

Korngrößendifferenzierte Analyse des Feinstaubs
PM10-Vergleich zwischen Stadt und städtischem Umland

Diplomarbeit

Institut für Landschaftsökologie
Fachbereich Geowissenschaften
Westfälische Wilhelms-Universität Münster

Vorgelegt von
Torsten Tritscher

Münster, Januar 2007

I Inhaltsverzeichnis

I	Inhaltsverzeichnis.....	i
II	Abbildungsverzeichnis.....	iii
III	Tabellenverzeichnis	vi
IV	Abkürzungsverzeichnis und Definitionen.....	vii
V	Zusammenfassung.....	viii
VI	Abstract.....	ix
1	Einleitung	1
1.1	Zielsetzung	2
1.2	Grundlagen.....	3
2	Standorte und räumliche Einordnung	7
2.1	Standort Rieselfelder Münster	8
2.2	Standort Steinfurter Straße.....	10
2.3	Standort Hüffergarten, Institut für Landschaftsökologie	11
3	Material und Methoden.....	13
3.1	Feldmessgeräte.....	13
3.1.1	Berner-Impaktoren.....	13
3.1.2	Meteorologische Messgeräte in den Rieselfeldern.....	16
3.1.3	Messgeräte der Wetterstation Hüffergarten	18
3.2	Probenvorbereitung und Laborgeräte zur Analyse	18
3.2.1	Vorbereitung der Filter.....	18
3.2.2	Ammonium Analyse am Aquatec	20
3.2.3	Ionenchromatographische Analyse der Anionen.....	21
3.2.4	Natrium, Calcium und Magnesium am Atomabsorptionsspektrometer	23
3.2.5	Kohlenstoffbestimmung mit dem OCEC-Analyser.....	24
3.3	Messprogramm und Datenqualität.....	26
3.3.1	Datenaufbereitung	26
3.3.2	Statistische Methoden	27
4	Qualitätssicherung und Qualitätskontrolle	30
4.1	Vergleichbarkeit der Impaktoren.....	30
4.1.1	Genaue Untersuchung der Berner-Impaktoren mit Durchflussmessungen	30
4.1.2	Direkter Messvergleich der Berner-Impaktoren	31
4.2	Ionenbilanz	36
4.3	Vergleich der gemessenen Konzentrationen mit den PM ₁₀ -Daten des LUA NRW.....	37
5	Ergebnisse und Diskussion	41
5.1	Analyse der Impaktormessungen in den Rieselfeldern (städtisches Umland)	41

5.1.1 Vergleich der PM10-Konzentrationen im Januar und Februar (im städtischen Umland).....	42
5.1.2 Größensortierte Auswertung der Ergebnisse (im städtischen Umland)	45
5.2 Analyse der Impaktormessungen in der Steinfurter Straße (Stadt)	47
5.2.1 Vergleich der PM10-Konzentrationen im Januar und Februar (Stadt)	48
5.2.2 Größensortierte Auswertung der Ergebnisse (Stadt)	50
5.3 Vergleich der beiden Standorte städtisches Umland und Stadt.....	54
5.3.1 Summierte PM10-Verläufe	54
5.3.2 Vergleich der PM10-Zusammensetzung	56
5.3.3 Betrachtung einzelner Ionen.....	57
5.3.4 Kohlenstoff.....	61
5.4 Witterungsverlauf im Messzeitraum und Auswirkungen auf die Partikelkonzentration	67
5.4.1 Witterungsverlauf im Januar und Februar	67
5.4.2 Lufttemperatur	69
5.4.3 Relative Luftfeuchtigkeit und Niederschlag	72
5.4.4 Wind	73
5.4.5 Zusammenfassende Diskussion zum Einfluss von Wetterparametern auf die Partikelkonzentration	77
6 Fazit und Ausblick	78
7 Literatur	80
8 Anhang.....	85
Danksagung	89
Erklärung.....	90

II Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Schematische Größenverteilung des atmosphärischen Feinstaubes mit den wichtigsten Quellen, Entstehungsprozessen und Senken (PETERS et al. 1998, nach WHITBY & SVERDRUP 1980).	3
Abbildung 2: Angriffsorte des Feinstaubes in den Atemwegen (JORDI 2005).....	5
Abbildung 3: Mechanismen zur Sammlung von Partikeln (DICKENSON 1997).	6
Abbildung 4: Ausschnitt der TK100 für Münster mit den Standorten Rieselfelder, Steinfurter Straße und Institut für Landschaftsökologie (Station Hüffergarten) (Kartengrundlage: GEOSERVER NRW 2006).....	8
Abbildung 5: Luftbild von den Rieselfeldern mit Messstandort und Biologischer Station (GOOGLE EARTH 2006).....	9
Abbildung 6: Messstation Rieselfelder mit Gartenhaus und Niederschlagssammler.	10
Abbildung 7: Blauer Messcontainer in der Steinfurter Straße, im Hintergrund ist der beige Container des LUA NRW zu erkennen.	11
Abbildung 8: Station „Hüffergarten“ auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie (AG KLIMATOLOGIE 2006).	12
Abbildung 9: Schematischer Aufbau eines mehrstufigen Kaskaden-Impaktors (verändert nach KRdL 2004).	14
Abbildung 10: 5-stufige Berner-Impaktoren (links BT-Impaktor, rechts MS-Impaktor).	15
Abbildung 11: Impaktorstufen BT-Impaktor.	16
Abbildung 12: Impaktorstufen MS-Impaktor.	16
Abbildung 13: Feuchte- und Temperatursensor an der Messhütte.	17
Abbildung 14: Young Niederschlagswippe in den Rieselfeldern.	17
Abbildung 15: Impaktorprallplatte mit Tedlar- und Quarzfaserfilter nach der Probennahme.	19
Abbildung 16: Ausstanzen der Tedlarfilter aus Folienbahnen in der Werkstatt des Instituts für Landschaftsökologie.	19
Abbildung 17: Gespülte Tedlar-Filterringe beim Trocknen und in Petrischale.....	19
Abbildung 18: Geschnittene Quarzfilter in Keramiktigeln im Muffelofen.....	20
Abbildung 19: Aquatec Analyser 5400 mit Autosampler.....	21
Abbildung 20: Schematischer Aufbau eines Ionenchromatographen (Quelle: Dionex 2005). ..	22
Abbildung 21: Chromatogramm eines Standards im ICS-90.....	22
Abbildung 22: Rechner mit Chromelionsteuerungssoftware, Ionenchromatograph und automatischer Probennehmer.	23
Abbildung 23: Flammen-Atomabsorptionsspektrometer Perkin Elmer 1100.	24
Abbildung 24: OCEC-Analyser von Sunset Laboratory mit Gasanschlüssen.....	24
Abbildung 25: Ergebnis, Kurvenverlauf der OCEC-Analyse.....	25

Abbildung 26: Zwei Impaktoren auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie.....	32
Abbildung 27: Zwei Impaktoren nebeneinander im Messcontainer Steinfurter Straße.....	32
Abbildung 28: Direkter Vergleich der beiden Berner-Impaktoren für die Haptionen des PM10s.....	33
Abbildung 29: Streudiagramm, direkter Vergleich der beiden Berner-Impaktoren für die Haptionen des PM10s.	33
Abbildung 30: Gesamtionenkonzentration der beiden Impaktoren BT und MS für Stufe 1 (links) und Stufe 3 (rechts).....	34
Abbildung 31: Gesamtionenkonzentration der beiden Impaktoren BT und MS für Stufe 5. ...	35
Abbildung 32: Ionenbilanz mit prozentualer Abweichung für die gemessenen Ionen in der Steinfurter Straße und den Rieselfeldern.	37
Abbildung 33: Auf eigene Messungen angepasste PM ₁₀ -Konzentrationen der drei LUA NRW Stationen in Münster.....	38
Abbildung 34: Verlauf der PM10-Konzentrationen Steinfurter Straße (MS-Impaktor) und LUA-Station Steinfurter Straße (VMSS).....	39
Abbildung 35: Verlauf der PM10-Konzentrationen Rieselfelder (BT-Impaktor) und LUA-Station Geist (MSGE).	40
Abbildung 36: PM10 Verlauf in den Rieselfeldern.	41
Abbildung 37: Mittelwerte der chemischen Zusammensetzung des PM10 für Januar und Februar 2006 sowie für den Messzeitraum zusammen für die Rieselfelder.....	42
Abbildung 38: Mittlere Anteile am PM10 im Januar.....	44
Abbildung 39: Mittlere Anteile am PM10 im Februar.	44
Abbildung 40: Stufenweiser Vergleich von Tag- und Nacht-Messungen im Januar in den Rieselfeldern.	46
Abbildung 41: PM10 Verlauf an der Steinfurter Straße.	47
Abbildung 42: Mittelwerte der chemischen Zusammensetzung des PM10 für Januar und Februar 2006 sowie für den Messzeitraum zusammen für Steinfurter Straße.	48
Abbildung 43: Mittlere Anteile am PM10 im Januar.....	50
Abbildung 44: Mittlere Anteile am PM10 im Februar.	50
Abbildung 45: Stufenweiser Vergleich von Tag- und Nacht-Messungen im Januar an der Steinfurter Straße.	52
Abbildung 46: Verlauf der PM10-Konzentration.	55
Abbildung 47: Verlauf der Ionenkonzentration.....	56
Abbildung 48: Mittlere Zusammensetzung des PM10 in der Steinfurter Straße im Januar. ...	57
Abbildung 49: Mittlere Zusammensetzung des PM10 in den Rieselfeldern im Januar.....	57
Abbildung 50: Aufteilung der Ionen in den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Januar (06.01.-23.01.06).	58

Abbildung 51: Aufteilung der Ionen in den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Februar (23.02.-28.02.06).....	59
Abbildung 52: Stationsvergleich anhand der Konzentrationen des organischen Kohlenstoffs (Summen Stufe 1-5).	62
Abbildung 53: Stationsvergleich anhand der Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs (Summen Stufe 1-5).	62
Abbildung 54: Aufteilung des Kohlenstoffs in OC und EC auf den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Januar (06.01.-23.01.06). ..	64
Abbildung 55: Aufteilung des Kohlenstoffs in OC und EC auf den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Februar (23.02.-28.02.06).	64
Abbildung 56: Theorie zur verschobenen OC-EC-Trennung bei Impaktorproben (schematische Zeichnung). Die Querschnitte Phase 1 bis 5 stellen unterschiedliche Zustände des Quarzfaserfilters und der darauf gesammelten Partikel während der Analyse dar. Abgebildet sind die Kurve des Flammenionisations-Detektors (grün), der Lasertransmission (rot) und der Temperaturverlauf (blau) aus einer durchgeführten Analyse.	66
Abbildung 57: Mittlere Windgeschwindigkeit [m s^{-1}] nach Windrichtungen im Januar (vom 06.01. bis 23.01.06).	69
Abbildung 58: Verlauf der Lufttemperatur und der PM10-Konzentration in den Rieselfeldern.	70
Abbildung 59: Verlauf der Lufttemperatur und der PM10-Konzentration in der Stadt.	70
Abbildung 60: Lufttemperatur und PM10 Umland.....	70
Abbildung 61: Lufttemperatur und PM10 Stadt.....	70
Abbildung 62: Relative Luftfeuchtigkeit und PM10 Rieselfelder.	72
Abbildung 63: Relative Luftfeuchtigkeit und PM10 Steinfurter Straße.	72
Abbildung 64: Korrelation der Windgeschwindigkeit mit den PM10-Konzentrationen der beiden Standorte.	73
Abbildung 65: Windrichtung mit mittlerer PM10-Konzentration der beiden Standorte.....	76
Abbildung 66: Windrichtung mit mittlerer Gesamtkohlenstoff-Konzentration der beiden Standorte.	76
Abbildung 67: Windrichtung mit mittlerer Ionen-Konzentration der beiden Standorte.	76

III Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Klassifizierung der Korrelationskoeffizienten nach BÜHL & ZÖFEL 2005.....	27
Tabelle 2: Kenndaten der beiden Berner-Impaktoren.....	31
Tabelle 3: Statistische Daten der PM10-Werte für die Station Rieselfelder.	43
Tabelle 4: Mittelwerte je Stufe für Januar-Messungen Rieselfelder.	45
Tabelle 5: Statistische Daten der PM10-Werte für die Station Steinfurter Straße.	49
Tabelle 6: Mittelwerte je Stufe für Januar-Messungen Steinfurter Straße.	51
Tabelle 7: Wetterdaten des Untersuchungszeitraums für die Stationen Hüffergarten und Rieselfelder.....	69

IV Abkürzungsverzeichnis und Definitionen

Aerosol	Stabile Suspension fester und/oder flüssiger Partikel in der Luft.
Feinstaub	Partikel, Aerosole siehe PM ₁₀
PM	particulate matter, Partikel
PM ₁₀	Gesamtheit der Partikel, die einen gröÙenselektierenden Lufteinlass passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 10 µm eine Abscheidewirksamkeit von 50 % besitzt (Feinstaub).
PM10	Summe aller chemischen Partikelbestandteile der Stufen 1 bis 5 des Berner-Impaktors, die in einem Bereich zwischen den Trenndurchmesser 10 µm und 0,05 µm abgeschieden werden. Die Masse/Konzentration entspricht der des PM ₁₀ , allerdings werden besonders kleine Partikel und nicht analysierte Bestandteile nicht erfasst (ebenfalls als Feinstaub bezeichnet).
OC	organischer Kohlenstoff
EC	elementarer Kohlenstoff
BT-Impaktor	Berner-Impaktor, der zur Feinstaubsammlung im Umland eingesetzt wurde.
MS-Impaktor	Berner-Impaktor, der zur Feinstaubsammlung in der Stadt eingesetzt wurde.
LUA NRW	Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (ab 1.1.2007 Teil des Landesamtes für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen (LANUV)).

Verwendete Einheiten:

eq µmol m ⁻³	Äquivalent Mikromol pro Kubikmeter, Äquivalent Stoffmengenkonzentration.
g cm ⁻³	Gramm pro Zentimeter, Dichte.
l min ⁻¹	Liter pro Minute, Volumenflussrate.
µg m ⁻³	Mikrogramm pro Kubikmeter, Massen-Konzentration.
(µg m ⁻³) ²	Mikrogramm pro Kubikmeter zum Quadrat, Varianz der Konzentration.
µm	Mikrometer, Länge, z. B. Durchmesser für Partikelgrößenangabe. 1 µm = 10 ⁻³ mm = 10 ⁻⁶ m; 1 µm = 10 ³ nm

V Zusammenfassung

Im Januar und Februar 2006 wurde in Münster (Westfalen) an zwei Standorten mit einem fünfstufigen Berner-Impaktor Feinstaub (PM10) gesammelt und die chemische Zusammensetzung analysiert. An beiden Standorten wurden ebenfalls meteorologische Parameter erfasst. Der erste Standort lag an einer Hauptverkehrsstraße in der Stadt Münster, der zweite lag im Umland der Stadt in einem Naturschutzgebiet.

Ein direkter Gerätevergleich der beiden Berner-Impaktoren, Vergleiche mit Daten des Landesumweltamtes sowie Blindwertkorrektur und Ionenbilanz stellen eine hohe Qualität der Daten sicher. Die chemische Analyse umfasst Kohlenstoff (EC und OC) sowie die Ionen Nitrat, Sulfat, Ammonium, Chlorid, Natrium, Magnesium, Calcium, Fluorid und Phosphat.

In der Stadt sind für Januar mittlere PM10-Konzentrationen von $31 \mu\text{g m}^{-3}$ gemessen worden, während im Umland niedrigere Werte von $24 \mu\text{g m}^{-3}$ erreicht wurden. Der wesentliche Unterschied besteht in der Gesamtkohlenstoffkonzentration, die im Mittel $15 \mu\text{g m}^{-3}$ (Stadt) und $8 \mu\text{g m}^{-3}$ (städtisches Umland) beträgt. Besonders der Anteil des elementaren Kohlenstoffs ist in der Stadt höher. Bei den feinen Partikeln (mittlere Durchmesser $0,1 \mu\text{m}$) macht der Gesamtkohlenstoffanteil in der Stadt über 90 % aus. Dies resultiert aus Verbrennungsprozessen, die zum großen Teil auf den Straßenverkehr zurückzuführen sind. Höhere Konzentrationen bei den groben Partikeln (mittlere Durchmesser $2-6 \mu\text{m}$) in der Stadt sowie eine erhöhte Calciumkonzentration zeigen ebenfalls den Verkehrseinfluss durch Aufwirbelungseffekte im Vergleich zum Umland. Die Konzentrationen sind für Partikel im Akkumulationsbereich (mittlere Durchmesser $0,6-0,7 \mu\text{m}$) am größten. Obwohl die mittleren Gesamtionenkonzentrationen fast identisch sind, zeigen sich beim Vergleich von Größenklassen und einzelnen Bestandteilen feine Abweichungen.

Die Unterschiede in der PM10-Konzentration zwischen den Standorten sind nachts geringer als am Tag. Die mittleren Konzentrationen je Größenklasse sind in der Stadt überwiegend tagsüber höher, während die Situation im Umland umgekehrt ist. Nachts können erhöhte Konzentrationen von Nitrat, Sulfat und Ammonium festgestellt werden, die sich durch Partikelwachstum aufgrund veränderter atmosphärischer Bedingungen (keine Strahlung) erklären lassen. Die Kohlenstoffkonzentration sinkt nachts deutlich ab.

Hohe Korrelationen zeigen die Abhängigkeit der Partikelkonzentration von Windrichtung und Windgeschwindigkeit. Ein weiterer Zusammenhang zwischen sinkenden Temperaturen und steigender Feinstaubkonzentration kann ebenfalls gezeigt werden. Für alle analysierten meteorologischen Parameter sind die Korrelationen im Umland höher als in der Stadt, wo lokale Einflüsse (z. B. Verkehr) eine größere Bedeutung für die PM10-Konzentration haben. Die Untersuchungen konnten somit Unterschiede zwischen Hintergrundbelastung und lokaler Zusatzbelastung darstellen.

VI Abstract

In January and February 2006 the particulate matter (PM₁₀) was collected with a five stage Berner type impactor at two sites in Münster (Westphalia). Chemical compounds of particulate matter were analysed and meteorological parameters were measured additionally. One of the stations was situated next to a main road in the city of Münster, the other one was situated in a nature protection area outside of Münster.

The quality of the data is assured by a direct comparison of both impactors, by a comparison with data from the North Rhine-Westphalia State Environment Agency as well as by field blank correction and by an ionic balance. The chemical analysis includes carbon (EC and OC) and the ions nitrate, sulphate, ammonium, chloride, sodium, magnesium, calcium, fluoride and phosphate.

In January an average concentration of PM₁₀ of 31 µg m⁻³ for the city and 24 µg m⁻³ for the surrounding are measured. The main difference between both stations is found in the total carbon concentration, it averages 15 µg m⁻³ for the city station and 8 µg m⁻³ for the station in the rural district of Münster. The amount of elementary carbon is in particular higher in the city. Among the fine particles (mean diameter 0.1 µm) in the city, the percentage of total carbon is more than 90 %. It is the result of combustion processes which are mainly caused by traffic due to the situation of the station. Higher concentrations among the coarse particles (average diameter of 2-6 µm) in the city and a higher calcium concentration also indicate the influence of the traffic by turbulence effects in comparison with the rural surrounding. Concentrations of particles in the accumulation range (average diameter of 0.6-0.7 µm) are highest. Even though the average of the total ion concentration is almost the same at both stations, some minor differences occur by comparing size classes and single compounds.

Differences in the PM₁₀ concentration of the stations are smaller during the night. The average concentration of each size class is predominantly higher during the day while the situation in the surrounding area is the opposite. During the night increasing concentrations of nitrate, sulphate and ammonium are found. They can be explained by particle growth due to changed ambient conditions (no radiation). The concentration of carbon declines at night.

High correlations show the dependence of the particle concentration on wind speed as well as wind direction. Another connection is demonstrated between declining temperature and increasing particle concentration. Correlations for all analysed meteorological parameters are higher in the urban environment than in the city. Local influences (e. g. traffic) have a stronger impact in the city. Therefore the studies could show several varieties between background load and additional local load.

1 Einleitung

Die Diskussion und Debatte um Feinstaub befindet sich in vollem Gange. Feinstaub ist im wahrsten Sinne des Wortes in aller Munde. Nicht nur wissenschaftliche Disziplinen, sondern auch Medien aller Art beschäftigen sich mit dem Thema Feinstaub. Jeder, ob Autofahrer oder Anwohner, ist betroffen. Spätestens seit am 1. Januar 2005 die Richtlinie 1999/30/EG der Europäischen Union in Kraft getreten ist, besteht für jede Stadt die gesetzliche Verpflichtung sich mit der Luftqualität und somit auch der Feinstaubproblematik zu beschäftigen. Seitdem existieren erstmals Grenzwerte für die Feinstaubkonzentration in der Außenluft.

Die Grenzwerte waren notwendig, seit die gesundheitsschädlichen Effekte der kleinen Partikel bekannt wurden. Die WHO (World Health Organization) schätzt für die Bevölkerung in Deutschland bei der heutigen Feinstaubbelastung eine Verkürzung der Lebenserwartung um etwa 10 Monate (WHO 2000, WHO WORKING GROUP 2003). Durch die Umsetzung der EU-Richtlinie im Bundes-Immissionsschutzgesetz (BImSchG) und in der 22. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (22. BImSchV) sind die Bundesländer zur Messung und Überwachung der PM_{10} -Konzentration verpflichtet. Zum Schutz der menschlichen Gesundheit darf der 24 h-Mittelwert der PM_{10} -Konzentration von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ maximal an 35 Tagen im Jahr überschritten werden. Ein Jahresmittelwert von $40 \mu\text{g m}^{-3}$ darf ebenfalls nicht überschritten werden. Die zuständigen Landesbehörden bzw. die Kommunen müssen im Überschreitungsfall kurzfristig Aktionspläne als Gegenmaßnahme aufstellen. Als weiteres Instrument zur Reduzierung zu hoher PM_{10} -Konzentrationen sind Luftreinhaltepläne zu erstellen (§11, 22. BImSchV).

Als Feinstaub oder PM_{10} (particulate matter) werden Partikel bezeichnet, „die einen größenselektierenden Lufteinlass passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von $10 \mu\text{m}$ einen Abscheidegrad von 50 Prozent aufweist“ (§1, 22. BImSchV). Analog dazu werden kleinere Partikel als $PM_{2,5}$ oder PM_1 abgegrenzt. Der aerodynamische Durchmesser von Partikel ist definiert als Durchmesser einer Kugel mit der Einheitsdichte 1g cm^{-3} , die in Luft dieselbe Sinkgeschwindigkeit wie das betrachtete Partikel hat (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000). Partikel sind generell nicht kugelförmig (COLBECK 1998), die Annahme ermöglicht jedoch Berechnungen und die Erklärung bestimmter Mechanismen (siehe 1.2).

Die PM_{10} -Konzentration wird als Masse pro Luftvolumen nach europaweit einheitlichem Referenzverfahren (gravimetrische Massenbestimmung) oder daran angepasst kontinuierlich gemessen (UMWELTBUNDESAMT 2006). Zur Unterscheidung wird in der vorliegenden Arbeit die aufsummierte PM_{10} -Konzentration des Berner-Impaktors anders geschrieben (vgl. IV Definitionen).

Eine stabile Suspension fester und/oder flüssiger Partikel in der Luft wird als atmosphärisches Aerosol bezeichnet (GRAEDEL & CRUTZEN 1994). Aerosole haben einen Einfluss auf den atmosphärischen Strahlungshaushalt (IPCC 2001). Der direkte (Streuung, Absorption) und der indirekte (Wolkentropfenanzahl, Niederschlagswahrscheinlichkeit) Strahlungsantrieb werden unterscheiden. Die genaue Funktionsweise der einzelnen Reaktionen und die Höhe der Effekte sind noch recht unbekannt (IPCC 2001). Der Beitrag von Aerosolen zum Klimawandel ist aufgrund der komplexen Wechselwirkungen noch nicht eindeutig geklärt.

Die PM_{10} -Grenzwerte (max. 35 Überschreitungstage) wurden 2005 an 60 Stationen in 36 deutschen Städten überschritten (UMWELTBUNDESAMT 2006). 2006 wurden nach vorläufigen Ergebnissen allein an 15 Stationen in NRW der 24 h-Grenzwert öfter als 35 Tage überschritten (LUA NRW 2006a). Die flächendeckende Einhaltung der Grenzwerte stellt aktuell immer noch für viele Städte und Gemeinden ein Problem dar. Die geplante 2. Stufe der EU-Richtlinie wird aktuell in den verschiedenen EU-Gremien diskutiert und überarbeitet. Es geht vor allem um die genauen Zeiträume zur Einhaltung der bestehenden Grenzwerte für Feinstaub und um die Einführung eines weiteren Grenzwertes für Feinstaub ($PM_{2,5}$) ab 2010 oder 2015 (FAZ 2006).

1.1 Zielsetzung

Im Rahmen dieser Arbeit sollten Aerosolpartikel an zwei Standorten im Winter größensortiert auf ihre Zusammensetzung untersucht und miteinander verglichen werden. Die Untersuchungen fanden in enger Zusammenarbeit mit dem Projekt „Quellenidentifizierung des Feinstaubes in Münster“ statt. Neben dem städtischen Standort des Projekts an einer Hauptverkehrsstraße wurde eine zweite Messstation im Umland von Münster eingerichtet. Aus dem Thema ergeben sich die folgenden Aufgaben und Fragestellungen:

- Chemische Analyse des Feinstaubes für Ionen und Kohlenstoff (OC, EC).
- Verteilung der Partikel in PM_{10} -Fraktion und einzelnen Größenklassen.
- Vergleich der Aerosolzusammensetzung am Tag und in der Nacht.
- Untersuchungen zum Einfluss des Verkehrs.
- Zusammenhänge zwischen Partikelkonzentration und ausgewählten Wetterkomponenten.

Aus den obigen Aspekten an beiden Standorten sollten Unterschiede zwischen dem städtischen Umland und der Stadt aufgezeigt werden. Diese Unterschiede sollten die Hintergrundbelastung sowie die erhöhte lokale Feinstaubkonzentration repräsentieren.

1.2 Grundlagen

Es gibt verschiedene Möglichkeiten zur Klassifizierung von Partikeln. Eine der Wichtigsten ist die Einteilung nach ihrem aerodynamischen Durchmesser (vgl. PM_{10} , $PM_{2,5}$). Abbildung 1 zeigt eine typische Verteilung der atmosphärischen Partikel in drei Moden sowie wichtige Entstehungs- und Entfernungsprozesse. Bis zu einem Durchmesser von $2\ \mu\text{m}$ werden Partikel als „fein“ darüber als „grob“ bezeichnet. Die feinen Partikel können in Akkumulationsbereich (accumulation range) ($0,08\text{--}2\ \mu\text{m}$), Aitken-Teilchen ($0,01\text{--}0,08\ \mu\text{m}$) und ultrafeine Partikel ($< 0,01\ \mu\text{m}$) weiter untergliedert werden (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000).

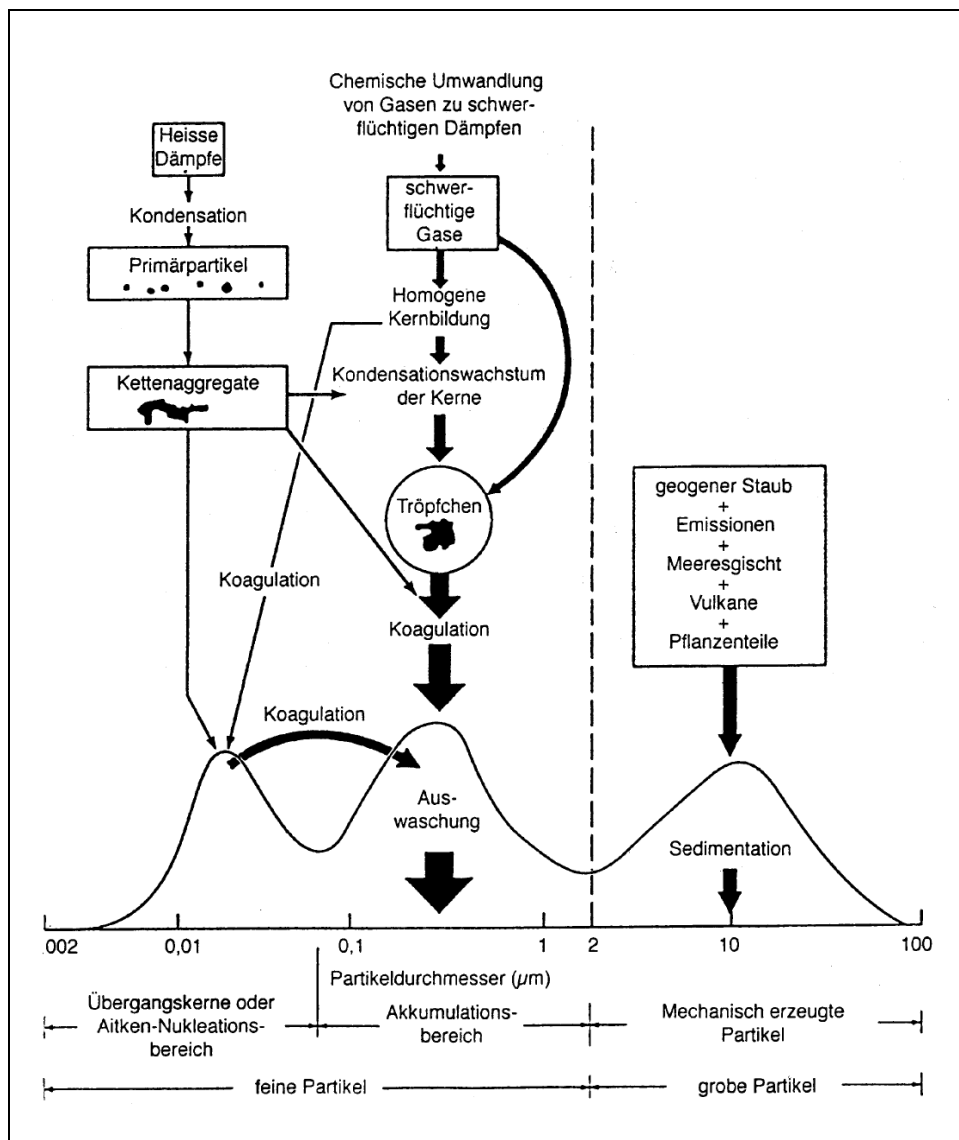


Abbildung 1: Schematische Größenverteilung des atmosphärischen Feinstaubes mit den wichtigsten Quellen, Entstehungsprozessen und Senken (PETERS et al. 1998, nach WHITBY & SVERDRUP 1980).

Nach ihrer Entstehung können Partikel in Primärpartikel, die direkt in die Atmosphäre emittiert werden, und Sekundärpartikel, die sich durch Gas-Partikel-Umwandlung bilden, unterteilt werden (Abbildung 1). Wichtige Bildungsprozesse für sekundäre Partikel sind homogene Kernbildung (homogene Nukleation), Kondensationswachstum der Kerne

(heterogene Nukleation) und Koagulation, dem Zusammentreffen zweier oder mehr Partikel. Die sekundären Partikel sind überwiegend feine Partikel und haben bei den Quellen einen hohen anthropogenen Anteil (ca. 60 %) (IPCC 2001). Die groben Primärpartikel stammen dagegen überwiegend aus natürlichen Quellen (ca. 95 %).

Die Inhaltsstoffe und die Zusammensetzung der Partikel geben einen Hinweis auf ihren Ursprung. Um die Feinstaubmenge effektiv zu reduzieren, müssen zunächst die Emittenten bekannt sein. Typische Quellen sekundärer Partikel sind beispielsweise Verbrennungsvorgänge, Nukleation, Ammoniak, Stickoxide, Schwefeldioxid und Reaktionen von leichtflüchtigen Kohlenstoffverbindungen (SEINFELD & PANDIS 2006). Die Quellen lassen sich durch die Partikelinhaltsstoffe Sulfat, Nitrat, Ammonium, Kohlenstoff (EC + OC), Wasser, Oxoniumionen (H_3O^+), Metalle und andere identifizieren.

Einige Bestandteile wie z. B. elementarer Kohlenstoff (EC) lassen sich sehr eindeutig Verbrennungsprozessen (Hausbrand, Verkehr) zu ordnen. Andere Inhaltsstoffe wie beispielsweise Sulfat können sowohl natürliche (Vulkanemissionen, Dimethylsulfid aus Ozeanen) wie auch anthropogene Quellen (Schwefeldioxid Emission) haben (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000). Primäre Partikel entstehen typischer Weise aus Ereignissen wie Erosion von Festland und Ozeanen, Reifenabrieb und Flugascheemission (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000, IPCC 2001). Die Quellen und damit auch die PM_{10} -Konzentration und Zusammensetzung lässt sich in lokale (z. B. Straßenverkehr, Industrieemissionen), regionale und überregionale Belastung (z. B. Seesalz aus Ozeanen) einteilen (LENSCHOW et al. 2001). Nach LENSCHOW et al. 2001 gibt es eine Feinstaub-Hintergrundkonzentration, die sich in der Stadt zur urbanen Hintergrundkonzentration erhöht und bestimmte lokale Schwerpunkte (hot-spots) mit noch höherer Belastung aufweist.

Weitere wichtige Größen, um die Feinstaubmenge genau zu charakterisieren, sind neben der chemischen Analyse eine größenselektierte Betrachtung, Kenntnisse über die Partikelanzahl und eine Einzelpartikelanalyse. Die Zusammensetzung der einzelnen Partikel und deren Form können sehr unterschiedlich sein.

Die stoffliche Zusammensetzung des Feinstaubes spielt neben der Quellenanalyse ebenfalls eine Rolle für die Betrachtung im medizinischen Kontext. Die Größe der Partikel hat einen entscheidenden Einfluss auf die menschliche Gesundheit (KRdL 2006, JORDI 2005, FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000). Daher werden in letzter Zeit verstärkt neben PM_{10} besonders kleine Partikel mit Durchmesser von $2,5 \mu\text{m}$ ($\text{PM}_{2,5}$) oder $1 \mu\text{m}$ (PM_1) untersucht. Abbildung 2 zeigt, dass je kleiner ein Partikel ist, desto tiefer kann er in den menschlichen

Körper eindringen. Die gesundheitsbedenkliche Wirkung nimmt mit der Eindringtiefe zu, somit sind besonders kleine Partikel für den menschlichen Organismus schädlich.

Die WHO gibt keinen Schwellenwert für die Feinstaubkonzentration in der Luft an, unterhalb dem kein schädlicher Effekt auftritt. Stattdessen bietet die WHO eine Risikoabschätzung an (WHO 2000). Dies ist ein deutlicher Unterschied zu anderen Luftschadstoffen wie z. B. Schwefeldioxid oder Blei. Bei Feinstaub besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Exposition und gesundheitlicher Wirkung (KRdL 2006). Die europäischen Grenzwerte stellen somit eine Art machbaren Kompromiss dar und keinesfalls den Grenzwerte für eine nicht schädliche PM_{10} -Konzentration.

Neben einer durchschnittlich verkürzten Lebenserwartung können Partikel zu Bronchial-Krankheiten sowie zu Herz-Kreislauf-Erkrankungen führen (JORDI 2005). Besonders gefährdet sind sensible oder bereits vorbelastete Menschen. Sowohl Langzeiteffekte als auch Kurzzeiteffekte der Exposition mit Partikeln sind bekannt (KRdL 2006). Sie betreffen Morbidität (z. B. Atemwegssymptome, Lungenwachstum, Immunsystem) und Mortalität (z. B. Lungenkrebs, Kindersterblichkeit und tödliche Herz-Lungen-Erkrankungen) (KRdL 2006). Aktuell beschäftigen sich zahlreiche medizinische Kurz- und Langzeitstudien mit den verschiedenen gesundheitlichen Auswirkungen des Feinstaubes.

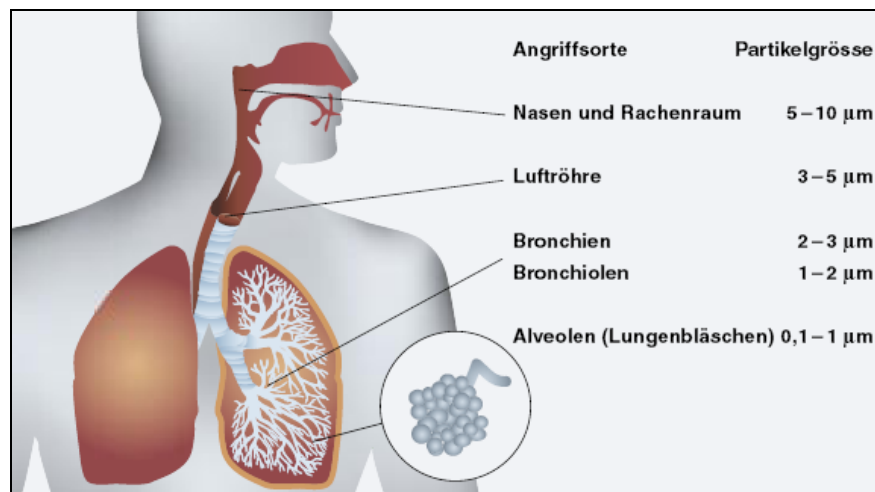


Abbildung 2: Angriffsstelle des Feinstaubes in den Atemwegen (JORDI 2005).

Die Abscheidung oder Sammlung von Partikeln (PM_{10}) erfolgt sowohl im menschlichen Atemsystem als auch in technischen Geräten zur Feinstaubsammlung im Wesentlichen durch die Trägheitsabscheidung. Partikel werden abhängig von ihrer Größe aus der Atmosphäre entfernt, Aitken-Teilchen durch Wachsen mit anderen Partikeln (Koagulation), im Akkumulationsbereich durch Auswaschungsprozesse (rainout und washout) und grobe Partikel durch Sedimentation (vgl. Abbildung 1).

Die Trägheitsabscheidung beruht auf dem Impaktionsprinzip, es werden dabei drei Mechanismen der An-/Ablagerung unterschieden. In Abbildung 3 ist eine Faser dargestellt, an der die Luft mit kugelförmigen Teilchen oder Partikeln von links nach rechts vorbeiströmt. Die Linien stellen die Bahnen (Trajektorien) der Teilchen in der Luft dar. Die mittlere freie Weglänge charakterisiert die kurzzeitige Bewegung eines Teilchens aufgrund der Brownschen Molekularbewegung (SCHEIBEL 2004). Die daraus resultierende Bewegung wird als Diffusion bezeichnet, das Auftreffen auf die Faser erfolgt rein zufällig.

Als Interzeption (direct interception) wird das Berühren und Haften bleiben eines Teilchens bezeichnet, das den Trajektorien folgt, aber aufgrund seines Durchmessers an das Hindernis stößt (BARON & WILLEKE 2001). Kann ein Partikel, bedingt durch seine Masse und Durchmesser, nicht vollständig dem Strömungsfeld der Luft folgen, kollidiert es mit dem Hindernis (Abbildung 3). Dieser Vorgang wird als Impaktion (inertial impaction) bezeichnet und ist der entscheidende Mechanismus zum Filtern und Sammeln von Partikeln in der Luft. Die Diffusion und Interzeption spielen im Gegensatz zur Impaktion besonders bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten (wie z. B. in Impaktoren) eine untergeordnete Rolle und können vernachlässigt werden (COLBECK 1998).

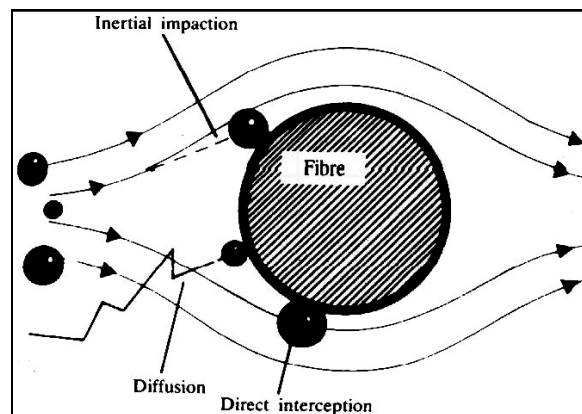


Abbildung 3: Mechanismen zur Sammlung von Partikeln (DICKENSON 1997).

2 Standorte und räumliche Einordnung

Die durchgeführten Untersuchungen fanden im Gebiet der kreisfreien Stadt Münster (Westfalen) statt. Münster liegt im Nordwesten der Bundesrepublik Deutschland und im Norden des Bundeslandes Nordrhein-Westfalen. Münster bildet mit knapp 271 000 Einwohnern und einer Gesamtfläche von 30 279 ha die Metropole des Münsterlandes (STADT MÜNSTER 2006). Mehr als die Hälfte dieser Fläche sind Agrar- und Grünflächen, hinzukommen 4 582 ha Wald und 847 ha Wasserflächen. Das Münsterland liegt in der Westfälischen Bucht und erstreckt sich vom Teutoburger Wald im Nordosten bis zum Sauerland und Bergischen Land im Süden und grenzt im Westen an die Niederlande an. Es ist durch intensive Landwirtschaft mit überwiegend Viehzucht- und Viehmastbetrieben geprägt. Obwohl Münster als Fahrradstadt gilt, gibt es viele Pendler die täglich aus oder in das weitläufige Münsterland fahren.

Die Region liegt in den gemäßigten Breiten und wird überwiegend durch Westwindwetterlagen geprägt. Der mittlere Jahresniederschlag in Münster beträgt 758 mm, der Jahresmittelwert der Temperatur liegt bei 9,4 °C (DEUTSCHER WETTERDIENST 2006a). Auf das Wetter im Untersuchungszeitraum wird im Kapitel 5.4.1 näher eingegangen.

