



Endbericht für das Projekt

# **"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 163S

Auftraggeber:

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

Bericht-Nr. Lu-08/07

© 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

<b>1</b>	<b>PROJEKTDATEN</b> .....	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>EINFÜHRUNG UND AUFGABENSTELLUNG</b> .....	<b>7</b>
2.1	Einführung zur Feinstaubproblematik .....	7
2.2	Anwendung von Quellenmodellen .....	8
2.3	Aufgabenstellung des gegenständlichen Projektes.....	9
2.4	CMB in AQUELLA.....	10
<b>3</b>	<b>QUELLENANALYSE MIT TRACERN</b> .....	<b>16</b>
3.1	PM10 Messstellen im Raum Graz .....	16
3.2	Probenahme und Analytik .....	18
3.2.1	Filterbehandlung .....	18
3.2.2	Poolen der Filter.....	19
3.2.3	Analysenplan.....	20
3.2.4	Analytische Methoden.....	28
3.2.5	Nachweisgrenzen.....	33
3.3	Qualitätssicherung .....	34
3.4	Herstellung von PM10 – Proben aus gekehrten Staubproben.....	36
3.5	Entwicklung eines Macrotracer-Modells.....	37
3.6	Zeitverläufe von PM10.....	40
3.7	Analysenergebnisse / Quellen .....	43
3.8	Analysenergebnisse Raum Graz .....	45
3.8.1	Monatsmittelwerte an Überschreitungstagen.....	45
3.8.2	Metalle.....	46
3.8.3	Organische Tracer .....	48
3.8.4	Zeitverläufe.....	55
3.9	Quellenanalyse mit dem Makrotracer-Model.....	61
3.9.1	Mittelwert der Überschreitungstage .....	61
3.9.2	Quellenanteile der Überschreitungsperioden.....	64
3.9.3	Quellenanteile Saison-Mittelwerte .....	69
3.9.4	Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung.....	72
3.9.5	Osterfeuer im Großraum Graz .....	74
3.9.6	„Sommer – Winter“ Vergleich.....	76
3.10	Quellenanalyse mit dem CMB-Modell .....	78
3.10.1	Modellparameter .....	78
3.10.2	Ergebnisse der Saison-Monate .....	79
3.10.3	CMB Analyse von Überschreitungsperioden.....	82
3.10.4	CMB – Massenbilanzen .....	85
3.11	. Datenvergleiche.....	87
3.11.1	Vergleich von CMB und Makrotracer-Ergebnissen .....	87
	Der spezielle Fall des Holzrauchs.....	95
3.11.2	Die Aufteilung des Verkehrs-Beitrags.....	96

3.11.3	Die Mineralstaubanteile .....	97
<b>3.12</b>	<b>Städtevergleich Graz – Wien – Salzburg.....</b>	<b>99</b>
<b>3.13</b>	<b>. Überschreitungen – Einfluss der Vorbelastung.....</b>	<b>101</b>
3.13.1	Der Beitrag der Vorbelastung .....	101
3.13.2	Überlegungen zu einer zulässigen Zusatzbelastung in einem Ballungsgebiet .....	103
3.13.3	Die Hauptkomponenten an den belasteten Messstellen an Überschreitungstagen.....	104
<b>3.14</b>	<b>Schlussfolgerungen aus der Quellen-Modellierung .....</b>	<b>106</b>
<b>4</b>	<b>PM10 UND METEOROLOGISCHE EINFLÜSSE .....</b>	<b>108</b>
<b>4.1</b>	<b>Vorbetrachtungen.....</b>	<b>108</b>
<b>4.2</b>	<b>Die Witterung in Österreich im Jahr 2004 .....</b>	<b>110</b>
<b>4.3</b>	<b>Topographische Einflüsse .....</b>	<b>111</b>
<b>4.4</b>	<b>Inversionen in Graz .....</b>	<b>112</b>
<b>4.5</b>	<b>PM10 – Windrosen.....</b>	<b>113</b>
	<b>Analyse ausgewählter Überschreitungsepisoden im Raum Graz.....</b>	<b>116</b>
4.5.1	Analyse der Episode 1 (6.-14.01.2004) .....	116
4.5.2	Analyse der Episode 2 (1.-7.2.2004) .....	128
	Rückwärtstrajektorien:.....	131
	Wetterlage: .....	134
4.5.3	Analyse der Episode 3 (10.-11.4.2004; Osterfeuer) .....	135
	Wetterlage .....	137
4.5.4	Analyse der Episode 4 (16.-19.11.2004, 22.-23.11.2004 und 25.-30.11.2004).....	138
	Rückwärtstrajektorien:.....	142
<b>4.6</b>	<b>Monate geringer PM10 Belastung.....</b>	<b>145</b>
<b>4.7</b>	<b>Zusammenfassung der meteorologischen Analyse .....</b>	<b>146</b>
<b>5</b>	<b>ANALYSE VON STADT- UND IMPORTANTEILEN.....</b>	<b>147</b>
<b>6</b>	<b>ZUSAMMENFASSUNG .....</b>	<b>150</b>
<b>7</b>	<b>VERZEICHNISSE.....</b>	<b>153</b>
<b>7.1</b>	<b>Verzeichnis der Abbildungen .....</b>	<b>153</b>
<b>7.2</b>	<b>Verzeichnis der Tabellen .....</b>	<b>157</b>
<b>8</b>	<b>LITERATUR .....</b>	<b>160</b>

