



Kurzfassung zum Endbericht für das Projekt

"AQUELLA" Niederösterreich
Bestimmung von Immissionsbeiträgen in Feinstaubproben

RU4-A-152/077-04

Erstellt von

H. Bauer, I. Marr, A. Kasper-Giebl, A. Limbeck,
A. Caseiro, M. Handler, N. Jankowski, B. Klatzer, P. Kotianova,
P. Pouresmaeil, Ch. Schmidl, M. Sageder, H. Puxbaum
und dem AQUELLA - TEAM

Wien, 23.4.2009

Bericht UA/AQNÖKB 2009 – 38 S

Technische Universität Wien
Institut für Chemische Technologien und Analytik
Arbeitsgruppe für Umweltanalytik
1060 Wien, Getreidemarkt 9/164 UPA

INHALT

1. PROJEKTDATEN	3
2. EINFÜHRUNG UND AUFGABENSTELLUNG	5
2.1. Aufgabenstellung des gegenständlichen Projektes	6
3. QUELLENANALYSE MIT TRACERN	7
4. MODELLERGEBNISSE	11
4.1. Makrotracermodell	11
4.1.1 Monatsmittelwerte	12
4.1.2 Quellenanteile an Überschreitungstagen	15
4.1.3 Mittelwerte an Überschreitungstagen	18
4.1.4 Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung	21
4.1.5 „Sommer – Winter“ Vergleich	24
4.2. Ergebnisse des CMB Modells	26
4.2.1 Modellparameter	26
4.2.2 Ergebnisse	27
5. STÄDTEVERGLEICH WIEN – SALZBURG – KÖFLACH - ST. PÖLTEN – KLAGENFURT	28
6. ÜBERSCHREITUNGEN – EINFLUSS DER VORBELASTUNG	30
6.1. Stadteinfluss	31
6.2. Schlussfolgerungen aus der Quellen-Modellierung	33
7. PM10 UND METEOROLOGISCHE ASPEKTE	34
8. ZUSAMMENFASSUNG	36
9. LITERATUR	38

1. Projektdaten

Auftragnehmer:

Technische Universität Wien
Institut für Chemische Technologien und Analytik
Getreidemarkt 9/164 UPA
A-1060 Wien

Titel des Projektes:

AQUELLA Niederösterreich – Aerosolquellenanalyse für Niederösterreich

Laufzeit:

23. Juli 2004 bis 23. Juli 2006

Projektleiter:

Ao Prof. Dr. Hans Puxbaum
+43 1 58801 15170

Koordination:

Dr. Heidi Bauer
+43 1 58801 15177

Analytische Betreuer:

Heidi Bauer (EC/OC, Kohlenstoffspezifizierung, Filter Pooling)
Anne Kasper-Giebl (Ionenchromatographie, Anhydrozucker, Cellulose)
Andreas Limbeck (ICP-OES, AAS, Pd)
Iain Marr (Qualitätskontrolle)

Wissenschaftliche Mitarbeiter:

Yo Abé (Emissionsprofile Kochen, Holzbearbeitung, Tierhaltung)
Alexandre Caseiro (HPLC-E-Chem.Detektion, Anhydrozucker, Cellulose)
Markus Handler (ICP-OES, Filter Transport, Straßenstaubsammlung)
Nicole Jankowski (Straßenstaubprofile)
Barbara Klatzer (TOC, HULIS, Filter Pooling)
Petra Kotianova (GC-MS non-polar)
Parissa Pouresmaeil (Thermographie, EC/OC, Filter Management)
Christoph Puls (AAS – As, Sb, Pb)
Barbara Rollinger (GC-MS polar)

Markus Sageder (Meteorologische Analyse)

Christoph Schmidl (Holzrauchprofile)

Johannes Zbiral (RFA – Si, Al, Fe)

Externe Beratung / Mitarbeit

Prof. Axel Berner (PM10 Emissionssammler Design, PM10 ambient sampler Design)

Johannes Frank (Konstruktion von Eigenbau-Geräten)

Prof. James J. Schauer (Externe Beratung, GC-MS Kalibrierung, Auswertung, CMB Beratung)

Prof. Vasil Simeonow (CMB AQUELLA Modellierung)

Weitere Mitarbeiter:

Katrin Fizzor, Ute Wolfesberger (EC/OC)

Christian Effenberger, Carlos Ramirez Santa Cruz (Ionenchromatographie)

Lorena Andrade Sanchez (Filteraliquotisierung)

2. Einführung und Aufgabenstellung

Bis 2004 galt in Österreich als gesetzlich zu erfassende Staubfraktion Gesamtschwebstaub oder auch abgekürzt TSP (für „total suspended particles“). Da feinere Teilchen tiefer in den Atemtrakt gelangen und in epidemiologischen Untersuchungen auch eine höhere Wirkung auf Atemtrakt- und Herz-Kreislaufkrankungen aufgezeigt wurdeⁱ, wurden in den USA bereits vor längerer Zeit Grenzwerte für die feineren Staubfraktionen unter $10\ \mu\text{m}$ („PM10“) und unter $2,5\ \mu\text{m}$ („PM2.5“) eingeführt. Seitens der EU wurde am 22. April 1999 die Richtlinie 1999/30/EG erlassen, in welcher die Grenzwerte für Partikel in der Luft neu behandelt wurden. Als „PM10“ in der erwähnten EU-Richtlinie wird „Particulate Matter mit einem mittleren aerodynamischen Abscheidedurchmesser von $10\ \mu\text{m}$ “ bezeichnet. Als Grenzwert zum Schutz des Menschen ist im Immissionsschutzgesetz-Luft (IG-Luft) ein Jahresmittelwert von $40\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ und ein Tagesmittelwert (TMW) von $50\ \mu\text{g}/\text{m}^3$, dieser jedoch verknüpft mit Überschreitungskriterien, angegeben. Der PM10 Standard mit einem Grenzwert von $50\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ als TMW, der pro Jahr 35 Mal überschritten werden darf, wurde mit dem IG-Luft 2001 in Bezug auf die Überschreitungshäufigkeit verschärft in österreichisches Recht übernommen. Ein Grenzwert von $25\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahresmittel für PM2.5 wurde erst letztes Jahr von der EU (24. Mai 2008) erlassen (Richtlinie 2008/50/EGⁱⁱ). Dieser soll ab 1. Januar 2015 eingehalten werden.

In Niederösterreich wurden laut Jahresbericht der Luftgütemessungen in Niederösterreich z.B. im Jahr 2005 an 12 von 22 Messstationen die zulässigen Überschreitungen des Tagesmittelwertes von PM10 überschrittenⁱⁱⁱ. In Österreich führt eine Überschreitung eines IG-Luft Grenzwerts zur Stuserhebung mit einer Analyse der Verursacher und zur Einleitung von geeigneten Maßnahmen, um die Überschreitungen in Zukunft vermeiden zu können. Während nun bei gasförmigen Luftschadstoffen auf Basis der Emissionskataster auf Anteile von Verursacherquellen geschlossen werden kann, ist dies bei Partikeln PM10 nicht in gleichartiger Weise möglich. Zum einen, da Partikel aus vielfältigen chemischen Verbindungen bestehen, zum anderen, da diese chemischen Verbindungen jeweils aus verschiedenen Quellen stammen. Außerdem wird ein erheblicher Anteil der Partikel in der Luft erst sekundär gebildet und scheint in den Emissionskatastern nicht auf. Weiters erfassen die Emissionskataster nicht oder sehr unvollständig fugitive Emissionen, die z.B. durch Straßenabrieb, Bautätigkeit, Erosion von offenen Flächen etc. verursacht werden. Dadurch wird die Erkennung von Quellenbeiträgen zum PM10 Aerosol ein mehrdimensionales Problem, das nicht mehr durch Betrachten der Messwerte selbst gelöst werden kann. Als Lösungsmöglichkeit wurde die Anwendung eines Chemischen Massenbilanzmodells (CMB) vorgeschlagen, welches mit Hilfe eines statistischen Verfahrens und der Anwendung von gemessenen Quellenprofilen eine Rekonstruktion der Beiträge der wichtigsten, in einer Vorauswahl ermittelten Aerosolquellen ermöglicht. Basierend auf den Erfahrungen mit dem CMB-Modell wurde im Rahmen von AQUELLA ein eigenes Aerosolquellen-Modell, das Makrotracer-Modell entwickelt und erfolgreich angewendet. Das Makrotracer-Modell basiert auf dem CMB Ansatz, wobei die Zahl der Tracerkomponenten auf eine möglichst geringe reduziert wird. Als Tracerkomponenten werden soweit als möglich

Makrokomponenten herangezogen, die sich als besonders zuverlässig hinsichtlich der Quellenidentifizierung erwiesen haben.

Für die Schaffung eigener Quellenprofile wurden zwei spezielle Projekte vom BM für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft („AQUELLIS – Kraftfahrzeuge“ und „AQUELLIS – Industrie, Gewerbe, Landwirtschaft“) sowie eines vom Bundesministerium für Verkehr, Technologie und Innovation (Emissionsprofile der KFZ Flotte im Kaisermühlentunnel) bearbeitet. Profile von Straßenstäuben wurden im Rahmen des gegenständlichen Projektes erstellt. AQUELLA – Projekte wurden bereits für Wien, Graz/Steiermark, Salzburg, Niederösterreich und Klagenfurt/Kärnten durchgeführt.

2.1. Aufgabenstellung des gegenständlichen Projektes

Im Rahmen des gegenständlichen Projektes sollten die Hauptverursacher der PM10 Überschreitungen in St. Pölten und Schwechat ermittelt werden. Dafür war die Erstellung eines Aerosolquellenmodells für PM10 in Niederösterreich sowie eines geeigneten Tracersatzes notwendig, als Grundlage der Quellenanalyse mit dem Chemischen Massenbilanzmodell. Der Tracersatz wurde in den Quellenproben analysiert, daraus resultierten die Quellenprofile. In ausgewählten Immissionsproben wurden dann ebenso die Konzentrationswerte der Tracerkomponenten im Verhältnis zur PM10 Konzentration bestimmt. Mit Hilfe des Makrotracer-Modells und des CMB-Modells wurden letztlich die Anteile der wichtigsten Aerosolquellen ermittelt.

Die Anwendung des Aerosolquellenmodells für Niederösterreich sollte insbesondere der Analyse von Situationen dienen, die zur Überschreitung der IG-Luft Grenzwerte von PM10 führen. Durch Einbeziehen einer Vorbelastungsmessstelle war beabsichtigt, den eigentlichen Stadteinfluss als „Urban Impact“ für die Überschreitungsepisoden herauszufiltern.

3. Quellenanalyse mit Tracern

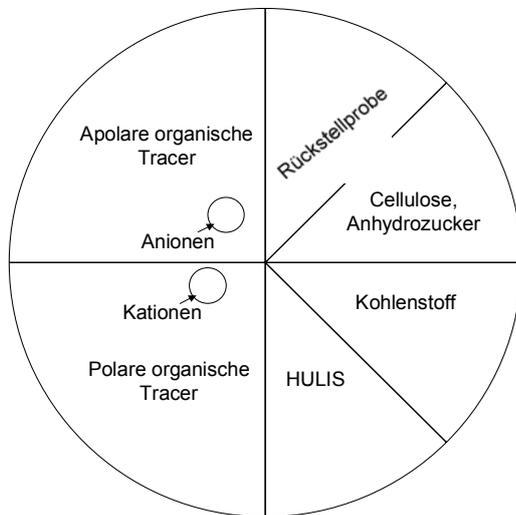
Vier der für das Projekt AQUELLA Niederösterreich ausgewählten Immissionsmessstellen sind im Verlauf einer Transekte von West in Richtung Ost angeordnet, Mistelbach liegt etwas weiter im Norden. Als regionale Hintergrundmessstellen fungieren Amstetten, Mistelbach und Stixneusiedl. Messstellen im urbanen Wohngebiet sind St. Pölten und Schwechat (wahrscheinlich auch durch Wien beeinflusst). Abbildung 1 zeigt Lage und Anordnung der Messstellen.



Abbildung 1: Lage der AQUELLA-Messstellen im Niederösterreich.

Die Messstellen St. Pölten Eybnerstraße, Schwechat, Mistelbach und Stixneusiedl wurden von Jänner bis Juni 2005 beprobt, in Amstetten begann die Probenahme erst Mitte April. Des Weiteren wurden in St. Pölten, Schwechat und Stixneusiedl Quellenproben von Straßenstäuben gezogen. Profile für die Holzverbrennung wurden an der TU Wien für die in Österreich verwendeten Holzarten erstellt.

Die Immissions- und Quellenproben wurden einer umfassenden Analytik unterworfen. Abbildung 2 zeigt die Aufteilung der bis zur Messung bei -20°C aufbewahrten Quarzfaserfilter der Immissionsprobenahme.



- Apolare organische Tracer: PAH, Alkane
- Polare Organische Tracer: Fett- und Harzsäuren • Anionen: Chlorid, Nitrat, Sulfat
- Kationen: Ammonium, Natrium, Kalium, Kalzium, Magnesium
- Cellulose
- Anhydrozucker: Levoglucosan und verwandte Verbindungen
- Kohlenstoff: TC, EC, OC, teilweise CC
- HULIS: Humic like substances
- Rückstellprobe: für Wiederholungen

Abbildung 2: Aufteilung der Quarzfaserfilter (Pallflex Quartz, 150 mm Durchmesser)

Für die Messung der metallischen Elemente wurden Celluloseacetatfilter verwendet. Diese wurden vorerst der zerstörungsfreien Röntgenfluoreszenzanalyse (Bestimmung von Silizium und Aluminium) unterzogen, anschließend unter Druck in Königswasser aufgeschlossen und mittels optischer Emissionsspektalanalyse und Atomabsorptionsspektrometrie untersucht; bestimmt wurden Blei, Cadmium, Kupfer, Zink, Mangan, Eisen, Vanadium, Nickel, Kalzium, Magnesium, Titan, Barium, Antimon und Arsen.

Um Information auch über Monatsgänge zu gewinnen, konnten nicht immer Tagesproben analysiert werden. Die Proben wurden aus diesem Grunde „gepoolt“.

Tabelle 1 zeigt den Analysenplan, die Abbildung 3 und 4 die Jahrgänge von PM₁₀ bzw. Silikaten an den Messstationen. Als Überschreitungstage wurde die Überschreitung des Grenzwertes von 50 µg/m³ an einer der niederösterreichischen Messstellen definiert.

Durchaus überraschend ist das Ergebnis des in weiten Teilen parallelen Verlaufs nicht nur der PM₁₀ Konzentrationen, sondern auch der Silikatstaub – Werte von PM₁₀ an auseinander liegenden Messstellen. Silikate sind ein Bestandteil des Straßenabriebs, treten aber auch bei Baustellen, unbefestigten Wegen z.B. im landwirtschaftlichen Bereich sowie infolge natürlicher Erosionsvorgänge auf. Die Ursachen für diesen längerfristigen Parallel-Lauf der Silikatstaub – Werte sind nicht bekannt, es kommen sowohl relativ großräumige Phänomene als auch lokales Einwirken in Frage.

