



Endbericht für das Projekt
Kurzfassung

"AQUELLA" Steiermark

Bestimmung von Immissionsbeiträgen in Feinstaubproben

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

Im Auftrag von

AMT DER STEIERMÄRKISCHEN LANDESREGIERUNG



**Das Land
Steiermark**

→ **FACHABTEILUNG 17C**

Durchführung und Berichterstellung

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

Wien, 17.8.2007
Bericht UA/AQGraz 2007 36S

Auftraggeber:

Amt der Steiermärkischen Landesregierung
Fachabteilung 17C - Technische Umweltkontrolle
Referat Luftgüteüberwachung
Landhausgasse 7 8010 Graz

Bericht-Nr. Lu-08a/07

© August 2007

Informationen im Internet: <http://umwelt.steiermark.at/>
Unter dieser Adresse ist auch dieser Bericht im Internet verfügbar
Bei Wiedergabe der Ergebnisse ersuchen wir um Quellenangabe!

INHALT

1	DAS PROJEKT AQUELLA-STEIERMARK	5
2	EINFÜHRUNG UND AUFGABENSTELLUNG	5
3	QUELLENANALYSE MIT TRACERN	6
3.1	PM10 Messstellen im Raum Graz	6
3.2	Probenahme und Analytik	7
3.3	Herstellung von PM10 – Proben aus gekehrten Staubproben	7
3.4	Entwicklung eines Macrotracer-Modells	7
3.5	Zeitverläufe von PM10	8
3.6	Analysenergebnisse / Quellen	9
3.7	Analysenergebnisse Raum Graz	9
3.7.1	Monatsmittelwerte an Überschreitungstagen - Hauptkomponenten	9
3.7.2	Zeitverläufe	10
3.8	Quellenanalyse mit dem Makrotracer-Modell	13
3.8.1	Mittelwert der Überschreitungstage	13
3.8.2	Quellenanteile der Überschreitungsperioden	16
3.8.3	Quellenanteile Saison-Mittelwerte	16
3.8.4	Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung	18
3.8.5	„Sommer – Winter“ Vergleich	18
3.9	Quellenanalyse mit dem CMB-Modell	20
3.9.1	Modellparameter	20
3.9.2	Ergebnisse der Saison-Monate	20
3.9.3	CMB Analyse von Überschreitungsperioden	21
3.9.4	CMB – Massenbilanzen	21
3.10	Datenvergleiche	22
3.10.1	Vergleich von CMB und Makrotracer-Ergebnissen	22
3.10.2	Der spezielle Fall des Holzrauchs	22
3.11	Städtevergleich Wien – Graz – Salzburg	22
3.12	Überschreitungen – Einfluss der Vorbelastung	23
3.12.1	Der Beitrag der Vorbelastung	23
3.12.2	Überlegungen zu einer zulässigen Zusatzbelastung in einem Ballungsgebiet	24
3.12.3	Die Hauptkomponenten an den belasteten Messstellen an Überschreitungstagen	25
4	PM10 UND METEOROLOGISCHE EINFLÜSSE	27
4.1	Analyse ausgewählter Überschreitungsepisoden im Raum Graz	27
4.2	Zusammenfassung der meteorologischen Analyse:	27
5	ANALYSE VON STADT- UND IMPORTANTEILEN	29
6	ZUSAMMENFASSUNG	32

7	VERZEICHNIS DER ABKÜRZUNGEN:	35
8	LITERATUR	36

1 Das Projekt AQUELLA-Steiermark

Das Projekt AQUELLA – Aerosolquellenanalyse für die Steiermark; Bestimmung von Immissionsbeiträgen in Feinstaubproben wurde im August 2003 in Auftrag gegeben mit einer Laufzeit von 2,5 Jahren. Das Projekt wurde von Ao Prof. Dr. Hans Puxbaum geplant und geleitet und von Dr. Heidi Bauer koordiniert. Insgesamt waren an AQUELLA-Steiermark 25 Mitarbeiter beteiligt. Es wurden im Rahmen von AQUELLA 11 verschiedene Analysemethoden eingesetzt, die zum Teil Eigenentwicklungen speziell für die Aerosolquellenanalyse waren. Weitere Eigenentwicklungen waren eine Apparatur zur Darstellung von PM10-Proben aus Kehrstaubproben („Elutriator“) und ein Probenahmegerät für PM10 aus Feststofffeuerungen mit Vorverdünnung.

2 Einführung und Aufgabenstellung

Der PM10 Standard mit einem Grenzwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als TMW, der pro Jahr in der EU 35 Mal überschritten werden darf, wurde mit dem IG-Luft 2001 in Bezug auf die Überschreitungshäufigkeit mit einer maximal 25 maligen Überschreitung verschärft in österreichisches Recht übernommen. Der EU-Grenzwert ist in vielen Ballungsräumen Europas überschritten und auch in Graz wurden Überschreitungen des PM10 Grenzwertkriteriums beobachtet. In Österreich führt eine Überschreitung eines IG-Luft Grenzwerts zur Statuserhebung mit einer Analyse der Verursacher und zur Einleitung von geeigneten Maßnahmen, um die Überschreitungen in Zukunft vermeiden zu können. Im gegenständlichen Projekt sollten die Quellenanteile, welche die Ursachen der Grenzwertüberschreitungen darstellen, ermittelt werden. Als Lösungsmöglichkeit wurde die Anwendung eines Chemischen Massenbilanzmodells (CMB) vorgeschlagen. Basierend auf den Erfahrungen mit dem CMB-Modell wurde im Rahmen von AQUELLA ein eigenes Aerosolquellen-Modell, das Makrotracer-Modell entwickelt und erfolgreich angewendet. Für die Schaffung von Quellenprofilen 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 werden im Rahmen des gegenständlichen Projektes erstellt. AQUELLA-Projekte wurden, bzw. werden derzeit für die Länder Wien, Steiermark, Salzburg, Niederösterreich, Kärnten und Oberösterreich durchgeführt.

Zur Analyse von Situationen, die zur Überschreitung der IG-Luft Grenzwerte von PM10 führen, war ein Einbeziehen von Vorbelastungsmessstellen erforderlich. Damit konnte der eigentliche Stadteinfluss als „Urban Impact“ für die Überschreitungsepisoden, bzw. auch für die langfristigen Messdaten herausgefiltert werden. Eine Reihe der Emissionstypen spielt in Städten eine untergeordnete Rolle.

Ausgehend von Erfahrungen früherer Arbeiten konnte angenommen werden, dass insbesondere sekundäre anorganische Aerosole, Straßenstaub (verbunden mit Splittstreuung), KFZ-Emissionen und Holzrauch als bedeutende Quellen anzusehen sind. Als Tracerkomponenten werden in AQUELLA folgende Analysenparameter erfasst:

Metalle, lösliche Ionen, Kohlenstoffparameter (TC/BC/OC/CC), Anhydrozucker, Cellulose, ausgewählte PAH, C23-C33 Alkane, ausgewählte Mono- und Dicarbonsäuren, ausgewählte Harzsäuren, Nonanal.

Im Rahmen der AQUELLA-Projektgruppe wurden Quellenprofile für die Quellengruppen „Straßenstaub“, Baustaub“, „Pflanzenabrieb“, „Kochen“, „Feldarbeit“, „Holzrauch“ und „Humic Like Substances“ (HULIS) erstellt. Für „Gasverbrennung“, „KFZ- Emissionen“, „Bremsabrieb“ und „Reifenabrieb“ wurden US-Profile, zum Teil ergänzt durch eigene Daten, angewendet.

3 Quellenanalyse mit Tracern

3.1 PM10 Messstellen im Raum Graz

Die AQUELLA-Messstellen im Raum Graz sind im Verlauf einer Transekte von Nord in Richtung Süd angeordnet. Als südlich von Graz gelegene regionale Hintergrundmessstelle fungiert Bockberg. Urbane, verkehrsnahе Messstellen sind Graz Süd und Don Bosco. Die Entfernung Graz – Bockberg beträgt 28 km.

Zur Lage und Anordnung der Messstellen siehe Abbildung 1.

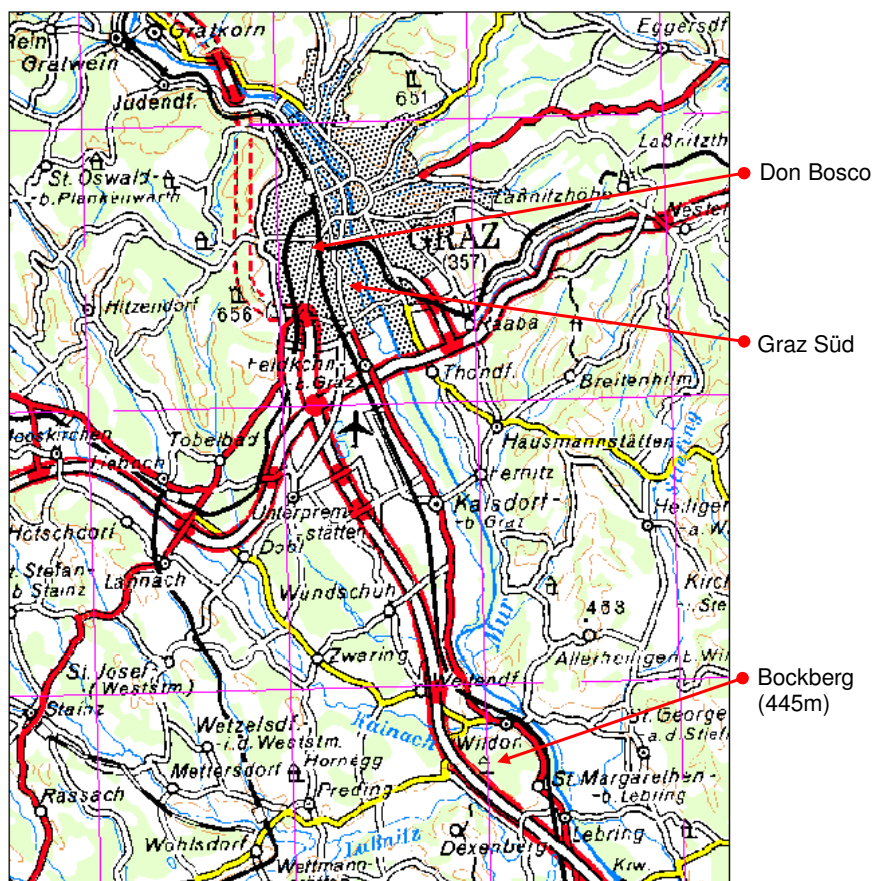


Abbildung 1: Lage der AQUELLA-Messstellen im Großraum Graz.

3.2 Probenahme und Analytik

Die Beprobung erfolgte an den AQUELLA-Messstationen mit zwei Sammeleinrichtungen: Einem mit Quarzfiltern bestückten High-Volume Sammler und einem Low-Volume Sammler mit Celluloseester-Filtern (Metricel GN4). Die Quarzfaserfilter wurden für die Analyse von Ruß und Organischem Kohlenstoff, organischen Komponenten, Ionen, Anhydrozuckern, Cellulose und HULIS („Humic Like Substances“) eingesetzt. Die Celluloseester-Filter wurden zuerst für die Bestimmung von Silizium und Aluminium (zerstörungsfreie Röntgenfluoreszenzanalyse – Tagesproben) verwendet und dann aufgeschlossen und zur Schwermetallanalyse verwendet.

Die Filter wurden entweder nach Episoden oder nach Höhe der Belastung der am höchsten belasteten Messstelle gepoolt. Zur Bildung der Probenpools kamen folgende Kriterien zur Anwendung:

- Einzeltage und Pools der „Überschreitungstage“
- Vergleich von Tagen $< 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Wintermittel
- Monatsmittelwerte von Jänner, April, Juli, Oktober („typische Monate“)

Das Auswahlkriterium für einen „Überschreitungstag“ war eine Überschreitung an der Messstelle Don Bosco, da diese in allen Fällen überschritten war, an welchen auch an der Messstelle Graz Süd eine Überschreitung vorlag. Einzelne oder mehrere hintereinander folgende Überschreitungstage mit ähnlichem Verlauf als „Probenpools“ wurden jeweils simultan von allen drei Messstellen der Analyse unterzogen.

3.3 Herstellung von PM10 – Proben aus gekehrten Staubproben

Zur Herstellung von PM10-Aerosolen aus Emissionsproben wie z.B. Straßenstaub, wurde ein Gerät (Elutriator) geplant und gebaut. Emissionsproben unterschiedlicher Korngröße werden mit gereinigter und partikelfreier Luft verwirbelt und parallel auf einem Quarzfaser- und einem Celluloseester-Filter gesammelt. Die Probenahme erfolgt über zwei PM10-Köpfe.

3.4 Entwicklung eines Macrotracer-Modells

Im Verlauf der AQUELLA-Projekte zeigte sich, dass bereits für wichtigste Aerosolquellen entweder spezifische Tracer oder zumindest Haupt-Tracer zur Verfügung stehen, die als Makrokomponenten im Quellenprofil anzusehen sind. Ausgehend von diesen Tracern wurde ein Massenbilanz-Modell erstellt, mit welchen 9 Quellen/bzw. Quellengruppen aus den Immissionsdaten erklärt werden können. Die verwendeten Makrotracer und deren Anwendung sind in Tabelle 1 angeführt. Die Aufteilung der Quellengruppe Diesel-Emissionen in Anteile aus Verkehr und anderen fossilen Quellen erfolgt in Verkehr- und Off-Road Anteile nach dem Schlüssel 3:1 (Pucher 2006)[1].