# 1 Projektdaten

## **Auftragnehmer:**

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

## **Titel des Projektes:**

AQUELLA Steiermark – Bestimmung von Immissionsbeiträgen in Feinstaubproben

## **Laufzeit:**

18. August 2003 bis 28. Februar 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

### 2.1 Einführung zur Feinstaubproblematik

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 aufzeigen<sup>[1]</sup>, wurden in den USA bereits vor längerer Zeit Grenzwerte für die feineren Staubfraktionen unter 10 µm („PM10“) und unter 2,5 µm („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. Die Bezeichnung „Partikel“ für Schwebstaub wurde in Anlehnung an US-Bezeichnungen für Staubkollektive bestimmter Obergrenzen der bei der Sammlung zu erfassenden Größenfraktionen eingeführt. Als „PM10“ in der erwähnten EU-Richtlinie wird „Particulate Matter mit einem mittleren aerodynamischen Abscheidedurchmesser von 10 µm“ gemeint, somit der amerikanische Begriff der Schwebstaubsammlung mit einer definierten Teilchenobergrenze übernommen. Die Referenzmethode hierzu ist in der CEN-Norm EN 12341 beschrieben. Als Grenzwert zum Schutz des Menschen ist im IG-L ein JMW von 40 µg/m<sup>3</sup> und ein TMW von 50 µg/m<sup>3</sup>, dieser jedoch verknüpft mit Überschreitungskriterien, angegeben. Ein Grenzwert für PM2,5 ist seitens der EU im Entwurfstadium.

Der PM10 Standard mit einem Grenzwert von 50 µg/m<sup>3</sup> 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. Dieser Grenzwert ist in vielen Ballungsräumen Europas mit großer Wahrscheinlichkeit überschritten. In Graz wurden mehrfach Überschreitungen des PM10 Grenzwertkriteriums beobachtet. 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 zweiten, da diese chemischen Verbindungen jeweils aus verschiedenen Quellen stammen. Zum dritten wird ein erheblicher Anteil der Partikel in der Luft sekundär gebildet und scheint in den Emissionskatastern nicht auf. Zum vierten 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 wird 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.

## 2.2 Anwendung von Quellenmodellen

Die Frage der Herkunft des atmosphärischen Staubes in Ballungszentren aber auch an Hintergrundmessstellen wurde in den USA schon in der Dekade 1970 – 1980 heftig diskutiert. Aus dieser Zeit stammen auch die ersten Aerosol-Quellenmodelle basierend auf chemischen Immissionsmessdaten. So begründete z.B. Friedlander 1973 die Methode der „Chemischen Element-Bilanz“ <sup>[ii]</sup>. Da man von der Immissionsmessung an der Einwirkstelle (Rezeptor) auf die Herkunft der Partikel schloss, wurden die Modelle auch als Rezeptormodelle bezeichnet (Gordon 1980 <sup>[iii]</sup>, Cooper und Watson 1980 <sup>[iv]</sup>). Die Idee dieser Modelle war es, ausgehend von Immissionsmessdaten auf die Anteile von Verursachern zurück zu schließen. Ausgangspunkt der CMB Modelle ist die Identifizierung von Quellen durch Vergleich von Profilen der Aerosoleigenschaften am Rezeptor mit jenen der Quellen, ihren „Fingerabdrücken“.

Als wichtigste Aerosolquellenmodell-Typen werden von Cooper und Watson (1980) genannt:

- Analyse der Anreicherungsfaktoren
- Zeitreihenuntersuchungen
- Konzentrationswindrosen (Untersuchung der räumlichen Verteilung)
- Chemische Massenbilanzen (CMB)
- Multivariate statistische Verfahren (Faktorenanalyse und verwandte Methoden)

Auch an der TU Wien wurden in der Frühzeit der Rezeptormodellierung Arbeiten mit multivariaten statistischen Verfahren durchgeführt (Wopenka 1982 <sup>[v]</sup>; Puxbaum und Wopenka 1984 <sup>[vi]</sup>). Zu dieser Zeit basierten die Quellenanalysen auf anorganischen Parametern (Schwermetalle, Ionen) und für den Kfz-Verkehr diente Blei als Tracer.

Einen Durchbruch in der Aerosolquellenanalyse erzielte Glen Cass mit seiner Arbeitsgruppe am CALTECH, Pasadena, durch die Einbeziehung von organischen Tracern zur Chemischen Massenbilanz – „CMB“. Ohne die zahlreichen Arbeiten im Einzelnen zu zitieren, sind Bernd Simoneit, Monica Mazurek, Lynn Hildemann, Wolfgang Rogge, und James Schauer besonders hervorzuheben. Die erste Schlüsselarbeit diesbezüglich ist die Quellenanalyse des Aerosols von ausgewählten Messorten in Los Angeles (Schauer et al., 1996 <sup>[vii]</sup>), eine weitere über Aerosol in kleineren Städten und der ländlichen Region stammt von Zheng et al., 2002 <sup>[viii]</sup>. Diese Arbeiten waren von Serien von Publikationen über die Zusammensetzung von Aerosolquellen begleitet, da zur Anwendung der CMB die Zusammensetzung der wesentlichen verursachenden Quellen bekannt sein muss. Auf dem Sektor der Quellenprofile und der Modellanwendung der CMB sind John Watson, Wolfgang Rogge und Philip Fine hervorzuheben. Die Verbesserung der Quellenprofile ist Bestandteil laufender Forschungsarbeiten in den USA. Die Verwendung von CMB als Quellenmodell



wird von der USEPA unterstützt. Quellenprofile sind unter der Domäne SPECIATE abrufbar. Das Modell CMB VII und CMB VIII steht von der EPA kostenlos zur Verfügung.

Auch auf dem Sektor der multivariaten statistischen Verfahren gab es eine interessante Entwicklung in den vergangenen Jahren, etwa dadurch, dass bestimmte Quellenprofile als Ziele mit einbezogen wurden (z.B. Target-Transformations Faktorenanalyse). Inhärenter Nachteil der Faktorenanalyse und der verwandten Verfahren ist die Anwendungen von Vermutungen bei der Zuordnung von Quellen zu erzielten Faktoren. Die Methode kommt insbesondere dann ins Wanken, wenn der überwiegende Anteil der Konzentrationsschwankungen durch meteorologische Faktoren verursacht wird. Gerade dies ist aber bei Feinstaub der Fall.

