

Lokale Ultrafeinstaubquellen in Langen bei Frankfurt

Holger Gerwig, Werner Pecher, Klaus Wirtz
Umweltbundesamt, Dienststelle Langen,
Holger.Gerwig@uba.de

Nach PM₁₀ wird das kleinere alveolengängige PM_{2,5} (Partikel < 2,5 µm) EU-weit gesetzlich geregelt (EU Luftqualitätsrichtlinie 2008/50/EG). „...die plausibelsten Wirkungshypothesen (stammen) aus Untersuchungen von ultrafeinen Partikeln mit einem hundertfach geringeren Durchmesser als PM₁₀ (< 0,1 µm Durchmesser)“ (Hopf, 2005). Epidemiologische und toxikologische Studien zeigen negative Gesundheitseffekte dieser kleinen Staubpartikel (Knol *et al.*, 2009).

Ultrafeinstaub wird in Deutschland und Europa an immer mehr Orten über längere Zeit an einem konstanten Ort gemessen, wie z. B. im Projekt UFIPOLNET an 4 Orten Europas (Gerwig, 2007; Hillemann *et al.*, 2007, Wehner *et al.*, 2008) und im vom UBA bis 2010 geförderten GUAN-Netzwerk (German Ultrafine Aerosol Network) (Birmili *et al.*, 2009; Nordmann *et al.*, 2009). Die Revision der Luftqualitätsrichtlinie 2013 bezieht neben den bisherigen auch neue Metriken des Feinstaubes mit ein.

UFP stammen zu einem großen Teil aus anthropogenen Quellen. In Langen wurden verschiedene Partikelmetriken des Feinstaubes (Anzahl, Oberfläche Partikelgrößenanzahlspektren) untersucht und verschiedenen Quellgruppen zugeordnet (Gerwig *et al.*, 2010a, b). Außerdem ergaben die Verteilung der Partikelgrößen wichtige Hinweise auf die Quellen des Ultrafeinstaubes (Löschau 2006 a, b; 2010; Wehner *et al.*, 2002, 2007; Voigtländer *et al.*, 2006).

Um die Ursache-Wirkungs-Beziehung besser erfassen zu können ist es notwendig die verschiedenen möglichen Metriken durch kontinuierliche Messungen zu erfassen um Änderungen wie Zu- oder Abnahme beobachten zu können. Nach der ersten längeren Zeitreihenanalysen zu UFP in Deutschland (Erfurt) stieg die Partikelanzahl im Partikelgrößenbereich von 0,01 bis 0,03 µm im Verlauf 90er Jahren um ca. ein Drittel an (Cyrus *et al.*, 2002). Demgegenüber sank die Partikelanzahl von 3 bis 800 nm an einer Messstelle in Dresden zwischen den beiden Zeiträumen 2001 - 03 und 2007 - 08 um etwa ein Viertel ab. Neben meteorologischen Ursachen könnte die Reduzierung lokaler Quellen, wie die Abnahme des LKW-Verkehrs bzw. die Reduktion von Festbrennstoffen hierfür der Grund sein. (Löschau *et al.*, 2010).

Die Masse der UFP ist so gering, dass Alternativen zur Bestimmung der Masse notwendig werden. Neben der Partikelanzahl kann auch die vom Menschen eingeatmete und auf die Zellen in der Lunge wirkende Partikeloberfläche gemessen werden.

Für die Überwachung gesundheitsrelevanter Partikelmaße sind u. a. die oft nicht vergleichbaren Messverfahren und ein nicht vorhandener langfristiger Praxiseinsatz problematisch.

Experimentelles

Die urbane Hintergrund Messstation liegt in Langen, 15 km südlich von Frankfurt a. M. und 5 km südöstlich vom Frankfurter Flughafen im Rhein-Main-Gebiet.

