weiße Zahlen die Anteile des Hintergrundniveaus (West) und des zusätzlich antransportierten Beitrages (Ost) unter den jeweiligen meteorologischen Bedingungen, jeweils gemittelt nach Stationstyp.

Aus Abbildung 39 ergeben sich gemittelt über den Stationstyp folgende Anteile des Ost- Inkrementes an der PM10- Massekonzentration: 50% bei mittleren Konzentrationen $> 30 \mu\text{g m}^{-3}$, 20% bei mittleren Konzentrationen $20 - 30 \mu\text{g m}^{-3}$ und ein vernachlässigbarer Anteil bei mittleren Konzentrationen $< 20 \mu\text{g m}^{-3}$.

In Ergänzung zu Tabelle 15 wurden die Ost- Inkremente speziell für die Tage, an denen Grenzwertüberschreitungen auftraten, in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 16 zusammengestellt.

Tabelle 16: Inkrement Ost berechnet durch Differenzbildung der mittleren PM10- Massekonzentration für Grenzwertüberschreitungstage mit Anströmung aus West (W) und Ost (O) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien.

Station	Kombinierte Belastungskategorie	W / O		Inkrement Ost
		$\mu\text{g m}^{-3}$	Anzahl	$\mu\text{g m}^{-3}$
BBCOT	X_Kalt_Niedrig_Trocken	52 / 70	1 / 2	18
BBCOT	Fern_Kalt_Niedrig_Trocken	58 / 74	1 / 5	16
BEFRA	X_Kalt_Niedrig_Trocken	75 / 88	3 / 4	13
BBPOT	X_Kalt_Niedrig_Trocken	56 / 68	1 / 3	12
BEFRA	Fern_Kalt_Niedrig_Trocken	63 / 74	2 / 5	11

Wie in Tabelle 16 angegeben, wurde die Mindestanforderung an die Aufnahme einer Kombination von Belastungskategorien für diesen Auswerteanatz von mindestens 2 Messtagen aufgehoben. Trotz dieser geringen Anzahl an Messtagen lassen sich wichtige qualitative und quantitative Hinweise ableiten. Die Grenzwertüberschreitungstage an den Stationen BEFRA, BBPOT und BBCOT aus Tabelle 16 treten in den Kategoriekombinationen Fern_Kalt_Niedrig_Trocken und X_Kalt_Niedrig_Trocken auf. Es handelt sich demnach um die Kombinationen, die bereits in Tabelle 15 zu hohen Ostinkremente führten. Aus Tabelle 16 ergibt sich, dass an den städtischen Stationen in den genannten kombinierten Belastungskategorien ein Inkrement Ost von 11 bis $18 \mu\text{g m}^{-3}$ an Grenzwertüberschreitungstagen auftritt. Trotz der geringen Anzahl und Häufigkeit der Messtage deutet dies an, dass grenzüberschreitender Transport bezüglich Grenzwertüberschreitungen eine wichtige Rolle spielt, aber zumindest im städtischen Bereich nicht zwingend der dominante Faktor ist.

3.3.3 Clusteranalyse Rückwärtstrajektorien

Diese Clusteranalyse erlaubt eine Zusammenfassung von Rückwärtstrajektorien in mehrere Cluster, innerhalb derer sich die Trajektorien und damit die räumliche Herkunft der beprobten Luftmassen möglichst ähnlich sind und die jeweils durch eine mittlere Clustertrajektorie repräsentiert werden. Die Berechnung der Ähnlichkeit der Trajektorien kann auf unterschiedliche Weise durchgeführt

werden, die hier verwendete Methode basiert auf einer Winkel-basierten Abstandsmatrix, die die Ähnlichkeit zweier Trajektorien bezüglich ihres Winkels vom Trajektorienursprung, also von der Messstation beschreibt und Clustertrajektorien ergibt, die sich möglichst gut in ihrer Anströmungsrichtung bzw. bezüglich der atmosphärischen Zirkulation unterscheiden.

Im Folgenden wird daher gezeigt, wie ausgehend von allen stündlich erstellten 96 Stunden- Rückwärtstrajektorien im Untersuchungszeitraum, eine „Winkelbasierte“ Abstandsmatrix für eine Clusterung nach Sirois und Bottenheim (1995) berechnet wird. Für den Messzeitraum von 212 Tagen ergeben sich 5088 96 Stunden- Rückwärtstrajektorien. In den Trajektorien- Clustern sind Rückwärtstrajektorien mit ähnlichen Ursprüngen gruppiert. Für die Berechnung der Cluster wurde das Programm R (www.r-project.org) mit dem Paket „openair“ (Carslaw und Ropkins 2012) verwendet. Die Ähnlichkeit von Trajektorien wird mit Hilfe einer Winkel- Abstands- Matrix bestimmt. Sie ist ein Maß dafür, wie ähnlich sich zwei Rückwärtstrajektorienpunkte in Bezug auf ihren Winkel zum Trajektorienursprung sind. Die Winkel-Abstands-Matrix ist wie folgt definiert:

$$d_{1,2} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \cos^{-1}\left(0,5 \frac{A_i+B_i+C_i}{\sqrt{A_i B_i}}\right) \quad (1)$$

mit

$$A_i = (X1(i) - X0)^2 + (Y1(i) - Y0)^2$$

$$B_i = (X2(i) - X0)^2 + (Y2(i) - Y0)^2$$

$$C_i = (X2(i) - X1(i))^2 + (Y2(i) - Y1(i))^2$$

X1, Y1 und X2, Y2 beschreiben jeweils die Längen- und Breitengrad-Koordinaten für die Rückwärtstrajektorie 1 bzw. 2. X0 und Y0 stehen für die Koordinaten des Startpunktes der Trajektorien. N ist die Anzahl von Rückwärtstrajektorienpunkten (96 Punkte bei einer 96 Stunden- Rückwärtstrajektorie). In Abbildung 40 ist für die Station BEFRA für 5 Rückwärtstrajektoriencluster das Ergebnis gezeigt.

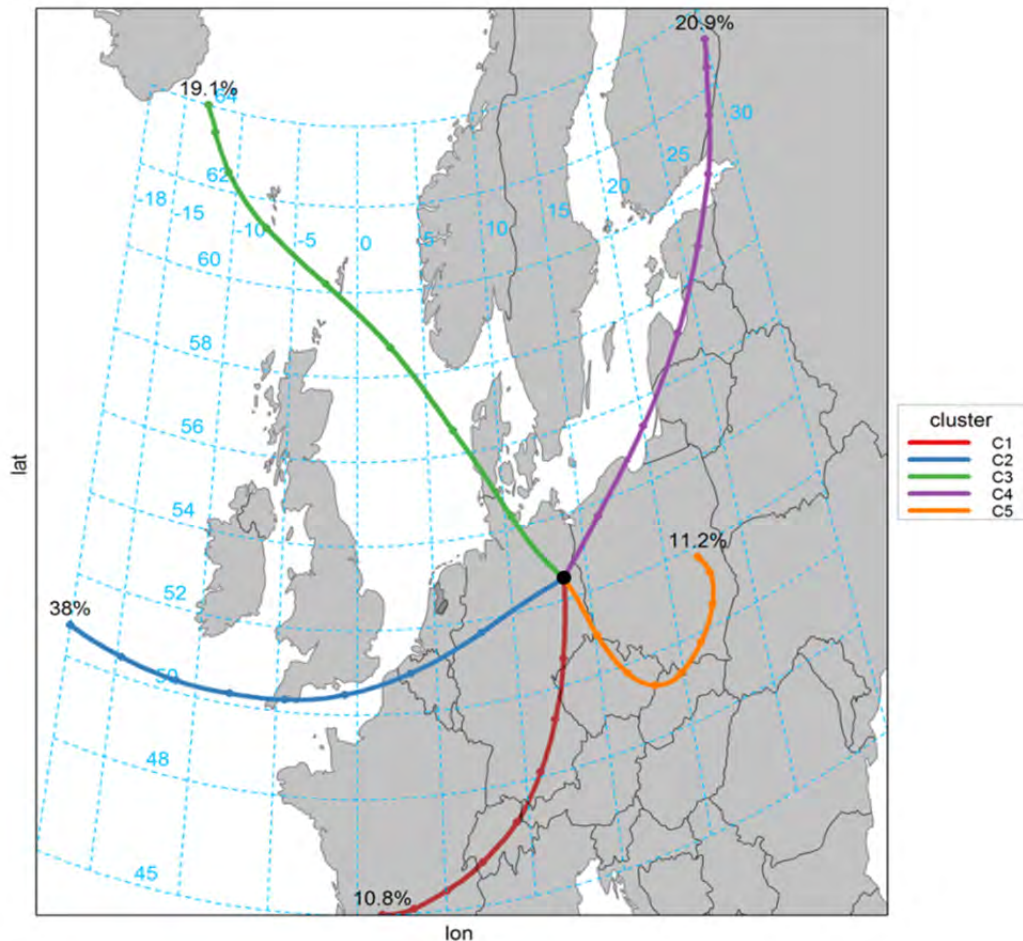


Abbildung 40: Clusteranalyse für die Station BEFRA im Untersuchungszeitraum mit den Clustern:

C1	Südwest – kontinental	(11%)
C2	West – kont. / maritim	(38%)
C3	Nordwest – maritim	(19%)
C4	Nordost – maritim	(21%)
C5	Südost – kontinental	(11%)

Es ist zu erkennen, dass das Trajektoriencluster C5 über ein Gebiet relativ starker anthropogener Emissionen zieht (vgl. auch Abbildung 41, Cluster 5. Abbildung 41 veranschaulicht als Beispiel die von den Trajektorien (ausgehend in BEFRA) in den Clustern C1 bis C5 überströmten Gebiete in Europa. Einen Überblick über die separate Clusteranalyse für jede der 10 Stationen im Untersuchungsgebiet mit jeweils 5 Clustern gibt Abbildung 42. Es ist gut zu sehen, dass sich die Trajektoriencluster je nach Station etwas unterschiedlich ausprägen. Abbildung 43 zeigt das Ergebnis der hier beschriebenen Trajektorienclusteranalyse in Form der mittleren Konzentrationen in den Clustern C1-C5 im Untersuchungszeitraum an allen 10 Stationen. Angegeben sind die Mittelwerte für die PM₁₀-Massenkonzentration und für die Hauptinhaltsstoffe.

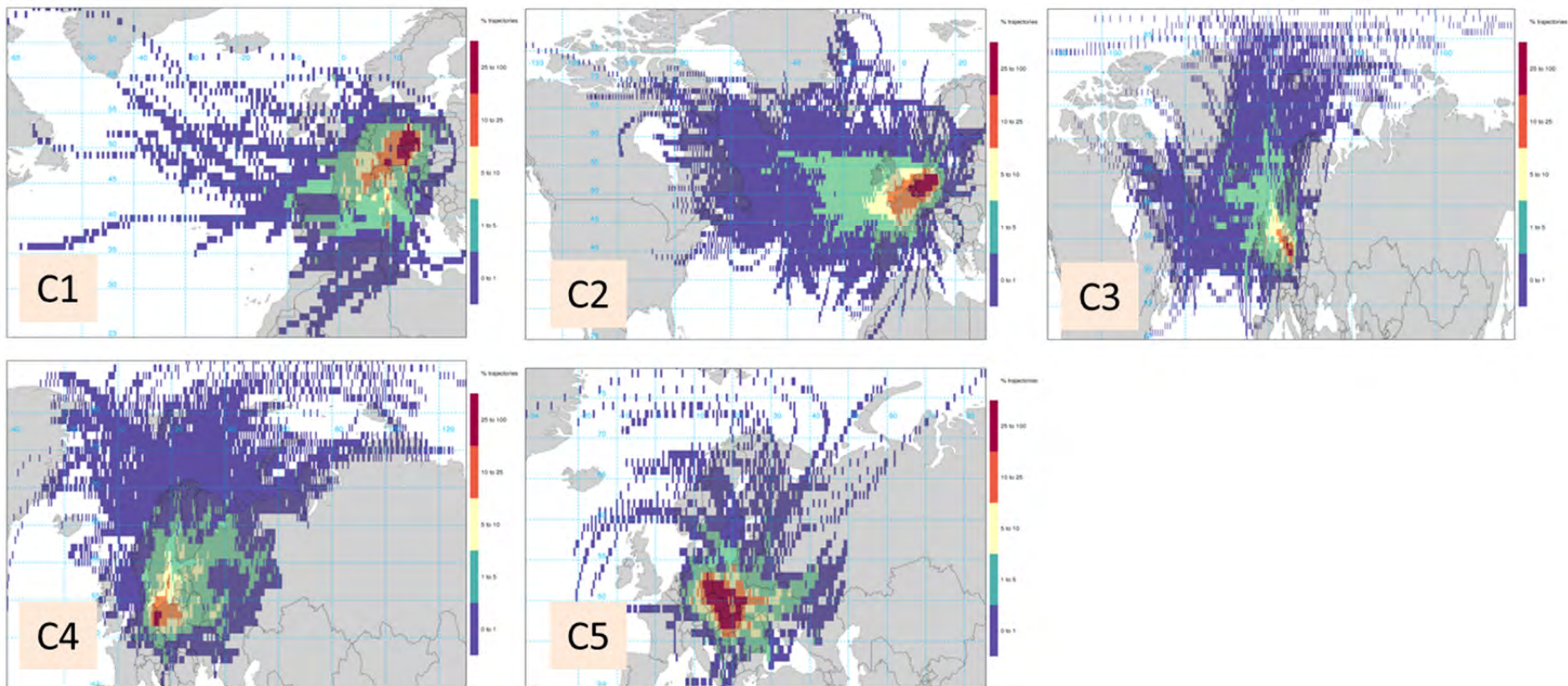


Abbildung 41: Überströmte Gebiete in Europa, Trajektorien ausgehend von BEFRA in den Clustern C1 bis C5 (vgl. auch Abbildung 40)

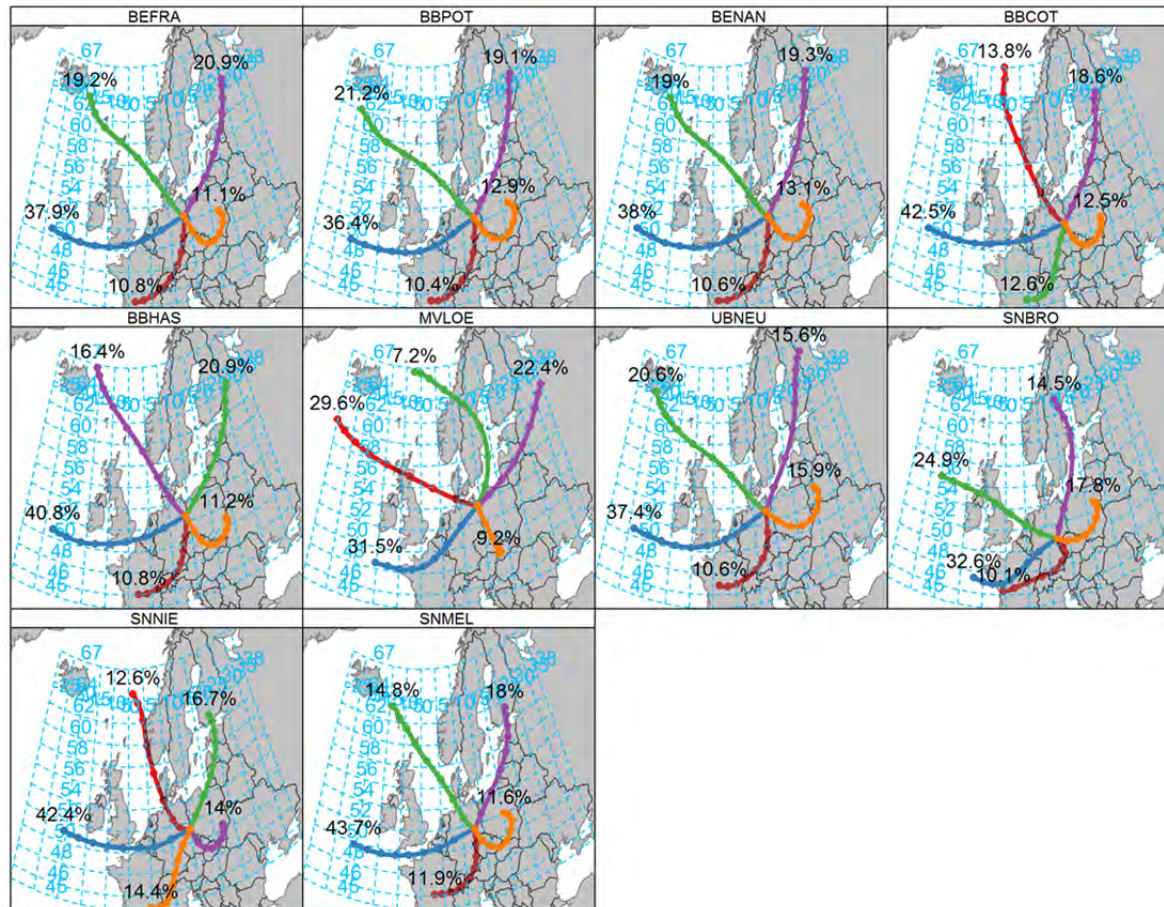


Abbildung 42: Überblick über das Ergebnis der separaten Clusteranalyse für jede der 10 Stationen im Untersuchungsgebiet mit jeweils 5 Clustern. Die Farben der Trajektoriencluster weichen hier teilweise im Vergleich zu Abbildung 40 ab.

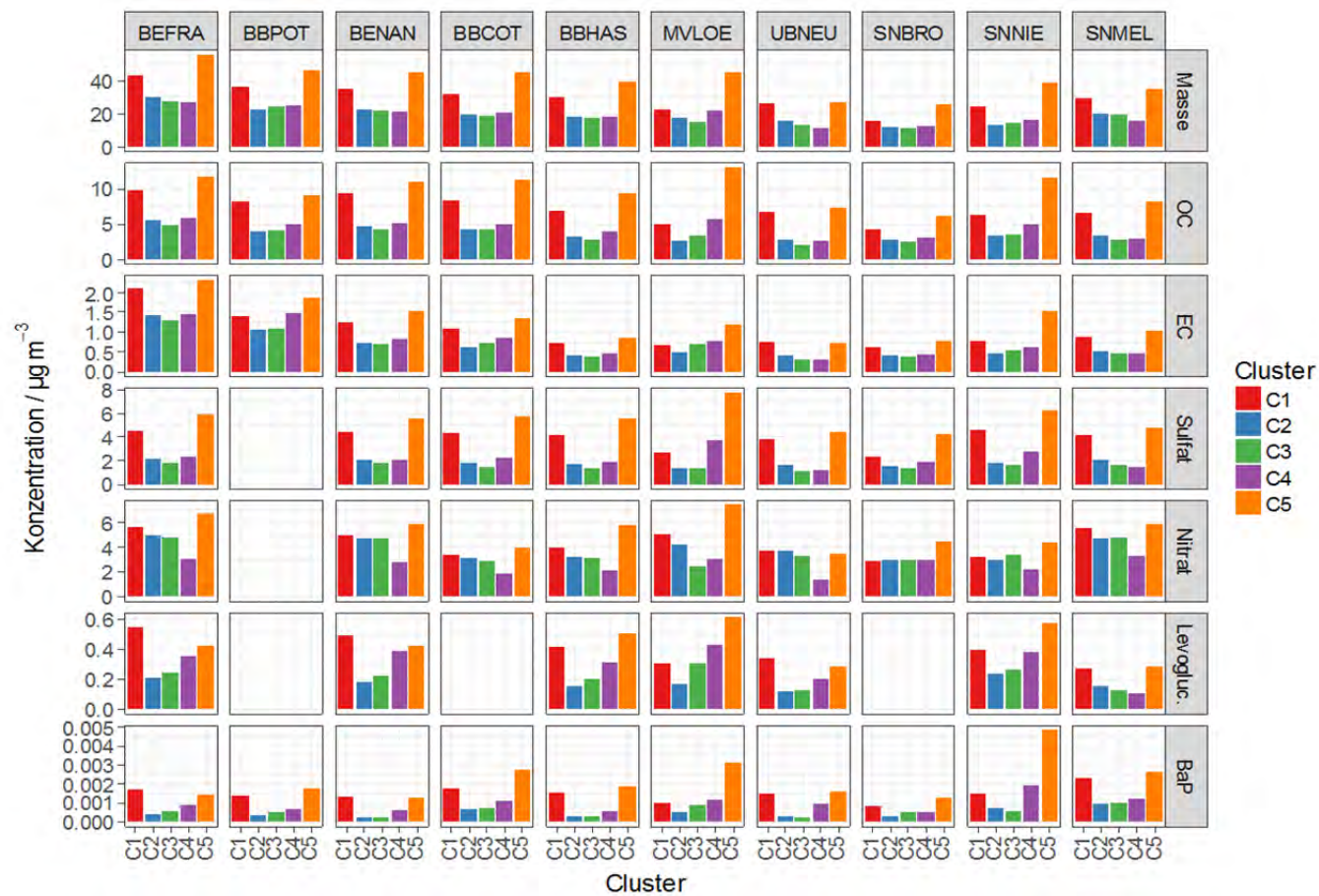


Abbildung 43: Mittlere Konzentrationen in den Clustern C1-C5 im Untersuchungszeitraum, gezeigt für alle Stationen für PM10- Massenkonzentration und die Hauptinhaltsstoffe.