Die Konzentrationsschwankungen von Aerosolkomponenten von Tag zu Tag ergeben sich vor allem infolge der Schwankungen der meteorologischen Situation. In solchen Fällen ist die Unterscheidung von Quellen nur aufgrund der Varianz des analytischen Datensatzes meist nicht eindeutig. Die Chemische Massenbilanz ermöglicht in diesen Fällen eine Lösung, vorausgesetzt, dass die Zusammensetzung der Partikel-Emissionen, wie sie nach Verlassen der Emissionsstelle auftritt, bekannt ist.

Wir haben uns daher in AQUELLA für die aufwendigere CMB Methode entschieden. Für die Schaffung eigener Quellenprofile werden 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 werden für die Länder Wien, Steiermark, Salzburg, Niederösterreich, Kärnten und Oberösterreich durchgeführt.

Aus den Erfahrungen mit den Quellenprofilen entstand im Rahmen von AQUELLA ein eigenes Quellenmodell, das Makrotracer-Modell. Das Makrotracer-Modell basiert auf dem CMB Ansatz, wobei die Zahl der Tracerkomponenten auf eine möglichst geringe reduziert wird. Als Tracerkomponenten werden jedoch soweit als möglich Makrokomponenten herangezogen, die sich als besonders zuverlässig hinsichtlich der Quellenidentifizierung erwiesen haben.

### **2.3 Aufgabenstellung des gegenständlichen Projektes**

Im Raum Graz wurden die zulässigen Überschreitungen des Tagesmittelwertes von PM10 überschritten. Im Rahmen des gegenständlichen Projektes sollen die Hauptverursacher der PM10 Überschreitungen in der Stadt Graz ermittelt werden. Damit sollen grundlegende Daten für wirksame Maßnahmenkataloge zur Einhaltung der PM10 Immissionswerte dem

Land zur Verfügung gestellt werden. Zur Ermittlung der Hauptverursacher der PM10 Überschreitungen ist die Erstellung eines Aerosolquellenmodells für PM10 zur Anwendung zur Quellenanalyse in Graz vorgesehen. Hierfür ist es erforderlich, einen geeigneten Tracersatz zu erstellen, der als Grundlage der Quellenanalyse mit dem Chemischen Massenbilanzmodell dient. Der Tracersatz ist dann in Quellenproben zu analysieren, daraus resultieren die Quellenprofile. In ausgewählten Immissionsproben werden dann ebenso die Konzentrationswerte der Tracerkomponenten im Verhältnis zur PM10 Konzentration bestimmt. Mit Hilfe des Makrotracer-Modells und des CMB-Modells werden dann die Anteile der wichtigsten Aerosolquellen ermittelt.

Die Anwendung des Aerosolquellenmodells für Graz soll insbesondere der Analyse von Situationen dienen, die zur Überschreitung der IG-Luft Grenzwerte von PM10 führen. Das Quellenmodell, das für die gegenständliche Arbeit herangezogen wird, basiert auf den aktuellsten Arbeiten der führenden Gruppen auf diesem Gebiet (Glen Cass und James Schauer), wird aber für die Anwendung auf ein mitteleuropäisches Stadtaerosol hinsichtlich der Quellenprofile entsprechend modifiziert und hinsichtlich der Anwendung von organischen Tracern, Ionen, Metallen und der Kohlenstoffparameter adaptiert. Mit diesem „Mixed Model“ werden Überschreitungssituationen und auch Tage geringer Belastung untersucht und die jeweiligen Hauptquellen als Beiträge zu PM10 dargestellt. Durch Einbeziehen von Vorbelastungsmessstellen soll es auch möglich sein, den eigentlichen Stadteinfluss als „Urban Impact“ für die Überschreitungsepisoden herauszufiltern.

## 2.4 CMB in AQUELLA

Eine schematische Darstellung der Abläufe in der Chemischen Massenbilanz Modellierung ist in Abbildung 1 dargestellt.

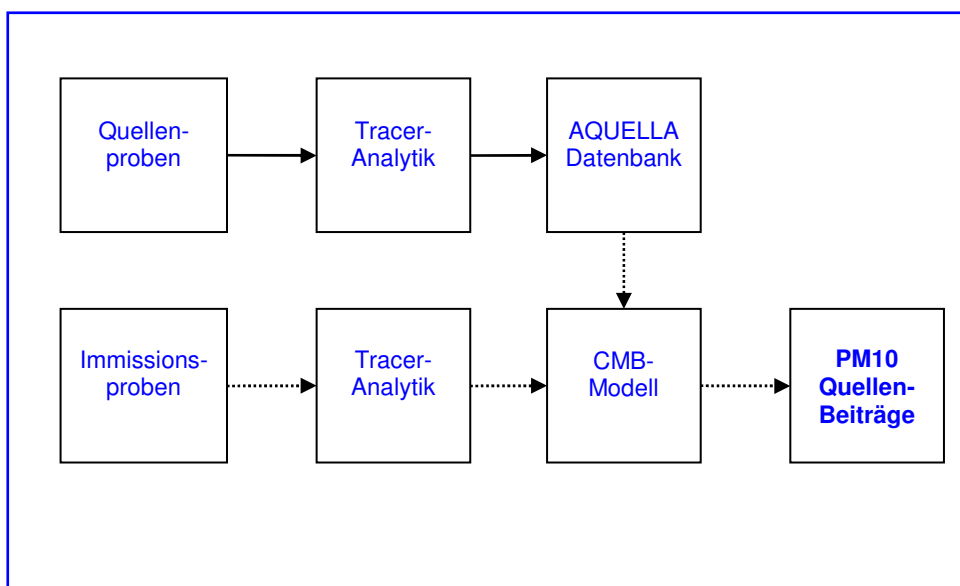


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Aktivitäten im CMB Modell. Durchgezogene Pfeile: AQUELLIS – Bereich; Gepunktete Pfeile: AQUELLA – Bereich

Quellen- und Immissionsproben werden auf denselben Tracersatz analysiert. Die Daten der Quellenprofile befinden sich in einer Datenbank und werden bei der Anwendung des CMB Modells verwendet. Die Bestimmung der Quellenbeiträge erfolgt für individuelle, meist „gepoolte“ Immissionsproben. Als „Pools“ sind zusammengefasste Proben von zwei bis mehreren Tagen mit ähnlichem Verhalten zu verstehen.