Tabelle 1: 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) $EC_H = M_H * 0,15$ $EC_C = M_C * 0,4$	EC aus Diesel Diesel Emission KFZ+off road EC aus Holzrauch EC aus Kohleverbrenng.	Tunnelmessungen Eigene Daten EPA SPECIATE
As	$M_C = As * f_C$ §	Kohlefeuerung Haushalte	EPA SPECIATE
Levoglucosan	$M_H = Levo * 10,7$	Holzrauch Haushalte	Eigene Daten
Cellulose	Cellulose*2	Pflanzen-Debris	Puxbaum&Tenze-Kunit 2003
HULIS	1x	Organisch Sekundär	Limbeck et al. 2005
Pilz-Sporen	13 pg/Spore	Bio-Aerosol (Pilze)	Bauer et al. 2002
NaCl	> 1% von PM10	Auftausalz	-
Si, Ca	$(Si * 2,7) + (Ca * 2,5)$	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, unbekante Bioaerosole	-

§ Bereich von $f_C = 300-1000$

3.5 Zeitverläufe von PM10

Der PM10 Jahresverlauf an den AQUELLA Graz - Messstellen während der Untersuchungsperiode ist in Abbildung 2 dargestellt. Es zeigt sich, dass Überschreitungen des PM10-Grenzwerts für den Tagesmittelwert praktisch nur während der kalten Jahreszeit vorkommen. Von Mai - September liegen die Messwerte weitgehend unter $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Besonders in der warmen Jahreszeit zeigt sich eine starke Parallelität der Kurvenverläufe. Auch an Überschreitungstagen sieht man typische Verläufe: Don Bosco und Graz Süd weisen oft ähnliche PM10 - Werte auf. Die Messstation im Hintergrund, Bockberg, zeigt zeitweise einen unterschiedlichen Verlauf auf wie Don Bosco und Graz Süd. Im Winter ergeben sich an den straßennahen Messstellen oft deutlich höhere Werte im Vergleich zur Hintergrundmessstelle.

Den Stadtmessstellen ist gemeinsam, dass in der warmen Jahreszeit - etwa von Mai bis September - dramatisch niedriger liegende PM10 TMW Werte auftreten, als während der kalten Jahreszeit. Die Spitzenwerte liegen während der kalten Jahreszeit um etwa einen Faktor 4 höher, als in der warmen Jahreszeit. Die Zunahme der PM10-Werte im Winter ist im Wesentlichen auf zwei Faktoren zurückzuführen: a) auf verringerten Luftaustausch im Winter und b) zusätzlich wirksame Emissionsquellen.

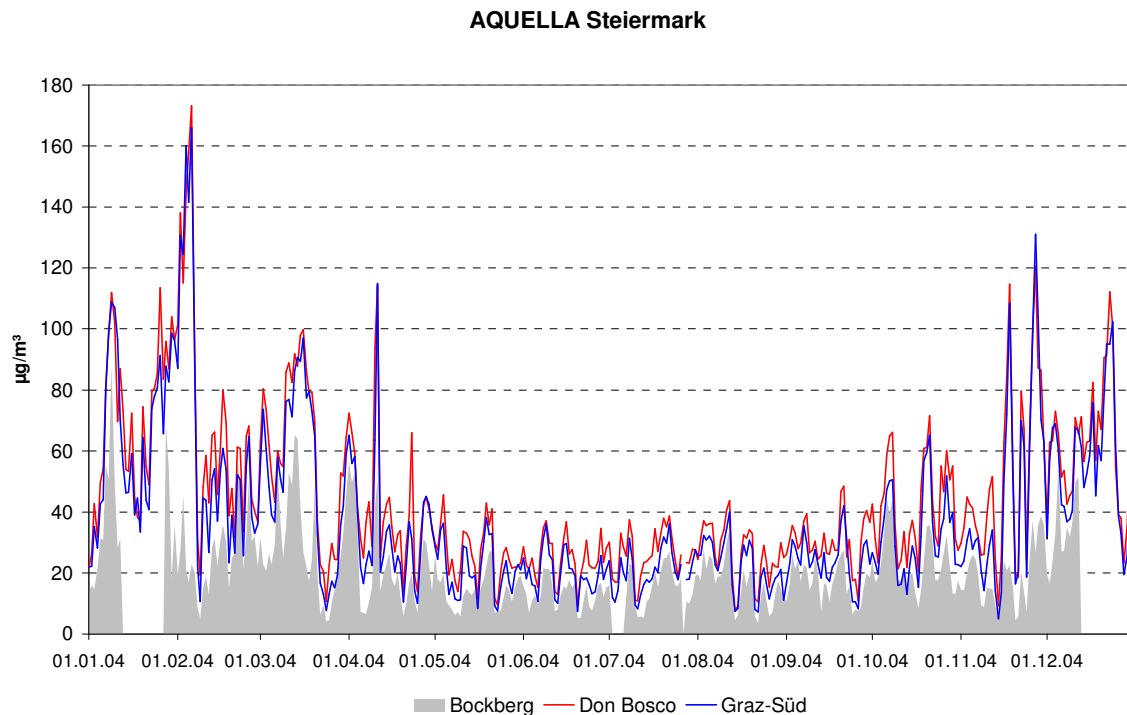


Abbildung 2: Verlauf der PM10 Tagesmittelwerte an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz-Süd. Jan.2004-Dez.2004.

3.6 Analysenergebnisse / Quellen

Straßenstaubproben wurden in Graz an den AQUELLA-Messstellen zweimal beprobt. Im Mittel während der zwei Sammelperioden bestehen die Straßenstäube in Graz zu etwa 60% aus silikatischen und 30% aus karbonatischen mineralischen Anteilen. Etwa 16% stellen Ruß und organische Materialien dar. Der Anteil an Sulfat, Nitrat und Ammonium ist sehr gering. Allerdings weisen die Anteile Orts- und Saison bedingt größere Schwankungen auf.

3.7 Analysenergebnisse Raum Graz

3.7.1 Monatsmittelwerte an Überschreitungstagen - Hauptkomponenten

Die analysierten Komponenten im Projekt AQUELLA können in Makro- und Mikrokomponenten unterteilt werden. Zu den Makrokomponenten zählen EC und OC, Ionen sowie die Gestein bildenden Elemente Si, Al, Ca und Fe. Die Ergebnisse der wichtigsten Makrokomponenten für vier charakteristische Monate zeigt Tabelle 2. Die Daten geben Einblick in die saisonale Variation der Makrokomponenten. Bemerkenswert ist die jahreszeitliche Schwankung des Nitrats, mit hohen Werten während des Winters und geringen im Sommer. Aufgrund der thermischen Instabilität von Ammoniumnitrat bildet sich dieses bevorzugt in kühler, feuchter Umgebung.

Tabelle 2: Mittelwerte der Analysenergebnisse für die Saisonmonate im Jahr 2004 an den AQUELLA-Messstellen in der Steiermark. OM=OC*1,7; Silikate=Si*2,7; Karbonate=Ca*2,5. n.a.: nicht analysiert

Don Bosco	$\mu\text{g}/\text{m}^3$							
Monat	PM10	EC	OM	NH ₄	NO ₃	SO ₄	Silikate	Karbonate
Jänner	69,4	7,8	28,6	3,0	7,0	4,5	6,2	4,4
April	42,2	5,6	15,7	1,9	2,8	4,3	7,6	3,9
Juli	25,9	4,5	7,1	0,5	0,3	1,7	5,1	1,7
Oktober	42,1	7,4	18,6	1,5	2,7	4,2	6,7	2,9

Graz-Süd	$\mu\text{g}/\text{m}^3$							
Monat	PM10	EC	OM	NH ₄	NO ₃	SO ₄	Silikate	Karbonate
Jänner	64,0	6,9	29,4	3,2	7,2	4,7	n.a.	3,1
April	34,6	3,5	13,9	1,8	1,8	4,0	n.a.	3,2
Juli	20,4	2,4	6,8	0,6	0,3	1,8	4,1	1,4
Oktober	32,9	5,2	14,0	1,2	1,1	3,8	4,3	2,1

Bockberg	$\mu\text{g}/\text{m}^3$							
Monat	PM10	EC	OM	NH ₄	NO ₃	SO ₄	Silikate	Karbonate
Jänner	37,9	2,9	11,5	3,2	7,5	4,2	1,0	0,4
April	22,3	1,5	6,1	1,9	2,4	3,7	2,9	0,7
Juli	15,4	1,2	3,3	0,7	0,2	1,9	n.a.	0,6
Oktober	23,2	1,9	8,0	1,6	1,8	3,6	n.a.	0,5

Offen ist die Herkunft des Ammoniaks im Winter. Die mögliche Limitierung der Ammoniumnitrat-Bildung infolge der beschränkten Verfügbarkeit des Ammoniaks im Winter dürfte die Ursache für das großflächige Auftreten im urbanen Background sein. Auch das Verhalten von Silikat und Karbonat weist Sonderheiten auf: Maxima im Frühling, meist deutlich höhere Werte an den städtischen verkehrsnahen Messstellen.

3.7.2 Zeitverläufe

Zeitverläufe silikatischer Mineralstaub

Für die Komponenten EC und OC, sowie für Si und Al liegen Tageswerte vor, die mit den PM10-Tageswerten verglichen werden können. Silizium wird als Tracerelement für silikatische Stäube herangezogen, siehe auch Tabelle 1.

Die Zeitverläufe von Si, Al und PM10 an der Don Bosco sind in Abbildung 3 dargestellt.

AQUELLA Steiermark: Don Bosco

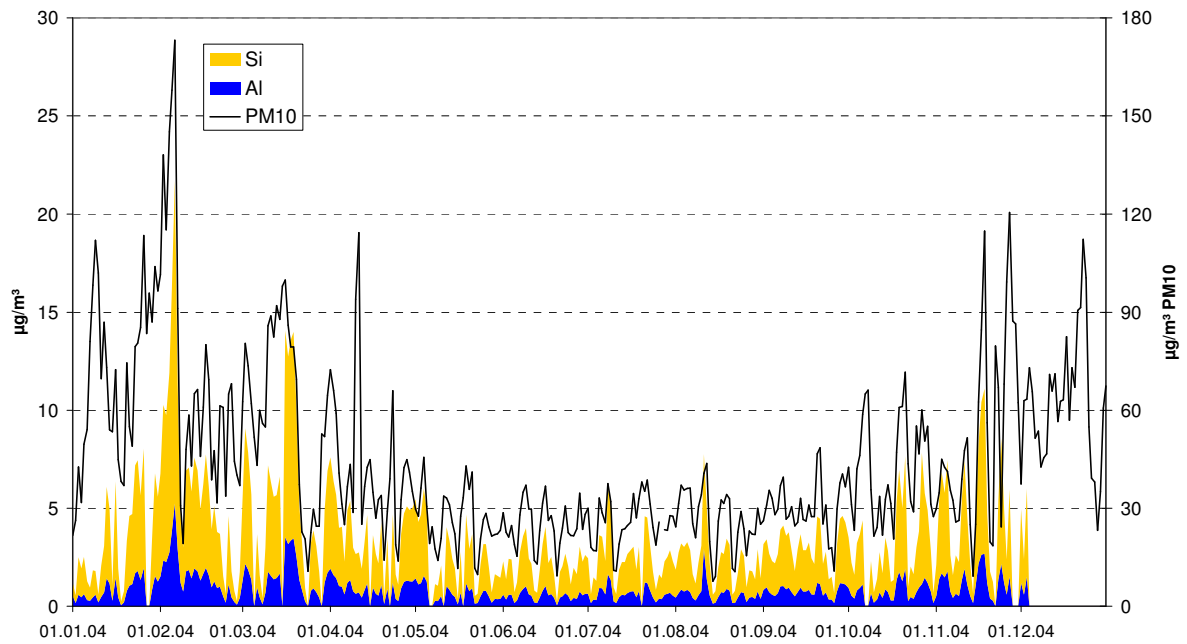


Abbildung 3: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Don Bosco, Jan-Dez 2004.

Während die Konzentrationswerte von Si und Al in der kalten Jahreszeit stark schwanken, treten in der warmen Jahreszeit deutliche Wochengänge auf, die auf spezielle Emissionsmuster hindeuten.

AQUELLA Steiermark

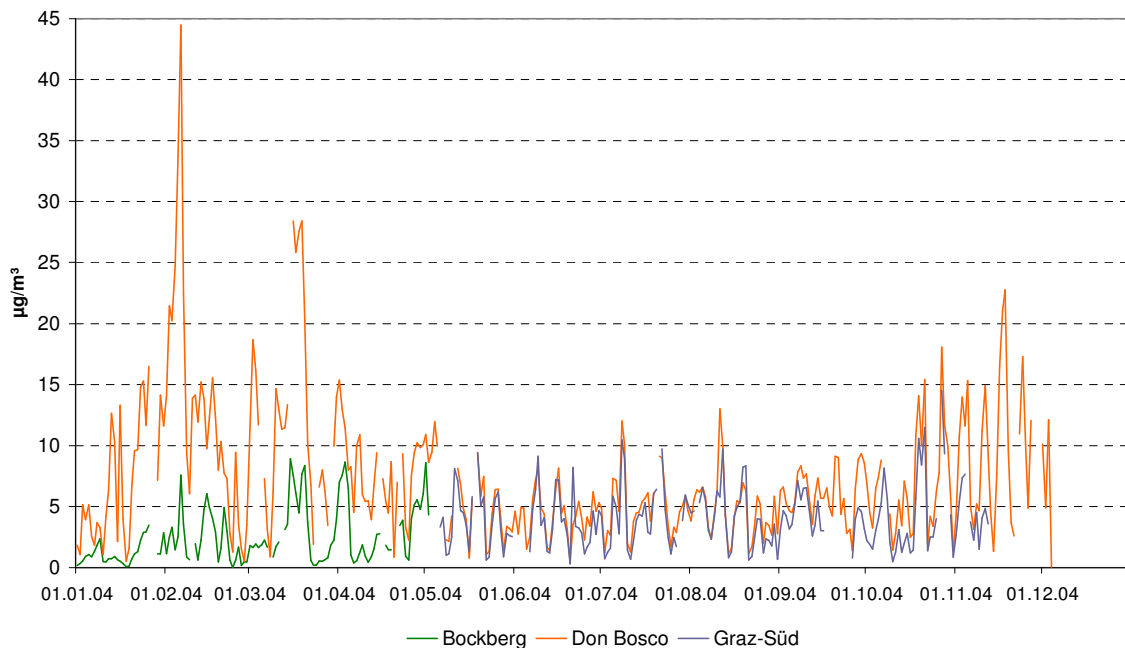


Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von silikatischem Staub an den Messstellen Bockberg, Graz-Süd und Don Bosco; Jan-Dez 2004.