Sowohl für die Partikelmassekonzentration als auch für die Inhaltsstoffe treten die höchsten Konzentrationen an allen Stationen im Cluster C5 auf. Die Trajektorien dieses Clusters ziehen von Südost heran und transportieren kontinentale Luftmassen. Dabei treten für C5 in SNNIE hohe Konzentrationen für Levoglucosan und BaP auf. Auch an der Station MVLOE treten für C5 sehr hohe Konzentrationen für Levoglucosan und BaP auf. In MVLOE werden im Mittel für C5 die höchsten Nitrat- und Sulfatkonzentrationen registriert, das zeigt, zusammen mit den erhöhten Nitrat- und Sulfatkonzentrationen an den anderen Stationen Ferntransport von sekundär gebildeter anorganischer Partikelmasse. Die höchsten EC und OC Konzentrationen finden sich in C5 an der Verkehrsstation BEFRA (Emissionen aus KfZ). Für beide Spezies nimmt die Konzentration von den Verkehrsstationen zum ländlichen Hintergrund hin ab. C1 ist das Cluster mit den zweithöchsten Konzentrationen an allen Stationen für PM10 und die ausgewählten Inhaltsstoffe. Es handelt sich hier um die kontinentale südwestliche Anströmung. Für den Verbrennungstracer BaP sind die mittleren Konzentrationen eher gering. Für die östlich gelegenen Stationen BBCOT, MVLOE, SNNIE und SNMEL zeigen sich für C5 höhere Konzentrationen bedingt durch Einfluss von Ferntransport aus östlicher Richtung. An der Station SNMEL sind die mittleren Konzentrationen auch für C1 ähnlich hoch wie für C5. Für Levoglucosan zeigen sich in fast allen Clustern und für alle Stationen erhöhte Konzentrationen. Auffallend sind außer für UBNEU und SNMEL relativ hohe Levoglucosankonzentrationen für eine Anströmung maritimer Luftmassen aus Nordost. Das hier diskutierte Beispiel der Clusteranalyse von Rückwärtstrajektorien zeigt, dass mit südöstlicher Anströmung von kontinentalen Luftmassen großflächig hohe PM10- Massekonzentrationen und hohe Konzentrationen von PM10-Inhaltsstoffen auftreten.

3.3.4 Räumliche Quellzuordnung mit Trajektorienstatistik

Neben der Clusteranalyse existieren weitere trajektorienstatistische Methoden, in denen Rückwärtstrajektorien für eine geographische Quellzuordnung, d.h. für eine Abschätzung der Ursprungsregionen hoher PM-Belastung an einer Rezeptorstation, verwendet werden (Fleming et al. 2012). Hier angewendet wurde die von (Seibert et al. 1994) erstmals eingeführte sog. „Concentration-Weighted Trajectory“ (CWT) Methode, die die am Rezeptor beobachteten Konzentrationen entlang der zugehörigen Rückwärtstrajektorien verteilt und anschließend nach Gleichung (2) in einem überlagerten Gitternetz ein gewichtetes Mittel pro Gitterzelle berechnet, wobei als Wichtungparameter die Aufenthaltszeit der Trajektorie in der jeweiligen Gitterzelle verwendet wird.

$$\ln(\bar{C}_{ij}) = \frac{1}{\sum_{k=1}^N \tau_{ijk}} \sum_{k=1}^N \ln(c_k) \tau_{ijk} \quad (2)$$

mit

i,j: Gridindizes

k: Index der Trajektorie

N: Gesamtzahl aller Trajektorien

c_k : Konzentration an Rezeptorsite bei Ankunft der Trajektorie k

τ_{ijk} : Aufenthaltszeit der Trajektorie k in Gridzelle (i,j)

Im Ergebnis wird für einen ausreichend großen Datensatz eine Karte erhalten, die für alle Gitterzellen angibt, wie hoch – im Mittel – die Konzentration an der Rezeptorstation ist, wenn die Luftmasse die jeweilige Gitterzelle passiert. Zu beachten ist, dass eine solche Auswertung nur für überwiegend antransportierte Schadstoffe durchgeführt werden sollte, da eine Verteilung lokal emittierter Stoffe entlang der Rückwärtstrajektorien nicht sinnvoll ist.

Abbildung 44 zeigt als Beispiel CWT Plots für die PM10- Massekonzentration von drei Stationen im Untersuchungsgebiet für den gesamten Zeitraum von PM-Ost (212 Tage, ohne Neujahr und Silvester).

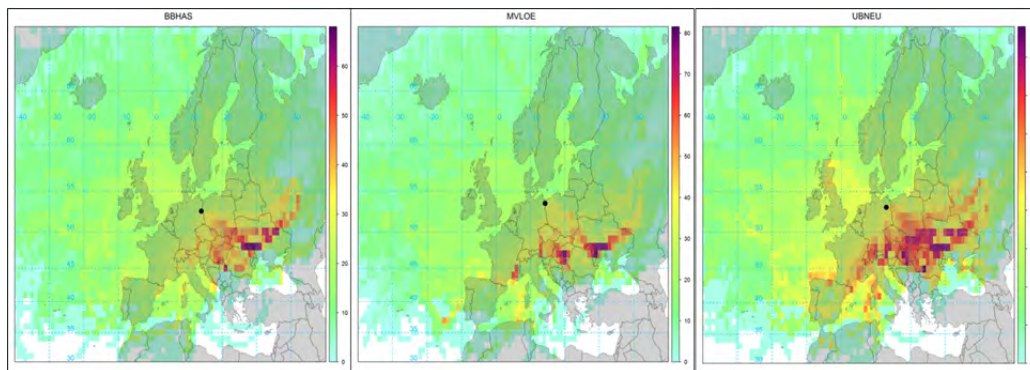


Abbildung 44: CWT- Plots für BBHAS, MVLOE und UBNEU.

In den CWT- Plots sieht man, dass die höchsten Konzentrationen aus Südosteuropa stammten, was ein Hinweis auf in Ungarn, Rumänien und der Ukraine gelegene Quellregionen ist, wobei für Teile Tschechiens und Polens ebenfalls erhöhte Werte berechnet wurden. Dieser Befund steht nicht im Widerspruch zum Befund aus den kombinierten Belastungskategorien wonach der regionalen Raumskala im Mittel eher niedrigere PM10- Konzentrationen zugeordnet wurden. Allerdings sind sowohl die Berechnung der Rückwärtstrajektorien, als auch ihre Auswertung im CWT-Ansatz mit erheblichen Unsicherheiten behaftet. Die beschriebenen Ergebnisse sind daher nur als Hinweis auf mögliche großräumige Quellregionen zu verstehen und können nicht als Beleg für einen nachrangigen Einfluss direkt benachbarter Grenzregionen dienen.

3.3.5 Positive Matrixfaktorisierung (PMF)

Zur detaillierten und quantitativen Quellzuordnung der PM10- Massekonzentrationen kam die „Positive Matrixfaktorisierung“ (PMF) zum Einsatz. Die PMF stellt ein multivariates statistisches Rezeptormodell dar, mit dem eine Matrix aus Beobachtungen (Konzentrationen von PM10 und Inhaltsstoffen) mathematisch in zwei Matrizen zerlegt bzw. faktorisiert wird, von denen eine die vom Modell aufgelösten Quellzusammensetzungen und die andere die jeweiligen Quellbeiträge für eine vorgegebene Anzahl von Quellen (Faktoren) widerspiegelt (Paatero und Tapper 1994; Belis et al. 2014; Norris et al. 2014; Paatero et al. 2014).

Die Anwendung der PMF- Methode im Laufe dieses Projekts erfolgte mithilfe der Software EPA PMF Version 5 der US- Umweltschutzbehörde. Dieser Software liegt die Multilinear Engine 2 (ME-2) zu Grunde, die die mathematischen Operationen durchführt.

Zur Durchführung der PMF- Analysen werden sowohl eine Matrix der Konzentrationen von PM10 und Inhaltsstoffen, als auch eine Matrix der zugehörigen Messunsicherheiten benötigt. Die Unsicherheitsmatrix dient als Wichtung der Konzentrationen, um den Einfluss von Messwerten mit hoher Unsicherheit, z.B. Werte nahe oder unterhalb der Nachweisgrenze (NWG) auf die Datenanalyse zu minimieren. Im Projekt wurde die Unsicherheit eines Messwertes aus zwei Komponenten bestimmt:

- i) Unsicherheit der analytischen Konzentrationsbestimmung, bereitgestellt durch die Labore der Länder bzw. die Auftragnehmer der Filteranalysen
- ii) Unsicherheit der Nachweisgrenze, definiert als 5/6 der NWG (Belis et al., 2014), wobei die NWG jedes Parameters ebenfalls durch die Labore berichtet wurde

Die von den verschiedenen Laboren für die verschiedenen Messstationen berichteten Messunsicherheiten und NWG unterschieden sich für denselben Inhaltsstoff teilweise deutlich, was zumindest zum Teil auch in einer unterschiedlichen Ermittlung dieser Parameter begründet sein kann. Daher wurde über Vergleichsläufe der PMF mit einer harmonisierten Unsicherheitsmatrix, in der NWG und Messunsicherheit für jeden Parameter an allen Stationen gleich gesetzt wurde, überprüft, inwieweit die unterschiedlichen Werte die PMF Ergebnisse beeinflussen. Es zeigte sich, dass es zwar zu geringfügigen Verschiebungen in der Zuordnung der Masse zwischen ähnlichen Quellkategorien kommen kann, insgesamt die Ergebnisse für diesen Datensatz aber robust und sehr gut vergleichbar waren. Daher wurden Messunsicherheit und NWG in den berichteten Versionen verwendet.

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

Da das PMF- Modell Nullwerte in der Konzentrationsmatrix nicht erlaubt, wurden Messwerte unterhalb der NWG ersetzt durch $0,5 \times \text{NWG}$ der jeweiligen Verbindung (Belis et al. 2014). Fehlende Messwerte einzelner Verbindungen (z.B. aufgrund von Gerätefehlern bei einzelnen Messungen) wurden ersetzt durch den Median der Verbindung innerhalb des jeweiligen Messstandorts (z.B. Median von Nitrat in BBHAS). Ihre Unsicherheit wurde auf $4 \times \text{Median}$ der Konzentration gesetzt, damit kein Einfluss auf die PMF- Lösung mehr vorliegt (Norris et al., 2014).

Die PMF wurde auf alle Proben und chemische Spezies angewandt, die an den Stationen untersucht wurden. Die Station BBPOT wurde jedoch von allen Analysen ausgeschlossen, da hier keine Ionenkonzentrationen vorlagen und die chemische Information für eine Rezeptormodellierung damit zu gering war. Um eine statistisch große Anzahl von Messungen sowie eine bessere Funktionalität des Modells zu generieren, wurden die Proben aller verbleibenden neun Stationen zu einem einzelnen Eingabedatensatz gebündelt.

Um ein besseres Verständnis der verschiedenen Quellen an den jeweiligen Messstationen zu ermöglichen, besonders an den Stationen, an denen sich die Zahl der analysierten chemischen Verbindungen unterschied, wurden PMF-Durchläufe auf 5 Stufen (Level) ausgeführt, die wie folgt definiert wurden:

- Level 1: Alle Messtage (212), 9 Stationen, Masse, Ionen und OC / EC
- Level 2: 80 SMT, 9 Stationen, Masse, Ionen und OC / EC
- Level 3: 80 SMT, 9 Stationen, Masse, Ionen, OC / EC und PAK
- Level 4: 80 SMT, 9 Stationen, Masse, Ionen, OC / EC, PAK und Levoglucosan
- Level 5: 80 SMT, 2 Stationen (Berlin), Masse, Ionen, OC / EC, PAK, Levoglucosan, Metalle

Vor der Durchführung der PMF wurde jede Spezies in der Inputmatrix entsprechend ihres Signal/Rausch-Verhältnisses sowie anderen qualitativen Erwägungen als entweder "stark", "schwach" oder "schlecht" kategorisiert. Dies führt dazu, dass die Unsicherheit der jeweiligen Spezies entweder wie in der Unsicherheitsmatrix definiert („starke Variablen“), oder verdreifacht wird („schwache Variablen“), wodurch der Einfluss der Spezies auf das Ergebnis geringer wird. „Schlechte“ Variablen werden von der PMF- Berechnung ausgeschlossen.

Die Massekonzentration, die die erklärende Gesamtvariable darstellt, wird grundsätzlich als schwach eingestuft, um ihren Einfluss auf das Endergebnis einzugrenzen (Norris et al. 2014).

Für die PMF- Durchläufe auf Level 1 bis 4 wurden DBahA, Magnesium und Partikelmasse als schwach eingestuft. Für den PMF- Durchlauf auf Level 5 wurden DBahA, V, Cr, Co, Sn und Sb als schlecht sowie Magnesium und Partikelmasse als schwach eingestuft.

Für jedes Level wurden PMF- Varianten mit 4 bis 10 extrahierten Faktoren berechnet. Diese Faktoren wurden daraufhin auf ihre Interpretierbarkeit sowie die mathematische Robustheit der Modelllösung hin beurteilt. Die Festlegung der Zahl der Faktoren für die finalen PMF Lösungen basierte auf folgenden Gesichtspunkten (Belis et al. 2014): abnehmender Q/Q_{exp} -Wert bei steigender Faktorenzahl, Verteilung der normierten Residuen innerhalb ± 3 für die meisten Elemente, Korrelation gemessener und modellierter Gesamtmassenkonzentration, Korrelation gemessener und modellierter Spezieskonzentrationen, Plausibilität von chemischen Faktorprofilen (Quellprofilen) sowie Plausibilität der Zeitreihen der Quellbeiträge an den verschiedenen Stationen. Grundsätzlich stellte eine physikalisch sinnvolle Interpretation das Hauptkriterium bei der Beurteilung der Faktorauflösung dar.

3.3.5.1 Identifizierung von Quellkategorien

In Abbildung 45 bis Abbildung 49 sind die Quellprofile der auf den Levels 1 – 5 durch die PMF final extrahierten Faktoren gezeigt, die zusammen mit den später diskutierten Zeitreihen der Quellbeiträge an den Stationen die Basis für die physikalische Interpretation der mathematischen Faktoren bildeten.

Auf **PMF Level 1** konnten 6 Quellkategorien identifiziert werden. Die ersten beiden Faktoren zeichnen sich durch hohe Masse- und Speziesanteile von Natrium aus, wobei darüber hinaus der erste Faktor sehr viel Chlorid und der zweite Faktor deutliche Masseanteile von Sulfat, Nitrat und OC enthält. Diese beiden Faktoren repräsentieren daher die Quellen **frisches Salz** (See- oder Streusalz), sowie chemisch **gealtertes Salz**. Bei diesem wurde Chlorid während der Aufenthaltszeit in der Atmosphäre durch andere Mineralsäuren (Schwefelsäure, Salpetersäure) oder organische Säuren ausgetauscht, was ein bekannter Prozess beim Transport maritimer Luftmassen über anthropogen beeinflusste Regionen ist. Die nächsten beiden Faktoren bestehen zum einen aus Nitrat und Ammonium und zum anderen aus Sulfat, Ammonium und OC und damit aus Inhaltsstoffen, die überwiegend sekundär in der Atmosphäre aus den Vorläufern NO_x , SO_2 , NH_3 , sowie flüchtigen organischen Verbindungen gebildet werden. Sie wurden in PMF Quellzuordnungsanalysen regelmäßig als Quellkategorien aufgelöst und im Folgenden als **Sekundär I** (Ammoniumnitrat, AN) und **Sekundär II** (Ammoniumsulfat und organisches Material, AS + OC) bezeichnet. Der

5. Faktor besteht überwiegend aus OC und zu etwa 20% aus EC und zeigt hohe Speziesanteile von Kalium, welches neben Krustenmaterial v.a. Verbrennungsprozesse als Hauptquelle hat. Demensprechend wurde dieser Faktor den Emissionen aus **Verbrennung** aller Art zugeordnet. Der 6. Faktor schließlich besteht zu ca. 40% aus OC, des weiteren aus EC, Nitrat und Sulfat, sowie zu > 10% aus Calcium, welches ebenfalls einen sehr hohen Speziesanteil in diesem Faktor zeigt. Dieses Quellprofil, zusammen mit den Quellbeiträgen, die von den Verkehrsstationen über die städtischen hin zu den ländlichen Hintergrundstationen stark abnehmen (s. unten) legte **Verkehr** als Quellkategorie nahe, wobei Aufwirbelungsprozesse von Krustenmaterial (Calcium) hier einen deutlichen Beitrag haben. Aufwirbelung von Krustenmaterial kann gerade im ländlichen Hintergrund auch durch Wind erfolgen, weshalb speziell für diese Stationen auch Erosion einen Beitrag zu den berechneten Quellbeiträgen leisten kann.

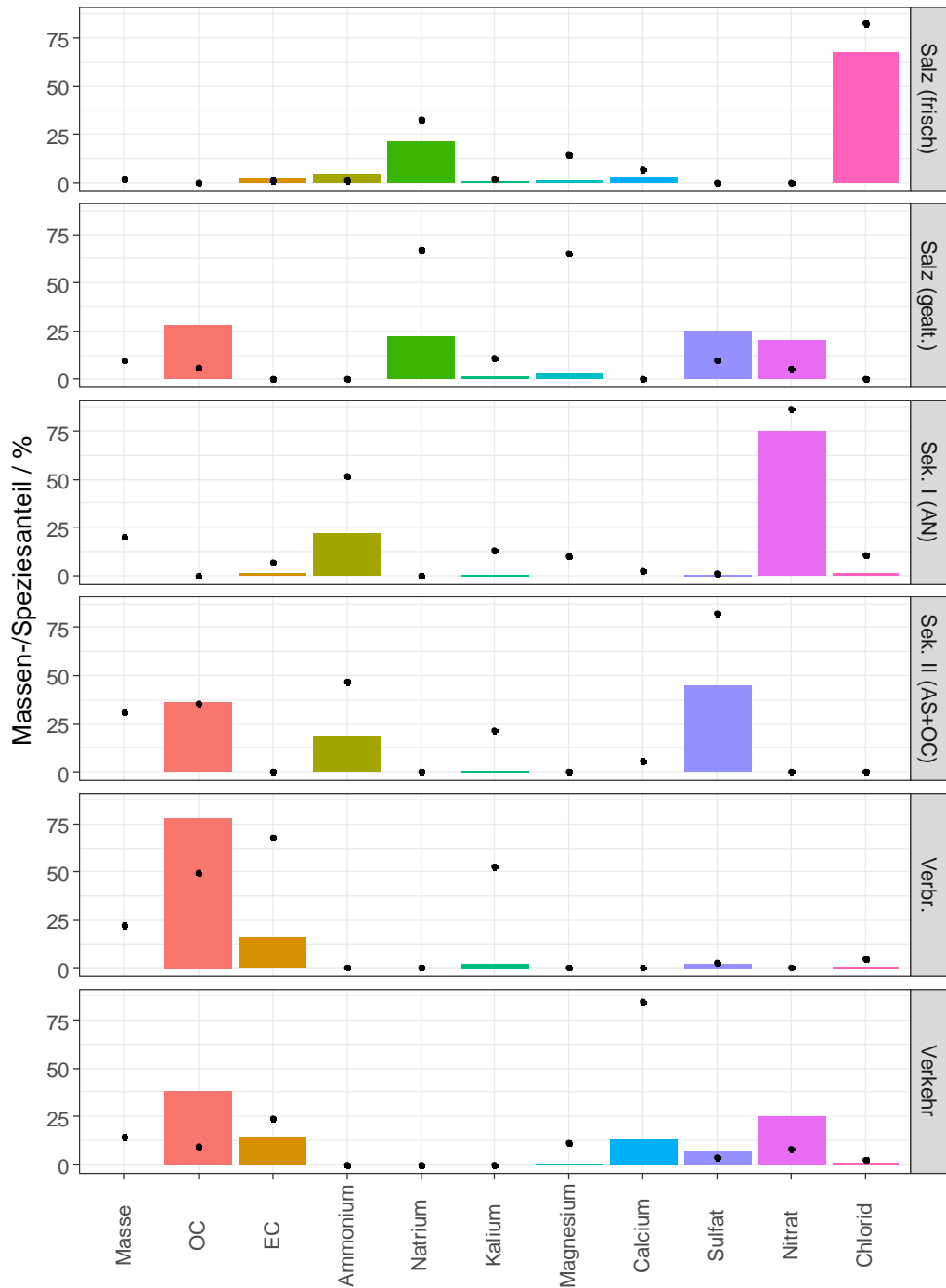


Abbildung 45: Quellprofile der 6 Faktoren des Level 1 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).