Der zeitliche Ablauf des AQUELLA – Projektes stellt sich folgendermaßen dar:

SCHEMATISCHE ENTWICKLUNG DES PROJEKTES:

Quellen-Probenahme  
    Probenahme Immission  
        Poolen der Immissionsproben  
            Anwendung der Analytik  
                Modellerstellung  
                    CMB Modellierung  
                        Analyse der PM10 Überschreitungsfälle  
                            Endbericht / Publikationen

Tatsächlich sind die Abläufe mehr verwoben, da Probenlieferungen zu verschiedenen Zeiten einlangen. Unter Modellerstellung ist zu verstehen, dass für die verschiedenen AQUELLA-Projekte individuelle Straßenstaub-Profile erhalten werden, die mit den anderen zum Einsatz gelangenden Profilen auf Ko-Korrelation untersucht werden müssen. Erst nach statistischen Eignungstests können dann neue Profile im CMB Modell eingesetzt werden.

### Auswahl der Quellen

Die Auswahl der zu verwendenden Hauptquellen erfolgte zum einen anhand der Staubemissionsinventur für Österreich vom ARC <sup>[ix]</sup>, zum anderen aus Schlüssen, die aus den Ergebnissen des AUPHEP – Projektes <sup>[x]</sup> und der US-Studien <sup>[vii]</sup> gezogen werden konnten.

Als Hauptquellen aus dem ARC Emissionskataster ergeben sich die Quellentypen von Straßenabrieb und Resuspension, Prozesse der Holz-, Papier-, Cellulose- und Nahrungsindustrie, Land- und Forstwirtschaftliche Aerosole, Kommerzielle und Haushalts-Verbrennungsanlagen, Kraftfahrzeuge Abgas-, Bremsen- und Reifenabriebemissionen, Prozessemissionen, Stationäre Verbrennungsanlagen, Emissionen der Eisen- und Stahlindustrie, Eisenbahn- und Luftverkehr, Anlagen der Energieerzeugung (Abbildung 2).

**Aerosol Reconstruction - Secondary measured, Primary Emission Inventory ARC**

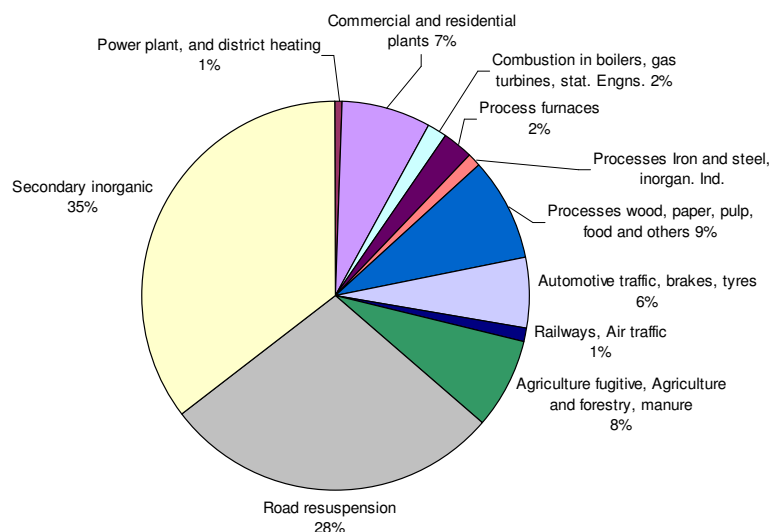


Abbildung 2: Aerosolquellenverteilung PM10 nach ARC in Österreich – unter Einbezug eines gemessenen Anteils von 35% sekundär anorganischen Komponenten

Tabelle 1: „Haupt-Quellen“ und Unterteilungen, deren Unterscheidungsmöglichkeit in AQUELLIS untersucht wird

„Haupt-Quellen“	Unterteilungen
Kfz-Abgas	Diesel-Motor, Otto-Motor
Kohle-Verbrennung	
Holzverbrennung/Holzrauch	
Erdgasverbrennung	
Kochvorgänge	
Brems- und Reifen-Abrieb	
Mineralischer Staub	Straßenabrieb, Splittverwendung Baustellen-Staub, Fassaden-Erosion, geogene Stäube, Landwirtschaft/Felder
Auftausalz (v.a. NaCl)	
Pflanzen-Debris	
Sekundäres Anorganisches Aerosol	Sulfat, Nitrat, Ammonium
Sekundäres Organisches Aerosol (Rest OM)	HULIS*, Oxalsäure* u.a.

\* Teilfraktion

Eine Reihe der Emissionstypen spielt in Städten eine untergeordnete Rolle. Eine Auflistung der in Betracht gezogenen Haupt-Quellen enthält Tabelle 1, in welcher auch mögliche weitere Unterteilungen angeführt sind.

Ausgehend von Erfahrungen früherer Arbeiten wird angenommen, dass insbesondere Sekundäre anorganische Aerosole, Straßenstaub (verbunden mit Splittstreuung), Kfz-Emissionen und Holzrauch als bedeutende Quellen anzusehen sind.

Auswahl der Tracer

Als Tracer werden in AQUELLA die in Tabelle 2 angeführten Komponenten analysiert. Die genannten Elemente und Verbindungen stellen dabei ein Minimalprogramm dar; tatsächlich fallen bei den Multielement- und Multikomponentenmethoden weitere Analysendaten an, die gegebenenfalls auch genutzt werden können.