Drei verschiedene Partikelmessinstrumente (Fa. TSI Inc.) laufen seit Ende 2008 kontinuierlich mit Messintervallen von 1 Minute bzw. 6 Minuten (SMPS) auf einem Dach in 14 m über dem Boden. Die Aerosole > 1 µm werden abgeschieden (Fa. RIEMER Messtechnik). Das NSAM misst die deponierte tracheobronchiale (= tb) Partikeloberfläche innerhalb eines Aersoldurchmessers von 10 – 1.000 nm. Mit dem UCPC 3776 werden Partikelanzahlkonzentrationen von 3 – 1.000 nm gemessen.

Das SMPS 3936 in Kombination mit einem CPC 3010 dient der Messung von Partikelanzahlverteilungen zwischen 10 – 500 nm. Die Differenz aus den gemessenen Partikelanzahlen von UCPC und SMPS wurde als Größenklasse von 3 – 10 nm angenommen. Offsets zwischen beiden Geräten können nicht ausgeschlossen werden. Seit Oktober 2010 wird die Probenahmeluft für das vom Institut für Troposphärenforschung modifizierte SMPS (7 – 660 nm) getrocknet um auch bei schwankender Luftfeuchte besser vergleichbare Partikelgrößenverteilungen zu erhalten. Temperatur, Luftfeuchte, Windgeschwindigkeit und –richtung sowie Daten zum Niederschlag wurden durch das WS600 (Fa. LUFFT GmbH) ermittelt. Die meteorologischen Daten des Jahreswechsels 2008/09 wurden vom DWD in Langen genutzt.

Bei der Qualitätssicherung der Partikelmessgeräte wurde angestrebt die Empfehlungen von Pitz *et al.*, 2008 zu berücksichtigen. U. a. nahm das Umweltbundesamt an der Vergleichsmessung für SMPS und CPC 2008 bei METAS im Rahmen des Schlüsselvergleichs EURAMET 1027 der europäischen Meteorologischen Institute teil (Schlatter, 2009).