Tabelle 1: Liste der analysierten Pools (Rote Schrift: Überschreitungsperioden, schwarze Schrift: Perioden ohne Grenzwertüberschreitung an der am höchsten belasteten Messstelle)

St. Pölten	Schwechat	Mistelbach	Stixneusiedl	Amstetten	
11.-12.01.05	11.-12.01.05	11.-12.01.05	11.-12.01.05		Ü1
17.-18.01.05	17.-18.01.05	17.-18.01.05	17.-18.01.05		Ü2
1.-10., 13.-16., 19.-31.01.05	1.-10., 13.-16., 19.-31.01.05	1.-10., 13.-16., 19.-31.01.05	1.-10., 13.-16., 19.-31.01.05		
05.02.2005	05.02.2005	05.02.2005	05.02.2005		Ü3
6.-9.02.05	6.-9.02.05	6.-9.02.05	6.-9.02.05		Ü4
10.02.2005	10.02.2005	10.02.2005	10.02.2005		Ü5
11.02.2005	11.02.2005	11.02.2005	11.02.2005		Ü6
12.02.2005	12.02.2005	12.02.2005	12.02.2005		Ü7
13.02.2005	13.02.2005	13.02.2005	13.02.2005		
23., 24., 26.02.05	23., 24., 26.02.05	23., 24., 26.02.05	23., 24., 26.02.05		Ü8
25.02.05	25.02.05	25.02.05	25.02.05		Ü9
1.-4., 27.- 28.02.05	1.-4., 27.- 28.02.05	1.-4., 27.- 28.02.05	1.-4., 27.- 28.02.05		
14.-22.02.2005	14.-22.02.2005	14.-22.02.2005	14.-22.02.2005		
3.-6.03.05	3.-6.03.05	3.-6.03.05	3.-6.03.05		Ü10
14.-16.03.05	14.-16.03.05	14.-16.03.05	14.-16.03.05		Ü11
22.-25.03.05	22.-25.03.05	22.-25.03.05	22.-25.03.05		Ü12
27., 29.- 30.03.05	27., 29.- 30.03.05	27., 29.- 30.03.05	27., 29.- 30.03.05		Ü13
1.-2., 7.-13., 17.-21., 26., 28., 31.03.05					
01.04.2005	01.04.2005	01.04.2005	01.04.2005		Ü14
2.-10.04.05	2.-10.04.05	2.-10.04.05	2.-10.04.05		
13.-15.04.05	13.-15.04.05	13.-15.04.05	13.-15.04.05	13.-15.04.05	Ü15
11.-12., 16.- 30.04.05	11.-12., 16.- 30.04.05	11.-12., 16.- 30.04.05	11.-12., 16.- 30.04.05	11.-12., 16.- 30.04.05	
8.-9.05.05	8.-9.05.05		8.-9.05.05	8.-9.05.05	
1.-7., 10.-12., 20.-25., 30.- 31.05.05	1.-7., 10.-12., 20.-25., 30.- 31.05.05	1.-7., 10.-12., 20.-25., 30.- 31.05.05	1.-7., 10.-12., 20.-25., 30.- 31.05.05	1.-7., 10.-12., 20.-25., 30.- 31.05.05	
13.-19., 26.- 29.05.05	13.-19., 26.- 29.05.05	13.-19., 26.- 29.05.05	13.-19., 26.- 29.05.05		
1., 15.06.05	1., 15.06.05	1., 15.06.05	1., 15.06.05		
2.-14., 16.06.05	2.-14., 16.06.05	2.-14., 16.06.05	2.-14., 16.06.05	2.-14., 16.06.05	
17.-19.06.05	17.-19.06.05	17.-19.06.05	17.-19.06.05	17.-19.06.05	
20.-30.06.05	20.-30.06.05	20.-30.06.05	20.-30.06.05	20.-30.06.05	

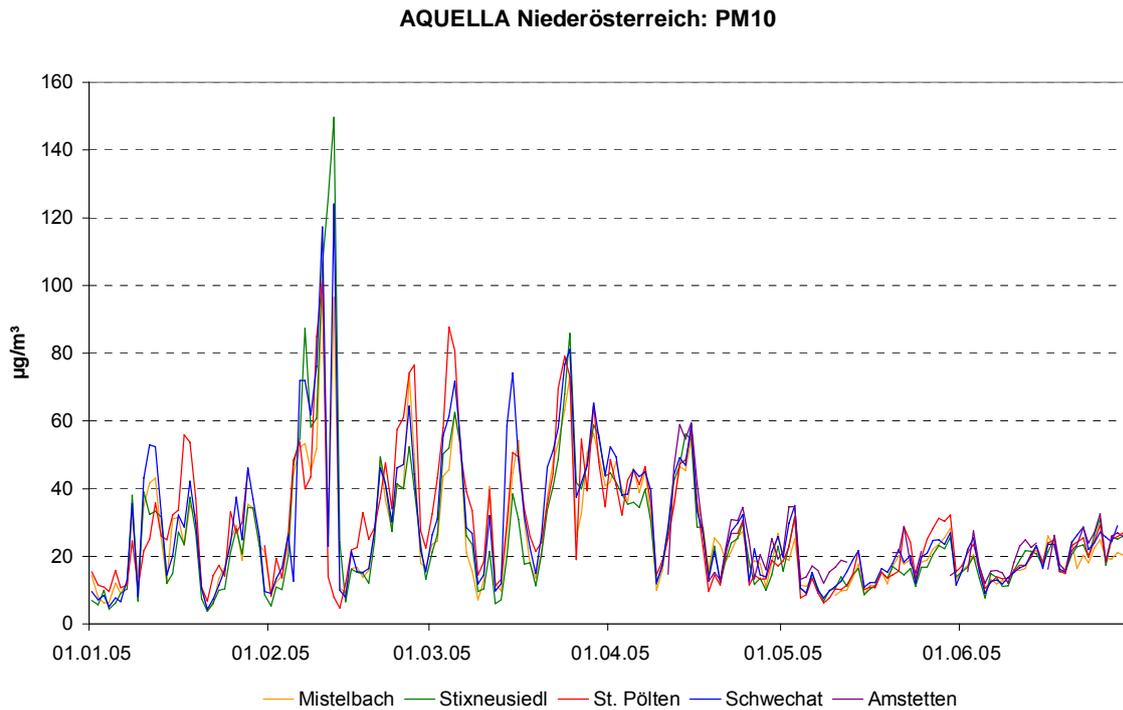


Abbildung 3: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10 an den niederösterreichischen Messstellen Mistelbach, Stixneusiedl, St. Pölten, Schwechat (Jan-Jun 2005) und Amstetten (Apr-Jun 2005).

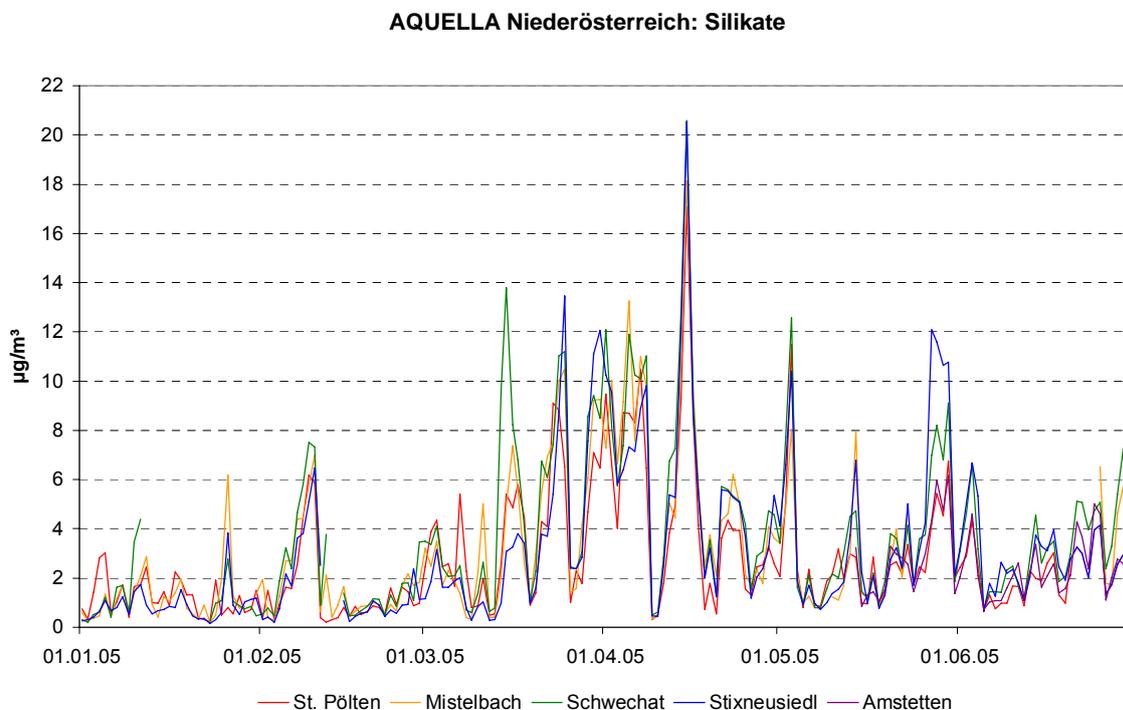


Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von silikatischem Staub an den Messstellen Mistelbach, Stixneusiedl, St. Pölten, Schwechat (Jan-Jun 2005) und Amstetten (Apr-Jun 2005).

4. Modellergebnisse

4.1. Makrotracermodell

Tracermodelle basieren auf der Anwendung chemischer Verbindungen, die für bestimmte Quellengruppen charakteristisch sind. Diese Tracer sind oft nur in sehr geringen Konzentrationen in den Stäuben von bestimmten Quellen enthalten. Makrotracer sind nun Tracer, die in höheren Konzentrationen in den Quellenproben auftreten – zu mindestens 1%, eine Eigenschaft, die sich bei der Quantifizierung der Quellenbeiträge vorteilhaft auswirkt. Das an der TU Wien entwickelte Modell beruht auf den Tracern Ruß (EC) für Deselemissionen und Holzrauch. Die EC-Anteile für Holzrauch wurden aus der Analyse für Levoglucosan abgeleitet. Die Differenz bildet den EC aus Deselemissionen. Aus diesem wurden anschließend der OC der Motoremissionen sowie der Anteil von sonstigem Brems- und Reifenabrieb und „Straßenabrieb“ über Emissionsfaktoren abgeleitet. Im gegenständlichen Modell wurde der Non-Exhaust Anteil von Reifen- und Bremsabrieb separat dargestellt („organischer Abrieb“). Die mineralischen Bestandteile des Straßenabriebs finden sich im Quellenanteil Mineralstaub.

Für die organischen Anteile des Reifen- und Bremsabriebs wurde als Rechengröße das 0.3 fache des Abgasanteils angenommen. Dies stellt nach eigenen Messungen (Kaisermühlentunnel) eine Untergrenze dar, beim Kaisermühlentunnel mit täglichen Staus lag der organische non-exhaust Anteil im groben Bereich (PM_{10-2,5}) beim 0.6 fachen des Exhaust-Anteils^{iv}; ohne Stau lag der Anteil bei 0,1^v. Da in Tunnels der Anteil des wieder aufgewirbelten Materials höher anzunehmen ist, als in offenen Straßen, wurde der Faktor 0.3 angewendet. Der mineralische Anteil von Abrieb und Wiederaufwirbelung ist im Quellenanteil von Mineralstaub enthalten. Arsen gilt als Tracer für die Kohleverbrennung – da der Faktor jedoch großen Schwankungen unterliegt, konnte diese Quelle nicht eindeutig quantifiziert werden und wurde daher aufgrund der geringen Kohleanteile bei der Raumwärme in Österreich nicht berücksichtigt. Mineralstaub wurde aus dem Silizium- und Kalziumanteil berechnet – für Silizium wurde der Faktor 2.7 angewendet (entsprechend dem Vorkommen von Silizium in der Erdkruste, Kalzium wurde als Karbonat (CaCO₃, stöchiometrischer Faktor 2.5) berechnet. Die Quantifizierung der Quelle „Streusalz“ erfolgte aus dem Anteil von Natrium und Chlorid. Für die Ableitung des anorganisch sekundären Anteils wurden die Komponenten Ammonium, Nitrat und Sulfat verwendet. Bei diesen ist ein Feuchteanteil von etwa 10% einzubeziehen.

Tabelle 2 gibt eine Übersicht über die Makrotracer sowie deren Quellen und fasst die im Modell verwendeten Faktoren zusammen.

Tabelle 2: Makrotracer und abgeleitete Quellen im Makrotracer-Modell

Makrotracer	Umrechnungsfaktoren	Abgeleitete Quelle	Referenz
Ruß (EC)	$EC_D = EC - EC_H$ $DA = EC_D + (EC_D * 0,33)$ (DA: Diesel-Abgas) $EC_H = M_H * 0,15$	EC aus Diesel Diesel Emission KFZ+off road EC aus Holzrauch	Tunnelmessungen Eigene Daten
Levoglucosan	$M_H = Levo * 10,7$	Holzrauch Haushalte	Eigene Daten
Cellulose	Cellulose*2	Pflanzen-Debris	Puxbaum&Tenze-Kunit 2003 ^{vi}
HULIS	1x	Organisch Sekundär	Limbeck et al. 2005
Arabitol	0,7 pg/Pilzspore 13 pg C/Pilzspore	Bio-Aerosol (Pilze)	Bauer et al., 2008 ^{vii} Bauer et al., 2002 ^{viii}
NaCl	> 1% von PM10	Auftausalz	-
Si, Ca	$(Si * 3,46) + (Ca * 2,5)$	Mineralstaub	Geogene Verhältnisse
Ammonium, Sulfat, Nitrat	$(NH_4 + SO_4 + NO_3) * 1,1$ (für 10% Wasser)	Anorganisches Sekundäraerosol	-
Nicht identifiziert	-	v.a. sekundär organisch, unbekannte Bioaerosole	-

Da eine der zentralen Fragen im Projekt AQUELLA jene nach den Ursachen der Überschreitungen war, wurden detaillierte chemische Analysen des Feinstaubes an Stadt und Hintergrundmessstellen durchgeführt, um aus dieser Zusammensetzung und der Differentialdiagnose zwischen den Messstellen auf Quelleneinflüsse schließen zu können. Überschreitungstage wurden nach der Überschreitung des Grenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an einer der niederösterreichischen AQUELLA-Messstellen definiert.

4.1.1 Monatsmittelwerte

In den folgenden Abbildung 5 bis 9 werden die Quellzuordnungen als Monatsmittelwerte dargestellt. Die auffallend ähnliche Zusammensetzung des Feinstaubes an allen Messstellen lässt vermuten, dass sich eine erhöhte Belastung über den gesamten Messraum erstreckt. Im Winter wird der Feinstaub von anorganischem Sekundäraerosol und Holzrauch dominiert, in der wärmeren Jahreszeit überwiegen Sekundäraerosol und Mineralstaub.

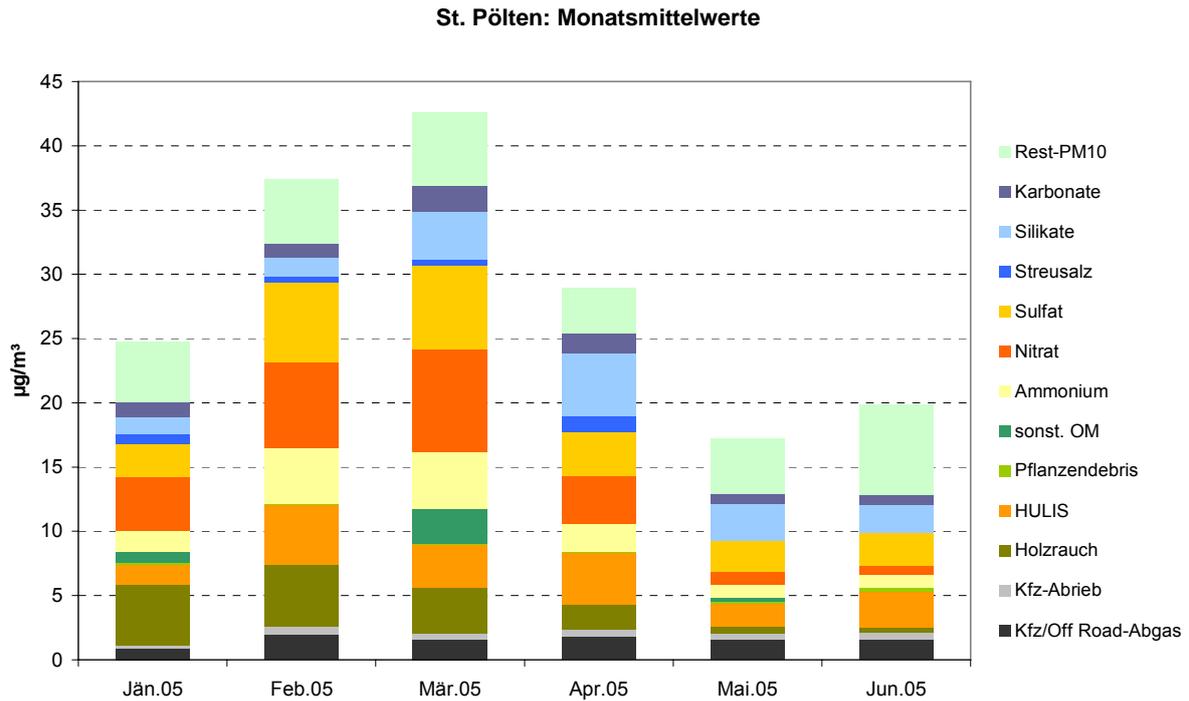


Abbildung 5: Monatsmittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse an der Messstelle St. Pölten.