Tabelle 2: Tracerkomponenten in AQUELLA

<p><b>Metalle</b> (gesamt-Anteile nach Mikrowellenunterstütztem Aufschluss – ICP-OES; AAS)</p> <p>Blei, Cadmium, Kupfer, Zink, Mangan, Eisen, Vanadium, Nickel, Kalzium, Magnesium, Titan, Barium, Antimon, Arsen</p> <p>Platin, Palladium (FIA-AAS)</p> <p>Silizium, Aluminium (RFA)</p> <p><b>Ionen</b> (Löslich) (IC)</p> <p>Chlorid, Sulfat, Nitrat, Oxalat, Ammonium, Kalzium, Magnesium, Natrium, Kalium</p> <p><b>TC/BC/OC/CC</b> (Thermographie, Verbrennungsanalyse)</p> <p>Ruß und organischer Kohlenstoff, Karbonat-Kohlenstoff</p> <p><b>Anhydrozucker</b> (HPLC-Echem.Det.)</p> <p>Levoglucosan, Mannosan, Galactosan</p> <p><b>Cellulose</b> (Enzymatisch)</p> <p><b>PAH</b> (GC-MS)</p> <p>Benzo(e)pyren, Indeno(cd)fluoranthren, Indeno(cd)pyren, Benzo(de)anthracen-7-on, Reten</p> <p><b>Alkane</b> (GC-MS)</p> <p>Heptacosan, Octacosan, Nonacosan, Hentriacontan, Tritriacontan</p> <p><b>Fettsäuren</b> (Derivatisierung/GC-MS)</p> <p>Hexadecen-9-säure, Dodecansäure, Tetradecansäure, Palmitinsäure, Stearinsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure</p> <p><b>Harzsäuren</b> (Derivatisierung/GC-MS)</p> <p>Abietinsäure, Pimarsäure</p> <p><b>Andere Polare</b> (Derivatisierung/GC-MS)</p> <p>Nonanal, Syringole</p>
---

Die Auswahl der Tracer erfolgte anhand der Ergebnisse von Quellen-Studien früherer Arbeiten und eigener neu entwickelter Tracer. Tracer können spezifisch für eine Quellengruppe sein, diese werden als „unique“ Tracer bezeichnet. Andere sind zwar nicht

„unique“, aber doch dominierend für eine Quellengruppe, diese können wir als Haupttracer bezeichnen. Die analytischen Entwicklungen an der TU Wien befassen sich mit möglichst selektiven Tracern. Als solche wurden Cellulose als Tracer für „Plant Debris“<sup>[xi]</sup> und Palladium als Tracer für Abgasemissionen<sup>[xii]</sup> eingeführt. Weitere Entwicklungen befassen sich mit der Bestimmung des Anteils von Pilzsporen am PM10 Aerosol. Dieser kann in der warmen Jahreszeit im Größenbereich 2-10 µm einen Hauptbestandteil des organischen Aerosols bilden<sup>[xiii]</sup>. Spezifische („unique“) und Haupttracer in AQUELLA sind in Tabelle 3 zusammengefasst. Weitere Unterscheidungen ergeben sich in den Profilen durch PAH-, Alkane- und Metalle-Muster.

Tabelle 3: Wichtige Tracer im CMB Modell („unique“ und Haupt-Tracer)

Hauptquelle	„Unique Tracer“	„Haupttracer“
Kfz-Abgas	Pd,Pt (Katalysatorfahrzeuge)	Ruß (EC)
Kohleverbrennung		As
Holzverbrennung	Levoglucosan	Reten, Harzsäuren (Weichholz) Syringole (Hartholz)
Erdgasverbrennung	Benz(a)anthracen-7,12- dion	Benz(de)anthracen-7-on
Kochen	Partikuläres Nonanal	9-Hexadecensäure
Reifenabrieb		n-Tetracontan
Bremsabrieb	Ba	
Straßenstaub		Si, Al, Ca
Auftausalz		Na, Cl
Pflanzen-Debris	Cellulose	Hentriacontan, Tritriacontan

### Allgemeine Anforderungen bei CMB

In der früheren Entwicklung der CMB Modelle bediente man sich der Profile von Komponenten, die jeweils aus einer Analysenmethode erhalten wurden (z.B. Neutronenaktivierungsanalyse, ICP-MS, GC-MS etc.). Heute setzt man „mixed models“ ein, wobei Spurenmetalle, Matrixkomponenten, Ruß und zahlreiche polare und nicht polare organische Verbindungen analysiert werden.

Von Bedeutung ist dabei, dass die gleichen, aus bestimmten Gründen vorgesehenen Komponenten, in Quellen- und in Rezeptorproben bestimmt werden. Von besonderer Bedeutung ist hierbei die Relation (Massenverhältnis) der analytischen Komponente zur

PM10 (oder PM2.5) Partikelmasse in einer Probe. Dies gilt für Emissions- und Immissionsproben. Der Massenstrom oder das beprobte Volumen gehen in die CMB Analyse nicht ein.

Daraus ergeben folgende sich Konsequenzen:

Ein vorgegebener Datensatz ist in Emissions- wie auch in Immissionsproben zu analysieren

Die Emissionsproben sind mit einer Verdünnungseinrichtung zu ziehen, die es ermöglicht, die Beprobung bei  $< 50^{\circ}\text{C}$  zu bewerkstelligen. Proben sind wie bei der Immission auf zwei unterschiedlichen Substrate (organisch und anorganisch) zu sammeln.

Proben von fugitivem Staubmaterial können durch Kehrung oder Saugung beprobt werden. Aus diesen Proben werden dann im Labor Anteile  $< 10\ \mu\text{m}$  (PM10) in einer speziellen Vorrichtung erhalten.