Durchaus überraschend ist das Ergebnis von rund 15-20% Anteil an silikatischem Staub an den verkehrsnahen Messstellen (Abbildung 5). Die relativen Silikatstaubanteile liegen an der Hintergrundmessstelle Bockberg im Monatsmittel um etwa 5 - 10% niedriger als an den Straßenmessstellen. Die Ergebnisse zeigen weiters, dass während der warmen Jahreszeit, bei deutlich geringeren PM10-Werten, als während der kalten Jahreszeit, eher höhere relative Anteile der silikatischen Mineralstaubwerte auftreten. Vorgänge, die zu besonderen Anreicherungen der silikatischen Anteile führen, müssen noch untersucht werden. Speziell zu prüfen sind ein möglicher Zusammenhang mit Trockenperioden und landwirtschaftlichen Aktivitäten. Der Verlauf des relativen Anteils von silikatischem Staub PM10 ist in Abbildung 5 dargestellt.

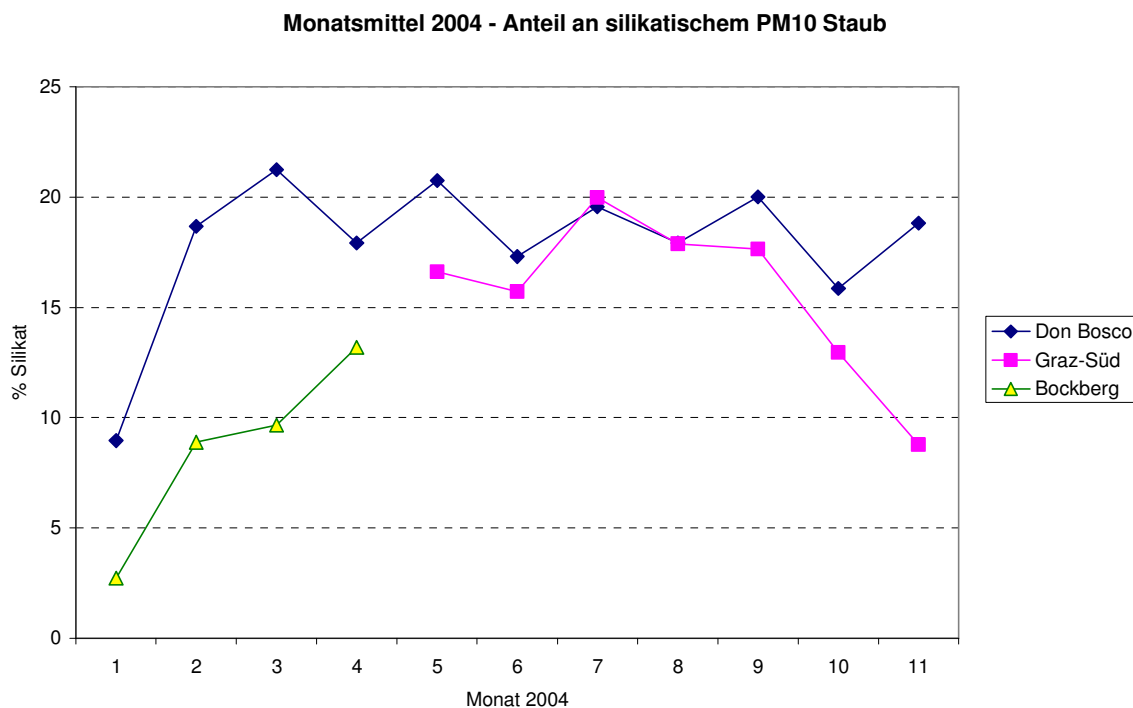


Abbildung 5: Zeitlicher Verlauf des relativen Anteils von silikatischem Material in PM10 an den steirischen Messstellen, Zeitraum Jan-Dez 2004.

Zeitverläufe EC und OC

Die Zeitverläufe von EC und OC an den Grazer AQUELLA Messstellen wurden eingehend untersucht; der Verlauf von EC und OC ist in der Abbildung 6 dargestellt.

AQUELLA Steiermark: Don Bosco

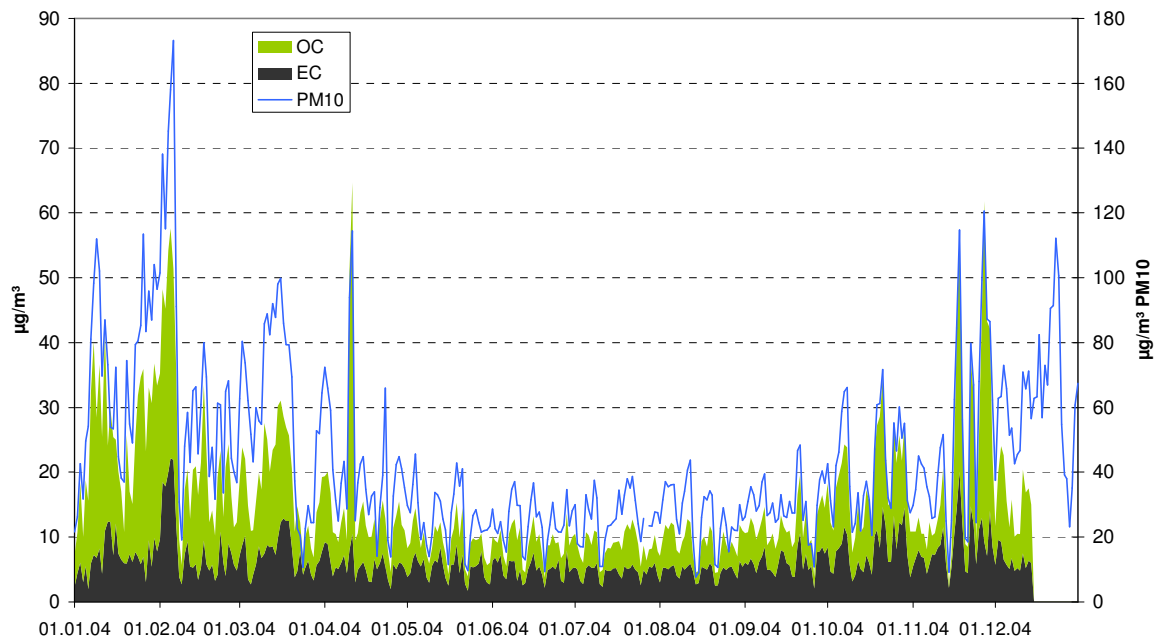


Abbildung 6: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Don Bosco

Im Vergleich zu silikatischem Material weisen die Kohlenstoff-Parameter auch ausgeprägte Wochengänge, jedoch mit etwas anderer Verlaufsform, auf. Die Summe von EC und OC liegt etwas über einem Drittel der Massenkonzentration.

3.8 Quellenanalyse mit dem Makrotracer-Modell

3.8.1 Mittelwert der Überschreitungstage

Eine der zentralen Fragen im Projekt AQUELLA ist jene nach den Ursachen der Überschreitung. Um die verursachenden Quellen ableiten zu können, werden detaillierte Analysen der Zusammensetzung an Stadt- und Vorbelastungsmessstellen durchgeführt, um aus der Zusammensetzung einerseits, und der Differentialdiagnose zwischen den Messstellen andererseits, auf Quelleneinflüsse schließen zu können. Die Ergebnisse für die mittleren Zusammensetzungen an den AQUELLA-Messstellen in Graz unter Anwendung des Makrotracer-Modells – zeigt Abbildung 7.

Es ist erkennbar, dass der an der Messstelle Bockberg erfasste „Regionale Hintergrund“ im Mittel über die Überschreitungstage im Jahr 2004 bereits etwa 45% des Mittelwertes an der Messstelle Don Bosco ausmacht. Dies bedeutet, dass zur Einhaltung des Grenzwerts von 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nur ein relativ geringer Aerosolanteil selbst als „Inkrement“ an den „Überschreitungstagen“ zum Hintergrund dazu kommen darf, um unter dem Grenzwert zu bleiben. Oder ausgehend von den PM10-Mittelwerten an Überschreitungstagen an der Messstelle Don Bosco: Eine Reduktion der PM10-Werte um etwa 45% insgesamt

(Stadtquellen und Hintergrundquellen) ist erforderlich, um 50 µg/m³ als TMW (im Jahr 2004) einzuhalten.

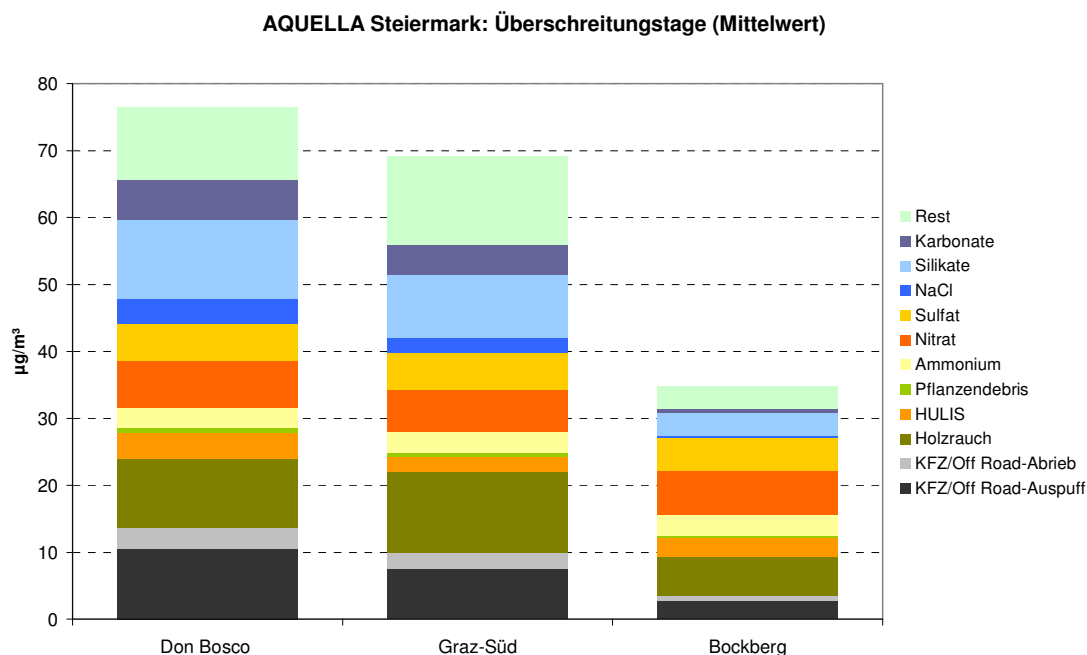


Abbildung 7: Mittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den AQUELLA-Messstellen in der Steiermark.

Tabelle 3: Relative Anteile (%) von Quellen an Überschreitungstagen an den Messstellen Don Bosco, Bockberg und im „Urban Impact“ – Mittel über 2004

Quellengruppe	Don Bosco % Anteil in PM10	Bockberg % Anteil in PM10	„Urban Impact“ % Anteil in PM10
Sulfat, Nitrat, Ammonium (Sekundär anorganisch)	21	42	3
Mineralstaub durch Winterbedingungen	23	12	33
Streusalz	5	1	8
Holzrauch und organisch sekundär	19	25	13
Sonstige organische Anteile	8	3	12
Verkehr und andere fossile Quellen:	18	10	24
Abrieb (v.a. Brems-, Reifenabrieb)	4	2	6
Abgas KFZ (v.a. „Dieselruß“)	11	6	14
Abgas sonstige Quellen	3	2	4
Nicht erklärt	6	7	6

Aus den Daten von der Messstelle Don Bosco und dem Bockberg wird durch Differenzbildung ein Stadteinfluss, der „Urban Impact“ abgeleitet. Die Quellenanteile von Don Bosco und dem „Urban Impact“ unterscheiden sich dadurch, dass die Anteile des regionalen Hintergrunds sich auch zu etwa 45% auf die Zusammensetzung der Partikel PM10 an der

Messstelle Don Bosco auswirken. Die in der Stadt überwiegend wirkenden Quellen sind im „Urban Impact“ dargestellt. Die relative Zusammensetzung des „Urban Impacts“ an Überschreitungstagen im Jahr 2004 ist aus Tabelle 3 erkennbar. Etwa 14% stammen aus KFZ-Abgas und, etwa 18% insgesamt aus Verkehr und anderen fossilen Quellen. Auch Streusalz ist im Urban Impact mit 8% nachweisbar, sekundär anorganische Komponenten mit etwa 3% Anteil. Den höchsten Anteil von 33% weisen Mineralstäube (etwa 2/3 silikatisch, 1/3 karbonatisch) auf.

Die Grenze zwischen der Stadtatmosphäre und dem Hintergrund ist naturgemäß nicht starr und ein gegenseitiger Einfluss darf angenommen werden. 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. Umgekehrt lässt sich der Stadteinfluss auf die Hintergrundmessstelle nicht völlig ausschließen. Dennoch darf aufgrund der Entfernung der Hintergrund – Messstelle angenommen werden, dass der Stadteinfluss sehr gering ist.