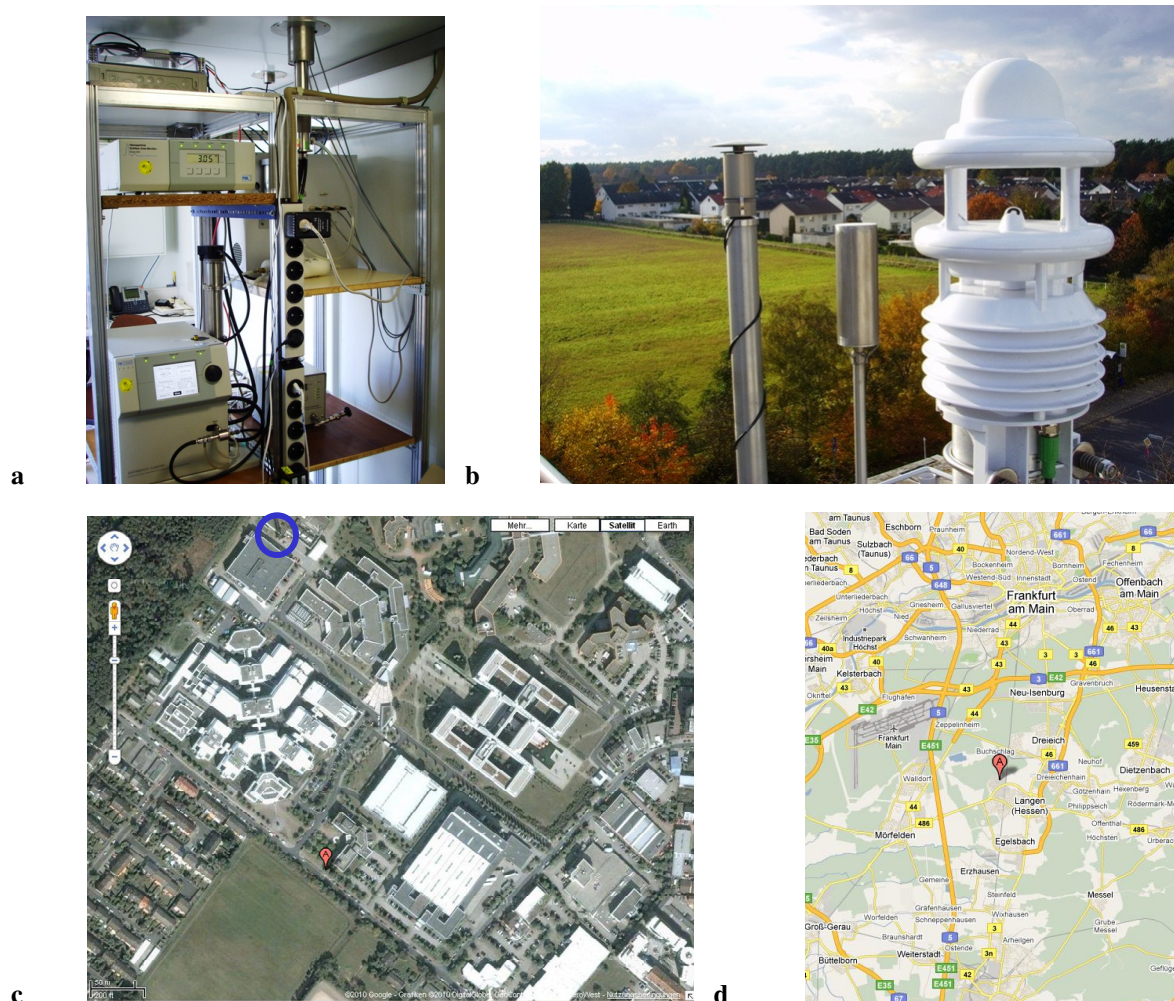


Abb. 1: **a** Experimentalstation Langen: Feinstaubvorabscheider, NSAM, SMPS, (nicht im Bild: UCPC); **b** Umgebung des Messcontainers, Wetterstation WS600; **c** Luftbild mit Standort Gasfeuerungskraftwerk (blauer Kreis); **d** Standort zwischen Frankfurt und Darmstadt in Nähe zum Flughafen. (Fotos: H. Gerwig; Karte und Luftbild: Google Maps)

7 Größenklassen wurden von den SMPS-Daten berechnet (10 |30 |50 |70 |100 |200 |500), was auf die Überlegungen der Entwicklung eines Messgeräts für Partikelanzahlgrößenverteilungen (Hillemann *et al.*, 2007) im EU-LIFE Projekts UFIPOLNET zurückgeht. Dort wurden die Partikelanzahlgrößenver-

teilung auf 6 Kanäle bis >200 nm beschränkt um Datenmengen insbesondere für den Routinemessbetrieb zu minimieren (Wehner *et al.*, 2007).

Besonderes Augenmerk galt dem Zeitraum September 2009 bis Juni 2010, da hier alle Messgeräte inklusive der Wetterstation zeitgleich im Einsatz waren. Nur komplette Datensätze der Stundenmittelwerte wurden für die Auswertungen betrachtet. Dies entsprach einer Verfügbarkeit von 85%. Für den mittleren Tagesgang eines Werktages (Mo-Fr) wurden Feiertage und der Zeitraum von 23-12-09 bis 03-01-10 ausgenommen.

Ergebnisse und Diskussion

In näherer Umgebung der Messstation wurden verschiedene Verursacher als lokale Partikelquellen in Betracht gezogen, u. a. aufgrund ihrer Emission von sichtbarem Rauch oder Wasserdampf. Dazu gehörten ein gasbetriebenes Blockheizkraftwerk, Straßenbauarbeiten und Silvesterfeuerwerk. Erste Auswertungen zeigten erhöhte Partikelanzahlkonzentrationen von Partikeln mit kleinen Durchmesser bei Wind aus der Richtung eines nahe gelegenen Blockheizkraftwerks mit Gasfeuerung (Gerwig *et al.*, 2010a).