Im Wesentlichen sind zwei zentrale Messstandorte für die Feinstaubmessungen ausgewählt worden, sowie ein Zusatzstandort, an dem u. a. die meteorologischen Daten erfasst wurden. Abbildung 4 gibt einen Überblick über die drei Standorte in Münster. Diese werden im Folgenden als Messstationen näher vorgestellt.

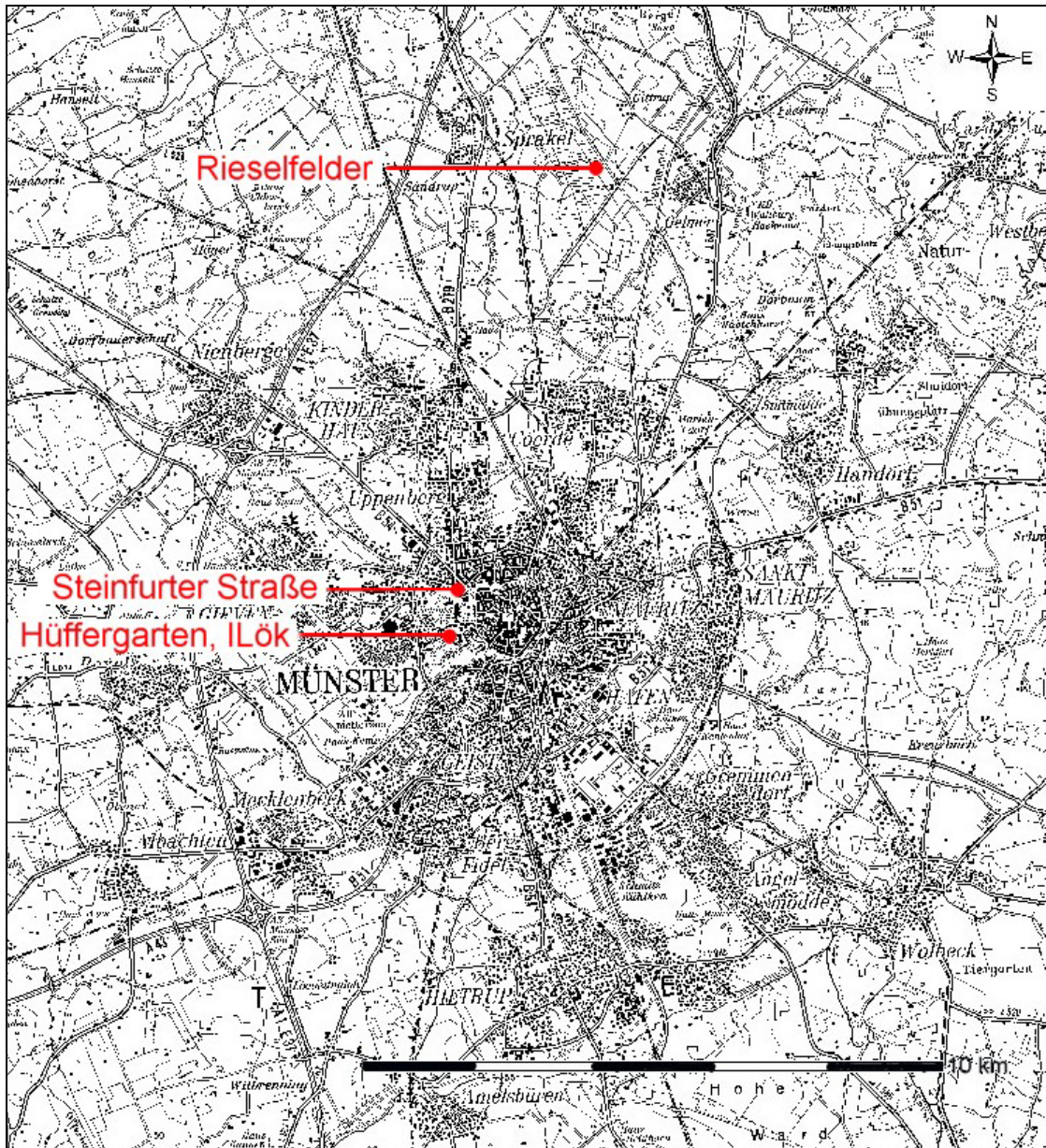


Abbildung 4: Ausschnitt der TK100 für Münster mit den Standorten Rieselfelder, Steinfurter Straße und Institut für Landschaftsökologie (Station Hüffergarten) (Kartengrundlage: GEOSERVER NRW 2006)

2.1 Standort Rieselfelder Münster

Die Rieselfelder Münster erstrecken sich ca. 6 km nördlich des Stadtzentrums auf einer Größe von knapp 450 ha (RIESELFELDER 2006). Das heutige Natur- und Naherholungsgebiet entwickelte sich durch jahrzehntelange Berieselung mit Abwässern der Stadt Münster bis Mitte der 70er Jahre. Die dadurch entstandene Bedeutung für die Avifauna als Brut- und Rastgebiet war Anlass für die Bemühungen um erste Schutzausweisungen. Das heutige NATURA 2000-Gebiet ist nach der RAMSAR-Konvention und der Europäischen Vogelschutzrichtlinie anerkannt. Es steht daher in weiten Teilen unter Natur- oder Landschaftsschutz. Die Betreuung und Pflege der Rieselfelder Münster sowie die

Bewässerung mit geklärtem Abwasser erfolgt durch die Biologische Station Rieselfelder (RIESELFELDER 2006).

Das überwiegend offene Gebiet ist durch viele kleinere Parzellen mit unterschiedlicher Binsen-, Schilf- und Feuchtwiesenvegetation sowie durch offene Wasser- und Schlammbereiche geprägt. Dies lässt sich im Luftbild (Abbildung 5) erkennen.

Abbildung 5 zeigt die Lage des Messstandortes ca. 300 m nördlich der Biologischen Station und der Straße Coermühle. Die genaue Position ist geographische Breite $52^{\circ} 01' 49.5''$ N und geographische Länge $7^{\circ} 39' 10.1''$ E. Die Station befindet sich auf einer Höhe von 47 m ü. NN. Die von Ende November 2005 bis Mitte März 2006 aufgebaute Messstation (Abbildung 6) wurde über die Biologische Station mit Strom versorgt. Der Standort liegt im Naturschutzgebiet in einer brachgefallenen trockenen Fläche (Rieselfeld Flächenbezeichnung: Wiese 23). Die Fläche wird, wie für die Rieselfelder typisch, von einem kleinen Damm und Graben zu der nächsten Fläche, einer extensiv genutzten Wiese, abgegrenzt. Die ca. 1 m hohe Vegetationsdecke bestand bis zum Schneebruch, danach wurde das liegende schilfartige Gras auf der Fläche belassen.

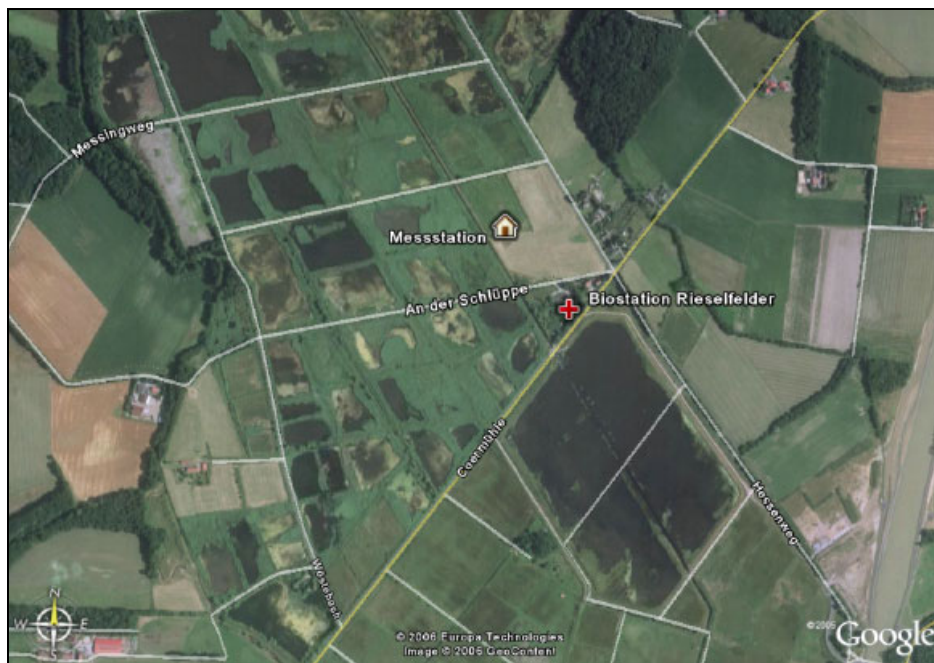


Abbildung 5: Luftbild von den Rieselfeldern mit Messstandort und Biologischer Station (GOOGLE EARTH 2006).

Als Messstation (Abbildung 6) diente ein Gartenhäuschen. Der Standort war mit einem Messgerät zur Feinstaubsammlung, dem Berner-Impaktor (3.1.1) sowie meteorologischen Messgeräten zur Niederschlags-, Luftfeuchte- und Lufttemperaturmessung ausgestattet. Der Temperatur- und Feuchtefühler war nach West-Südwest ausgerichtet.



Abbildung 6: Messstation Rieselfelder mit Gartenhaus und Niederschlagssammler.

Dieser Standort repräsentiert aufgrund seiner Lage das städtische Umland. Die einspurige Straße Coermühle (Abbildung 5) ist trotz ihrer Abgelegenheit zu den Berufsverkehrszeiten und an sonnigen Wochenenden stark frequentiert. Bei den anderen Wegen im Gebiet handelt es sich um wenig befahrene oder gesperrte Feldwege. Es gibt nur vereinzelte Häuser und kleinere Hofschafte im Gebiet. Neben den erwähnten Straßen sind die in ca. 2 km Entfernung gelegene Mülldeponie sowie besondere Aktivitäten an der Biologischen Station (Bauarbeiten, Maschineneinsatz) die einzigen möglichen Quellen, die den Messstandort beeinflussen oder stören könnten. Die gemessenen Feinstaubwerte spiegeln somit die Hintergrundbelastung von Münster wider. Die Bezeichnung als regionale Hintergrundstation ist wegen der relativen Nähe zu Münster nicht geeignet. Deshalb wird der Standort im Folgenden als Umland bzw. städtisches Umland bezeichnet.

2.2 Standort Steinfurter Straße

Der zweite Standort befindet sich im Stadtzentrum von Münster an einer der Hauptverkehrsstraßen (Abbildung 4). Der Container in der Steinfurter Straße (Abbildung 7) steht auf dem Parkstreifen der mehrspurigen Straße, an der Kreuzung zur Grevener Straße an der Bushaltestelle „Steinfurter Straße A“. Die geographische Lage ist $51^{\circ} 58' 07,4''$ N und $7^{\circ} 36' 47,5''$ E. Der Straßenschluchtcharakter der Bundesstraße B 54 / B 219 mit mehrstöckiger Bebauung wird durch die Breite der Fahrspuren und durch die Abzweigungen zur Grevener Straße aufgehoben.



Abbildung 7: Blauer Messcontainer in der Steinfurter Straße, im Hintergrund ist der beige Container des LUA NRW zu erkennen.

In unmittelbarer Nähe befindet sich ein weiterer, etwas kleinerer Container (Abbildung 7) des Landesumweltamtes in dem seit dem 06.01.2005 Feinstaub sowie weitere Parameter gemessen werden (LUA NRW 2006b).

Im Untersuchungscontainer des Instituts für Landschaftsökologie befinden sich neben dem Berner-Impaktor (3.1.1) weitere Geräte zur Feinstaub- und Lufthygienemessung. Er wird als Hauptstandort für eine Doktorarbeit zur Quellenanalyse des Feinstaubes in Münster genutzt. Der Messcontainer wurde am 22.12.2005 aufgebaut und stellt im Gegensatz zur Station Rieselfeld eine städtische Straßenmessstation dar. Meteorologische Parameter werden hier nicht erfasst, sondern an der nahe gelegenen meteorologischen Station Hüffergarten.

2.3 Standort Hüffergarten, Institut für Landschaftsökologie

Die Station Hüffergarten auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster in der Robert-Koch-Straße 26 (vgl. Abbildung 4) ist eine dauerhaft eingerichtete Wetterstation der AG Klimatologie (AG KLIMATOLOGIE 2006). Die Koordinaten setzen sich aus der geographischen Breite $51^{\circ} 57' 37''$ N und der geographischen Länge $7^{\circ} 36' 27''$ E zusammen. Die Station befindet sich auf dem 17 m hohen Gebäude mit begrüntem Dach auf einer Höhe von 78 m ü. NN (AG KLIMATOLOGIE 2006). Die Wetterstation Hüffergarten liegt 1 km südwestlich des Messcontainers an der Steinfurter Straße. Es werden kontinuierlich die Parameter für die Lufttemperatur, Luftfeuchte, Windrichtung und Windgeschwindigkeit, den Luftdruck, die kurzweilige Einstrahlung, den Niederschlag sowie die Sichtweite und den Wettercode gemessen.

Auf dem Dach des Instituts fanden die ersten Tests und Vergleichsmessungen mit den Berner-Impaktoren zur Feinstaubsammlung statt (vgl. Kapitel 3.1.1 und 4.1.2). Die Station dient in erster Linie den Wetteraufzeichnungen für die städtische Station.



Abbildung 8: Station „Hüffergarten“ auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie (AG KLIMATOLOGIE 2006).

3 Material und Methoden

In diesem Abschnitt werden die eingesetzten Geräte sowie die angewandten Methoden zur Analyse und Datenverarbeitung vorgestellt. Die Darstellung erfolgt chronologisch beginnend mit den Messgeräten, die im Gelände eingesetzt wurden, mit dem Impaktor ist als zentrales Messgerät. Im Anschluss wird die Vorbereitung und die Analyse der Proben im Labor an den verschiedenen Geräten vorgestellt. Schließlich wird auf die Aufbereitung der Daten und die dazu angewandten statistischen Methoden eingegangen.

3.1 Feldmessgeräte

Im Kapitel 2 wurde die Ausstattung der Messstationen mit meteorologischen Geräten und Geräten zur Feinstaubuntersuchung beschrieben. Die für diese Arbeit genutzten Geräte werden nun genauer vorgestellt.

3.1.1 Berner-Impaktoren

Bei dem Berner-Impaktor handelt es sich um einen Impaktor mit Prallplatten, auch Niederdruck-Kaskaden-Impaktor genannt. Mit dem Impaktor werden feine Partikel mit einem Durchmesser kleiner 10 µm aus der Luft gesammelt. Die Abscheidung erfolgt aufgrund von Trägheitsabscheidung (Impaktionsprinzip vgl. 1.2).

Die Bewegung eines Partikels in Luft lässt sich mit Hilfe des Stoke'schen Gesetztes relativ exakt berechnen. Die Stokes Zahl ist als Verhältnis von Stoppdistanz zur Gerätedimension (BARON & WILLEKE 2001) wie folgt definiert:

$$(Gleichung 1) \quad Stk = \frac{\rho_p \times C_c \times D_p^2 \times U}{9 \times \eta \times D_d}$$

ρ_p = Dichte des Partikels

C_c = Cunningham slip correction

D_p = Durchmesser des Partikels

D_d = Durchmesser des Düse

η = Viskosität der Luft

Q = Durchfluss durch die Düse

U = durchschnittliche Geschwindigkeit am Düsenausgang berechnet als:

$$(Gleichung 2) \quad U = \frac{Q}{\pi \times \left(\frac{D_d}{2}\right)^2}$$

Mit Hilfe der Stokes Zahl lässt sich das Verhalten von unterschiedlich großen Partikeln in einem Luftstrom bei bestimmten Voraussetzungen charakterisieren (Gleichung 1). Die

dargestellten Rechnungen ermöglichen die Konstruktion von Impaktoren, die gezielt Partikel bestimmter Größe und Masse, genauer gesagt Trägheit, sammeln. Die Partikel fließen mit einer hohen Geschwindigkeit durch eine enge Düse, die sich mittig in geringem Abstand über einer Platte befindet. Nur Partikel, deren Trägheit nicht zu groß ist, können der Luftströmung folgen und sich um die Platte herum bewegen, die übrigen Partikel impaktieren auf der Platte. Die Funktionsweise eines Impaktors ist in Abbildung 9 dargestellt. Mehrere Impaktorstufen mit unterschiedlichem Abscheidevermögen sind hintereinander geschaltet, so dass sich eine Kaskade ergibt (BARON & WILLEKE 2001). Folglich wird von einem Kaskadenimpaktor oder mehrstufigem Impaktor gesprochen, der Partikel nach Größenstufen sortiert sammelt.

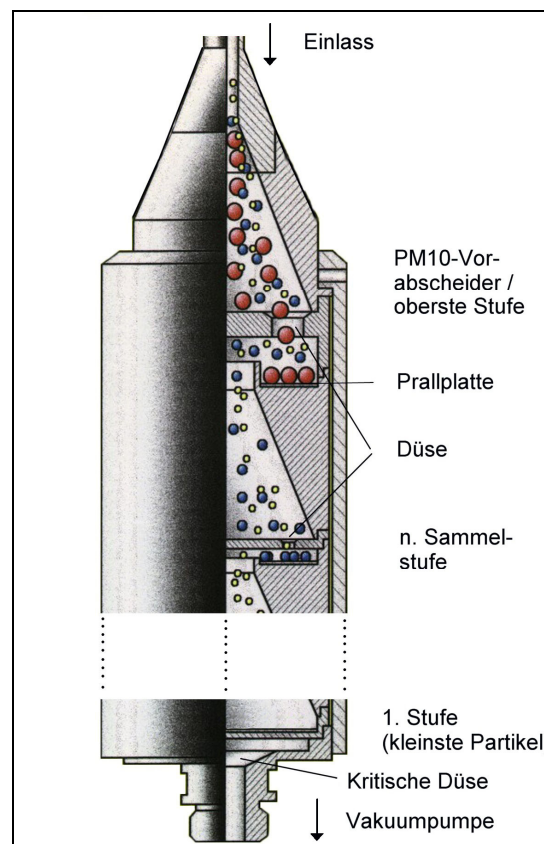


Abbildung 9: Schematischer Aufbau eines mehrstufigen Kaskaden-Impaktors (verändert nach KRdL 2004).

Die angesaugte Luft strömt von oben in den Impaktor hinein (Abbildung 9). Die Kritische Düse am unteren Ende des Impaktors sorgt für einen gleichmäßigen Volumenfluss, wenn ein ausreichender Unterdruck anliegt. Die farbigen Teilchen stellen die Sammlung der Partikel mit unterschiedlichem Durchmesser auf den verschiedenen Ebenen dar. Der ersten Sammelstufe geht in der Regel eine Stufe als Vorabscheider voraus, die Partikel mit einem Durchmesser größer als $10\ \mu\text{m}$ abscheidet. Es wird sowohl von 6-stufigen Impaktoren als auch 5-stufigen Impaktoren gesprochen. Bei den verwendeten Impaktoren handelt es sich um Impaktoren mit fünf Sammelstufen und einer PM10-Vorabscheiderstufe. Im Folgenden werden die beiden eingesetzten Impaktoren immer als 5-stufige Impaktoren bezeichnet.

Die Effektivität eines Impaktors ergibt sich aus dem Verhältnis der impaktierten Partikel zu den zufällig auf der Prallplatte gelandeten Partikeln. Die Trennschärfe TS eines Impaktors wird mit Hilfe der Partikeldurchmesser D_p für die 10 %, 50 % bzw. 90 % ige Abscheidewahrscheinlichkeit definiert.

$$(Gleichung 3) \quad TS = \frac{D_{p50}}{D_{p90} - D_{p10}}$$

Bei Impaktoren mit Prallplatten kann die Trennschärfe Werte größer 10 erreichen (STEINWEG 2006).

Grundsätzlich können eine Massenbestimmung der gesammelten Partikel sowie eine analytische Bestimmung der Partikelbestandteile erfolgen. Auf den Prallplatten der Sammelstufen wird ein Filter platziert, um die Partikel dieser Größenfraktion zu sammeln. Die Wägung ist bei den sehr geringen Massen aufwändig. Das Filtermaterial muss den Anforderungen der folgenden chemischen Analyse entsprechen. Es wurden Tedlarfilter und Quarzfaserfilter in den Untersuchungen verwendet (vgl. 3.2.1).

Die beiden eingesetzten 5-stufigen Berner-Impaktoren (Abbildung 10) sind Niederdruck-Impaktoren des Typs LPI80 / 0,05. Es werden Partikel der Feinstaubfraktion (Durchmesser < 10 μm) bis zu einem mittleren Durchmesser von 50 nm gesammelt.



Abbildung 10: 5-stufige Berner-Impaktoren (links BT-Impaktor, rechts MS-Impaktor).

Zur Unterscheidung der beiden Impaktoren werden die Bezeichnungen „MS-Impaktor“ und „BT-Impaktor“ eingeführt. Der Berner-Impaktor „MS“ der AG Klimatologie wurde in der Steinfurter Straße eingesetzt (2.2), während der von der Universität Bayreuth ausgeliehene BT-Impaktor in den Rieselfeldern zum Einsatz kam (2.1). Die Trenngrenzen für den MS-Impaktor liegen bei 0,053 μm , 0,19 μm , 0,42 μm , 1,2 μm , 3,5 μm und 10,0 μm . Der BT-

Impaktor besitzt die Trenngrenzen 0,063 μm , 0,15 μm , 0,37 μm , 1,0 μm , 3,5 μm und 10,0 μm .

Die Berner-Impaktoren sind nicht exakt baugleich, da sie aus unterschiedlichen Serien des gleichen Herstellers stammen. In Abbildung 11 und Abbildung 12 sind die einzelnen Stufen der Impaktoren fotografiert, Anzahl und Größe der Düsen sind unterschiedlich. Dies macht einen genauen Vergleich der Geräte erforderlich (Kapitel 4.1). Einige Unterschiede lassen sich durch Berücksichtigung bei der Umrechnung der Konzentrationen angleichen. Eine Untersuchung der beiden Geräte durch Prof. Berner ergab die in Kapitel 4.1.1 Tabelle 2 aufgeführten Werte und Kenndaten für die beiden Impaktoren. Zusätzlich wurde ein direkter Gerätevergleich mit Parallelmessungen durchgeführt. Die Ergebnisse werden in Kapitel 4.1.2 ausführlich dargestellt und diskutiert.



Abbildung 11: Impaktorstufen BT-Impaktor.



Abbildung 12: Impaktorstufen MS-Impaktor.

Für den Betrieb der Niederdruck-Berner-Impaktoren wird jeweils eine Vakuumpumpe benötigt. Die beiden Impaktoren mit den Vakuumpumpen und Zubehör (Schlauchmaterial, Klemmen) wurden immer in der gleichen Kombination betrieben. Ein 30 cm langes Glasrohr wurde als Ansaugrohr für den Impaktor verwendet.

Der MS-Impaktor wird mit einer Drehschieber-Vakuumpumpe des Typs VCE/A 60 (09) der Firma Rietschle Thomas GmbH betrieben. Die Drehstrompumpe besitzt eine Saugleistung von 60 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$ und erzeugt ein Endvakuum 0,5 mbar.

Bei der Pumpe für den BT-Impaktor handelt es sich um eine trockenlaufende, luftgekühlte Drehschieber-Vakuumpumpe des Typs VT 4.40 der Firma Becker GmbH. Diese mit Lichtstrom betriebene Pumpe hat eine Saugleistung von 40 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$ und einen Endvakuumdruck von 150 mbar.

3.1.2 Meteorologische Messgeräte in den Rieselfeldern

Kapazitiver Feuchte- und Temperatursensor

Die Luftfeuchte und Lufttemperatur wurde mit dem Kombisensor HMP45A der Firma Vaisala (Abbildung 13) ermittelt. Bei einem kapazitiven Feuchtefühler ändert ein Kondensator die Kapazität in Abhängigkeit von der Umgebungsfeuchte. Das Gerät hat einen Messbereich von 0,8 bis 100 % relative Feuchte (Genauigkeit $\pm 2-3$ %) und erfasst einen Temperaturbereich zwischen $-39,2$ °C und $+60$ °C mit einer Genauigkeit von $\pm 0,2$ °C. Der Sensor wurde mit einer Young-Wetterhütte geschützt und in einer Höhe von 2 m über Grund montiert.



Abbildung 13: Feuchte- und Temperatursensor an der Messhütte.

Niederschlagsmesser

Zur Messung des Niederschlages wurde eine Niederschlagswippe (Young 52202H) mit der Auflösung 0,1 mm verwendet (Abbildung 14). Der Trichtereinlass des Niederschlagsmessers befindet sich in 1 m Höhe über dem Boden. Um von der Messhütte unbeeinflusste Ergebnisse zu bekommen wurde das Gerät in ca. 5 m Entfernung aufgestellt. Die Niederschlagswippe war mit keiner Heizung ausgestattet, so dass sie einfrieren konnte. Somit besteht die Möglichkeit, dass bei Schnee keine oder weniger Niederschläge registriert werden.



Abbildung 14: Young Niederschlagswippe in den Rieselfeldern.

Die Messdaten wurden in einem Daten-Logger des Typs ZENO-3200 gespeichert. Die Programmierung des ZENO-Daten-Loggers erfolgte vom PC aus mit dem Programm TeraTerm Pro 2.3. Die Daten wurden wöchentlich ausgelesen.

3.1.3 Messgeräte der Wetterstation Hüffergarten

Die meteorologischen Messgeräte der Station Hüffergarten auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie sind auf der Homepage der AG Klimatologie genauer beschrieben (AG KLIMATOLOGIE 2006). Da die Geräte für die Untersuchungen dieser Arbeit nur eine untergeordnete Rolle spielen wird auf eine Beschreibung der Eigenschaften und Funktionsweise verzichtet. Es sollen jedoch die Geräte zu den in Abschnitt 2.3 aufgezählten gemessenen Parametern erwähnt werden.

Die Lufttemperatur und die relative Luftfeuchte werden mit dem Kombi-Sensor Rotronic Hydroclip, bestehend aus PT100 und kapazitivem Feuchtesensor gemessen. Der Sensor ist in einer Höhe von 2 m über dem Dach in einer Young-Wetterhütte am Messturm angebracht (Abbildung 8). Der Niederschlag wird wie in den Rieselfeldern mit einer Wippe des Typs Young 52202H (siehe Kapitel 3.1.2) in einer Höhe von 1 m über dem Institutsdach gemessen.

Die Windrichtung und die Windgeschwindigkeit werden mit einer Friedrichs Windfahne des Typs 4123 bzw. mit einem Schalenstern-Anemometer (Friedrichs Typ 4035) in einer Höhe von etwa 4,5 m über dem Dach erfasst. Zur Luftdruckmessung wird ein konventioneller Druckgeber des Typs Vaisala PTB 100A eingesetzt. Die kurzwellige Einstrahlung wird mit einem Pyranometer von Kipp & Zonen des Typs CM3 registriert. Die Automatische Wetterstation "Present Weather Detector" (PWD 11) von Vaisala erfasst die Sichtweite und gibt verschlüsselt über den Wettercode weitere Daten z. B. den Typ und die Intensität des Niederschlags an (AG KLIMATOLOGIE 2006).

3.2 Probenvorbereitung und Laborgeräte zur Analyse

Die Laborarbeit erstreckt sich von der Vorbereitung der Filter für die Impaktoren bis zu den verschiedenen Analysemethoden und -geräten für die jeweils nachzuweisenden Stoffe. Alle Arbeiten wurden mit Unterstützung der Technischen Angestellten im Labor des Instituts für Landschaftsökologie der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster durchgeführt. Die Probenvorbereitung und Probenaufbereitung sowie die Analyse der Bestandteile an den verschiedenen Geräten wird im Folgenden vorgestellt.

3.2.1 Vorbereitung der Filter

Zwei verschiedene Filtertypen wurden in den Impaktoren eingesetzt (vgl. 3.1.1), Tedlarfilter für die Analysen der Ionen am Aquatec (3.2.2), Ionenchromatographen (3.2.3) und Absorptionsspektrometer (3.2.4) sowie Quarzfaserfilter für die Kohlenstoffanalyse am OCEC-Analyser (3.2.5). Das Quarzfaserfilterstück überdeckt ca. ein Viertel des Tedlarfilters

(Abbildung 15). Die analysierten Punkte werden auf die Gesamtpunktezahl der jeweiligen Stufe hochgerechnet (vgl. 3.3.1).

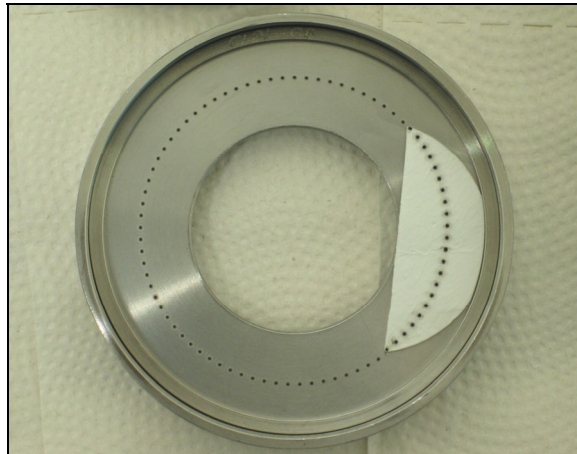


Abbildung 15: Impaktorprallplatte mit Tedlar- und Quarzfaserfilter nach der Probennahme.

Tedlar ist der Handelsname der Firma DuPont für Polyvinylfluorid. Es handelt sich um ein fluorhaltiges Polymer (WIKIPEDIA 2006). Die Tedlarfilter werden aus einer großen Folie einzeln ausgestanzt (Abbildung 16). Zur Säuberung werden sie mindestens einen halben Tag in einer Wanne mit bidestilliertem Wasser eingelegt und 30 min in ein Ultraschallbad mit frischem bidestilliertem Wasser gegeben. Anschließend werden die Filter abgespült und auf einen Glasstab zum Trocknen aufgehängt (Abbildung 17) und in Kunststoff-Petrischalen aufbewahrt. Es wurden alternative Methoden zur Filtervorbereitung ausprobiert z. B. Trocknung auf einem Gitter oder Spülen ohne Ultraschallbad. Nach chemischer Analyse der Filter hat sich die beschriebene Methode als zuverlässig und praktikabel herausgestellt.

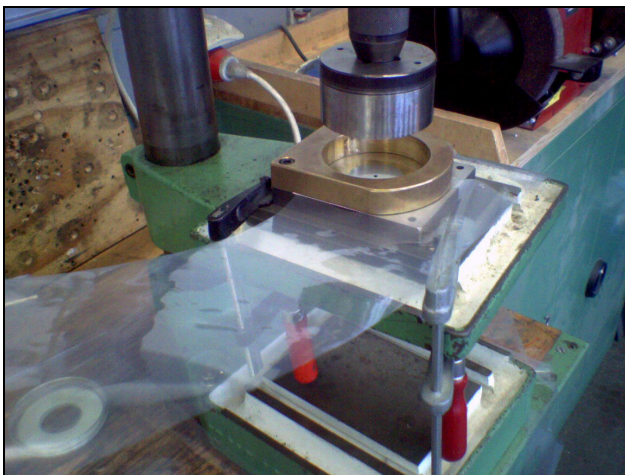


Abbildung 16: Ausstanzen der Tedlarfilter aus Folienbahnen in der Werkstatt des Instituts für Landschaftsökologie.

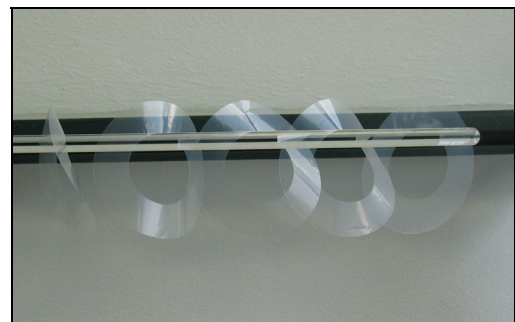


Abbildung 17: Gespülte Tedlar-Filterringe beim Trocknen und in Petrischale.

Die runden Quarzfaserfilter der Firma Whatman des Typs QF20 mit einem Durchmesser von 47 mm werden passend für die Prallplatten des Berner-Impaktors zugeschnitten. Die Filterstücke werden in Tiegeln im Muffelofen für 4 Stunden bei 700 °C geglüht, so dass alle

organischen Bestandteile verglühen (Abbildung 18). Zum Abkühlen werden die noch ca. 200 °C heißen Quarzfilter in einen wassergesättigten Exsikkator gegeben. Auf diese Weise soll verhindert werden, dass sich während der Abkühlung bereits Kohlenstoffverbindungen aus der Umgebungsluft auf den Filtern anlagern. Die Aufbewahrung der abgekühlten geglühten Quarzfilter bis zur Messung erfolgt in einer Kunststoff-Petrischale.

Nach der Probennahme im Impaktor wird jedes Quarzfilterstück in eine Petrischalen gegeben. Die Petrischalen werden bis zur Analyse luftdicht in einen Plastikbeutel eingepackt und in der Tiefkühltruhe gelagert. Dieser Umgang mit den Quarzfiltern entspricht den Empfehlung des OCEC-Analyser Herstellers Sunlab. Leider war dies nicht von Beginn an klar, so dass die Lagerung der Kunststoff-Petrischalen einige Zeit ohne feste Verpackung im Kühlschrank stattgefunden hat. Die Analyse der Quarzfaser-Filter wird im Abschnitt 3.2.5 näher beschrieben.



Abbildung 18: Geschnittene Quarzfilter in Keramiktiegeln im Muffelofen.

Die Tedlar-Filter werden nach Einsatz im Impaktor einzeln in 15 ml Kunststoff-Enghalsflaschen der Firma Nalgene aufbewahrt. Die Lagerung bis zur Analyse findet im Kühlschrank statt. In den Enghalsflaschen werden die Tedlar-Filter in Chargen von zwei bis vier Tagessätzen zur Analyse der Ionen vorbereitet. Dazu werden jeweils 10 ml Reinstwasser in die Probefläschchen gefüllt und anschließend zwei Stunden lang auf einem Rotationsschüttler durchmischt. Die Ionen vom Tedlar-Filter lösen sich so möglichst vollständig in Wasser. Die 10 ml Flüssigkeit werden für die drei im Folgenden beschriebenen Analysen der Kationen und Anionen benötigt.

3.2.2 Ammonium Analyse am Aquatec

Die Bestimmung des Ammonium-Gehalts (NH_4^+) erfolgt durch Fließinjektionsanalyse am Aquatec Analyser 5400 (Abbildung 19). Die Probe wird mittels automatischer Dosierung im Fließsystem durch Reagenzlösungen chemisch modifiziert. Das Reaktionsprodukt wird in einer Durchflussküvette fotometrisch gemessen (AQUATEC 1990). Nach Eichung zu Beginn

der Messung ermittelt das Gerät entsprechend der Absorption die Konzentration. Die Bestimmungsgrenze liegt bei $0,1 \text{ mg l}^{-1}$.

Die Messung der gesamten Probe erfolgt in neuen 10 ml Kunststoff-Reagenzgläsern. Vor der Benutzung werden alle Kunststoff-Reagenzgläser einmal mit bidestilliertem Wasser gespült und getrocknet. Da die restliche Probenflüssigkeit für weitere Analysen benötigt wird, müssen mögliche Beeinflussungen der Probe minimiert werden.



Abbildung 19: Aquatec Analyser 5400 mit Autosampler

3.2.3 Ionenchromatographische Analyse der Anionen

Ein Teil der Probenflüssigkeit wird zur Analyse der Anionen Fluorid (F^-), Chlorid (Cl^-), Nitrat (NO_3^-), Phosphat (PO_4^{3-}) und Sulfat (SO_4^{2-}) am Ionenchromatographen benötigt.

Im Ionenchromatographen werden die Ionen aufgetrennt und durch Leitfähigkeitsmessung erfasst. Das Prinzip ist in Abbildung 20 dargestellt. Das Fließmittel (Eluent), auch Träger-substanz genannt, strömt kontinuierlich durch das System. Am Injektionsventil wird die Probe aufgegeben und eine bestimmte Menge, abhängig von der Länge der Probenschleife, fließt durch die Trennsäule (separator column). Eine Vorsäule (guard column) schützt die eigentliche Trennsäule vor Verunreinigungen. Die Säulen sind mit Harzen gefüllt. Ein Ion benötigt abhängig von der Trennsäule und dem Eluentenfluss eine charakteristische Zeit (Retentionszeit) um die Säule zu passieren. Der Suppressor hemmt die Leitfähigkeit des Eluenten, verbessert spezifisch die Leitfähigkeit des zu untersuchenden Ions und erhöht dadurch die Nachweisempfindlichkeit. Der Suppressor wird durch den Regenerent aufgefrischt. Die Leitfähigkeitsmessung erfolgt im Detektor (conductivity cell) und wird im Computer registriert und weiterverarbeitet.

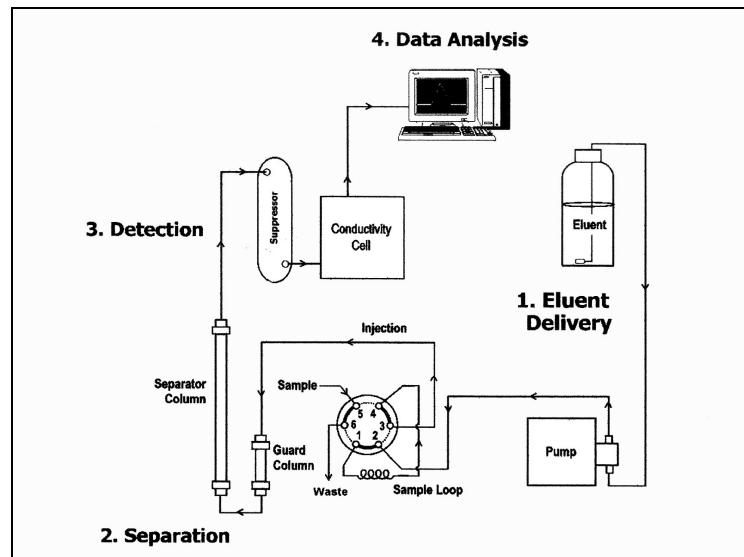


Abbildung 20: Schematischer Aufbau eines Ionenchromatographen (Quelle: Dionex 2005).

Die kontinuierlich gemessene Leitfähigkeit ergibt eine Kurve mit mehreren Pieks, die anhand der Retentionszeit einem bestimmten Ion zugeordnet werden (Abbildung 21). Nach einer Kalibrierung mit Lösungen bekannter Konzentration kann die Fläche unter der Kurve mittels Integration errechnet und als Konzentration des jeweiligen Ions interpretiert werden.

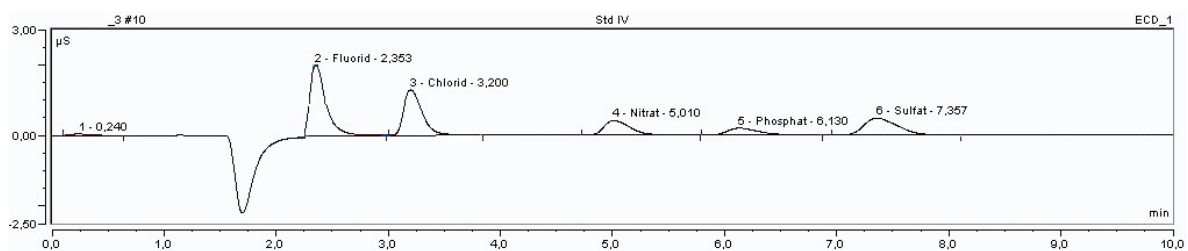


Abbildung 21: Chromatogramm eines Standards im ICS-90.

Bei dem verwendeten Ionenchromatographen handelt es sich um das Model ICS-90 (Ion Chromatography System) der Firma Dionex (Abbildung 22). Das Gerät wird mit Vorsäule, einer 25 µl Probenschleife und der empfindlichen Säule IonPac® AS14A-5 µm (3x150 mm) betrieben, die ausschließlich für die Trennung von Anionen geeignet ist. Der Eluent ist eine Zwei-Komponentenmischung, die aus dem Dionex-AS14A-Eluentkonzentrat hergestellt wird. Der Eluent hat die Endkonzentration 0,08 mmol l⁻¹ Natriumcarbonat und 0,01 mmol l⁻¹ Natriumhydrogencarbonat, die resultierende Leitfähigkeit beträgt ca. 30 µS. Der Regenerent hat eine Konzentration von 37,5 mmol l⁻¹ Schwefelsäure. Der ICS-90 wird mit dem automatischen Probengeber Dionex AS40 betrieben (Abbildung 22 rechts). Die zugehörige Dionex-Software, die für die Steuerung und Auswertung der Messung benötigt wird, ist das Programm Chromeleon.