Eine schwierige Frage für die rezeptoranalytischen Methoden ist die Unterscheidbarkeit von Untergruppen von Quellen, wie z.B. Die Unterscheidung von Emissionen aus verschiedenen Arten von Biomasseverbrennung, und zwar einerseits von verschiedenen Verbrennungstechnologien (Scheit-, Pellets-, Hackschnitzelfeuerungen) bzw. Verbrennung in Öfen gegenüber offenen Feuerstellen oder Verbrennung im Freien.

Im CMB-Modell geht man in den USA den Weg, Hauptquellen zu unterscheiden, wobei den wichtigen Fällen, wie z.B. der Unterscheidung von Partikeln aus Diesel- und Benzin-Motoren, hohe Aufmerksamkeit geschenkt wird.

Weitere bedeutende Anforderungen bei Anwendung von CMB-Modellen sind:

- Die wichtigsten Quellen (jedenfalls mit etwa  $> 3\%$  Anteil am PM10) müssen im Quellenkatalog enthalten sein.
- Die Tracerkomponenten müssen zu einem hohen Prozentsatz durch die Quellen erklärbar sein.
- Die Quellenprofile dürfen untereinander nicht korreliert sein
- Die Quellenprofile sollen das mittlere Emissionsmuster der Gruppe darstellen, die durch ein Profil repräsentiert werden.

### 3 Quellenanalyse mit Tracern

#### 3.1 PM10 Messstellen im Raum Graz

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

Zur Lage und Anordnung der Messstellen siehe Abbildung 3 – 6.