Abb. 2 Lokale Partikelquellen **a** gasbetriebenen Blockheizkraftwerk; **b** Asphaltfräsarbeiten, **c** Feuerwerk (Fotos: H. Gerwig)

Langzeitmittelwerte

Während des Messzeitraums betrug die Außentemperatur zwischen -15 und +30°C, die Windgeschwindigkeit war bis zu 14 m/s. Der Median der t_b Partikeloberfläche erreichte $5 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$, die Partikelanzahlkonzentration zwischen 10 - 500 nm betrug $8.600 \text{ p}/\text{cm}^3$. Im Größenbereich 3 – 1.000 nm des UCPC wurden $1.300 \text{ p}/\text{cm}^3$ mehr gefunden (s. Tab. 1), die vermutlich zum überwiegenden Teil nicht aus dem Partikelgrößenbereich über 500 nm stammten.

Städtische Hintergrundstationen in Deutschland zeigten mit 5 – 8.000 Partikel pro cm^3 bei einem Mobilitätsdurchmesser von 10 – 100 nm vergleichbare Werte (Birmili *et al.*, 2006).

	NSAM	UCPC	SMPS
nm	$\mu\text{m}^2/\text{cm}^3$	p / cm^3	p / cm^3
	10 – 1.000	3 – 1.000	10 - 500
Median	5.0	9.900	8.600
Stdabw.	3.1	6.100	6.000
5 Perzentil	1.9	4.600	3.700
95 Perzentil	11.7	22.500	21.000

Tab. 1: Statistische Größen der Stundenmittelwerte der tracheobronchialen Partikeloberfläche und Partikelanzahlkonz. im Zeitraum 09-09-2009 bis 14-06-2010

Tagesgang

Im Zeitraum von September 2009 bis Juni 2010 zeigte der mittlere Tagesgang der Werktage Montag bis Freitag zwei unterschiedliche Verläufe (s. Abb. 3). Verlauf A: T_b Partikeloberfläche (NSAM) und Partikel von 30 – 500 nm Mobilitätsdurchmesser zeigten ein erstes Minimum bei ca. 4 Uhr, ein Maximum um 9 Uhr und ein zweites Minimum um 15 Uhr. Dieser Verlauf ähnelt den Tagesgängen an ver-

kehrsnahen Standorten (Wehner *et al.*, 2008; Löschau und Gerwig, 2009). Verlauf B: Partikel von 3 – 10 nm Durchmesser zeigen ein kleineres Maximum um 7 Uhr und ein größeres Maximum zwischen 13 – 15 Uhr, letzteres vermutlich aufgrund von Sonnenlicht induzierter Partikelneubildung (T_{Max} um 16 Uhr).

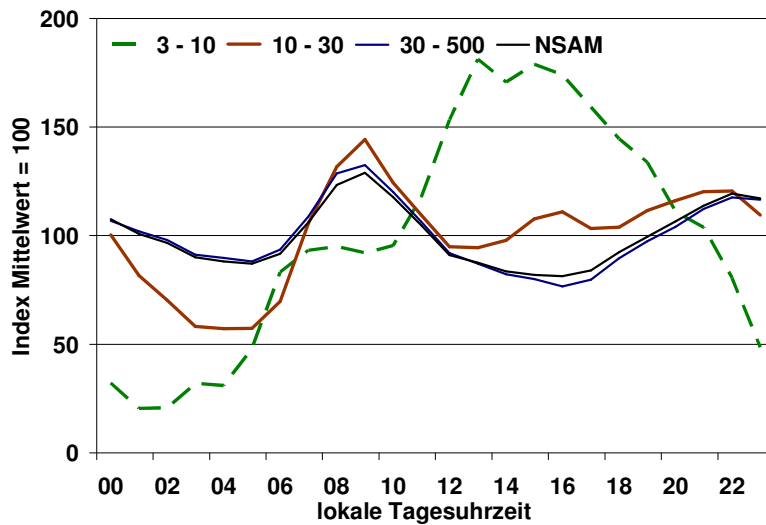


Abb. 3 Mittlerer Tagesgang eines Werktages (9-09 bis 06-10): Partikelanzahlverteilung verschiedener Partikelgrößenbereiche und tb Partikeloberfläche (jeweils mit Bezug auf den Mittelwert, Index = 100);