AQUELLA Steiermark: "Urban Impact" an der Messstelle Don Bosco

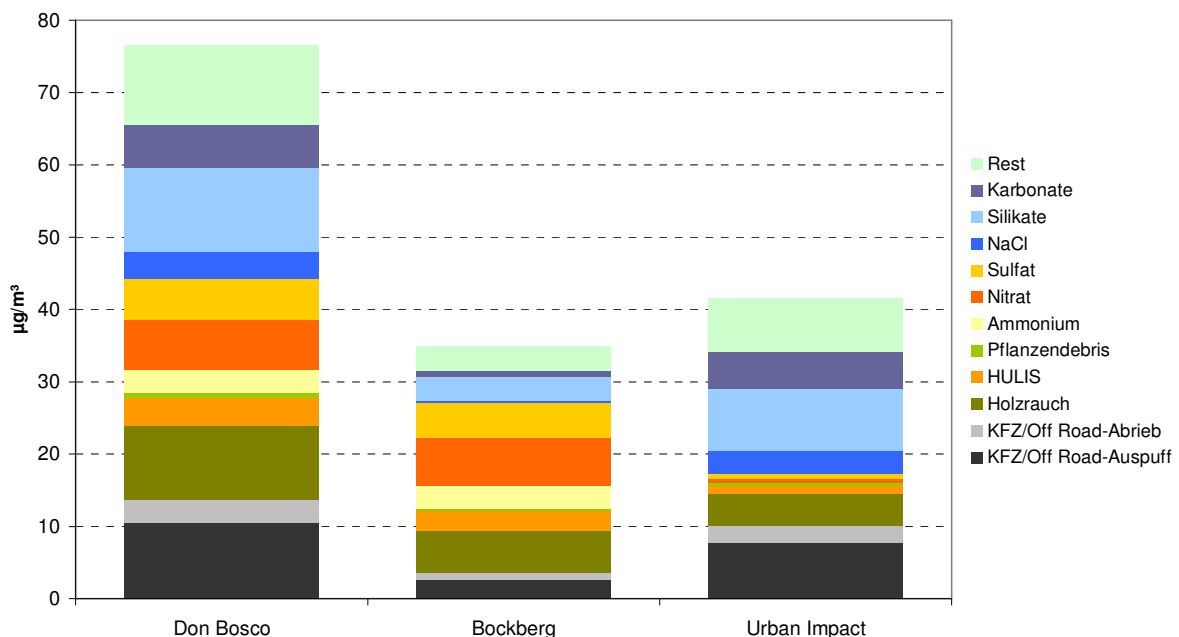


Abbildung 8: Quellenbeiträge für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den Messstellen Graz Don Bosco und Bockberg, sowie der „Urban Impact“ für Don Bosco, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte an Don Bosco und Bockberg.

Die unterschiedlichen Quellenanreicherungen zeigen sich auch optisch erkennbar in der Abbildung 8. In diesem Modell werden mit 6 Quellengruppen 93-94% der Partikel PM10 an der Messstelle Don Bosco und im regionalen Hintergrund erklärt (Tabelle 3).

3.8.2 Quellenanteile der Überschreitungsperioden

Die Quellenanteile während der Überschreitungstage bzw. Perioden sind an den einzelnen Überschreitungstagen bzw. Perioden durchwegs unterschiedliche Quellenbeiträge den „Haupt-Beitrag“ bewirken. Den geringsten Schwankungsbereich (4x) weist der Beitrag von Kfz- und Off-Road Abgas auf. Die höchsten Absolutwerte werden von den zusammengefassten Quellen „Sulfate und Nitrate“ sowie von „Holzrauch und organisch sekundär“ mit relativen Beiträgen von je bis zu etwa 50% verursacht. Diese Quellgruppen weisen auch die größten Schwankungen auf (5-49% bzw. 8-47%).

Der Schwankungsbereich von Mineralstaub und Streusalz liegt zwischen 5 und 36% und zwischen 0 und 16%. Die Emission dieser Komponenten scheint stark Witterung abhängig zu sein (geringe Emission bei Nässe und Schneedecke; zunehmende Emissionen bei trockener Witterung). Die schwankenden Quellenbeiträge sind bei den Reduktionsmaßnahmen zu berücksichtigen.

Der Anteil der mobilen Quellen ist im gegenständlichen Modell nicht abgrenzbar von anderen Quellen mit Dieselmotoren (off-road Verkehr und andere off-road Quellen, Bahn, Schifffahrt) oder auch von Kohleverbrennung aus kleineren Feuerungsanlagen. Der überwiegende Anteil (75%) dieses Sektors wird jedoch dem Kfz-Verkehr (PKW und LKW) zugerechnet.

3.8.3 Quellenanteile Saison-Mittelwerte

Zur Erfassung der jahreszeitlichen Unterschiede wurden Mittelwerte für die Monate Jänner, April, Juli und Oktober Jahres 2004 gebildet.

Die Ergebnisse für Don Bosco und Bockberg sind in den Abbildungen 9 und 10 dargestellt. Es zeigen sich deutliche monatliche Unterschiede, mit Minima im Sommer und Maxima im Winter. Beim Sulfat im Hintergrund ergibt sich die Frage nach der Herkunft. Da in der Steiermark relativ wenig SO₂ (6,7 kt) gegenüber NO_x (29,6 kt) emittiert wird (Daten für 2001 aus BLI 1990-2001, UBA Berichte BE-185), ist die Möglichkeit von Ferntransportanteilen wahrscheinlich. Der Anteil im Urban Impact ist relativ gering. Die Anstiege der PM10-Monatsmittelwerte von Juli zu Jänner sind in den Darstellungen Abbildung 9 und 10 deutlich erkennbar.

AQUELLA Steiermark: Don Bosco

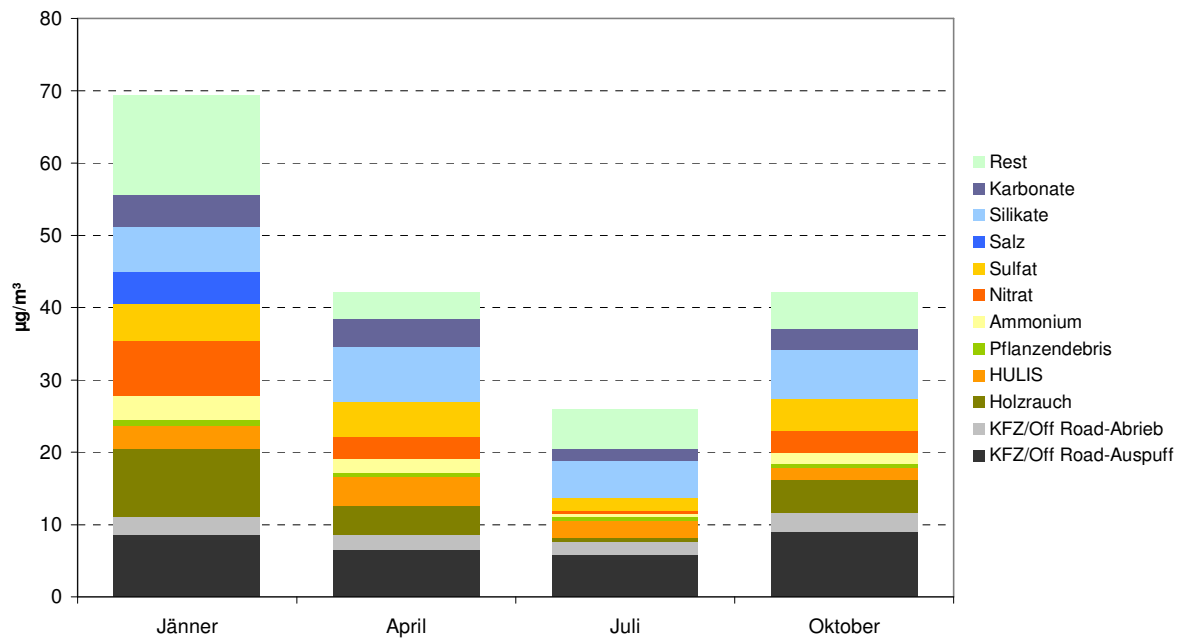


Abbildung 9: Mittelwerte für Saison-Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco.

AQUELLA Steiermark: Bockberg

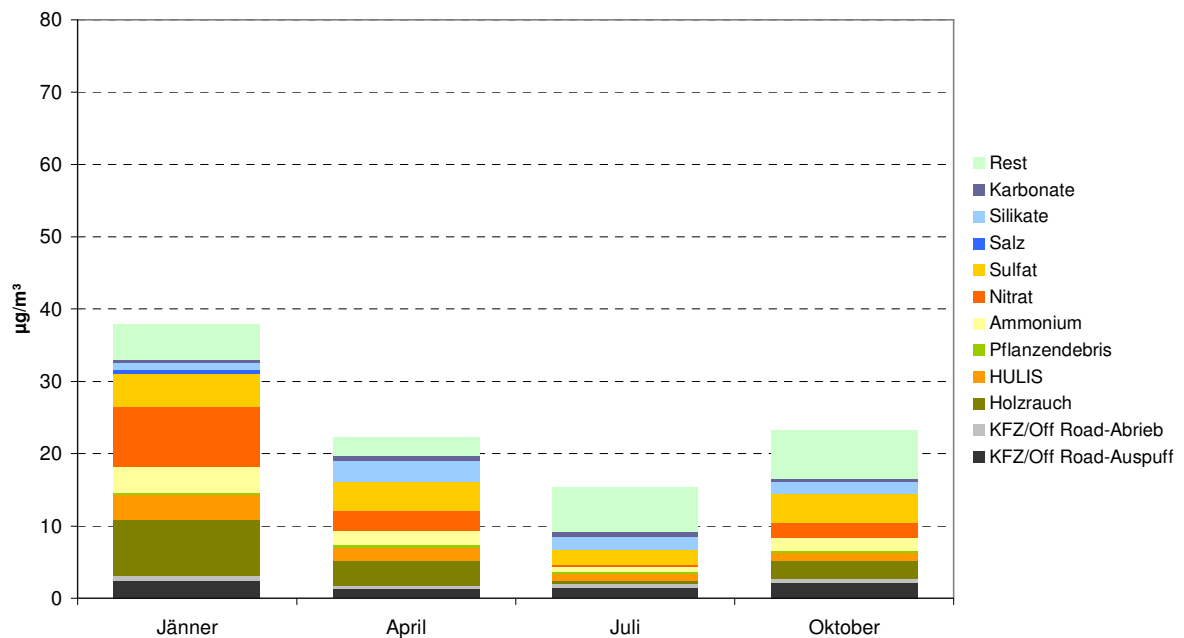


Abbildung 10: Mittelwerte für die Saison-Monate (2004) an der Messstelle Bockberg

3.8.4 Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung

Die unterschiedliche Zusammensetzung von PM10 an Tagen unter und über 50 µg/m³ an der Grazer AQUELLA Messstelle Don Bosco ist in den Abbildung 11 dargestellt.

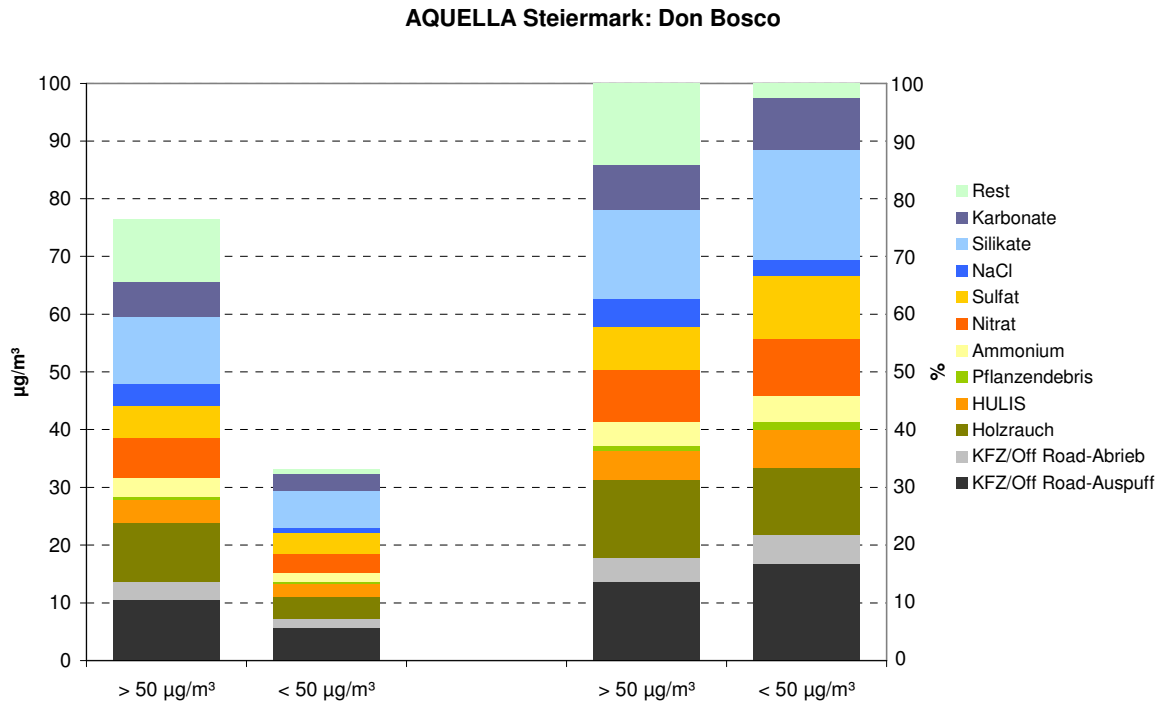


Abbildung 11: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Don Bosco, sowie relative Anteile (rechts im Bild)

Die relative Zusammensetzung ist bei den Fällen < 50 und > 50 µg/m³ mit Ausnahme des KFZ- und Off-Road- Abgasanteils sowie der ungeklärten Quellenbeiträge ziemlich ähnlich. Dies deutet darauf hin, dass die überwiegende Zunahme von geringen zu hohen Werten innerhalb eines Monats weitgehend durch geringeren Luftaustausch, erhöhtem Importanteil, und auch durch nicht geklärte Winterquellenanteile verursacht wird.

3.8.5 „Sommer – Winter“ Vergleich

Die Überschreitungen des TMW-Grenzwerts von 50 µg/m³ traten 2004 an der Messstelle Don Bosco praktisch nur im Winterhalbjahr auf. Ein Schlüssel zur Erklärung, warum es nur während der kalten Periode zu den Überschreitungen kommt, liegt in der Frage, welche Quellen sich im Winter stärker auswirken, als im Sommer; bzw. ob es „Winterquellen“ gibt, die im Sommer praktisch nicht zu PM10 beitragen. In den Abbildungen 12 und 13 sind für zwei Grazer AQUELLA Messstellen die Quellenbeiträge im Juli den Beiträgen im Jänner gegenübergestellt. Der „Zuwachs“ bei PM10 von Juli zu Jänner beträgt bei der Messstelle Don Bosco 44 µg/m³. Diesem Zuwachs stehen 23 µg/m³ PM10 an der Messstelle Bockberg gegenüber. Dies bedeutet, dass mehr als die Hälfte der Zunahme (ca. 52%) der winterlichen erhöhten Konzentrationswerte im regionalen Hintergrund erfolgt. Der Zuwachs von 23 µg/m³

im Hintergrund ist, wie aus der Abbildung 13 ersichtlich ist, vor allem auf die Zunahme des Holzrauchs und dessen Folgeprodukten in der Atmosphäre (HULIS) sowie auf anorganisches Sekundäraerosol (Sulfate und Nitrate) zurückzuführen. Der zusätzliche Zuwachs von ca. 21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im urbanen Bereich („urban impact“) wird vorwiegend durch ungeklärte Quellenanteile (ca. 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), KFZ und Off Road Abgas (ca. 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), Mineralstaub (ca. 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und Streusalz (4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) verursacht.