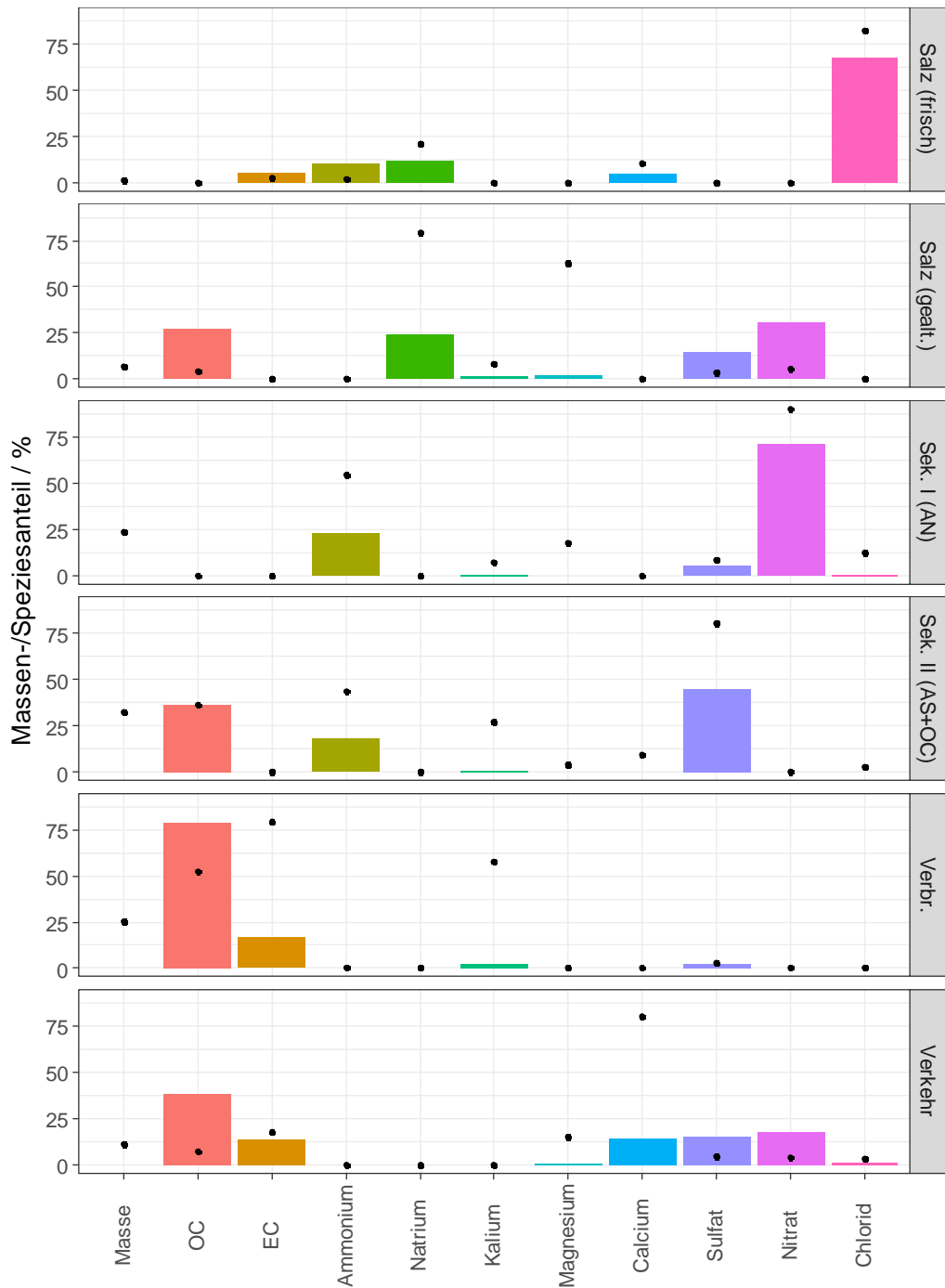


Abbildung 46: Quellprofile der 6 Faktoren des Level 2 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).

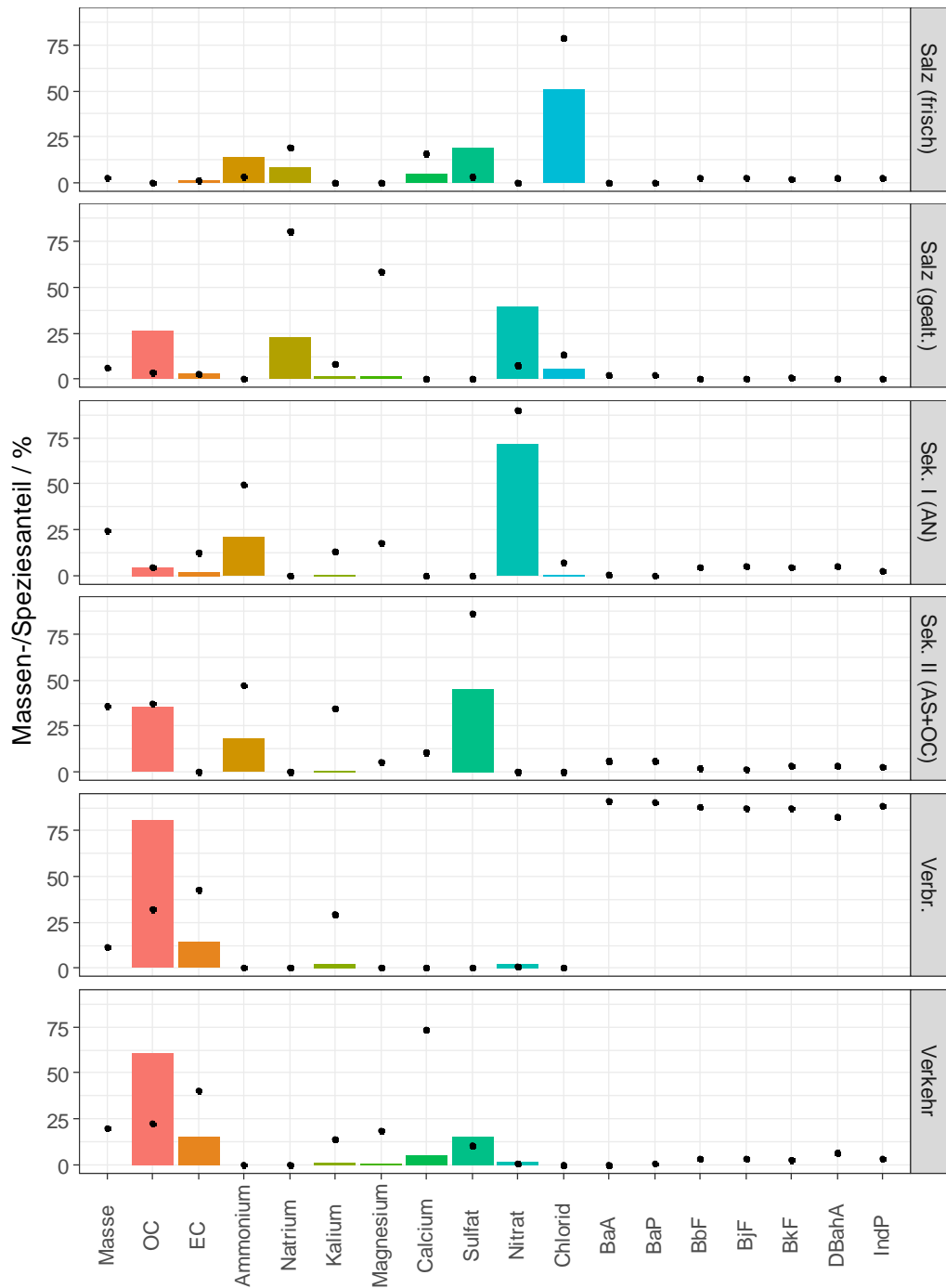


Abbildung 47: Quellprofile der 6 Faktoren des Level 3 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).

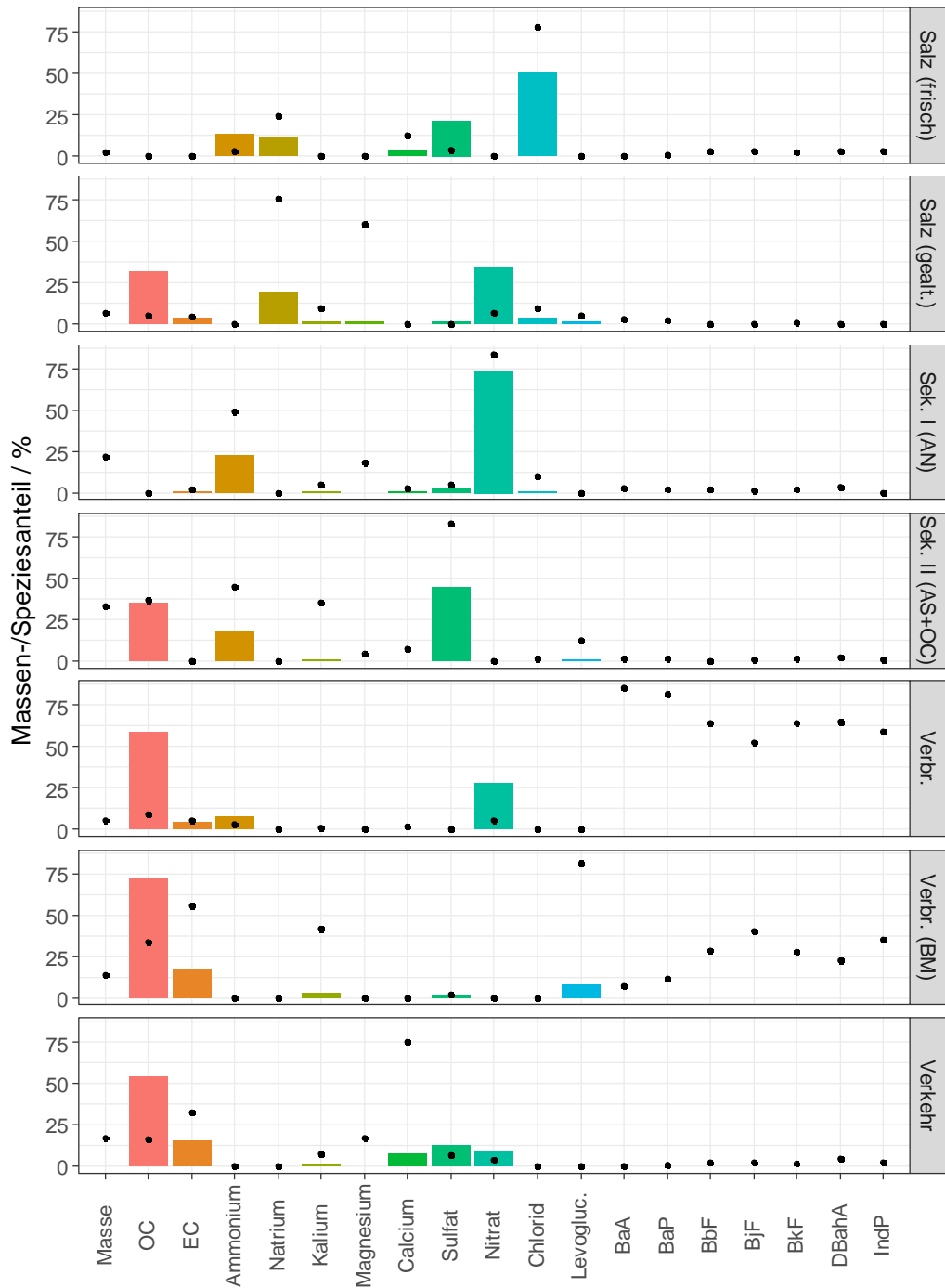


Abbildung 48: Quellprofile der 7 Faktoren des Level 4 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).

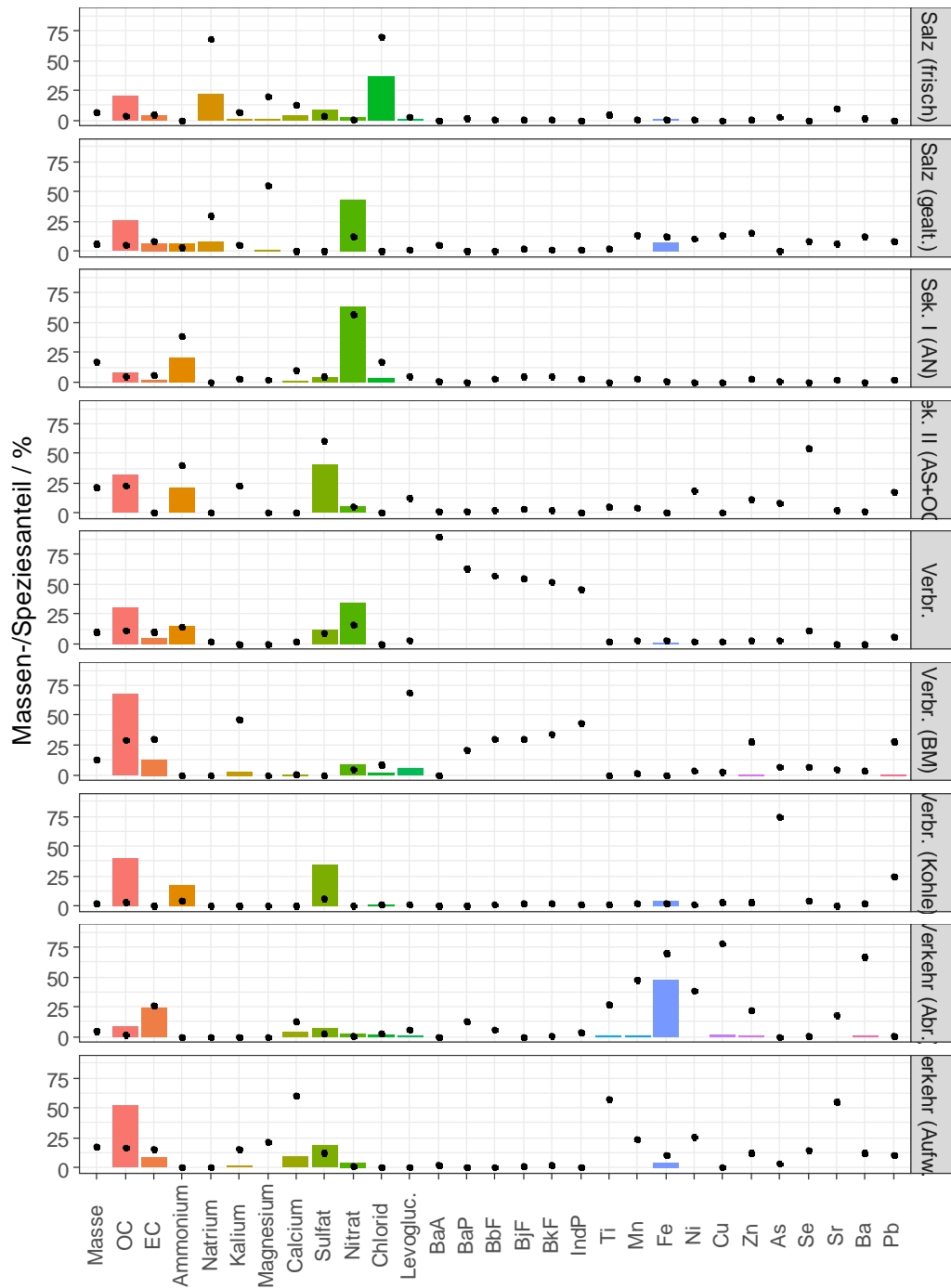


Abbildung 49: Quellprofile der 9 Faktoren des Level 5 PMF Laufes. Balken geben den Massenanteil in % der Faktormasse an (Summe aller Verbindungen im Faktor = 100%), Punkte den Speziesanteil in % der Gesamt-Spezieskonzentration (Summe der Spezies über alle Faktoren = 100%).

Das **PMF Level 2** enthielt wie oben beschrieben dieselbe chemische Information, allerdings wurden nur die 80 SMT im PMF- Lauf berücksichtigt. Die sich ergebenden Faktorprofile sind in Abbildung 46 gezeigt und entsprechen ziemlich genau denen des Level 1.

Auf **PMF Level 3** wurden als zusätzliche chemische Information die Konzentrationen der PAK in den Datensatz integriert. Diese integrierten sich zu annähernd 100% in den Verbrennungsfaktor, wobei die übrigen Profile wiederum ähnlich den oben beschriebenen blieben. Bei einer Extraktion von 7 statt 6 Faktoren auf PMF Level 3 teilte sich der Verbrennungsfaktor in 2 Faktoren auf, wobei einer der Faktoren hohe Speziesbeiträge von BaA und BaP und mittlere Speziesbeiträge der übrigen PAK zeigte und der andere Faktor neben ebenfalls mittleren Speziesbeiträgen der übrigen PAK auch die übrigen Speziesanteile des Kalium behielt. In dieser Aufspaltung des Verbrennungsfaktors in 2 Verbrennungsfaktoren wurde jedoch auf diesem Level noch kein interpretativer Mehrwert gesehen, da die die PAK nicht als spezifisch für eine bestimmte Art von Verbrennung bzw. für einen Brennstoff angesehen werden können (Galarneau 2008; Dvorská et al. 2011). Daher wurde auf Level 3 die 6- Faktorenlösung als final beibehalten.

Auf **PMF Level 4** wurde Levoglucosan zusätzlich in den Datensatz integriert, welches bei der 7- Faktorenlösung nahezu vollständig dem 2. Verbrennungsfaktor zugeordnet wurde. Daher wurde dieser nun der **Verbrennung von Biomasse (BM)** als dominantem Brennstoff zugeordnet, während der erste Verbrennungsfaktor als allgemeine übrige Verbrennung interpretiert wurde. Die übrigen Faktorprofile entsprachen wieder den oben schon diskutierten Quellkategorien.

PMF Level 5 schließlich wurde nur für die beiden Berliner Stationen gerechnet, da nur hierfür Konzentrationen einer Reihe von Metallen in PM10 vorlagen. Diese zusätzliche chemische Information erlaubte die Extraktion von 9 Quellkategorien. Als neue Quellkategorie wurde die **Verbrennung von Kohle** identifiziert, deren Quellprofil sich durch hohe Masseanteile von OC, EC und Sulfat, sowie durch hohe und mittlere Speziesanteile von Arsen und Blei auszeichnet, beides Metalle, die in der Rezeptormodellierung oft für die Identifikation von Kohleverbrennungsemissionen verwendet werden (Chow und Watson 2002). Weiterhin splittete sich der allgemeine Verkehrsfaktor durch Hinzunahme der Metalle in 2 Faktoren auf. Der erste besteht zu 50% aus Eisen und darüber hinaus v.a. aus EC und kleineren Massenanteilen von OC und Sulfat. Neben Eisen zeigt er hohe Speziesbeiträge auch für Kupfer und Barium, 3 Metalle die erhöht in Abriebpartikeln aus Bremsen und Reifen zu finden sind. Er wurde daher **Verkehrsemissionen aus Abrieb** zugeordnet. Der zweite Faktor besteht zu 50% aus OC und im Übrigen v.a. aus EC, Calcium und Sulfat. Er zeigt hohe Speziesbeiträge von Calcium, Titan und Strontium, die typische Bestandteile

von Krustenmaterial darstellen. Dieser Faktor wird daher als **Verkehrsemissionen aus Aufwirbelung** interpretiert.