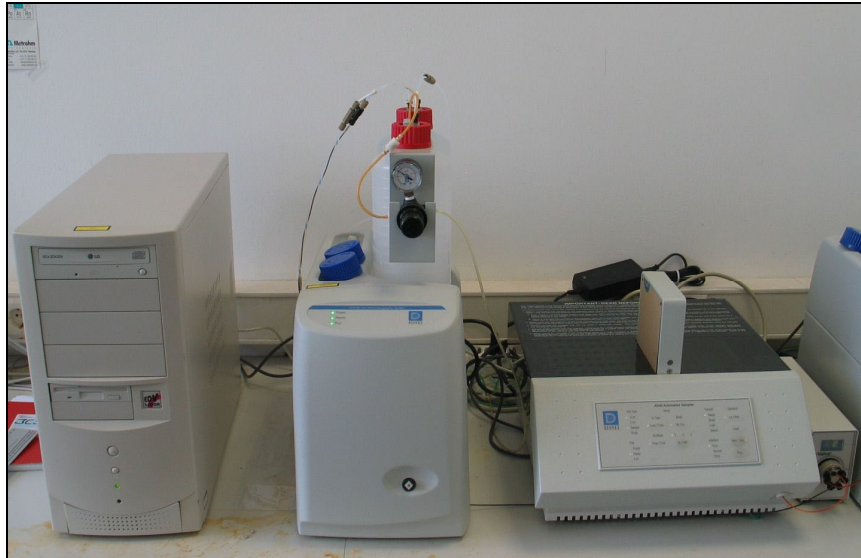


Abbildung 22: Rechner mit Chromelionsteuerungssoftware, Ionenchromatograph und automatischer Probennehmer.

Für die Messung der Probe am Ionenchromatographen werden 0,5 ml Fläschchen (Dionex PolyVial) benutzt. Die Eichung wird mit einem 5-Komponenten-Mix-Standard aus Fluorid (F^-), Chlorid (Cl^-), Nitrat (NO_3^-), Phosphat (PO_4^{3-}) und Sulfat (SO_4^{2-}) durchgeführt.

Die Messgrenzen des eingesetzten ICS-90 wurden nach DIN 32645 im April 2006 bestimmt. Die Bestimmungsgrenzen liegen bei $50 \mu g l^{-1}$ Fluorid, $67 \mu g l^{-1}$ Chlorid, $76 \mu g l^{-1}$ Nitrat, $250 \mu g l^{-1}$ Phosphat und $88 \mu g l^{-1}$ Sulfat.

3.2.4 Natrium, Calcium und Magnesium am Atomabsorptionsspektrometer

Das Atomabsorptionsspektrometer bietet die Möglichkeit der quantitativen spektralen Bestimmung von gelösten Elementen. Bei dem eingesetzten Atomabsorptionsspektrometer handelt es sich um ein Flammen-Atomabsorptionsspektrometer Model Perkin Elmer 1100 (Abbildung 23) mit Hohlkatodenlampe, wobei die Kathode aus dem zu analysierenden Element oder Elementen (bei Mehrelementenlampen) besteht. Es wurden Mehrelementenlampen eingesetzt, eine für die Calcium- und Magnesium-Analyse sowie eine für die Natrium-Bestimmung (SUPPER 2006). Das emittierte Licht hat eine charakteristische Wellenlänge und Intensität und trifft im Strahlengang auf eine Atomisierungseinheit (PERKIN-ELMER 1988). Dort wird die zu untersuchende Probe durch eine Flamme (Acetylen-Luft-Gemisch) zerstäubt und atomisiert. Die Atome werden in einen angeregten Zustand überführt. Das Licht wird dadurch entsprechend geschwächt und im Detektor registriert (PERKIN-ELMER 1988). Je höher die Konzentration eines Stoffes ist, desto höher ist die Absorption des Lichts. Eine genaue Zuordnung erfolgt durch Kalibrierung mit Standards der zu untersuchenden Elemente zu Beginn der Analyse.

Die Konzentrationen von Natrium (Na^+), Calcium (Ca^{2+}) und Magnesium (Mg^{2+}) werden aus der verbliebenen Restflüssigkeit (nach Aquatec- und ionenchromatographischer Analyse) bestimmt. Natrium wird direkt aus den Probenfläschchen gemessen. Für die Calcium- und Magnesium-Analyse wird 1 % ige Strontium-Caesium-Ionisationspufferlösung (30,43 g SrCl_2 und 12,67 g CsCl in 100 ml H_2O) im Verhältnis 1:100 zur Probe hinzugegeben. Es wurde jeweils nur die 3., 4. und 5. Stufe der Impaktorproben analysiert, da Vortests ergeben haben, dass die Stufen 1 und 2 unterhalb der Nachweisgrenze liegen. Die Blindwertproben wurden von jedem 2. Tag (nur ungerade Tage) gemessen. Die Bestimmungsgrenzen des Gerätes liegen in Höhe des kleinsten Eichwerts, für Natrium $0,1 \text{ mg l}^{-1}$, Calcium $0,25 \text{ mg l}^{-1}$ und Magnesium $0,05 \text{ mg l}^{-1}$ (SUPPER 2006).



Abbildung 23: Flammen-Atomabsorptionsspektrometer Perkin Elmer 1100.

3.2.5 Kohlenstoffbestimmung mit dem OCEC-Analyser

Der OCEC Lab Analyser von Sunset Laboratory (Abbildung 24) analysiert Kohlenstoff nach der Methode NIOSH 5040. Der auf Quarzfaserfiltern gesammelte Kohlenstoff wird thermisch und optisch als organischer Kohlenstoff (OC) und elementarer Kohlenstoff (EC) bestimmt.



Abbildung 24: OCEC-Analyser von Sunset Laboratory mit Gasanschlüssen.

Ein Quarzfilter-Stanzling ($1,5 \text{ cm}^2$) wird auf einem Quarzträger in den Quarz-Ofen geschoben (quartz oven / front oven). Das System wird mit Helium gereinigt bevor die Temperatur in Heliumatmosphäre schrittweise bis auf $870 \text{ }^\circ\text{C}$ angehoben wird. Die verdampften organischen Kohlenstoffbestandteile werden im Heliumstrom in den Manganoxid-Ofen (MnO_2 oven / back oven) transportiert und quantitativ in CO_2 -Gas umgewandelt. Das CO_2 strömt in einem He- H_2 -Gemisch durch einen heißen Nickelkatalysator und wird quantitativ in Methan umgewandelt. Das Methan wird im Methanofen verbrannt und mit dem Flammenionisations-Detektor (FID, flame ionization detector) gemessen. Anschließend wird die Temperatur im Quarzofen auf $600 \text{ }^\circ\text{C}$ abgekühlt und der Gasfluss wird auf ein He- O_2 -Gemisch umgestellt, um auf die gleiche Weise den elementaren Kohlenstoff zu messen (SUNSET LABORATORY 2005).

Bei der anfänglichen Verbrennung des organischen Kohlenstoffs tritt Verkohlung (Pyrolyse) auf. Eine Korrektur erfolgt, um den elementaren Kohlenstoffanteil nicht zu überschätzen. Der schwarze elementare Kohlenstoff wird über die Absorption eines Lasers, der durch die Quarzfilterprobe strahlt, registriert. Während der Analyse des organischen Kohlenstoffs und der eintretenden Pyrolyse nimmt die Schwarzfärbung und somit die Absorption zu. Der pyrolytische Kohlenstoff wird dem organischen Kohlenstoff zugerechnet. Die Trennung (split point) zwischen OC und EC erfolgt somit nicht exakt beim Wechsel zwischen sauerstofffreier und He- O_2 -Atmosphäre.

Abbildung 25 zeigt einen typischen Analyseverlauf. Die Kohlenstoffmessung des Detektors (grüne Linie) besitzt vier Peaks im organischen und einen Peak im elementaren Bereich. Die blaue Kurve zeigt den Temperaturverlauf, die rote Kurve stellt die Lasertransmission dar. Der senkrechte schwarze Strich markiert die automatisch berechnete Trennung zwischen OC und EC.

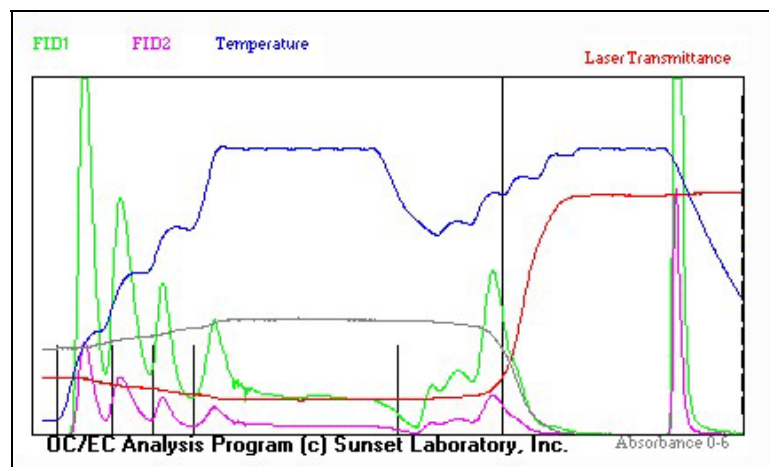


Abbildung 25: Ergebnis, Kurvenverlauf der OCEC-Analyse.

Das Messergebnis wird in μg Kohlenstoff pro 1 cm^2 ausgegeben und wird über die entsprechende analysierte Punktzahl auf die gesamte Impaktorstufe hochgerechnet. Der OCEC-Lab-Analyser hat laut Hersteller eine Nachweisgrenze von $0,2\ \mu\text{g cm}^{-2}$.

Die Trennung von elementarem und organischem Kohlenstoff erfolgt aus bisher ungeklärten Gründen nicht optimal bei den Analysen der Impaktorproben. Mögliche Gründe können Zusatzstoffe auf den Quarzfaserfiltern der Firma Whatman sein oder die Tatsache, dass die Laserkorrektur nicht optimal für die feinen Impaktorpunkte geeignet ist (CARY 2006). Das Gerät wurde für die Analyse von homogen verteiltem Kohlenstoff auf Quarzfaserfiltern entwickelt. Wegen dieser Unsicherheit wird in der vorliegenden Arbeit überwiegend mit dem Gesamtkohlenstoff (TC), der von der Trenngrenze unbeeinflusst ist, gearbeitet. Die Trennung in OC und EC wird in Kapitel 5.3.4 anhand der eigenen Ergebnisse dargestellt und diskutiert.

3.3 Messprogramm und Datenqualität

Die Messungen mit den Berner-Impaktoren fanden von Ende Oktober 2005 bis Ende April 2006 statt und gliedern sich in einzelne Testmessungen, direkte Vergleichsmessungen der Impaktoren an einem Standort und Messungen zum Vergleich der zwei Standorte Stadt und städtisches Umland (vgl. Kapitel 2). Letztere unterteilen sich in eine Messphase vom 31.12.2005 bis 23.01.2006 mit 6-stündigen Tag- und Nachtmessungen von 9:00 bis 15:00 Uhr MEZ bzw. 23:00 bis 5:00 Uhr MEZ und eine Phase mit 4-stündigen Messungen vom 23.02.2006 bis 01.03.2006. Die Messungen im Februar fanden zu den Hauptverkehrszeiten von 5:30 bis 9:30 Uhr MEZ und 16:30 bis 20:30 Uhr MEZ statt.

Die Vergleichsmessungen mit beiden Impaktoren an einem Standort wurden sowohl Ende 2005 an der Station Hüffergarten als auch im April 2006 an der Station Steinfurter Straße durchgeführt. Die genauen Probedaten sind in Kapitel 4.1.2 dargestellt.

3.3.1 Datenaufbereitung

Neben den eigentlichen Proben wurden an jedem Untersuchungstag Blindproben genommen. Der Impaktor wird mit neuen Filtern bestückt und die Pumpe wird nur kurz (10 bis 60 Sekunden) angestellt. Die Blindproben werden zusammen mit den jeweils zugehörigen Tag- und Nachtproben analysiert.

Die analysierten mittleren Blindwerte, auch Leerwerte genannt, sollen systematische Fehler aufzuzeigen. Sie werden von den Probenwerten abgezogen, um Fehler durch Verunreinigungen zu vermindern. Für die Blindwerte der Anionen und des Ammoniums wird ein Medianwert je Messcharge gebildet und für die übrigen Kationen der Median aus allen

Blindproben verwendet. Die Kohlenstoffblindwerte eines Tages werden aufwendiger gemittelt, da bei fünf Blindwerten mögliche Ausreißer einen größeren Effekt haben können. Die Blindwerte werden normiert und eine untere und obere Schranke (25 %- und 75 %-Quantil) gebildet. Aus den von Ausreißern bereinigten Blindwerten wird der arithmetische Mittelwert gebildet (GIETL 2005).

Nach der Bereinigung der Daten um die mittleren Blindwerte wird ein Qualitätskriterium eingeführt. Es werden nur Probenwerte berücksichtigt, die größer als das 90 %-Quantil der zugehörigen Blindwerte sind. Ein hohes Quantil der Blindwerte ist als Qualitätsgrenze besser geeignet als die Nachweis- oder Bestimmungsgrenzen der Laborgeräte (KLEMM 2006). Es beinhaltet die Messgrenzen der Analysegeräte und spiegelt ebenfalls die Messgrenzen des Impaktors wider.

Die oberhalb des jeweiligen 90 %-Quantilwerts gelegenen Daten werden von mg l^{-1} in $\mu\text{g m}^{-3}$ unter Beachtung der unterschiedlichen Impaktorspezifikationen und der Probennahmedauer umgerechnet.

3.3.2 Statistische Methoden

Der Vergleich zweier Datensätze oder Messreihen kann optisch erfolgen, beispielsweise als Zeitreihe dargestellt oder in einem Streudiagramm gegeneinander aufgetragen. Parallele Verläufe und Trends werden statistisch durch Korrelationen ermittelt.

Der Korrelationskoeffizient r stellt den linearen Zusammenhang zwischen zwei zu untersuchenden Datensätzen sowie das Ausmaß bzw. die Stärke des Zusammenhangs dar, jedoch nicht einen kausalen Zusammenhang oder eine Übereinstimmung (LANGE & BENDER 2001). Der Koeffizient nimmt dimensionslose Werte zwischen -1 (negative Korrelation) und +1 (positive Korrelation) an, $r = 0$ bedeutet keine Korrelation d. h. die Datenpunkte streuen stark. BÜHL & ZÖFEL 2005 bilden fünf Klassen (Tabelle 1), um einen einheitlichen Sprachgebrauch für die Qualität einer Korrelation zu schaffen.

Tabelle 1: Klassifizierung der Korrelationskoeffizienten nach BÜHL & ZÖFEL 2005

$0,0 < r \leq 0,2$	sehr geringe Korrelation
$0,2 < r \leq 0,5$	geringe Korrelation
$0,5 < r \leq 0,7$	mittlere Korrelation
$0,7 < r \leq 0,9$	hohe Korrelation
$0,9 < r \leq 1,0$	sehr hohe Korrelation

Es wurde überwiegend mit der Pearson-Korrelation gearbeitet, die eine Normalverteilung der Daten voraussetzt. Der Korrelationskoeffizient r berechnet sich für das Wertepaar aus den Variablen a und b nach SCHÖNWIESE 2000 als:

$$(Gleichung 4) \quad r = \frac{\sum a_i b_i - \frac{1}{n} \sum a_i \sum b_i}{\sqrt{\left[\sum a_i^2 - \frac{1}{n} (\sum a_i)^2 \right] \left[\sum b_i^2 - \frac{1}{n} (\sum b_i)^2 \right]}}$$

$$i = 1, \dots, n$$

Dabei ist n die Anzahl der Wertepaare bzw. der Umfang der Stichprobe.

Nur in wenigen Fällen, in denen die Normalverteilung nicht gegeben war, wurde eine Rangkorrelation durchgeführt. Der Rangkorrelationskoeffizient nimmt Werte zwischen 0 und 1 an. Die Wertepaare der beiden Stichproben werden in eine aufsteigende Rangfolge gebracht und die Rangplatzdifferenzen (D_i) berechnet. Der Rangkorrelationskoeffizient nach Spearman r_R berechnet sich nach SCHÖNWIESE 2000 wie folgt:

$$(Gleichung 5) \quad r_R = 1 - \frac{6 \sum D_i^2}{n^3 - n} \quad i = 1, \dots, n$$

Korrelationen mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha < 0,001$ werden in dieser Arbeit als hoch signifikant bezeichnet. Bis zu einer Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha < 0,05$ wird von einer signifikanten Korrelation gesprochen. Bei SCHÖNWIESE 2000 sind die Definitionen für die Signifikanz großzügiger gefasst.

Die Untersuchung der Häufigkeitsverteilung der Analysedaten wurde mit dem Anpassungstest nach Kolmogoroff und Smirnow durchgeführt. Dieser so genannte K-S-Test prüft die Stichprobe auf Normalverteilung, indem die kumulativen Häufigkeiten der Stichprobe mit der idealen kumulativen Häufigkeitsverteilung der Normalverteilung verglichen werden. Die Prüfgröße KS berechnet sich nach SCHÖNWIESE 2000 aus:

$$(Gleichung 6) \quad KS = \frac{|\text{Max}\{KH_k(SP) - KH_k(GG)\}|}{n}$$

Dabei ist KH_k die kumulative Häufigkeit der klassenorientierten Stichprobe (SP) bzw. der angepassten Grundgesamtheit (GG), die sich nach dem Verteilungsmodell richtet. Die Anzahl n steht für den Stichprobenumfang. Die Prüfgröße KS wird mit einem Wert KS' verglichen, der sich nach ZÖFEL 1992 für eine Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha = 1\%$ in Abhängigkeit von der Anzahl n berechnet:

$$(Gleichung 7) \quad KS' = \frac{1,63}{\sqrt{n}}$$

Als Voraussetzung für die Durchführung des Kolmogoroff-Smirnow-Anpassungstests schlägt SCHÖNWIESE 2000 eine Mindestanzahl von 35 Werten vor und erwähnt, dass nach

SACHS 1999 eine Anzahl von mindestens 50 Stichproben verlässlichere Ergebnisse bringt. Der K-S-Test zur Prüfung auf Normalverteilung wird in den Untersuchungen auch bei Datensätzen kleiner 50 durchgeführt, da er laut SCHÖNWIESE 2000 nicht so empfindlich reagiert. MILLER & MILLER 1988 erwähnt ebenfalls, dass der Kolmogoroff-Smirnoff-Test gerade bei geringerem Stichprobenumfang besser für die Überprüfung auf Normalverteilung geeignet ist als beispielsweise der Chi-Quadrat-Test. Die Untersuchung der Verteilung der Daten ist für weitere statistische Untersuchungen von Bedeutung, da die Normalverteilung eine Voraussetzung zur Anwendung einiger statistischer Größen und Tests ist.

Dies gilt für den Signifikanz Test, der Student-Test oder t-Test genannt wird. Durch den Signifikanz Test kann überprüft werden, ob Unterschiede zwischen zwei Stichproben zufällig auftreten oder nicht zufällig und somit signifikant sind (SCHÖNWIESE 2000). Bei dem t-Test handelt es sich um einen Anpassungstest, die Stichprobe wird mit der t-Verteilung verglichen.

In dieser Arbeit wird der t-Test immer zum Vergleich zweier Datensätze oder Messwertpaare verwendet. Da die zu vergleichenden Stichproben der Messreihen gepaart sind, wird der verwendete Test als Zwei-Stichproben-t-Test mit abhängigen Stichproben oder Paarvergleichstest bezeichnet. Nach MILLER & MILLER 1988 wird der Zwei-Stichproben-t-Test für gepaarte Proben wie folgt berechnet:

$$(Gleichung 8) \quad t = \frac{\bar{x}_d \times \sqrt{n}}{s_d}$$

In diesem „Paired t-Test“ (MILLER & MILLER 1988) ist x_d die mittlere Differenz und s_d die Standardabweichung der Differenzen sowie n die Anzahl der Stichproben. Die Differenzen werden aus dem jeweiligen Wertepaar der Stichproben a und b (also $a_n - b_n$) berechnet und arithmetisch gemittelt. Der berechnete Wert t hat den Freiheitsgrad $n-1$ (MILLER & MILLER 1988) und wird als Betrag von t , mit einem tabellierten Wert t der t-Verteilung bei einer bestimmten Irrtumswahrscheinlichkeit α verglichen. Zum Beginn des t-Tests wird die Nullhypothese aufgestellt, dass kein signifikanter Unterschied zwischen den beiden Stichproben besteht. Bei dem angewendeten zweiseitigen t-Test mit der Nullhypothese $a = b$ wird überprüft ob $a < b$ oder $a > b$ ist (SCHÖNWIESE 2000). Ist der berechnete Wert $|t|$ kleiner als der zweiseitige $|t|$ -Wert aus der t-Verteilungstabelle bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit α ist die Nullhypothese bestätigt, allerdings nicht bewiesen (SCHÖNWIESE 2000). Im umgekehrten Fall, wenn der berechnete $|t|$ -Wert größer als der $|t|$ -Wert der Tabelle ist, wäre die Nullhypothese verworfen und die Stichproben signifikant unterschiedlich. In der Auswertung wurde immer der zweiseitige t-Test mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha = 0,01$ angewandt.

4 Qualitätssicherung und Qualitätskontrolle

4.1 Vergleichbarkeit der Impaktoren

Die entscheidende Voraussetzung für den Vergleich von Umland-Stadt Daten der Berner-Impaktoren ist, dass beide Impaktoren das Gleiche messen bzw. die gerätetechnischen Unterschiede genau bekannt sind, wenn sie an unterschiedlichen Standorten eingesetzt werden. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Vergleichsmessungen der beiden Berner-Impaktoren und die Konsequenzen für die Auswertung dargestellt.

4.1.1 Genaue Untersuchung der Berner-Impaktoren mit Durchflussmessungen

In Kapitel 3.1.1 wurde bereits erwähnt, dass die verwendeten Impaktoren nicht exakt baugleich sind (vgl. Abbildung 10 bis Abbildung 12). Technische Angaben mit den wichtigsten Kenndaten waren nicht für beide Impaktoren vollständig vorhanden. Ein Unterschied der beiden eingesetzten Impaktoren besteht in der Anzahl der Düsen pro Stufe (Tabelle 2).

Weitere wichtige Kenngrößen sind der Durchfluss sowie die Trenn-Durchmesser (Cut-Off) jeder Stufe (3.1.1). Eigene Durchflussmessungen mit einem nachgeschalteten Gaszähler und mit Temperaturmessung der Abluft der Vakuumpumpen ergaben keine zuverlässigen Ergebnisse. Genaue und gesicherte Daten zu den beiden Impaktoren sind von Prof. Dr. Berner bereitgestellt worden, nachdem er beide Geräte begutachtet und getestet hatte. Die Ergebnisse der Untersuchungen von Prof. Dr. Berner und der Düsenzählung sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

Die Unterschiede in der Volumenflussrate von $4,5 \text{ l min}^{-1}$ sind unproblematisch, da sie bei der Berechnung der Konzentrationen eingearbeitet werden können.

Die zum Teil nur sehr geringen Unterschiede der Trenndurchmesser sowie der daraus resultierende mittlere Durchmesser der Partikel je Stufe sind schwieriger zu verarbeiten. Gemessene Partikelkonzentrationen unterschiedlicher Größenklassen sind faktisch nicht miteinander vergleichbar. Deshalb werden die addierten Werte von Stufe 1-5 für den Vergleich der Impaktoren herangezogen. Bei den ursprünglich geplanten detaillierteren Vergleichen je Impaktorstufe muss bedacht werden, dass durch die nicht exakt übereinstimmenden mittleren Durchmesser der Partikel Ungenauigkeiten auftreten können. Dazu wurden weitere Untersuchungen durchgeführt, die im Folgenden beschrieben sind.

Tabelle 2: Kenndaten der beiden Berner-Impaktoren.

Impaktor "MS" (neuerer Impaktor aus Münster) ID 7351 0217 499; 80-43				
Stufe	Trenndurchmesser	Mittlere Durchmesser	Düsendurchmesser	Düsenzahl
	in μm	in μm	in μm	
(Vorabscheider) 6	10,0		16,2	1
5	3,5	5,93	3,9	9
4	1,2	2,06	1,4	25
3	0,42	0,713	1,1	11
2	0,19	0,282	0,36	123
1	0,053	0,101	0,24	296
Kritische Düse:			6,3 μm	
Volumenflussrate: 80 [l min ⁻¹]			(bei 20 °C, 1013 hPa)	
Impaktor "BT" (älterer Impaktor aus Bayreuth) ID 7351 9013 79; 80-18				
Stufe	Trenndurchmesser	Mittlere Durchmesser	Düsendurchmesser	Düsenzahl
	in μm	in μm	in μm	
(Vorabscheider) 6	10,3		16,2	1
5	3,5	6,00	3,3	15
4	1,0	1,90	1,2	40
3	0,37	0,62	0,5	81
2	0,15	0,237	0,3	133
1	0,063	0,0981	0,25	244
Kritische Düse:			5,8 μm	
Volumenflussrate: 75,5 [l min ⁻¹]			(bei 20 °C, 1013 hPa)	

4.1.2 Direkter Messvergleich der Berner-Impaktoren

Die Übereinstimmung der beiden Impaktoren soll nicht nur theoretisch berechnet, sondern auch experimentell nachgewiesen werden. Zur Vorbereitung des optimalen Umgangs mit den Geräten und Filtern (vgl. 3.1.1 und 3.2.1) wurden zahlreiche Probemessungen durchgeführt. Auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie (Station Hüffergarten) wurden beide Impaktoren mit der jeweils dazugehörigen Vakuumpumpe in unmittelbarer Nähe nebeneinander betrieben (Abbildung 26). Die Messungen fanden zwischen Ende Oktober und Dezember 2005 statt. Die Probenahmedauer schwankte zwischen fünf und acht Stunden.

Zusätzlich wurden sieben Vergleichsmessungen im April 2006 im Container an der Steinfurter Straße durchgeführt (Abbildung 27). Nach der Blindwertbereinigung und einer Qualitätskontrolle (vgl. 3.3) ergeben sich 24 Messungen, die zum direkten Messvergleich der beiden Impaktoren dienen. Dieser Vergleich beschränkt sich auf die wichtigsten Ionen: Ammonium, Chlorid, Nitrat und Sulfat.

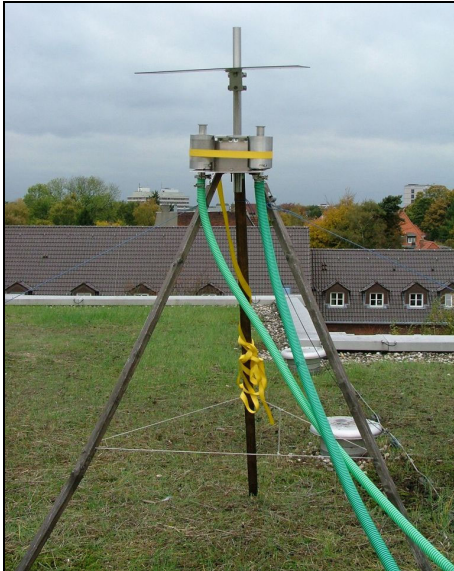


Abbildung 26: Zwei Impaktoren auf dem Dach des Instituts für Landschaftsökologie



Abbildung 27: Zwei Impaktoren nebeneinander im Messcontainer Steinfurter Straße

Zunächst werden die über alle Stufen addierten (= PM₁₀) Gesamtionenkonzentrationen der beiden Impaktoren, bestehend aus den Hauptionen (Chlorid, Nitrat, Sulfat, und Ammonium), betrachtet. Insgesamt stimmen die von den beiden Impaktoren gemessenen Konzentrationen sehr gut überein (Abbildung 28). Die Nacht-Messungen vom 21.04.06 und 23.04.06 fallen beim BT-Impaktor höher aus. Bei 80 % der Messungen ist die Abweichung zwischen den beiden Geräten deutlich kleiner als $1 \mu\text{g m}^{-3}$.

Die Mittelwerte aller Vergleichsmessungen liegen mit $11,3 \mu\text{g m}^{-3}$ für den MS-Impaktor und $11,9 \mu\text{g m}^{-3}$ für den BT-Impaktor nahe beieinander. Die Varianz ist beim BT-Impaktor mit $105,0 (\mu\text{g m}^{-3})^2$ höher als beim MS-Impaktor mit $82,4 (\mu\text{g m}^{-3})^2$. Diese Abweichung wird durch die beiden erhöhten Aprilmessungen verursacht. Der Korrelationskoeffizient nach Pearson der beiden Messreihen ($r = 0,99$) und das Bestimmtheitsmaß ($r^2 = 0,98$) zeigen sehr hohe Korrelation. Das Streudiagramm (Abbildung 29) bestätigt dies. Der Zweistichproben t-Test bei abhängigen Stichproben mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,01 ist hoch signifikant. Aus diesen Vergleichen für PM₁₀ lässt sich schließen, dass die Messungen mit den beiden Impaktoren gut übereinstimmen.

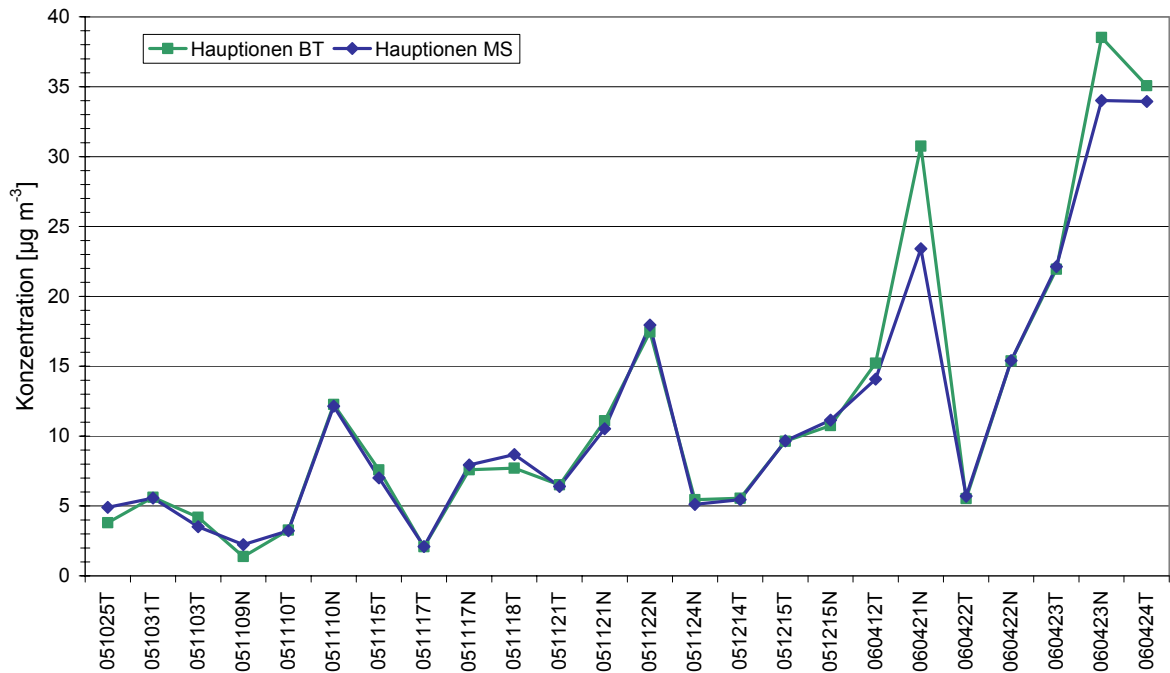


Abbildung 28: Direkter Vergleich der beiden Berner-Impaktoren für die Hauptionen des PM10s.

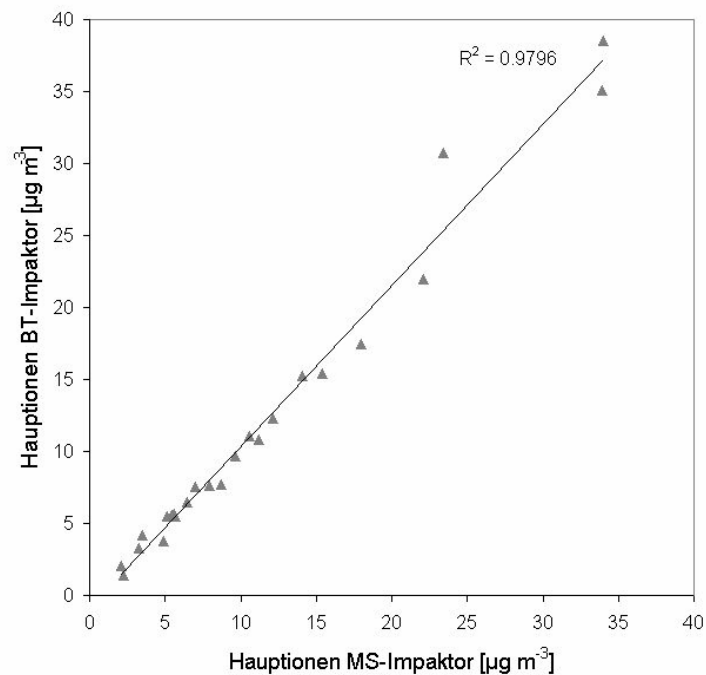


Abbildung 29: Streudiagramm, direkter Vergleich der beiden Berner-Impaktoren für die Hauptionen des PM10s.

Werden dieselben PM10 Messergebnisse nicht für die Gesamtionenkonzentration betrachtet, sondern aufgesplittet in die Ionen Ammonium, Chlorid, Nitrat und Sulfat, ergibt sich ein ähnliches Bild. Der Korrelationskoeffizient beträgt für Ammonium und für Nitrat 0,99 sowie für Chlorid und für Sulfat 0,98. Der t-Test mit einem Vertrauensintervall von 99 % ergibt für die

vier Ionenkonzentrationen ebenfalls eine hohe Signifikanz. Die Übereinstimmung der beiden Impaktoren verändert sich demnach nicht, wenn die gemessenen Konzentrationen der einzelnen Ionen statt der PM10 Gesamtionenkonzentration verglichen werden.

Stellt man die Ergebnisse der aufsummierten Ionen nach einzelnen Stufen zusammen, ergibt sich ein etwas anderes Bild. Die Daten pro Stufe sind in ihrer ursprünglichen Form nicht normalverteilt, so dass die Korrelation nach Pearson und der t-Test nicht durchführbar sind. Die Daten sind jedoch logarithmisch-normal verteilt, somit können die statistischen Tests durchgeführt werden. Die Gesamtionenkonzentration der Stufe 1 sowie der Stufe 5 korrelieren nicht gut, sie haben geringe Korrelationskoeffizienten von 0,33 bzw. 0,36. Die Konzentrationen der Stufe 2 korrelieren mit $r = 0,91$, allerdings ergibt der t-Test keine Signifikanz. Die Summe der Ionenkonzentrationen der Stufen 3 und 4 korrelieren besser mit 0,99 für Stufe 3 und 0,96 für Stufe 4. Der t-Test ergibt für diese beiden Stufen keine signifikanten Unterschiede, die beiden Impaktoren stimmen in den Stufen 3 und 4 demnach sehr gut überein.

Bei der Betrachtung der einzelnen Stufen sind die absoluten Werte der Gesamtionenkonzentrationen zu berücksichtigen, da sich ansonsten ein verzerrtes Bild ergibt. Abbildung 30 zeigt die Gesamtionenkonzentrationen der beiden Berner-Impaktoren für Stufe 1 und Stufe 3. Die Diagramme sind zum direkten Vergleich gleich skaliert ($0-30 \mu\text{g m}^{-3}$). In dieser Darstellung erscheinen die Unterschiede der beiden Impaktoren auf Stufe 1 klein. Wenn im Gegensatz dazu die entsprechenden Daten für Stufe 5 (Abbildung 31) mit einer Skalierung von $0-2 \mu\text{g m}^{-3}$ dargestellt werden, erscheint die Übereinstimmung nicht so gut. Auf niedrigem Konzentrationsniveau (Stufe 1: ca. $0-3,5 \mu\text{g m}^{-3}$ und Stufe 5: ca. $0-1,7 \mu\text{g m}^{-3}$) machen sich selbst kleinere Schwankungen und Messungenauigkeiten stark bemerkbar. In absoluten Zahlen und im Vergleich zu den Stufen 3 und 4 sind die Unterschiede dagegen vernachlässigbar.

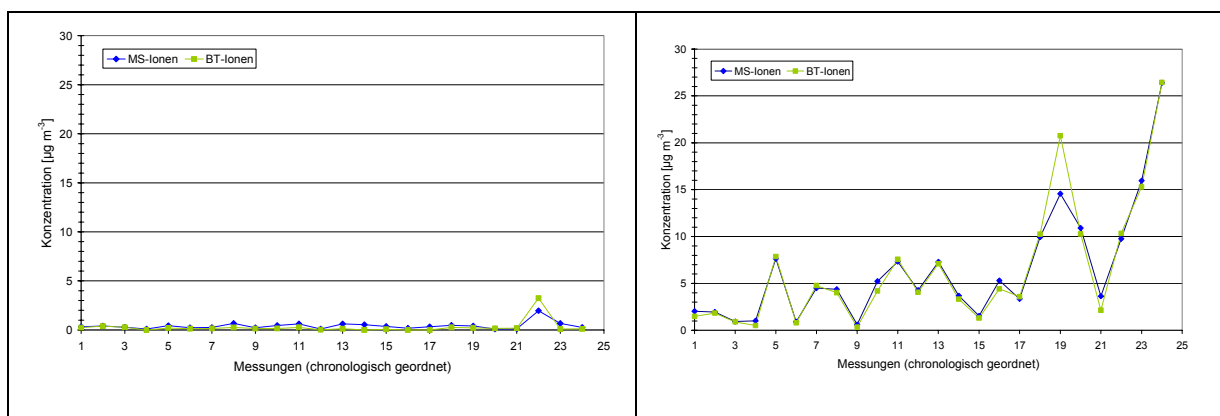


Abbildung 30: Gesamtionenkonzentration der beiden Impaktoren BT und MS für Stufe 1 (links) und Stufe 3 (rechts).

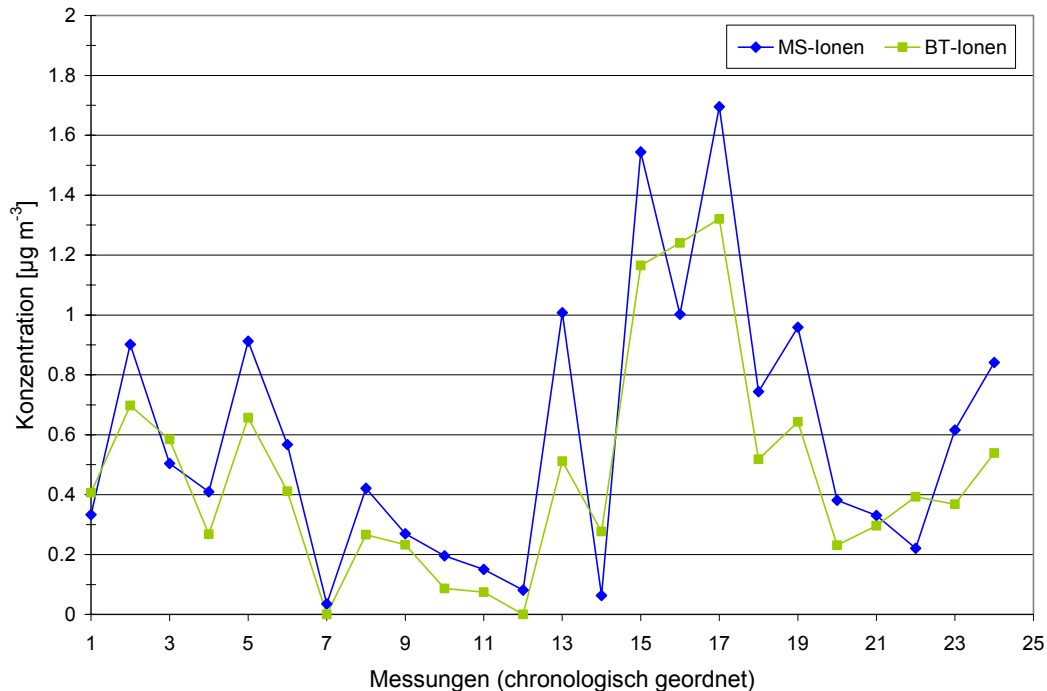


Abbildung 31: Gesamtionenkonzentration der beiden Impaktoren BT und MS für Stufe 5.

Der detaillierte Vergleich der einzelnen Ionen auf jeder Stufe bringt keine neuen Erkenntnisse, da besonders bei den niedrigen Konzentrationen von Ionen wie Chlorid der gleiche Streueffekt auftritt wie oben für die niedriger konzentrierten Stufen 1 und 5 beschrieben wurde. Die höher konzentrierten Ionen zeigen besonders auf den Stufen 3 und 4 gute Übereinstimmung mit hohen Korrelationskoeffizienten.

Die Anwendung der Ergebnisse aus den Untersuchungen der beiden Berner-Impaktoren (vgl. Kapitel 4.1.1) liefert im direkten Messvergleich der beiden Geräte MS-Impaktor und BT-Impaktor am gleichen Standort sehr gut übereinstimmende Ergebnisse. Besonders für die Vergleiche von PM₁₀ ergeben sich hoch signifikante Übereinstimmungen. Die Messergebnisse der einzelnen Stufen bzw. der einzelnen Ionen sind nur dann signifikant korreliert, wenn die Konzentrationen nicht zu gering sind. Es ist nicht auszuschließen, dass diese geringen Abweichungen auch bei exakt identischen Impaktoren auftreten würden. Deshalb wird für die Stufen mit niedrigeren Konzentrationen eine ähnlich gute Übereinstimmung wie bei den Stufen mit höherer Konzentration angenommen. Berücksichtigt man diese Einschränkung, sind stufenweise Vergleiche ebenfalls sinnvoll.

Es wird gefolgert, dass die beiden Impaktoren trotz ihrer leicht unterschiedlichen Eigenschaften im Rahmen dieser Untersuchungen vergleichbare Messergebnisse liefern. Die Übereinstimmung beim Vergleich der PM₁₀-Werte unter den gegebenen Umständen ist zwischen den beiden Impaktoren „BT“ und „MS“ zuverlässig und eindeutig.