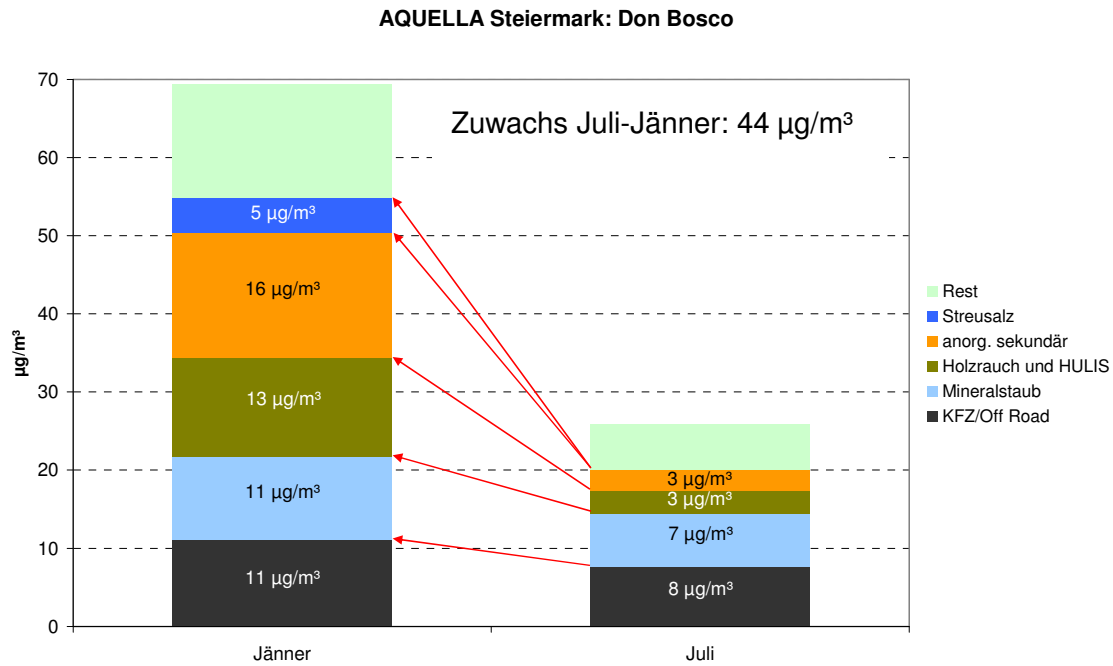


Abbildung 12: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco.

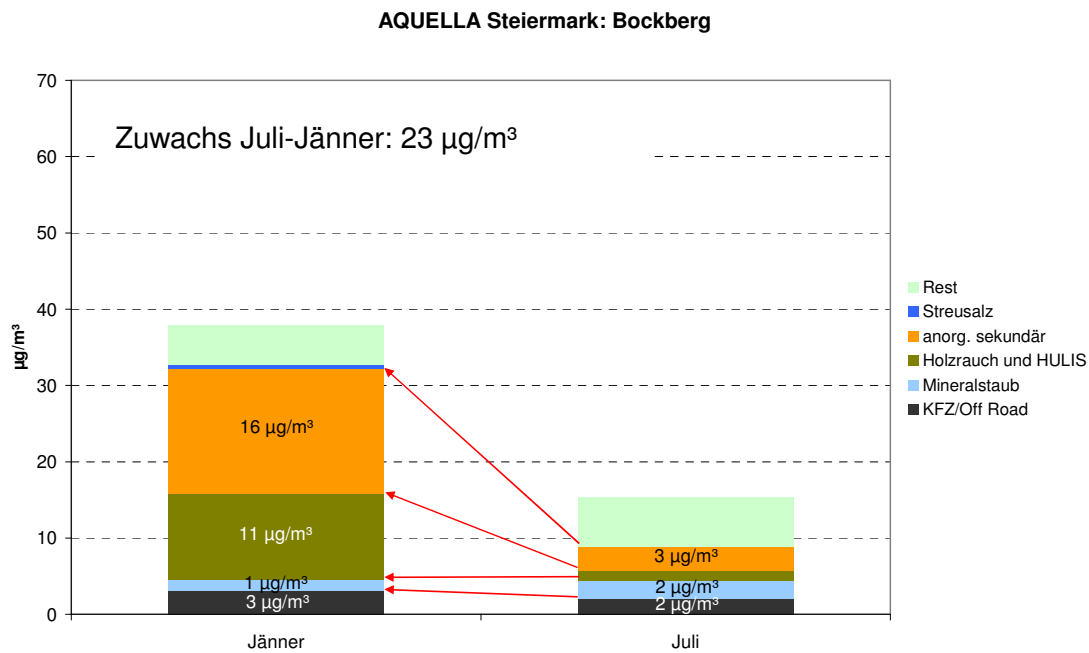
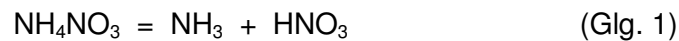


Abbildung 13: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Bockberg (der Sikilatanteil des Mineralstaubs im Juli wurde rekonstruiert).

Der Zuwachs von $44 \mu\text{g}/\text{m}^3$ von Juli bis Jänner an der Don Bosco bedeutet eine mehr als Verdoppelung des Monatsmittelwertes. Diese Verdoppelung wird zu etwa 52% durch großräumig wirksame „Winterquellen“ im Hintergrund verursacht. Der größte Zuwachs (von ca. 31% bezogen auf die $44 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wird durch Sulfate und Nitrate verursacht, gefolgt von Holzrauch (einschließlich organischer Sekundärkomponenten – HULIS) mit 22%. Die Zunahme des Quellenanteils von KFZ- und Off-Road- Abgas und Abrieb beträgt 8% und ist v.a. auf den geringeren Luftaustausch in der kalten Jahreszeit zurückzuführen. Der Zuwachs von Sulfaten und Nitraten hat zweierlei Ursachen: 1) Der Ferntransport v.a. von Sulfat und begleitenden Komponenten ist im Winter über einer kalten Schneedecke bei Hochdruckwetter begünstigt. 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 [i, iii].



Durch Sammelsysteme, bei welchen die Filter in wärmerer oder auch trockenerer Umgebung gespeichert werden, als den Bedingungen in der Außenluft, kann es zu Verlusten von Ammoniumnitrat durch Abdampfung kommen. Für eine exakte Messung der Nitratkonzentration in der Außenluft sind daher spezielle Sammel- und Analysensysteme anzuwenden. Bei der Messung von PM10 mit Filtersammlern wird jener Nitratgehalt bestimmt, der definitionsgemäß am Zustandekommen des PM10-Wertes mitgewirkt hat.

Beim Ferntransport von Sulfaten ist zu berücksichtigen, dass dieser nicht ausschließlich auf Sulfat beschränkt ist, sondern vielmehr damit zu rechnen ist, dass Nitrate, Ruß und organische Verbindungen simultan dem Transport unterliegen.

3.9 Quellenanalyse mit dem CMB-Modell

3.9.1 Modellparameter

Die Modellierung erfolgte mit dem Modell CMB 8.2 [iv]. Folgende Quellen-Profile wurden verwendet (in Klammer: Herkunft des Profils):

Diesel-Emissionen (USA [v, vi]), Bremsabrieb (USA [v, vii]), Reifenabrieb (USA [v, vii]), Erdgasfeuerungen (USA [v, viii]), Straßenstaub (TU Wien), Pflanzenabrieb (TU Wien), Holzrauch (TU Wien), Kochen (TU Wien), Nitrate und Sulfate (Einzelverbindungen), HULIS (Einzelverbindung), Streusalz (Einzelverbindung)

3.9.2 Ergebnisse der Saison-Monate

Die Konzentrationswerte der Hauptquellen sind mit den Ergebnissen der Makrotracer-Analyse gut vergleichbar mit Ausnahme der Quellengruppe Pflanzen-Debris (Abbildung 14). Die relativ hohen Anteile für Pflanzen-Debris mit dem CMB Modell sind durch relativ hohe Anteile von Mineralstaub im Pflanzen-Debris-Profil erklärbar. Da im Makrotracermodell nur der organische Anteil berücksichtigt wird, im CMB Modell auch mineralische Anteile, ergeben

sich die beobachteten Unterschiede. Für Reifenabrieb und Bremsabrieb wurden keine signifikanten Anteile prognostiziert.

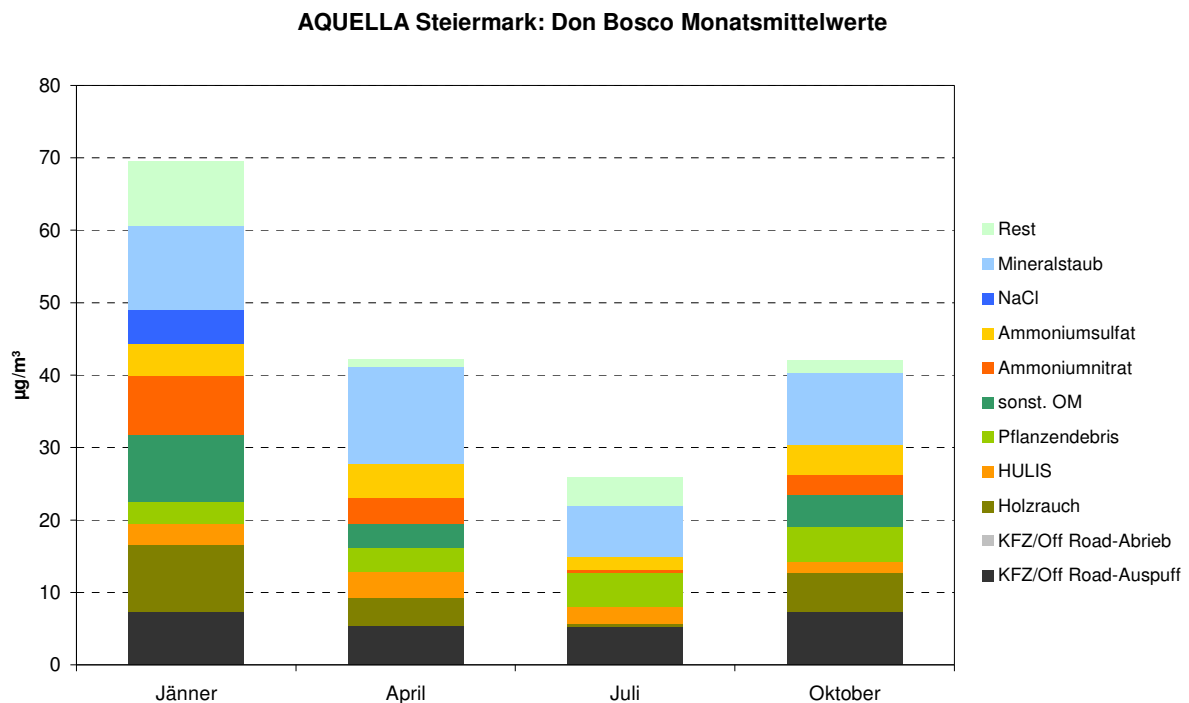


Abbildung 14: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte CMB. Der „sonst. OM“-Anteil umfasst noch andere fossile Quellen wie Öl und Kohle und Gas.

3.9.3 CMB Analyse von Überschreitungsperioden

Die CMB-Analyse der Überschreitungsperioden führt ähnlich wie bei den Makrotracer-Analysen zu unterschiedlichen Quellenanteilen bei den verschiedenen Perioden, bei im Allgemeinen guter Übereinstimmung bei den Hauptkomponenten.

3.9.4 CMB – Massenbilanzen

Das CMB-Modell liefert Kontrollparameter für die Qualität der Modellergebnisse. Beim Vergleich gemessen-berechnet zeigen sich sehr gute Übereinstimmungen für Makro-Komponenten, zum Teil geringere für Mikro-Komponenten. Da für Emissionsprofile österreichischer Quellen ein noch relativ geringer Datenbestand vorliegt, könnten die Abweichungen zwischen gemessenen und berechneten Daten auf die Datenlage zurückzuführen sein. Mit zunehmenden Quellendaten und Erfahrungen mit dem CMB Modelle wird eine Verbesserung der Tracerbilanzen möglich sein.

3.10 Datenvergleiche

3.10.1 Vergleich von CMB und Makrotracer-Ergebnissen

Der Vergleich der Modellergebnisse von Makrotracer und CMB zeigt gut vergleichbare Ergebnisse bei Hauptkomponenten.

Auch an einzelnen Überschreitungstagen bzw. einzelnen Überschreitungsperioden werden weitgehend vergleichbare Ergebnisse erzielt. Bei beiden Modellen bleibt meist ein Beitrag von organischem Material unerklärt. Die zum Vergleich von Makrotracer und CMB Ergebnissen ausgewählten Episoden stellen Fälle unterschiedlicher Quellenanteile dar. Das CMB Modell weist bisweilen die Eigenschaft auf, den Anteil von Pflanzendebris gegenüber den Makrotracer-Ergebnissen zu verstärken

3.10.2 Der spezielle Fall des Holzrauchs

Rauch bei der Verbrennung von Biomasse (Holz, Rinde, Zweige, Blätter, Stroh, sonstiges Biomaterial) enthält so genannte Anhydrozucker (Levoglucosan, Mannosan, Galactosan), die bei der Verbrennung von Cellulose und Hemicellulosen gebildet werden. Diese Komponenten werden mit weiteren Holzrauch-Verbindungen (Reten, Harzsäuren, Syringole) als Tracer für Holzrauch, bzw. allgemein Biomasse-Rauch herangezogen.