3.3.5.2 Vergleich der PMF-Läufe

In Abbildung 50 werden die Quellprofile aller Faktoren nochmals im direkten Vergleich zwischen den PMF- Läufen auf den verschiedenen Levels dargestellt. In Abbildung 51 bis Abbildung 56 sind die Zeitreihen der durch die PMF zugeordneten Quellbeiträge ebenfalls im direkten Vergleich der Levels gezeigt. Hierfür wurden die auf den Levels 4 und 5 differenzierten Quellkategorien zu Verbrennung und Verkehr aufsummiert, um sie mit den allgemeinen Kategorien der Level 1 – 3 vergleichbar zu machen. Sowohl die Faktorprofile als auch die Zeitreihen zeigen eine sehr gute Vergleichbarkeit über die 5 Levels hinweg, was eine gute Qualität der final gewählten PMF- Lösungen belegt und somit weitere auf den berechneten Quellbeiträgen basierende Auswertungen erlaubt. Darüber hinaus zeigen die Zeitreihen des gealterten Salzfaktors, die beiden sekundären Faktoren, sowie den Verbrennungsfaktor sehr ähnliche Trends über alle Stationen hinweg, was darauf hindeutet, dass die Beiträge aus diesen Quellkategorien großräumig ähnlich sind. Auch die Zeitreihen des Verkehrsfaktors sind sich über die Stationen hinweg recht ähnlich und zeigen v.a. im September auch an den ländlichen Hintergrundstationen erhöhte Werte, was ein weiteres Indiz dafür ist, dass in der PMF- Lösung die Emissionen von Resuspension im Verkehrsfaktor nicht sauber von der Erosion von Bodenmaterial im ländlichen Hintergrund unterschieden werden können. Dies hängt sicherlich mit der sehr ähnlichen chemischen Signatur dieser beiden Quellkategorien zusammen, durch die ähnliche Quellen an Stadt- und Landstationen, die aber auf unterschiedlichen Emissionsprozessen beruhen, in einem Faktor zusammengefasst sind. Bei der Beurteilung der unten beschriebenen Verkehrsbeiträge muss dies v.a. für die ländlichen Hintergrundstationen berücksichtigt werden.

In Abbildung 57 wird ein Vergleich zwischen der gravimetrisch bestimmten PM10- Massekonzentration und der vom PMF- Modell zugeordneten Konzentration gezeigt. Es ist ersichtlich, dass für alle PMF- Levels und alle Stationen die modellierte PM10- Massekonzentration sehr gut mit der gemessenen übereinstimmt.

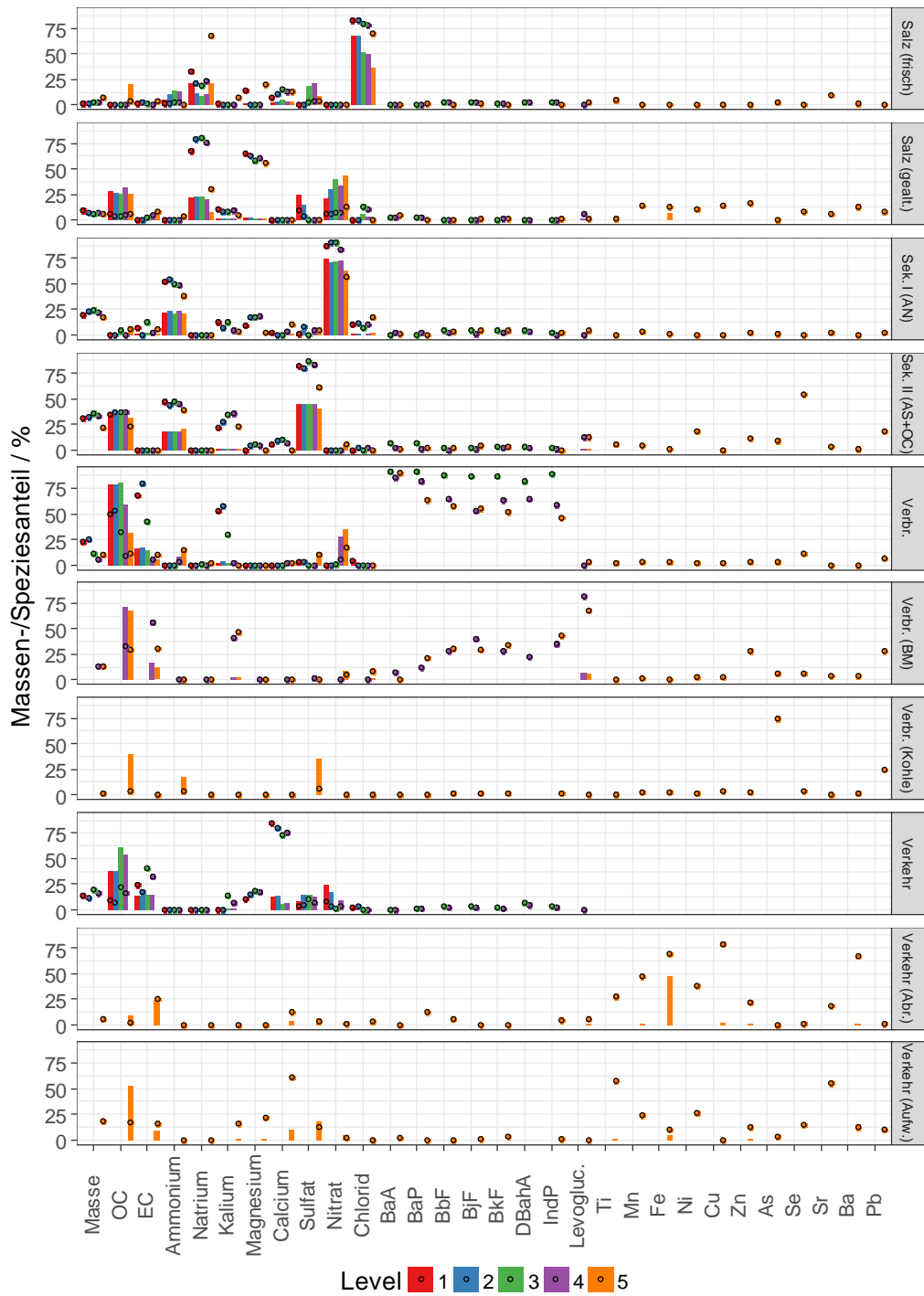


Abbildung 50: Quellprofile aller PMF-Faktoren in den Levels 1 – 5 im Vergleich.

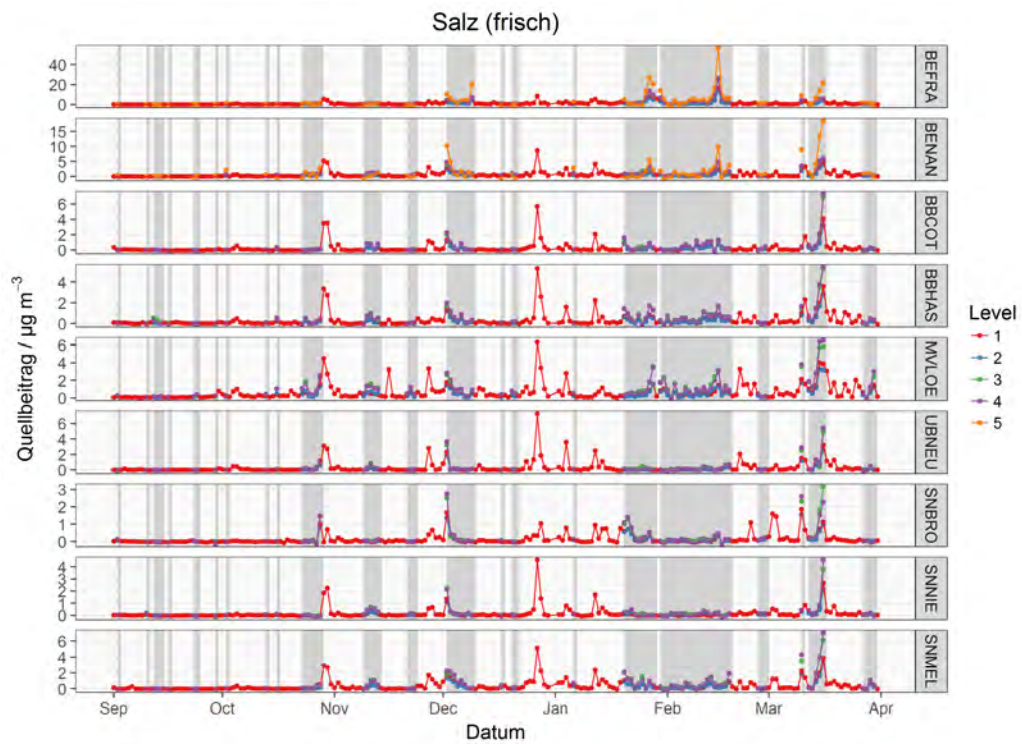


Abbildung 51: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor frisches Salz im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

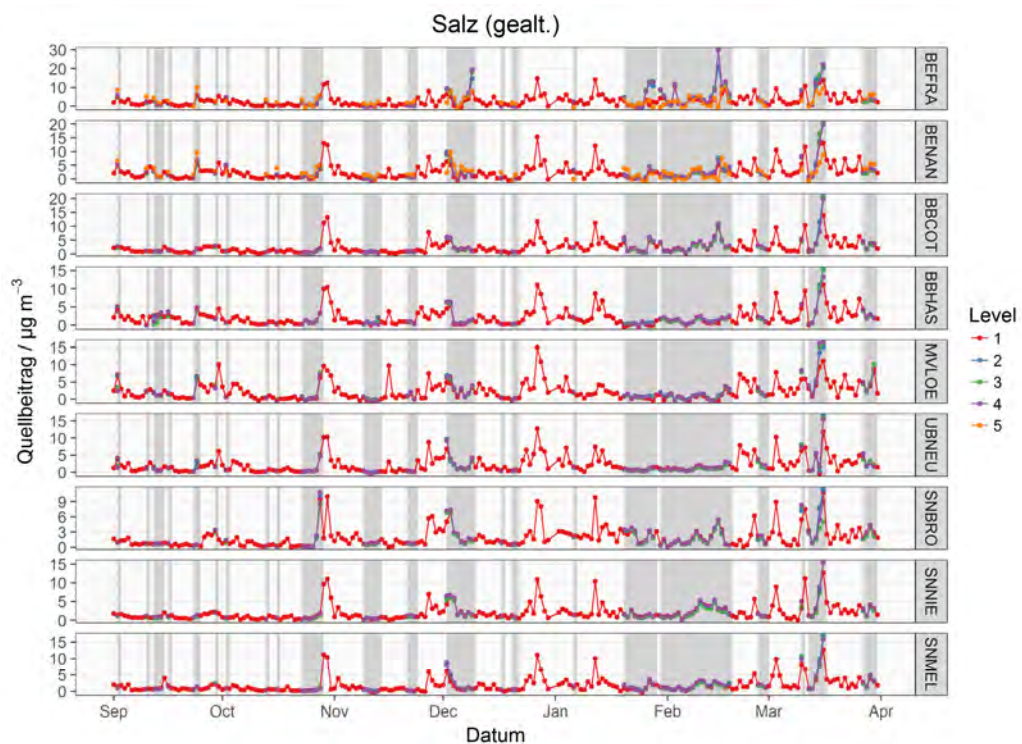


Abbildung 52: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor gealtertes Salz im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

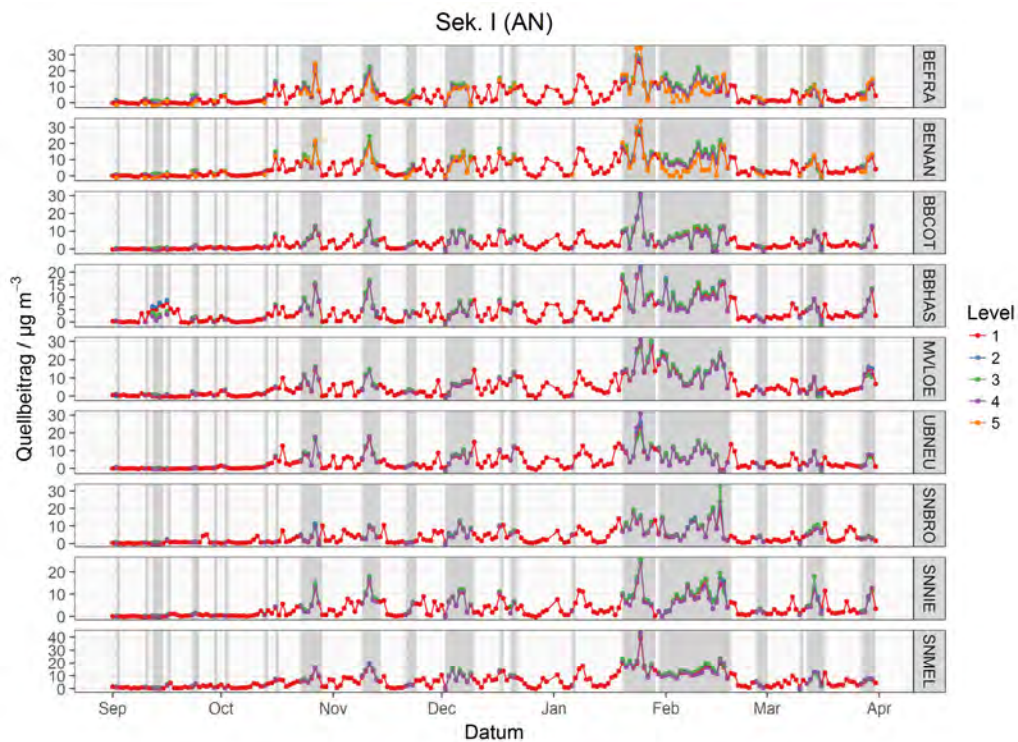


Abbildung 53: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den sek. Quellfaktor I (AN) im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

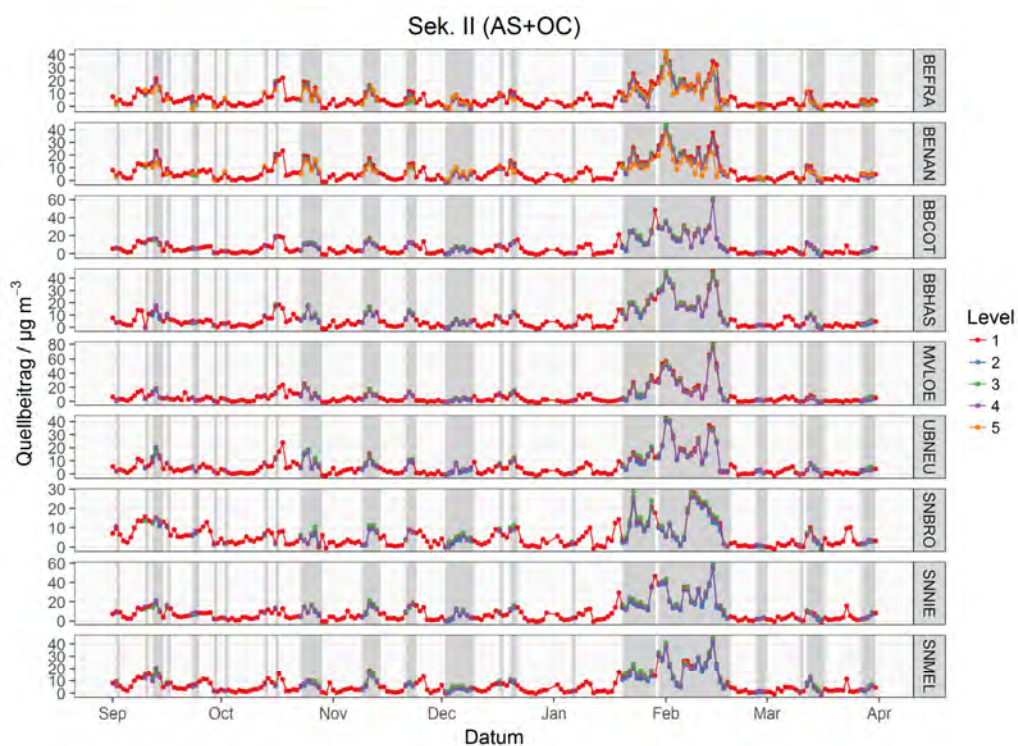


Abbildung 54: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den sek. Quellfaktor II (AS+OC) im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

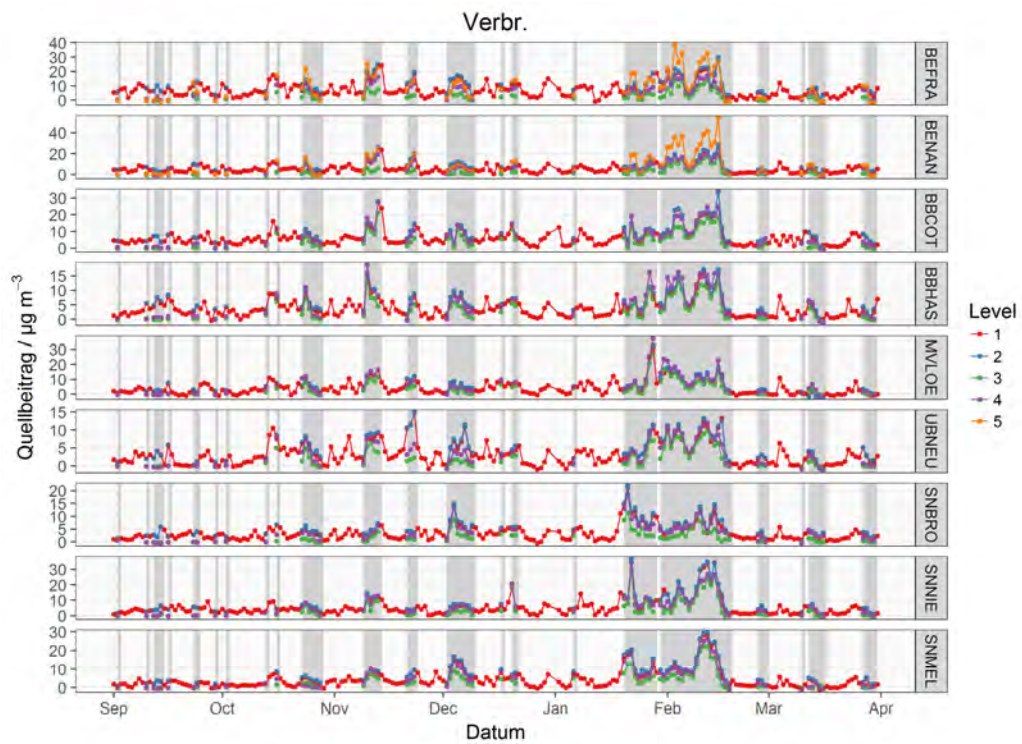


Abbildung 55: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor Verbrennung im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

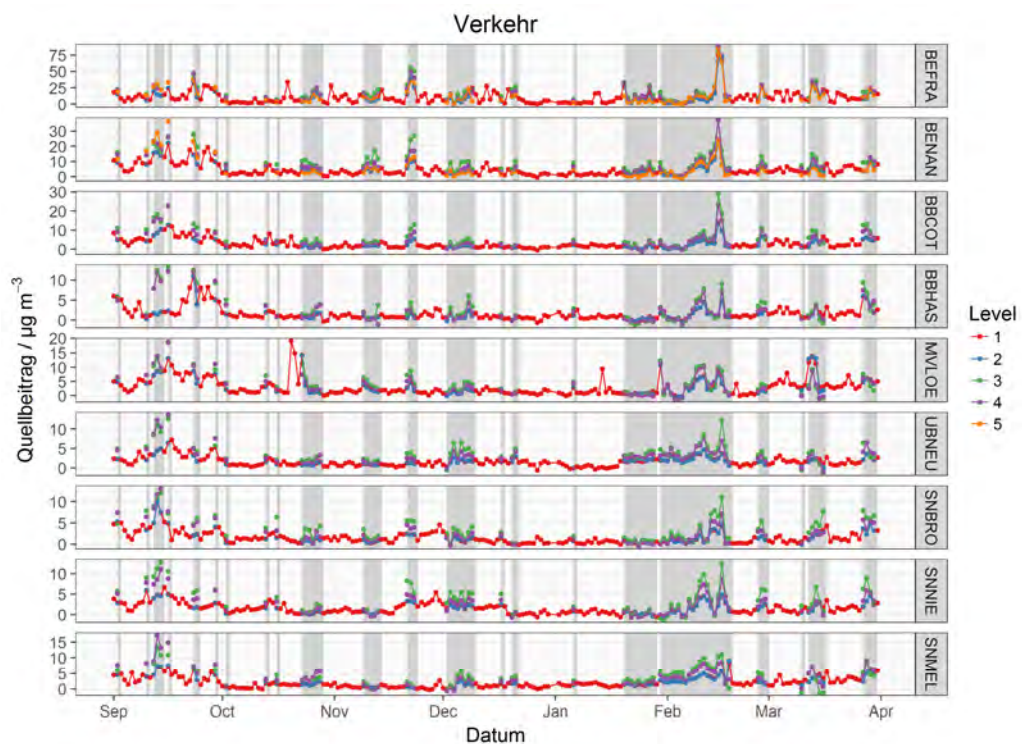


Abbildung 56: Zeitreihen der PMF-modellierten Quellbeiträge für den Faktor Verkehr im direkten Vergleich der 5 PMF Levels.