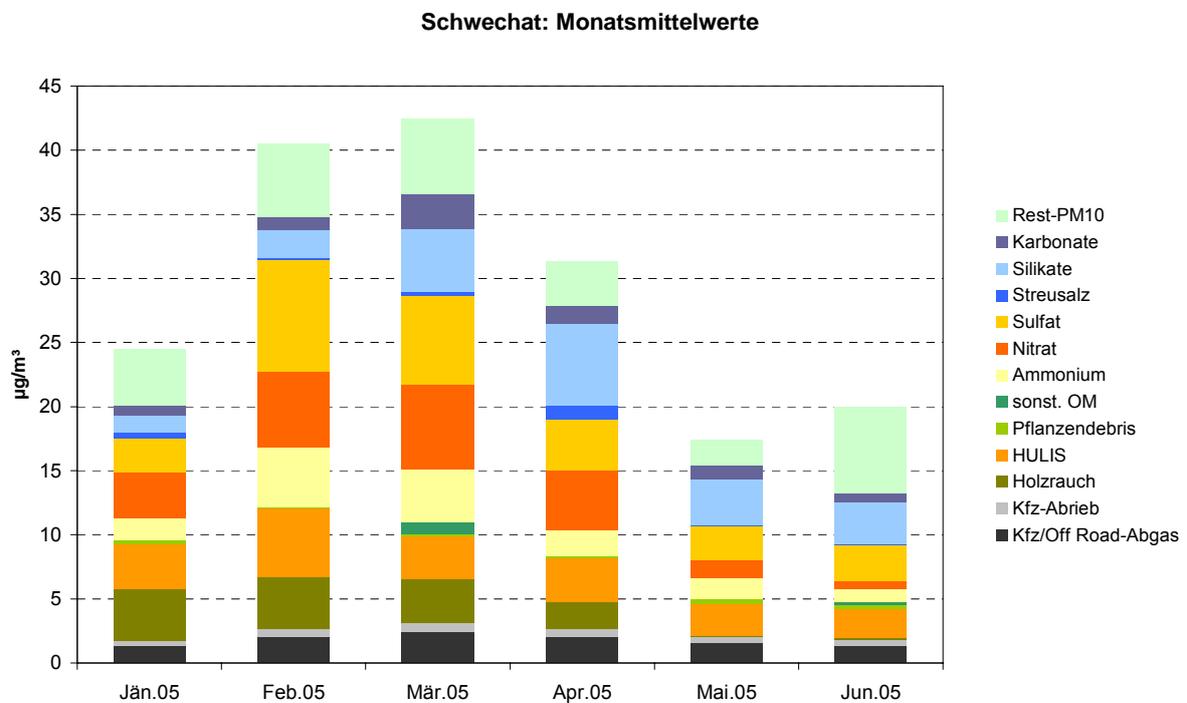


Abbildung 6: Monatsmittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse an der Messstelle Schwechat.

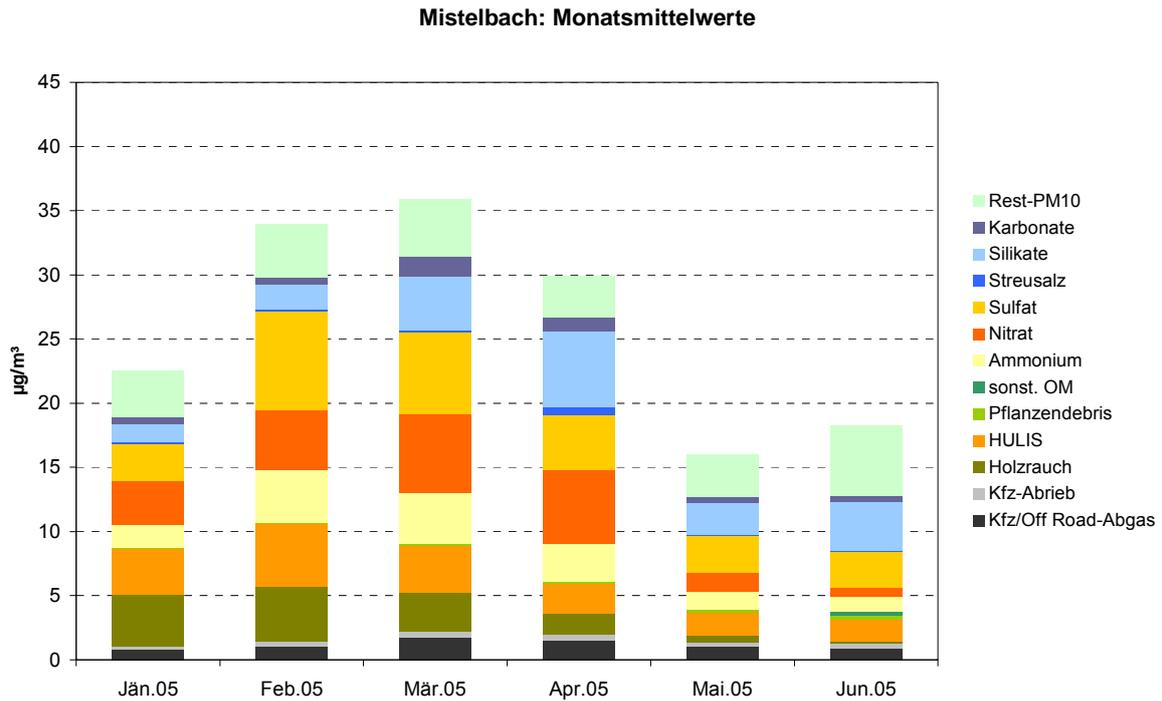


Abbildung 7: Monatsmittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse an der Messstelle Mistelbach.

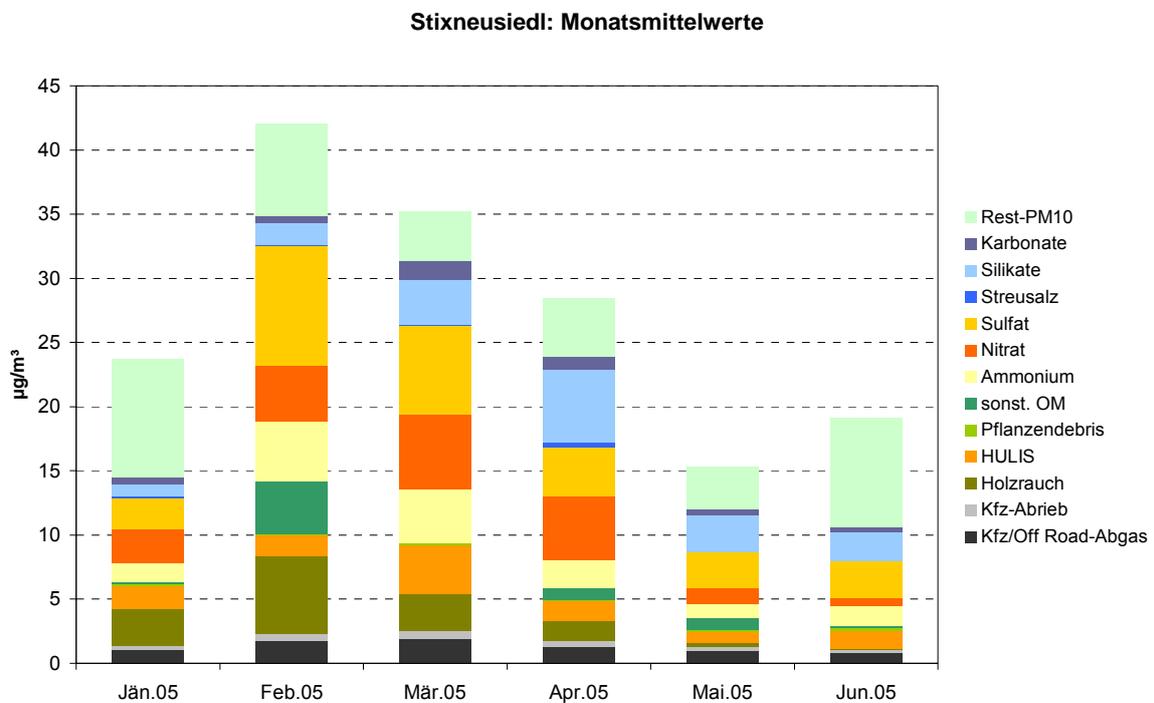


Abbildung 8: Monatsmittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse an der Messstelle Stixneusiedl.

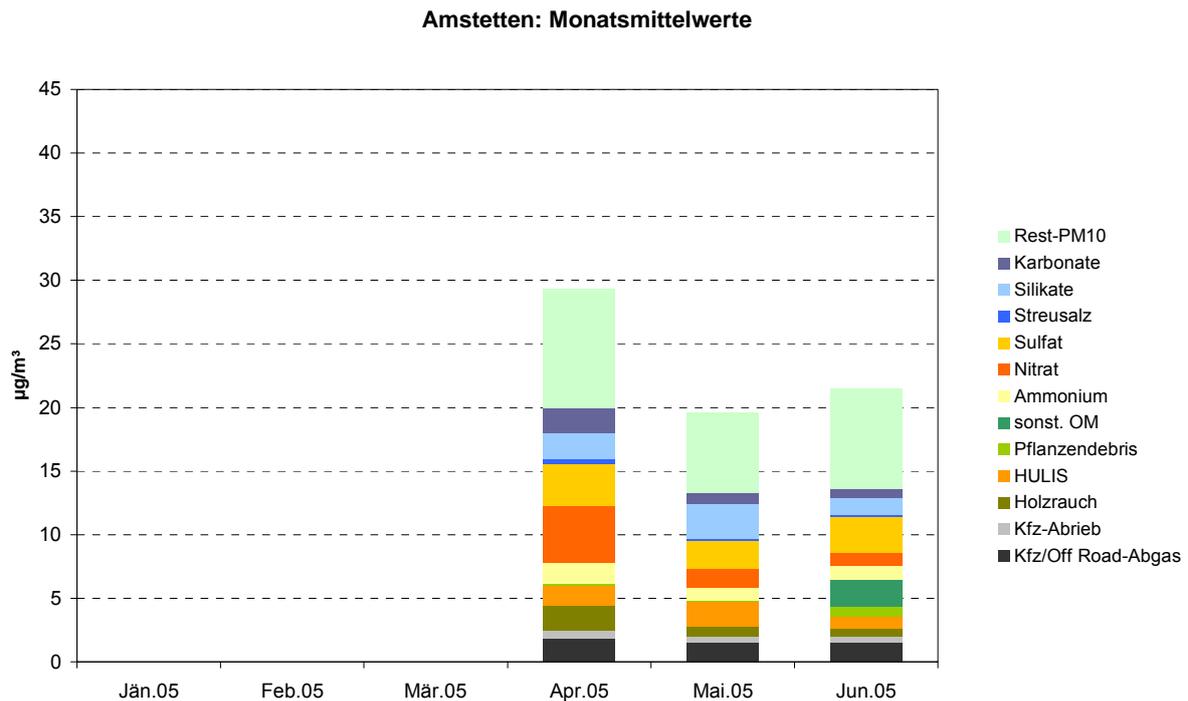


Abbildung 9: Monatsmittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse an der Messstelle Amstetten.

4.1.2 Quellenanteile an Überschreitungstagen

In Abbildung 10 - Abbildung 13 sind die ermittelten Quellenanteile der untersuchten Pools an Überschreitungstagen dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass an den einzelnen Überschreitungstagen bzw. Perioden durchwegs unterschiedliche Quellenbeiträge den „Haupt-Beitrag“ bewirken. Im Februar und Anfang März dominierten an allen Messstellen erhöhte Sekundäraerosol-Anteile von Ammoniumnitrat und Ammoniumsulfat, mit relativen Beiträgen von bis zu etwa 60%. Im März und April fielen erhöhte Silikat- und Karbonatwerte auf. Ein Grund könnte die Splittstreuung sein, die während des Winters erfolgt und durch Frost und die passierende Fahrzeugflotte zerkleinert wird. Solange die Straßen jedoch feucht sind, kommt es zu keiner Aufwirbelung. Bei trockeneren Bedingungen kann dieses feine Material auf Straßen jedoch vermehrt resuspendiert werden, und trägt im Spätwinter bzw. beginnenden Frühling zur Immissionsbelastung bei.

Silikatisches Material, das einen parallelen Trend an den Messstationen über den Messzeitraum zeigt, stammt einerseits von Straßenabrieb und den Winterdienst-Einflüssen, andererseits weisen die Anstiege im Frühjahr auch auf mögliche Einflüsse der Landwirtschaft hin, da Böden ebenfalls häufig silikathaltig sind.

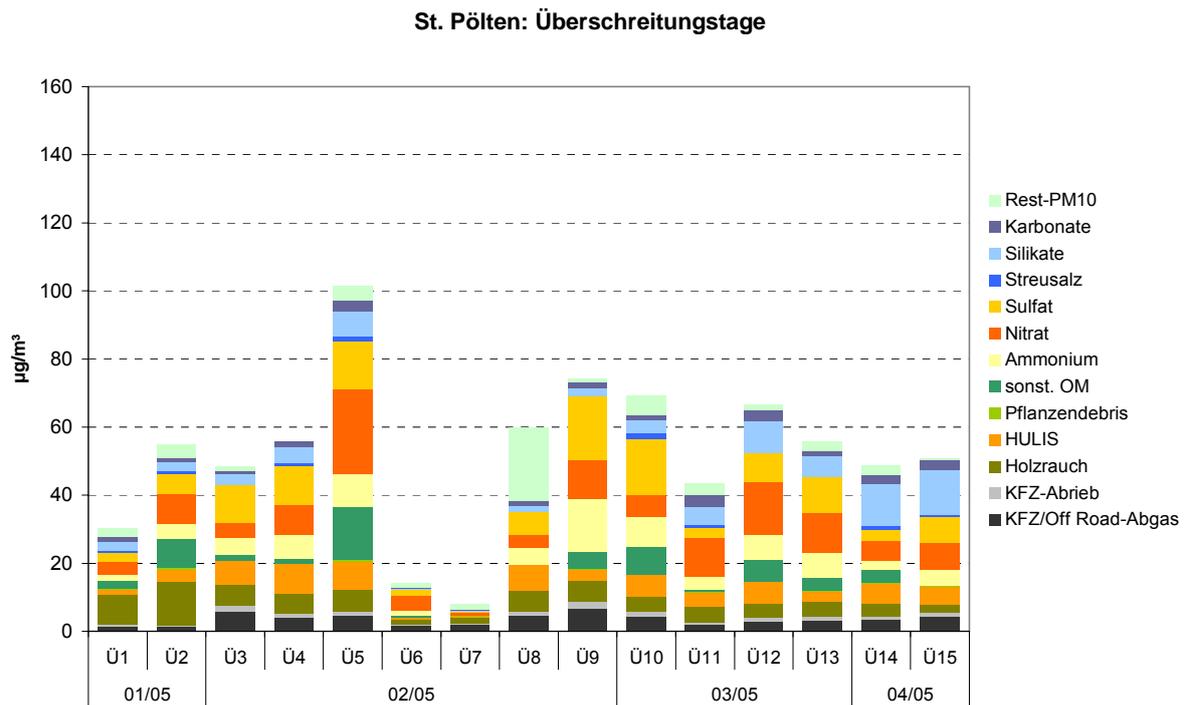


Abbildung 10: Quellenanteile an Überschreitungstagen im ersten Halbjahr 2005 an der Messstelle St. Pölten. (Ü1 – Ü15: Überschreitungen an einer der niederösterreichischen AQUELLA-Messstellen)

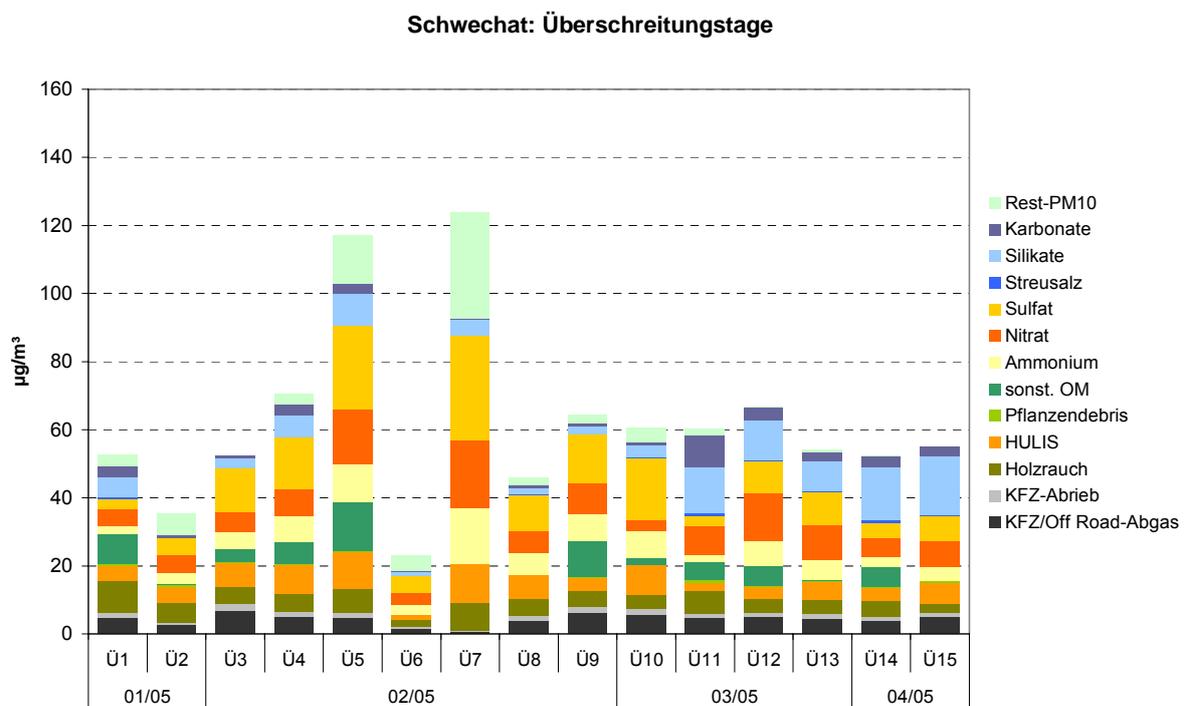


Abbildung 11: Quellenanteile an Überschreitungstagen im ersten Halbjahr 2005 an der Messstelle Schwechat.