Für einen möglichen großräumigen Einfluss von Biomasse-Rauch auf PM10 in Europa gab es aber bis dato keine Daten, obwohl Emissionsinventuren auf derartiges hindeuten: Entsprechend einer globalen Emissionsinventur [ix] stammen 60% der primären pyrogenen Emissionen von OC in Europa aus Biomasseverbrennung.

Im Vergleich mit den AQUELLA-Werten liegen Daten aus den USA in einem völlig vergleichbaren Bereich. Es ist überraschend, dass die Identifizierung von Biomasse-Rauch als wichtige Quelle und als bedeutendster Beitrag zu organischen feinen Teilchen in Europa nicht früher nachgewiesen wurde.

3.11 Städtevergleich Wien – Graz – Salzburg

Ein Vergleich der mittleren Anteile von Quellen an Überschreitungstagen ist für drei verkehrsnahen Messstellen in Wien, Graz und Salzburg in Abbildung 15 dargestellt.

Die Quellenbeiträge an den drei Messorten sind unterschiedlich: An der Messstelle Salzburg Rudolfsplatz sind im Mittel über die Überschreitungsperioden KFZ- und Off-Road-Anteile sowie Holzrauch und HULIS ähnlich wie in Wien Rinnböckstraße, Sulfat und Nitrat geringer, Mineralstaub dahingegen höher. An der Messstelle Graz Don Bosco liegt sowohl die PM10-Konzentration höher, als auch KFZ- und Off-Road-Anteile sowie Holzrauch und HULIS und Streusalz gegenüber Wien Rinnböckstraße; Sulfat und Nitrat sind dahingegen deutlich geringer als an der Wiener Messstelle. Die sekundäre organische Komponente HULIS

scheint sich im Mittel relativ gleichmäßig über den Osten Österreichs zu verteilen. In den flacheren Bereichen nördlich des Alpenhauptkamms (Salzburg, Wien) treten die anorganischen Sekundärkomponenten Sulfate und Nitrate an den Überschreitungstagen deutlich in höheren Konzentrationen auf, als in Graz.

AQUELLA: Vergleich der verkehrsnahen Messstellen

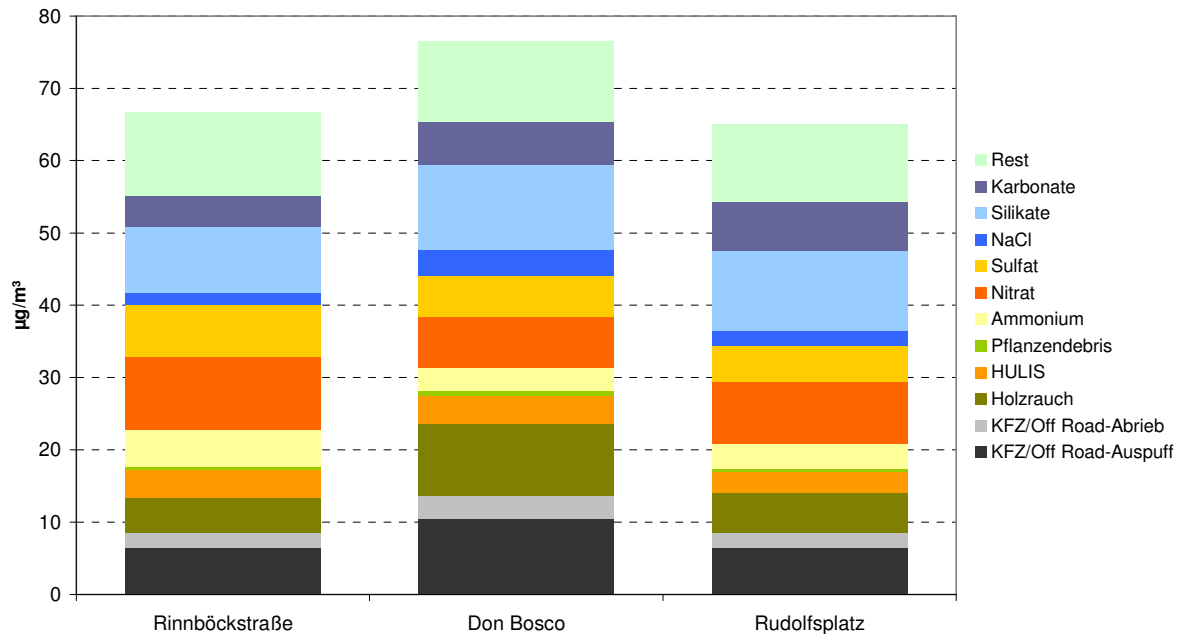


Abbildung 15: Vergleich der drei Städte – verkehrsnahen Messstellen, Wien Rinnböckstraße, Graz Don Bosco, Salzburg Rudolfsplatz. Überschreitungsepisoden 2004, Makrotracer-Quellendaten – Absolutwerte

3.12 Überschreitungen – Einfluss der Vorbelastung

3.12.1 Der Beitrag der Vorbelastung

Die Station Bockberg kann als regionale Hintergrundmessstellen für den Großraum von Graz angesehen werden. Es ist bemerkenswert, dass die Überschreitung von 50 µg/m³ an den regionalen Hintergrundmessstellen relativ selten auftrat, dass jedoch an den Überschreitungstagen (definiert durch Überschreitung an der Don Bosco) im Hintergrund zu häufig PM10-Werte von über 35 µg/m³ vorlagen, die dem Ballungsraum nur mehr wenig Spielraum für das „Urban Increment“ ließen.

Die Betrachtung der Zusammensetzung von Partikel PM10 an der Hintergrundmessstelle Bockberg zeigt, dass 67% von den Komponenten Sulfat und Nitrat, sowie von Holzrauch und verwandten organischen Substanzen gebildet wird. Lediglich 8% stammt von Diesel-Abgas. Die Holzrauch-Emissionen führen damit zu deutlich höheren Feinstaub-Werten, als die KFZ-Abgasemission (Tabelle 4). 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 erheblicher Anteil dieser Quellengruppe durch regionalen und überregionalen Transport zustande kommt.

Tabelle 4: Quellenanteile an der regionalen Hintergrundmessstelle Bockberg; Makrotracer-Ergebnisse; Mittel der Überschreitungsepisoden

	%	
Graz	Bockberg	Rank
Kfz+OffRoad- Abgas	8	4
Holzrauch+HULIS	25	2
Sonstige org. Anteile	3	
Anorganisch Sekundär	42	1
Auftausalz	1	
Mineralstaub	12	3

Holzrauch+HULIS: Holzrauch und Sekundäranteile von Holzrauch

Sonstige org. Anteile: Organische nicht zuordenbare Anteile (z.B. Küchendämpfe, Debris)

Anorganisch Sekundär: NH_4 , NO_3 , SO_4 , Feuchte / Hohe Ferntransportanteile

Mineralstaub: Karbonatischer und silikatischer Staub, überwiegend 2-10 μm

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.

3.12.2 Überlegungen zu einer zulässigen Zusatzbelastung in einem Ballungsgebiet

Wenn für ein Ballungsgebiet die Hintergrundbelastung bereits bis zu 45% der Konzentrationswerte ausmacht, die zur Überschreitung führen, bedeutet dies, dass sehr häufig an Überschreitungstagen Vorbelastungssituationen auftreten, an welchen in der Stadt nur mehr ein sehr geringes Inkrement möglich ist, um eine Überschreitung des TMW-Grenzwerts von 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu vermeiden, oder es liegt der Vorbelastungswert selbst bereits über dem Grenzwert. Es erhebt sich die Frage, ob bei einem geringen möglichen Inkrement eine Überschreitung der Stadt mit ihren Quellen anlastbar ist. Wenn der TMW-Grenzwert bei 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegt, sollte das zulässige Inkrement in einem Ballungsraum 50% dieses Wertes betragen. Dies bedeutet, dass der Hintergrundwert nicht höher als 25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen sollte, so dass ein Inkrement von 25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ möglich wäre.

Tatsächlich liegen die Vorbelastungswerte oft deutlich höher, sodass die Reduktion bei Überschreitungen nicht nur im Ballungsgebiet, sondern auch an der regionalen Hintergrundszenen (Land und angrenzende Länder, bzw. Staaten) anzusetzen ist.

3.12.3 Die Hauptkomponenten an den belasteten Messstellen an Überschreitungstagen

Für AQUELLA – Graz wurden die in Tabelle 5 angeführten Belastungs-Messstellen ausgewählt. Es handelt sich um verkehrsnah, an stark befahrenen Straßen gelegene Messstellen.

Tabelle 5: „Belastungsmessstellen“ und urbane Hintergrundmessstellen im Projekt AQUELLA – Graz

Land/Stadt	Messstelle	Anmerkung	PM10 JMW $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Graz	Don Bosco	stark befahrene Kreuzung	44
Graz	Graz-Süd	Wohngebiet/Straßennah	38
Steiermark	Bockberg	Südrand des Grazer Beckens	21

Die Hauptquellenanteile an der Belastungs-Messstelle Don Bosco sind in Tabelle 6 angeführt, ebenso der durch Differenzbildung erhaltene „Urban Impact“. Als „Urban Impact“ ist die an der Messstelle spezifisch einwirkende Zusatzbelastung zu verstehen. Es wird hier nicht untersucht, inwiefern diese Zusatzbelastung für straßenferne Bereiche zutrifft.

Zum leichteren Verständnis werden einige Quellengruppen zusammengefasst:

- Holzrauch+HULIS: In dieser Gruppe wird Holzrauch (abgeleiteter Wert über den Tracer Levoglucosan) und HULIS (Humic Like Substances, Analysenwert einer Substanzgruppe, die als sekundäres organisches Aerosol auftritt, und im Winter auf Holzfeuerungen zurückzuführen ist) zusammengefasst.
- Mineralaerosol und Auftausalz: Die Messungen von AQUELLA haben ergeben, dass ein überraschend hoher Anteil der Partikel PM10 in Städten an Überschreitungstagen aus Karbonaten und Silikaten gebildet wird. Zusätzlich werden an manchen Messstellen erstaunliche Konzentrationswerte von NaCl beobachtet, das als Auftausalz Verwendung findet. Auf welche Weise mineralische Partikel und NaCl in den PM10-Bereich „aerosolisiert“ werden, wird Aufgabe von weiteren Untersuchungen sein. Sicher ist, dass es sich nicht überwiegend um Teilchen des Straßenabriebs handelt. Der Verschmutzungszustand von Gehsteigen und Straßen ist über die kalte Jahreshälfte hindurch optisch jedermann feststellbar – an dieser Seite müsste auch angesetzt werden. Mineralaerosol und Auftausalz sind jedenfalls die in der kalten Jahreszeit besonders ausgeprägten urbanen Staubkomponenten. Der Verschmutzungsgrad des Straße-Fahrbahnrand-Gesteig-Systems und spezielle Witterungsfolgen scheinen ebenfalls von Bedeutung zu sein. Weitere Beiträge zu Mineralaerosol stammen auch von der Verwitterung von Fassaden und vom mineralischen Anteil im Rauch der Kohleverbrennung.

Da im Messwert für die jeweilige Rezeptormessstelle im Mittel an den Überschreitungstagen 46-50 % an Komponenten des Hintergrundaerosols enthalten sind, ist für die Erstellung von Maßnahmen in einer Stadt der „Urban Impact“ die bedeutsame Größe.

Eines der überraschenden Ergebnisse des AQUELLA-Projektes war nun die Feststellung, dass in Graz (Don Bosco) der „Urban Impact“ überwiegend (zu 41%) durch die Gruppe Mineralaerosol und Auftausalz gebildet wird, in zweiter Linie durch Diesel-Abgas mit einem Anteil von 19%, der etwa zu 1:3 Teilen auf Off-Road und Kfz, diese etwa zu gleichen Teilen auf Nutzfahrzeuge und PKW aufzuteilen ist. An dritter Stelle liegt mit 13% die Quellengruppe „Holzrauch und HULIS“ und „Anorganisches Sekundäraerosol“ mit 3% an vierter Stelle (Tabelle 6).

Tabelle 6: Hauptquellenanteile an der AQUELLA-Messstelle Don Bosco an Überschreitungstagen (Graz, 2004). Urban Impact: Durch Differenzbildung zwischen den Daten der verkehrsnahen und der Hintergrundmessstelle erhalten.

	%	%
Graz	Don Bosco	Urban Impact
KFZ+OffRoad- Abgas	14	19
Holzrauch+HULIS	19	13
Anorganisch Sekundär	21	3
Auftausalz	5	8
Mineralstaub	23	33
PM10	76 µg/m³	42 µg/m³

Holzrauch+HULIS: Holzrauch und Sekundäranteile von Holzrauch

Sonstige org. Anteile: Organische nicht zuordenbare Anteile (z.B. Küchendämpfe, Debris)

Anorganisch Sekundär: NH₄, NO₃, SO₄, Feuchte / Hohe Ferntransportanteile

Mineralstaub: Karbonatischer und silikatischer Staub, überwiegend 2-10 µm, verstärkt im Februar

Die bedeutsamsten Anteile im „Urban Impact“ stammen aus den Quellengruppen „Mineralaerosol und Auftausalz“ (Tabelle 6). Dies kann im Hinblick auf Reduktionsmaßnahmen vorteilhaft sein, da dem Mineralstaub möglicher Weise durch klassische Staubbekämpfungsmaßnahmen beizukommen ist, dem Problem der Feststofffeuerung möglicher Weise durch Förderung von emissionsarmen Anlagen und Aufklärung.

Die Reduktion der Partikelemissionen bei Kraftfahrzeugen ist seitens der EU in intensiver Behandlung, ebenso die Reduktion der NO_x-Emission. Kurzfristig wäre zu erwägen, auch dem Benzin-Motor wieder Beachtung zu schenken.

4 PM10 und Meteorologische Einflüsse

4.1 Analyse ausgewählter Überschreitungsepisoden im Raum Graz

Die Überschreitungstage liegen in der Regel eingebettet in so genannten „Episoden“, in denen ungünstige meteorologische Bedingungen für eine PM10 Anreicherung sorgen. Oft herrscht winterliches, kaltes Hochdruckwetter mit entweder generell sehr wenig Wind aus verschiedenen Richtungen und Inversion oder mit leichtem Wind aus südlichen Richtungen im Grazer Raum.