4.2 Ionenbilanz

Die Partikelmassenkonzentrationen c [$\mu\text{g m}^{-3}$] werden zur Erstellung einer Ionenbilanz in Äquivalentstoffmengenkonzentrationen C_{eq} umgerechnet. Die Äquivalentkonzentration ist die Stoffmengenkonzentration multipliziert mit der Äquivalenzzahl z , M ist die Molare Masse des jeweiligen Ions (MORTIMER 1996).

$$\text{(Gleichung 9)} \quad C_{eq} = c \times \frac{z}{M}$$

Die Ionenbilanz aus den analysierten Anionen (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , F^- , PO_4^{3-}) und den Kationen (NH_4^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+}) sollte ausgeglichen sein. Ein Überschuss von positiven oder negativen Ionen lässt einen Schluss auf mögliche in der Analyse fehlende Ionen zu. Die Ionenbilanz kann durch die Nichterfassung von H^+ und weiteren möglichen Partikelbestandteilen nicht vollständig sein. Sie wird hier als eine Art der Qualitätskontrolle genutzt. Bei der Erstellung der Bilanz dürfen nur Proben berücksichtigt werden, die eine vollständige Analyse der Ionen durchlaufen haben.

Abbildung 32 stellt die Ionenbilanz für die Summen der Stufen 1-5 mit ihrer Abweichung in Prozent an der Gesamtionenkonzentration dar. Diese prozentuale Darstellung ist aussagekräftiger als die absoluten Werte. Die Abweichung der Ionenbilanz in der Steinfurter Straße erreicht maximale Werte von $-18,7\%$ ($-0,108 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$) bis $+27,3\%$ ($+0,074 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$). In den Rieselfeldern liegen die maximalen Werte bei $-7,5\%$ ($-0,039 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$) und $+21,7\%$ ($+0,067 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$). Die Unausgeglichenheit der Ionenbilanz ist in den meisten Fällen deutlich geringer. Im Mittel liegt sie für die Stadtproben bei $5,1\%$ ($+0,011 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$) und bei den Proben des städtischen Umlands bei $4,6\%$ ($+0,006 \text{ eq } \mu\text{mol m}^{-3}$). Die Abweichungen von BT- und MS-Messungen sind überwiegend gleich gerichtet, es liegt tendenziell ein Überschuss an Kationen vor.

Die Ionenbilanz ist mit einer Abweichung von etwa 5% relativ gut ausgeglichen, besonders angesichts der unvollständigen Ionenanalyse und des unbestimmten H^+ -Anteils. Ausreißer im Bereich der Ionen konnten im Vorfeld identifiziert werden. Die Qualität der Ionenanalyse ist vom 06.01. bis 23.01.06 und vom 23.02. bis 28.02.06 gut, die Daten sind für Vergleiche der beiden Stationen geeignet. Die übrigen Proben eignen sich nur mit Einschränkungen aufgrund unvollständiger Analyse, Ausreißern oder nicht vergleichbarer Randbedingungen und fließen nicht in die Ergebnisse (5.3) ein.

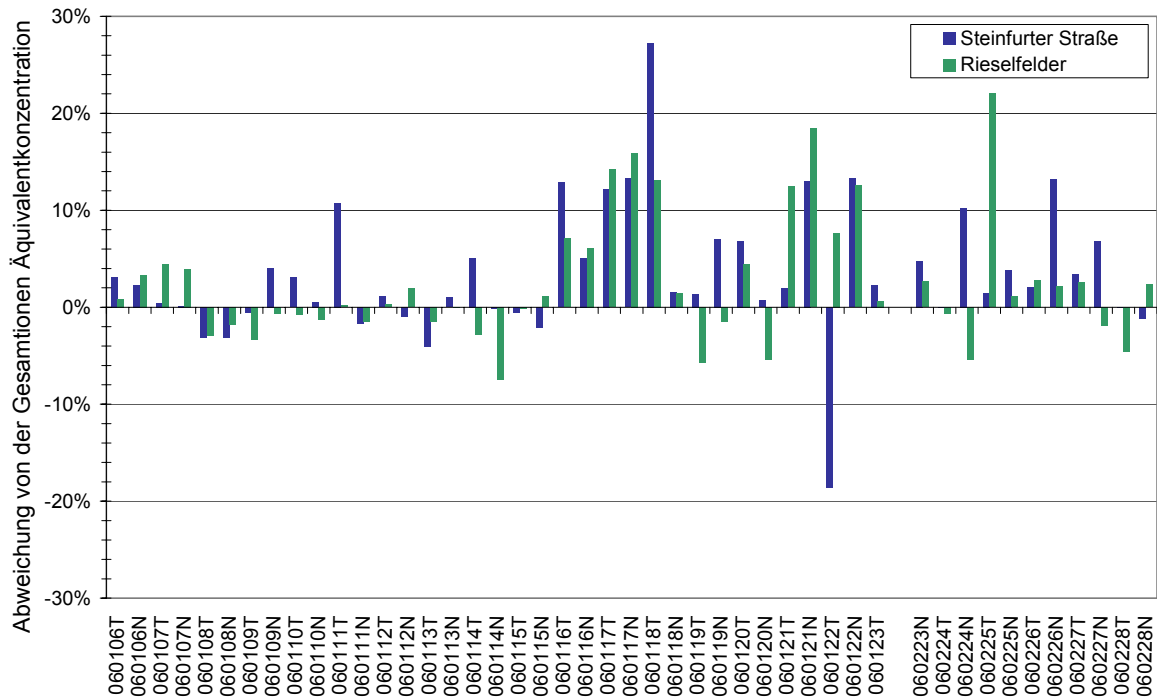


Abbildung 32: Ionenbilanz mit prozentualer Abweichung für die gemessenen Ionen in der Steinfurter Straße und den Rieselfeldern.

4.3 Vergleich der gemessenen Konzentrationen mit den PM₁₀-Daten des LUA NRW

Das Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA NRW) misst im Rahmen vom LUQS (Luftqualitätsüberberwachungssystem des Landes NRW) verschiedene Schadstoffe in der Luft. Die PM₁₀-Konzentration wird in Münster an zwei Verkehrsstationen in der Steinfurter Straße (VMSS) und am Friesenring (VMUE) sowie an der Station Geist (MSGE), die den städtischen Hintergrund erfasst, gemessen. Ein Vergleich dieser Daten mit den eigenen Messergebnissen bietet eine erste Einordnungs- und Bewertungsmöglichkeit.

Die Verkehrsstation Steinfurter Straße wurde bereits im Kapitel 2.2 (Abbildung 7) erwähnt. Details zu der Lage und Ausstattung der drei Stationen stehen auf der Homepage des LUA NRW zur Verfügung (LUA NRW 2006b). Die gemessenen PM₁₀-Konzentrationen werden als gleitender 24 h-Mittelwert oder Tageswert veröffentlicht, die kleinste verfügbare Messeinheit ist ein 30 min-Mittelwert.

In Abbildung 33 sind aus den 30 min-PM₁₀-Werten des LUAs mit vorläufigen Korrekturfaktoren 6 h-Mittelwerte für Januar bzw. 4 h-Mittelwerte für Februar, passend zu den jeweiligen Impaktormesszeiten (vgl. 3.3), dargestellt. Die Korrelationskoeffizienten für die Stationen VMSS-VMUE (0,83), VMSS-MSGE (0,87) und VMUE-MSGE (0,92) zeigen eine hohe bis sehr hohe Korrelation an. Die Mittelwerte für die PM₁₀-Daten im betrachteten

Zeitintervall liegen bei $37,80 \mu\text{g m}^{-3}$ (VMUE), $34,61 \mu\text{g m}^{-3}$ (VMSS) und $31,42 \mu\text{g m}^{-3}$ (MSGE) und sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,01 signifikant verschieden.

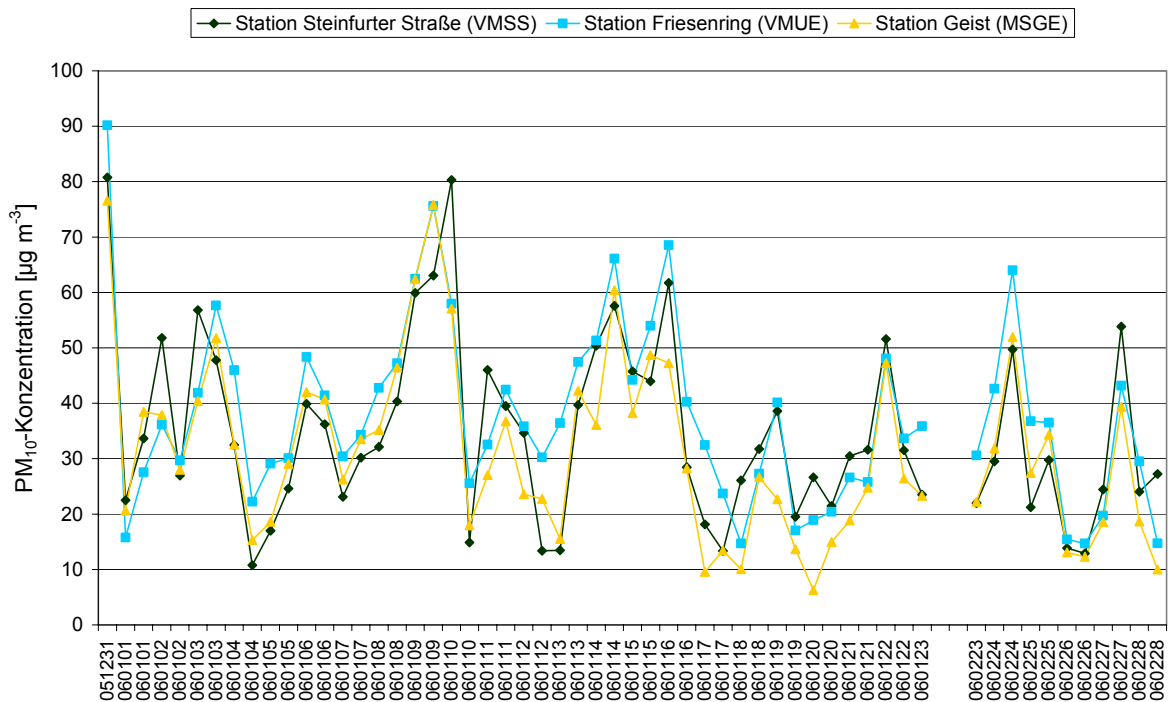


Abbildung 33: Auf eigene Messungen angepasste PM₁₀-Konzentrationen der drei LUA NRW Stationen in Münster.

Die LUA-Station in der Steinfurter Straße bietet sich aufgrund der unmittelbaren Nähe zum eigenen Messstandort Steinfurter Straße für einen Vergleich der Daten an. Die addierten Ionenkonzentrationen, der elementare Kohlenstoff und die organische Substanz bilden den PM₁₀-Wert, der mit der gemittelten PM₁₀-Konzentration des LUAs vergleichbar ist. Die organische Substanz kann aus der organischen Kohlenstoffkonzentration berechnet werden. Faktoren zwischen 1,2 und 1,6 werden nach SEINFELD & PANDIS 2006 häufig verwendet. In einer Untersuchung von SILLANPÄÄ et al. 2005 wird der Mittelwert 1,4 als Faktor verwendet. Die Umrechnung des organischen Kohlenstoffs erfolgt mit dem Faktor 1,4.

Die addierten PM₁₀-Werte der Station Steinfurter Straße (MS) sind in Abbildung 34 den PM₁₀-Daten der LUA-Station Steinfurter Straße (VMSS) gegenüber gestellt. Die Kurven zeigen nur abschnittsweise eine gute Korrelation. Die PM₁₀-Werte vom 31.12.05 bis 05.01.06 liegen auffällig hoch über den Werten des Landesumweltamtes. Insgesamt sollten die gemessenen Werte unter oder auf gleichem Niveau der LUA PM₁₀-Daten sein, sie überschreiten diese jedoch bei ca. 50 % der Proben. Die hohen Konzentrationen in den ersten Tagen kommen im Wesentlichen durch eine erhöhte Kohlenstoffkonzentration zustande. Die Ursachen dafür konnten nicht eindeutig geklärt werden, die weitere Auswertung der Impaktordaten an der Steinfurter Straße wird auf den Zeitraum ab dem 06.01.06 beschränkt. Der Korrelationskoeffizient zwischen VMSS und MS erhöht sich

dadurch von 0,57 auf 0,75. Auf eine weitere Entfernung nicht übereinstimmenden Daten wird verzichtet.

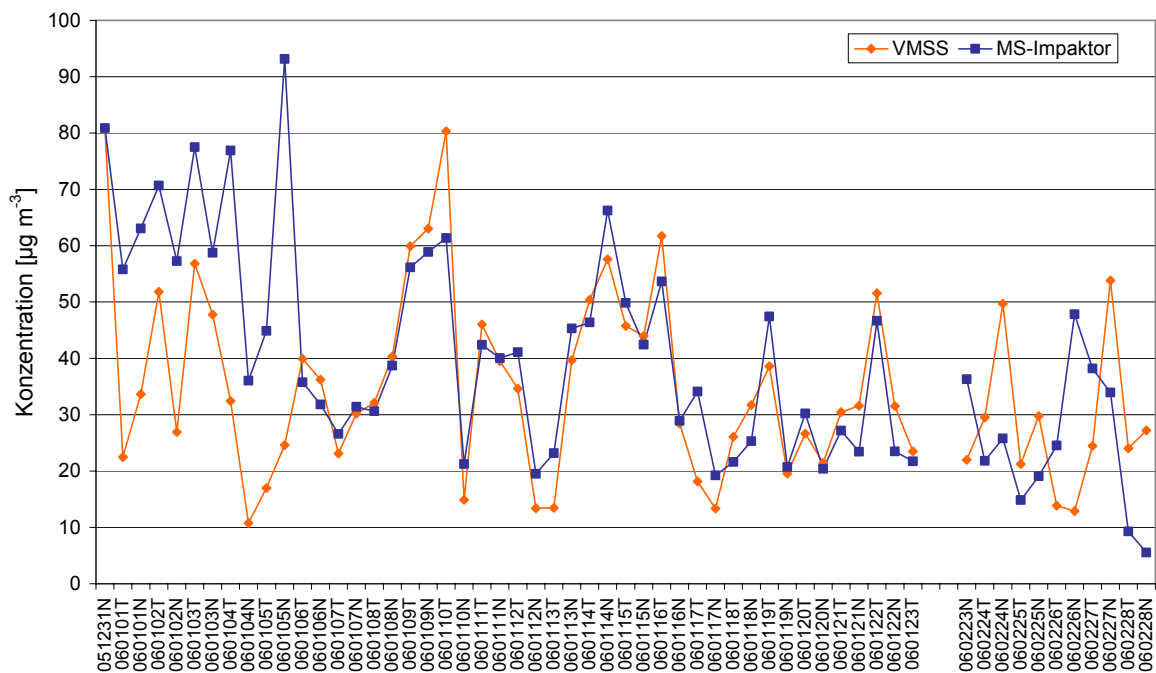


Abbildung 34: Verlauf der PM₁₀-Konzentrationen Steinfurter Straße (MS-Impaktor) und LUA-Station Steinfurter Straße (VMSS).

Die Feinstaubkonzentrationen der Hintergrundstation Münster Geist (MSGE) sind überwiegend niedriger als an den LUA Stationen Steinfurter Straße und Friesenring. Die PM₁₀-Konzentrationen von Münster Geist werden in Abbildung 35 mit den PM₁₀-Daten aus den Impaktormessungen der Station Rieselfelder (BT) verglichen. Trotz der großen Entfernung von etwa 10 km zwischen den beiden Stationen sollen beide eine Hintergrundbelastung messen, so dass der Vergleich Sinn macht. Die Korrelation zwischen MSGE und BT ist im Januar besser als im Februar und insgesamt gut ($r = 0,70$). Die Daten der Station BT liegen zu ca. 80 % unter denen von MSGE. Die Mittelwerte $24,4 \mu\text{g m}^{-3}$ (BT) und $31,4 \mu\text{g m}^{-3}$ (MSGE) sind signifikant verschieden.

Im Gegensatz zur Steinfurter Straße (Abbildung 34) sind in Abbildung 35 keine starken Abweichungen in den ersten Tagen festzustellen. Eine Ausnahme ist der 31.12.06, der offensichtlich die verstärkten Emissionen durch das Silvesterfeuerwerk in der Wohnsiedlung Geist widerspiegelt. Das Konzentrationsniveau des Feinstaubs ist in MSGE höher und stützt die Klassifizierung als städtische Hintergrundstation während die Rieselfelder mit geringeren Konzentrationen die Hintergrundkonzentration des (städtischen) Umlands repräsentieren.

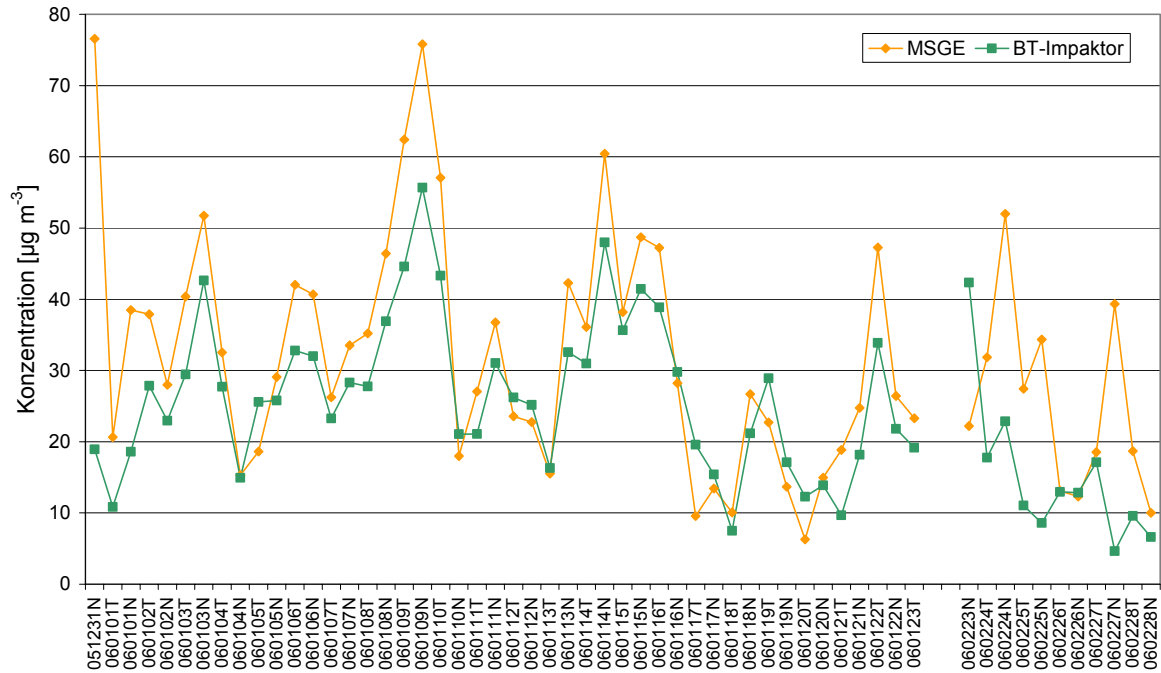


Abbildung 35: Verlauf der PM10-Konzentrationen Rieselfelder (BT-Impaktor) und LUA-Station Geist (MSGE).

Die Vergleiche der eigenen PM10-Daten zeigen insgesamt eine sehr zufrieden stellende Übereinstimmung mit den zur gleichen Zeit erhobenen Daten des LUA NRWs. Unterschiede zeigen sich schon bei dem Vergleich der einzelnen LUA-Stationen untereinander. Deshalb sind kleine Unterschiede zu den Impaktormessungen nicht überraschend. Die Gründe für Abweichungen sind vielfältig und können beispielsweise durch besondere Einflüsse auf den Standort, unterschiedliche Wetterbedingungen oder durch Umrechnungs- und Analyseungenauigkeiten bedingt sein. Im Falle von deutlicher Abweichung (MS 31.12.06 bis 05.01.06) ist eine Einschränkung der Datenweitzernutzung sinnvoll, um das Ergebnis nicht zu beeinträchtigen.

5 Ergebnisse und Diskussion

Die Ergebnisse der chemischen Analyse der Impaktorproben werden getrennt nach den beiden Standorten Rieselfelder (städtisches Umland) und Steinfurter Straße (Stadt) vorgestellt. Im Anschluss werden die Ergebnisse der beiden Stationen miteinander verglichen und diskutiert.

5.1 Analyse der Impaktormessungen in den Rieselfeldern (städtisches Umland)

Die Abbildung 36 zeigt den zeitlichen Verlauf der Summe der Konzentrationen der analysierten Bestandteile über alle Stufen in den Rieselfeldern. Diese PM10-Gesamtkonzentrationen schwanken in der gesamten Messperiode vom 31.12.05 bis 23.01.06 und 23.02.06 bis 28.02.06 zwischen $4,6 \mu\text{g m}^{-3}$ und $46 \mu\text{g m}^{-3}$. Die höchsten Werte um $40 \mu\text{g m}^{-3}$ werden am 09.01. (Tag und Nacht) und am 14.01. nachts erreicht. Die mittlere Konzentration liegt bei $22 \mu\text{g m}^{-3}$. Die Werte der einzelnen Messungen variieren unterschiedlich stark, die Standardabweichung beträgt $9,3 \mu\text{g m}^{-3}$. Insgesamt ist von Anfang Januar bis Februar ein leicht abnehmender Trend zu erkennen.

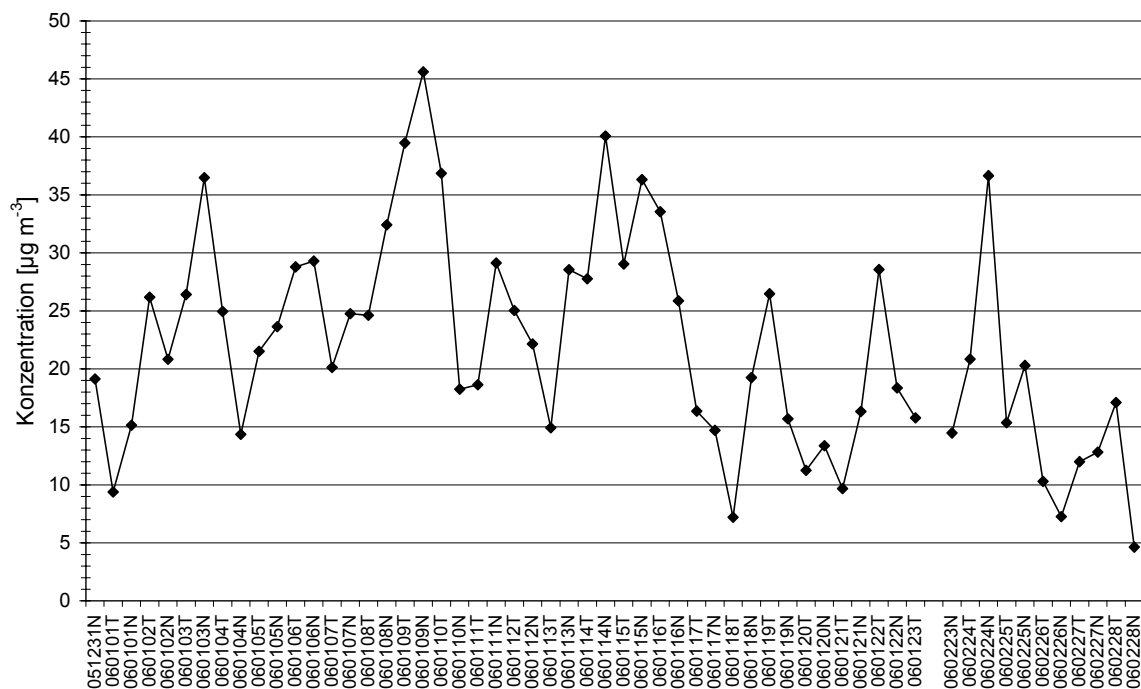


Abbildung 36: PM10 Verlauf in den Rieselfeldern.

5.1.1 Vergleich der PM10-Konzentrationen im Januar und Februar (im städtischen Umland)

Der analysierte Feinstaub der Impaktormessungen ergibt die in Abbildung 37 dargestellten Konzentrationsmittelwerte für die Messperioden im Januar und im Februar sowie für die Mittelung über beider Zeiträume (gesamt). Die mittlere Konzentration der aufsummierten Werte liegt im Januar mit $24 \mu\text{g m}^{-3}$ deutlich über dem Februarwert von $16 \mu\text{g m}^{-3}$. Nitrat ist das Ion mit der höchsten mittleren Konzentration, gefolgt von Sulfat und Ammonium. Der Gesamtkohlenstoff beträgt im Mittel $8,2 \mu\text{g m}^{-3}$ im Januar und $3,9 \mu\text{g m}^{-3}$ im Februar.

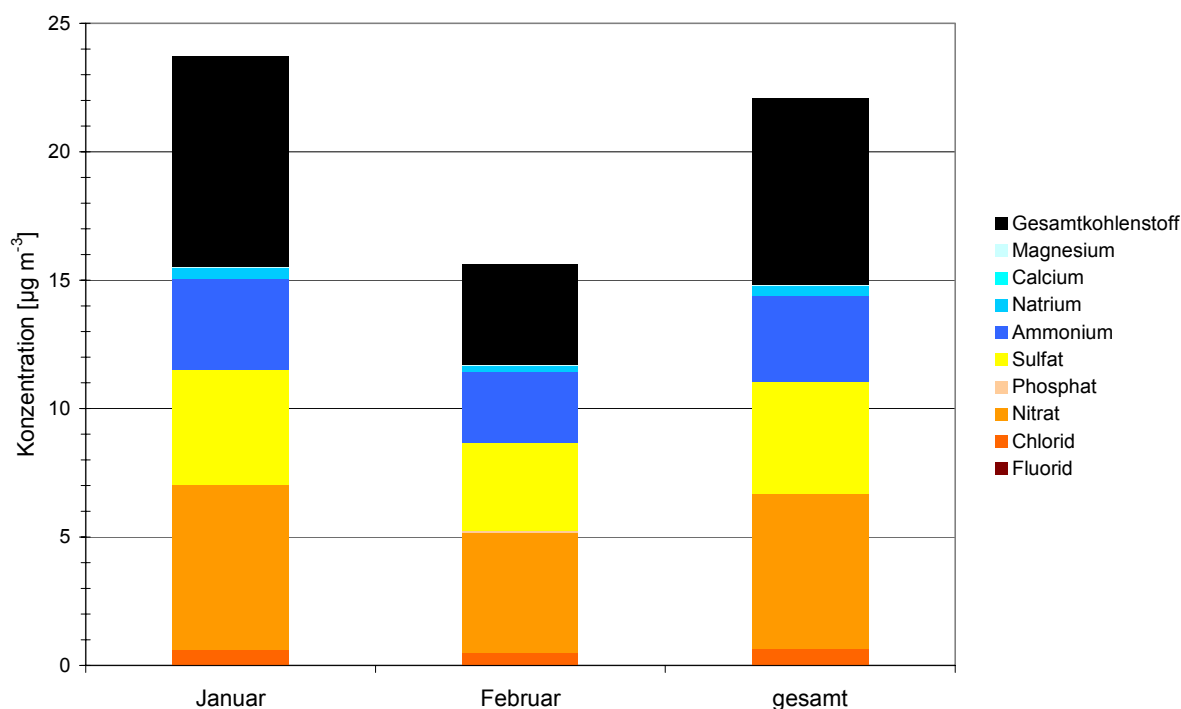


Abbildung 37: Mittelwerte der chemischen Zusammensetzung des PM10 für Januar und Februar 2006 sowie für den Messzeitraum zusammen für die Rieselfelder.

Tabelle 3 bietet eine Übersicht der statistischen Werte bezogen auf die summierten Stufen 1-5 (PM10-Werte) für die betrachteten Zeiträume. Die PM10-Konzentrationen für die einzelnen Stoffe sind mit dem K-S-Test auf Normalverteilung geprüft worden. Einige Ionen (Fluorid, Phosphat, Natrium, Calcium, Magnesium) mit sehr geringen Konzentrationen und nur wenigen Werten im untersuchten Datensatz konnten mit dem K-S-Test nicht als normalverteilt bestätigt werden. Da die überwiegende Mehrheit der Daten normalverteilt ist, kann insgesamt von einer Normalverteilung der Daten ausgegangen werden.

Die Korrelationskoeffizienten sind im Januar für $\text{Na}^+ - \text{Mg}^{2+}$ mit 0,96 am höchsten und betragen für $\text{Na}^+ - \text{Cl}^-$ 0,89 sowie für $\text{Mg}^{2+} - \text{Cl}^-$ 0,90. Die Korrelationen von Natrium, Chlorid und Magnesium sind hoch signifikant. Die Ionen weisen keine bzw. nur sehr geringe Korrelation

mit Calcium auf. Bei den sekundären Bestandteilen korrelieren Ammonium und Nitrat ($r = 0,74$) sowie Ammonium und Sulfat ($r = 0,80$) hoch, Nitrat und Sulfat weisen nur eine geringe Korrelation ($r = 0,25$) auf.

Die Februarwerte sind überwiegend niedriger als die vergleichbaren Daten im Januar (Tabelle 3). Die mittlere Konzentration des Gesamtkohlenstoffs ist im Februar halb so hoch wie im Januar. Die Standardabweichung (gesamt) liegt mit $5,3 \mu\text{g m}^{-3}$ auf gleichem Niveau wie die der Ionen ($5,4 \mu\text{g m}^{-3}$). Die Hauptionen weisen mit $4,7 \mu\text{g m}^{-3}$ (Nitrat), $3,4 \mu\text{g m}^{-3}$ (Sulfat) und $2,8 \mu\text{g m}^{-3}$ (Ammonium) im Februar niedrigere Werte auf als im Januar mit $6,4 \mu\text{g m}^{-3}$ (Nitrat), $4,5 \mu\text{g m}^{-3}$ (Sulfat) und $3,5 \mu\text{g m}^{-3}$ (Ammonium). Ausnahmen sind die höheren Minimalwerte im Februar für Sulfat ($0,92 \mu\text{g m}^{-3}$), Ammonium ($0,59 \mu\text{g m}^{-3}$) und Natrium ($0,04 \mu\text{g m}^{-3}$) sowie die höheren Maxima und Mittelwerte von Fluorid und Phosphat.

Tabelle 3: Statistische Daten der PM10-Werte für die Station Rieselfelder.

		Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	Gesamt- kohlenstoff	PM10 nur Ionen	PM10 gesamt
		$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$
Minimum	ges.	*	*	1,05	*	0,53	0,37	0,03	*	*	*	3,96	4,64
Maximum	ges.	0,05	3,57	12,43	0,28	10,54	6,11	3,21	0,25	0,29	25,44	26,46	45,60
Mittelwert	ges.	0,00	0,64	6,03	0,04	4,35	3,33	0,38	0,03	0,04	7,26	14,75	22,02
Median	ges.	0,00	0,37	5,20	0,00	3,66	3,33	0,13	0,00	0,01	6,80	14,37	20,83
Standardabweichung	ges.	0,01	0,80	3,01	0,07	2,54	1,44	0,64	0,07	0,06	5,25	5,43	9,26
Minimum	Jan.	*	*	1,17	*	0,53	0,37	0,03	*	*	*	5,60	7,21
Maximum	Jan.	0,03	3,57	12,43	0,10	10,54	6,11	3,21	0,25	0,29	25,44	26,46	45,60
Mittelwerte	Jan.	0,00	0,61	6,41	0,01	4,49	3,52	0,42	0,04	0,04	8,20	15,43	23,63
25 % Perzentil	Jan.	0,00	0,17	3,98	0,00	2,56	2,67	0,07	0,00	0,00	4,62	11,62	16,33
Median	Jan.	0,00	0,37	5,77	0,00	4,02	3,63	0,14	0,00	0,01	7,98	15,43	24,63
75 % Perzentil	Jan.	0,00	0,84	8,87	0,00	6,26	4,35	0,27	0,07	0,05	10,11	20,06	28,79
Standardabweichung	Jan.	0,01	0,77	3,02	0,03	2,53	1,41	0,72	0,07	0,06	5,17	5,27	8,91
Minimum	Feb.	*	*	1,05	*	0,92	0,59	0,04	*	*	*	3,96	4,64
Maximum	Feb.	0,05	1,67	8,72	0,28	8,12	5,11	0,88	*	0,10	14,39	22,27	36,65
Mittelwert	Feb.	0,01	0,51	4,65	0,16	3,40	2,77	0,25	*	0,02	3,91	11,77	15,68
25 % Perzentil	Feb.	0,00	0,08	2,72	0,12	2,02	1,91	0,05	*	0,00	0,95	9,04	11,29
Median	Feb.	0,00	0,28	3,91	0,14	2,86	2,63	0,11	*	0,00	3,31	10,19	14,47
75 % Perzentil	Feb.	0,01	0,87	6,67	0,22	4,07	3,77	0,38	*	0,04	5,10	15,33	18,84
Standardabweichung	Feb.	0,02	0,54	2,74	0,08	2,18	1,37	0,29	*	0,04	4,16	5,52	8,56

* = Wert liegt unter der Nachweisgrenze

Ein Vergleich der mittleren Anteile der analysierten Substanzen ist in Abbildung 38 für Januar und in Abbildung 39 für Februar dargestellt. Auffällig ist die Abnahme des Gesamtkohlenstoffanteils von 34 % im Januar auf 25 % im Februar. Im Februar nehmen die Anteile von Ammonium und Sulfat um 3 % sowie Nitrat um 2 % zu. Phosphat ist im Februar ebenfalls mehr vorhanden, wobei der Mittelwert mit $0,16 \mu\text{g m}^{-3}$ sehr gering ist.

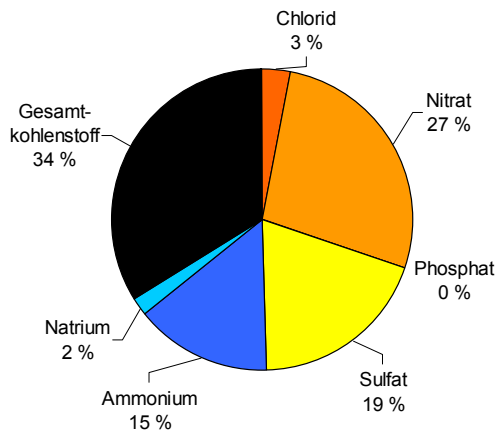


Abbildung 38: Mittlere Anteile am PM10 im Januar.

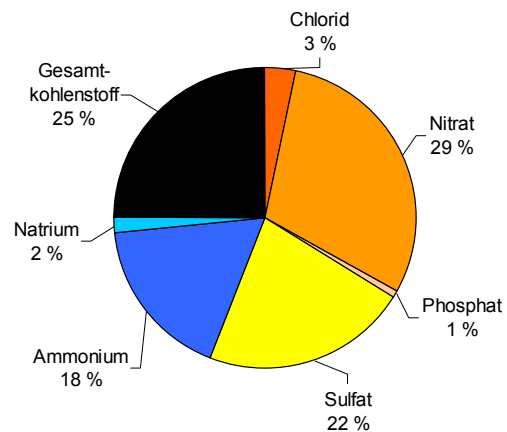


Abbildung 39: Mittlere Anteile am PM10 im Februar.

Die Messungen im Februar unterscheiden sich im Wesentlichen durch einen geringeren Kohlenstoffanteil und insgesamt niedrigere PM10-Konzentrationen von den Januarwerten. Die Februarproben wurden zu anderen Zeiten genommen als die Januarproben. Sie sollen die Konzentrationen zu den Hauptverkehrszeiten (vgl. 3.3) in den Rieselfeldern widerspiegeln. Eine Erhöhung der typischen verkehrsbedingten PM10-Komponenten (Kohlenstoff, Nitrat) oder die Zunahme der Calciumkonzentration kann Hinweise auf einen verstärkten Verkehrseinfluss geben (JOHN & KUHLBUSCH 2004). Ein Verkehrseinfluss lässt sich beim Vergleich Januar mit Februar jedoch nicht erkennen. Bei den Verkehrsmessungen ist die Kohlenstoffkonzentration sogar deutlich niedriger. Die Ursachen für die Abnahme im Februar sind vorwiegend in der unterschiedlich zusammengesetzten Feinstaubhintergrundkonzentration zu sehen sowie einer anderen Witterung im Vergleich zum Januar.

Die Korrelationen deuten auf eine gemeinsame Quelle der drei häufigsten Seesalze Natrium, Magnesium und Chlorid hin (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000). Calcium kann sowohl aus maritimem Ursprung als auch aus Erdkrustenmaterial stammen, letzteres ist hier aufgrund der schlechten Korrelation mit den übrigen Seesalzen wahrscheinlicher. Die drei Ionen Natrium, Magnesium und Chlorid haben einen mittleren Masseanteil von etwa 8 % am PM10. Allerdings ist der Anteil in den einzelnen Messungen stark schwankend.

Wichtige Hauptbestandteile in der ionischen Zusammensetzung sind die sekundär gebildeten Verbindungen Ammoniumnitrat (NH_4NO_3) und Ammoniumsulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) (SEINFELD & PANDIS 2006). Sie bilden sich vor allem durch atmosphärische Reaktionen in der Gasphase mit Ammoniak (NH_3), Stickoxiden (NO_x) und Schwefelverbindungen.

5.1.2 Größensortierte Auswertung der Ergebnisse (im städtischen Umland)

Im Folgenden werden die 45 Messungen im Januar detaillierter vorgestellt. Tabelle 4 zeigt die mittleren Konzentrationen je Impaktorstufe und analysiertem Stoff sowie die Anteile der Ionen und des Kohlenstoffs am gesamten Mittelwert der Stufe. Auf der kleinsten Stufe (Stufe 1) ist der Kohlenstoffanteil mit 82 % am größten, auf Stufe 5 mit etwa 6 % am geringsten. Die höchsten mittleren Gesamtkohlenstoffkonzentrationen treten auf Stufe 3 ($3,7 \mu\text{g m}^{-3}$) und Stufe 2 ($2,4 \mu\text{g m}^{-3}$) auf, der Anteil liegt etwa bei 30-40 %.

Die Ionen dominieren auf den Stufen 2 bis 5. Die höchsten mittleren Konzentrationen werden vorwiegend auf der 3. Stufe erreicht. Nitrat ($3,8 \mu\text{g m}^{-3}$) hat die höchste Konzentration und einen Anteil von 20-30 %, gefolgt von Kohlenstoff ($3,7 \mu\text{g m}^{-3}$), Sulfat ($2,9 \mu\text{g m}^{-3}$) und Ammonium ($2,2 \mu\text{g m}^{-3}$). Natrium tritt auf der 4. und 5. Stufe deutlich in Erscheinung, Calcium und Magnesium haben nur geringe Konzentrationen und Anteile bis maximal 3 % am PM10. Sie erreichen ihre höchsten mittleren Konzentrationen auf der 4. Stufe. Die Stufe 5 weist insgesamt die niedrigsten Konzentrationen auf.

Tabelle 4: Mittelwerte je Stufe für Januar-Messungen Rieselfelder.

	Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	Gesamt- kohlenstoff	Anteil Ionen	Anteil Kohlenstoff
	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	%	%
Stufe 1	*	0,01	0,07	*	0,05	0,04	-	-	-	0,82	18	82
Stufe 2	*	0,11	1,64	0,002	0,90	0,85	-	-	-	2,35	60	40
Stufe 3	0,002	0,29	3,84	0,003	2,93	2,19	0,07	0,010	0,005	3,66	72	28
Stufe 4	*	0,19	0,68	0,002	0,62	0,35	0,23	0,023	0,023	1,21	64	36
Stufe 5	*	0,07	0,13	0,003	0,08	0,03	0,13	0,009	0,011	0,03	94	6

* = Wert liegt unter der Nachweisgrenze; - = wurde nicht analysiert

Eine weitere Untergliederung der einzelnen Stufen in Tag- und Nacht-Messungen (9:00-15:00 Uhr und 16:30-20:30 Uhr MEZ) im Januar ist in Abbildung 40 dargestellt. Die Kreisdiagramme weisen die Anteile der einzelnen Bestandteile auf, zusätzlich ist die mittlere Gesamtkonzentration angegeben. Die mittleren Gesamtkonzentrationen auf Stufe 1 und 5 unterscheiden sich kaum zwischen Tag und Nacht. In der Nacht sind sie auf den Stufen 2-4 geringfügig höher.

Die Zusammensetzung der Partikel am Tag und in der Nacht je Stufe ist nahezu identisch und der Unterschied beträgt meistens nur 1-2 %. Auffallend ist der geringe Anteil des Kohlenstoffs auf der 5. Stufe am Tag bzw. das völlige Fehlen von Kohlenstoff in der Nacht. Die weitgehend gleichen Tag- und Nachtkonzentrationen zeigen ähnlich wie der Vergleich Januar-Februar keine großen Veränderungen.