**Fehler! Es ist nicht möglich, durch die Bearbeitung von Feldfunktionen Objekte zu erstellen.**

Abbildung 3: Lage der AQUELLA Steiermark – Messstellen

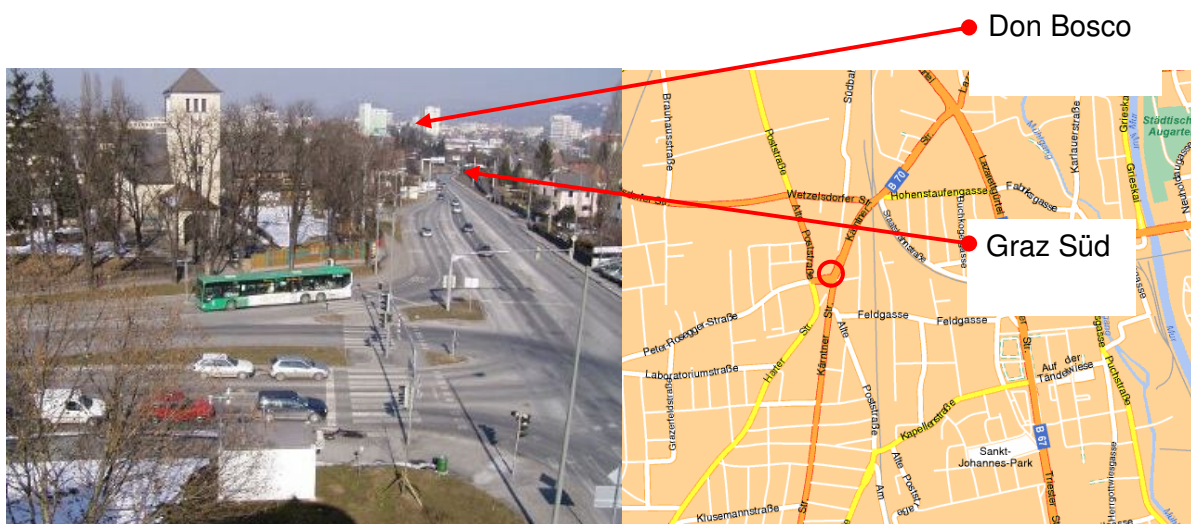


Abbildung 4: Messstelle Graz Don Bosco

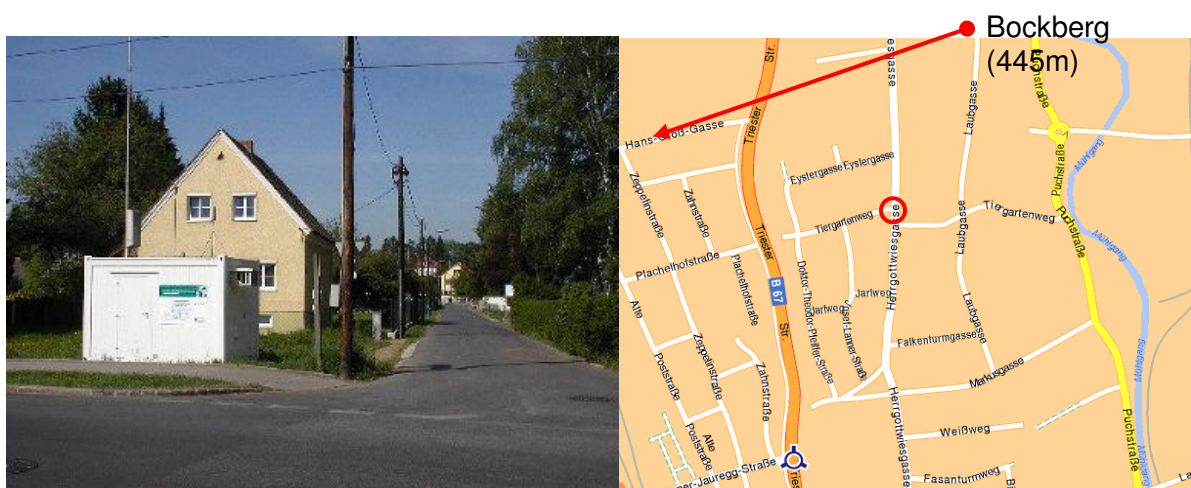




Abbildung 5: Messstelle Graz Süd

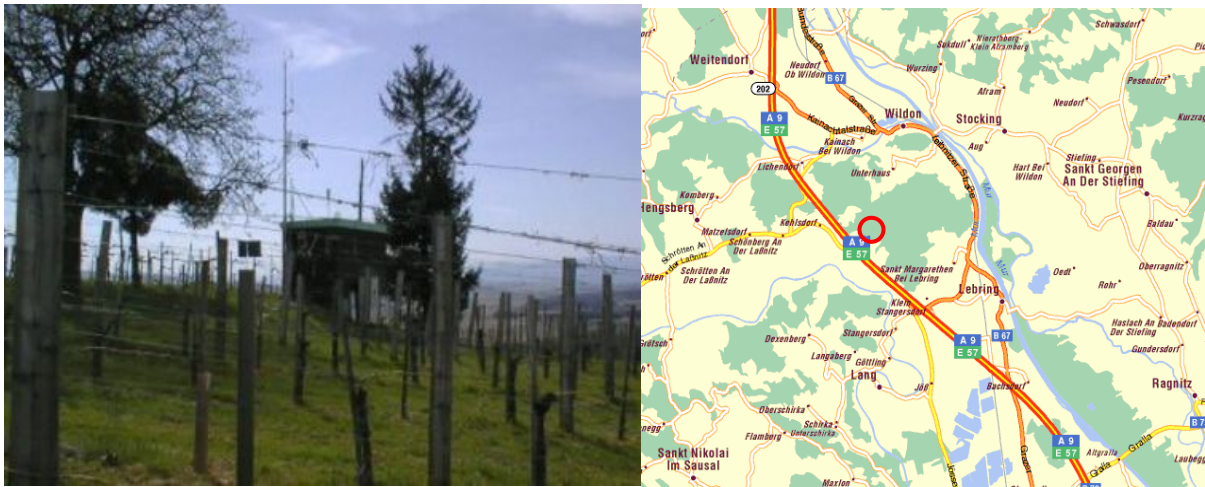


Abbildung 6: Messstelle Bockberg

## 3.2 Probenahme und Analytik

### 3.2.1 Filterbehandlung

Die beprobten Quarzfaserfilter der AQUELLA-Messstationen werden von der Fachabteilung 17C des Amtes der Steiermärkischen Landesregierung gewogen und dem Institut für Chemische Technologien und Analytik zugestellt und dort für die verschiedenen Analysen zugeschnitten und gepoolt (Abbildung 7). Die gepoolten Filteraliquote werden bis zur Analyse bei  $-20\text{ °C}$  gelagert. Die Celluloseester-Filter werden zuerst für die Bestimmung von Silizium und Aluminium (zerstörungsfreie Röntgenfluoreszenzanalyse – Tagesproben) herangezogen, dann aufgeschlossen und zur Schwermetallanalyse verwendet.

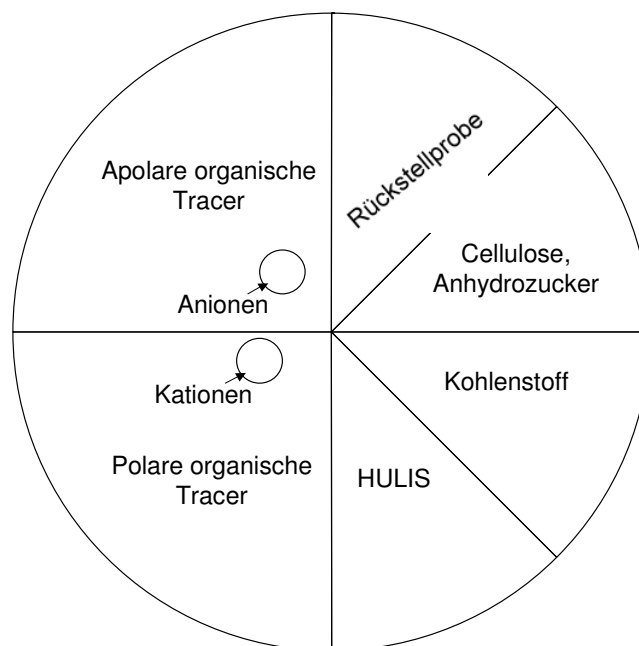


Abbildung 7: Aufteilung der Quarzfaserfilter

### 3.2.2 Poolen der Filter

Die Filter wurden entweder nach Episoden (meteorologische Episoden, wesentlich höhere PM10-Belastung der verkehrsnahen Messstellen als der Hintergrund-Messstellen, oder speziellen Ereignissen wie z.B. Osterfeuer) oder nach Höhe der Belastung ( $< 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) der am höchsten belasteten Messstelle gepoolt. Dieses Poolen wurde jedoch so vorgenommen, dass für alle Parameter Monatsmittel berechnet und somit auch die verschiedenen Aquella – Messstellen anderer Bundesländer miteinander verglichen werden können. Quarzfaser- und Celluloseester-Filter werden jeweils gleich 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“)