Die Gründe für eine PM10 Überschreitungsepisode sollen aus den Witterungsbedingungen bzw. aus den meteorologischen Größen erkannt werden. Mögliche PM10 Hauptquellengruppen (Art / Ort) werden einerseits durch die chemische Analyse, andererseits durch die Untersuchung der Windverhältnisse (z.B. Rückwärtstrajektorien) bestimmt.

Unterschieden werden 3 verschiedene Fälle von Episoden:

- Überschreitung des EU-Grenzwertes sowohl der Stadtmessstellen als auch der Hintergrundmessstellen
- Überschreitung der Stadtmessstellen, im Hintergrund deutlich geringere PM10 Konzentrationen
- Mischformen

4.2 Zusammenfassung der meteorologischen Analyse:

Die Grundvoraussetzungen für eine PM10 Überschreitungsepisode werden vor allem von der aktuellen Wetterlage bestimmt, wobei sich besonders Inversions- bzw. gradientschwache Lagen negativ auf die Feinstaubbelastung auswirken. Die Analyse ausgewählter Episoden zeigt hohe Werte im Raum Graz bei folgenden Witterungsverhältnissen:

1. Hochdruckeinfluss / sehr schwacher Wind / Inversion (auch bodennah) / kein Niederschlag:

Sehr windschwache Episoden mit oft sonnigen und trockenen Witterungsverhältnissen mit starken, bodennahen Inversionen führen häufig zu einer regionalen und urbanen Feinstaubbelastung. Bei einer entsprechenden Emissionsstärke (z.B. durch Mineralstaub im Spätwinter) sind an verkehrsnahen Messstellen besonders hohe Überschreitungen möglich. Auch Substanzen wie Holzrauch und Kfz-Abgase aus Quellen in der Stadt Graz werden angereichert.

Diese bevorzugten Witterungsverhältnisse stellen sich durch die Beckenlage der Stadt Graz und die Abschirmung von atlantischen Luftmassen bei Westwetterlage durch die Alpen häufig ein.

2. Leichter Wind oft aus südlicher Richtung / auch Hochdruckeinfluss mit Hochnebel und abgehobener Inversion / teilweise leichte Niederschläge möglich:

Besonders bei Grenzwertüberschreitungen mit hohen Sekundäranteilen (Ammoniumsulfat, -nitrat) sind im Raum Graz bodennahe Windrichtungen aus meist Südost, oder auch Süd zu beobachten. Auch der Ferntransport von Holzrauch kann durch erhöhte Werte im Hintergrund beobachtet werden. Durch leichten bis mäßigen Wind werden die Emissionen aus dem Stadtgebiet verdünnt und abtransportiert. Quellgebiete für PM10 und vor allem für Vorläufersubstanzen werden entsprechend den Rückwärtstrajektorien in Gebieten am Balkan, in Oberitalien, in Ungarn bis hin zu Tschechien, der Slowakei, Rumänien und der Ukraine gefunden.

Nicht selten treten auch Mischformen der oben genannten Überschreitungsarten bei unterschiedlichen Witterungsverhältnissen auf. Da der Raum Graz in der Regel besonders schlecht durchlüftet ist und windschwache Lagen sehr häufig auftreten, ist die Anreicherung von primären Staubteilchen im Stadtgebiet relativ hoch.

Geringe Feinstaubwerte im Winterhalbjahr wurden vor allem an Tagen mit Advektion ozeanischer Luftmassen (Atlantik oder Mittelmeer) und entsprechenden Witterungsverhältnissen gemessen. Hebungsvorgänge an Frontensystemen, Niederschläge und auffrischende Winde lassen keine Anreicherung von Primäraerosol zu. Luftmassen aus Westeuropa enthalten geringere Konzentrationen an anorganischen Sekundärkomponenten, insbesondere von Ammoniumsulfat.

5 Analyse von Stadt- und Importanteilen

Bei der Ermittlung mittlerer bzw. typischer Stadt- und Importanteile müssen zusätzlich zu den auf Messungen basierenden Ergebnissen noch Annahmen getroffen werden. Die Annahmen betreffen einerseits die Aufteilung der mineralischen Feinstaubkomponenten auf Quellen, Annahmen über den nicht zugeteilten Rest, Annahmen über die Sekundär-Komponenten und andererseits, die tatsächliche Vorbelastung, die auf die Messdaten der Hintergrundmessstelle (Bockberg) einwirkt.

Für die Aufteilung der mineralischen Komponenten wurde die Emissionsinventur von PM10 in Österreich (Bezugsjahr 2004) [x] als Informationsquelle herangezogen. Basierend auf diesen Daten und den vorliegenden Messdaten wurde abgeleitet, dass der straßennah emittierte Anteil von indirekten Auswirkungen des KFZ-Verkehrs einschließlich dem Winterdienst und damit verbundenen Emissionen an den Mineralstaubemissionen insgesamt zu 2/3 beteiligt ist, der Industriell- gewerbliche Anteil mit 1/3. Der ermittelte Anteil für KFZ- und Off-Road Abgas basiert auf der Messung des Rußgehaltes der Atmosphäre, und der Ermittlung der Motorenemission nach Abzug des Rußanteils aufgrund des Holzrauches. Der Split KFZ-Abgas und Off-Road-Abgas wurde nach der Aufteilung von Pucher [xi] vorgenommen; demnach ist das Verhältnis für Abgas von KFZ und Off-Road-Maschinen bei 3:1.

Der Anteil von KFZ-Emissionen beim anorganisch sekundären Feinstaub kann durch das Verhältnis der NO_x-Emissionen von KFZ- und anderen Emissionen ermittelt werden. Aus den Daten der gemessenen PM10-Immissionswerte an Überschreitungstagen an den AQUELLA Messstellen im Großraum Graz wurde durch Mittelung der Werte der Stationen Don Bosco und Graz Süd ein „Stadt-Wert“ abgeleitet, mit welchem die „Vorbelastung“ für die Stadt Graz ermittelt werden kann. Aus den resultierenden Stadt- und Vorbelastungsdaten lassen sich die relativen Anteile von Quellengruppen an der PM10 Immissionsbelastung ableiten (Tabelle 7). Es ergibt sich ein Importanteil (von außerhalb des Raumes Graz liegenden Quellen) von 48%, ein Eigenanteil von 52%. Da der Stadtanteil aus gemittelten Messdaten von Graz Don Bosco und Graz Süd, somit zwei als verkehrsnah bewerteten Stationen ermittelt wurde, gilt die Analyse für verkehrsnahen Situationen in Graz. Der Stadtanteil von KFZ-Abgas an den beiden verkehrsnahen Messstellen liegt im Mittel bei 8%. Der höchste Quellenanteil als Stadtanteil wird durch „Mineralstaub“ verursacht. Die Quellen der „Mineralstaubanteile“ sind nach Umweltbundesamt [x] Landwirtschaft, Industrie und Gewerbe, sowie der KFZ-Verkehr. Da im Winter der landwirtschaftliche Anteil gering sein dürfte, wird der Mineralstaubanteil dem KFZ-Verkehr und dem Sektor Industrie und Gewerbe zugeordnet. Für den Raum Graz sind vom Sektor Industrie und Gewerbe vor allem Emissionen aufgrund von Bautätigkeit, Abbruchtätigkeit und allgemeinem Güterumschlag von potentiell staubendem Material anzunehmen.

Tabelle 7: Abgeleitete Anteile für Import (über die Stadtgrenze) und Stadtanteile für PM10 an Überschreitungstagen in % der Immissionsbelastung in Graz (verkehrsnahe Einwirkung)

Stadt Graz PM10	% Importanteil	% Stadtanteil	% Summe PM10 in Graz
KFZ Abgas	3	7	9
KFZ Bremsen	1	3	4
Off-Road Abgas	1	2	3
Holzrauch+HULIS	12	8	20
Pflanzen-Debris	0	1	1
Ammonium, Nitrat, Sulfat	20	1	21
Mineralstaub „KFZ“	2	6	8
Mineralstaub Winterdienst	2	5	7
Mineralstaub „I&G, Off Road“	2	5	7
Streusalz	0	4	4
Rest	5	10	16
Summe	48	52	100

PM10 Graz Quellenzuordnung

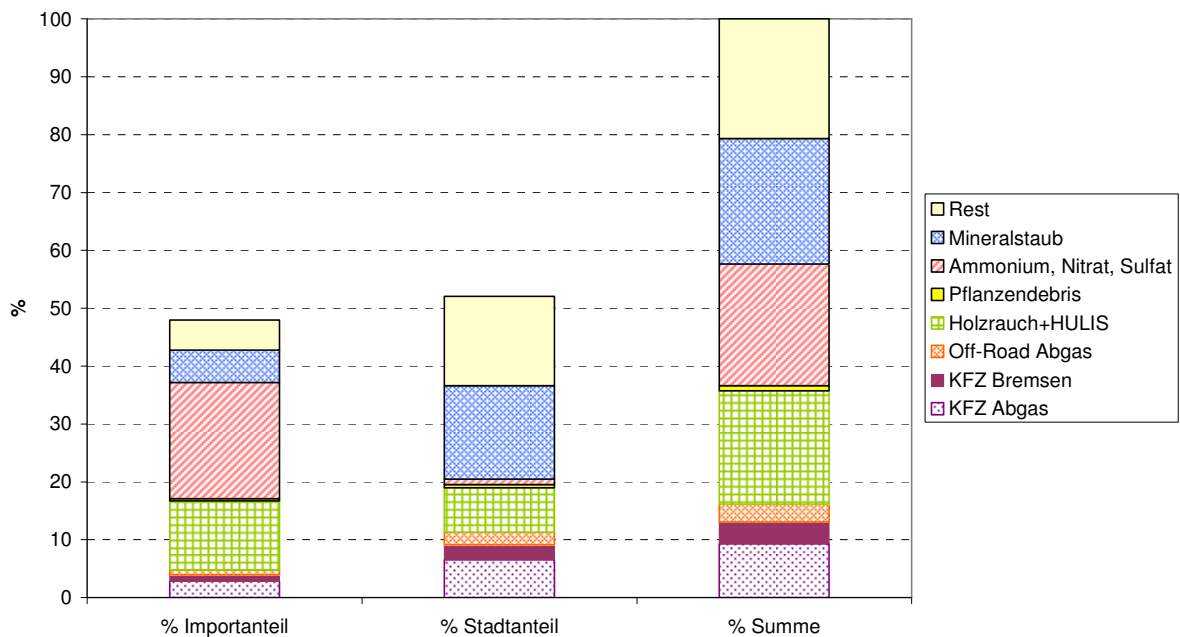


Abbildung 16: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).

Die Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile als Import über die Stadtgrenze ist in Abbildung 16 dargestellt. Berücksichtigt man die „indirekten“ Wirkungen des KFZ-Verkehrs in den Bereichen „Mineralstaub“ und „Ammonium, Nitrat, Sulfat“, so werden für „Mineralstaub“ rund 34% dem KFZ-Verkehr und 33% dem Winterdienst als indirekte Auswirkung zugeordnet (die weiteren 33% dem Sektor Industrie und Gewerbe); aus dem Bereich „Ammonium, Nitrat, Sulfat“ 55% des Nitratanteils.

Damit ergeben sich die in Abbildung 17 dargestellten direkten und indirekten Anteile des KFZ-Verkehrs, angegeben als Prozent des an verkehrsnahen Messstellen während Überschreitungstagen auftretenden PM10 Feinstaubs, einschließlich einer Aufschlüsselung in KFZ-Abrieb und Wiederaufwirbelung und in Winterdienst-Anteile.

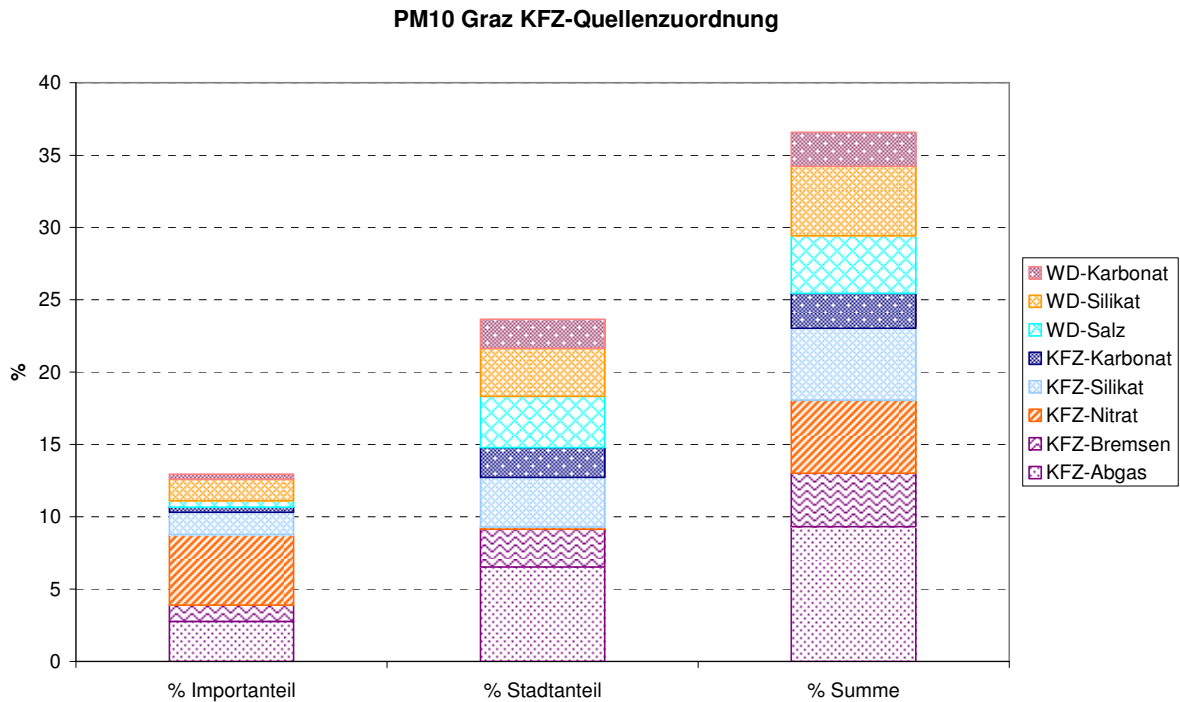


Abbildung 17: Aufteilung der durch direkte und indirekte Auswirkung des KFZ-Verkehrs entstehenden mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze). WD: Winterdienstanteile; KFZ: Anteile durch KFZ-Verkehr ohne Winterdienst

Es ist aus der Abbildung 17 deutlich ersichtlich, dass das in der Stadt auftretende Nitrat eine überwiegend aus dem Import stammende Komponente darstellt, während mineralische Anteile (Silikat, Karbonat, Salz) überwiegend in der Stadt produziert werden.