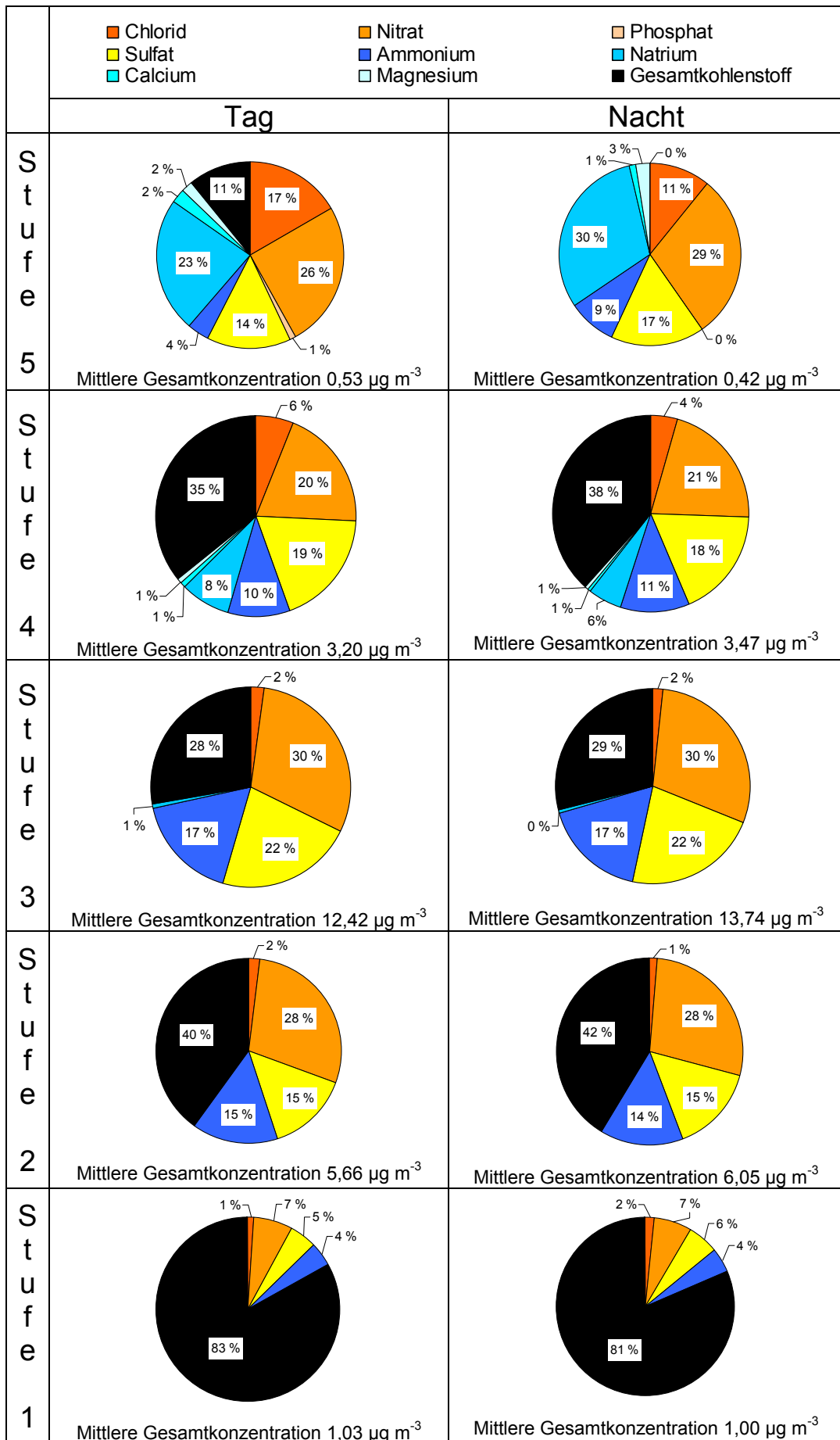


Abbildung 40: Stufenweiser Vergleich von Tag- und Nacht-Messungen im Januar in den Rieselfeldern.

Die konstanten Zusammensetzungen zeigen, dass es sich um eine Hintergrundbelastung handelt. Sie wird nicht durch Tagesaktivitäten wie beispielsweise stärkeres Verkehrsaufkommen beeinflusst (HERRMANN et al. 2000). Die analysierte Partikelmasse zeigt eine typische Verteilung. Bei den größeren Partikeln haben die Ionen, die aus Seesalz oder Krustenmaterial stammen, einen großen Anteil. Bei den mittleren Partikeln im Bereich des accumulation mode dominieren die sekundären Partikelbestandteile (Nitrat, Sulfat, Ammonium) und Kohlenstoff. Der Gesamtkohlenstoff hat bei den kleinsten Partikeln die größte Bedeutung. Eine genauere Betrachtung des Kohlenstoffs findet in Kapitel 5.3.4 statt.

5.2 Analyse der Impaktormessungen in der Steinfurter Straße (Stadt)

Der Verlauf der PM₁₀ Gesamtkonzentrationen für den Messstandort Steinfurter Straße ist in Abbildung 41 vom 06.01.06 bis 23.01.06 und vom 23.02.06 bis 28.02.06 dargestellt. Die PM₁₀-Werte liegen zwischen 13 $\mu\text{g m}^{-3}$ und 53 $\mu\text{g m}^{-3}$. Spitzenwerte von über 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ wurden am 10.01.06 tags und 14.01.06 nachts erreicht. Dieser 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ -Wert darf nicht mit dem PM₁₀-Grenzwerte verwechselt werden, der einen anderen Mittelungszeitraum (24 h) umfasst (vgl. IV Abkürzungen und Definitionen). Die Konzentrationen repräsentieren im Januar einen 6-Stundenwert und im Februar einen 4-Stundenwert (vgl. 3.3). Außerdem ergibt sich der PM₁₀-Wert aus der Summe der analysierten Bestandteile und nicht aus einer gemessenen Gesamtmasse (PM₁₀). Die beiden Messperioden werden im folgenden Kapitel miteinander verglichen.

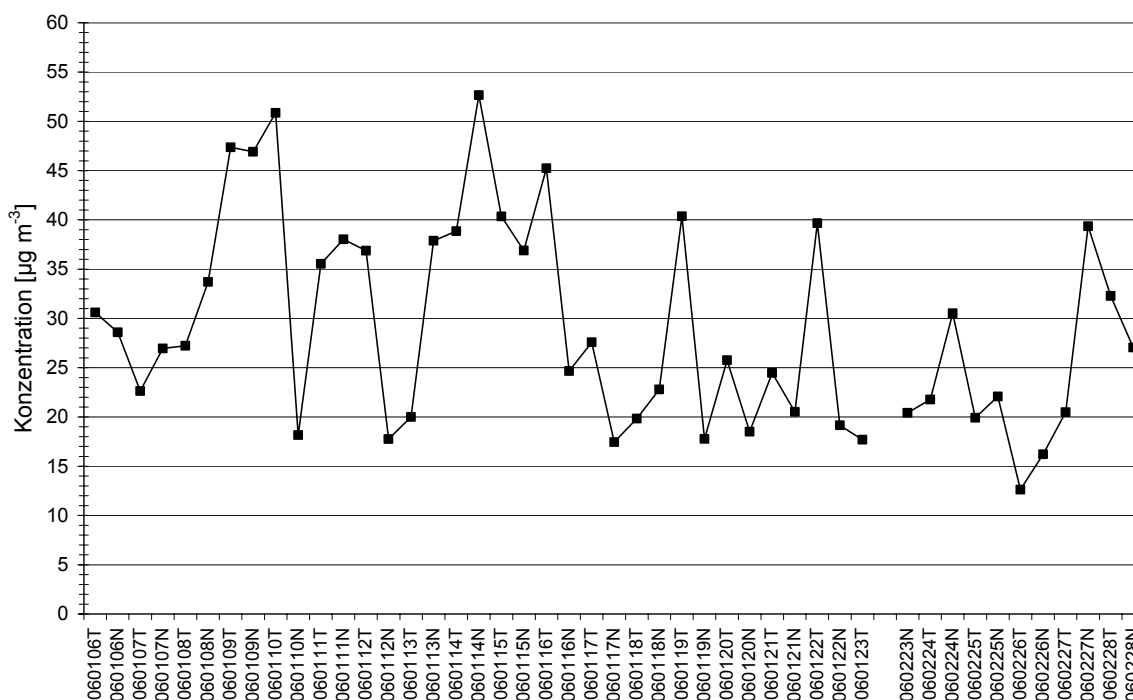


Abbildung 41: PM₁₀ Verlauf an der Steinfurter Straße.

5.2.1 Vergleich der PM10-Konzentrationen im Januar und Februar (Stadt)

In Abbildung 42 sind die Mittelwerte der chemischen Zusammensetzung der PM10-Konzentration für beide Probennahmezeiträume getrennt und gemeinsam dargestellt. Insgesamt liegt die mittlere Konzentration bei $29 \mu\text{g m}^{-3}$. Im Januar ist der Mittelwert mit $31 \mu\text{g m}^{-3}$ höher als im Februar mit $24 \mu\text{g m}^{-3}$. Der Kohlenstoffanteil ist in etwa genauso groß wie der Anteil der Ionen, der sich im Wesentlichen aus Nitrat, Sulfat und Ammonium zusammensetzt. Natrium, Calcium und Chlorid spielen nur eine untergeordnete Rolle. Auch die übrigen Ionen Fluorid, Phosphat und Magnesium haben für die Gesamtbetrachtung und den Beitrag zu den PM10-Summen keine Bedeutung, da die Konzentrationen sehr gering sind und nur wenige Werte über der Nachweisgrenze liegen.

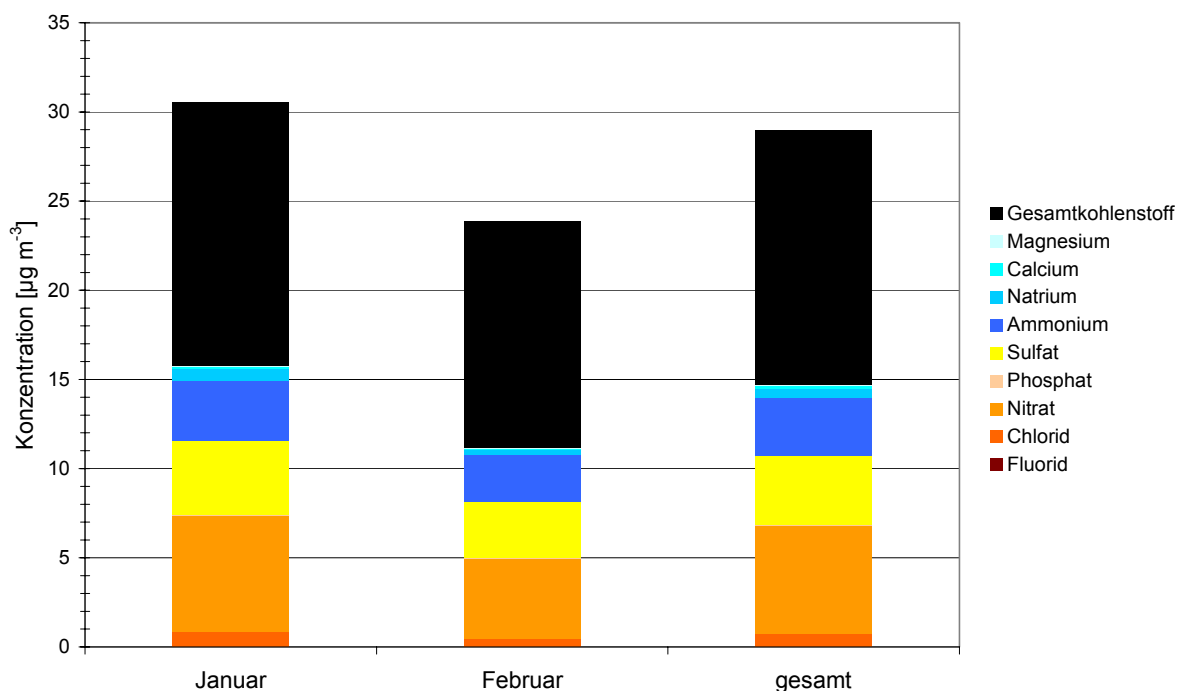


Abbildung 42: Mittelwerte der chemischen Zusammensetzung des PM10 für Januar und Februar 2006 sowie für den Messzeitraum zusammen für Steinfurter Straße.

Tabelle 5 zeigt die jeweiligen Mittelwerte sowie weitere statistische Kenngrößen für die PM10-Werte der städtischen Messstation. Die PM10-Werte der einzelnen Substanzen sind nach dem K-S-Test überwiegend normalverteilt, so dass insgesamt von einer Normalverteilung der Daten ausgegangen wird (vgl. 5.1.1).

Die statistischen Werte für Februar sind niedriger als die vergleichbaren Werte im Januar. Ausnahmen sind die höheren Minimal-Konzentrationen für Sulfat, Ammonium und Gesamtkohlenstoff im Februar. Der Median für Natrium ist in beiden Messreihen identisch. Der Unterschied zwischen den mittleren Gesamtkohlenstoffkonzentrationen im Januar

(15 $\mu\text{g m}^{-3}$) und im Februar (13 $\mu\text{g m}^{-3}$) ist nur gering. Die Kohlenstoffkonzentration erreicht Werte zwischen 4,3 $\mu\text{g m}^{-3}$ (Minimum Januar) und 35 $\mu\text{g m}^{-3}$ (Maximum Januar). Die Standardabweichung ist mit 7,5 $\mu\text{g m}^{-3}$ (gesamter Messzeitraum) höher als die Standardabweichung der Ionen (5,2 $\mu\text{g m}^{-3}$).

Im Januar tragen die Mittelwerte von Chlorid (0,80 $\mu\text{g m}^{-3}$) und Natrium (0,56 $\mu\text{g m}^{-3}$) in geringem Maße zur Gesamt-PM10-Konzentration bei, die beiden Ionen sind in jeder PM10-Messung nachgewiesen worden. Die über alle Stufen summierten Werte von Chlorid und Natrium haben einen sehr hohen Korrelationskoeffizienten von 0,94. Sie korrelieren ebenfalls sehr hoch mit der Magnesiumkonzentration ($\text{Mg}^{2+}\text{-Cl}^-$ 0,93 bzw. $\text{Na}^+\text{-Mg}^{2+}$ 0,94). Die Korrelationen sind hoch signifikant. Die drei Ionen zusammen ergeben einen möglichen mittleren Seesalz-Massenanteil von 6 %, der durch den Einsatz von Streusalz an der Steinfurter Straße beeinflusst wird (vgl. Kapitel 5.3.3). Im Gegensatz zu den drei Seesalzen korreliert Calcium sehr gering bzw. gar nicht mit den anderen Ionen. Bei den sekundären Bestandteilen korrelieren Ammonium und Nitrat ($r = 0,77$) sowie Ammonium und Sulfat ($r = 0,73$) hoch, Nitrat und Sulfat weisen nur eine geringe Korrelation ($r = 0,25$) auf.

Tabelle 5: Statistische Daten der PM10-Werte für die Station Steinfurter Straße.

		Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	Gesamt- kohlenstoff	PM10 nur Ionen	PM10 gesamt
		$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$
Minimum	ges.	*	*	1,18	*	0,65	0,45	0,04	*	*	4,34	4,56	12,61
Maximum	ges.	0,26	4,94	11,95	0,31	12,22	6,13	4,06	0,73	0,31	34,86	28,45	52,66
Mittelwerte	ges.	0,01	0,75	6,04	0,02	3,92	3,20	0,56	0,13	0,04	14,29	14,67	28,95
Median	ges.	0,00	0,41	5,43	0,00	3,07	3,20	0,20	0,02	0,01	11,86	14,39	27,00
Standardabweichung	ges.	0,04	0,93	2,80	0,05	2,40	1,31	0,79	0,18	0,06	7,50	5,20	10,41
Minimum	Jan.	*	*	1,57	*	0,65	0,45	0,05	*	*	4,34	6,91	17,45
Maximum	Jan.	0,26	4,94	11,95	0,31	12,22	6,13	4,06	0,73	0,31	34,86	28,45	52,66
Mittelwert	Jan.	0,01	0,85	6,51	0,01	4,16	3,38	0,64	0,15	0,05	14,78	15,77	30,55
25 % Perzentil	Jan.	0,01	1,18	8,67	0,00	5,95	4,27	0,86	0,27	0,08	21,86	19,01	39,60
Median	Jan.	0,00	0,44	5,59	0,00	3,08	3,42	0,20	0,08	0,01	12,39	15,61	27,56
75 % Perzentil	Jan.	0,00	1,27	8,67	0,00	5,68	4,19	0,86	0,25	0,08	19,80	19,47	38,44
Standardabweichung	Jan.	0,04	1,02	2,84	0,06	2,57	1,32	0,87	0,20	0,07	7,91	5,08	10,73
Minimum	Feb.	*	*	1,18	*	1,12	0,68	0,04	*	*	5,66	4,56	12,61
Maximum	Feb.	0,03	1,03	8,00	0,10	5,85	4,57	0,84	0,28	0,09	25,31	15,93	39,35
Mittelwert	Feb.	0,01	0,44	4,53	0,04	3,14	2,64	0,29	0,07	0,02	12,72	11,16	23,88
25 % Perzentil	Feb.	0,00	0,05	3,13	0,00	1,95	1,61	0,09	0,00	0,00	8,53	7,69	20,16
Median	Feb.	0,00	0,22	4,57	0,00	2,92	3,04	0,20	0,00	0,00	11,66	12,31	21,77
75 % Perzentil	Feb.	0,00	0,79	5,52	0,10	3,73	3,45	0,44	0,16	0,03	15,56	14,71	28,79
Standardabweichung	Feb.	0,01	0,43	2,13	0,05	1,61	1,19	0,27	0,10	0,04	6,07	4,04	7,73

* = Wert liegt unter der Nachweisgrenze

Die prozentualen Anteile der mittleren PM10-Konzentrationen sind für die Januar- und Februar-Messungen in Abbildung 43 und Abbildung 44 gegenübergestellt. Der Gesamtkohlenstoff hat im Januar mit 49 % den höchsten Anteil, gefolgt von Nitrat (21 %), Sulfat (14 %) und Ammonium (11 %). Der Kohlenstoffanteil ist im Februar um 5 % höher. Die Verteilung der übrigen Bestandteile ist trotz deutlich unterschiedlicher Mittelwerte und PM10-Konzentration ähnlich.

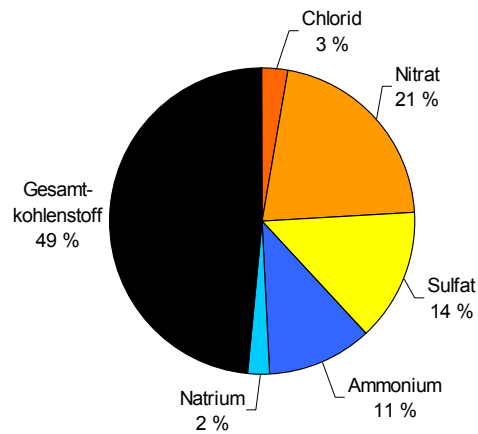


Abbildung 43: Mittlere Anteile am PM10 im Januar.

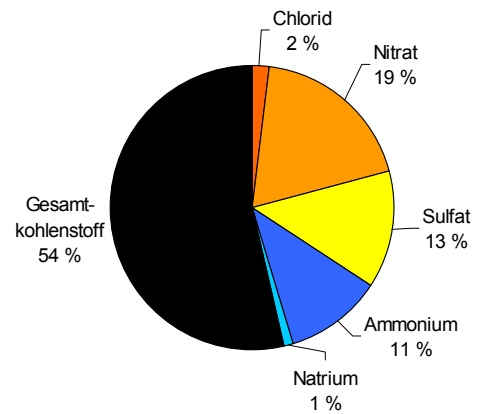


Abbildung 44: Mittlere Anteile am PM10 im Februar.

Die Messungen zur Hauptverkehrszeit im Februar unterscheiden sich im Wesentlichen durch niedrigere Konzentrationen von den Januarmessungen. Dies kann nicht auf einen verstärkten Verkehrseinfluss zurückgeführt werden, sondern liegt, vermutlich wie in den Rieselfeldern, an einer unterschiedlichen Hintergrundzusammensetzung des PM10, die mit durch die Witterung bedingt ist. Die geringe Zunahme des Gesamtkohlenstoffanteils in der Steinfurter Straße kann ihre Ursache im Verkehr haben. Die verstärkte Belastung durch die Verkehrsemissionen wird zunächst nicht deutlich. Dennoch lässt sich im Gegensatz zu der Station Rieselfelder ein Unterschied im Vergleich von Januar- zu Februarmessungen erkennen, der in größensortierter Auflösung genauer untersucht wird.

5.2.2 Größensortierte Auswertung der Ergebnisse (Stadt)

Die Mittelwerte der 35 Messungen im Januar werden in Tabelle 6 nach Stufen getrennt dargestellt. Auf der kleinsten Stufe mit einem mittleren Durchmesser von etwa $0,1 \mu\text{m}$ (vgl. 3.1.1) ist überwiegend Kohlenstoff (84 %) zu finden, die Ionen Nitrat, Sulfat und Ammonium haben nur geringe Konzentrationen. Bei den Partikeln der 2. Stufe dominiert ebenfalls der Gesamtkohlenstoff mit knapp 60 %. Im Vergleich zur 1. Stufe erhöhen sich die Konzentrationen von Nitrat, Sulfat und Ammonium deutlich, Chlorid kommt mit $0,10 \mu\text{g m}^{-3}$ hinzu. Die Stufe 3 kann mit den hohen Konzentrationen dem Akkumulationsbereich (accumulation range) zugeordnet werden. Gesamtkohlenstoff ($5,2 \mu\text{g m}^{-3}$), Nitrat ($4,2 \mu\text{g m}^{-3}$), Sulfat ($2,7 \mu\text{g m}^{-3}$) und Ammonium ($2,3 \mu\text{g m}^{-3}$) erreichen ihre höchsten mittleren Konzentrationen. Die Stufen 3-5 werden von den Ionen dominiert. Die Kationen Natrium, Calcium und Magnesium gewinnen auf Stufe 4 und 5 an Bedeutung. Die Konzentrationen insgesamt nehmen auf der 5. Stufe deutlich ab.

Tabelle 6: Mittelwerte je Stufe für Januar-Messungen Steinfurter Straße.

	Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	Gesamt- kohlenstoff	Anteil Ionen	Anteil Kohlenstoff
	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	%	%
Stufe 1	*	0,04	0,26	0,001	0,15	0,14	-	-	-	3,16	16	84
Stufe 2	0,007	0,10	1,21	0,009	0,59	0,64	-	-	-	3,79	40	60
Stufe 3	0,001	0,25	4,17	0,004	2,68	2,26	0,09	0,025	0,007	5,21	65	35
Stufe 4	*	0,22	0,69	*	0,64	0,31	0,26	0,050	0,022	1,96	53	47
Stufe 5	0,002	0,24	0,18	*	0,10	0,03	0,30	0,073	0,020	0,65	60	40

* = Wert liegt unter der Nachweisgrenze; - = wurde nicht analysiert

Die Tag- und Nacht-Messungen (9:00-15:00 Uhr und 16:30-20:30 Uhr) im Januar in der Steinfurter Straße werden in Abbildung 45 dargestellt. Die Anteile werden stufenweise in Kreisdiagrammen für die Tag- und Nachtmittelwerte gegenübergestellt. Die angegebenen mittleren Gesamtkonzentrationen der Ionen und Kohlenstoff zusammen zeigen, dass die Konzentrationen am Tag höher sind als in der Nacht. Auf Stufe 3 sind die mittleren Gesamtkonzentrationen Tag ($14,6 \mu\text{g m}^{-3}$) und Nacht ($14,8 \mu\text{g m}^{-3}$) nahezu gleich, während sie beispielsweise auf Stufe 5 mit $2,2 \mu\text{g m}^{-3}$ tags doppelt so hoch ist wie nachts ($1,0 \mu\text{g m}^{-3}$).

Die Tag-Nacht Unterschiede in der Zusammensetzung der Konzentration sind auf Stufe 5 am auffälligsten (Abbildung 45). Der Anteil des Gesamtkohlenstoffs nimmt von 49 % am Tag auf 22 % in der Nacht ab und erreicht den geringsten Anteil im Vergleich zu den anderen Stufen. Dadurch sind die Anteile von Natrium (22 %), Nitrat (20 %) und Chlorid (18 %) auf Stufe 5 nachts deutlich höher. Umgekehrt verhält es sich mit Calcium, das tagsüber mit 6 % auf Stufe 5 verstärkt auftritt. Die bereits erwähnte Dominanz des Gesamtkohlenstoffs auf Stufe 1 und 2 wird in der Darstellung als Kreisdiagramm (Abbildung 45) veranschaulicht.

Einige Substanzen zeigen über alle Stufen eine bestimmte Tag-Nacht-Verteilung. Die Gesamtkohlenstoffkonzentration ist auf allen Stufen nachts geringer, dies gilt sowohl für die absoluten Werte wie auch für die Anteile an der Gesamtkonzentration. Die Nitratkonzentration verhält sich umgekehrt und ist besonders auf den Stufen 3-5 nachts höher. Ammonium tritt nachts ebenfalls verstärkt auf, bei Sulfat ist eine Tendenz zum verstärkten nächtlichen Auftreten erkennbar. Die Unterschiede in der Tag-Nacht-Verteilung der Bestandteile treten besonders bei den mittleren und großen Feinstaubpartikeln auf. Die geringen Anteile der Ionen auf Stufe 1 haben nur eine beschränkte Aussagekraft. Werden die absoluten Tag-Nacht-Werte von Nitrat ($0,32 \mu\text{g m}^{-3}/0,20 \mu\text{g m}^{-3}$), Sulfat ($0,17 \mu\text{g m}^{-3}/0,12 \mu\text{g m}^{-3}$) und Ammonium ($0,17 \mu\text{g m}^{-3}/0,11 \mu\text{g m}^{-3}$) betrachtet, zeigen sich hier im Gegensatz zu den größeren Partikeln am Tag höhere Konzentrationen.

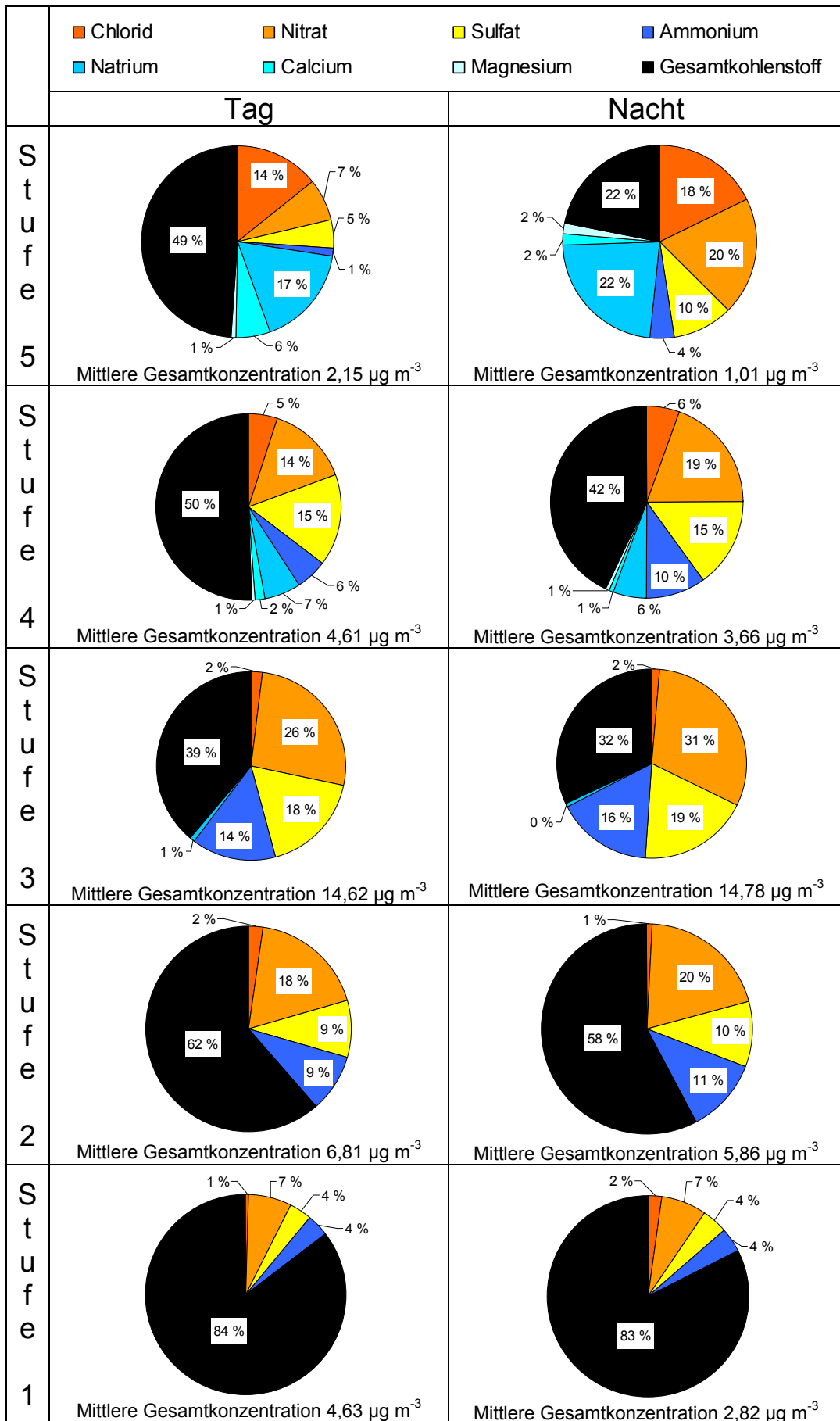


Abbildung 45: Stufenweiser Vergleich von Tag- und Nacht-Messungen im Januar an der Steinfurter Straße.

Die höhere Nitratkonzentration der Partikel in der Nacht erklärt sich durch die z. T. lichtabhängigen Reaktionen des Stickstoffs in der Atmosphäre. Die Emissionen von NO_x haben ihren Ursprung in Verbrennungsprozessen (KRdL 2006). NO_2 kann nachts nicht mehr durch Sonnenlicht gespalten werden und somit erhöht sich seine Konzentration. Die Reaktion von NO_2 mit OH-Radikalen zu HNO_3 , das hohes Partikelbildungspotential hat, nimmt zu (SEINFELD & PANDIS 2006). HNO_3 kann mit Ammoniak (NH_3) zu festem Ammoniumnitrat (NH_4NO_3) reagieren. Dies erklärt sowohl die nachts erhöhten Nitratkonzentrationen als auch die erhöhten Ammoniumkonzentrationen. Die nächtlich erhöhten Nitratkonzentrationen wurden in verschiedenen Untersuchungen festgestellt (ANLAUF et al. 2006, STELSON & SEINFELD 1982, VOGT 2005). ANLAUF et al. 2006 nennt neben der Bildung von Ammoniumnitrat die reaktive Aufnahme von N_2O_5 auf Aerosolen als weitere Ursache für eine erhöhte Nitratkonzentration in der Nacht.

Da die Tag-Nacht Unterschiede überwiegend bei den mittleren bis groben Partikel auftreten, trägt das Ammoniumnitrat im Wesentlichen zu einem Partikelwachstum und weniger zu einer Partikelneubildung bei. Eine Partikelneubildung lässt sich eher an den höheren Tageskonzentrationen von Nitrat, Sulfat und Ammonium auf Stufe 1 erkennen, die Betrachtungen reichen für eine eindeutige Aussage nicht aus.

Am Tag entstehen durch ein größeres Verkehrsaufkommen sowie eine verstärkte Heizleistung (Hausbrand) mehr Emissionen, besonders Kohlenstoffverbindungen und Stickoxide. Bei der Verbrennung entstehen besonders kleine Partikel u. a. aus elementarem Kohlenstoff (HERRMANN et al. 2000). Sie haben ein hohes Partikelbildungspotenzial wie andere organische Verbindungen ebenfalls. Nukleation kann besonders tagsüber bei verstärkter Einstrahlung stattfinden (HELD et al. 2004, BOY & KULMALA 2002). Die Partikelbildungsprozesse wurden im Sommer beobachtet und können aufgrund der Datenlage in der Steinfurter Straße nicht gezeigt werden.

Der tagsüber stärkere Straßenverkehr spiegelt sich in der Calciumkonzentration sehr gut wider, da es hauptsächlich aus Aufwirbelungsprozessen stammt (JOHN & KUHLBUSCH 2004). Straßenstaub gilt als eine Hauptquelle von Calcium, da Straßenbelag oft Kalksteinbestandteile enthält (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000). Die Aufwirbelung durch den Verkehr wirkt sich am stärksten auf die größeren Partikel aus (JOHN & KUHLBUSCH 2004, FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000) und kann als Erklärung des Calciummaximums sowie der hohen Partikelgesamtkonzentration am Tag auf Stufe 5 dienen.

5.3 Vergleich der beiden Standorte städtisches Umland und Stadt

Nach der Vorstellung der Daten für die außerhalb gelegene Station Rieselfelder (5.1) und die städtische Messstation Steinfurter Straße (5.2) werden die Messergebnisse in diesem Kapitel miteinander verglichen. Die Gegenüberstellungen beziehen sich auf exakt vergleichbare Daten und Zeiträume. Der optimale Zeitraum für alle Vergleiche ist die Messperiode vom 06.01.06 bis 23.01.06. Die Ergebnisse vom 23.02.06 bis 28.02.06 sind ebenfalls geeignet. Sie haben einen geringen Probenumfang und werden getrennt von den Januarwerten sowie weniger intensiv betrachtet.

5.3.1 Summierte PM10-Verläufe

In Abbildung 46 sind die PM10-Werte, die sich aus der Summe aller analysierten Ionen und dem Gesamtkohlenstoff ergeben, für die Stadt und die Station Rieselfelder dargestellt. Die Konzentrationen in der Stadt liegen mit wenigen Ausnahmen über den Konzentrationen im Umland. Die Konzentrationen der Nachtproben vom 06.01.06, 10.01.06, 12.01.06 und 16.01.06 sind in den Rieselfeldern höher. Es ist auffallend, dass diese Ausnahmesituation nur nachts auftritt. Der PM10-Mittelwert in den Rieselfeldern liegt vom 06.01.-23.01.06 mit $24 \mu\text{g m}^{-3}$ um mehr als $5 \mu\text{g m}^{-3}$ niedriger als der Mittelwert von $31 \mu\text{g m}^{-3}$ in der Steinfurter Straße. Die Varianz ist in der Stadt mit $115 (\mu\text{g m}^{-3})^2$ höher als im städtischen Umland mit $86 (\mu\text{g m}^{-3})^2$. Die beiden Verläufe haben mit 0,84 einen hohen Korrelationskoeffizienten, es gibt Phasen mit sehr guter Korrelation. Beispiele sind die Messungen vom 07.01.06 Tag bis 09.01.06 Nacht und 13.01.06 Tag bis 15.01.06 Tag. Die Proben vom 19.01.06 Nacht bis 21.01.06 Nacht weisen eine negative Korrelation auf.

Die Unterschiede der PM10-Konzentrationen zwischen den beiden Stationen sind (mit Ausnahmen) nachts geringer als tags. Bei der getrennten Betrachtung von Tag- und Nacht-PM10-Werten ergibt sich bei den Nachtmessungen eine sehr hohe Korrelation (0,93) und bei den Tagproben eine etwas niedrigere Korrelation (0,88). Die Korrelationen sind hoch signifikant.

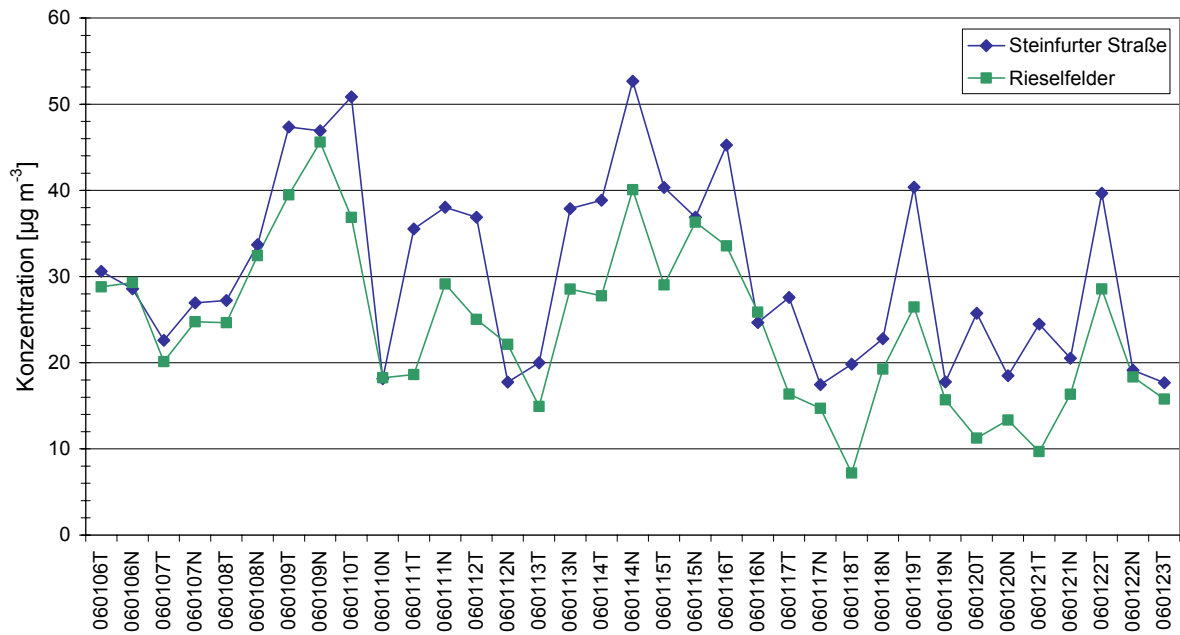


Abbildung 46: Verlauf der PM10-Konzentration.

Abbildung 47 zeigt den Verlauf der aufsummierten analysierten Ionen. Die Ionenkonzentrationen in den Rieselfeldern liegen bei 60 % der 35 Vergleichswerte höher als in der Steinfurter Straße. Die Mittelwerte liegen bei $15,8 \mu\text{g m}^{-3}$ für die Stadt und $15,7 \mu\text{g m}^{-3}$ für das städtische Umland. Der t-Test ergibt keinen signifikanten Unterschied bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von $\alpha = 0,01$, die Mittelwerte der beiden Stationen sind signifikant gleich. Der Korrelationskoeffizient von 0,92 zeigt eine sehr hohe Korrelation und somit einen besseren Parallelverlauf der Ergebnisse als mit Gesamtkohlenstoff. Im Gegensatz zu den Konzentrationen des PM10 (Abbildung 46) ist die Varianz der Ionenkonzentrationen (Abbildung 47) in der Stadt mit $26 (\mu\text{g m}^{-3})^2$ niedriger als in den Rieselfeldern mit $27 (\mu\text{g m}^{-3})^2$.

Die höheren PM10-Werte in der Stadt (Abbildung 46) sind auf höhere Konzentrationen des Gesamtkohlenstoffs zurückzuführen. Dieser durch den Gesamtkohlenstoff bedingte Unterschied ist tagsüber stärker ausgeprägt als nachts. Der Kohlenstoff wird in Kapitel 5.3.4 differenzierter analysiert. Die Konzentration der Ionen insgesamt ist an beiden Standorten etwa gleich.

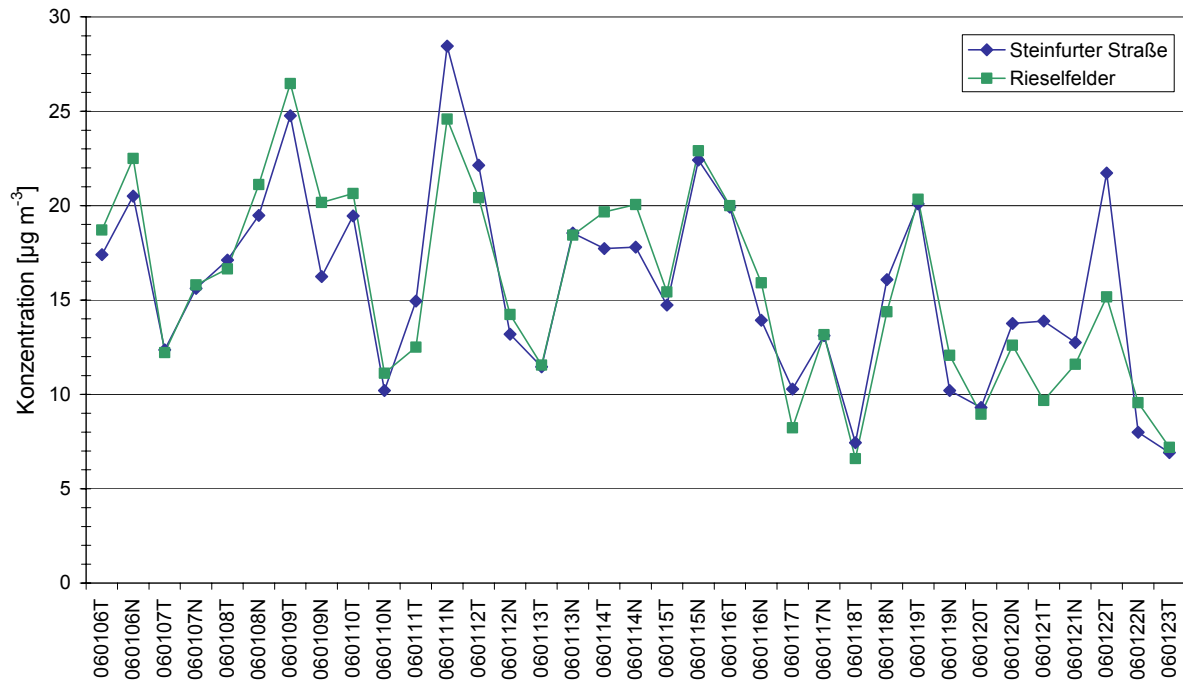


Abbildung 47: Verlauf der Ionenkonzentration.