Partikel von 10 – 30 nm zeigen fast den gleichen Tagesgang wie Verlauf A mit Ausnahme des Nachmittags, wo das zweite Minimum aussieht, als ob es überlagert wäre durch einen Effekt, der für die Verlauf B verantwortlich ist. Das Maximum um 7 Uhr der Partikel von 3 – 10 nm könnte von lokalen Quellen verursacht worden sein. Hierbei könnte es sich evtl. um Abgase des gasbetriebenen Blockheizkraftwerks oder des Berufspendlerverkehrs handeln.

Silvester-Feuerwerk

Die mittlere Konzentration der tb Partikeloberfläche bzw. der Partikelanzahlkonzentration (3 – 1000 nm) betrug 2009 und 2010 ungefähr $6 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$ bzw. $11.000 \text{ p}/\text{cm}^3$ (s. Tab. 2).

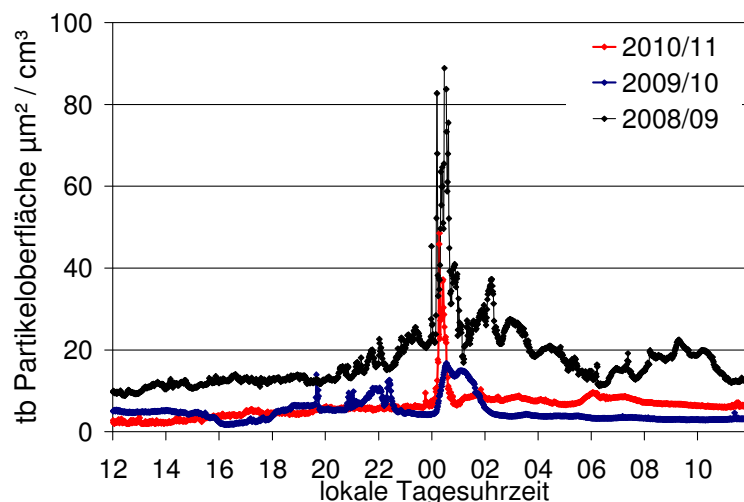


Abb. 5 Tracheobronchiale Partikeloberfläche in $\mu\text{m}^2/\text{cm}^3$ der Jahreswechsel 2008-2010

Std. Mw.	NSAM $\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$	UCPC $\text{p} \cdot \text{cm}^{-3}$
Mw. 2009	6.1	10.600
Mw. 2010	5.8	11.200
Max. 2009	33	65.000
Max. 2010	26	65.000
Max 1 Min. Mw.		
NJT 2009	89	57.000
NJT 2010	17	22.000
NJT 2011	49	35.000

Tab. 2 Mittlere und Maximale Partikelanzahl und tb Partikeloberfläche in 2009 und 2010; Max Minutenkonz. während der Neujahrstage (NJT) 2009-11.

In der Nacht von Silvester auf Neujahr finden die alljährlichen großen privaten Feuerwerke statt. Diese wurden an 3 Nächten der Jahreswechsel ab 2008 näher untersucht. Am Neujahrstag (NJD) 2009 wurde ein maximaler Minutenmittelwert von $89 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$ tb Partikeloberfläche registriert bei gleichzeitig geringer Windgeschwindigkeit von $< 1 \text{ m/s}$ und Wind aus Richtung eines nahen Wohngebiets. Die Temperatur betrug zwischen -7 und $-1 \text{ }^\circ\text{C}$.