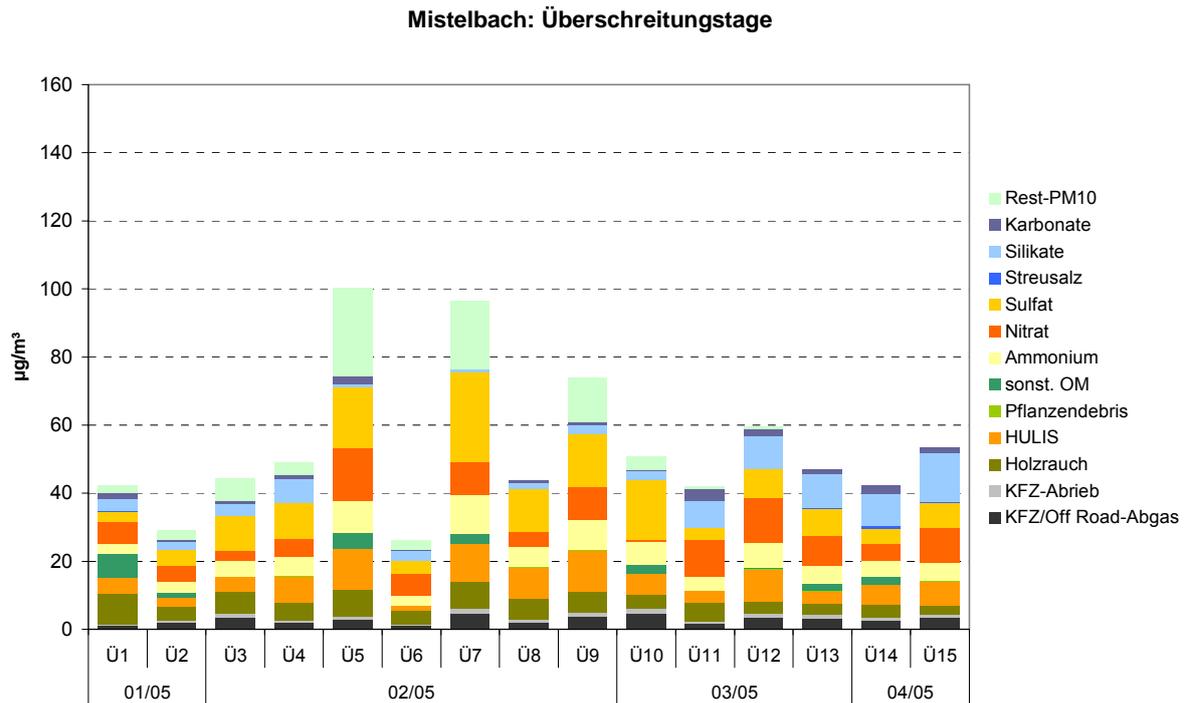


Abbildung 12: Quellenanteile an Überschreitungstagen im ersten Halbjahr 2005 an der Messstelle Mistelbach.

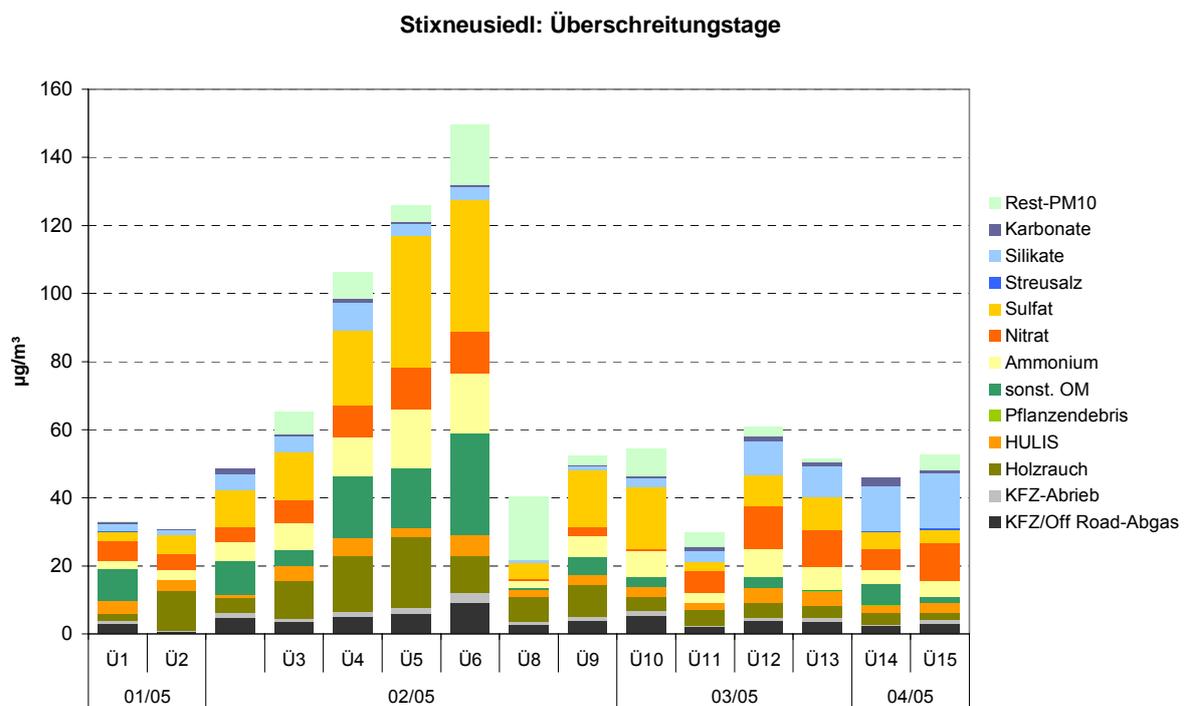


Abbildung 13: Quellenanteile an Überschreitungstagen im ersten Halbjahr 2005 an der Messstelle Stixneusiedl.

Holzrauch und HULIS traten vor allem in den kalten Monaten verstärkt als Quellen auf. Es ist eindeutig erkennbar, dass die Hauptquellen dieser Komponenten im ländlichen Bereich lagen, da die Werte in den Städten in etwa gleich waren wie an den Hintergrundmessstellen. Ebenso wurde verstärkt im Winter auftretendes nicht aufgeschlüsseltes organisches Material beobachtet, das möglicherweise aus Feuerungen von Feststoffen stammte. Dieses nicht zuordenbare Material wurde auch an anderen, städtischen und ländlichen Messstellen, vor allem südlich der Alpen, in der kalten Jahreszeit in ähnlicher Konzentration beobachtet.

4.1.3 Mittelwerte an Überschreitungstagen

In Abbildung 14 sind die Mittelwerte der Quellenanteile für die Überschreitungstage in der Beobachtungsperiode Jänner bis Juni 2005 die vier Messstellen in Niederösterreich als Absolutwerte dargestellt. Es ist erkennbar, dass die Vorbelastung in Mistelbach im Mittel über die Überschreitungstage im ersten Halbjahr 2005 gleich hoch wie in St. Pölten. Dies gilt auch für alle anderen Messstellen im Untersuchungszeitraum. Dies bedeutet, dass zur Einhaltung des Grenzwerts von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. der erlaubten Überschreitungshäufigkeit von 30/Jahr nur großräumige Maßnahmen im ost- und südosteuropäischen Raum zum Ziel führen können – da zudem ein Teil des Aerosols auf den Ferntransport zurückzuführen ist.

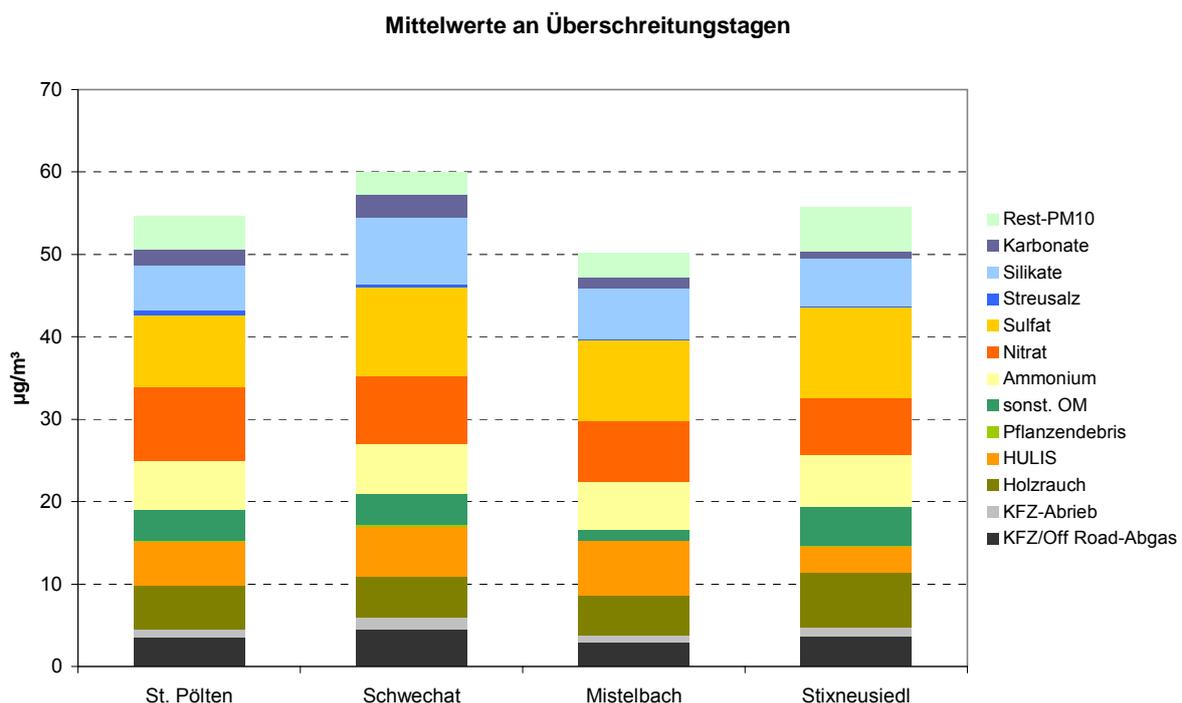
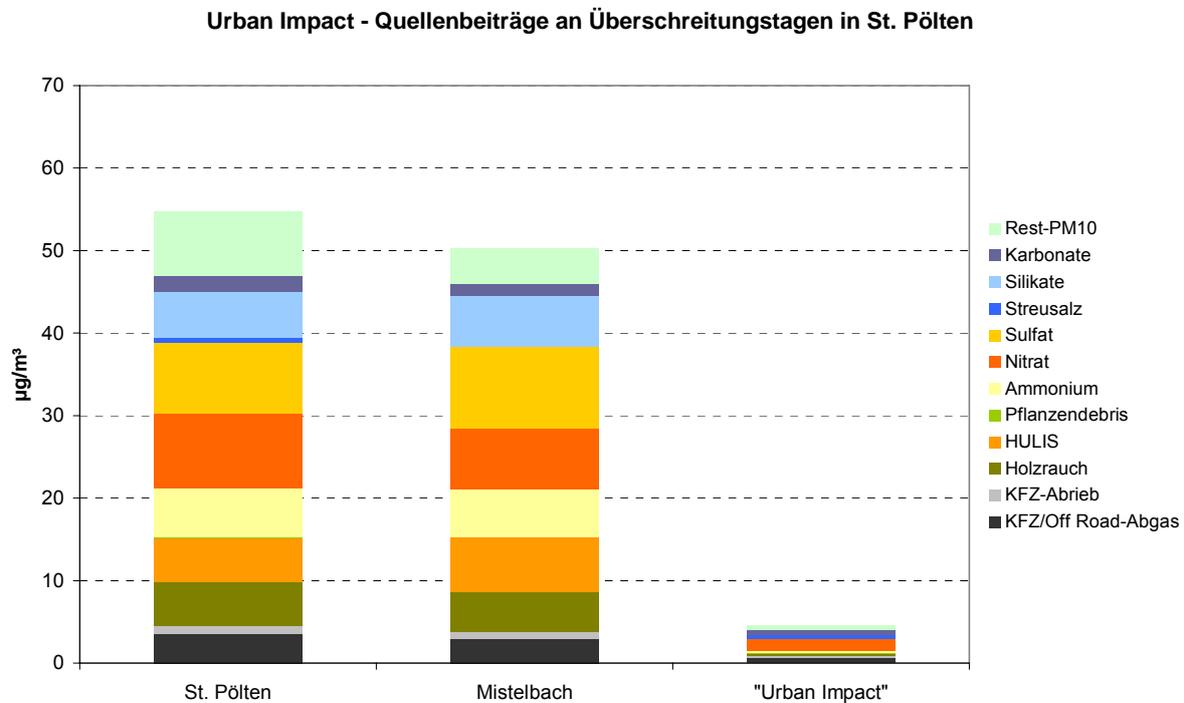


Abbildung 14: Mittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse für die Überschreitungstage im Zeitraum Jän-Apr 2005 an den AQUELLA-Messstellen in Niederösterreich.

Der Einfluss der Stadtquellen, der so genannte „Urban Impact“ wurde durch Differenz der Konzentrationswerte an den Stadtmessstellen und der Hintergrundmessstelle Mistelbach gebildet – in den **Abbildung 15** und **16** für St. Pölten und Schwechat dargestellt. Zwar zeigt

die relative Zusammensetzung des „Urban Impacts“ an Überschreitungstagen im ersten Halbjahr 2005 gewisse Stadtquellen wie Verkehr auf (Tabelle 3), der Anteil des „Urban Impacts“ mit rund 8% am PM10 ($4,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) in St. Pölten bzw. mit rund 16% am PM10 ($9,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) in Schwechat ist jedoch sehr gering und man kann die vier beprobten Messstellen,



die bis zu 100 km voneinander entfernt sind, als gleich belastet ansehen.

Abbildung 15: Quellenbeiträge für die Überschreitungstage im ersten Halbjahr 2005 an den Messstellen St. Pölten und Mistelbach, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte in St. Pölten und Mistelbach

Der Einfluss des Hintergrundes auf das Stadtaerosol kann anhand der sekundär anorganischen Komponenten nachgewiesen werden: Sulfat, Nitrat und Ammonium weisen in der Stadt nur einen geringen Zuwachs auf, so dass im Urban Impact im Mittel über die Überschreitungstage nur eine geringe Zusatzbelastung dieser Komponenten ausgewiesen werden. Sulfat und überraschender Weise auch Nitrat wird in der Stadt nur in geringem Maß gebildet. Sulfat kann somit als Hintergrund – Tracer angesehen werden.

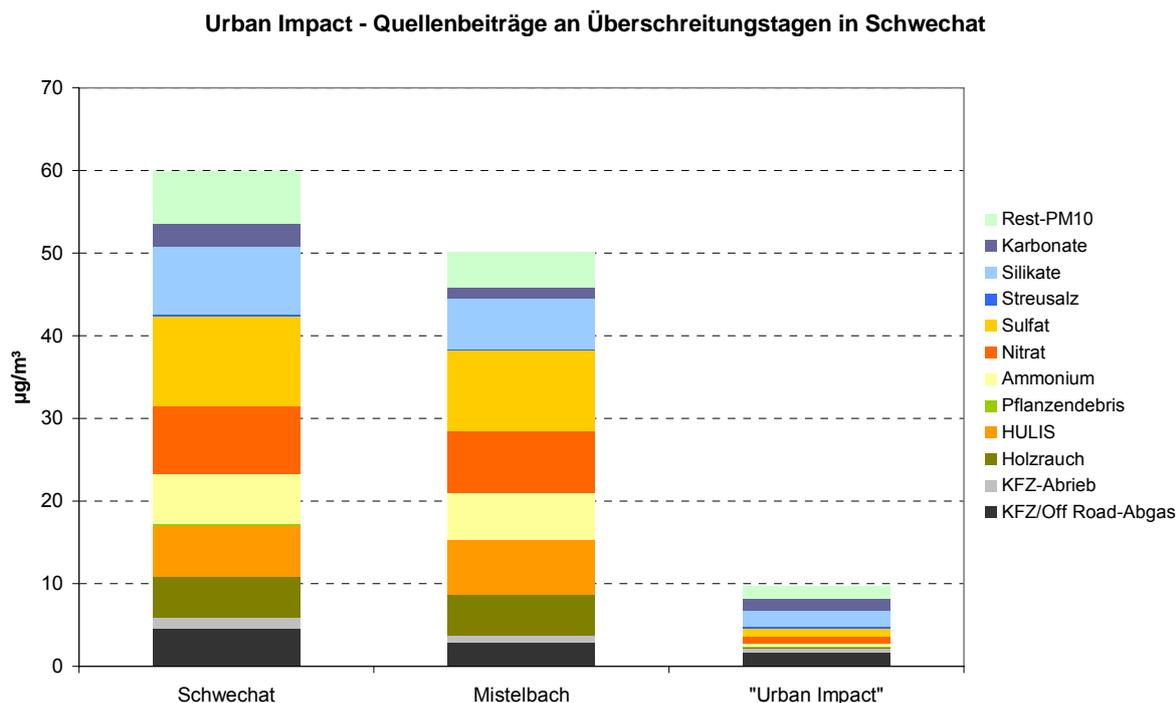


Abbildung 16: Quellenbeiträge für die Überschreitungstage im ersten Halbjahr 2005 an den Messstellen Schwechat und Mistelbach, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte in Schwechat und Mistelbach.