5.3.2 Vergleich der PM10-Zusammensetzung

Die mittlere Zusammensetzung des PM10 vom 6. bis 23. Januar zeigt den um 14 % höheren Anteil des Gesamtkohlenstoffs in der Steinfurter Straße. Der Anteil beträgt 49 % ($15 \mu\text{g m}^{-3}$) in der Stadt (Abbildung 48) und 35 % ($8,4 \mu\text{g m}^{-3}$) in den Rieselfeldern (Abbildung 49). Die Anteile von Nitrat (28 %), Sulfat (17 %) und Ammonium (15 %) sind in den Rieselfeldern höher. Allerdings sind die absoluten Werte für Sulfat übereinstimmend und für Nitrat und Ammonium nur $0,2-0,3 \mu\text{g m}^{-3}$ höher.

Die Anteile von Chlorid (3 %) und Natrium (2 %) sind für beide Standorte identisch. Die absoluten Werte sind im städtischen Umland mit $0,62 \mu\text{g m}^{-3}$ Chlorid gegenüber $0,85 \mu\text{g m}^{-3}$ in der Stadt und $0,42 \mu\text{g m}^{-3}$ Natrium gegenüber $0,64 \mu\text{g m}^{-3}$ Natrium in der Steinfurter Straße niedriger. Die übrigen analysierten Ionen haben sehr geringe Konzentrationen und einen Anteil von weniger als 1 % an den PM10-Mittelwerten.

Die Zusammensetzung des PM10 bestätigt ebenfalls, dass der wesentliche Unterschied zwischen den beiden Standorten der Gesamtkohlenstoff ist. Die Zusammensetzung der Ionen wird im nächsten Abschnitt detaillierter untersucht, um mögliche Unterschiede zwischen Stadt und Umland herauszuarbeiten.

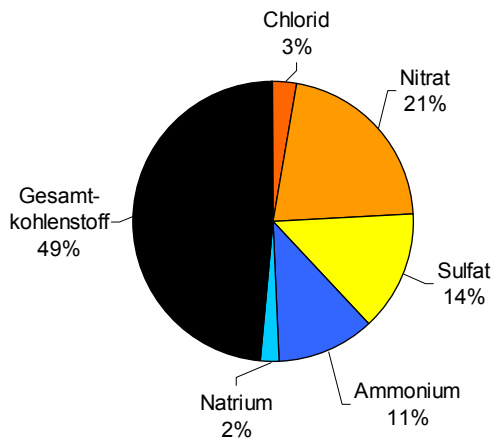


Abbildung 48: Mittlere Zusammensetzung des PM10 in der Steinfurter Straße im Januar.

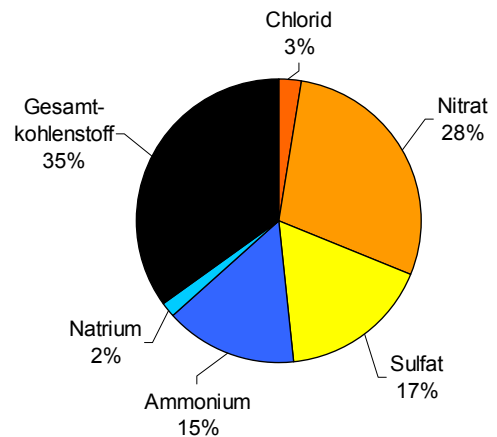


Abbildung 49: Mittlere Zusammensetzung des PM10 in den Rieselfeldern im Januar.

5.3.3 Betrachtung einzelner Ionen

In Abbildung 47 wurde der über alle Stufen und Ionen summierte Verlauf vorgestellt, Abbildung 50 zeigt die Verteilung der Anionen und Kationen je Stufe im direkten Vergleich der beiden Stationen im Januar. Die größten Partikelmassen treten mit knapp $9,5 \mu\text{g m}^{-3}$ in der 3. Impaktorstufe auf, die Stufen 2 und 4 folgen in deutlichem Abstand. Die geringste Ionenkonzentration ist auf der 1. Stufe zu beobachten, die in den Rieselfeldern mit $0,20 \mu\text{g m}^{-3}$ halb so groß wie in der Steinfurter Straße mit $0,44 \mu\text{g m}^{-3}$ ist. Die Gesamtionenkonzentration auf der 5. Stufe ist in den Rieselfeldern ($0,46 \mu\text{g m}^{-3}$) ebenfalls halb so groß wie in der Stadt ($0,95 \mu\text{g m}^{-3}$). Im Gegensatz dazu ergibt sich auf Stufe 2 in den Rieselfeldern ($3,6 \mu\text{g m}^{-3}$) eine um $1 \mu\text{g m}^{-3}$ höhere Konzentration als in der Steinfurter Straße ($2,6 \mu\text{g m}^{-3}$).

Die höheren Ionenkonzentrationen auf bestimmten Stufen sind nicht gerätebedingt (vgl. 4.1). Dies wird bei Betrachtung der vergleichbaren Aufteilung der Ionenkonzentrationen für die Zeit vom 23.02. bis 28.02.06 (Abbildung 51) deutlich. Im Februar sind die Stufen 1, 3 und 4 in der Steinfurter Straße niedriger als im Umland. Dagegen ist die Stufe 2 im Februar im Umland ($2,2 \mu\text{g m}^{-3}$) niedriger als in der Stadt ($2,5 \mu\text{g m}^{-3}$). Im Vergleich Stadt zu Umland sind die höheren Werte auf den Stufen 1 bis 4 im Januar genau umgekehrt. Die Stufe 5 weist sowohl im Januar als auch im Februar in der Stadt die höheren Konzentrationen auf.

Die höhere Ionenkonzentration auf der 5. Stufe in der Steinfurter Straße lässt sich plausibel erklären. Die groben Partikel werden durch verschiedene Prozesse in der Stadt, insbesondere durch den verstärkten Verkehrsfluss, aufgewirbelt (HERRMANN et al. 2000, JOHN & KUHLEBUSCH 2004). Sie konnten deshalb in der Steinfurter Straße verstärkt gemessen werden. In den Rieselfeldern sind diese verkehrsbedingten Aufwirbelungen deutlich geringer.

Aufwirbelungen an offenen Bodenstellen oder durch landwirtschaftliche Prozesse sind nicht festzustellen und eher im Sommer zu erwarten (HERRMANN et al. 2000). Diese könnten sich im Sommer in einer erhöhten Konzentration der 5. Stufe in den Rieselfeldern zeigen.

Für die unterschiedliche Verteilung der Ionen je Stufe und die auf den meisten Stufen niedrigeren Konzentrationen im Februar gegenüber den Januarermessungen konnte keine eindeutige Erklärung gefunden werden. Der Erklärungsversuch durch andere Luftmassenzusammensetzung und Witterungseinflüsse wurde bereits in den vorherigen Kapiteln als mögliche Begründung für die niedrigeren und unterschiedlich zusammengesetzten Partikelkonzentrationen angeführt. Die unterschiedlichen Uhrzeiten und die Dauer der Probenahme (vgl. 3.3) im Februar mögen dabei ebenfalls eine Rolle spielen. So sind die Februarmessungen morgens und abends, während es sich bei den Januarermessungen um Tag- und Nachtmessungen handelt. Ein verstärkter Verkehrseinfluss auf die Partikelkonzentration der Ionen kann die niedrigeren Konzentrationen im Februar und die unterschiedlichen Konzentrationshöhen im Vergleich Umland zu Stadt nicht erklären.

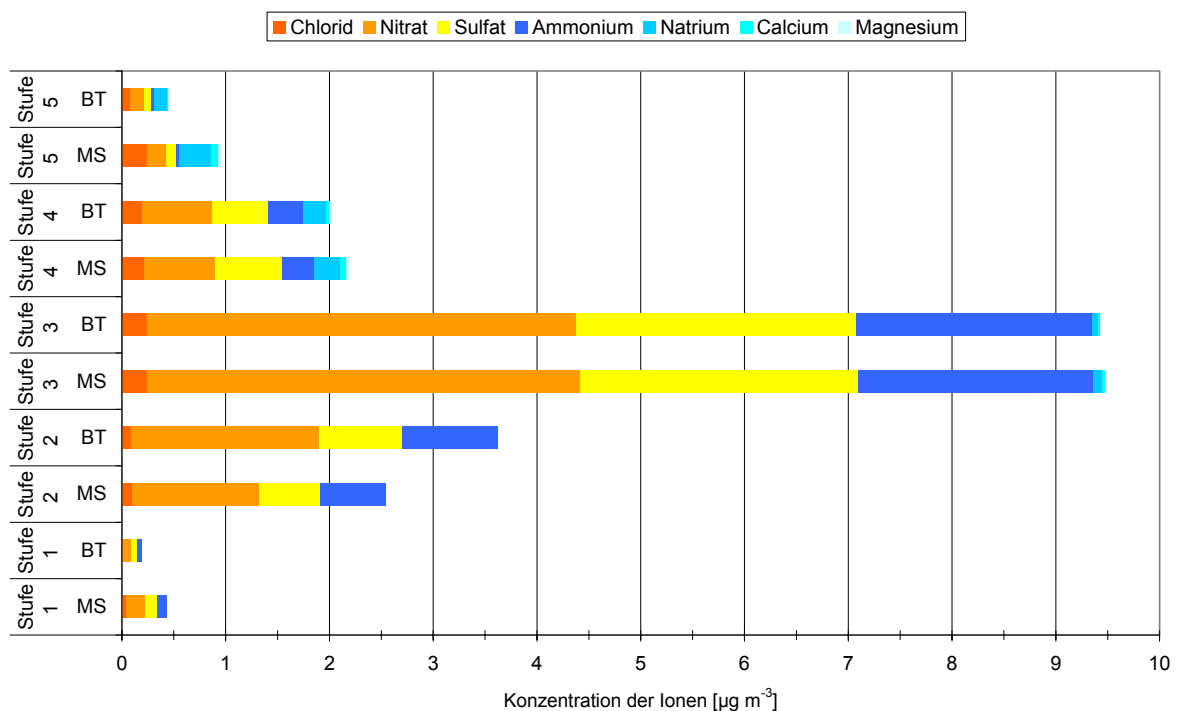


Abbildung 50: Aufteilung der Ionen in den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Januar (06.01.-23.01.06).

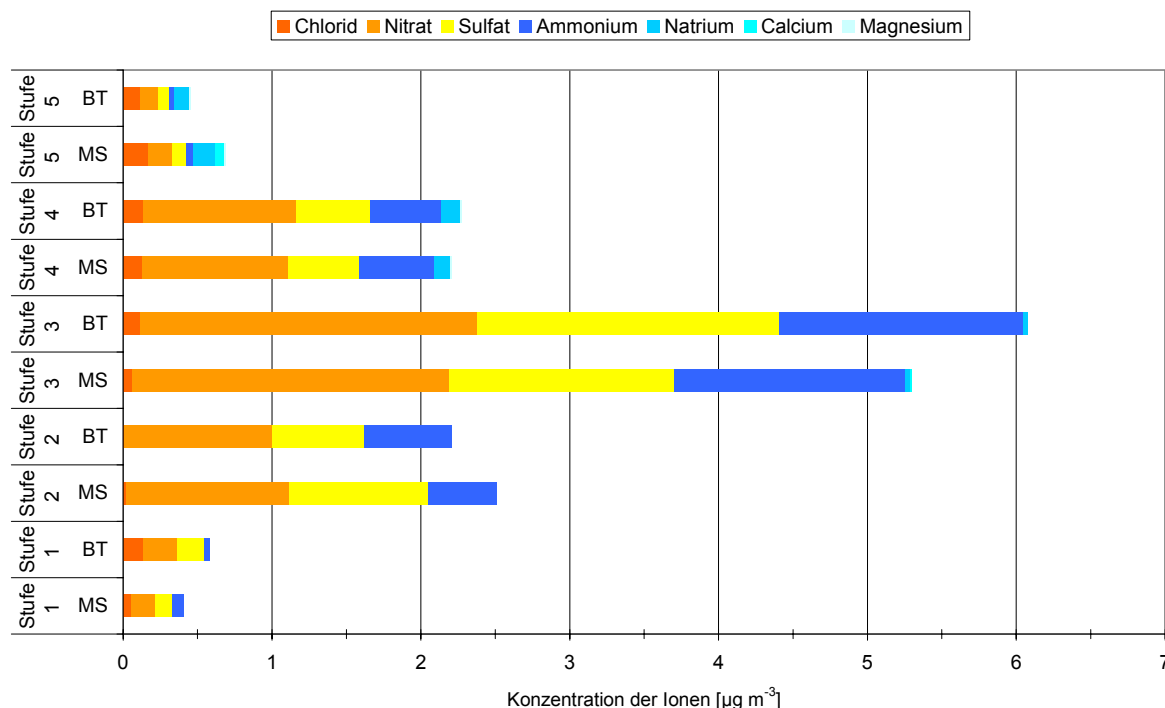


Abbildung 51: Aufteilung der Ionen in den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Februar (23.02.-28.02.06).

Ammonium macht auf den Stufen 1 bis 3 an beiden Standorten ca. ein Viertel der Ionenkonzentration mit Werten zwischen $0,05 \mu\text{g m}^{-3}$ (Stufe 1 BT) bis $2,3 \mu\text{g m}^{-3}$ (Stufe 3 MS) aus. Auf den größeren Stufen sinkt der Ammoniumanteil um 10 % je Stufe auf 15 % (Stufe 4) und 5 % (Stufe 5). In den Rieselfeldmessungen ist der Anteil des Ammoniums auf den Stufen 1, 4 und 5 um 3-4 % höher als in der Steinfurter Straße. Bei den absoluten Werten im Umland ist die Stufe 2 deutlich höher während Stufe 1 in der Stadt höher ist. Der t-Test mit $\alpha = 0,01$ ergibt jeweils auf beiden Stufen einen signifikanten Unterschied der Mittelwerte und bestätigt die Verschiedenheit. Auf den übrigen Stufen ist der Unterschied nur sehr gering ($< 0,02 \mu\text{g m}^{-3}$). Die addierten Ammoniumkonzentrationen der Stufen 1-5 sind in 77 % der Messungen in den Rieselfeldern um im Mittel $0,2 \mu\text{g m}^{-3}$ höher als in der Stadt.

Nitrat ist das Ion mit den höchsten Konzentrationen an beiden Standorten. Es dominiert mit Anteilen von 20 bis 40 % auf allen Stufen mit Ausnahme der 5. Stufe. Die Nitratkonzentration in der Steinfurter Straße auf Stufe 1 ($0,19 \mu\text{g m}^{-3}$) ist deutlich höher als in den Rieselfeldern ($0,08 \mu\text{g m}^{-3}$). Auf Stufe 2 ist die Situation umgekehrt (BT = $1,8 \mu\text{g m}^{-3}$, MS = $1,2 \mu\text{g m}^{-3}$), der Unterschied ist geringer als auf Stufe 1. Auf den übrigen Stufen liegen die Nitratwerte in der Stadt geringfügig ($0,02$ - $0,04 \mu\text{g m}^{-3}$) über denen des Umlandes.

Sulfat als drittes Hauption liegt bei den mittleren Konzentrationen zwischen $0,06 \mu\text{g m}^{-3}$ (Stufe 1 BT) und $2,7 \mu\text{g m}^{-3}$ (Stufe 3 BT). Das entspricht Anteilen von ca. 10 bis 30 % an der Gesamtionenkonzentration. Die Verteilung bei den kleinen Partikeln ist ähnlich wie bei Nitrat

auf Stufe 1 in der Stadt deutlich höher ($MS = 0,11 \mu\text{g m}^{-3}$, $BT = 0,06 \mu\text{g m}^{-3}$) und auf Stufe 2 im Umland höher ($BT = 0,79 \mu\text{g m}^{-3}$, $MS = 0,59 \mu\text{g m}^{-3}$). Stufe 3 liegt im Umland um $0,02 \mu\text{g m}^{-3}$ Sulfat höher, während Stufe 4 und 5 um $0,09 \mu\text{g m}^{-3}$ bzw. $0,03 \mu\text{g m}^{-3}$ in der Stadt höher liegen.

Die Korrelationen der drei Hauptionen sind auf den verschiedenen Stufen unterschiedlich hoch. Es bleiben wenige Unterschiede zwischen den beiden Stationen, die im Januar und im Februar auftreten. Partikel mit einem mittleren Durchmesser von $0,1 \mu\text{m}$ enthalten in der Stadt mehr Ammonium, während Partikel mit einem mittleren Durchmesser von $0,25 \mu\text{m}$ im Umland mehr Ammonium enthalten. Ein verstärkter Einfluss von Ammoniak-Quellen aus der Landwirtschaft (VOGT 2005) lässt sich in den Riesefeldern nicht allgemein feststellen. Allerdings sind die Konzentrationen auf der 2. Stufe deutlich höher. Die zur gleichen Zeit gemessenen hohen Ammoniak-Konzentrationen in der Steinfurter Straße (DICK 2006), die auf den Verkehr (Nebenprodukt von Katalysatoren) zurückgeführt wurden, können mit einer erhöhten Ammonium-Konzentration auf der 1. Stufe in Verbindung gebracht werden. Die direkte Auswirkung von hohen Ammoniak-Konzentrationen auf die Ammoniumgehalte der Partikel konnte in der Steinfurter Straße alleine nicht dargestellt werden (DICK 2006). Der Vergleich mit den Riesefeldern zeigt jedoch die erhöhte Ammoniumkonzentration bei den kleinen Partikeln (Stufe 1) auf. Demnach trägt das Ammoniak aus dem Straßenverkehr eher zu Partikelneubildung bei, während der Ammoniak aus landwirtschaftlichen Quellen in den Riesefeldern zu einem Partikelwachstum beiträgt.

Die Konzentrationen von Chlorid (Abbildung 50) sind für Stadt und Umland auf Stufe 3 (ca. $0,25 \mu\text{g m}^{-3}$) am höchsten und nahezu gleich hoch. Auf den Stufen 1 und 5 sind die Konzentrationen in der Stadt (Stufe 1: $0,04 \mu\text{g m}^{-3}$, Stufe 5: $0,24 \mu\text{g m}^{-3}$) vierfach höher als in den Riesefeldern (Stufe 1: $0,01 \mu\text{g m}^{-3}$, Stufe 5: $0,08 \mu\text{g m}^{-3}$). Auf den Stufen 2 (ca. $0,10 \mu\text{g m}^{-3}$) und 4 (ca. $0,20 \mu\text{g m}^{-3}$) sind die Werte der Steinfurter Straße nur wenige hundertstel μg höher.

Natrium wurde als zweithäufigstes Kation nach Ammonium mit höheren Konzentrationen in der Stadt zwischen $0,03 \mu\text{g m}^{-3}$ (3. Stufe) und $0,30 \mu\text{g m}^{-3}$ (4. Stufe) gemessen. Die Konzentrationen in den Riesefeldern liegen zwischen $0,01 \mu\text{g m}^{-3}$ (3. Stufe) und $0,23 \mu\text{g m}^{-3}$ (4. Stufe). Die Konzentrationen von Calcium und Magnesium erreichen nur ein niedriges Niveau. Calcium ist in der Steinfurter Straße (Stufe 5: $0,07 \mu\text{g m}^{-3}$) deutlich höher als im städtischen Umland (Stufe 5: $0,01 \mu\text{g m}^{-3}$).

Calcium als Indikator für Aufwirbelung und Verkehr (JOHN & KUHLBUSCH 2004, FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000) wurde bereits in Kapitel 5.2.2 im Tag-Nacht-Vergleich diskutiert. In gleicher Weise zeigt der Vergleich der Calciumwerte zwischen Stadt und Umland den deutlichen Verkehrseinfluss in der Steinfurter Straße.

Das Natrium und Chlorid in den Partikeln der Rieselfelder stammt überwiegend aus Seesalz (vgl. 5.1.2), das vom Meer herantransportiert wurde und Bestandteil der Feinstaubhintergrundbelastung ist (HERRMANN et al. 2000). Der Seesalzanteil muss in den Rieselfeldern und der Stadt identisch sein. Die teilweise höheren Konzentrationen in der Steinfurter Straße sind durch den Einsatz von Streusalz zu erklären. Streusalz besteht in der Regel zu mehr als 95 % aus Natriumchlorid (GSF 2005).

5.3.4 Kohlenstoff

Die bisherigen Vergleiche der Partikelzusammensetzung mit Gesamtkohlenstoff haben bei allen Messungen die höheren Kohlenstoff-Konzentrationen am Messstandort Steinfurter Straße gezeigt. Hier soll auf die Trennung in elementaren Kohlenstoff (EC) und organischen Kohlenstoff (OC) sowie deren Verteilung in den einzelnen Größenklassen eingegangen werden.

Abbildung 52 stellt die Summen der Stufen 1-5 der Konzentrationen des organischen Kohlenstoffs je Messung für beide Stationen gegenüber. Die Konzentrationen schwanken im Januar am Standort Steinfurter Straße zwischen $4,2 \mu\text{g m}^{-3}$ und $34 \mu\text{g m}^{-3}$, der Mittelwert beträgt $13 \mu\text{g m}^{-3}$. In den Rieselfeldern liegen die Werte mit einer Ausnahme (12.01.06 Nacht, da der Wert für 2. Stufe MS fehlt) immer darunter. Die Konzentrationen bewegen sich zwischen $0 \mu\text{g m}^{-3}$ und $25 \mu\text{g m}^{-3}$ und betragen im Mittel $8,3 \mu\text{g m}^{-3}$. Die Mittelwerte sind signifikant verschieden (Irrtumswahrscheinlichkeit 0,01), in der Stadt liegt der durchschnittliche Wert etwa 1,5-fach höher. Die OC-Konzentrationen beider Messstationen korrelieren hoch ($r = 0,84$). Im Mittel beträgt der Anteil des organischen Kohlenstoffs am PM10 in der Stadt 45 % ($13 \mu\text{g m}^{-3}$) und in den Rieselfeldern 34 % ($8,1 \mu\text{g m}^{-3}$).

In Abbildung 53 sind die Summen der Stufen 1-5 der Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs je Messung für die zwei Standorte im Januar dargestellt. Die Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs in der Stadt liegen zwischen $0,12 \mu\text{g m}^{-3}$ und $5,4 \mu\text{g m}^{-3}$, während im städtischen Umland nur Werte zwischen 0 und $0,38 \mu\text{g m}^{-3}$ erreicht werden. Die Mittelwerte des ECs liegen in der Stadt ($1,3 \mu\text{g m}^{-3}$) etwa 10-fach höher als im Umland ($0,13 \mu\text{g m}^{-3}$). Es besteht eine sehr geringe Korrelation ($r = 0,08$) zwischen den EC-Werten der beiden Stationen. Der Anteil des elementaren Kohlenstoffs am PM10 beträgt im Mittel 4,4 % ($1,3 \mu\text{g m}^{-3}$) in der Steinfurter Straße und 0,5 % ($0,13 \mu\text{g m}^{-3}$) in den Rieselfeldern.

Ein Unterschied zwischen Proben an Wochenenden (08.01./09.01.06, 15.01./16.01.06 und 22.01./23.01.06) und Werktagen ist nicht festzustellen.

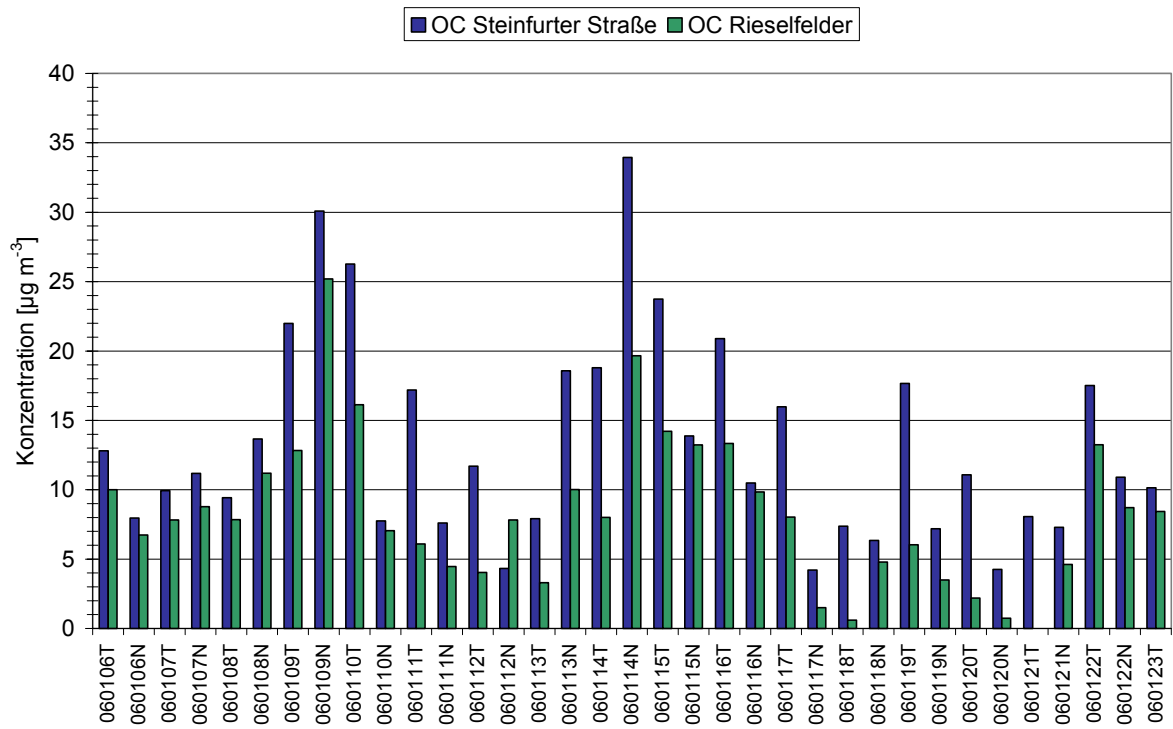


Abbildung 52: Stationsvergleich anhand der Konzentrationen des organischen Kohlenstoffs (Summen Stufe 1-5).

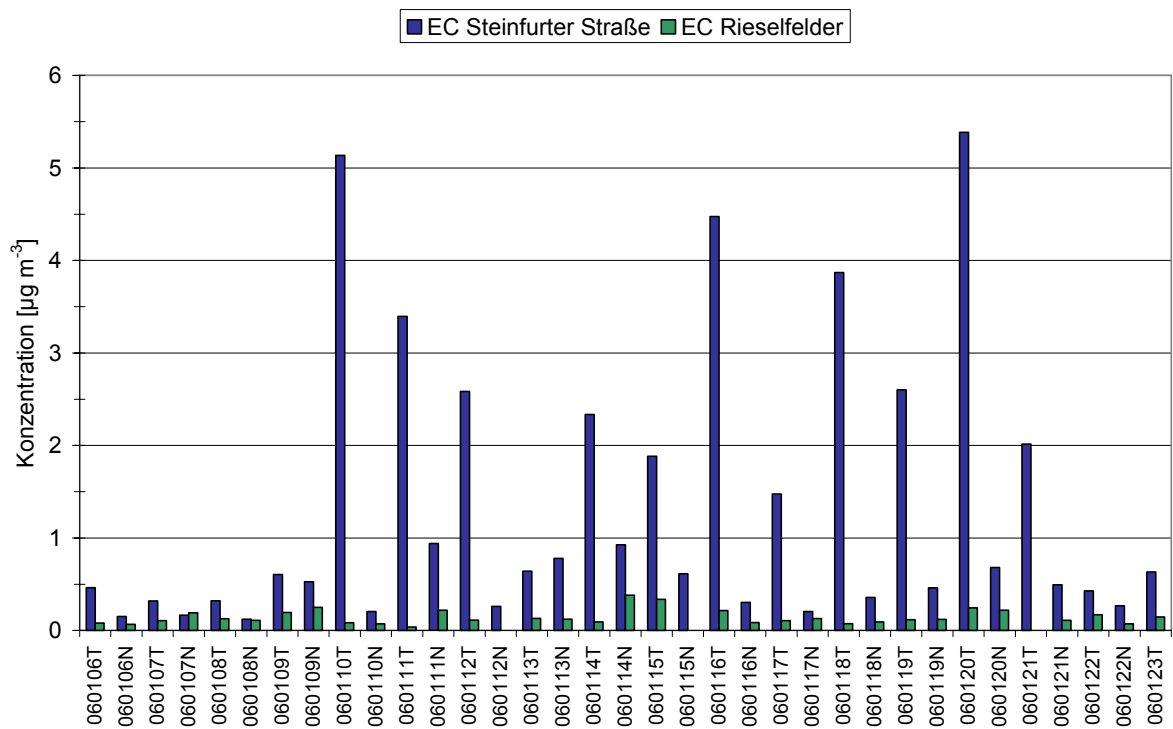


Abbildung 53: Stationsvergleich anhand der Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs (Summen Stufe 1-5).

Die höheren Gesamtkohlenstoffkonzentrationen in der Steinfurter Straße resultieren sowohl aus höheren OC-Konzentrationen als auch aus höheren EC-Konzentrationen. Bei den EC-Werten treten zum Teil extreme Unterschiede auf, so dass die Konzentration in der Stadt mehrfach höher ist als im Umland.

Die Konzentration des Gesamtkohlenstoffs je Stufe (siehe 8 Anhang) zeigt, dass die Konzentrationen in den Riesefeldern, unabhängig von der Stufe, niedriger sind als in der Steinfurter Straße. Nur bei 8 % der Daten wurden in den Riesefeldern vorwiegend auf Stufe 3 und 4 höhere Werte gemessen.

Die mittleren OC- und EC-Konzentrationen je Stufe sind in Abbildung 54 für die beiden Stationen im Januar gegenübergestellt. Sowohl die OC- als auch die EC-Werte sind auf den einzelnen Stufen in den Riesefeldern niedriger. Die Konzentrationen des organischen Kohlenstoffs liegen zwischen $0,51 \mu\text{g m}^{-3}$ (5. Stufe) und $4,9 \mu\text{g m}^{-3}$ (3. Stufe) in der Stadt. In den Riesefeldern werden OC-Konzentrationen von $0,05 \mu\text{g m}^{-3}$ (5. Stufe) bis $3,8 \mu\text{g m}^{-3}$ (3. Stufe) erreicht. Die höchsten Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs werden in der Steinfurter Straße auf Stufe 1 ($0,45 \mu\text{g m}^{-3}$) gemessen. In den Riesefeldern gibt es keine Stufe, auf der der EC dominiert. Die Stufen 3 und 4 können mit einer EC-Konzentration von $0,04 \mu\text{g m}^{-3}$ nicht als einwandfreies Maximum angesehen werden. Auf den Stufen 5 werden wie beim OC die niedrigsten Werte erreicht.

Die OC-Verhältnisse von Riesefeldern zu Steinfurter Straße liegen für die Stufen 1-4 zwischen 1:1,3 (3. und 4. Stufe) bis 1:2,5 (1. Stufe). Dagegen erreichen die EC-Verhältnisse für die Stufen 1-4 Werte zwischen 1:7 (4. Stufe) und 1:23 (1. Stufe). Der Unterschied zwischen Umland und Stadt wird somit besonders beim elementaren Kohlenstoff deutlich.

Der Anteil des elementaren Kohlenstoffs am Gesamtkohlenstoff ist jedoch relativ gering. Er liegt in der Stadt für die einzelnen Stufen 1-5 bei 18 %, 7 %, 6,5 %, 14,5 % und 22,5 %. Der höchste Anteil an EC liegt somit auf der 5. Stufe vor. Im Umland läge der maximale Anteil des ECs ebenfalls auf Stufe 5 (6 %), allerdings lassen die zu niedrigen Konzentrationen (überwiegend unter der Nachweisgrenze) keine repräsentative Aussage zu. Als maximaler Anteil in den Riesefeldern sollten besser die 3 % EC-Anteil am Gesamtkohlenstoff auf den Stufen 1 und 4 gelten.

Die Abbildung 55 stellt analog zu der Abbildung 54 die Aufteilung von EC und OC für die Proben im Februar dar. Im Vergleich zum Januar nehmen in den Riesefeldern die Konzentrationen auf allen Stufen deutlich ab. Auf Stufe 5 konnte kein Kohlenstoff nachgewiesen werden. In der Steinfurter Straße sind die Konzentrationen von Stufe 2 und Stufe 3 im Februar niedriger. Die Konzentrationen auf den übrigen Stufen, besonders auf Stufe 1, sind gestiegen. Das Verhältnis OC zu EC bleibt in beiden Fällen ähnlich wie im

Januar. Der Unterschied zwischen der Stadt und dem Umland wird im Februar größer und zeigt so den deutlichen Verkehrseinfluss.

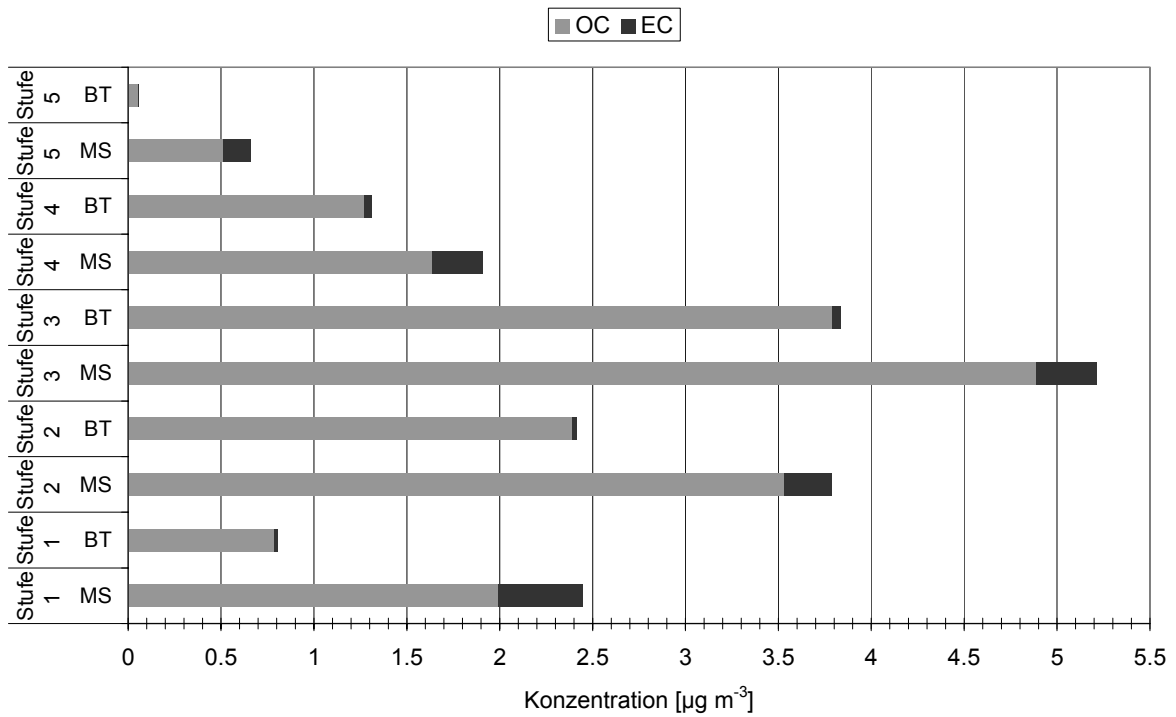


Abbildung 54: Aufteilung des Kohlenstoffs in OC und EC auf den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Januar (06.01.-23.01.06).

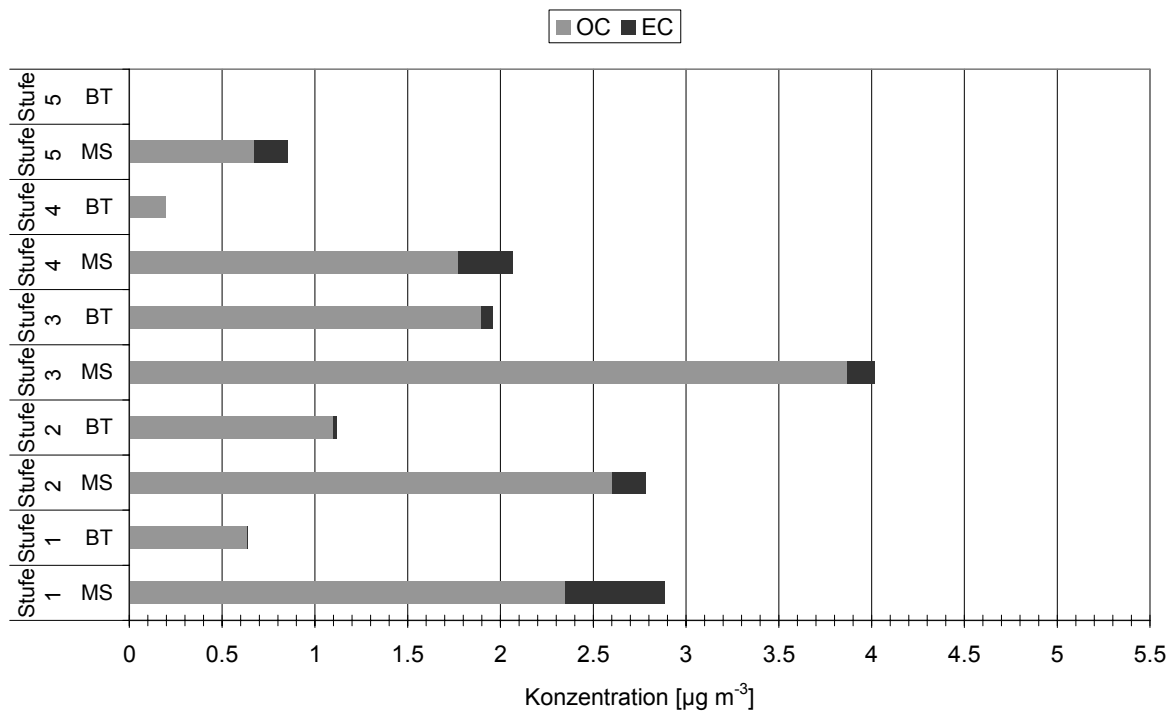


Abbildung 55: Aufteilung des Kohlenstoffs in OC und EC auf den einzelnen Stufen im Vergleich Steinfurter Straße (MS) und Rieselfelder (BT) für Februar (23.02.-28.02.06).

Die Vergleiche der Kohlenstoffergebnisse für die beiden Stationen liefern plausible Resultate. Allerdings sind in anderen vergleichbaren Untersuchungen die EC-Anteile durchgehend höher, während die OC-Anteile niedriger als in der vorliegenden Untersuchung sind. JOHN & KUHLBUSCH 2004 gibt EC-Anteile am gesamten PM_{10} von 13-14 % für Verkehrsstationen und 5-9 % an städtischen Standorten an. An einer Verkehrsstation in Düsseldorf wurde ein EC-Anteil von 15 % am PM_{10} nachgewiesen, an einer ländlichen Station im Rhein-Ruhr-Gebiet lag der EC-Anteil bei 9 % (KRdL 2006). Im Winter wurden an einer Straßenstation in Leipzig Anteile von 17 % EC und 9 % OC am gesamten Feinstaub ermittelt (WIEDENSOHLER et al. 2005). Der Unterschied zu den eigenen EC-Anteilen wird deutlich, die Höhe der Abweichung kann jedoch anhand der %-Angaben nicht quantifiziert werden.

Die mit einem Berner-Impaktor durchgeführten Untersuchungen von HERRMANN et al. 2000 bieten Vergleichsmöglichkeiten je Stufe. Die absoluten Konzentrationen und Anteile von elementarem Kohlenstoff liegen auf jeder Stufe in der Steinfurter Straße unter den Werten einer regionalen Hintergrundstation (Melpitz) (HERRMANN et al. 2000). Die organischen Anteile sind dagegen in der Steinfurter Straße deutlich höher als in den vergleichbaren Untersuchungen.

In Kapitel 3.2.5 wurde bereits erwähnt, dass die Trennung zwischen elementarem und organischem Kohlenstoff nicht ideal funktioniert. Alles spricht dafür, dass die Konzentration des ECs systematisch zu niedrig ist und damit verbunden der OC-Anteil zu hoch ist. Die vorgestellten EC-Werte können als Minimalwert und die OC-Werte als Maximalwerte interpretiert werden. Analog dazu lässt sich durch manuelle Verschiebung der Trennung an den Punkt, wo das Gerät auf He-O₂-Gemisch umgestellt, die maximale EC- und minimale OC-Konzentration berechnen. Allerdings könnten die Ergebnisse in diesem Fall noch durch mögliche Zusatzstoffe auf den Quarzfiltern (vgl. 3.2.5) beeinflusst werden.

Die untypisch hohen EC-Anteile auf den 5. Impaktorstufen im Vergleich zu den niedrigeren Stufen geben einen Hinweis darauf, dass hier die OC-EC-Trennung anders verläuft. Die Düsenabdrücke auf den 5. Stufen sind größer und gleichen eher einer homogen verteilten Probe (vgl. 3.2.5).