Auch am Neujahrstag 2011 stieg die tb Partikeloberfläche um ein vielfaches verglichen mit Zeiten vor und nach dem Feuerwerk, wobei auch zu diesem Jahreswechsel der Wind aus dem angrenzenden Wohngebiet wehte. Diesmal jedoch mit etwas höheren Geschwindigkeiten von 2 m/s .

Während des Neujahrstag 2010 wurde das geringste Maximum der tb Partikeloberfläche beobachtet, da der Wind mit 2 m/s nicht aus dem Wohngebiet wehte.

Asphaltfräsarbeiten

Straßenbauarbeiten und insbesondere Asphaltfräsarbeiten der obersten Straßenschicht in 10 bis 100 Meter Entfernung von der Messstation führten zu kurzfristig deutlich erhöhten Partikelanzahlkonzentrationen (s. Abb. 4) und der tracheobronchialen Partikeloberfläche.

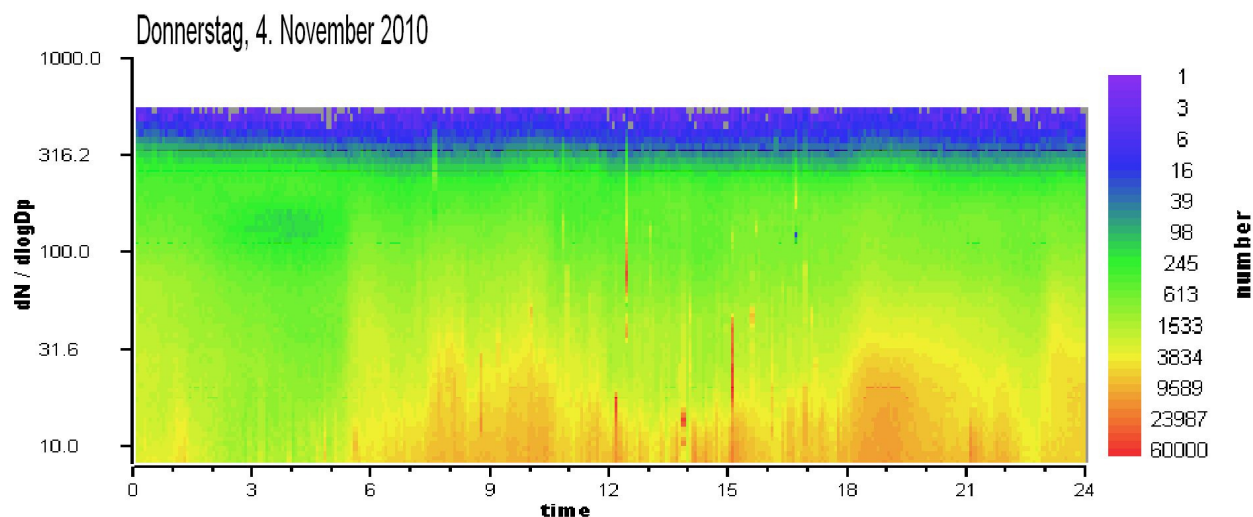


Abb. 4 Partikelanzahlgrößenverteilungen (7 – 660 nm) während Asphaltfräsarbeiten in 10 m Entfernung am 4.11.2010 um 12:30 und ca. 15 Uhr.

Ziele und Ausblick der Arbeiten der Experimentalstation Langen

Im Rahmen der Untersuchungen der Partikeleigenschaften an der Experimentalstation Langen werden Partikelmessgeräte in der Praxis getestet. Künftig werden die Anteile der wasserlöslichen Ionen im Feinstaub und die Partikelanzahlgrößenverteilung des aerodynamischen Durchmessers im Bereich von $7 \text{ nm} - 10 \mu\text{m}$ der mittels eines ELPI (Fa. DEKATI) analysiert.

Durch den Betrieb eines Neutralisators auf Röntgenstrahlungsbasis (Modell 3087, Fa. TSI Inc.) für das SMPS kann künftig auf die radioaktive Strahlenquelle (Krypton 85) verzichtet werden.