Tabelle 3: Relative Anteile von Quellen an Überschreitungstagen an den Messstellen St. Pölten und Mistelbach und im „Urban Impact“ – Mittel über Jänner-April05. Die PM10-Mittelwerte der Überschreitungstage betragen für St. Pölten 54,5 µg/m³, für Mistelbach 50,2 µg/m³ und für den „Urban Impact“ nur 4,3 µg/m³.

Quellengruppe	St. Pölten	Mistelbach	„Urban Impact“
Sulfat, Nitrat, Ammonium (Sekundär anorganisch)	43	46	14
Mineralstaub	14	15	0
Streusalz	1	0	9
Holzrauch und organisch sekundär	19	23	0
Sonstige organische Anteile	6	2	56
Verkehr und andere fossile Quellen:	8	7	19
Abrieb (v.a. Brems-, Reifenabrieb)	2	2	4
Abgas KFZ (v.a. „Dieselruß“)	5	4	11
Abgas sonstige Quellen	2	1	4
Nicht erklärt	8	7	0

Im gegenständlichen Experiment sind Import- und Eigenanteile schwer zu trennen. Wie in Tabelle 4 ersichtlich ist, gibt es nur einen sehr geringen Unterschied zwischen Stadt und Hintergrund. Den Daten vom Hintergrund (Mistelbach) wurden Daten einer Stadt (St. Pölten) gegenübergestellt. Die Differenzdaten können zwar dem Stadteinfluss („Urban Impact“) zugeschrieben werden, es entsteht aber der Eindruck, dass der Feinstaub relativ gleichmäßig über den Messraum verteilt vorliegt. Bedingt durch eine meteorologische Episode waren im Februar die PM10-Werte im Hintergrund sogar höher als in der Stadt.

Tabelle 4: Monate mit Überschreitungstagen im Zeitraum Jän. – Juni 2005 an der Messstelle St. Pölten; Relative Anteile von PM10 an der Hintergrundmessstelle und im „Urban Impact“ im Vergleich zu PM10 Werten an Überschreitungstagen an der Messstelle St. Pölten

	Jän.05	Feb.05	Mär.05	Apr.05
Hintergrund %	84	107	70	94
Urban Impact %	16	-	30	6

4.1.4 Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung

Die unterschiedlichen Zusammensetzungen an den AQUELLA Messstellen an Tagen mit $>$ und $<50 \mu\text{g PM}_{10}/\text{m}^3$ sind in den folgenden Abbildungen dargestellt (**Abbildung 17-19**). Die relative Zusammensetzung ist bei den Fällen < 50 und $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an allen Messstellen relativ ähnlich. Dies deutet darauf hin, dass die überwiegende Zunahme von geringen zu hohen Werten innerhalb eines Monats weitgehend durch geringeren Luftaustausch verursacht wird. Tendenziell liegen die Kfz- und Off-Road - Abgasemissionen an Überschreitungstagen relativ niedriger als an den Tagen ohne Überschreitung, während nicht entschlüsselten Komponenten zunehmen.

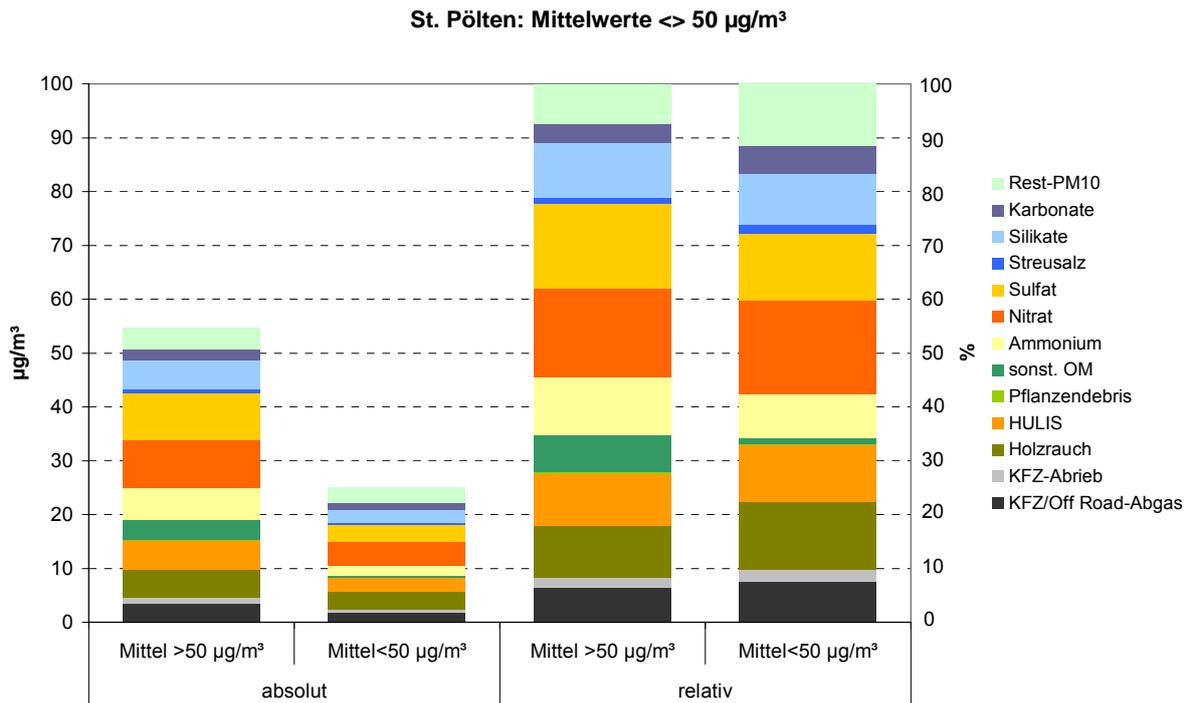


Abbildung 17: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an der Messstelle St. Pölten, sowie relative Anteile.

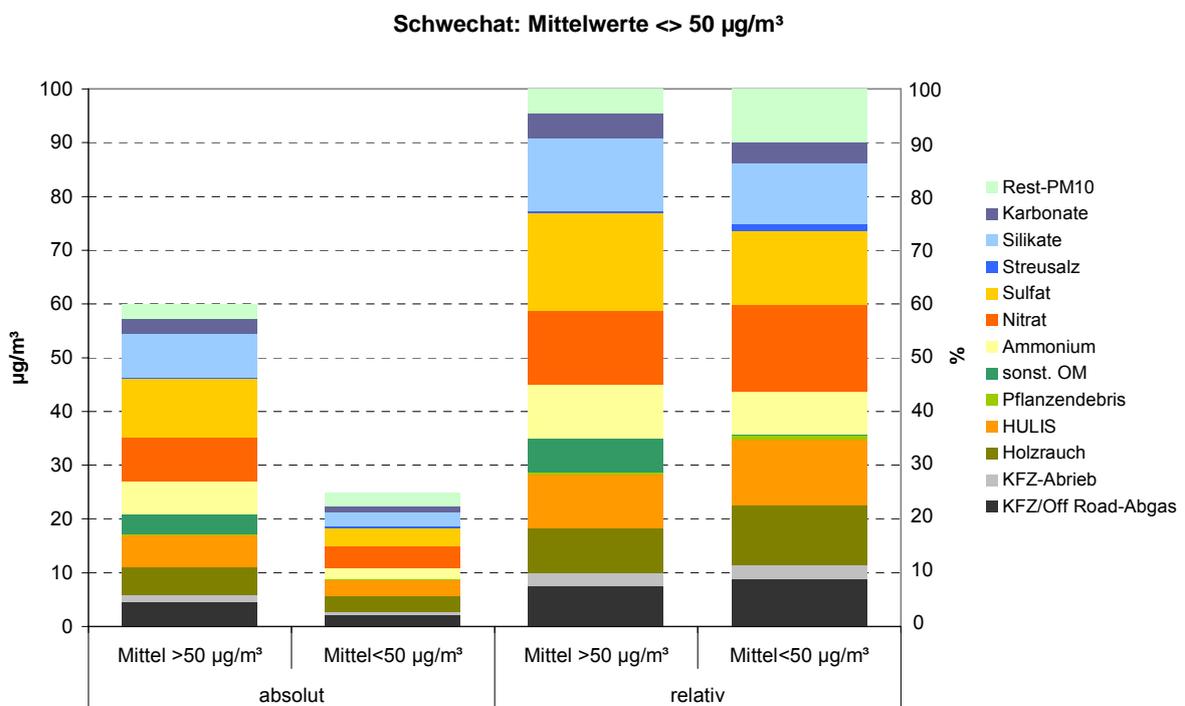


Abbildung 18: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an der Messstelle Schwechat, sowie relative Anteile.

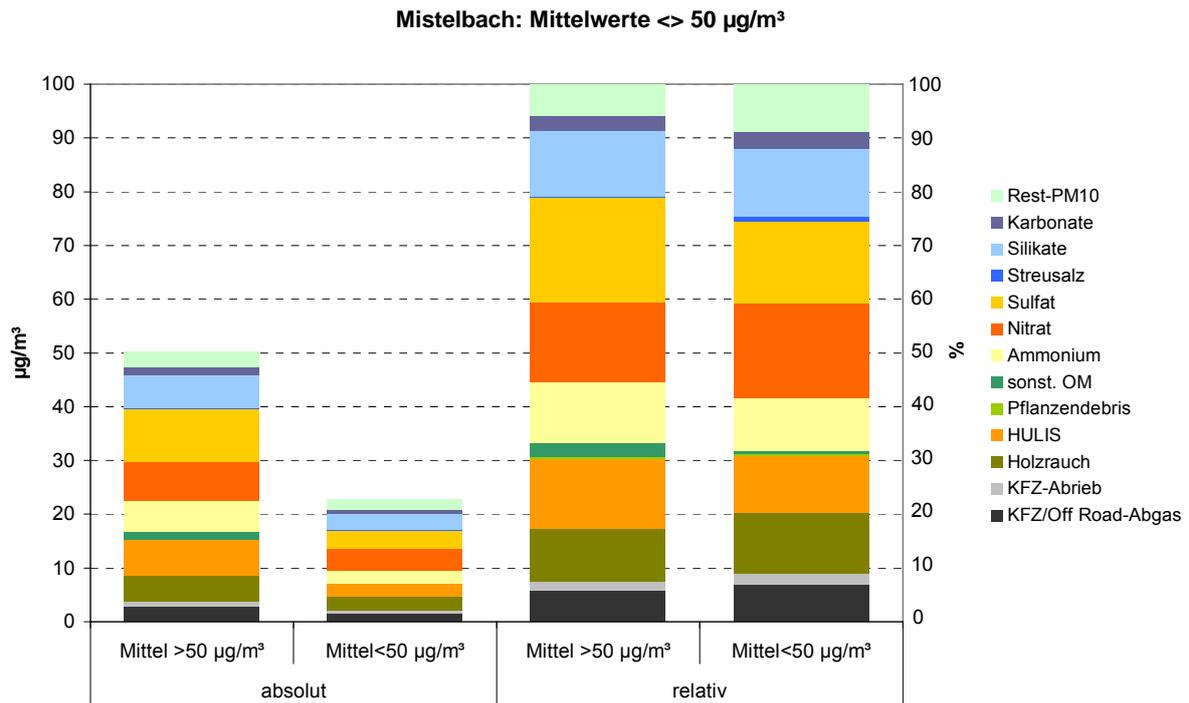


Abbildung 19: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Mistelbach, sowie relative Anteile.

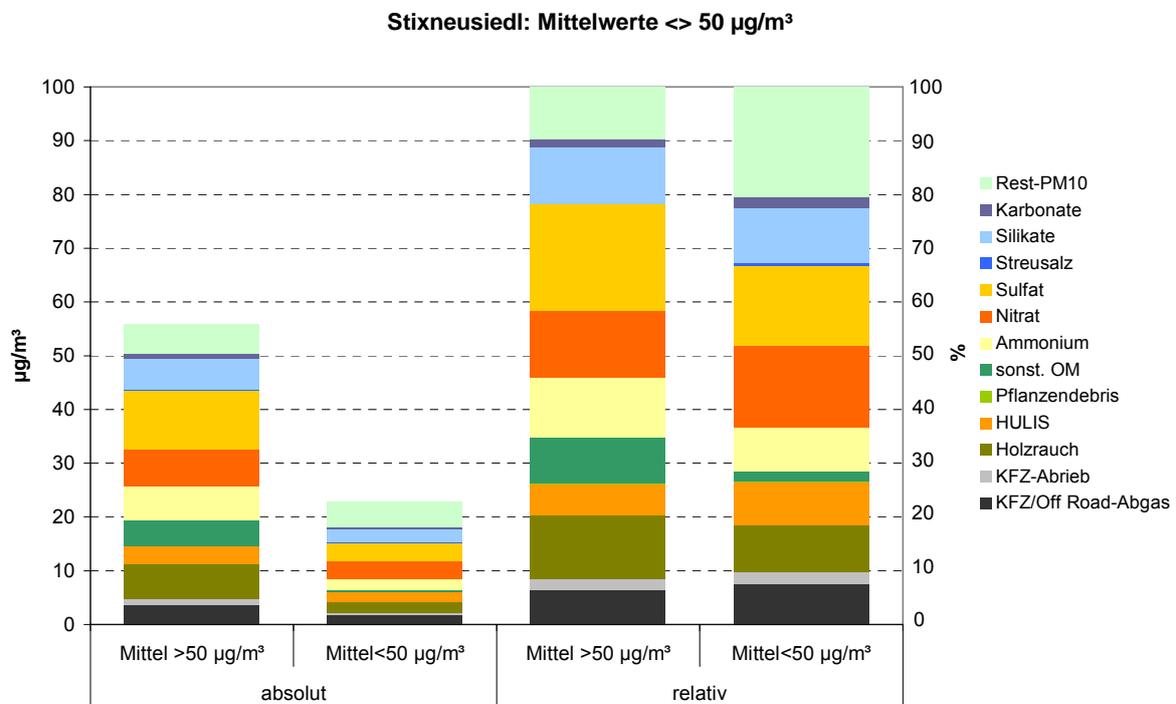


Abbildung 20: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Stixneusiedl, sowie relative Anteile.

4.1.5 „Sommer – Winter“ Vergleich

Die Überschreitungen des Tagesmittel- Grenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ traten im Messzeitraum von Jänner bis Juni 2005 an den niederösterreichischen Messstellen praktisch nur im Winter auf. Ein Schlüssel zur Erklärung, warum es weitgehend nur während der kalten Periode zu Überschreitungen kam, lag in der Frage, welche Quellen sich im Winter stärker als im Sommer auswirken, d.h. ob es spezielle „Winterquellen“ in Niederösterreich gab, die im Sommer nicht oder nur wenig zum Feinstaub beitragen. Als repräsentative Winterperiode wurde der Mittelwert der beiden am höchsten belasteten Monate Februar und März gewählt, repräsentativ für den „Sommer“ sind für den Messzeitraum Mai und Juni. In den Abbildung 21-24 sind für die niederösterreichischen AQUELLA Messstellen die Quellenbeiträge im Mai/Juni den Beiträgen im Februar/März gegenübergestellt. Der „Zuwachs“ bei PM₁₀ von Mai/Juni zu Februar/März beträgt an den niederösterreichischen AQUELLA-Messstellen zwischen 18 und 23 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Verdoppelung der „Sommer-Werte“ ist überwiegend durch großräumig wirksame „Winterquellen“ im Hintergrund verursacht. Der größte Zuwachs von etwa zwei Dritteln wird durch Sulfate und Nitrate verursacht, gefolgt von Holzrauch (einschließlich organischer Sekundärkomponenten – HULIS) mit etwa einem Viertel (Schwechat) bis zu einem Drittel (Mistelbach). Die Zunahme des Quellenanteils von Kfz und Off Road - Abgas beträgt 1-4% in Bezug auf die Zuwachs-Anteile und ist v.a. auf den geringeren Luftaustausch in der kalten Jahreszeit zurückzuführen.