Bei den kleineren Düsen überlagern sich die Partikel stark auf einer kleinen Stelle. Abbildung 56 zeigt eine mögliche Erklärung für die problematische Trennung. Die gesammelten Partikel lagern sich aufeinander gehäuft und in ihrer Zusammensetzung unregelmäßig gemischt auf einer kleinen Stelle ab (Phase 1 in Abbildung 56). Um diesen Spot der Düse herum befinden keine oder nur sehr wenige Partikel auf dem Quarzfaserfilter. In der Analyse werden zunächst die organischen Bestandteile des Filters verflüchtigt. Es kann zu einer ungewollten Verteilung und Ausbreitung der restlichen Bestandteile (darunter vor

allem EC) kommen (Phase 2 in Abbildung 56). Diese Vergrößerung des Spots vermindert die Transmission des Lasers (Phasen 2 und 3 in Abbildung 56) und wird somit vom Laser als Pyrolyse registriert, obwohl es sich nur um eine Verteilung des noch nicht analysierten elementaren Kohlenstoffs handelt. Der deutliche Kohlenstoffanstieg (grüne Linie) im Bereich des He-O₂-Gemisch wird von der Gerätesoftware als OC berechnet, da die Lasertransmissionskurve noch niedriger als zu Beginn der Analyse ist. Erst der letzte Teil im He-O₂-Bereich wird dem elementaren Kohlenstoff zugerechnet (Phase 4 in Abbildung 56), der lange senkrechte Strich markiert die Trennung zwischen OC und EC. Der EC-Bereich erstreckt sich folglich nur über einen kleinen Abschnitt, bis sämtlicher Kohlenstoff vom Filter verdampft ist (Phase 5 in Abbildung 56). Die Vermutung, dass der elementare Kohlenstoff tatsächlich mehr sein müsste, liegt nahe.

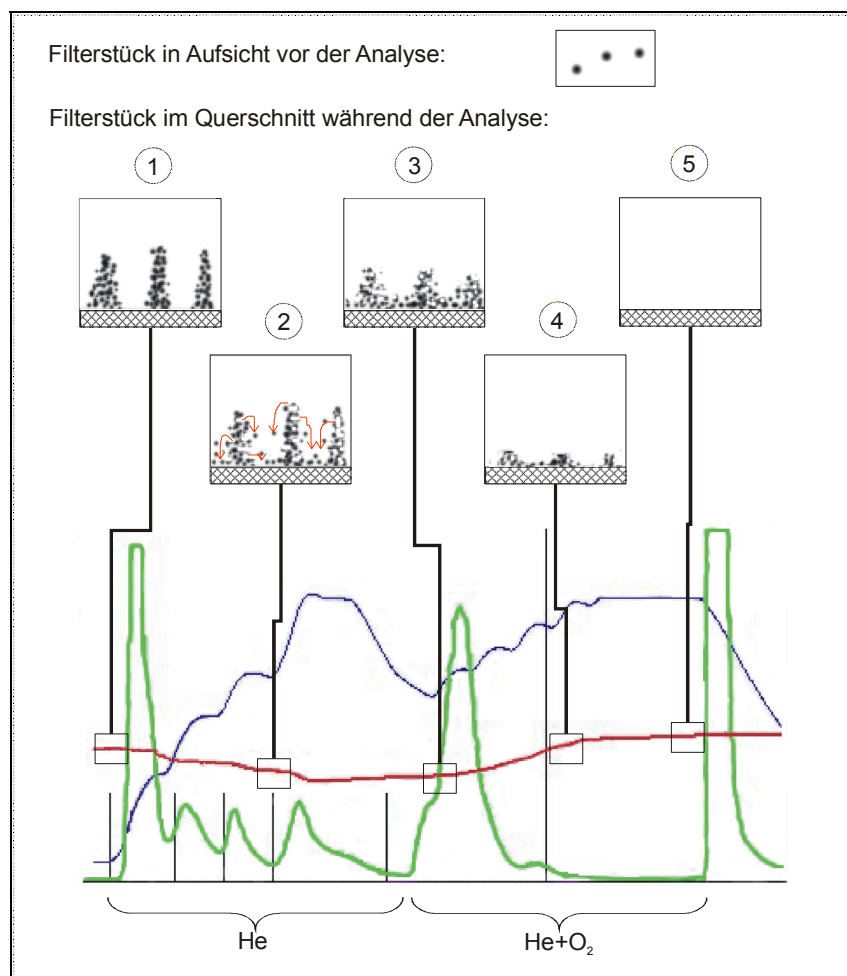


Abbildung 56: Theorie zur verschobenen OC-EC-Trennung bei Impaktorproben (schematische Zeichnung). Die Querschnitte Phase 1 bis 5 stellen unterschiedliche Zustände des Quarzfilterfilters und der darauf gesammelten Partikel während der Analyse dar. Abgebildet sind die Kurve des Flammenionisations-Detektors (grün), der Lasertransmission (rot) und der Temperaturverlauf (blau) aus einer durchgeführten Analyse.

Die Bestimmung des OC- und EC-Gehaltes speziell von Impaktorproben mit thermisch-optischer Analyse wurde noch nicht eingehend untersucht. Das thermisch-optische

Verfahren wird überwiegend für Filterproben aus High- oder Lowvolume-Partikelsammlern diskutiert. Für die dargestellte Erklärung gibt es einige Hinweise, sie kann jedoch nicht als gesichert gelten.

Die Vergleiche mit der Literatur (JOHN & KUHLBUSCH 2004, WIEDENSOHLER et al. 2005, HERRMANN et al. 2000) zeigen neben der problematischen Trennung von OC und EC, dass das Niveau von OC und EC jedoch plausible Gesamtkohlenstoffwerte ergibt. Es wurde deshalb in der gesamten Arbeit überwiegend mit den Konzentrationen des Gesamtkohlenstoffs gearbeitet.

Die organische Kohlenstoffkonzentration ist für die Abschätzung der organischen Substanz notwendig. Für die Umrechnung wurde der Faktor 1,4 verwendet (vgl. 4.3). Eine mögliche Überschätzung des OC-Anteils durch die verschobene Trennung zu Lasten des EC-Anteils hat eine Erhöhung der organischen Substanz zur Folge. Der Vergleich der eigenen PM10-Messungen mit den Daten des LUA (vgl. 4.3) würde bei realistischeren niedrigeren organischen Kohlenstoffanteilen und somit niedriger organischer Substanz besonders in der Steinfurter Straße besser ausfallen.

5.4 Witterungsverlauf im Messzeitraum und Auswirkungen auf die Partikelkonzentration

Das Wetter in Münster während der Messphasen wird zunächst dargestellt. Eine Betrachtung von möglichen Zusammenhängen zwischen einzelnen meteorologischen Parametern und der Feinstaubkonzentration erfolgt im Anschluss. Die Informationen zum deutschlandweiten Wetter sowie die Datengrundlage zur Berechnung des Klimas in Münster stammen vom Deutschen Wetterdienst (DEUTSCHER WETTERDIENST 2006b). Die Wetterdaten für Münster von Anfang 2006 sind der Wetterstation Hüffergarten (Institut für Landschaftsökologie) (vgl. 2.3) und der Station in den Rieselfeldern (vgl. 2.1) entnommen.

5.4.1 Witterungsverlauf im Januar und Februar

Der Januar 2006 war mit einer mittleren Temperatur um 0 °C in Münster kälter als im langjährigen Mittel (1,6 °C). Monatsmittelwerte oberhalb des Gefrierpunktes wurden nur im Nordwesten von Deutschland erreicht. Es kam zu zahlreichen ausgeprägten

Inversionswetterlagen. Im Januar fielen im größten Teil Deutschlands weniger als 30 mm Niederschlag. Das ist in vielen Regionen weniger als die Hälfte der üblichen Menge. In Münster fällt im langjährigen Mittel im Januar 65 mm Niederschlag, 2006 waren es nur 19,5 mm Niederschlag. Die relative Luftfeuchtigkeit erreicht im Mittel Werte von 83 %. Der Wind kam mit einer durchschnittlichen Geschwindigkeit von $1,8 \text{ m s}^{-1}$ vorwiegend aus östlichen Richtungen.

Im Februar 2006 lagen die höchsten Temperaturen im Nordwesten und im Rheingebiet, wo Mittelwerte von über $1,5 \text{ }^\circ\text{C}$ erreicht wurden. In Münster wurde ein Monatsmittelwert von $1,3 \text{ }^\circ\text{C}$ erreicht, der unter dem langjährigen Mittel von $2,2 \text{ }^\circ\text{C}$ liegt. Die mittlere relative Luftfeuchtigkeit betrug ca. 87 %. Die Niederschlagsmenge lag in vielen Regionen Deutschlands unter den Durchschnittswerten. Besonders im Nordwesten und in Süddeutschland war es zu trocken, während in anderen Gebieten (z. B. Niederrhein, nordwestliche Mittelgebirge) die Niederschläge deutlich höher als üblich lagen. In Münster fällt im Monatsmittel 48 mm Niederschlag. Im Februar 2006 fiel mit 36,9 mm (Hüffergarten) bzw. 43,8 mm (Rieselfelder) weniger Niederschlag. Der Unterschied zwischen den beiden Stationen kann durch den Schneefall Ende Februar und kleinräumige Unterschiede erklärt werden. Der Wind kam Anfang und Mitte des Monats aus westlichen und südwestlichen Richtungen, gegen Monatsende aus nordöstlicher Richtung. Die Windgeschwindigkeit betrug $2,1 \text{ m s}^{-1}$ im Mittel für Februar 2006.

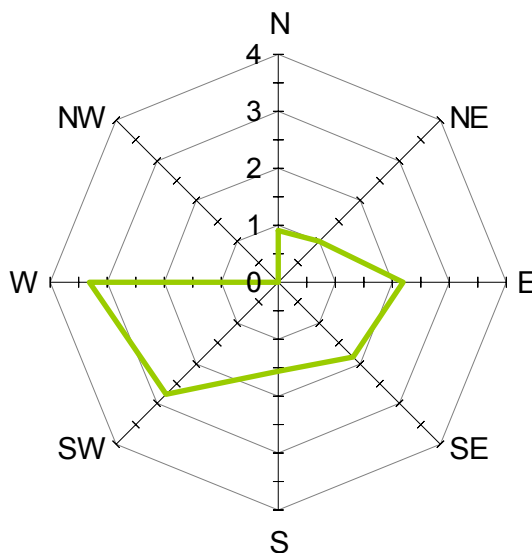
Die Daten für die Wetterstation Hüffergarten und für die Wetterstation am Messstandort Rieselfelder sind in Tabelle 7 für die gesamten Monate Januar und Februar sowie für die Messzeiträume zusammengestellt. Im Januar sind die Temperaturen in den Rieselfeldern um $0,2 \text{ }^\circ\text{C}$ niedriger, im Februar ist die Situation umgekehrt. Ähnliches zeigen die Mittelwerte der relativen Luftfeuchte, die im Januar in den Rieselfeldern etwa 2 % höhere Werte erreichen und im Februar in der Stadt um 2 % höher sind. Die Unterschiede sind im Mittel nicht aussagekräftig und liegen im Bereich der Messungenauigkeit (vgl. 3.1.2 und 3.1.3). Frühere Untersuchungen in den Rieselfeldern haben ergeben, dass die Windrichtungen dort und an der Station Hüffergarten sehr gut übereinstimmen. Die Windgeschwindigkeit ist allerdings in den Rieselfeldern etwa um ein Viertel höher.

Tabelle 7: Wetterdaten des Untersuchungszeitraums für die Stationen Hüffergarten und Rieselfelder.

Bezugszeitraum	Station	Lufttemperatur [°C]			relative Luftfeuchtigkeit [%]			Niederschlag [mm]
		Mittel	Min	Max	Mittel	Min	Max	Summe
Januar 2006	Hüffergarten	0,3	-8,4	8,8	82,2	33,1	99,8	19,5
Januar 2006	Rieselfelder	0,1	-9,7	9,0	84,4	34,1	98,0	19,6
Februar 2006	Hüffergarten	1,2	-6,6	8,9	88,6	42,8	99,8	36,9
Februar 2006	Rieselfelder	1,4	-6,2	9,6	86,7	45,2	98,5	43,8
06.01.-23.01.06	Hüffergarten	1,2	-7,3	8,8	83,2	52,6	99,8	15,2
06.01.-23.01.06	Rieselfelder	1,0	-7,3	9,0	85,0	52,8	97,3	14,6
23.02.-28.02.06	Hüffergarten	-0,1	-2,7	3,8	75,1	42,8	99,7	0,3
23.02.-28.02.06	Rieselfelder	0,3	-3,3	4,6	75,7	45,2	96,7	3,7

Die folgenden Korrelationen von Wetterkomponenten mit der PM10-Konzentration wurden mit den zugehörigen Wetterdaten der jeweiligen Station durchgeführt. Alle Vergleiche beziehen sich auf den Messzeitraum vom 06.01. bis 23.01.06. Die Daten sind alle nach dem K-S-Test normalverteilt, mit Ausnahme des Niederschlags.

Die Windparameter der Station Hüffergarten werden für beide Standorte verwendet. Abbildung 57 zeigt die mittlere Windgeschwindigkeit aufgetragen nach Windrichtung für den Messzeitraum im Januar. Die höchsten Windgeschwindigkeiten um 3 m s^{-1} treten aus westlicher und südwestlicher Richtung auf. Wind aus den Richtungen West bis Nordost kommt selten bis gar nicht vor, häufig sind dagegen östliche und südliche Richtungen. Hier liegt die mittlere Windgeschwindigkeit bei ca. $1,5\text{-}2,0 \text{ m s}^{-1}$.

Abbildung 57: Mittlere Windgeschwindigkeit [m s^{-1}] nach Windrichtungen im Januar (vom 06.01. bis 23.01.06).

5.4.2 Lufttemperatur

Die Abbildung 58 zeigt den Verlauf der PM10-Konzentration mit den gemittelten Lufttemperaturen zur jeweiligen Messung in den Rieselfeldern. Abbildung 59 stellt in gleicher

Weise die Situation in der Stadt dar. Die Tag-Nacht-Schwankungen der Temperatur sind in den Rieselfeldern deutlicher ausgeprägt. Es gibt an beiden Standorten die Tendenz, dass bei höheren Temperaturen niedrigere PM10-Werte auftreten und bei niedrigeren Temperaturen (< 0 °C) höhere PM10-Konzentrationen gemessen wurden. Die Abbildung 60 und die Abbildung 61 stellen den Zusammenhang zwischen Lufttemperatur und PM10-Konzentration dar. In den Rieselfeldern ist eine mittlere Korrelation ($r = 0,60$) mit einem Bestimmtheitsmaß von 0,36 gegeben, die Korrelation ist hoch signifikant. In der Stadt liegt eine geringe nicht signifikante Korrelation ($r = 0,26$) vor.

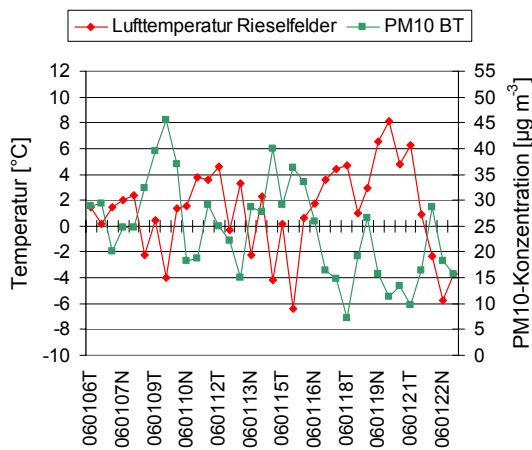


Abbildung 58: Verlauf der Lufttemperatur und der PM10-Konzentration in den Rieselfeldern.

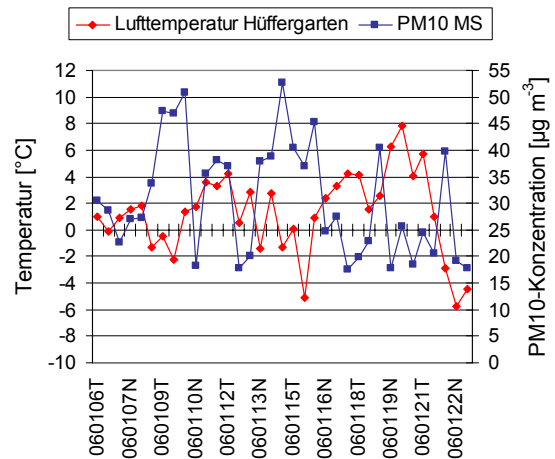


Abbildung 59: Verlauf der Lufttemperatur und der PM10-Konzentration in der Stadt.

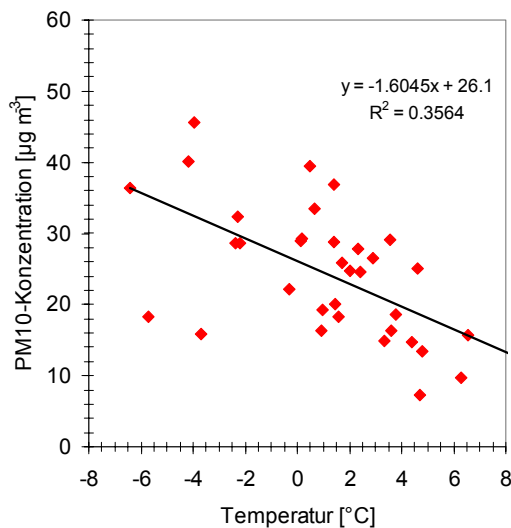


Abbildung 60: Lufttemperatur und PM10 Umland.

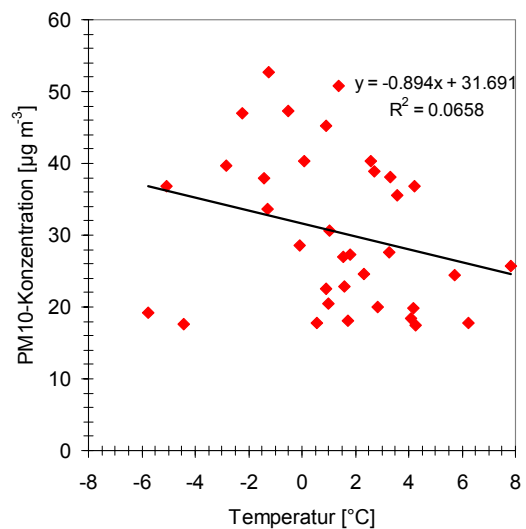


Abbildung 61: Lufttemperatur und PM10 Stadt.

Die Korrelation zwischen Lufttemperatur und Partikeln weist Unterschiede auf, wenn anstelle der PM10-Konzentration die Konzentration der Ionen und des Gesamtkohlenstoffs getrennt betrachtet werden. Im Umland ergibt sich ein Korrelationskoeffizient von 0,31 für Ionen und 0,72 für Gesamtkohlenstoff, letzterer ist hoch signifikant. In der Stadt ist der Unterschied

zwischen den Korrelationen der Lufttemperatur mit Ionen (0,17) und Gesamtkohlenstoff (0,24) weniger deutlich, die Korrelationen sind nicht signifikant.

Die Korrelationen der Lufttemperatur mit einzelnen Partikelgrößen je Stufe zeigt einige Auffälligkeiten. In den Rieselfeldern nimmt der Korrelationskoeffizient von der 1. bis zur 4. Stufe ab (0,68 / 0,60 / 0,56 / 0,10) und beträgt 0,54 auf Stufe 5. Die Korrelationen sind mit Ausnahme der 4. Stufe hoch signifikant. In der Steinfurter Straße sind die Korrelationen auf Stufe 2 (0,38), Stufe 3 (0,45) und Stufe 5 (0,40) signifikant, während die sehr geringe Korrelation der Stufe 1 (0,04) und Stufe 4 (0,06) nicht signifikant ist.

Bildungs- und Wachstumsprozesse der Partikel sind unter anderem von der Temperatur abhängig bzw. beeinflusst (SEINFELD & PANDIS 2006, BOY & KULMALA 2002). Der beobachtete Zusammenhang kann auf eine Veränderung des Reaktionsgleichgewichts zwischen Partikel- und Gasphase zurückgeführt werden, der im Sommer von größerer Bedeutung ist (HELD et al. 2004, VOGT 2005). Eine Temperaturerhöhung führt zu einer Gleichgewichtsverschiebung zu Gunsten der Gasphase (SEINFELD & PANDIS 2006) und tendenziell zu einer Abnahme der Partikelkonzentration. Für die kältere Jahreszeit stellen ALDRIN & HAFF 2005 fest, dass die Partikelkonzentration bei Temperaturen unter 0 °C zunimmt. Als weitere Begründung der gefundenen Temperaturabhängigkeit im Winter kann ein verstärkter Heizbedarf bei kälteren Temperaturen zu einer Erhöhung der PM10-Konzentration führen. Letztere Erklärung wird verstärkt durch die bessere Korrelation der Temperatur mit dem Gesamtkohlenstoff als mit den Ionen.

Der Zusammenhang zwischen Lufttemperatur und PM10-Konzentration wird besonders in den Rieselfeldern deutlich. Die höhere Korrelation in den Rieselfeldern gegenüber der Stadt kann wahrscheinlich auf den geringeren Einfluss von lokalen Quellen zurückgeführt werden. Während die Rieselfelder ein weitgehend ungestörtes Umfeld haben, ist in der Steinfurter Straße insbesondere der Verkehr zu nennen, der zu einer Durchmischung, Verwirbelung und in unmittelbarer Nähe zur Straße auch zu einer Temperaturerhöhung führt.

Bei der Temperaturabhängigkeit spielt die Größe der Partikel offensichtlich eine Rolle, an beiden Stationen scheint die Lufttemperatur für Partikel mit mittlerem Durchmesser von ca. 2 µm den geringsten Einfluss zu haben. Wenn die lokalen Einflüsse in der Steinfurter Straße zu einer geringeren Korrelation führen, sind die Korrelationen in den Rieselfeldern als weniger lokal beeinflusst und typisch anzusehen. Die kleinsten Partikel sind demnach besonders von der Temperatur abhängig.

5.4.3 Relative Luftfeuchtigkeit und Niederschlag

In Abbildung 62 und Abbildung 63 sind für die beiden Standorte die relative Luftfeuchtigkeit gegen die PM10-Konzentration aufgetragen. Ein Zusammenhang ist nicht erkennbar. Die Korrelation mit $r = 0,13$ (Umland) und $r = 0,18$ (Stadt) ist sehr gering. Korrelationen von einzelnen Partikelgrößenklassen mit der relativen Luftfeuchtigkeit bringen keine neuen Erkenntnisse, die Korrelationen sind gering bis sehr gering und nicht signifikant.

Die mittlere relative Luftfeuchtigkeit ist am Tag geringer (80 %) als nachts (MS: 87 %, BT: 89 %). Bei steigender Luftfeuchte können kleine Partikel ($< 2,5 \mu\text{m}$) anwachsen (ALDRIN & HAFF 2005, GIETL 2005). Eine Konzentrationserhöhung oder eine bessere Korrelation nachts kann anhand der vorliegenden Daten nicht festgestellt werden. Die gemittelte relative Luftfeuchtigkeit zeigt mit einer Standardabweichung von etwa 10 % nur geringe Schwankungen. Die geringe Veränderung (besonders im Mittel) kann ein Grund für die nicht erkennbaren Zusammenhänge mit der Partikelkonzentration sein.

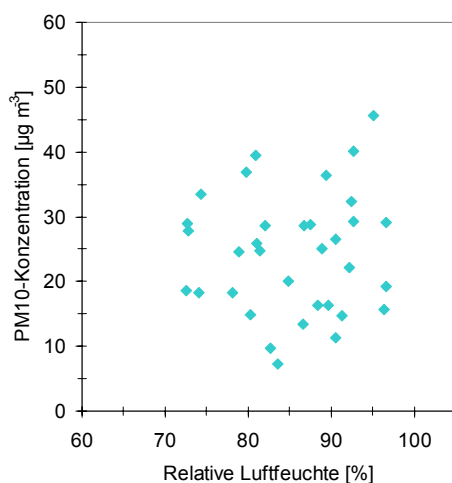


Abbildung 62: Relative Luftfeuchtigkeit und PM10 Rieselfelder.

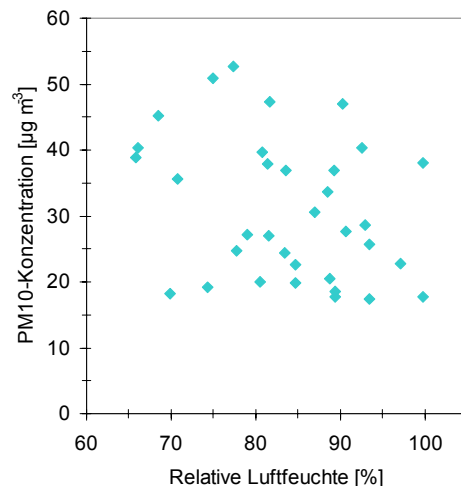


Abbildung 63: Relative Luftfeuchtigkeit und PM10 Steinfurter Straße.

Während der 35 ausgewählten Messungen im Januar fiel nur während acht Probenahmen Niederschlag. Eine Korrelation zwischen Niederschlagssummen und Feinstaubkonzentration hat somit nur beschränkte Aussagekraft. Die Niederschlagsdaten sind nicht normalverteilt, so dass eine Rangkorrelation nach Spearman durchgeführt wurde. Für die Rieselfelder ergibt sie eine geringe Korrelation (0,38), die bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,03 signifikant ist. In der Stadt liegt der Korrelationskoeffizient mit 0,16 niedriger, die sehr geringe Korrelation ist nicht signifikant. Beide Standorte weisen einen schwachen Trend auf, dass bei höheren Niederschlägen die PM10-Konzentration sinkt. Die Korrelation der einzelnen Stufen ergibt die höchsten Korrelationskoeffizienten mit 0,30 (Umland) und 0,23 (Stadt) auf der 3. Stufe und die niedrigste Korrelation 0,01 (Umland und Stadt) auf der 1. Stufe. Die Korrelationen sind nicht signifikant.

Die Niederschläge sind zu gering und selten, um einen eindeutigen Zusammenhang zur Partikelkonzentration zu zeigen. Verschiedene Prozesse (rainout, washout) spielen bei der Entfernung von Partikeln aus der Atmosphäre eine Rolle (SEINFELD & PANDIS 2006). Für Partikel im Akkumulationsbereich (accumulation range) gelten Niederschlagsprozesse als effektivster Entfernungsmechanismus (FINLAYSON-PITTS & PITTS 2000, vgl. Abbildung 1). Die höheren Korrelationen der mittleren Partikelklasse mit dem Niederschlag deuten auf diesen Prozess hin. Die übrigen Partikelgrößen werden durch Niederschlagsereignisse ebenfalls reduziert (ALDRIN & HAFF 2005). Dies konnte allerdings aus den erwähnten Gründen nicht an den vorliegenden Daten gezeigt werden.

5.4.4 Wind

Die Windgeschwindigkeit (Station Hüffergarten) wird in Abbildung 64 gegen die PM10-Konzentrationen der Standorte Rieselfelder und Steinfurter Straße aufgetragen. Mit steigender Windgeschwindigkeit nimmt die Höhe der Partikelkonzentration ab. Die Korrelationen sind signifikant und erreichen Korrelationskoeffizienten von 0,69 (Umland) und 0,57 (Stadt). Die Höhe der Korrelation ist bei Ionen und Gesamtkohlenstoff in etwa identisch, der Korrelationskoeffizient liegt bei den Ionen jeweils 0,05 (Umland) bzw. 0,08 (Stadt) höher. Eine Auffälligkeit findet sich bei der Korrelation der drei Hauptionen mit der Windgeschwindigkeit. Nitrat und Ammonium zeigen an beiden Standorten eine mittlere Korrelation zwischen 0,65 bis 0,73. Sulfat weist dagegen eine geringe Korrelation in der Stadt (0,27) und im Umland (0,31) auf.

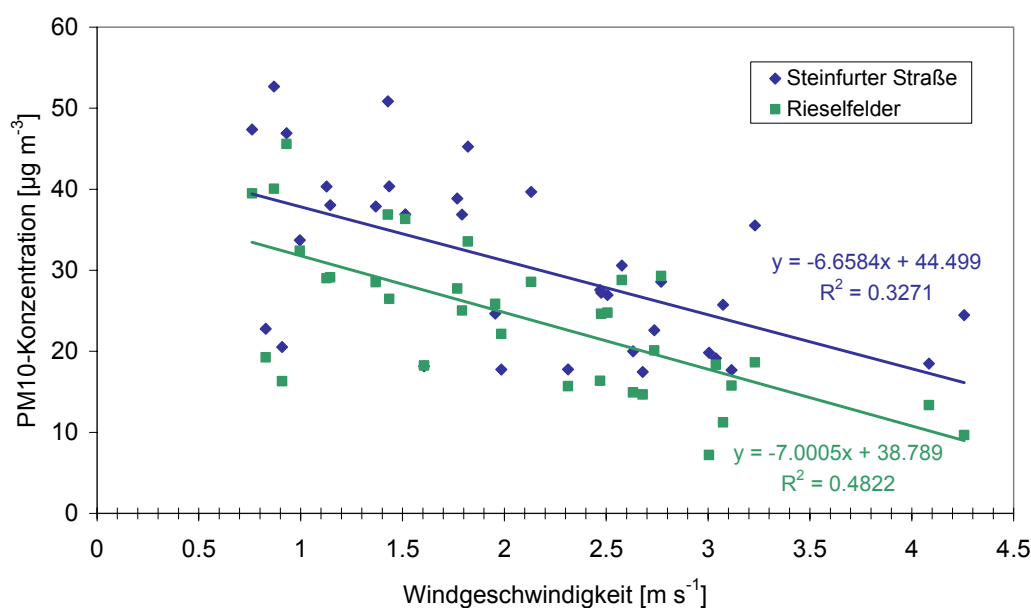


Abbildung 64: Korrelation der Windgeschwindigkeit mit den PM10-Konzentrationen der beiden Standorte.

Die höchsten Korrelationen mit der Windgeschwindigkeit ergeben sich im Umland auf der Stufe 1 (0,50), Stufe 2 (0,64) und Stufe 3 (0,69). In der Stadt sind die höchsten Korrelationen auf Stufe 2 (0,51) und Stufe 3 (0,71) vorhanden. Die Korrelationen sind signifikant. Bei höheren Windgeschwindigkeiten werden bessere Korrelationen erreicht. Dies zeigt sich beispielsweise im Tag-Nachtvergleich bei mittleren Windgeschwindigkeiten von $2,3 \text{ m s}^{-1}$ (Tag) und $1,9 \text{ m s}^{-1}$ (Nacht). Die Korrelationskoeffizienten in den Riesefeldern betragen 0,84 (Tag) und 0,54 (Nacht) sowie 0,78 (Tag) und 0,57 (Nacht) in der Steinfurter Straße.

Die Abhängigkeit der Partikelkonzentration von der Windgeschwindigkeit konnte gezeigt werden. Die Windgeschwindigkeit ist wiederum abhängig von der Windrichtung und umgekehrt (vgl. Abbildung 57). Daraus ergibt sich bereits ein Zusammenhang zwischen Windrichtung und Feinstaubkonzentration.

In Abbildung 65 werden die gemittelten PM₁₀-Konzentrationen der Hauptwindrichtung während der Messung zugeordnet. Aussagekräftig sind aufgrund ihrer Häufigkeit vorwiegend die Windrichtungen von Südwest bis Ost (vgl. 5.4.1). Das gilt ebenfalls für die Darstellung des Gesamtkohlenstoffs (Abbildung 66) und der Ionen (Abbildung 67) in Abhängigkeit von der Windrichtung. Die PM₁₀-Konzentrationen der beiden Stationen verlaufen nicht parallel, sie liegen für südwestliche Winde weiter auseinander (ca. $10 \mu\text{g m}^{-3}$) als für östliche und nordöstliche (ca. $1\text{-}4 \mu\text{g m}^{-3}$) (Abbildung 65).

Ein Einfluss der Windrichtung wird besonders bei den Kohlenstoff-Konzentrationen (Abbildung 66) deutlich. Südliche Windrichtung korreliert mit höheren Gesamtkohlenstoff-Werten ($20 \mu\text{g m}^{-3}$), während die Konzentrationen aus südöstlicher und östlicher Richtung etwa gleich bei $15 \mu\text{g m}^{-3}$ liegen. Die mittlere Ionen-Konzentration weist weniger starke Abhängigkeit auf. Sie ist bei Ost- und Südost-Wind etwas höher. Die niedrigsten Konzentrationen (PM₁₀, Kohlenstoff und Ionen) wurden bei Südwest-Wind gemessen, zudem werden hier und aus westlicher Richtung die höchsten mittleren Windgeschwindigkeiten erreicht (Abbildung 57).

Untersuchungen für Nordrhein-Westfalen haben die stabile Invasionswetterlage Anfang 2006 mit geringen Windgeschwindigkeiten als einen wichtigen Faktor für die urbane und lokale Erhöhung der Partikelkonzentration identifiziert (BRUCKMANN et al. 2006).

Die Windrichtung ist ein entscheidender Parameter bei der Feinstaubbetrachtung (HELD et al. 2004), ebenso wie die Windgeschwindigkeit. Höhere Windgeschwindigkeiten reduzieren die Partikelkonzentration (ALDRIN & HAFF 2005). Dieser Effekt ist bei Partikeln mit mittlerem Durchmesser von ca. $0,2\text{-}0,7 \mu\text{m}$ (in den Riesefeldern $0,1\text{-}0,7 \mu\text{m}$) besonders ausgeprägt. Die Höhe der Korrelation ist an beiden Standorten etwa gleich. Die Windgeschwindigkeit weist somit unabhängig vom Standort und den dortigen Einflüssen einen statistischen Zusammenhang mit der Feinstaubkonzentration auf. Die geringere

Korrelation von Sulfat (im Vergleich zu den anderen Bestandteilen) mit der Windgeschwindigkeit deutet darauf hin, dass für Sulfat andere Abhängigkeiten oder Zusammenhänge wichtiger sind.

Durch eine Veränderung der Windrichtung werden Luftmassen aus unterschiedlichen Gebieten und somit unterschiedlich zusammengesetzten Quellen herantransportiert. Die höheren Konzentrationen aus südlichen Richtungen an der Steinfurter Straße und in den Rieselfeldern spiegeln die erhöhte Feinstaubfracht von Luftmassen wider, die bereits über die Stadt gezogen sind. Die Emissionen der Stadt (Hausbrand und Verkehr) können eine Ursache sein. Weitere Quelle wie z. B. Emissionen von südlich gelegener Industrie (Ruhrgebiet) sind ebenfalls denkbar. Eine genauere Zuordnung ist durch die Berechnung von Trajektorien (HERRMANN et al. 2000, JOHN & KUHLBUSCH 2004, VOGT 2005) möglich.

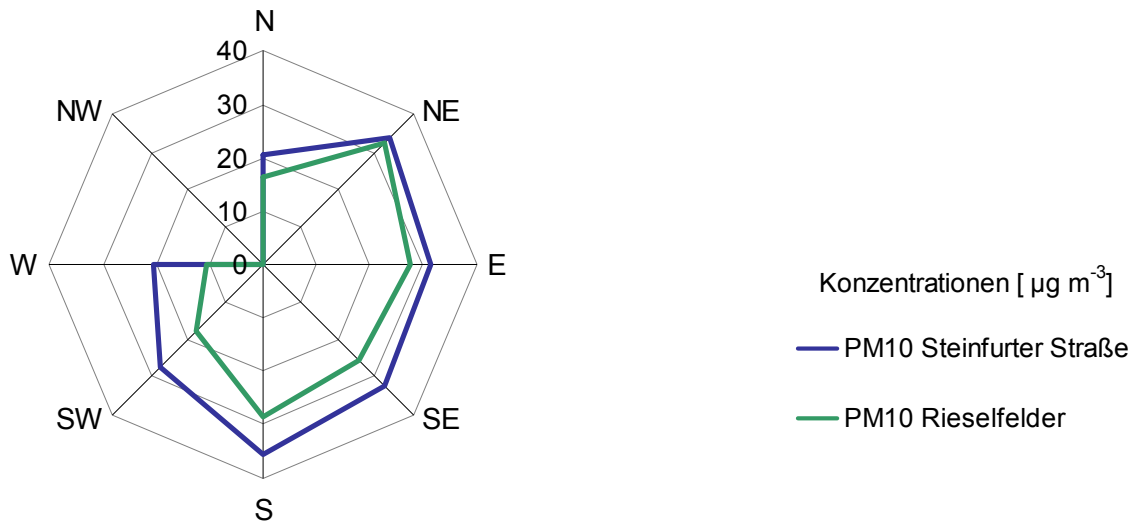


Abbildung 65: Windrichtung mit mittlerer PM10-Konzentration der beiden Standorte.

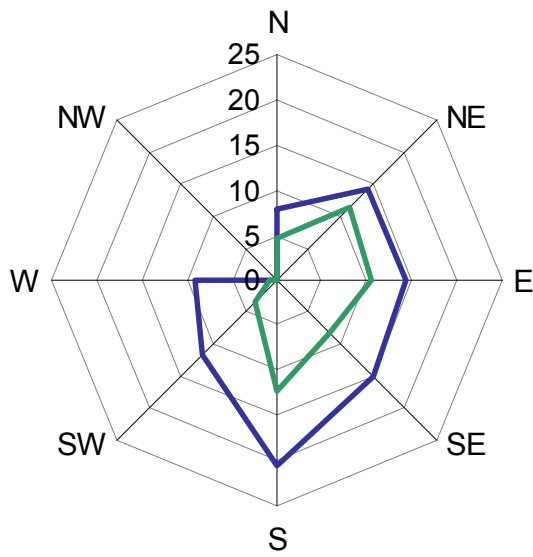


Abbildung 66: Windrichtung mit mittlerer Gesamtkohlenstoff-Konzentration der beiden Standorte.

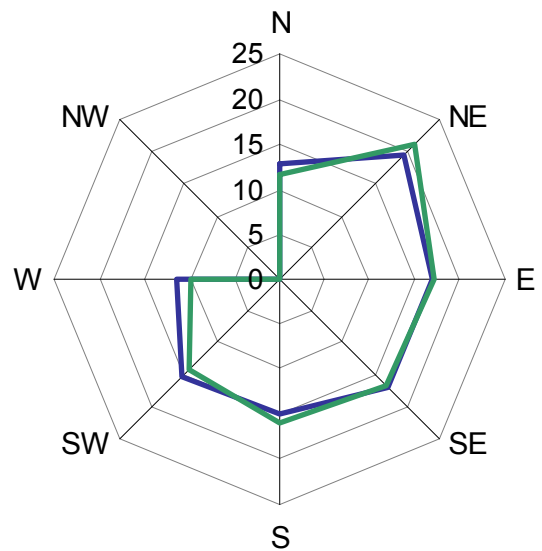


Abbildung 67: Windrichtung mit mittlerer Ionen-Konzentration der beiden Standorte.

5.4.5 Zusammenfassende Diskussion zum Einfluss von Wetterparametern auf die Partikelkonzentration

Ein Zusammenhang der Partikelkonzentration mit ausgewählten Wetterparametern konnte gezeigt werden. Der bedeutende Einfluss von Windgeschwindigkeit und Windrichtung konnte an beiden Stationen gezeigt werden. Von den betrachteten Parametern sind die Korrelationen von Wind mit der Partikelkonzentration am höchsten. Die Quellregion der Partikel und Emissionen wird durch die Windrichtung bestimmt, sie hat entscheidenden Einfluss auf die Konzentration der Partikel. Die Temperatur zeigt Zusammenhänge mit der Partikelkonzentration, die in Stadt und Umland nicht gleich sind.

Inversionswetterlagen, die im Messzeitraum in der Region häufig ausgeprägten vorhanden waren, erklären die Zusammenhänge Wind und Temperatur mit der Feinstaubkonzentration zusätzlich. Die Durchmischung der Luft ist reduziert und ein Abtransport von Luftmassen findet nur begrenzt statt. Die Emissionen in der Stadt führen folglich zu einer Anreicherung des Feinstaubes.

Andere wichtige Einflüsse von Niederschlag und relativer Feuchte konnten nicht eindeutig an den vorhandenen Daten gezeigt werden. Es ergibt sich bei den Korrelationen aller Wetterparameter ein Unterschied zwischen Umland und Stadt, der in Abschnitt 5.4.2 bereits für die Temperatur diskutiert wurde. In den Rieselfeldern konnten bessere Korrelationen und somit stärkere Beziehungen zwischen Feinstaubkonzentration und Einfluss durch Wetterparameter festgestellt werden. In der Steinfurter Straße bewirken lokale Einflüsse (z. B. Verkehr) eine geringere Bedeutung der Wetterparameter für die gemessene PM10-Konzentration.

6 Fazit und Ausblick

Der Vergleich der Korngrößenfraktionierten Feinstaubzusammensetzung zwischen den Standorten Stadt (Steinfurter Straße) und städtischem Umland (Rieselfelder) hat einige deutliche Unterschiede gezeigt. Die Aufteilung des PM₁₀ in fünf Größenklassen sowie Messungen zu unterschiedlichen Zeiten (z. B. Tag-Nacht) haben zahlreiche Vergleiche ermöglicht. Wie zu erwarten, sind in der Stadt höhere Feinstaubkonzentrationen als im Umland aufgetreten. Differenzen zwischen Hintergrundbelastung und lokaler Zusatzbelastung in der Stadt sind anhand ihrer chemischen Zusammensetzung, Größenverteilung und Abhängigkeit von meteorologischen Parametern gezeigt worden.

Der entscheidende Unterschied zwischen den beiden Standorten liegt in der erhöhten Gesamtkohlenstoffkonzentration in der Stadt und in dem offensichtlich höheren städtischen Anteil des elementaren Kohlenstoffs. Nachts nimmt die Kohlenstoffkonzentration deutlich ab, eine Folge sind geringere Unterschiede in der PM₁₀-Konzentration zwischen den Stationen. Die Gesamtkohlenstoffkonzentration ist in Stadt und Umland etwa gleich hoch, es gibt jedoch auf den einzelnen Stufen unterschiedliche Konzentrationen und Zusammensetzungen.