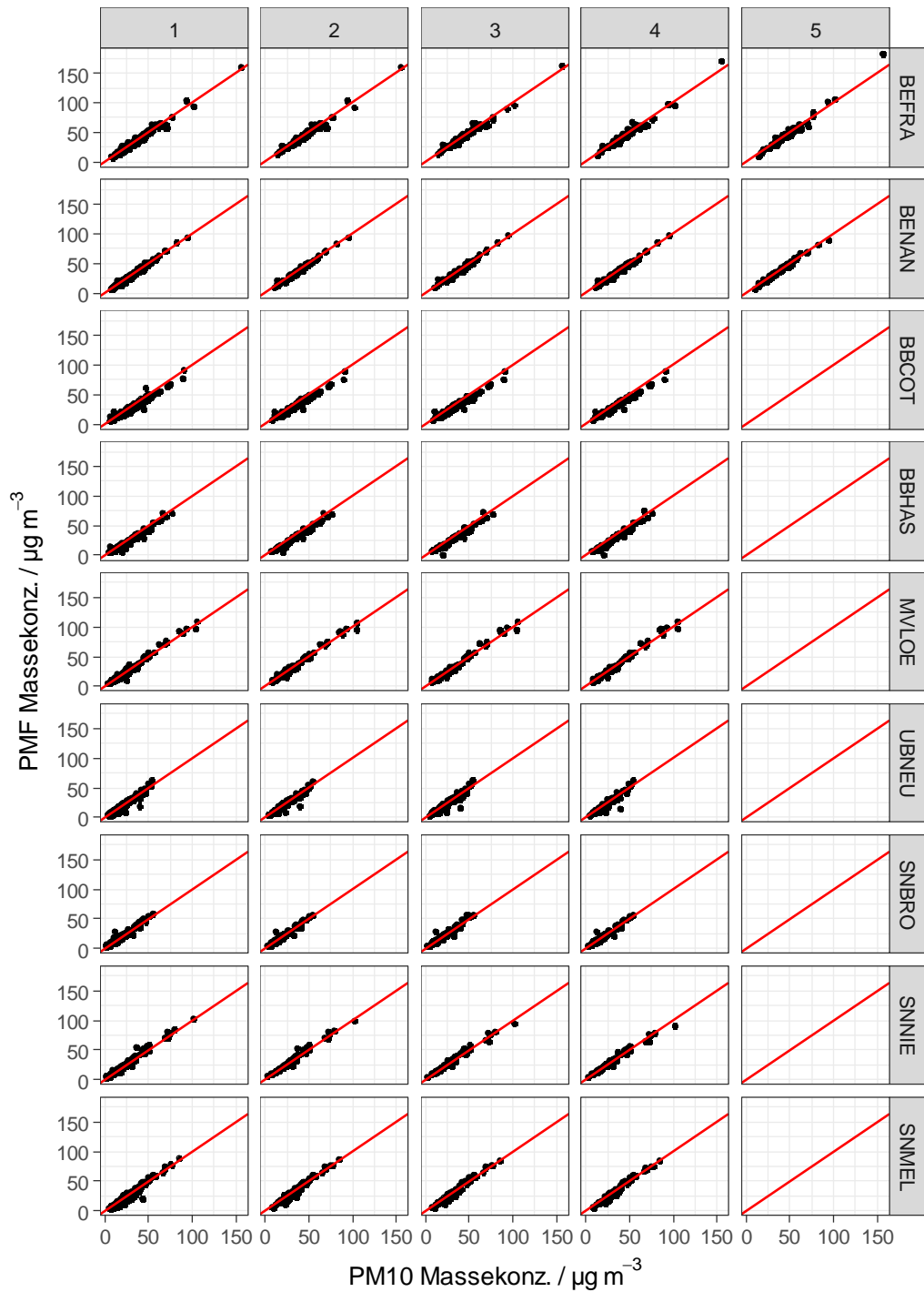


Abbildung 57: Vergleich der gemessenen PM10- Massekonzentration mit der durch PMF zugeordneten Konzentration an allen Stationen und für alle PMF Levels (Spalten). Die rote Linie zeigt die 1:1 Gerade.

3.3.5.3 Mittlere Quellbeiträge im Untersuchungszeitraum

Basierend auf den PMF- Ergebnissen wurden die mittleren Quellbeiträge im Untersuchungszeitraum für alle Stationen berechnet. Abbildung 58 zeigt die relativen Beiträge der verschiedenen Quellen an den neun untersuchten Messstationen für den PMF- Durchlauf auf Level 1. Die Zahlen oberhalb der Balken geben die gemessenen Gesamtkonzentrationen an den jeweiligen Stationen an, während die Zahlen innerhalb der Balken den Anteil an der Gesamtmasse darstellen, der auf die entsprechende Quelle zurückgeführt werden kann.

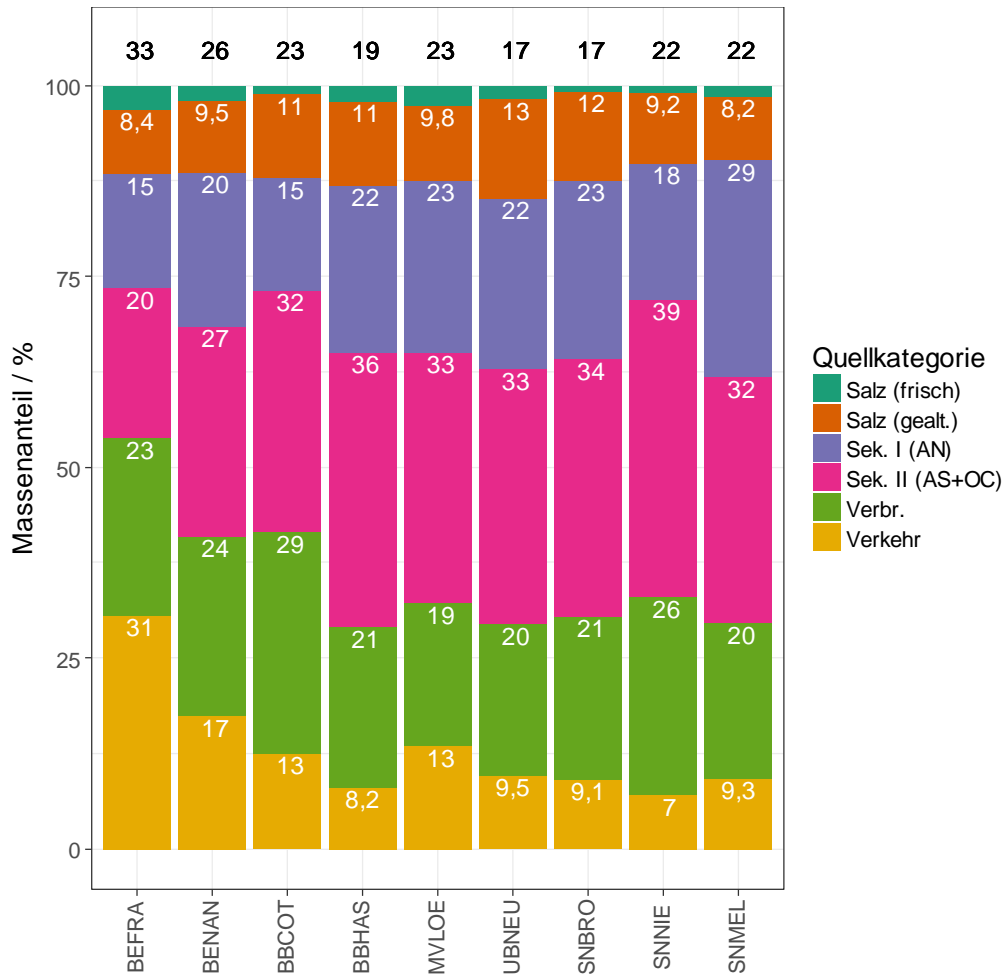


Abbildung 58: Anteile der auf PMF- Level 1 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.

An der Messstation BEFRA stellte der Straßenverkehr mit einem Beitrag von 31% der mittleren Massekonzentration die vorherrschende Quelle dar, gefolgt von Verbrennungsprozessen (23%). Auf sekundär gebildete Partikelmasse, die sich hauptsächlich aus Ammoniumsulfat und organischen Kohlenstoff, sowie Ammoniumnitrat zusammensetzt, waren jeweils 20% und 15% zurückzuführen. Gealtertes sowie frisches Meersalz (bzw. Streusalz) machten 8,4% und 2,6%

aus. An der Station BENAN waren sekundäres Sulfat + OC (27%), Verbrennungsprozesse (24%) sowie Sekundärbildung von Ammoniumnitrat (20%) die vorherrschenden Partikelmassequellen, gefolgt von Straßenverkehr und gealtertem und frischem Meersalz. An BBCOT sowie an SNNIE stellten sekundäres Sulfat + OC (32% / 39%) sowie Verbrennungsprozesse (29% / 26%) die vorherrschenden Quellen dar. Auf diese Quellen konnten im Mittel jeweils 61% und 65% der an diesen Standorten gemessenen PM10- Massekonzentration zurückgeführt werden. Sekundäres Ammoniumnitrat sowie Straßenverkehr konnten 26% der gemessenen Werte erklären. Der Beitrag von frischem Meersalz an dieser Station war zu vernachlässigen. An den anderen Stationen waren sekundäres Sulfat + OC und sekundäres Nitrat die Hauptquellen von PM10, gefolgt von Verbrennungsprozessen und gealterten Meersalzpartikeln. Im Durchschnitt stellten sekundäres Sulfat + OC (33%), Verbrennungsprozesse (20%), sekundäres Nitrat (20%), Verkehr (13%), gealtertes Meersalz (12%) und frisches Seesalz (2%) auf PMF Level 1 die Hauptquellen der PM10- Massekonzentration dar.

Auf Level 2 wurde die PMF für die 80 ausgewählten Sondermesstage durchgeführt. Im Allgemeinen waren die für diese ausgewählten Tage gemessenen durchschnittlichen Massekonzentrationen im Vergleich zu den durchschnittlichen Konzentrationen für die Gesamtzahl der untersuchten Tage erhöht. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Sondermesstage besonders für hohe Belastungssituationen ausgewählt wurden, deren Anteil hier somit höher als im Gesamtzeitraum war.

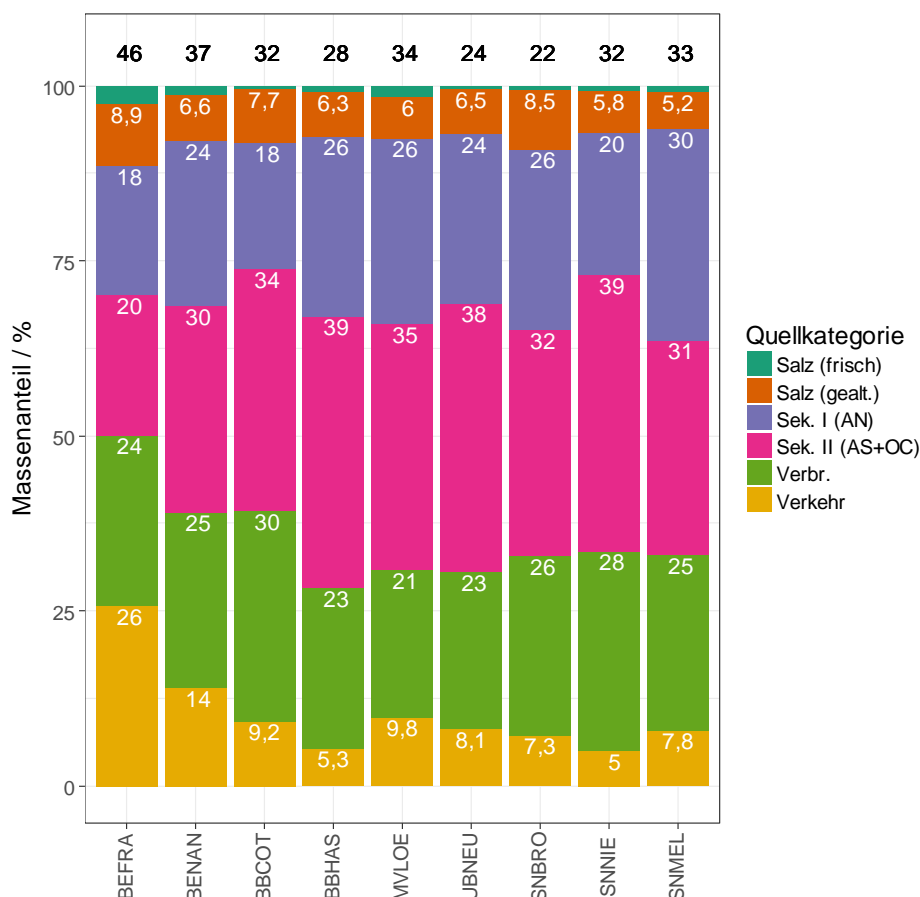


Abbildung 59: Anteile der auf PMF Level 2 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.

Wie in Abbildung 59 zu sehen ist, weisen die an diesen ausgewählten 80 Tagen bestimmten mittleren Quellbeiträge zur PM10- Massekonzentration dennoch ähnliche Trends auf wie diejenigen, die für die untersuchten 212 Tage (Level 1) ermittelt wurden. An BEFRA dominierten Straßenverkehr (26%), Verbrennungsprozesse (24%), sekundäres Sulfate + OC (20%) und sekundäres Ammoniumnitrat (18%) als PM- Quellen. Ein ähnlicher Trend konnte an BBCOT sowie an SNNIE beobachtet werden, an denen sekundäres Sulfat + OC und Verbrennungsprozesse jeweils 65% und 67% des PM10 ausmachten. An den anderen Stationen konnten die Konzentrationswerte durch sekundäres Sulfat + OC (33%), Verbrennungsprozesse (25%), sekundäres Nitrat (25%), Verkehr (9%) und gealtertes Meersalz (6%) erklärt werden. Dieser Trend ist dem zuvor für Level 1 ermittelten Trend ähnlich. Die Stationen BEFRA, BENAN, MVLOE, und BBCOT wiesen die höchsten dem Verkehr zugeordneten Quellbeiträge auf, während die niedrigsten Beiträge in BBHAS sowie in SNNIE ermittelt wurden. Unter Berücksichtigung der oben beschriebenen Überschneidung von Resuspension aus Verkehr und Winderosion spiegeln diese Werte die Lage der jeweiligen Messstationen wider. An BBHAS und SNNIE konnten hingegen

40% der gemessenen PM- Masse auf sekundäres Sulfate + OC als Quelle zurückgeführt werden.

Auf die Darstellung der Level 3- Ergebnisse wird an dieser Stelle verzichtet, um gleich auf die ermittelten Quellbeiträge für PMF Level 4 überzugehen, welches neben den PAK auch Levoglucosan als zusätzliche chemische Information enthielt und damit im Vergleich zu den Levels 1 – 3 die Auflösung und Interpretation von 7 statt 6 Quellkategorien ermöglichte. Diese Ergebnisse sind in Abbildung 60 gezeigt.

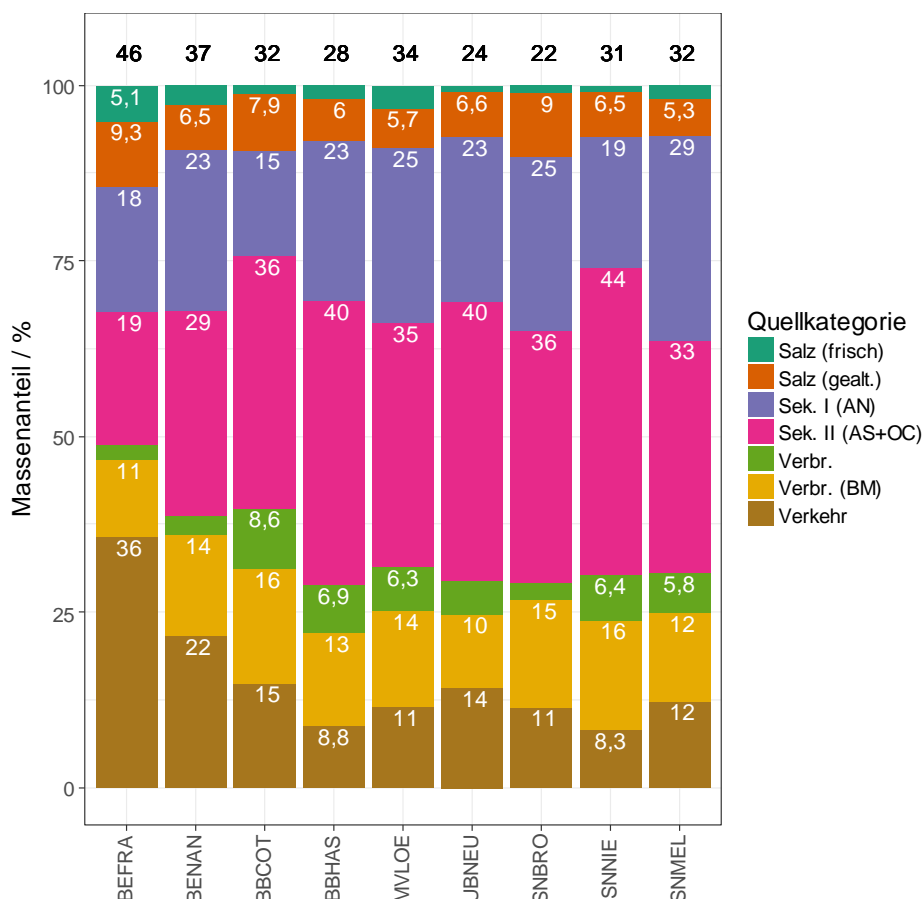


Abbildung 60: Anteile der auf PMF Level 4 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der Stationen.

Wie oben beschrieben, erlaubte die Hinzunahme von Levoglucosan die Aufteilung des Verbrennungsfaktors in Biomasseverbrennung und allgemeine Verbrennung. Diese zwei Quellkategorien konnten durchschnittlich jeweils etwa 13% und 5% der an den Messstationen gemessenen PM10- Massekonzentrationen erklären. Die Biomasseverbrennung als Quelle machte etwa zwei Drittel der gesamten Verbrennungskategorie aus, wobei die relativen Quellbeiträge auf diesem Level insgesamt einen ähnlichen Trend wie die für die vorhergehenden Level ermittelten Trends zeigten. Die sich aus 134

Straßenverkehr ergebenden Beiträge waren weiterhin an BEFRA, BENAN und BBCOT am höchsten, während die geringsten Werte in BBHAS sowie in SNNIE ermittelt wurden. Die höchsten Quellbeiträge von sekundärem Sulfat + OC wurden an BBHAS sowie an SNNIE ermittelt. Mit Ausnahme der Stationen in Berlin konnte sekundäres Sulfat + OC durchschnittlich etwa 35% des PM10 erklären, gefolgt von sekundärem Nitrat (25%), Biomasseverbrennung (13%), Verkehr (12%) und gealtertem Meersalz (7%).