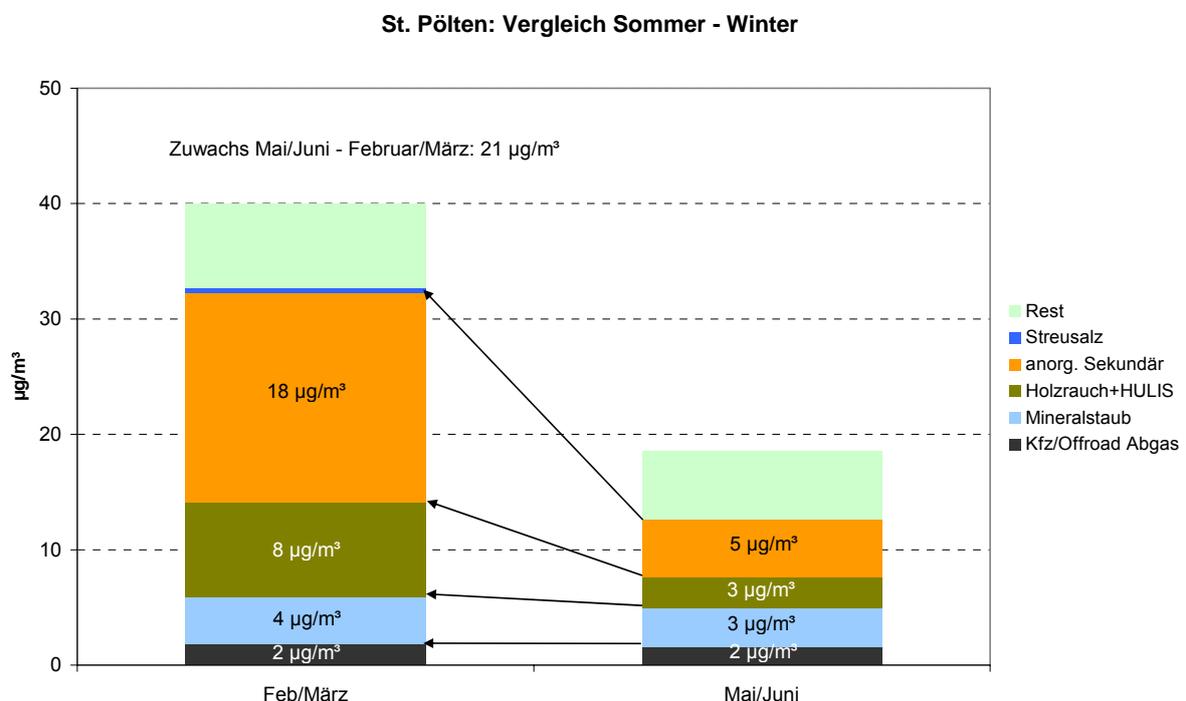


Abbildung 21: Vergleich der Quellenanteile im Februar/März und Mai/Juni 2005 an der Messstelle St. Pölten.

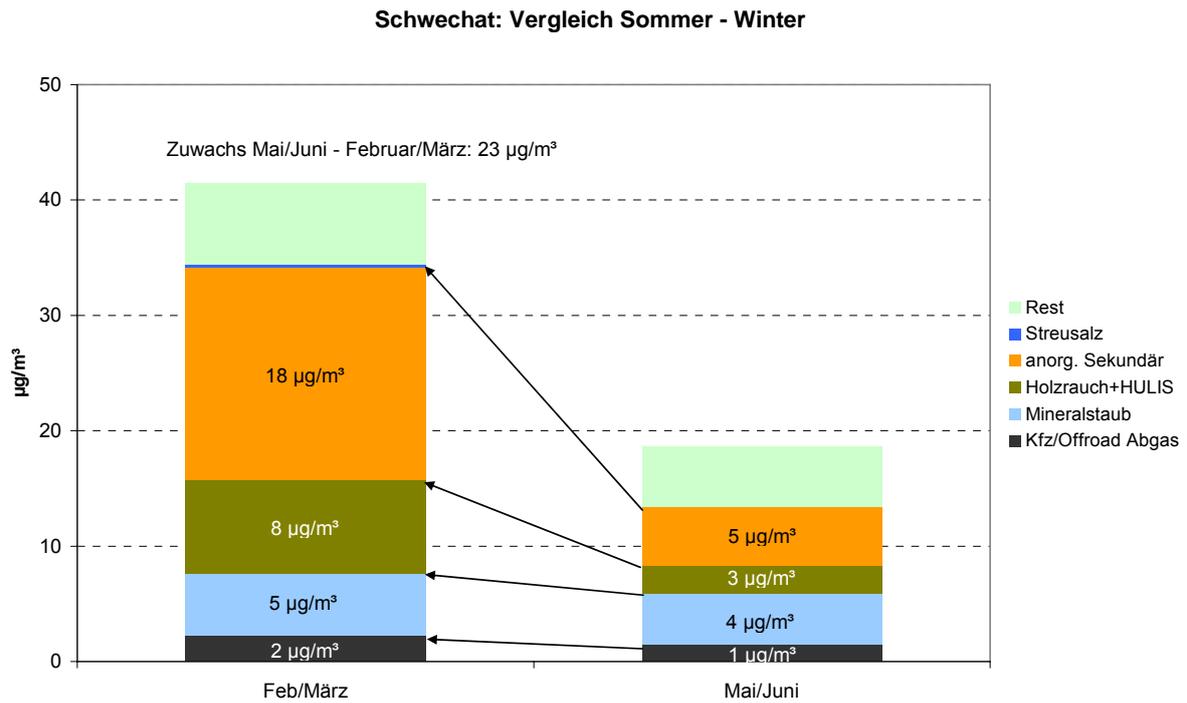


Abbildung 22: Vergleich der Quellenanteile im Februar/März und Mai/Juni 2005 an der Messstelle Schwechat.

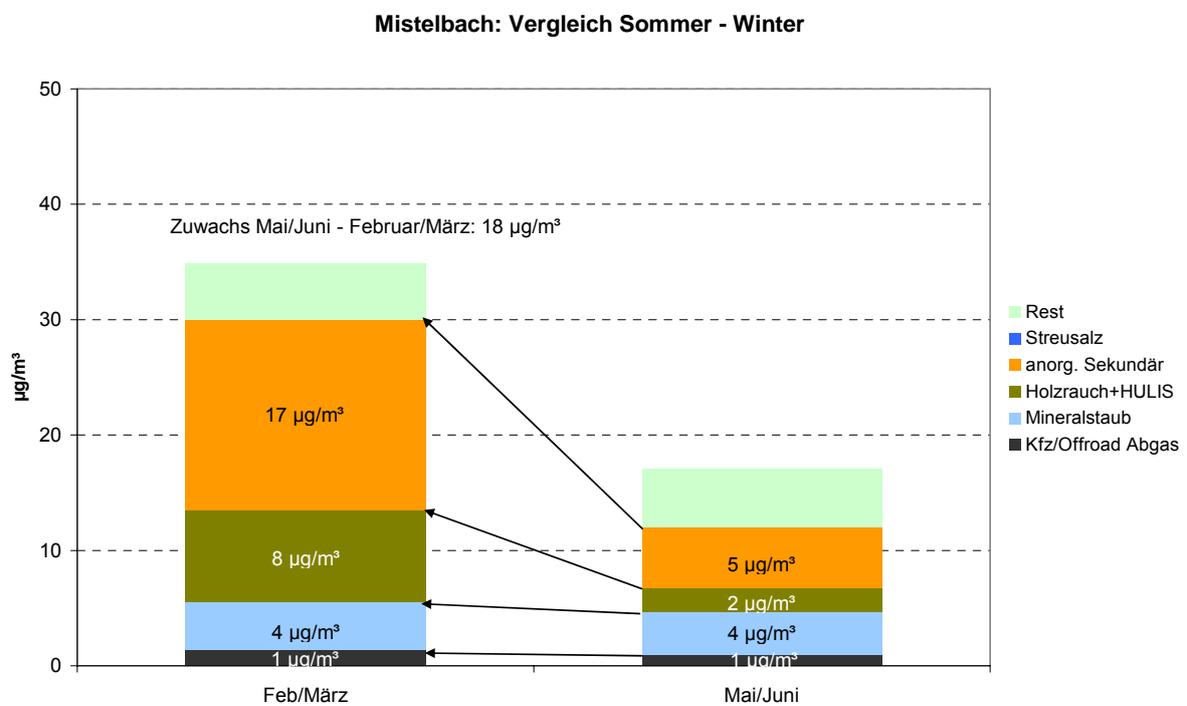


Abbildung 23: Vergleich der Quellenanteile im Februar/März und Mai/Juni 2005 an der Messstelle Mistelbach.

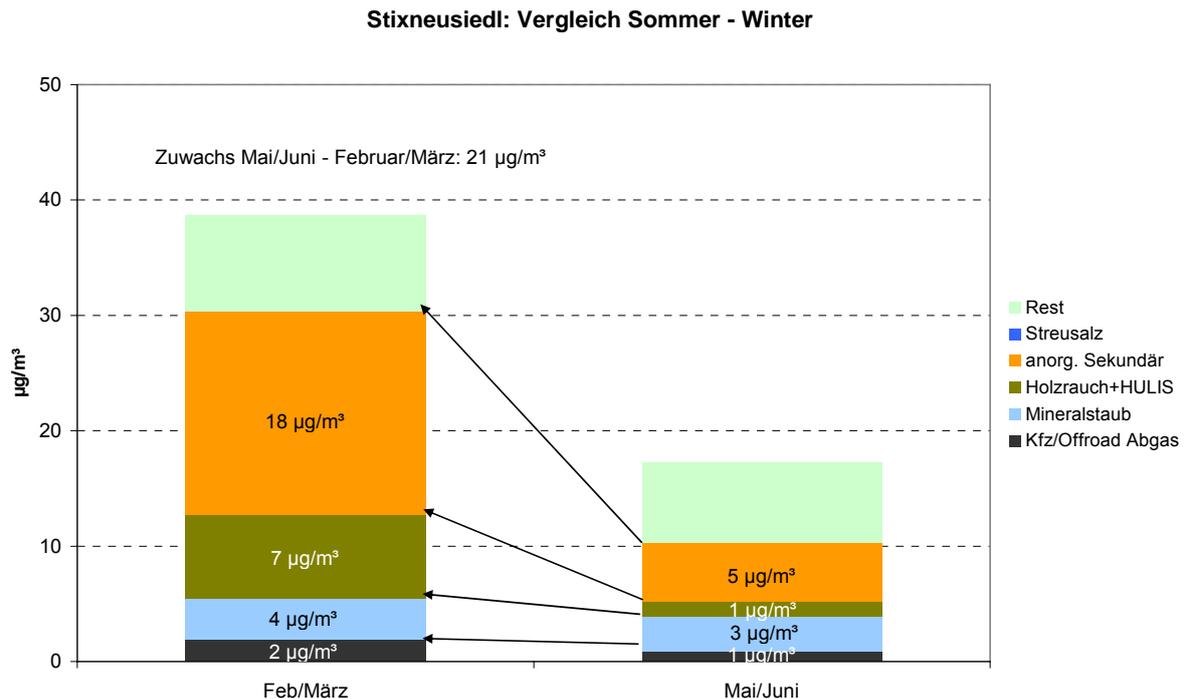
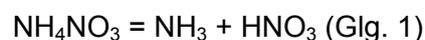


Abbildung 24: Vergleich der Quellenanteile im Februar/März und Mai/Juni 2005 an der Messstelle Stixneusiedl

Der Zuwachs von Sulfaten und Nitraten hat zweierlei Ursachen:

- 1.) Der Ferntransport vor allem von Sulfat und begleitenden Komponenten ist im Winter über einer kalten Schneedecke bei Hochdruckwetter begünstigt. Ferntransportsituationen mit hohen Werten sekundär gebildeter Substanzen (v.a. Ammoniumsulfat u. -nitrat) kommen häufiger im Winterhalbjahr vor. In der meist stabilen Grenzschicht werden durch lebhafteste Winde Luftmassen aus anderen Ländern nach Niederösterreich advehiert.
- 2.) Die Bildung von Ammoniumnitrat ist stark temperaturabhängig - bei tiefen Temperaturen ist das Salz stabil, bei höheren Temperaturen liegt das Gleichgewicht auf der Seite der gasförmigen Komponenten (NH_3 , HNO_3) entsprechend Glg. 1 [v, ix]:



4.2. Ergebnisse des CMB Modells

4.2.1 Modellparameter

Rezeptormodelle verwenden chemische und/oder physikalische Eigenschaften von Gasen und Partikeln an einer Quelle sowie am sog. „Rezeptor“ (Ort an dem die Immission gemessen wird), um den Beitrag der Emissionsquelle zu quantifizieren.

Rezeptormodelle unterscheiden sich daher stark von sog. Dispersionsmodellen, die für die Schätzung des Einflusses einer Quelle zur Immission Emissionsraten, Transport durch

meteorologische Randbedingungen und chemische Transformationsmechanismen verwenden.

Die Modellierung erfolgte mit dem open source Modell CMB 8.2^x. Folgende Quellen-Profile wurden verwendet:

- Diesel Emissionen (USA [^{xi}, ^{xii}])
- Bremsabrieb (USA [^{xi}, ^{xiii}])
- Reifenabrieb (USA [^{xi}, ^{xiii}])
- Gasverbrennung (USA [^{xi}, ^{xiv}])
- Straßenstaub (TU Wien)
- Holzrauch (TU Wien)
- Kochen (TU Wien)
- Nitrate und Sulfate (berechnet)
- HULIS (berechnet)
- Streusalz (berechnet)

Die Quellenprofile (angegeben sind darin die Anteile der verschiedenen chemischen Komponenten an der Gesamtmasse des Quellentyps) und die Immissionskonzentrationen inklusive Unsicherheiten dienen als Input für das CMB Modell.

4.2.2 Ergebnisse

Die CMB-Analyse der Überschreitungperioden führt ähnlich wie bei den Makrotracer-Analysen zu unterschiedlichen Quellenanteilen bei den verschiedenen Perioden. Für die verschiedenen Überschreitungperioden wurden dabei verschiedenartige Ursachen für die erhöhten PM₁₀ Werte beobachtet: Überwiegend weisen Überschreitungstage hohe Mineralstaubwerte auf, gefolgt von Tagen mit deutlichem Holzraucheinfluss und fallweise auch erhöhten Sekundäraerosolanteilen.

An einzelnen Überschreitungstagen bzw. einzelnen Überschreitungperioden zeigen die Ergebnisse beider Modelle oft eine gute Übereinstimmung. Beim Makrotracer-Modell bleibt meist ein Beitrag von organischem Material unerklärt. Dieser Anteil wird zu einem gewissen Teil mit dem CMB Modell als Pflanzendebris/Natur und Landwirtschaft, sowie einem höheren Holzrauchanteil erklärt. Das CMB Modell weist oft die Eigenschaft auf, den organischen Teil im PM₁₀ gegenüber den Makrotracer-Ergebnissen etwas zu verstärken. In den untersuchten Fällen ist im CMB-Modell der Anteil an anorganisch sekundärem Aerosol (Nitrate und Sulfate) durchwegs geringer, da das Modell Nitrate und Sulfate auch anderen Aerosolkomponenten zuordnet.