Zusammenfassung

Zu den lokalen Quellen erhöhter Konzentrationen der Partikelanzahl und der tracheobronchialen Partikeloberfläche gehören an dem Standort Langen der Autoverkehr, Emissionen eines gasbetriebenen Blockheizkraftwerk und zeitlich befristet auftretende Quellen wie Asphaltfräsarbeiten und Silvesterfeuerwerk angrenzender Wohngebiete.

Danksagung

Die Autoren danken Herrn W. Grosch für die Entwicklung der Makros zur Bildung von Stundenmittelwerten, Herrn S. Schäfer für die zeitweise Betreuung der Probenahme und den Mitarbeitern am Standort Langen für konstruktive Diskussionen. Herrn B. Henning vom Bildungs- und Tagungszentrum des DWD in Langen wird für die Überlassung meteorologischer Daten für den Jahreswechsel 2008/2009 gedankt. Ebenfalls Dank an Herrn Voigtländer für die Entwicklung von „Mini-Plot!“.

Literatur

- Birmili, W. (2006) Räumlich-zeitliche Verteilung, Eigenschaften und Verhalten ultrafeiner Aerosolpartikel (>100nm) in der Atmosphäre, sowie die Entwicklung von Atmosphäre, sowie die Entwicklung von Überwachung in Deutschland, Umweltbundesamt, Redaktion : D. Bake; Forschungsbericht 203 43 257/05 UBA-FB 000942; UBA Texte 26 - 06
- Birmili, W.; Weinhold, K.; Nordmann, S.; Wiedensohler, A.; Spindler, G.; Müller, K.; Herrmann, H.; Gnauk, T.; Pitz, M.; Cyrys, J.; Flentje, H.; Nickel, C.; Kuhlbusch, T.A.J.; Löschau, G.; Haase, D.; Meinhardt, F.; Schwerin, A.; Ries, L.; Wirtz, K. (2009): Atmospheric aerosol measurements in the German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) Part 1: Soot and particle number size distributions, *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 69, 137 – 149.
- Brüggemann, E.; Gerwig, H.; Gnauk, Th.; Müller, K.; Herrmann, H. (2009): Influence of seasons, air mass origin and day of the week on size-segregated chemical composition of aerosol particles at a kerbside", 43, 2456-2463, *Atmospheric Environment*
- Cyrys, J.; Heinrich, J.; Peters, A.; Kreyling, W.; Wichmann, H. E. (2002): Emission, Immission und Messung feiner und ultrafeiner Partikel. *Umweltmed Forsch Prax*, 7, 67-77.
- Gerwig, H. (2007): UFIPOLNET – Dauermessung von Ultrafeinstaub-Partikelgrößenverteilungen in der Stadt, UMID - Umweltmedizinischer Informationsdienst (Hg. BfSt, UBA, BfR, Robert Koch Inst.), 2/2007, 12-14.
- Gerwig, H.; Pecher, W.; Wirtz, K. (2010a): Continuous particle number measurements near Frankfurt/Germany, IAC Helsinki 29.08. – 03.09.2010.
- Gerwig, H.; Bieber, E.; Birmili, W.; Gilge, S.; Meinhardt, F.; Pecher, W.; Ries, L.; Schleyer, R.; Spitzner, A.; Stummer, V.; Wallasch, M.; Weinhold, K. and Wirtz, K. (2010b): Particle and SO₂ measurements of volcanic ash at ground based stations of different altitudes in Germany, IAC Helsinki 29.08. – 03.09.2010.
- Hillemann, L., Zschoppe, A., Caldow, R. (2007) Aerosol mobility spectrometry based on diffusion charging, European Aerosol Conference, Salzburg 9.-14.9.2007.
- Hopf, M. (2005): LUA Mitteilungsblatt 2/2005, S. 36-42 www.lua.sachsen.de/pu/Mitteilungen/Docs/luca_m_2005_02.pdf