Vergleicht man die Quellbeiträge der Quellkategorien zwischen den beiden Berliner Stationen und der nahe Berlin im ländlichen Hintergrund gelegenen Station BBHAS, so stellt man fest, dass sich ähnliche Konzentrationen für die Quellen Sekundär I und II, Verbrennung, Verbrennung (BM), sowie mit Abstrichen auch für Salz (gealtert) ergeben. Die Summe der mittleren Quellbeiträge für Sekundär I und II, sowie Salz (gealtert) lag für BEFRA bei 21,1 und für BBHAS bei 19,3 $\mu\text{g m}^{-3}$. Für die beiden Verbrennungskategorien ergaben sich in Summe 6,1 $\mu\text{g m}^{-3}$ in BEFRA und 5,6 $\mu\text{g m}^{-3}$ in BBHAS. In beiden Fällen lag der städtische Anteil somit bei nur ca. 10%, so dass diese als überwiegend in die Stadt hineintransportiert betrachtet werden können. Die Anteile dieser 5 überwiegend antransportierten Quellkategorien an der mittleren Gesamtbelastung in BEFRA betragen in Summe ca. 60%, womit sich ein mit den Ergebnissen des Lenschow-Ansatzes konsistentes Bild von ca. 2/3 PM-Eintrag von außerhalb der Stadt ergibt.

Der PMF-Durchlauf auf Level 5 wurde nur für die beiden Stationen in Berlin und unter Einbindung von Spurenmetallen durchgeführt. Wie in Abbildung 61 zu sehen ist, können neun Quellkategorien die an den Messstationen ermittelten Massekonzentrationen erklären. Im Gegensatz zum vorhergehenden Level wurde der Verkehr als Quelle in zwei Quellkategorien aufgegliedert, verkehrsbedingte Abriebsprozesse und verkehrsbedingte Aufwirbelungsprozesse. Ebenso wurde die Kategorie "Verbrennungsprozesse" in die Quellkategorien Biomasseverbrennung, Kohleverbrennung sowie allgemeine Verbrennungsprozesse aufgegliedert (s.o.).

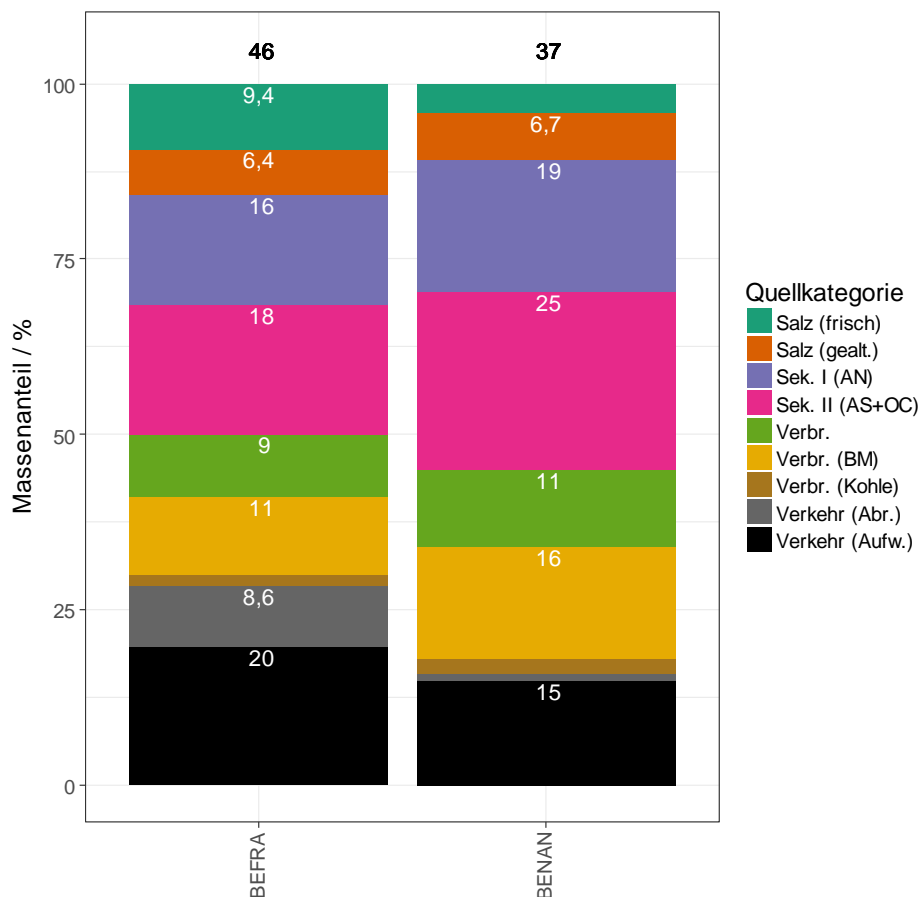


Abbildung 61: Anteile der auf PMF Level 5 identifizierten Quellkategorien an der mittleren PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Balken) der beiden Berliner Stationen.

An der Station BEFRA stellte weiterhin der Straßenverkehr die vorherrschende Aerosolquelle dar, wobei verkehrsbedingte Aufwirbelungsprozesse (20%) sowie verkehrsbedingte Abriebsprozesse (8,6%) etwa 29% der PM10- Gesamtkonzentration ausmachten. Sekundäres Sulfat + OC (18%), sekundäres Nitrat (16%), Biomasseverbrennung (11%) und Verbrennungsprozesse (9%) konnten 54% der gemessenen PM10- Masse erklären. Kohleverbrennung als Quelle trug an diesem Standort nur sehr gering (< 2%) zum PM10 bei. Etwa 15% der Massenkonzentration konnte auf gealtertes und frisches Meer- bzw. Streusalz zurückgeführt werden. An der Station BENAN stellten sekundäres Sulfat + OC und sekundäres Nitrat, die etwa 45% des PM10 erklärten, weiterhin die Hauptquellen dar. Biomasseverbrennung (16%), verkehrsbedingte Aufwirbelungsprozesse (15%), Verbrennungsprozesse (11%) sowie gealtertes Meersalz (7%) waren weitere signifikante Quellen. Ähnlich wie an BEFRA war der Beitrag von Kohleverbrennung zur Aerosolmasse zu vernachlässigen (< 3%).

Abschließend sind in Abbildung 62 die PMF- Ergebnisse der Level 1 – 5 nochmals im direkten Vergleich gezeigt. Wie zu sehen ist, führte die Einbindung von chemischen Komponenten in den PMF- Datensatz nicht nur zu einer Erhöhung der Anzahl der Quellkategorien, sondern auch zu einer gewissen Variation ihrer relativen Quellbeiträge zur PM10- Gesamtkonzentration. Solche Veränderungen können auftreten, da die PMF- Durchläufe unabhängig voneinander erfolgen und die Variationen in den Datensätzen (Konzentrations- und Unsicherheitsmatrizen) sich für die unterschiedlichen Durchläufe auf den unterschiedlichen Levels unterscheiden. Im Allgemeinen waren die Quellbeiträge allerdings an allen neun Standorten über die Gesamtzahl der Messtage sowie die ausgewählten Messtage hinweg relativ homogen. Die Quellbeiträge waren über die meisten Messstationen hinweg ähnlich, wobei sekundäres Sulfat + OC 33% des PM10 erklärten, gefolgt von Verbrennungsprozessen (25%), sekundärem Nitrat (20%), Verkehr (12%), gealtertem Meersalz (7%) und frischem Seesalz. An den Stationen in Berlin stellten Straßenverkehr und sekundär gebildete Partikelmasse die vorherrschenden Quellen von PM10 dar, wobei die Verkehrsbeiträge durch Aufwirbelung dominiert wurden, gefolgt von Abriebsprozessen an Bremsen und Reifen. Direkte Abgasemissionen konnten im vorliegenden Datensatz nicht separat aufgelöst werden.

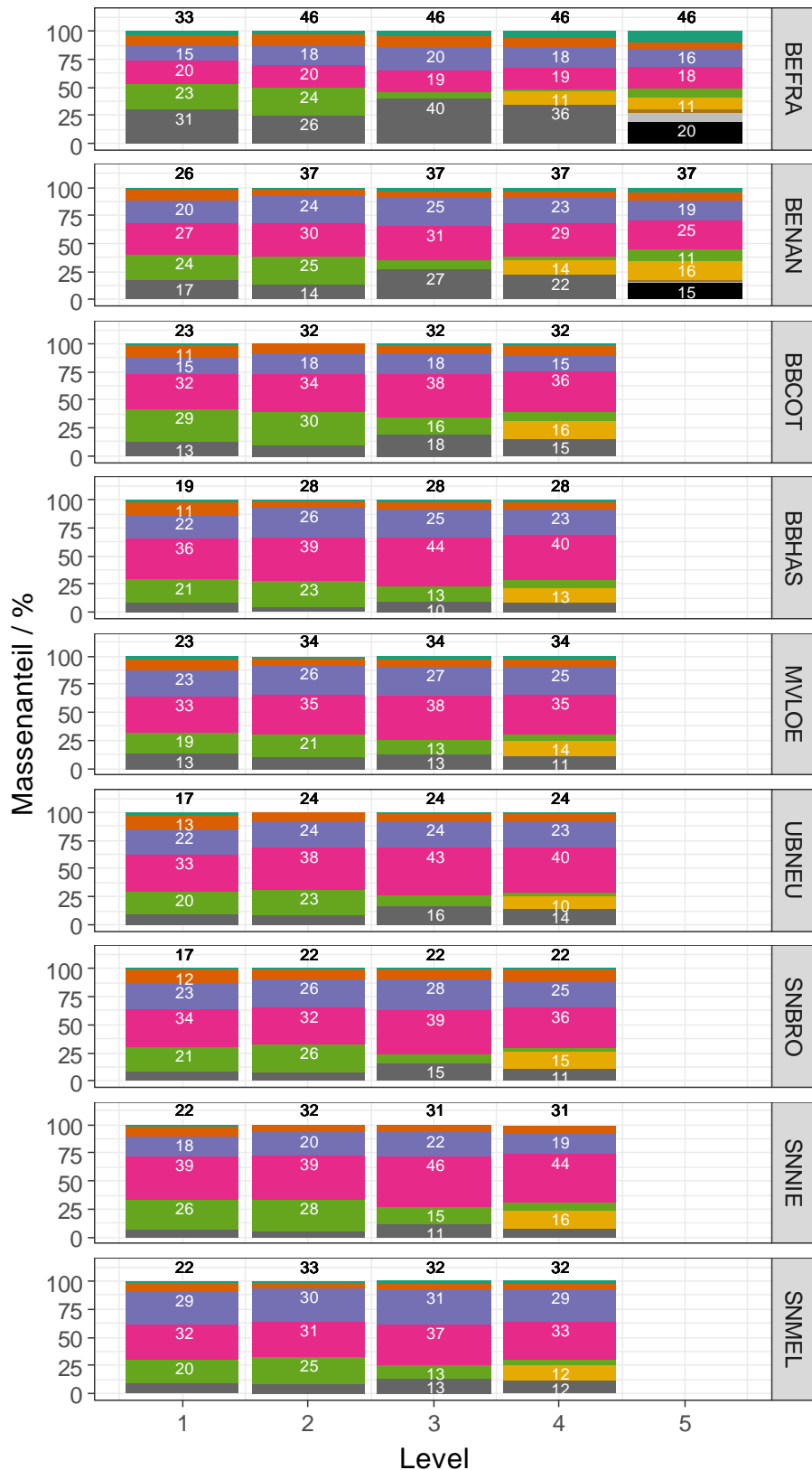


Abbildung 62: Übersicht über die relativen Beiträge verschiedener Quellkategorien zur PM₁₀-Gesamtkonzentration für die PMF Level 1 – 5 und für die verschiedenen Messstationen.

3.3.5.4 Räumliche Zuordnung der Quellbeiträge

In Abbildung 63 sind nun für UBNEU CWT- Plots für PMF- Quellbeiträge gezeigt. Dabei ist das Vorgehen gleich wie hier für PM10 bereits beschrieben.

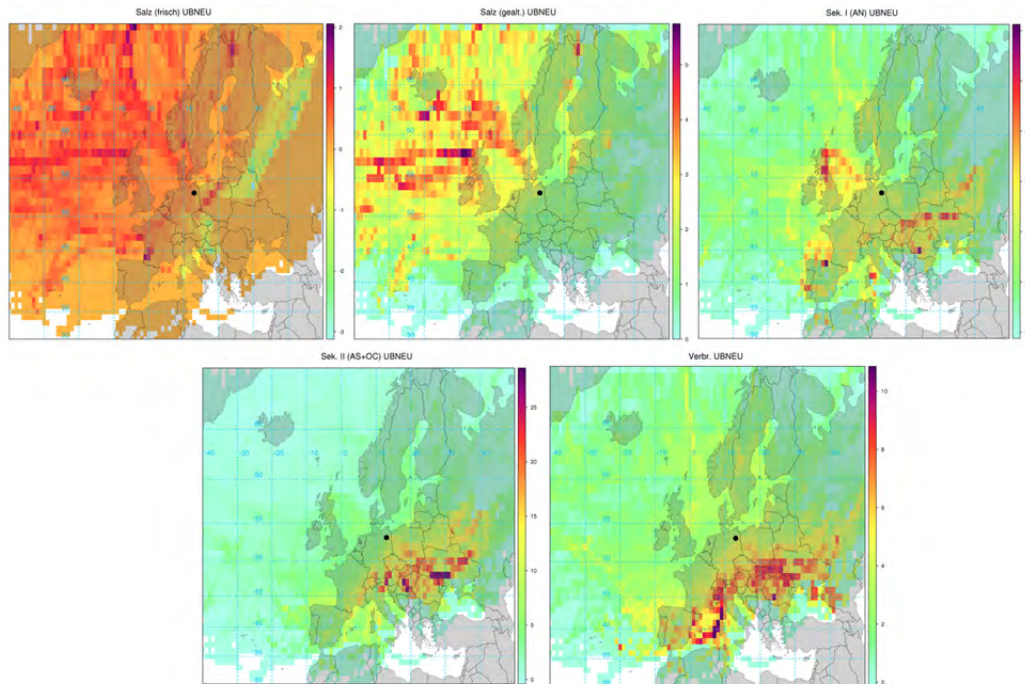


Abbildung 63: CWT Plots für Quellbeiträge PMF für die Station UBNEU. Von links oben nach rechts unten sind gezeigt: Salz (frisch), Salz (gealtert), sekundäres Ammoniumnitrat, sekundäres Ammoniumsulfat und OC, Aerosol aus Verbrennung. Die negativen Zahlen an der Ordinate für Salz (frisch) oben links entstehen dadurch, dass die PMF dem Sulfat negative Konzentrationen zuordnet.

In Abbildung 63 zeigt sich für UBNEU die hauptsächliche Zuordnung von frischem Meersalz aus Richtung Nordsee und Nordatlantik. Auch gealtertes Seesalz (hauptsächlich nach Chlorid-Nitrat- und Chlorid-Sulfat Austausch) hat seine Quellregion im nordwestlichen Atlantik. Sekundär gebildetes Ammoniumnitrat ist nicht stark an die Anströmungsrichtung gebunden und stammt hauptsächlich vom europäischen Festland, aus Schottland und von der Nordsee. Sekundäre Partikel Masse in Form von Ammoniumsulfat und organischem Material stammt aus dem näheren Südosteuropa. Verbrennungsaerosole stammen sowohl aus dem näheren und fernen Südosteuropa, aber auch aus der Po-Ebene und Südfrankreich.

3.3.5.5 Quellbeiträge in den Belastungskategorien und Inkrement Ost

Unter Verwendung der PMF auf Basis von Level 1 wurden die mittleren Quellbeiträge für die 6 Faktoren: Salz (frisch), Salz (gealtert), Sek. I (AN), Sek. II (AS+OC), Verbr. und Verkehr in Abhängigkeit von den Belastungskategorien bestimmt. Das Ergebnis ist grafisch in Abbildung 64 für alle Messstationen zusammengestellt.

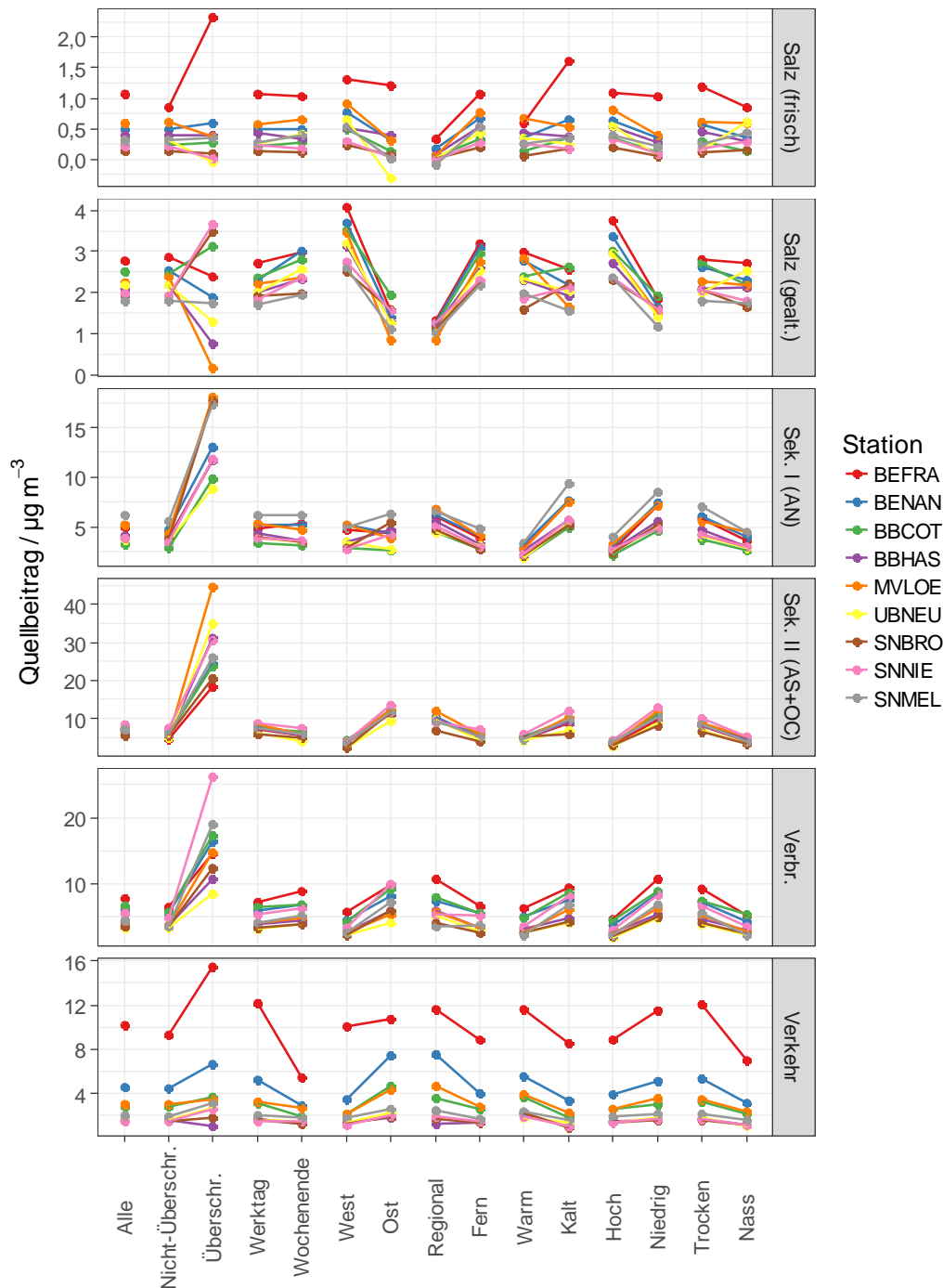


Abbildung 64: Quellbeiträge der 6 Faktoren in Abhängigkeit von den Belastungskategorien für alle 10 Messstationen.

Stationsübergreifend betrachtet zeigen die mittleren Quellbeiträge aller 6 Faktoren häufig ähnliche Trends in Abhängigkeit von den Tagescharakteristiken und den Belastungskategorien, allerdings mit zum Teil sehr deutlichen Gradienten in den jeweils gegenläufigen Kriterien, deren Vergleich die Basis der nachfolgenden Diskussion darstellt.

Die zum Teil deutlich erhöhten Quellbeiträge von Sek. I, II und Verbrennungsaerosol an den Überschreitungstagen deuten einen Einfluss von prozessierten Verbrennungsemissionen an. Die Auswirkungen des Verkehrs sind in dieser Kategorie erwartungsgemäß nur an den Verkehrsstationen erkennbar. Die Salze zeigen keinen einheitlichen Trend im Vergleich von „Nicht-Überschreitungstagen“ und „Überschreitungstagen“. Auffällig ist allerdings der deutliche Anstieg des Quellbeitrages von frischem Salz an „Überschreitungstagen“ für BEFRA, höchstwahrscheinlich durch Streusalz hervorgerufen. Die Quellbeiträge separiert nach „Werktag“ und „Wochenende“ zeigen mit Ausnahme des Verkehrs (höherer Quellbeitrag an Werktagen, vorrangig an den verkehrsnahen Messstationen) keinen Gradienten.