5. Städtevergleich Wien – Salzburg – Köflach - St. Pölten – Klagenfurt

Ein Vergleich der mittleren Anteile der Quellen an Überschreitungstagen wird in den folgenden beiden Abbildungen 26 und 27 für Messstellen in Wohngebieten in Wien und Salzburg für das Bezugsjahr 2004, Klagenfurt für den Winter 2004/2005, St. Pölten und für das 1. Halbjahr 2005 und Köflach das 2. Halbjahr 2005 dargestellt. Die Quellenbeiträge an den Messorten wiesen deutliche Unterschiede auf:

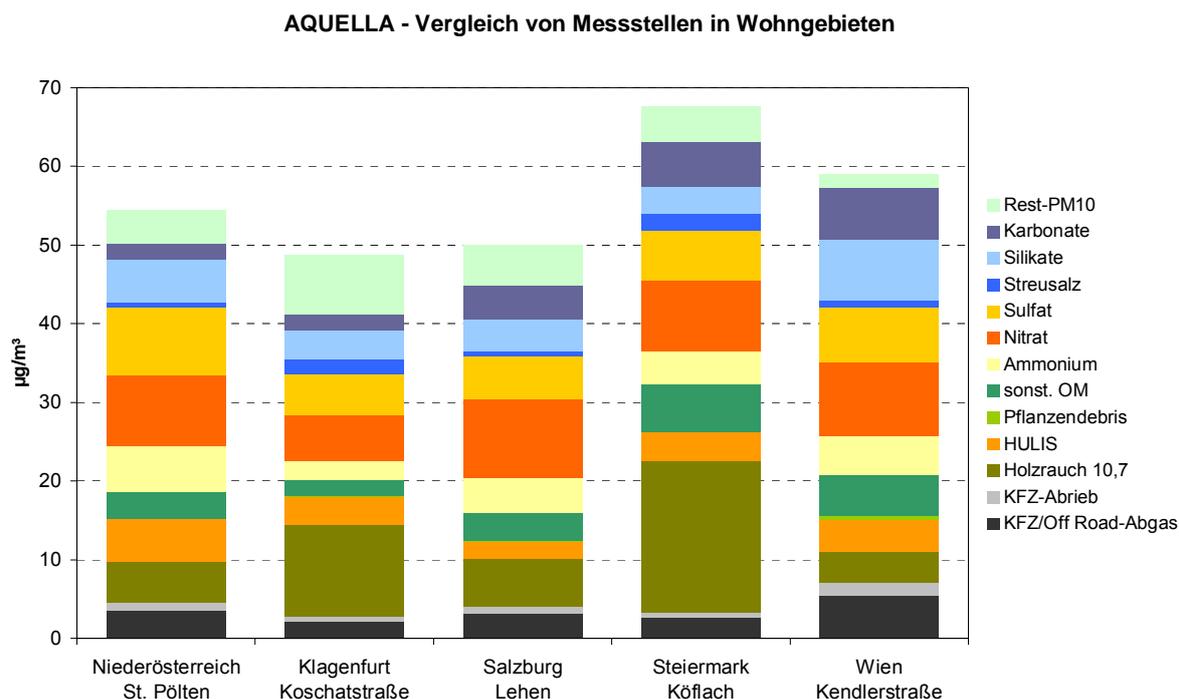


Abbildung 25: Vergleich der fünf Städte –Messstellen in Wohngegenden (St. Pölten, Klagenfurt Koschatstraße, Salzburg Lehen, Köflach und Wien Kendlerstraße), Überschreitungsepisoden 2004 (Wien, Salzburg), 2005 (St. Pölten Eybnerstraße, Köflach), 2004/2005 (Klagenfurt), Makrotracer-Quellendaten – Absolutwerte..

Die Zusammensetzung des Feinstaubes (Mittelwert der Überschreitungsperioden) an der Messstelle St. Pölten Eybnerstraße ist mit jener in Salzburg Lehen vergleichbar. Die Kfz- und Off-Road-Anteile sowie Sulfat-, Nitrat- und HULIS - Anteile sind ähnlich, Mineralstaub etwas geringer, Holzrauch samt organischen Folgeprodukten dahingegen höher. Die Messstellen Klagenfurt Koschatstraße und Köflach weisen in der relativen Zusammensetzung eine große Ähnlichkeit auf, die Absolutwerte sind in Köflach um etwa 40% höher. Der Anteil der Quellenbeiträge Kfz/Offroad und Mineralstaub war in Wien Koschatstraße am höchsten, der Anteil an Holzrauch und organischen Folgeprodukten am geringsten. Die sekundäre organische Komponente HULIS scheint sich im Mittel gleichmäßig über den Osten Österreichs zu verteilen. In den flacheren Bereichen nördlich des Alpenhauptkamms (Salzburg, Wien, Niederösterreich) treten die anorganischen Sekundärkomponenten Sulfate

und Nitrate an den Überschreitungstagen in deutlich höheren Konzentrationen auf, als in Kärnten und der Steiermark.

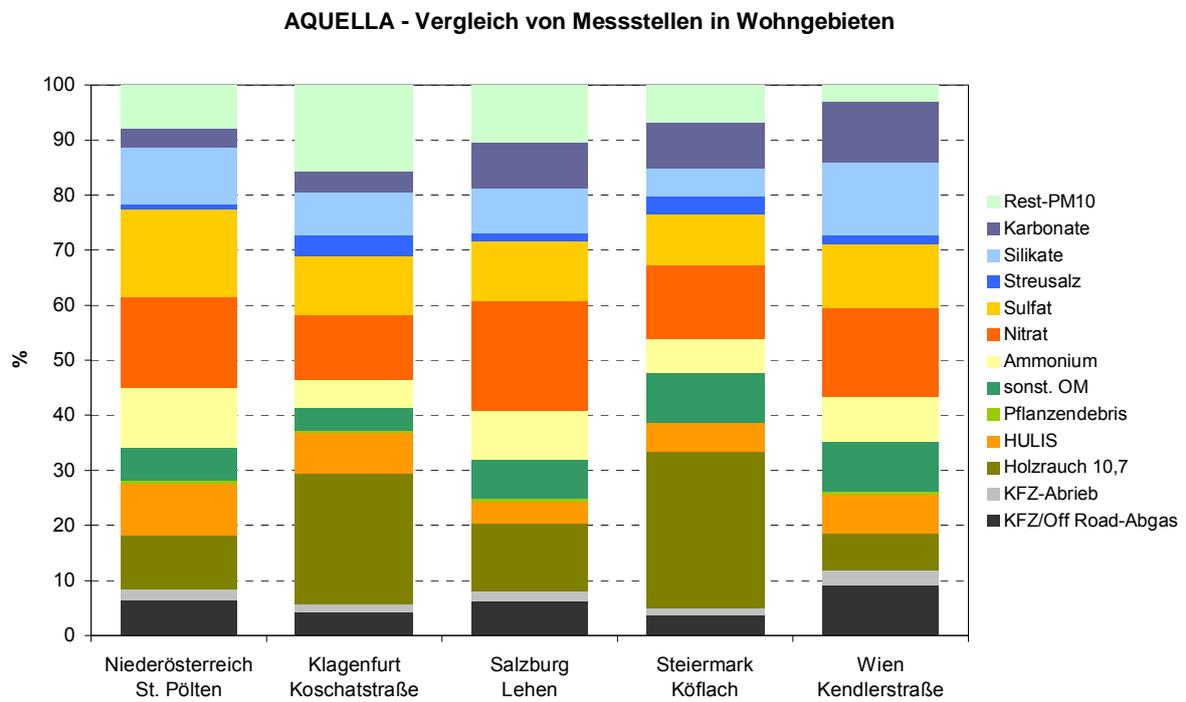


Abbildung 26: Vergleich der fünf Städte –Messstellen in Wohngebieten (St. Pölten, Klagenfurt Koschatstraße, Salzburg Lehen, Köflach und Wien Kendlerstraße), Überschreitungsepisoden 2004 (Wien, Salzburg), 2005 (St. Pölten Eybnerstraße, Köflach), 2004/2005 (Klagenfurt), Makrotracer-Quellendaten – Relativwerte.

6. Überschreitungen – Einfluss der Vorbelastung

Der Beitrag der Vorbelastung ist an den niederösterreichischen städtischen Messstellen St. Pölten und Schwechat wie in Tabelle 5 angeführt, sehr hoch.

Tabelle 5: Vergleich der PM10 Werte an Überschreitungstagen an den Messstellen St. Pölten, Schwechat mit Vorbelastungswerten in Mistelbach.

Epi Nr	St. Pölten Episoden/ Pools	SP µg/m ³	N Tage	Charakteristik	Δ SP- MB	Belastung Schwechat µg/m ³	Δ SW- MB	Vorbelastung Mistelbach µg/m ³
1	11.-12.01.05	30	2	AS, H	-12	53	10	42
2	17.-18.01.05	55	2	AS, H	26	35	6	29
3	05.02.05	48	1	AS, H	4	52	8	44
4	6.-9.2.05	55	4	AS, H	6	70	21	49
5	10.02.05	101	1	AS	1	117	17	100
6	11.02.05	14	1	AS	-12	23	-3	26
7	12.02.05	8	1	H	-89	124	27	97
8	23., 24., 26.2.05	57	3	AS, H	14	46	2	44
9	25.2.05	74	1	AS	0	64	-9	74
10	3.-6.3.05	69	4	AS	18	61	10	51
11	14.-16.3.05	43	3	AS, Min	1	61	18	42
12	22.-25.3.05	67	4	AS, Min	7	67	7	59
13	27., 29.-30.3.05	56	3	AS	10	54	8	46
14	01.04.2005	49	1	Min, AS, H	7	52	10	42
15	13.-15.4.05	51	3	AS, Min	2	52	3	49
	Summe		34					

Epi Nr.: Episode Nr.; N Tage: Zahl der Tage im Pool; SP: St. Pölten; SW: Schwechat; MB: Mistelbach; Charakteristik: Haupt-Quellen in den Stadtstationen; AS: Ammoniumsals; H: Holzrauch; Min: Mineralstaub.

Rot: Vorbelastung >50 µg/m³; Blau: Vorbelastung >40 µg/m³

Es ist erkennbar, dass die Überschreitung von 50 µg/m³ an der regionalen Hintergrundmessstelle an 9 von 34 Überschreitungstragen (definiert durch Überschreitung an einer der niederösterreichischen Messstellen) auftrat, sowie im Hintergrund an 31 von 34 Überschreitungstagen PM10-Werte von über 40 µg/m³ vorlagen. Es ist also kein großer Unterschied in der PM10 Belastung zwischen der Hauptmessstelle St. Pölten und dem regionalen Hintergrund feststellbar. Ferner werden fast alle Überschreigungsperioden von Sulfaten und Nitraten dominiert (in Mistelbach im Mittel 45%, an den anderen Messstellen 41-42%), zum Teil auch durch Holzrauch und organische Folgeprodukte. Vereinzelt ist auch Mineralstaub für Überschreitungen verantwortlich (April).

Die Quellengruppe „anorganisch sekundär“ wird durch die Komponenten Ammonium, Nitrat, Sulfat und Feuchte gebildet. Dabei ist im speziellen Sulfat ein „Ferntransport-Anzeiger“ und es ist damit zu rechnen, dass ein deutlicher Anteil dieser Quellengruppe durch regionalen und überregionalen Transport zustande kommt (Tabelle 6). Diese Quellengruppe ist an den Überschreitungstagen fast für die Hälfte des Feinstaubs in Niederösterreich verantwortlich, aber auch im Halbjahresmittel für 40% im regionalen Hintergrund und für rund 35% an der

urbanen Messstellen. Besonders hohe Ammoniumwerte treten an allen Messstellen im Februar und März auf, die möglicherweise in Zusammenhang mit der in der Landwirtschaft üblichen Gülledüngung stehen.

An zweiter Stelle stehen PM10-Anteile aus Holzrauch und HULIS (im Mittel 20%). Die Komponentengruppe „HULIS“ („Humic Like Substances“) wird im Winter aus gasförmigen Emissionen des Holzbrands in der Atmosphäre gebildet. Holz wird in den österreichischen Bundesländern bereits umfangreich zur Heizung von Wohnungen eingesetzt. Lt. Mikrozensus 2001/02 werden etwa 15% der Österreichischen Wohnungen mit Holz beheizt. Es darf aber angenommen werden, dass dies auch in den holzreichen Nachbarländern der Fall ist. Der Emissionsfaktor von PM10 aus Holzheizungen hängt sehr stark von der Art der Feuerung und des Brenngutes ab. Als mittlere Staub-Emissionen für österreichische Heizanlagen werden im Energiebericht 2003 für Holz-Einzelöfen 148 kg/TJ, für Holz-Zentralheizungen 90 kg/TJ angegeben. Bei Neuanlagen liegt der Bereich der „typischen“ Emissionen weitaus niedriger, im Bereich von etwa 10 – 20 kg/TJ^{xv}. Wir nehmen daher an, dass der Hauptanteil des Holzrauchs durch alte Anlagen sowie durch kleine Einzelöfen verursacht wird. Auch grenzüberschreitender Transport wäre zu berücksichtigen. Die hohen Holzrauchanteile dürften überwiegend aus „qualmender“ Verbrennung stammen. Dabei wäre nicht uninteressant, ob die „private“ Müllverbrennung einen bestimmten Anteil an den „Holzrauch“-Werten hat. Kärnten, Salzburg und die Steiermark weisen Holzrauch-Anteile an den Hintergrundmessstellen von 25% und darüber auf. Im Raum Wien und Umgebung liegt der Wert bei 19%, in Niederösterreich bei 23%.

Tabelle 6: „Belastungsmessstellen“ und urbane Hintergrundmessstellen im Projekt AQUELLA – Niederösterreich

Land/Stadt	Messstelle	Anmerkung	PM10 „HJMW“ µg/m ³
St. Pölten	St. Pölten	Wohngebiet	28
Schwechat	Schwechat	Wohngebiet	29
Niederösterreich	Mistelbach	Regionaler Hintergrund	26

„HJMW“ Mittel aus den Monaten Jänner-Juni

Für die Verringerung der Hintergrundbelastung ist daher das Augenmerk auf die anorganischen Sekundäraerosole (mit den dahinter stehenden Emissionen von Ammoniak, Schwefeldioxid und Stickstoffoxiden), sowie auf die Heizgewohnheiten auf dem Feststoffbrennstoffsektor (insbesondere Öfen mit höheren Emissionsfaktoren für Partikel und solchen in welchen das Verbrennen von nicht zulässigen Brennstoffen möglich ist) zu legen.

6.1. Stadteinfluss

Als Beispiel für die Zusammensetzung des Feinstaubs in der Stadt sind Beiträge des Einflusses der städtischen Quellen „Stadteinfluss“ und des Hintergrundes an Überschreitungstagen – für die Messstelle St. Pölten – in der Tabelle 7 und in der Abbildung 27 dargestellt.

Tabelle 7: Relative Anteile von Quellen zum PM10 – Feinstaub in St. Pölten. Mittelwerte über die Überschreitungsperioden von Jänner – April 2005 und Abschätzung des Einflusses städtischer Quellen und des Hintergrundes in Bezug auf die Belastung an der Stadtmessstelle insgesamt.

St. Pölten Eybnerstraße, Überschreitungstage			
Makrotracermode Mittelwert Überschreitungen	Gesamt %	Stadtanteil %	Importanteil %
Kfz/Off-Road Abgas	6	1	5
Kfz Bremsen/Reifen	2	0	2
Holzrauch und HULIS	19	0	21
Sonstige organ. Anteile	6	4	2
Nitrate und Sulfate	43	1	42
Streusalz	1	1	0
Mineralstaub	14	0	14
Rest	8	0	6
PM10 / 100% = 54 µg/m ³	100	8	92

Stadteinfluss: Berechnet aus der Differenz St. Pölten – Mistelbach
 Mineralstaub: Karbonatischer und silikatischer Staub, überwiegend 2-10 µm
 Sonstige organ. Anteile: Organische Anteile (z.B. Küchendämpfe, Debris)

PM10 St. Pölten Quellenzuordnung

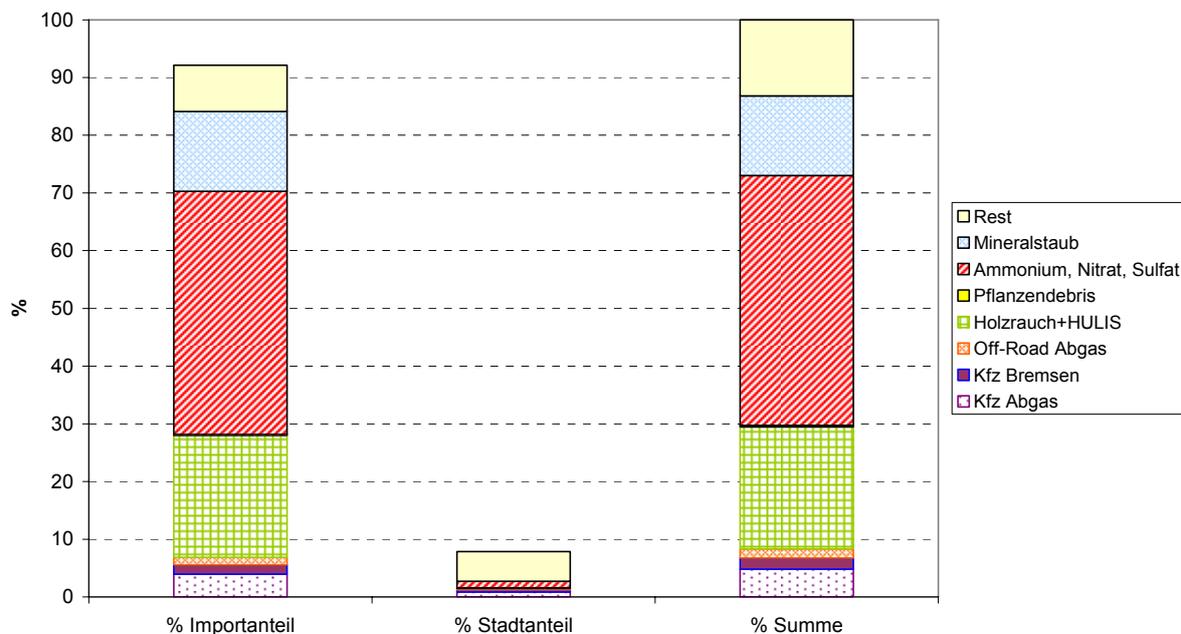


Abbildung 27: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen an der Messstelle St. Pölten in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).