Die höchsten Konzentrationen treten auf der 3. Stufe im Akkumulationsbereich auf. Im Umland sind die Ionenkonzentrationen der 2. Stufe etwas höher. Ionen und Kohlenstoff sind bei den groben Partikeln (5. Stufe) in der Stadt durch Aufwirbelungen stärker vertreten. Bei den feinen Partikeln (1. Stufe) treten in der Stadt besonders elementarer Kohlenstoff und Nitrat, aber auch Ammonium, Sulfat und organischer Kohlenstoff verstärkt auf. Diese kleinen Partikel sind besonders für die menschliche Gesundheit bedenklich und daher trotz ihrer geringen Konzentrationen beachtenswert.

Die kleinen Partikel könnten mit erweiterter Messtechnik wie dem Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) und dem Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) genauer untersucht werden. Die Untersuchungen zeigen, dass das gerade in der Stadt sinnvoll wäre, um mehr über die kleinen Partikel zu erfahren. Es kann versucht werden, Partikelbildungsprozesse aufgrund der verstärkten Emissionen (besonders Kohlenstoffverbindungen und Stickoxide) nachzuweisen.

Eine Vervollständigung der chemischen Analyse auf alle bzw. weitere Partikelbestandteile (z. B. Eisen, Aluminium, Silizium, H⁺) wäre eine gute Ergänzung und bringt wahrscheinlich weitere Unterschiede zwischen den Standorten. Das Konzentrationsniveau der Ionen insgesamt würde vermutlich an beiden Stationen etwa gleich bleiben, da die bereits wichtigsten Ionen analysiert wurden.

Der festgestellte Kohlenstoffunterschied zwischen den beiden Standorten könnte gegebenenfalls genauer untersucht werden. In erster Linie müsste dabei eine sichere Trennung von EC und OC erfolgen. Das wird wahrscheinlich eine deutlich höhere EC-

Konzentration in der Stadt zur Folge haben. Die Herkunft des ECs und OCs sowie die genauere Zusammensetzung des OCs bzw. der organischen Substanz sind sicherlich ebenfalls interessante Aspekte, die in Zukunft untersucht werden könnten.

Hinsichtlich der Abhängigkeit der Feinstaubkonzentration von Wetterparametern haben nur Wind und Temperatur deutliche Korrelationen gezeigt. Die gleichen Messungen zu anderen Jahreszeiten oder bei stärker variierenden Wetterbedingungen (stärkere Schwankungen der relativen Luftfeuchtigkeit und mehr bzw. häufigere Niederschläge) könnten gegebenenfalls auch für Luftfeuchte und Niederschlag Zusammenhänge mit der Partikelkonzentration zeigen.

Um eine genauere Zuordnung von Wetterereignissen zu Partikelzusammensetzung und Partikelkonzentration zu bekommen, wäre eine Verkürzung der Messintervalle wünschenswert, die allerdings bei der verwendeten Technik schnell zu Nachweisproblemen führen kann. Kürzere Probennahmeintervalle würden ebenfalls zur Verdeutlichung des direkten Verkehrseinflusses hilfreich sein. Darüber hinaus könnten beispielsweise gleichzeitige Verkehrszählungen konkretere Aussagen zum Verkehrseinfluss ermöglichen.

Eine genaue Betrachtung von einzelnen Messungen mit den zugehörigen Parametern (z. B. Windrichtung, Verkehrsfluss, etc.) könnte neben den hier überwiegend verwendeten Mittelwerten eventuell neue Erkenntnisse bringen.

Die Untersuchungen zeigen, dass die vorgeschriebenen Messungen der PM₁₀-Konzentration nur einen Bruchteil der Informationen über Partikel liefern, die wichtig sind. Es besteht weiterer Forschungsbedarf, um mehr über die Entstehung (Quellen), Zusammensetzung und Entwicklung (regional-lokal) von Feinstaub in einem konkreten Gebiet wie z. B. der Stadt Münster zu verstehen.

7 Literatur

- AG KLIMATOLOGIE (2006): Arbeitsgruppe Klimatologie am Institut für Landschaftsökologie, Wetterstation. Online: <http://kli.uni-muenster.de/de/weather> (abgerufen: 12.10.2006).
- ALDRIN, M. & I. H. HAFF (2005): Generalised additive modelling of air pollution, traffic volume and meteorology. In: Atmospheric environment 39/11, 2145-2155.
- ANLAUF, K., LI, S.-M., LEITCH, R., BROOK, J., HAYDEN, K., TOOM-SAUNTRY, D. & A. WIEBE (2006): Ionic composition and size characteristics of particles in the Lower Fraser Valley. Pacific 2001 field study. In: Atmospheric Environment 40, 2662-2675.
- AQUATEC (1990): Manual, The Aquatec System. Firma Tecator AB. Höganäs (Schweden).
- BARON P. A. & K. WILLEKE (2001): Aerosol Measurement. Principles, Techniques and Applications. Second Edition. John Wiley & Sons, New York.
- BOY, M. & M. KULMALA (2002): Nucleation events in the continental boundary layer. Influence of physical and meteorological parameters. In: Atmospheric Chemistry and Physics 2, 1-16.
- BRUCKMANN, P., WURZLER, S. & K. MILDENBERGER (2006): Die Episode hoher Staubkonzentrationen im Januar und Februar 2006. In: Immissionsschutz 2/2006, 64-72.
- BÜHL, A. & P. ZÖFEL (2005): SPSS 12. Einführung in die moderne Datenanalyse unter Windows. 9. Auflage. Pearson Studium, München.
- BUNDES-IMMISSIONSSCHUTZGESETZ – BImSchG. Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge in der Fassung der Bekanntmachung vom 26.09.2002. BGBl. I S. 3830.
- CARY, R. (2006): persönliche Mitteilung.
- COLBECK I. (1998): Physical and chemical properties of aerosols. Blackie Academic & Professional, London.
- DEUTSCHER WETTERDIENST (2006a): Mittelwerte der Periode 1961 bis 1990. Online: http://www.dwd.de/de/FundE/Klima/KLIS/daten/online/nat/index_mittelwerte.htm (abgerufen 20.10.2006).
- DEUTSCHER WETTERDIENST (2006b): Klimakarten Deutschland. Online: <http://www.dwd.de/de/FundE/Klima/KLIS/daten/online/klimakarten/index.htm> (abgerufen: 21.12.2006).

- DICK, N. (2006): Ammoniak und Feinstaub an einem verkehrsbeeinflussten Standort in Münster. Diplomarbeit, Institut für Landschaftsökologie, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (unveröffentlicht).
- DICKENSON, T. C. (1997): Filters and filtration handbook. Elsevier Advanced Technology, Oxford.
- DIN 32645: Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenzen. Ermittlung unter Wiederholbedingungen. Begriffe, Verfahren, Auswertungen. Mai 1994. Beuth, Berlin.
- DIONEX (2005): Dionex Reference Library. Service CD with Manuals, Technical Documents, Applications and Product Literature. Dionex Corporation, Sunnyvale.
- FRANKFURTER ALLGEMEINE ZEITUNG (FAZ) (2006): Mehr Zeit für den Kampf gegen Feinstaub. EU-Kommission kündigt neue Abgasregeln an. Ministerrat und Parlament müssen Details noch abstimmen. 24.10.2006, 247, 13. Frankfurt.
- FINLAYSON-PITTS B. J. & J. N. PITTS (2000): Chemistry of the upper and lower atmosphere. Academic Press, San Diego.
- FORSCHUNGSZENTRUM FÜR UMWELT UND GESUNDHEIT (GSF) (2005): Feinstaubquelle Streusalz? Pro und Contra im Einsatz gegen Schnee und Glatteis. Online: <http://www.gsf.de/neu/Aktuelles/Presse/2005/streusalz.php> (abgerufen: 28.11.2006).
- GEOSERVER NRW (2006): Landesamt für Datenverarbeitung und Statistik Nordrhein-Westfalen „Kartenwerke des Landes NRW, Geoserver“. Online: <http://www.geoserver.nrw.de> (abgerufen: 20.10.2006).
- GIETL, J. (2005): Ionenchromatographische Analyse von städtischem PM_{2,5} und PM₁₀ sowie deren Abhängigkeit von Wetterlagen und Witterung. Diplomarbeit, Institut für Geographie und Geoökologie, Technische Universität Karlsruhe (unveröffentlicht).
- GOOGLE EARTH (2006): Google Earth Softwareversion 4.0.1693 (beta) mit online verknüpften Geodaten. (abgerufen: 20.10.2006).
- GRAEDEL, T. E. & P. J. CRUTZEN (1994): Chemie der Atmosphäre. Bedeutung für Klima und Umwelt. Spektrum, Heidelberg.
- HELD, A., NOWAK, A., BIRMILI, W., FORKEL, R. & O. KLEMM (2004): Observations of particle formation and growth in a mountainous forest region in central Europe. In: Journal of Geophysical Research, 109, D23204.
- HERRMANN, H., BRÜGGEMANN, E., FRANCK, U., GNAUK, T., MÜLLER K., NEUSÜß, C., PLEWKA, A., SPINDLER, G., STÄRK, H.-J. & R. WENNRICH (2000): Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile verschiedener Quellgruppen an der Feinstaubbelastung. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden.

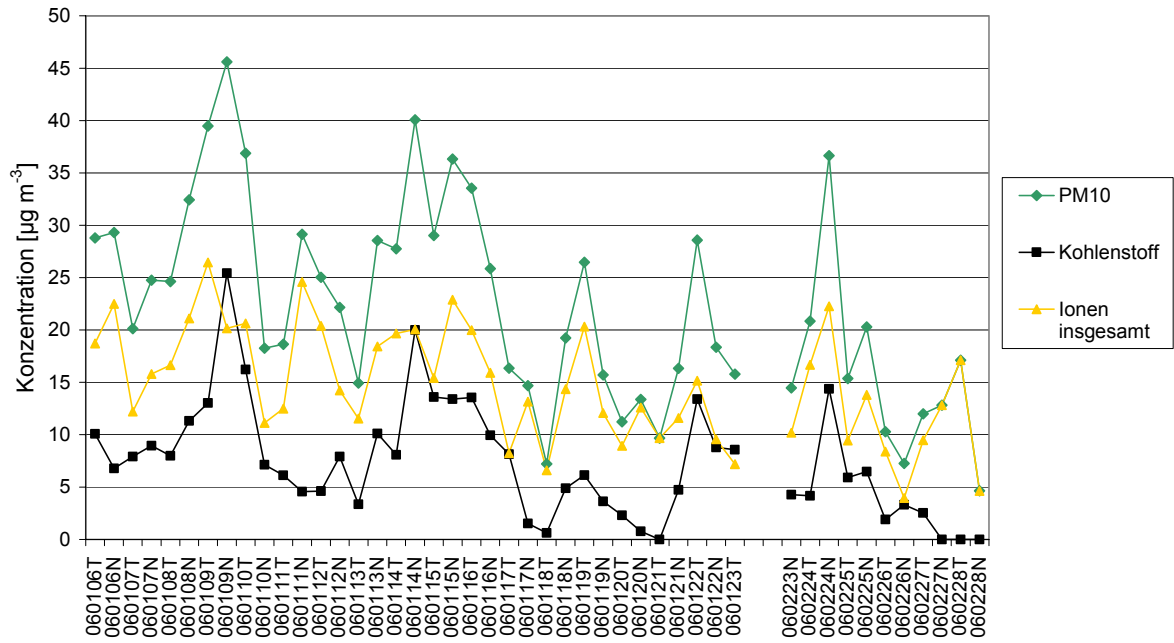
- IPCC (2001): Climate Change 2001. The Scientific Basis. Contribution of the Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, New York.
- JOHN, A. & T. KULBUSCH (2004): Ursachenanalyse von Feinstaub(PM10)-Immissionen in Berlin auf Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht. IUTA-Bericht Nr. LP 09/2004. Duisburg, Berlin.
- JORDI, B. (2005): Feinstaub macht krank. Broschüre des BUWAL (Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft in der Schweiz) und UVEK (Eidgenössisches Departement für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation). Online: <http://www.bafu.admin.ch/luft/00575/00578/index.html?lang=de> (abgerufen: 12.11.06).
- KLEMM, O. (2006): persönliche Mitteilung.
- KOMMISSION REINHALTUNG DER LUFT IM VDI UND DIN (KRdL) (2006): VDI Richtlinie 2066 Blatt 10: 2004. Online: <http://194.245.31.82/vdi/organisation/schnellauswahl/fgkf/krdl/aktiv/11055/index.php?func=print> (abgerufen: 10.09.2006).
- KOMMISSION REINHALTUNG DER LUFT IM VDI UND DIN (KRdL), ARBEITSGRUPPE „WIRKUNG VON FEINSTAUB AUF DIE MENSCHLICHE GESUNDHEIT“ (2006): Bewertung des aktuellen wissenschaftlichen Kenntnisstandes zur gesundheitlichen Wirkung von Partikeln in der Luft. S. 15-68. In: DIN Deutsches Institut für Normung e.V. (2006): Feinstaub und Stickstoffdioxid. Wirkung, Quellen, Luftreinhaltepläne, Minderungsmaßnahmen. Beuth, Berlin.
- LANDESUMWELTAMT NORDRHEIN-WESTFALEN (LUA NRW) (2006a): Überschreitungstage Feinstaub (PM10) in Nordrhein-Westfalen. Online: <http://www.lua.nrw.de/luft/immissionen/aktluftqual/pm10ueberschreitungen.htm> (abgerufen: 05.12.2006).
- LANDESUMWELTAMT NORDRHEIN-WESTFALEN (LUA NRW) (2006b): Stationen und Messwerte. Online: <http://www.lua.nrw.de/luft/temes/stat.htm> (abgerufen: 18.11.06).
- LANGE S. & R. BENDER (2001): (Lineare) Regression/Korrelation. In: Deutsche Medizinische Wochenschrift. Heft Supplement Statistik Jahrgang 126, 2001, 33-35. Thieme. Stuttgart, New York.
- LENSCHOW, P., ABRAHAM, H.-J., KUTZNER, K., LUTZ, M., PREUß, J. D. & W. REICHENBÄCHER (2001): Some ideas about the sources of PM10. In: Atmospheric Environment 35, 23-33.
- MILLER J. C. & J. N. MILLER (1988): Statistics for analytical chemistry. Second Edition. John Wiley & Sons, New York.

- MORTIMER, C. E. (1996): Chemie. Das Basiswissen der Chemie. 6. Auflage. Thieme, Stuttgart.
- NATIONAL INSTITUTE FOR OCCUPATIONAL SAFETY AND HEALTH (NIOSH) (2003): Manual of Analytical Methods (NMAM), Method NIOSH 5040. Atlanta.
- PERKIN-ELMER (1988): Gerätehandbuch. Atomabsorptions-Spektrometer 1100 B. Druckschrift: B399. Perkin-Elmer, Überlingen.
- PETERS A., SCHULZ H., KREYLING, W. G. & H.-E. WICHMANN (1998): Staub und Staubinhaltsstoffe. Feine und ultrafeine Partikel. In: Handbuch Umweltmedizin – 14. Erg. Lfg. 10/98, 1-19.
- RIESELFELDER (2006): Biologische Station "Rieselfelder Münster" e.V. Online: <http://www.rieselfelder-muenster.de> (abgerufen: 22.10.2006).
- SACHS, L. (1999): Angewandte Statistik. Anwendung statistischer Methoden. 9. Auflage. Springer, Berlin.
- SCHIEBEL, H. G. (2004): Skript zur Aerosolphysik. Fachhochschule Wiesbaden, Fachbereich Physikalische Technik. Online: <http://phy19.physik.fh-wiesbaden.de/skripte/aerosolphysik/Aerosol%20-%20Skript.pdf> (abgerufen: 05.10.2006).
- SCHÖNWIESE, C.-D. (2000): Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler. 3. Auflage. Gebrüder Borntraeger, Berlin, Stuttgart.
- SEINFELD, J. H. & S. N. PANDIS (2006): Atmospheric Chemistry and Physics. From air pollution to climate change. Second Edition. John Wiley & Sons, New York.
- SILLANPÄÄ, M., FREY A., HILLAMO R., PENNANEN, A. S. & R. O. SALONEN (2005): Comparison of the levels of organic, elemental and inorganic carbon in particulate matter in six urban environments in Europe. In: Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 5, 2719-2747.
- STADT MÜNSTER (2006): Stadt Münster (Westfalen). Online: <http://www.muenster.de> (abgerufen: 20.10.2006).
- STEINWEG, E. (2006): Firma Dr. E. Steinweg. Online: <http://www.dr-steinweg.de> (abgerufen: 10.10.2006).
- STELSON, A. W. & J. H. SEINFELD (1982): Thermodynamic prediction of the water activity, NH_4NO_3 dissociation constant, density, and refractive index for the NH_4NO_3 - $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ - H_2O system at 25 °C. In: Atmospheric Environment 16, 2507-2514.
- SUNSET LABORATORY (2005): OCEC Lab Instrument Manual Version 6.4. Sunset Laboratory Incorporation, Tigard.

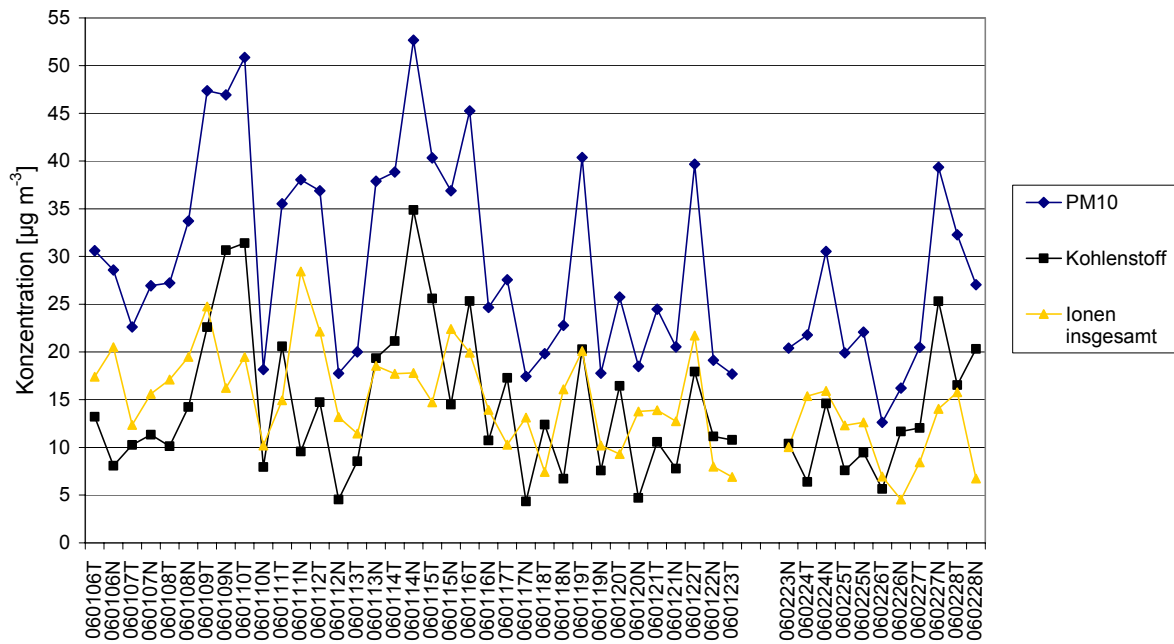
- SUPPER, M. (2006): persönliche Mitteilung.
- UMWELTBUNDESAMT (UBA) (2006): Aktuelle Luftwerte in Deutschland. Online: <http://www.env-it.de/luftdaten> (abgerufen: 10.12.2006).
- VOGT, E. (2005): Atmosphärisches Ammoniak in Münster. Quellen, Konzentrationen, Wechselwirkungen mit Partikeln. In: Westfälische Geographische Studien, Band 52. S. 60-129. Geographische Kommission für Westfalen, Münster.
- WHITBY, K.T. & G. M. SVERDRUP (1980): California Aerosols. Their Physical and Chemical Characteristics. In: Hidy, G. M., Mueller, P. K., Grosjean, D., Appel, B. R. & J. J. Wesolowski (1980): The character and origins of smog aerosols. A digest of results from the California Aerosol Characterization Experiment (ACHEX). (Advances in environmental science and technology 9.) John Wiley & Sons, New York.
- WHO (2000): Air quality guidelines for Europe Second Edition World Health Organization Regional Office for Europe. Copenhagen.
- WHO WORKING GROUP (2003): Health Aspects of Air Pollution with Particulate Matter, Ozone and Nitrogen Dioxide. Bonn.
- WIEDENSOHLER, A., SPINDLER, G., WEHNER, B., BIRMILI, W., GNAUK, T., BRÜGGEMANN, E. & J. HEINTZENBERG (2005): Feinstaub in Deutschland. In: Zwischenruf. Leibniz-Gemeinschaft. Umweltforschung für politische Praxis. 2, 2005. S. 36-45. Bonn.
- WIKIPEDIA (2006): Freie Enzyklopädie Wikipedia. Online: <http://de.wikipedia.org/wiki/Tedlar> (abgerufen: 19.10.2006).
- ZÖFEL P. (1992): Statistik in der Praxis. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, Jena.
- ZWEIUNDZWANZIGSTE VERORDNUNG ZUR DURCHFÜHRUNG DES BUNDES-IMMISSIONSSCHUTZGESETZES – 22. BImSchV. Verordnung über Immissionswerte in der Fassung vom 11.09.2002. BGBl. I, S. 3626.

8 Anhang

PM10, Kohlenstoff und Ionen, Verlauf der Konzentration in den Rieselfeldern



PM10, Kohlenstoff und Ionen, Verlauf der Konzentration in der Steinfurter Straße



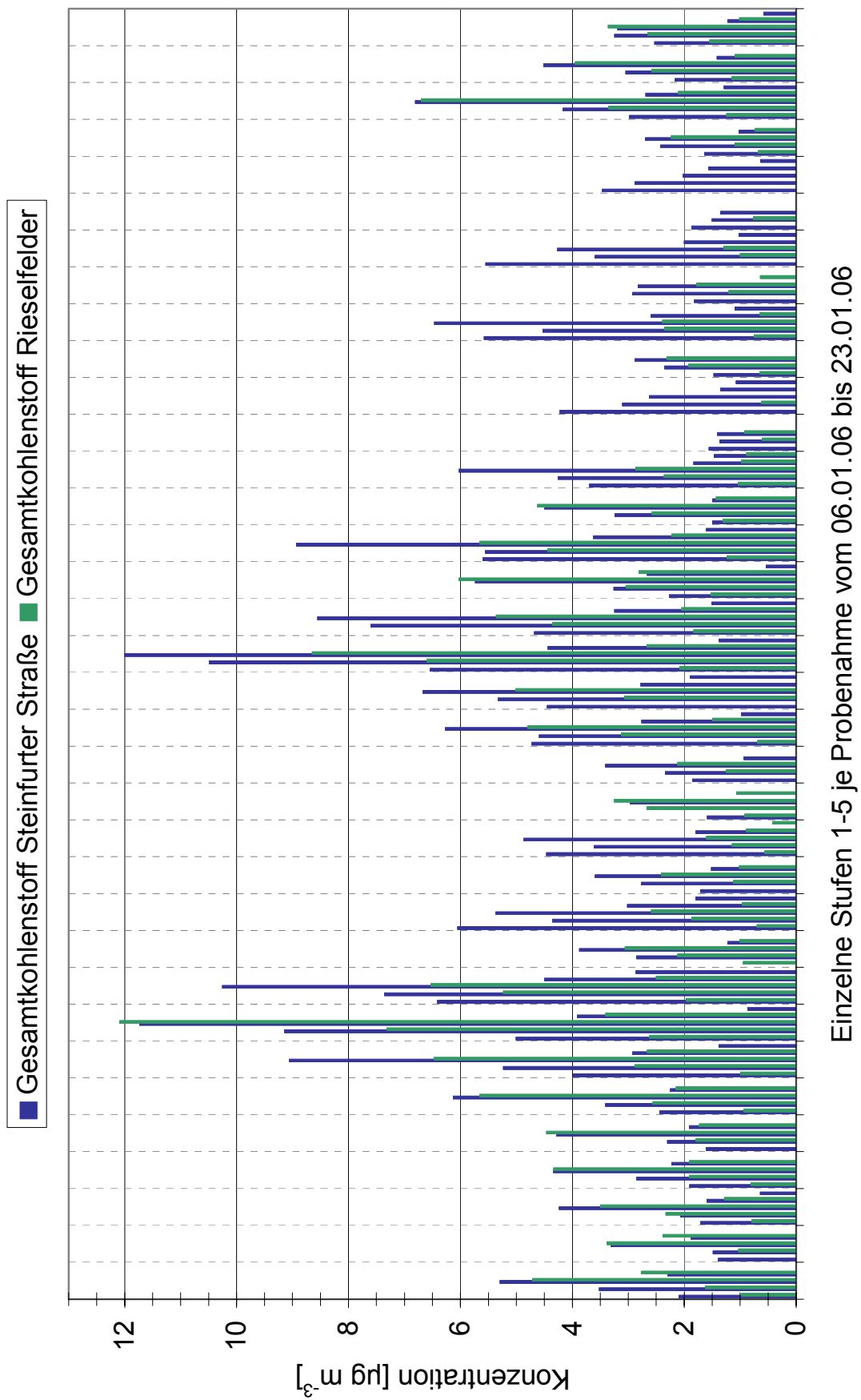


Abbildung: Gesamtkohlenstoff für jede Stufe 1 bis 5 im Vergleich Stadt-Umland.

Chemische Zusammensetzung der addierten Stufen (1-5), Rieselfelder (BT).

Proben- bezeichnung	Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	OC	EC	Gesamt- kohlenstoff	Summe Ionen	Summe Ionen & Kohlenstoff
	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$
060106BTT	0.00	0.17	5.08	0.00	8.56	4.71	0.18	0.00	0.00	10.00	0.08	10.08	18.71	28.79
060106BTN	0.00	0.00	5.89	0.00	10.54	5.91	0.06	0.08	0.01	6.74	0.07	6.80	22.50	29.30
060107BTT	0.00	0.00	4.58	0.00	4.38	3.22	0.03	0.00	0.00	7.82	0.10	7.91	12.21	20.13
060107BTN	0.00	0.00	5.58	0.00	6.01	4.15	0.05	0.00	0.00	8.79	0.19	8.97	15.80	24.76
060108BTT	0.00	0.12	5.67	0.00	6.82	3.97	0.07	0.00	0.00	7.85	0.13	7.98	16.65	24.63
060108BTN	0.00	0.13	8.60	0.00	7.27	5.05	0.06	0.00	0.00	11.20	0.11	11.31	21.11	32.42
060109BTT	0.00	0.40	12.43	0.00	7.43	6.11	0.09	0.00	0.00	12.83	0.19	13.02	26.46	39.48
060109BTN	0.00	0.99	8.39	0.00	5.74	4.71	0.11	0.17	0.05	25.19	0.25	25.44	20.16	45.60
060110BTT	0.01	1.01	9.17	0.00	5.31	4.64	0.21	0.25	0.05	16.14	0.08	16.23	20.64	36.87
060110BTN	0.00	0.29	4.90	0.00	3.21	2.65	0.06	0.00	0.00	7.05	0.07	7.13	11.12	18.25
060111BTT	0.00	0.41	5.77	0.00	3.20	2.87	0.16	0.08	0.01	6.10	0.04	6.13	12.50	18.63
060111BTN	0.00	0.87	10.59	0.00	7.09	5.59	0.41	0.00	0.05	4.46	0.22	4.56	24.59	29.15
060112BTT	0.00	1.22	8.98	0.00	4.96	4.27	0.83	0.07	0.09	4.05	0.11	4.62	20.41	25.04
060112BTN	0.00	0.17	8.50	0.00	2.06	3.10	0.15	0.21	0.04	7.82	0.00	7.92	14.23	22.15
060113BTT	0.00	0.21	6.67	0.00	1.96	2.67	0.04	0.00	0.00	3.30	0.13	3.37	11.55	14.92
060113BTN	0.00	0.10	10.51	0.00	3.43	4.35	0.03	0.00	0.00	10.02	0.12	10.12	18.43	28.55
060114BTT	0.00	0.42	12.18	0.00	2.58	4.22	0.18	0.07	0.02	8.02	0.09	8.09	19.67	27.76
060114BTN	0.00	0.79	11.42	0.05	3.43	4.20	0.17	0.00	0.00	19.67	0.38	20.01	20.06	40.07
060115BTT	0.01	0.37	8.87	0.00	2.48	3.63	0.08	0.00	0.00	14.21	0.34	13.60	15.43	29.03
060115BTN	0.00	0.24	10.59	0.00	6.36	5.57	0.06	0.07	0.01	13.23	0.00	13.42	22.90	36.32
060116BTT	0.00	0.43	10.92	0.00	3.27	4.91	0.21	0.23	0.03	13.33	0.21	13.56	19.99	33.55
060116BTN	0.00	0.22	8.96	0.00	2.56	3.96	0.13	0.07	0.02	9.85	0.09	9.95	15.91	25.86
060117BTT	0.00	0.66	3.33	0.03	1.62	2.42	0.15	0.00	0.02	8.04	0.11	8.13	8.23	16.36
060117BTN	0.00	1.36	4.67	0.00	2.61	2.49	1.90	0.00	0.14	1.51	0.13	1.53	13.16	14.69
060118BTT	0.00	2.14	1.38	0.00	0.53	0.42	1.97	0.00	0.15	0.60	0.07	0.62	6.59	7.21
060118BTN	0.00	0.36	7.95	0.00	2.48	3.21	0.33	0.00	0.04	4.79	0.09	4.88	14.37	19.25
060119BTT	0.00	1.13	10.22	0.00	4.32	3.99	0.41	0.17	0.09	6.04	0.12	6.14	20.34	26.47
060119BTN	0.00	0.46	4.59	0.00	4.02	2.89	0.11	0.00	0.00	3.50	0.12	3.62	12.08	15.70
060120BTT	0.00	0.00	3.54	0.07	2.94	2.27	0.11	0.00	0.01	2.19	0.24	2.30	8.95	11.25
060120BTN	0.01	3.31	4.56	0.10	1.14	1.40	1.89	0.00	0.18	0.75	0.22	0.77	12.59	13.37
060121BTT	0.02	3.57	1.17	0.07	0.99	0.37	3.21	0.00	0.29	0.00	0.00	0.00	9.68	9.68
060121BTN	0.00	0.00	3.98	0.08	3.66	2.87	0.90	0.00	0.10	4.62	0.11	4.74	11.59	16.33
060122BTT	0.00	0.05	3.09	0.00	7.59	4.29	0.14	0.00	0.00	13.24	0.17	13.41	15.16	28.58
060122BTN	0.00	0.05	3.41	0.00	3.22	2.81	0.07	0.00	0.00	8.71	0.07	8.78	9.56	18.35
060123BTT	0.00	0.17	3.00	0.06	2.14	1.73	0.11	0.00	0.00	8.43	0.15	8.58	7.20	15.78
060223BT5N	0.00	0.06	4.67	0.14	2.68	2.46	0.16	0.00	0.02	4.19	0.09	4.28	10.19	14.47
060224BT5T	0.01	0.00	8.37	0.14	4.13	3.92	0.11	0.00	0.00	3.82	0.34	4.16	16.68	20.84
060224BT5N	0.02	0.42	8.39	0.12	8.12	5.11	0.09	0.00	0.00	14.14	0.27	14.39	22.27	36.65
060225BT5T	0.00	0.08	1.87	0.13	4.00	3.33	0.05	0.00	0.00	5.90	0.05	5.92	9.46	15.38
060225BT5N	0.01	0.18	3.53	0.17	6.27	3.62	0.04	0.00	0.00	6.41	0.08	6.48	13.81	20.29
060226BT5T	0.00	0.00	3.74	0.11	2.38	2.13	0.04	0.00	0.00	1.89	0.00	1.90	8.39	10.30
060226BT5N	0.00	0.66	1.05	0.13	0.92	0.59	0.55	0.00	0.06	3.27	0.07	3.31	3.95	7.27
060227BT5T	0.00	1.08	3.91	0.16	1.66	1.69	0.88	0.00	0.10	2.48	0.00	2.53	9.48	12.00
060227BT5N	0.00	1.67	4.97	0.00	2.86	2.63	0.62	0.00	0.08	0.00	0.00	0.00	12.83	12.83
060228BT5T	0.05	1.07	8.72	0.12	3.14	3.95	0.05	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	17.11	17.11
060228BT5N	0.00	0.29	1.92	0.00	1.18	1.03	0.22	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.64	4.64

Chemische Zusammensetzung der addierten Stufen (1-5), Steinfurter Straße (MS).

Proben- bezeichnung	Fluorid	Chlorid	Nitrat	Phosphat	Sulfat	Ammonium	Natrium	Calcium	Magnesium	OC	EC	Gesamt- kohlenstoff	Summe Ionen	Summe Ionen & Kohlenstoff
	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$	$\mu\text{g m}^{-3}$
060106MST	0.00	0.20	4.66	0.00	7.82	4.38	0.20	0.13	0.01	12.80	0.46	13.21	17.40	30.60
060106MSN	0.00	0.12	5.59	0.00	9.33	5.23	0.24	0.00	0.00	7.96	0.15	8.08	20.50	28.58
060107MST	0.00	0.10	4.76	0.00	4.39	3.06	0.05	0.00	0.00	9.94	0.32	10.26	12.36	22.61
060107MSN	0.00	0.17	5.46	0.00	6.03	3.89	0.07	0.00	0.00	11.18	0.17	11.33	15.61	26.94
060108MST	0.00	0.30	5.83	0.00	6.82	4.04	0.11	0.00	0.00	9.42	0.32	10.11	17.11	27.22
060108MSN	0.00	0.17	7.80	0.00	6.87	4.58	0.07	0.00	0.00	13.66	0.12	14.23	19.48	33.71
060109MST	0.00	0.37	11.34	0.00	6.97	5.65	0.13	0.30	0.00	21.99	0.61	22.59	24.77	47.36
060109MSN	0.02	0.88	5.40	0.00	5.48	4.25	0.12	0.08	0.01	30.08	0.53	30.68	16.24	46.92
060110MST	0.01	1.74	7.89	0.00	4.46	4.08	0.73	0.50	0.05	26.26	5.13	31.39	19.46	50.86
060110MSN	0.00	0.20	4.45	0.00	2.99	2.47	0.09	0.00	0.00	7.75	0.20	7.95	10.20	18.15
060111MST	0.00	1.72	5.31	0.00	3.11	2.62	1.50	0.62	0.06	17.19	3.40	20.59	14.94	35.53
060111MSN	0.00	1.40	11.95	0.00	8.02	6.13	0.86	0.00	0.09	7.61	0.94	9.58	28.45	38.03
060112MST	0.00	1.57	9.32	0.00	5.36	4.07	1.29	0.40	0.13	11.70	2.58	14.74	22.14	36.88
060112MSN	0.00	0.16	7.94	0.00	1.97	2.72	0.19	0.17	0.03	4.33	0.26	4.56	13.19	17.75
060113MST	0.00	0.16	6.57	0.00	2.15	2.54	0.05	0.00	0.00	7.92	0.64	8.54	11.46	20.00
060113MSN	0.00	0.29	10.33	0.00	3.39	4.13	0.09	0.26	0.05	18.57	0.78	19.33	18.55	37.88
060114MST	0.00	0.63	10.06	0.00	2.36	3.76	0.36	0.51	0.04	18.79	2.33	21.13	17.72	38.85
060114MSN	0.01	0.82	9.65	0.03	2.91	3.85	0.18	0.34	0.01	33.94	0.93	34.86	17.80	52.66
060115MST	0.00	0.74	7.94	0.00	2.40	3.06	0.34	0.24	0.00	23.74	1.88	25.61	14.73	40.34
060115MSN	0.01	0.15	11.08	0.00	5.87	5.19	0.11	0.00	0.00	13.88	0.61	14.48	22.41	36.89
060116MST	0.01	0.87	9.99	0.00	3.05	4.55	0.66	0.73	0.06	20.90	4.47	25.32	19.93	45.25
060116MSN	0.00	0.22	7.75	0.00	2.34	3.42	0.19	0.00	0.01	10.49	0.30	10.73	13.93	24.66
060117MST	0.00	0.77	4.36	0.00	1.93	2.28	0.86	0.08	0.01	15.97	1.48	17.29	10.28	27.56
060117MSN	0.01	1.49	4.62	0.00	2.65	2.52	1.69	0.00	0.14	4.22	0.20	4.34	13.12	17.45
060118MST	0.00	1.85	1.57	0.00	0.65	0.45	2.50	0.25	0.16	7.37	3.87	12.39	7.43	19.83
060118MSN	0.00	1.13	8.12	0.00	2.65	3.23	0.86	0.00	0.10	6.34	0.36	6.71	16.08	22.79
060119MST	0.01	1.23	9.23	0.00	4.43	4.30	0.52	0.27	0.11	17.67	2.60	20.28	20.09	40.37
060119MSN	0.00	0.44	3.79	0.00	3.08	2.72	0.17	0.00	0.00	7.19	0.46	7.57	10.21	17.78
060120MST	0.00	0.00	3.92	0.00	2.81	2.16	0.31	0.08	0.02	11.09	5.38	16.45	9.31	25.75
060120MSN	0.01	3.37	5.09	0.10	1.08	1.59	2.24	0.08	0.20	4.26	0.68	4.72	13.77	18.49
060121MST	0.26	4.94	1.64	0.31	1.77	0.50	4.06	0.10	0.31	8.06	2.02	10.58	13.89	24.47
060121MSN	0.00	1.32	3.75	0.00	3.46	2.75	1.37	0.00	0.10	7.29	0.49	7.78	12.75	20.53
060122MST	0.00	0.11	5.16	0.00	12.22	4.07	0.16	0.00	0.01	17.51	0.43	17.94	21.73	39.67
060122MSN	0.00	0.04	2.77	0.00	2.74	2.37	0.07	0.00	0.00	10.90	0.27	11.15	7.99	19.14
060123MST	0.00	0.20	2.88	0.04	1.98	1.64	0.13	0.05	0.00	10.15	0.63	10.78	6.91	17.69
060223MSN	0.00	0.14	4.57	0.10	2.52	2.31	0.20	0.19	0.00	9.83	0.56	10.38	10.03	20.41
060224MST	0.00	0.00	7.73	0.00	3.91	3.50	0.11	0.13	0.00	6.35	0.04	6.39	15.38	21.77
060224MSN	0.00	0.22	5.16	0.00	5.85	4.57	0.13	0.00	0.00	14.46	0.14	14.60	15.93	30.52
060225MST	0.00	0.00	5.56	0.10	3.55	3.04	0.06	0.00	0.00	6.38	0.57	7.60	12.31	19.91
060225MSN	0.00	0.09	3.26	0.00	5.82	3.40	0.04	0.00	0.00	9.10	0.43	9.46	12.62	22.08
060226MST	0.00	0.00	3.00	0.00	2.18	1.73	0.04	0.00	0.00	5.53	0.13	5.66	6.95	12.61
060226MSN	0.00	0.69	1.18	0.00	1.12	0.68	0.56	0.28	0.06	8.96	2.00	11.66	4.56	16.22
060227MST	0.00	1.03	3.46	0.10	1.44	1.48	0.84	0.00	0.09	10.15	1.90	12.05	8.43	20.48
060227MSN	0.00	1.02	5.48	0.00	3.51	3.17	0.59	0.19	0.08	21.17	4.14	25.31	14.04	39.35
060228MST	0.02	0.88	8.00	0.00	2.92	3.68	0.27	0.00	0.00	14.82	1.70	16.52	15.76	32.28
060228MSN	0.03	0.69	2.39	0.10	1.72	1.48	0.32	0.00	0.00	17.21	3.11	20.32	6.73	27.05

Weitere Tabellen und Abbildungen befinden sich im digitalen Anhang.

Danksagung

Mein Dank gilt an erster Stelle meinen Gutachtern Prof. Dr. Otto Klemm und Diplom-Geoökologin Johanna Gietl, die beide jederzeit für Fragen, Anregungen und Diskussionen zur Verfügung standen. Außerdem danke ich besonders Johanna Gietl für die sehr gute Zusammenarbeit bei der Probennahme und Analyse der Proben.

Bei der gesamten Arbeitsgruppe Klimatologie möchte ich mich für die gute Arbeitsatmosphäre sowie für die vielen Diskussionen bei kleineren und größeren Problemen aller Art bedanken.

Den technischen Angestellten im Labor des Instituts für Landschaftsökologie möchte ich für die Unterstützung bei den chemischen Analysen meinen Dank aussprechen.

Dem Bayreuther Institut für Terrestrische Ökosystemforschung der Universität Bayreuth danke ich für den ausgeliehenen Berner-Impaktor, der eine vergleichende Untersuchung erst ermöglichte. Herrn Prof. Dr. Axel Berner möchte ich herzlich für die eingehende Untersuchung der beiden eingesetzten Impaktoren danken.

Der biologischen Station Rieselfelder und dort insbesondere Dr. Hans-Uwe Schütz gilt mein Dank für die Bereitstellung und Unterstützung des Standortes auf einer Wiese in den Rieselfeldern.

Dem Landesumweltamt NRW danke ich für die zur Verfügung gestellten Feinstaubdaten der drei Messstationen in Münster.

Meinen Eltern möchte ich an dieser Stelle für die gute und zuverlässige Unterstützung während meiner gesamten Studienzeit danken, die mir ein angenehmes und intensives Studium ermöglichte.

Für die Unterstützung in manchen schwierigen Arbeitsphasen sowie für die Durchsicht von Teilen der Arbeit möchte ich mich bei meinen Freunden herzlich bedanken.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Diplomarbeit selbstständig verfasst und nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Münster, Januar 2007

(Torsten Tritscher)