Für die Belastungskategorie Anströmung zeigen sich unterschiedliche Trends für die Salze (frisch und gealtert) im Vergleich zu den anderen Faktoren. Während der Quellbeitrag für Salz (frisch und gealtert) aufgrund des maritimen Einflusses bei westlicher Anströmung höher ist, nimmt der Quellbeitrag der restlichen Faktoren bei östlicher Anströmung (kontinentale Luftmassen) zu. Eine weiterführende Analyse zum Inkrement Ost folgt im Verlauf dieses Kapitels. Bei der Unterscheidung „Regional“ und „Fern“ wird das Ergebnis in Abbildung 64 „gespiegelt“. Der Quellbeitrag für die Faktoren Sek. I, II, Verbrennung und Verkehr ist vorwiegend durch regionale Luftmassen geprägt. Im Gegensatz dazu erhöht sich der mittlere Quellbeitrag der Salze bei „Fern“ im Vergleich zu „Regional“. Die Temperatur als Belastungskategorie hat keine einheitliche Auswirkung auf den Quellbeitrag der Salze. Allerdings zeigt sich für die sekundär gebildeten Verbindungen und den Faktor Verbrennung ein eindeutig höherer Quellbeitrag an kalten im Vergleich zu warmen Tagen. Der Faktor Verkehr läuft diesem Trend allerdings entgegen, was möglicherweise mit einer verstärkten Resuspension von Straßenstaub an warmen – und im Projekt v.a. im Monat September vornehmlich trockenen – Tagen zusammenhängt. Ähnlich zur Anströmung verhalten sich die Quellbeiträge in Abhängigkeit von der Grenzschichthöhe. Lediglich die Salze zeigen erhöhte Quellbeiträge bei „Hoch“, die Beiträge aller anderen Faktoren sind bei „Niedrig“ deutlich größer. Abschließend betrachtet sind die Quellbeiträge aller Faktoren an nassen Tagen in der Regel deutlich erniedrigt, wobei der Einfluss auf die Salze eher vernachlässigbar ist.

Da die Belastungskategorie Anströmung mit die größten Gradienten in Abbildung 64 verdeutlichte, werden nachfolgend die Quellbeiträge in den Massen-

teil der jeweiligen Quellkategorie (in %) für die aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentration in Abhängigkeit von der Anströmung umgerechnet und in Abbildung 65 dargestellt.

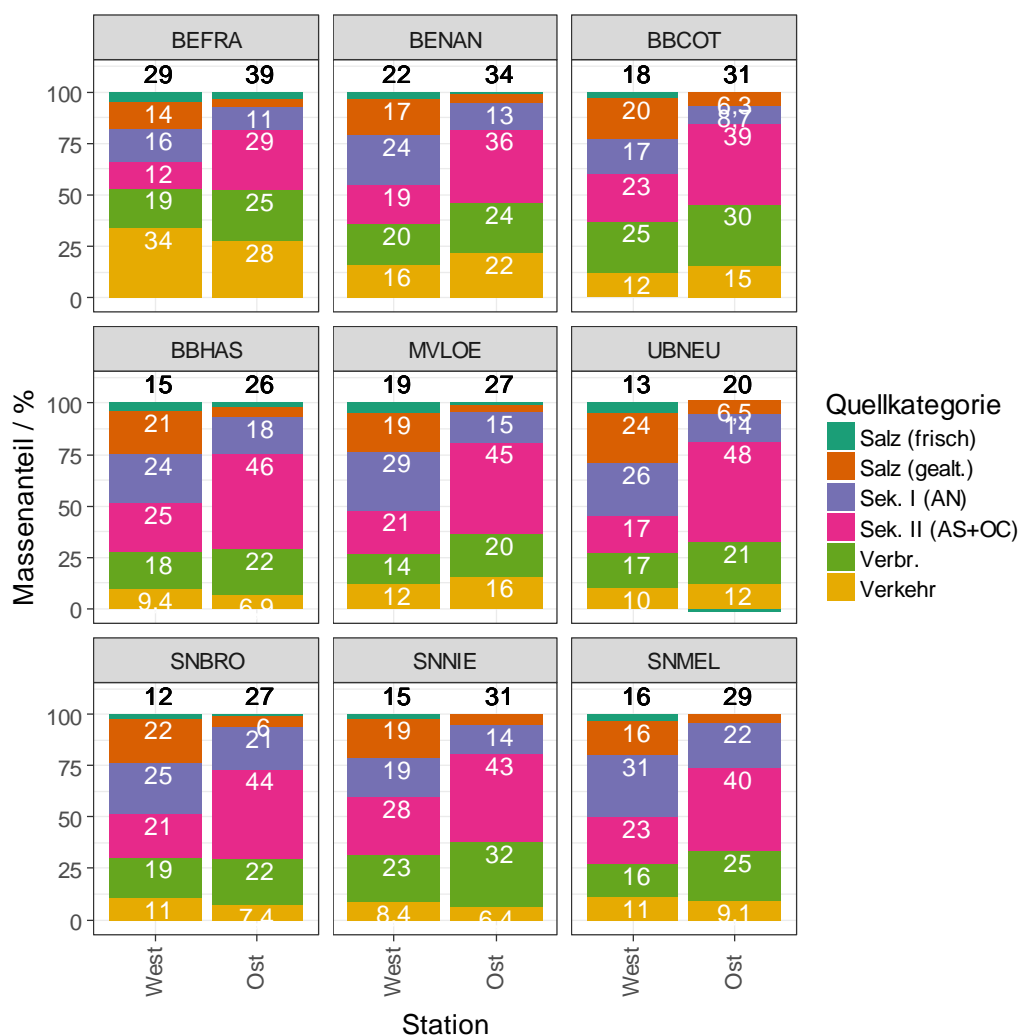


Abbildung 65: Massenannteile der Quellkategorien für die aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentration (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) in Abhängigkeit von der Anströmung, dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.

Allgemein zeigt sich erneut ein über alle Messstationen ähnliches Muster mit einer Zunahme der aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentration um etwa Faktor 1,5-2 von „West“ nach „Ost“ und verschiedenen ausgeprägten Veränderungen in den Quellkategorien. Wie bereits zuvor diskutiert nimmt der Anteil der Quellkategorie „Salz“ (frisch und gealtert) von „West“ nach „Ost“ ab (Unterschied maritime vs. kontinentale Luftmassen). Während der Anteil sekundär gebildeten Ammoniumnitrats bei „Ost“ abnimmt, verdoppelt sich die Quellkategorie Sek. II (AS+OC) bei östlicher Anströmung. Der Verbrennungsfaktor nimmt ebenfalls bei „Ost“ zu und ist somit konsistent mit Sek. II. Die Quellka-

tegorie Verkehr zeigt größtenteils eher geringe Massenanteile und aufgrund ihres lokalen Ursprungs keinen einheitlichen Trend.

Durch Differenzbildung der Massenanteile in den Kategorien „Ost“ und „West“ ergibt sich das bereits in Kapitel 3.3.2 eingeführte Inkrement Ost im Ergebnis der PMF- Auswertung.

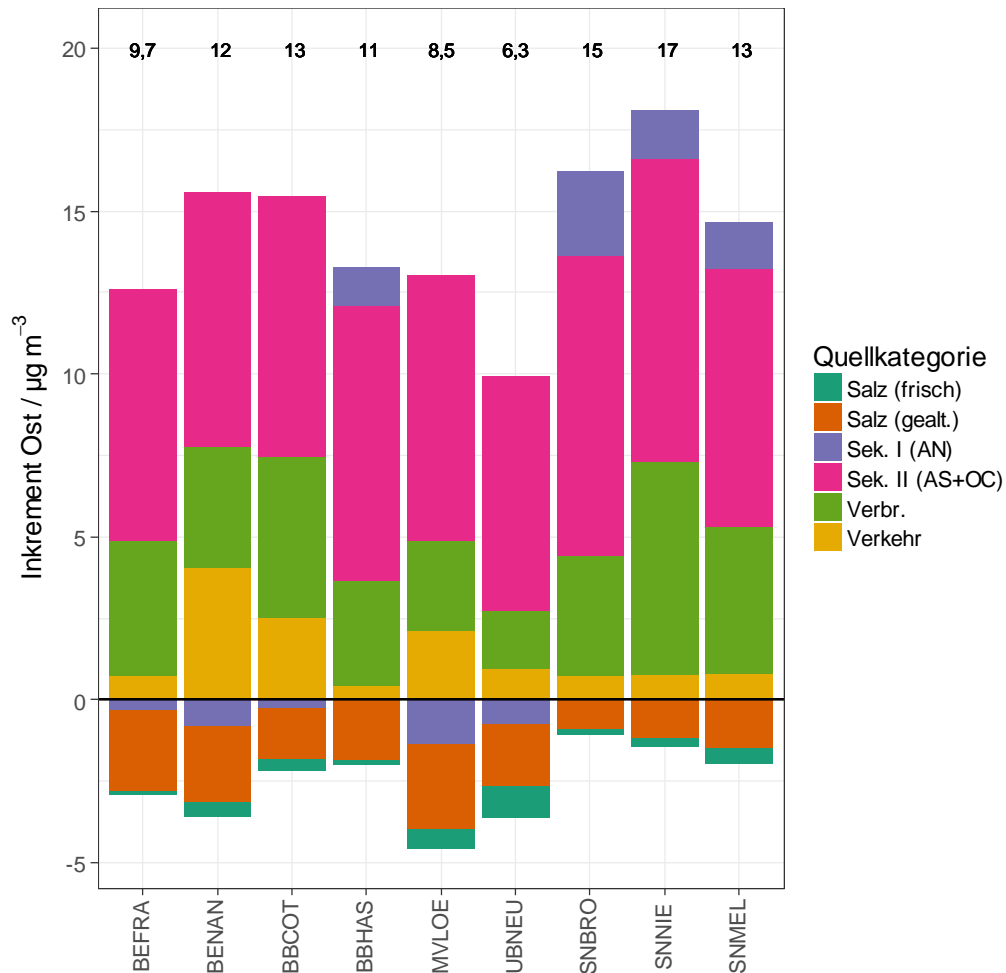


Abbildung 66: Inkrement Ost der Quellkategorien (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) für die aus der PMF resultierenden PM10- Massekonzentrationen dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.

Es zeigt sich in Abbildung 66 ein positives Inkrement von etwa 10-18 $\mu\text{g m}^{-3}$ und ein negatives Inkrement von etwa 2-5 $\mu\text{g m}^{-3}$. Dies resultiert aus einer starken Zunahme von anthropogenen Quellbeiträgen bei Ostanströmung (Verkehr, Verbr. und Sek. I / II), die teilweise durch die Abnahme der natürlichen Quellbeiträge (vor allem Salze) kompensiert wird. Die sich ergebenden „Netto“- Ost-Inkmente und deren Quellkategoriezusammensetzung sind in Abbildung 67 dargestellt.

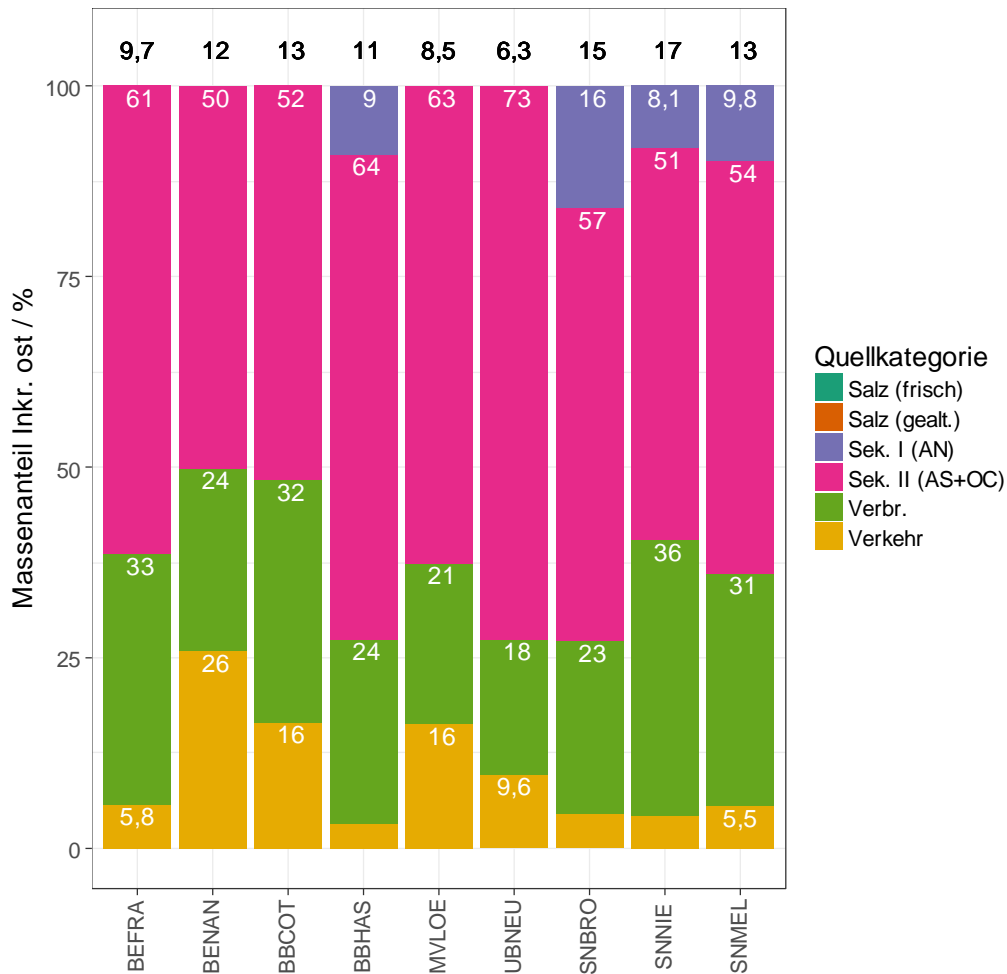


Abbildung 67: Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.

Das resultierende „Netto“- Inkrement- Ost beträgt somit zwischen 6 und $17 \mu\text{g m}^{-3}$ über alle Messstationen im Untersuchungsgebiet. Aus Abbildung 67 folgt, dass vor allem Transport und (prozessierte) Verbrennungsemissionen das Inkrement- Ost verursachen. Nur die Stationen SNBRO, SNNIE und SNMEL im ländlichen Hintergrund und BBHAS als städtische Hintergrundstation zeigen zusätzlich Sek. I als relevante Quellkategorie. Allerdings spielt diese bei Masseanteilen kleiner 10% eine eher untergeordnete Rolle für das Inkrement- Ost.

In Anlehnung an die Vorgehensweise aus Kapitel 3.3.2 wird auch an dieser Stelle die Abhängigkeit der Ergebnisse von den kombinierten Belastungskategorien untersucht.

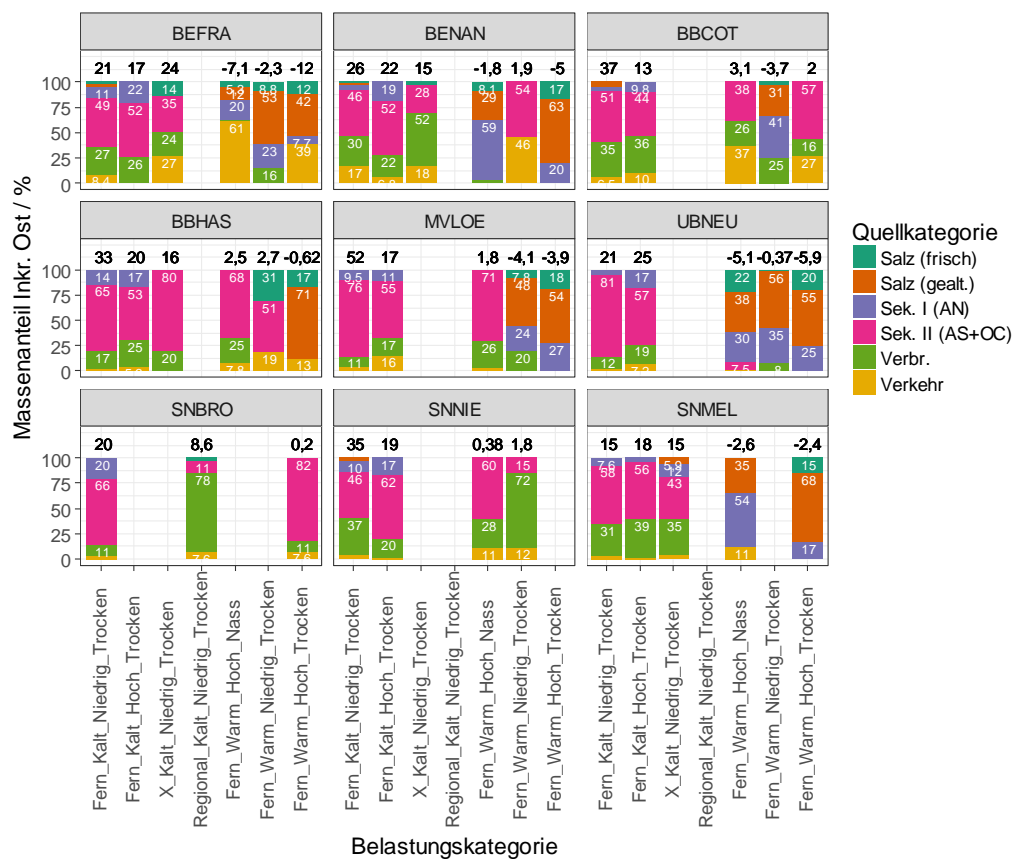


Abbildung 68: Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in $\mu\text{g m}^{-3}$) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien, dargestellt für alle 9 Messstation aus Level 1.

In Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus Kapitel 3.3.2 wird durch die PMF- Auswertung der einzelnen Messstation in Abbildung 68 deutlich, dass die höchsten Ost- Inkremente mit Werten zwischen 15 und 52 $\mu\text{g m}^{-3}$ insbesondere in der Kategoriekombination Fern_Kalt_Niedrig_Trocken auftreten. Die kleinsten, zum Teil auch negative Ost- Inkremente sind vor allem warme durch Ferntransport geprägte Tage. Fasst man die einzelnen Messstationen nach Stationscharakter zusammen, ergibt sich die in Abbildung 69 dargestellte Übersicht.