6.2. Schlussfolgerungen aus der Quellen-Modellierung

- Die Überschreitungen im Raum Ost-Niederösterreich finden überwiegend während des Winterhalbjahres statt. Die Untersuchung des Anstiegs von Mai/Juni auf Februar/März zeigt, dass dieser zu etwa 50% im Hintergrund stattfindet und vor allem durch winterspezifische Quellen Ammoniumnitrat und Holzrauch verursacht wird.
- Sehr häufig ist an Überschreitungstagen der Hintergrund bereits belastet (Mistelbach mit PM10-Werten über 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$): Die Zusatzbelastung, die in St. Pölten zur Überschreitung führt, wird meist durch organische Anteile, durch Kfz und Off-Road-Abgasemissionen und durch Sulfate und Nitrate verursacht.
- Da mehr als 80% der PM10 Belastung an städtischen AQUELLA-Messstellen (St. Pölten und Schwechat) aus der Hintergrundbelastung stammen, ist die Reduktion der Hintergrundbelastung von erheblicher Bedeutung.
- Die Hintergrundbelastung wird an allen AQUELLA-Messstellen überwiegend durch anorganisches Sekundäraerosol verursacht, in zweiter Linie durch Holzrauch und verwandte Komponenten.
- Der Hintergrundwert sollte nicht höher als 25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, damit ein Inkrement von 25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Ballungsgebiet möglich ist. Bei Hintergrundwerten über 50 % des TMW-Grenzwerts sollte eine Überschreitung in einem Ballungsgebiet nicht den Aktivitäten des Gebietes angelastet werden.
- Die Zusatzbelastung an den Stadtmessstellen von AQUELLA („Urban Impact“) ist im gegenständlichen Projekt sehr gering (4-9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und wird weitgehend durch organische Komponenten oder Sulfate und Nitrate dominiert (in St. Pölten 56 % organische Komponenten, in Schwechat 52% Sulfate und Nitrate).
- Reduktionsmaßnahmen sollten vorwiegend großräumig auf Reduktion von Präkursoren für Ammoniumsulfat und –nitrat und Verbesserung der Situation bei Festbrennstoffen ausgerichtet werden.
- Die Entwicklung von „emissionsarmen Holzöfen“ sollte gefördert werden.

7. PM10 und meteorologische Aspekte

Meteorologische Bedingungen am Messort bestimmen wesentlich die Höhe der PM10 Belastung und ihren zeitlichen Verlauf. Einerseits sind kleinskalige Einflüsse wie lokale Windsysteme in Bodennähe zu beachten, andererseits müssen großskalige Phänomene berücksichtigt werden. Direkt abhängig davon sind Anreicherung, Verdünnung, Transport und chemische Umwandlung von Schadstoffen. Im Sommerhalbjahr bewirken turbulente Vertikalbewegungen (Konvektion) eine stärkere Durchmischung von bodennahen Schichten und können somit die Anreicherung von lokal emittierten Partikeln verhindern. Im Winter hingegen tritt in der Grenzschicht der Atmosphäre (<1 km) oft stabile Schichtung, besser bekannt als sog. Inversion auf, wodurch die genannten turbulenten Bewegungen verringert werden. Zusätzlich erhöhen spezifische Winterquellen das Belastungsniveau in der kalten Jahreszeit.

Die Häufigkeit winterlicher Hochdruckwetterlagen, meist in Verbindung mit schwachen Winden, keinem Niederschlag und Inversionsbildung, bestimmt in hohem Maß die Anzahl an PM10 Grenzwertüberschreitungen. Zudem werden häufig Luftmassen aus Ost- bzw. Südosteuropa nach Österreich transportiert, die durch Überstreichen von Gebieten mit hohen Emissionen wesentlich zum ferntransportierten Teil an PM10 beitragen. Sekundär gebildetes Aerosol wie etwa Ammoniumsulfat oder Ammoniumnitrat überwiegt. Wesentlich für dessen atmosphärische Bildung ist der Zeitraum, der für die chemische Umwandlung zur Verfügung steht. Somit bilden lang anhaltende, oft windschwache und großräumige Hochdruckgebiete im Winterhalbjahr die Voraussetzung für hohe Belastungen sowohl primärer, als auch sekundär gebildeter Aerosole.

Die Analyse ausgewählter Episoden zeigt hohe PM10 Werte in Niederösterreich bei folgenden Witterungsverhältnissen:

1. Großräumige, bodennahe Strömung aus Östlicher Richtung in Kombination mit Hochdruckeinfluss:

Besonders bei Grenzwertüberschreitungen mit hohen Sekundäranteilen (Ammoniumsulfat, -nitrat) und mit Substanzen aus Biomassefeuerungen sind in Niederösterreich bodennahe Windrichtungen aus meist Südost zu beobachten. Das Umströmen der Alpen an der Nordostflanke (Wiener Wald) beschert dem Niederösterreichischen Raum einerseits eine gute Durchlüftung und meist schnellen Abtransport von primären PM10 Substanzen, jedoch auch häufig Advektion belasteter Luft aus dem Ausland. Quellgebiete für PM10 und vor allem für Vorläufersubstanzen werden entsprechend den Rückwärtstrajektorien in Tschechien, der Slowakei, Rumänien, der Ukraine oder in Balkanländern gefunden (Abbildung 28). Diese meist durch Ferntransport bedingten PM10 Überschreitungsepisoden wurden in Niederösterreich sehr häufig beobachtet.

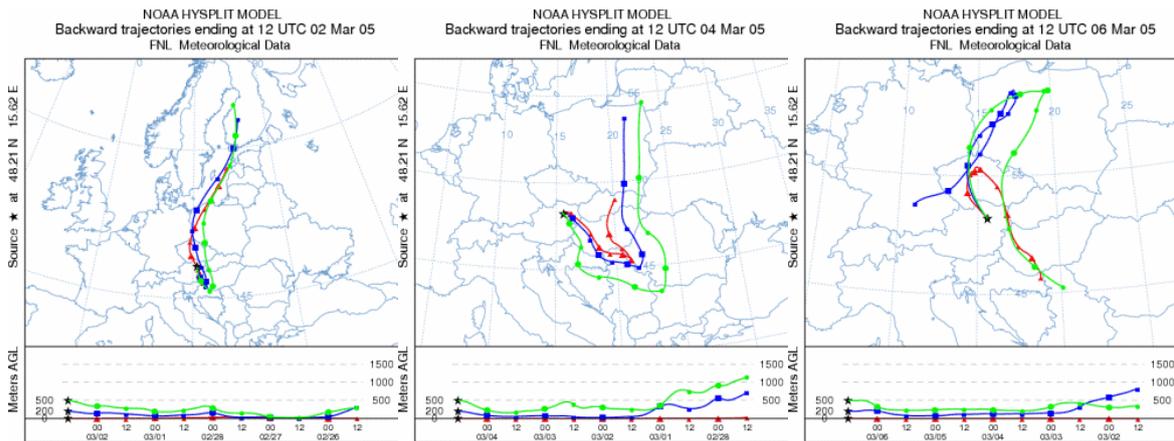


Abbildung 28: HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien mit NCEP-Daten im Überschreitungszeitraum 2.-6. März 2005, jeweils um 12 UTC mit Endpunkt über St. Pölten; Quelle: www.arl.noaa.gov/ready.html. (Daten: GFS Reanalyse; Laufzeit: 120 Stunden; Levels: 0, 200, 500 Meter ü. Bodenniveau).

2. Hochdruckeinfluss / sehr schwacher Wind / bodennahe Inversionen / kein Niederschlag:

Sehr windschwache Episoden mit oft sonnigen und trockenen Witterungsverhältnissen verbunden mit starken, bodennahen Inversionen führen zu einer regionalen und urbanen Feinstaubbelastung etwa im Raum St. Pölten. Dominant ist vor allem die Ausbildung von nächtlichen Strahlungsinversionen. Bei einer entsprechenden Emissionsstärke (z.B. durch Mineralstaub im Spätwinter) sind an verkehrsnahen Messstellen erhöhte Überschreitungen möglich.

Nicht selten treten auch Mischformen der oben genannten Überschreitungsarten bei unterschiedlichen Witterungsverhältnissen auf.

Geringe Feinstaubwerte im Winterhalbjahr wurden vor allem an Tagen bei Westwind bzw. Advektion ozeanischer Luftmassen aus dem Nordatlantischen Raum und entsprechenden Witterungsverhältnissen gemessen. Hebungsvorgänge an Frontensystemen, Niederschläge und auffrischende Winde lassen keine Anreicherung von Primäraerosol zu. Atlantische Luftmassen, die Westeuropa überstreichen, enthalten geringere Konzentrationen an anorganischen Sekundärkomponenten, insbesondere von Ammoniumsulfat.

8. Zusammenfassung

Die Beprobung für das Projekt AQUELLA – Niederösterreich erfolgte von Jänner bis Juni 2005. In den Proben wurden Ruß (EC), organischer Kohlenstoff (OC), Ionen, Spurenmetalle, ausgewählte polare und apolare Verbindungen, sowie als organische Makrokomponenten Levoglucosan, Cellulose und „humic like substances“ (HULIS) analysiert. Die Quellenproben – v.a. Straßenstaub – wurden mit einem für das gegenständliche Projekt entwickelten PM10-Elutriator präpariert und für die Gewinnung von Quellenprofilen analysiert.

Aus anderen Projekten werden die Quellenprofile für Holzrauch, landwirtschaftliche Stäube, Baustellen- und Küchenaerosole sowie Pflanzendebris gewonnen. Für Sekundäraerosole (anorganisch und organisch) sind keine weiteren Profilerstellungen erforderlich.

Die Analysenwerte der Beprobungsstandorte wurden der Makrotracer-Analyse unterzogen, mit welcher bereits eine relativ gute Aufklärungsrate der PM10-Anteile von ca. 90% erzielt werden konnte. Die Ergebnisse des CMB-Modells bestätigten im Wesentlichen die Makrotracer-Daten.

Die bedeutendsten wirksamen Quellen an den Messstellen St. Pölten und Schwechat waren demnach:

1. *Ammoniumsulfat- und Ammoniumnitrat-aerosol (mit Ferntransportanteilen)*
2. *Holzrauch und Folgekomponenten (HULIS)*
3. *Mineralstaub*
4. *Kfz-Emissionen inklusive Reifen-, Bremsabrieb, Off-Road und andere fossile Quellen*
5. *nicht identifizierte organische Komponenten*

Stadteinfluss

Die Differentialanalyse ergibt, dass der Zuwachs in den städtischen Bereichen sehr gering ist (4-9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und meist durch organische Anteile, durch Kfz und Off-Road-Abgasemissionen und durch Sulfate und Nitrate verursacht wird (Tabelle 8).

Sehr häufig ist an Überschreitungstagen der Hintergrund bereits belastet (Mistelbach mit PM10-Werten über 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$): Dies unterstreicht die Notwendigkeit, die Hintergrundbelastung großräumig zu verringern. Als Emissionsquellen im Land Niederösterreich sind vor allem Raumheizung, unbefestigte oder verschmutzte Straßen, landwirtschaftliche Arbeitsmethoden sowie Kraftfahrzeuge und Off Road Maschinen anzusehen.

Für die Verringerung der Hintergrundbelastung ist daher das Augenmerk auf die anorganischen Sekundäraerosole (mit den dahinter stehenden Emissionen von Ammoniak, Schwefeldioxid und Stickstoffoxiden), sowie auf die Heizgewohnheiten auf dem Feststoffbrennstoffsektor (insbesondere Öfen mit höheren Emissionsfaktoren für Partikel und solchen in welchen das Verbrennen von nicht zulässigen Brennstoffen möglich ist) zu legen.

Tabelle 8: Vergleich der PM10 Werte an Überschreitungstagen an den Messstellen St. Pölten, Schwechat mit Vorbelastungswerten in Mistelbach.

Epi Nr	St. Pölten Episoden/ Pools	SP $\mu\text{g}/\text{m}^3$	N Tage	Charakteristik	Δ SP- MB	Belastung Schwechat $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Δ SW- MB	Vorbelastung Mistelbach $\mu\text{g}/\text{m}^3$
1	11.-12.01.05	30	2	AS, H	-12	53	10	42
2	17.-18.01.05	55	2	AS, H	26	35	6	29
3	05.02.05	48	1	AS, H	4	52	8	44
4	6.-9.2.05	55	4	AS, H	6	70	21	49
5	10.02.05	101	1	AS	1	117	17	100
6	11.02.05	14	1	AS	-12	23	-3	26
7	12.02.05	8	1	H	-89	124	27	97
8	23., 24., 26.2.05	57	3	AS, H	14	46	2	44
9	25.2.05	74	1	AS	0	64	-9	74
10	3.-6.3.05	69	4	AS	18	61	10	51
11	14.-16.3.05	43	3	AS, Min	1	61	18	42
12	22.-25.3.05	67	4	AS, Min	7	67	7	59
13	27., 29.-30.3.05	56	3	AS	10	54	8	46
14	01.04.2005	49	1	Min, AS, H	7	52	10	42
15	13.-15.4.05	51	3	AS, Min	2	52	3	49
	Summe		34					

Epi Nr.: Episode Nr.; N Tage: Zahl der Tage im Pool; SP: St. Pölten; SW: Schwechat; MB: Mistelbach; Charakteristik: Haupt-Quellen in den Stadtstationen; AS: Ammoniumsalmze; H: Holzrauch; Min: Mineralstaub.

Rot: Vorbelastung $>50 \mu\text{g}/\text{m}^3$; Blau: Vorbelastung $>40 \mu\text{g}/\text{m}^3$

9. Literatur

- i Pope C.A. III, 2000. Epidemiology of fine particulate air pollution and human health: Biologic mechanisms and who's at risk. *Environ. Health Perspect.* 108 (Suppl.4) 713-723.
- ii Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlaments und Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft in Europa
- iii Hann W., Scheicher E., Schmittner W., 2006. Jahresbericht der Luftgütemessungen in Niederösterreich 2005.
- iv Handler, M., C. Puls, J. Zbiral, I. Marr, H. Puxbaum, A. Limbeck, 2008. Size and composition of particulate emissions from motor vehicles in the Kaisermühlen-Tunnel, Vienna. *Atmospheric Environment* 42 (9), 2173-2186.
- v Laschober C., Limbeck, A., Rendl, J., Puxbaum, H., 2004. Particulate emissions from on-road vehicles in the Kaisermühlen-tunnel (Vienna, Austria). *Atmospheric Environment* 38, 2187-2195.
- vi Puxbaum H., Tenze-Kunit M. (2003) Size distribution and seasonal variation of atmospheric cellulose. *Atmospheric Environment* 37, 3693-3699.
- vii Bauer, H., Claeys, M., Vermeylen, R., Schueller, E., Weinke, G., Berger, A., Puxbaum, H. (2008). Arabitol and mannitol as tracers for the quantification of airborne fungal spores. *Atmospheric Environment* 42, 588-593.
- viii Bauer H., Kasper-Giebl A., Zibuschka F., Hitzenberger R., Kraus G.F., Puxbaum H. 2002. Determination of the carbon content of airborne fungal spores. *Anal. Chem.* 74, 91-95.
- ix Piringer, M., Ober, E., Puxbaum, H., Kromp-Kolb, H., 1997. Occurrence of Nitric Acid and Related Compounds in Northern Vienna Basin During Summertime Anticyclonic Conditions. *Atmospheric Environment* 37, 1049-1057.
- x Watson, J.G., Robinson, N.F., Lewis, C.W., Coulter, C.T., Chow, J.C., Fujita, E.M., Lowenthal, D.H., Conner, T.L., Henry, R.C., Willis, R.D., 1997. Chemical mass balance receptor model version 8 (CMB) user's manual. Prepared for U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC, by Desert Research Institute, Reno, NV. <ftp://eafs.sage.dri.edu/cmb80/model/>.
- xi Hildemann, L.M., Markowski, G.R., Cass, G.R. 1991, Chemical composition of emissions from urban sources of fine organic aerosol. *Environ. Sci, Technol.* 25. 744-759.
- xii Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R. Simoneit, B.R.T., 1993. Sources of fine organic aerosol: 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy duty diesel trucks. *Environ. Sci, Technol.* 27, 636-651.
- xiii Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 1993. Sources of fine organic aerosol: 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. *Environ. Sci. Technol.* 27, 636-651.
- xiv Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 1993. Sources of fine organic aerosol: 5. Natural gas home appliances. *Environ. Sci. Technol.* 27, 2736-2744.
- xv Wörgetter, M., Moser W., 2005. Emissionsbilanz von Holzfeuerungen kleiner Leistung in Niederösterreich. Austrian Bioenergy Centre, Wieselburg.