Innerhalb der Größenfraktion des Feinstaubs PM10 werden häufig zwei Größenfraktionen unterschieden: a) Teilchen unter 2,5 µm Durchmesser, hier als „feine“ Fraktion bezeichnet; und Teilchen im Bereich 2,5 – 10 µm, hier als „grobe“ Teilchenfraktion abgegeben. Dabei wird die feine Fraktion überwiegend importiert, während die grobe Fraktion überwiegend aus der Stadtproduktion stammt.

Die Unsicherheitsbereiche der Makrotracernanalyse für die Bewertung der Stadt- und Importanteile wurde ebenso untersucht. Es ergeben sich damit tendenziell keine veränderten Ergebnisse. Jedenfalls zeigt die Einführung von Unsicherheitsbereichen auf, dass noch zahlreiche Details der Staubemission in Städten und im Straßenbereich eingehender Untersuchungen bedürfen, zumal die direkte Emission von Mineralstaub auf einer reinen Straße durch gleichmäßig rollenden Verkehr sehr gering ist und jedenfalls unter 20% der gesamten PM10-Emission des KFZ-Kollektivs liegt.

6 Zusammenfassung

Die Beprobung für das Projekt AQUELLA – Graz erfolgte von Jänner bis Dezember 2004. 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. 94% erzielt werden konnte. Die Ergebnisse des CMB-Modells bestätigten die Makrotracer-Daten. Zusätzlich wurden Anteile von Küchendämpfen und fossilen Feuerungen ermittelt.

Die bedeutendsten Quellen an Überschreitungstagen an den Messstellen Graz Don Bosco und Graz Süd sind:

1. Winterlicher Straßenstaub mit Splitt- und Streusalzanteilen
2. Ammoniumsulfat- und Ammoniumnitrat-aerosol (mit Ferntransportanteilen)
3. Holzrauch / Biomasse Rauch
4. KFZ-Emissionen incl. Reifen-, Bremsabrieb, Off-Road u.a. fossile Quellen

Die vergleichenden Untersuchungen an drei Messstellen und über vier Jahreszeiten ergaben:

- Die Überschreitungen im Grazer Raum finden überwiegend während des Winterhalbjahres statt. Die Untersuchung des Anstiegs von Juli auf Jänner zeigt, dass dieser zu ca. 50% im Hintergrund stattfindet und vor allem durch winterspezifische Quellen wie Holzrauch und Ammoniumnitrat verursacht wird. Es wurde in AQUELLA daher besonderes Augenmerk auf das Auftreten der speziellen winterspezifischen Quellen gelegt.
- An etwa der Hälfte der Überschreitungstage ist der Hintergrund bereits hoch belastet (z.B. Bockberg über 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$): Die Zusatzbelastung, die zur Überschreitung führt, beträgt in Graz im Mittel 38 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; an etwa der Hälfte der Überschreitungstage werden relativ hohe Zusatzbelastungen in der Stadt, dann meist durch Mineralstaub und Salz verursacht.
- Bereits 50 % der PM10 Belastung an verkehrsnahen AQUELLA-Messstellen (Graz Don Bosco, Graz Süd) stammen aus der Hintergrundbelastung. Dies bedeutet dass der Reduktion der Hintergrundbelastung gleichrangige Bedeutung zukommt.

- Die Hintergrundbelastung wird an den AQUELLA-Messstellen überwiegend durch anorganisches Sekundäraerosol verursacht, in zweiter Linie durch Holzrauch und verwandte Komponenten.
- Die Zusatzbelastung an den beiden verkehrsnahen Stadtmessstellen von AQUELLA („Urban Impact“) wird weitgehend durch Mineralaerosol und Auftausalz dominiert (ca. 38 %).

Die Differentialanalyse zwischen Stadtmessstelle (Graz Don Bosco) und Hintergrundmessstelle (Bockberg) ergibt, dass der Stadteinfluss beim Sulfat- und Nitrataerosol vergleichsweise gering ist (2-3%), so dass für Reduktionsmaßnahmen in der Stadt v.a. folgende Bereiche verfolgt werden sollten:

- Maßnahmen beim Winterdienst und sonstiger Staubbekämpfung insbesondere in der kühlen Jahreszeit;
- Maßnahmen bei Einzelfeuerungen von Biomasse (v.a. mit Scheitfeuerung, bzw. Feuerung mit teilweiser Rauchentwicklung);
- Unterstützung der EU Vorhaben bei der Reduktion von PM und NO_x Emissionen bei Neufahrzeugen.
- Unterstützung der EU Vorhaben bei der Reduktion von SO₂ und NO_x Emissionen in neuen Beitrittsländern

Die relativ hohe Mineralstaubbelastung deutet darauf hin, dass generell dem Bereich der klassischen Staubbekämpfung erhöhte Aufmerksamkeit geschenkt werden sollte, wie

- Klassische Staubbekämpfung in Straßen-, Straßenrand-, Parkplatz-, Gehsteig- und Baustellenbereichen. Überall, wo Fremdmaterial von Erde, Kies, Sand bis Tierexkremate und Aschenbecherrückstände, um einige aufzuzählen, auf die Fahrbahn oder in Fahrbereiche gelangt und zermahlen werden kann, ist mit erhöhten Staubanfall zu rechnen. Die tatsächliche Wirksamkeit derartiger Maßnahmen wäre auch zu prüfen und sollte in zukünftige Projektpläne einfließen.

Die hohen Anteile an Holzrauch sind überraschend, da bisher in Europa keine einschlägigen Studien bekannt waren, die auf eine großräumige Belastung im Hintergrund hinwiesen. Mit den Ergebnissen des CARBOSOL Projektes wurde diese Lücke gefüllt. Diese Daten unterstützen die Vorstellung, dass Holzrauch kein regionales Problem, sondern ein Gesamt-europäisches Problem darstellt, auf das man in Europa nicht eingerichtet war. In den USA kommen derzeit wöchentlich neue wissenschaftliche Reports über Biomasse-Rauch durch offene Kamine, Öfen, Grillen, Verbrennen von Gartenabfällen, landwirtschaftliche Feuer und Waldbrände heraus. Das AQUELLA-Projekt ist auf diesem Gebiet ein Pionier-Projekt für Europa. Wie man die Holzrauch-Emissionen reduzieren kann, sollte interdisziplinär mit Fachleuten des Immissionsschutzes und der Holzwirtschaft erörtert und untersucht werden.

Als Beispiel für die Zusammensetzung des Feinstaubes in der Stadt sind Beiträge des Einflusses der städtischen Quellen (% Stadtanteil) an Überschreitungstagen – als Mittelwert

der Messstellen Don Bosco und Graz Süd (% Summe PM10 in Graz) – in der Abbildung 18 den Importanteilen gegenübergestellt.

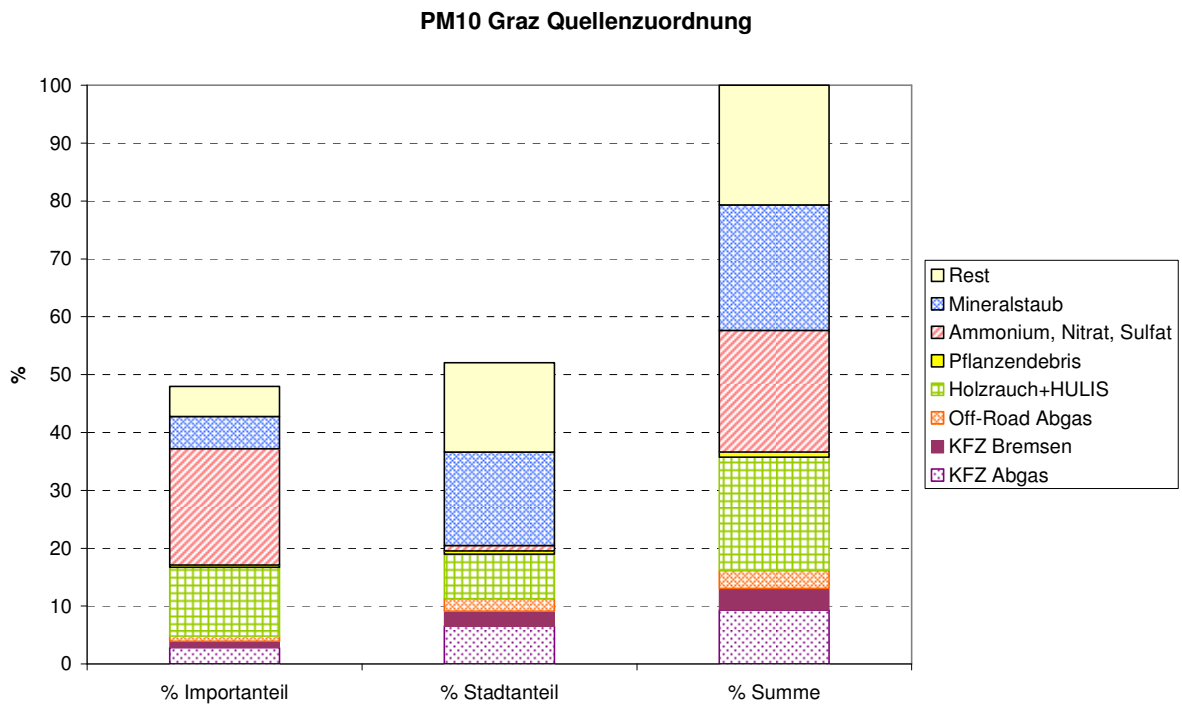


Abbildung 18: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).

7 Verzeichnis der Abkürzungen:

Tabelle 8: Abkürzungen der Substanznamen

Abkürzung PAH	
7-on	Benzo(de)anthracen-7-on
RET	Reten
BeP	Benzo(e)pyren
BP	Benzo(ghi)perylen
COR	Coronen
IFL	Indeno(cd)fluoranthen
IPY	Indeno(cd)pyren

Monocarbonsäuren	
MCA C6	Hexansäure / Capronsäure
MCA C7	Heptansäure / Önanthsäure
MCA C8	Octansäure / Caprylsäure
MCA C9	Nonansäure / Pelargonsäure
MCA C10	Decansäure / Caprinsäure
MCA C11	Undecansäure
MCA C12	Dodecansäure / Laurinsäure
MCA C13	Tridecansäure
MCA C14	Tetradecansäure / Myristinsäure
MCA C15	Pentadecansäure
MCA C16-1	cis-9-Hexadecensäure / Palmitoleinsäure
MCA C16	Hexadecansäure / Palmitinsäure
MCA C17	Heptadecansäure / Margarinsäure
MCA C18:1	cis-9-Octadecensäure / Ölsäure
MCA C18:2	(cis,cis)-9,12-Octadiensäure / Linolsäure
MCA C18	Octadecansäure / Stearinsäure
MCA C19	Nonadecansäure
MCA C20	Icosansäure / Arachinsäure
MCA C21	Henicosansäure
MCA C22	Docosansäure / Behensäure
MCA C23	Tricosansäure
MCA C24	Tetracosansäure / Lignocerinsäure
MCA C25	Pentacosansäure
MCA C26	Hexacosansäure / Cerotinsäure

Sonstige	
DCA C5	Pentandisäure / Glutarsäure
DCA C6	Hexandisäure / Adipinsäure
DCA C8	Octandisäure / Suberinsäure
DCA C9	Nonandisäure / Azelainsäure
DCA C10	Decandisäure / Sebacinsäure
Abietinsäure	Abietinsäure / Sylvinsäure
Nonanal	Nonanal / Pelargonaldehyd
TC	Total Carbon, Gesamtkohlenstoff
EC	Elemental Carbon, Rußkohlenstoff
OC	Organic Carbon, Organischer Kohlenstoff
OM	Organic Material, aus OC*f abgeleitet, je nach OC-Zusammensetzung: f = 1,2-2
CC	Carbonate Carbon, Karbonatkohlenstoff

8 Literatur

-
- i Pucher E., Sekanina A., Rüdiger H., 2006. Unsere Luft 1980-2015. 6. Auflage. ÖAMTC-Akademie Wien.
- ii Stelson A.W., Seinfeld J.H., 1982, Relative humidity and temperature dependence of the ammonium nitrate dissociation constant. *Atmospheric Environment* 16, 983-992.
- iii Piringer M., Ober E., Puxbaum H., Kromp-Kolb H., 1997 Occurrence of Nitric Acid and Related Compounds in the Northern Vienna Basin During Summertime Anticyclonic Conditions. *Atmospheric Environment* 31, 1049-1057.
- iv Watson, J.G., N.F. Robinson, C.W. Lewis, C.T. Coulter, J.C. Chow, E.M. Fujita, D.H. Lowenthal, T.L. Conner, R.C. Henry and R.D. Willis, 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/>.
- v 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.
- vi 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.
- vii Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 1993. Sources of fine organic aerosol: 3. Road dust, tire debris and organometallic brake lining dust: roads as sources and sinks. *Environ. Sci. Technol.* 27, 1892-1904.
- viii 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.
- ix Bond T.C., Streets D.G., Yarber K.F., Nelson S.M., Woo J.-H., Klimont Z., 2004. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion. *Journal of Geophysical Research* 109, D14203, doi: 10.1029/2003JD003697.
- x Anderl M. et al., 2006. Emissionstrends 1990-2004. Umweltbundesamt Report REP-0037
- xi Pucher E., Sekanina A., Rüdiger H., 2006. Unsere Luft 1980-2015. 6. Auflage. ÖAMTC-Akademie Wien.