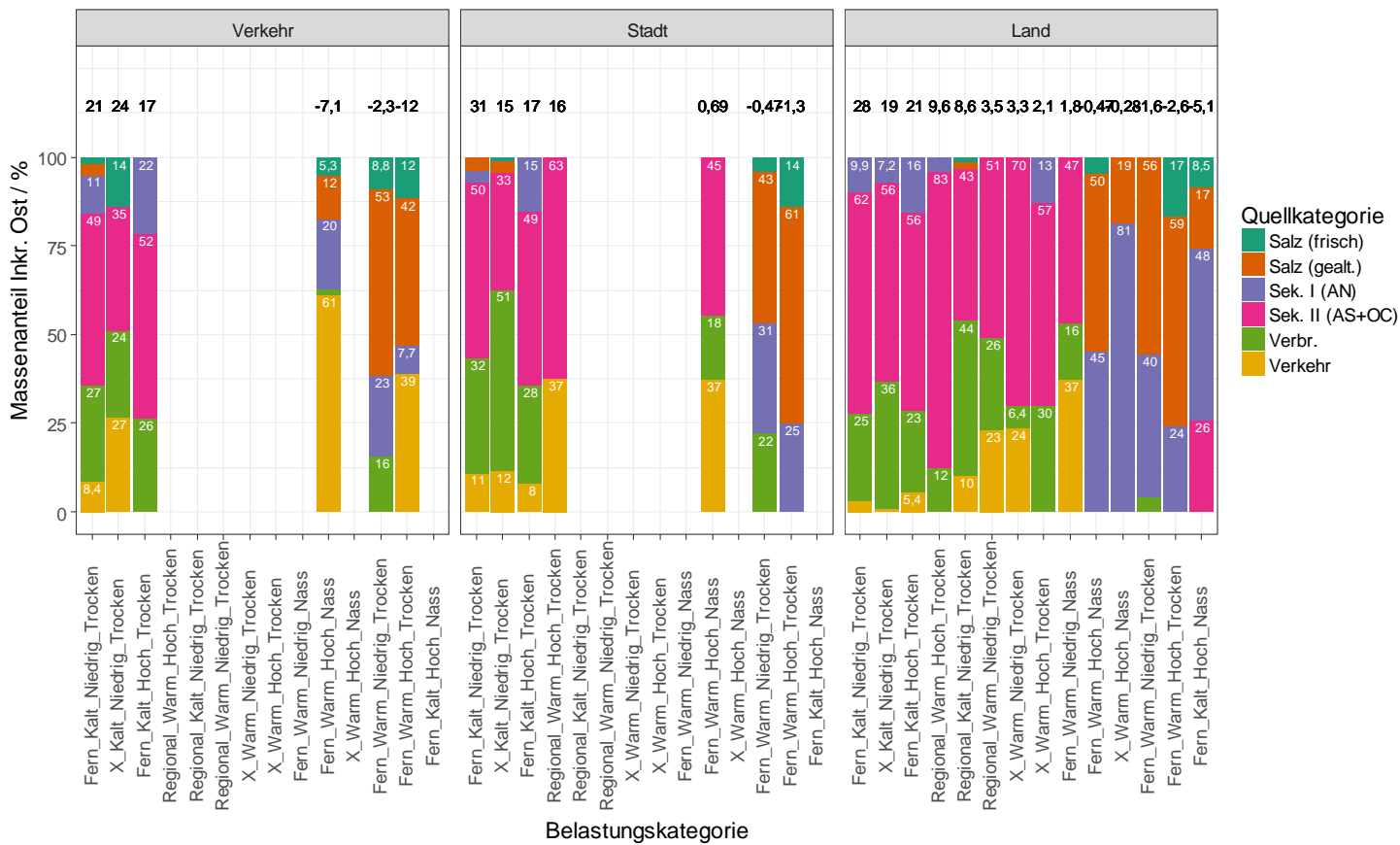


Abbildung 69: Massenanteil Inkrement Ost in % der Quellkategorien am „Netto“- Inkrement- Ost (schwarze Zahlen über Säulen in µg m⁻³) in Abhängigkeit von den kombinierten Belastungskategorien, dargestellt für die Stationstypen Verkehr (= BEFRA), Stadt und Land.

Die Ergebnisse aus Abbildung 68 und Abbildung 69 bestätigen die bereits in Kapitel 3.3.2 diskutierte Abhängigkeit des Ost- Inkrementes von den Belastungskategorien, zeigen aber in Ergänzung, dass vor allem der Transport und die chemische Alterung von Verbrennungsemissionen dafür verantwortlich sind. Die Massenanteile der 2 Quellkategorien Verbrennung und Sek. II am Inkrement- Ost betragen zwischen 50 und 90%. Mit durchschnittlich etwa 15% Massenanteil ist der Quellbeitrag des Verkehrs am Inkrement-Ost eher moderat. Kategoriekombinationen, die negative Ost- Inkremente zur Folge haben, zeigen dagegen hohe Anteile an Salz (vor allem gealtert) aber auch sekundär gebildetem Ammoniumnitrat was vorrangig durch maritime Anströmung aus West verursacht wird.

Die Auswertungen zeigen somit deutlich, dass der zusätzliche, aus östlichen Richtungen antransportierte PM₁₀-Anteil unter allen meteorologischen Randbedingungen im Wesentlichen durch Verbrennungsemissionen und sekundärem Ammoniumsulfat und organischem Material verursacht wird. Da SO₂ und flüchtige Kohlenwasserstoffe als Vorläufersubstanzen von Sulfat und organischem Material ebenfalls in hohem Maße aus der Verbrennung von Kohle und Biomasse emittiert werden, ergibt sich als Schlussfolgerung aus diesen Betrachtungen, dass sowohl primäre als auch sekundäre Produkte der Verbrennung von Festbrennstoffen die Hauptursache des grenzüberschreitenden Eintrages von PM ins Untersuchungsgebiet sind. Zusammen mit dem Befund, dass die absoluten Inkremente von warmen zu kalten Tagen in den kombinierten Kategorien stark ansteigen, deutet dies v. a. auf Emissionen aus der Gebäudeheizung als wesentliche Quelle der hohen antransportierten Belastungen hin, da diese im Gegensatz zu Emissionen aus Industrie oder Energiesektor sehr stark von der Temperatur abhängig sind.

4 Zusammenfassung

Im Projekt PM-OST wurde eine Ursachenanalyse von PM10-Feinstaubimmissionen an zehn ausgewählten Messstationen (zwei Verkehrsstationen, zwei im städtischen und sechs im ländlichen Hintergrund), in den Ländern Berlin, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen sowie des Umweltbundesamtes (UBA) im Zeitraum September 2016 bis März 2017 durchgeführt. Es standen Tageswerte der PM10-Massekonzentration sowie der darin enthaltenen Inhaltsstoffe, wasserlösliche anorganische Ionen und die Kohlenstoffsummenparameter (OC / EC) zur Verfügung. An 80 Sondermesstagen (SMT) wurden im PM10 polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK), Levoglucosan, sowie (in Berlin) verschiedene Metalle quantifiziert. Es sollte untersucht werden, wie Episoden östlicher Anströmung im Winter im Osten Deutschlands wiederholt zu erhöhten PM10-Massekonzentrationen und Grenzwertüberschreitungen führen können. Diese Annahme wurde im Projekt durch eine Betrachtung der Belastungssituationen überprüft, es wurde der Anteil des grenzüberschreitenden Ferntransportes quantifiziert, sowie basierend auf der chemischen Zusammensetzung und Rezeptormodellierung dessen wahrscheinliche Ursachen identifiziert.

Eine Abschätzung lokaler und regionaler Beiträge an städtischen „Hot-spot“-Stationen (BEFRA) erfolgte über den „Lenschow-Ansatz“ (mit BENAN und BBHAS im städtischen bzw. ländlichen Hintergrund). Zusätzlich zur Betrachtung aller Tage im Untersuchungszeitraum wurden spezielle Tagescharakteristika und meteorologische Kategorien (Verwendung von Rückwärtstrajektorien, Temperatur, Grenzschichthöhe und Niederschlag) gebildet: Diese enthielten zum einen „Grenzwertüberschreitungstage“, „Wochentage“ und „Wochenendtage“ und zum anderen die Anströmung der Luftmassen aus „Ost“ oder „West“, die Raumskala der Luftmassen „Regional“ oder „Fern“, die Temperatur „Warm“ oder „Kalt“, die Grenzschichthöhe „Hoch“ oder „Niedrig“ und die Witterung „Trocken“ oder „Nass“. Für alle Tage sowie in den meisten meteorologischen Kategorien zeigt sich ein bereits in früheren Untersuchungen gefundenes Bild von ca. 20% Verkehrsanteil, 15% Anteil des städtischen Hintergrundes und 65% Anteil des regionalen Hintergrundes an der mittleren PM10-Massekonzentration der Verkehrsstation. In den Kategorien „Überschreitungstage“, Anströmung „Ost“ und Raumskala „Regional“, die die höchsten mittleren Konzentrationen ($41 - 65 \mu\text{g m}^{-3}$) an BEFRA zeigten, nimmt der Anteil des ländlichen Hintergrundes auf ca. 70% zu und ist in der jeweiligen gegenteiligen Kategorie entsprechend deutlich niedriger. Ein maßgeblicher Einfluss des grenzüberschreitenden Eintrages belasteter Luftmassen auf die erhöhten Konzentrationen und ländlichen Anteile lässt sich nicht direkt ableiten. Dies liegt zum einen an den oben beschriebenen Wechselwirkungen der meteorologi-

schen Belastungskategorien untereinander und zum anderen daran, dass die Kategorie „Überschreitungstage“ nur zu etwa einem Drittel Tage mit Anströmung Ost enthielt.

Um den Einfluss des grenzüberschreitenden Ferntransportes zu quantifizieren, erfolgte eine differenzierte Betrachtung der Kategorien Anströmung, Raumskala, Temperatur, Mischungsschichthöhe und Witterung in ihrer für den jeweiligen Messtag geltenden Ausprägung zusammengefasst in kombinierten Kategorien. Die beobachteten PM10- Massekonzentrationen bei Anströmung West und Ost in diesen kombinierten Kategorien wurden auch separat gemittelt. Dadurch konnten die Unterschiede in den meteorologischen Randbedingungen beim direkten Vergleich der beiden Hauptanströmungsrichtungen deutlich verringert werden.

Innerhalb der kombinierten Belastungskategorien wurde ein „Inkrement Ost“ berechnet. Das höchste wurde an kalten, trockenen Tagen mit weit zurückreichenden Rückwärtstrajektorien und niedriger Grenzschichthöhe („Fern_Kalt_Niedrig_Trocken“) bestimmt und lag unabhängig vom Typ der Messstation (Verkehr, Stadt, Land) im Mittel bei ca. $30 \mu\text{g m}^{-3}$, was ca. 60% der am jeweiligen Stationstyp in dieser Kategorie gemessenen mittleren PM10- Massekonzentration entsprach. Betrachtet man die Anteile des Inkrement Ost in Abhängigkeit der mittleren PM10- Massekonzentration über die kombinierten Belastungskategorien hinweg, ergibt sich folgendes Bild: Bei meteorologischen Randbedingungen, die zu einer hohen Belastung von $> 30 \mu\text{g m}^{-3}$ führen, trägt der grenzüberschreitende Eintrag etwa zu 50% bei. Bei mittleren PM10- Massekonzentrationen von ca. $20 - 30 \mu\text{g m}^{-3}$ liegt dieser Anteil noch bei ca. 20%, wohingegen er bei niedriger Belastung mit Konzentrationen unter $20 \mu\text{g m}^{-3}$ vernachlässigbar klein wird.

Zur genaueren Quellzuordnung der an den Stationen und für das Inkrement Ost beobachteten Konzentrationen wurden Analysen mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) durchgeführt, in die neben den PM10- Massekonzentrationen auch die der im Projekt analysierten Inhaltsstoffe einfließen. Es wurden PMF- Läufe auf 5 Stufen durchgeführt, deren Gehalt an chemischer Information von Stufe zu Stufe zunahm. Die in den verschiedenen Stufen identifizierten Quellkategorien bilden zusammen mit ihren Hauptinhaltsstoffen und charakteristischen Markerverbindungen, die Grundlage für die physikalische Interpretation der mathematischen PMF- Faktoren. Erwartungsgemäß war für Stufe 1 der Verkehrsanteil an den städtischen Stationen mit 30% in BEFRA und ca. 15% in BENAN relativ hoch. An allen Stationen erklären die PM10- Masse: Verbrennungsemission zu 20 – 30%, die sekundäre Bildung von Ammoniumsulfat und organischem Material zu 20 – 40%, die Bildung von Ammoniumnitrat zu 15 - 30% und von frischen und gealterten Salzen zu 10%. Die PMF- Ergebnisse wurden verwendet, um die Quellen des grenzüberschreitenden PM- Eintrages zu

identifizieren, indem die Berechnung des Inkrement Ost unter gleichen Rahmenbedingungen wie für den Ferntransport für alle PMF- Quellkategorien durchgeführt und zu einem Gesamtbild integriert wurden. Es zeigt sich deutlich, dass der zusätzliche aus östlichen Richtungen antransportierte Anteil unter allen meteorologischen Randbedingungen wesentlich durch Verbrennungsemissionen, sekundäres Ammoniumsulfat und organisches Material verursacht wurde. Da SO_2 und flüchtige Kohlenwasserstoffe als Vorläufersubstanzen von Sulfat und organischem Material ebenfalls in hohem Maße aus der Verbrennung von Kohle und Biomasse emittiert werden, ergibt sich als Schlussfolgerung, dass sowohl primäre als auch sekundäre Produkte der Verbrennung von Festbrennstoffen die Hauptursache des grenzüberschreitenden Eintrages von PM im Untersuchungsgebiet waren. Zusammen mit dem Befund, dass die absoluten Inkremente von warmen hin zu kalten Tagen in den kombinierten Kategorien stark ansteigen, deutet dies auf Emissionen aus Hausbrand bzw. Anlagen zur Gebäudeheizung als wesentliche Quelle für die hohen antransportierten Belastungen hin, da diese im Gegensatz zu Emissionen aus Industrie oder dem Energiesektor stark von der Temperatur abhängig sind. Darüber hinaus deuteten die Auswertungen auf Quellregionen eher im etwas weiter entfernten östlichen Mitteleuropa und Südosteuropa als in den direkt angrenzenden Regionen der Nachbarländer hin, wobei diese auf Rückwärtstrajektorien beruhenden Ergebnisse mit hohen Unsicherheiten behaftet sind. Zur genaueren Beurteilung der Quellregionen erscheinen weitere Untersuchungen als zwingend notwendig.

5 Literaturverzeichnis

- Belis C. A., Larsen B. R., Amato F., El Haddad I., Favez O., Harrison R. M., Hopke P. K., Nava S., Paatero P., Prevot A., Quass U., Vecchi R., Viana M. (2014) European Guide on Air Pollution Source Apportionment with Receptor Models. EU JRC Reference Reports,
- Birmili W., Brüggemann E., Gnauk T., Herrmann H., Inuma Y., Müller K., Poulain L., Weinhold K., Wiedensohler A. (2008) Einfluss kleiner Holzfeuerungen auf die Immissionssituation – Teil Immissionsmessung. Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Leipzig im Auftrag des Sächsischen Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft vertreten durch das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie.
- Bissolli P., Dittmann E. (2001) The objective weather type classification of the German Weather Service and its possibilities of application to environmental and meteorological investigations. *Meteorologische Zeitschrift* **10** (4), 253-260,doi: 10.1127/0941-2948/2001/0010-0253.
- Carlsaw D. C., Ropkins K. (2012) openair - An R package for air quality data analysis. *Environmental Modelling & Software* **27-28**, 52-61,doi: 10.1016/j.envsoft.2011.09.008.
- Chow J. C., Watson J. G. (2002) Review of PM_{2.5} and PM₁₀ apportionment for fossil fuel combustion and other sources by the chemical mass balance receptor model. *Energy & Fuels* **16** (2), 222-260,doi: 10.1021/Ef0101715.
- Draxler R. R., Rolph G. D. (2003) HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY website <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>. . NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Dvorská A., Lammel G., Klánová J. (2011) Use of diagnostic ratios for studying source apportionment and reactivity of ambient polycyclic aromatic hydrocarbons over Central Europe. *Atmospheric Environment* **45** (2), 420-427,doi: 10.1016/j.atmosenv.2010.09.063.
- Fabbri D., Marynowski L., Fabiańska M. J., Zatoń M., Simoneit B. R. T. (2008) Levoglucosan and Other Cellulose Markers in Pyrolysates of Miocene Lignites: Geochemical and Environmental Implications. *Environmental Science & Technology* **42** (8), 2957-2963,doi: 10.1021/es7021472.
- Fabbri D., Torri C., Simoneit B. R. T., Marynowski L., Rushdi A. I., Fabiańska M. J. (2009) Levoglucosan and other cellulose and lignin markers in emissions from burning of Miocene lignites. *Atmospheric Environment* **43** (14), 2286-2295,doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.01.030>.
- Fleming Z. L., Monks P. S., Manning A. J. (2012) Review: Untangling the influence of air-mass history in interpreting observed atmospheric composition. *Atmospheric Research* **104**, 1-39,doi: 10.1016/j.atmosres.2011.09.009.
- Galarneau E. (2008) Source specificity and atmospheric processing of airborne PAHs: Implications for source apportionment. *Atmospheric Environment* **42** (35), 8139-8149,doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.07.025.
- Gerstengarbe F.-W., Werner P. C. (1993) Katalog der Großwetterlagen Europas nach Paul Hess und Helmut Brezowski 1881-1992. – 4., vollständ. neu

- bearb. Aufl. - Offenbach am Main: Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes.
- Hennigan C. J., Sullivan A. P., Collett J. L., Robinson A. L. (2010) Levoglucosan stability in biomass burning particles exposed to hydroxyl radicals. *Geophysical Research Letters* **37**, doi: 10.1029/2010gl043088.
- Inuma Y., Engling G., Puxbaum H., Herrmann H. (2009) A highly resolved anion-exchange chromatographic method for determination of saccharidic tracers for biomass combustion and primary bio-particles in atmospheric aerosol. *Atmospheric Environment* **43** (6), 1367-1371,doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.11.020.
- John A., Kuhlbusch T. (2004) Ursachenanalyse von Feinstaub(PM 10)-Immissionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht. Institut für Energie- und Umwelttechnik (IUTA e.V.) im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin.
- Norris G., Duvall R., Brown S. (2014) EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 - Fundamentals and User Guide. US Environmental Protection Agency,
- Paatero P., Eberly S., Brown S. G., Norris G. A. (2014) Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions. *Atmospheric Measurement Techniques* **7** (3), 781-797,doi: 10.5194/amt-7-781-2014.
- Paatero P., Tapper U. (1994) Positive Matrix Factorization - a Nonnegative Factor Model with Optimal Utilization of Error-Estimates of Data Values. *Environmetrics* **5** (2), 111-126,doi: DOI 10.1002/env.3170050203.
- Poulain L., Inuma Y., Müller K., Birmili W., Weinhold K., Brüggemann E., Gnauk T., Hausmann A., Löschau G., Wiedensohler A., Herrmann H. (2011) Diurnal variations of ambient particulate wood burning emissions and their contribution to the concentration of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Seiffen, Germany. *Atmos Chem Phys* **11** (24), 12697-12713,doi: 10.5194/acp-11-12697-2011.
- Rautherberg-Wulff A., Lutz M., Nulis E., Reichenbacher W., Kettschau A., Schlickum V., Kerschbaumer A., Couturier G., Jarnott F., Gerike S., Lehming B., Rose B., Nothard R., Grunow K., von Stülpnagel A., Preuss M., Horn B., Gutierrez Merino S. (2013) Luftreinhalteplan 2011 bis 2017 für Berlin. Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt Berlin.
- Schlimper S. (2010) Meteorologische und statistische Auswertung von Langzeitmessungen zur Charakterisierung des Aerosols an der Forschungsstation Melpitz. Diploma Universität Leipzig.
- Seibert P., Kromp-Kolb H., Baltensperger U., Jost D. T., Schwikowski M., Kasper A., Puxbaum H. (1994) Trajectory analysis of aerosol measurements at high alpine sites. In: Borrell P. M., Borrell P., Cvitas T., Seiler W. (eds) *Transport and transformation of pollutants in the troposphere*. Academic Publishing, The Hague, pp 689-693
- Simoneit B. R. T., Schauer J. J., Nolte C. G., Oros D. R., Elias V. O., Fraser M. P., Rogge W. F., Cass G. R. (1999) Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. *Atmospheric Environment* **33** (2), 173-182,doi: 10.1016/S1352-2310(98)00145-9.

- Sirois A., Bottenheim J. W. (1995) Use of backward trajectories to interpret the 5-year record of PAN and O₃ ambient air concentrations at Kejimikujik National Park, Nova Scotia. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **100** (D2), 2867-2881,doi: 10.1029/94JD02951.
- Spindler G., Brüggemann E., Gnauk T., Müller K., Herrmann H. (2010) A four-year size-segregated characterization study of particles PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ depending on air mass origin at Melpitz. *Atmospheric Environment* **44** (2), 164-173,doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.10.015.
- Spindler G., Gnauk T., Grüner A., Iinuma Y., Müller K., Scheinhardt S., Herrmann H. (2012) Size-segregated characterization of PM₁₀ at the EMEP site Melpitz (Germany) using a five-stage impactor: A six year study. *Journal of Atmospheric Chemistry* **69** (2), 127-157,doi: 10.1007/s10874-012-9233-6.
- Spindler G., Grüner A., Müller K., Schlimper S., Herrmann H. (2013) Long-term size-segregated particle (PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁) characterization study at Melpitz - influence of air mass inflow, weather conditions and season. *Journal of Atmospheric Chemistry* **70** (2), 165-195,doi: 10.1007/s10874-013-9263-8.
- Stein A. F., Draxler R. R., Rolph G. D., Stunder B. J. B., Cohen M. D., Ngan F. (2015) NOAA'S HYSPLIT ATMOSPHERIC TRANSPORT AND DISPERSION MODELING SYSTEM. *Bulletin of the American Meteorological Society* **96** (12), 2059-2077,doi: 10.1175/bams-d-14-00110.1.
- Werner P. C., Gerstengarbe F.-W. (2010) PIK Report No. 119 Katalog der Großwetterlagen (1881-2009) nach Paul Hess und Helmut Brezowsky, 7. verbesserte und ergänzte Auflage.