- Knol, A.B.; de Hartog, J.J.; Boogaard, H.; Slottje, P.; van der Sluijs, J.P.; Lebret, E.; Cassee, F.R.; Wardekker, J.A.; Ayres, J.G.; Borm, P.J.; Brunekreef, B.; Donaldson, K.; Forastiere, F.; Holgate, S.T.; Kreyling, W.G.; Nemery, B.; Pekkanen, J.; Stone, V.; Wichmann, H.E.; Hoek, G. (2009): Expert elicitation on ultrafine particles: likelihood of health effects and causal pathways. Part. Fibre Tox., 6, 19.
- Löschau, G. (2006a, b): Partikelanzahl in verkehrsnaher Außenluft – Teil 1: Belastungsniveaus und Tendenz; Teil 2: Einfluss der Meteorologie und erste Ursachenanalyse, *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 66, 431-435 und 483-488.
- Löschau, G.; Gerwig, H. (2009): Messung der Anzahl von ultrafeinen Partikeln in der Außenluft in einem Luftgütemessnetz Teil 1: Maßnahmen zur Qualitätskontrolle bei Partikelanzahlverteilungen, *Gef. Reinhalt. Luft*, 69, 475 - 479.
- Löschau, G.; Wiedensohler, A.; Wehner, B.; Birmili, W.; Gerwig, H. (2010) Messung der Anzahl von ultrafeinen Partikeln in der Außenluft in einem Luftgütemessnetz Teil 2: Ergebnisse einer verkehrsnahen Langzeitmessung; *Gef. Reinhalt. Luft*, 70, 183 – 187.
- Nordmann, S.; Birmili, W.; Weinhold, K.; Wiedensohler, A.; Mertes, S.; Müller, K.; Gnauk, T.; Herrmann, H.; Pitz, M.; Cyrys, J.; Flentje, H.; Ries, L.; Wirtz, K. (2009): Atmospheric aerosol measurements in the German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) - Part 2: Comparison of measurements techniques for graphitic, light-absorbing, and elemental carbon, and non-volatile particle volume under field conditions, 2009, *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 69, 469-474.
- Pitz, M., Birmili, W., Schmid, O.; Peters, A.; Wichmann H.-E. and Cyrys, J. (2008): Quality control and quality assurance for particle size distribution measurements at an urban monitoring station in Augsburg, Germany, 10, 1017–1024, 2008, *J. Environ. Monit.*
- Schlatter, J. (2009): EURAMET Project 1027; Comparison of nanoparticle number concentration and size distribution. Report of results, V2.0. Federal Office of Metrology METAS, Lindenweg 50, CH-3084 Wabern, Switzerland.
- Wehner, B.; Birmili, W.; Gnauk T.; Wiedensohler, A. (2002) Particle number size distributions in a street canyon and their transformation into the urban-air background: measurements and a simple model study, *Atmospheric Environment*, 36, 2215-2223.
- Wehner, B.; Tuch, Th.; Wiedensohler, A., Zschoppe, A., Hillemann, L.; Gerwig, H. (2007) The new UFP 330: Comparison with a DMPS for ambient aerosols; European Aerosol Conference, Salzburg 9.-14.9.2007.
- Wehner, B., A. Wiedensohler, A. Zschoppe, C. Peters, A. Rudolph, L. Hillemann, M. Pitz, J. Cyrys, J. Nowak, C. Johansson, H.G. Horn, R. Caldow, G.J. Sem and H. Gerwig (2008): The new UFP 330: Ten months of continuous measurements. EAC 24. - 28.8.2008 in Thessaloniki.
- Voigtländer, J.; Tuch, T.; Birmili, W.; Wiedensohler, A. (2006): Correlation between traffic density and particle size distribution in a street canyon and the dependence on wind direction, *Atmos. chem. Phys.*, 6, 4275-4286.