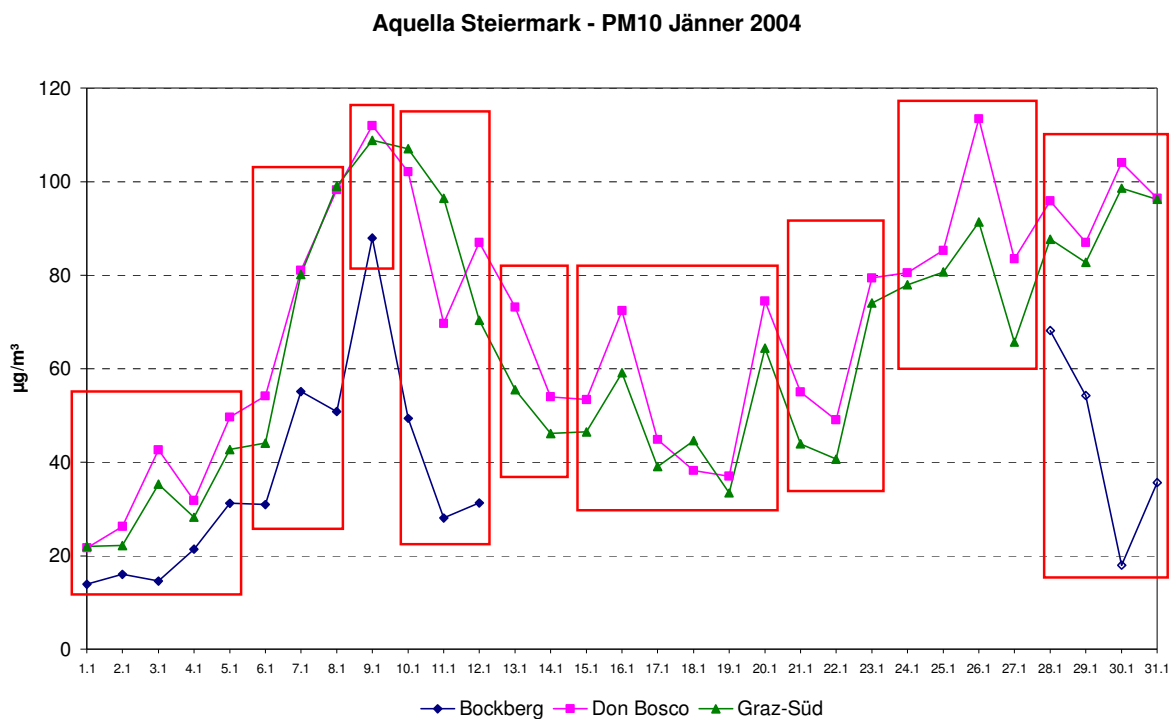


Abbildung 8: Segmentierung der Jänner-Proben

### 3.2.3 Analysenplan

Mit den Analysen der Quarzfaserfilter wurde im März 2005, mit den Analysen der Metricel-Filter im April 2005 begonnen. In Tabelle 4 sind alle untersuchten Komponenten-Gruppen aufgelistet.

Tabelle 4: Liste der gepoolten und nicht gepoolten Analysen

<b>Tagesproben</b>	<b>Gepoolte Proben</b>
Kohlenstoff-Summenparameter	Cellulose
Mineralische Komponenten: Si, Al	Anhydrozucker
	HULIS
	Apolare organische Tracer
	Polare organische Tracer
	Lösliche Ionen
	Spuremetalle

Das Auswahlkriterium für einen „Überschreitungstag“ war eine Überschreitung an der Messstelle Don Bosco, da diese in allen Fällen überschritten war, an welchen in Graz Süd eine Überschreitung vorlag. Einzelne oder mehrere hintereinander folgende Überschreitungstage mit ähnlichem Verlauf wurden als „Probenpools“ jeweils simultan von allen drei Messstellen der Analyse unterzogen. Das Schema dieser Beprobung ist aus der Liste in Tabelle 5 ersichtlich. Die analysierten Pools (Rote Schrift: Überschreitungsperioden, schwarze Schrift: Perioden ohne Grenzwertüberschreitung an der Messstelle Don Bosco).

Die Bildung der Probenpools ist aus den Abbildungen 9a-I ersichtlich. Rot umrandete Episoden wurden als Pools hintereinander folgender Tage analysiert, blau und grün umrandete Tage wurden ebenfalls in Pools, jedoch aus nicht hintereinander folgenden Tagen analysiert.

Tabelle 5: Liste der analysierten Pools (Rote Schrift: Überschreitungsperioden, schwarze Schrift: Perioden ohne Grenzwertüberschreitung an der Messstelle Don Bosco)

<b>Don Bosco</b>	<b>Graz-Süd</b>	<b>Bockberg</b>
01.-05.01.04	01.-05.01.04	01.-05.01.04
06.01.-08.01.04	06.1.-08.01.04	6.1.-8.1.04
09.01.04	09.01.04	09.01.04
10.01.-12.01.04	10.01.-12.01.04	10.01.-12.01.04
13.01.-14.01.04	13.01.-14.01.04	Ausfall
15.01.-20.01.04	15.01.-20.01.04	Ausfall
21.01.-23.01.04	21.01.-23.01.04	Ausfall
24.01.-27.01.04	24.01.-27.01.04	Ausfall
28.01.-31.01.04	28.01.-31.01.04	28.01.-31.01.04
01.02.-07.02.04	01.02.-07.02.04	01.02.-07.02.04
> 50 02.04 (11.,13.,14.,16.- 18.,22.,23.,25.-26.)	> 50 02.04 (11.,13.,14.,16.- 18.,22.,23.,25.-26.)	> 50 02.04 (11.,13.,14.,16.- 18.,22.,23.,25.-26.)
< 50 02.04 (8.-10.,12.,15.,19.- 21.,24.,27.-29.)	< 50 02.04 (8.-10.,12.,15.,19.- 21.,24.,27.-29.)	< 50 02.04 (8.-10.,12.,15.,19.- 21.,24.,27.-29.)
01-05.03.04	01-05.03.04	01-05.03.04
07.03.04	07.03.04	07.03.04
> 50 03.04 (8.-20.,29.-31.)	> 50 03.04 (8.-20.,29.-31.)	> 50 03.04 (8.-20.,29.-31.)
< 50 03.04 (6., 21.-28.)	< 50 03.04 (6., 21.-28.)	< 50 03.04 (6., 21.-28.)
10.-11.04.04	10.-11.04.04	10.-11.04.04
> 50 04.04 (01.-03.,23.)	> 50 04.04 (01.-03.,23.)	> 50 04.04 (01.-03.,23.)
< 50 04.04 (04.-09.,12.-22.,24., 30.)	< 50 04.04 (04.-09.,12.-22.,24., 30.)	< 50 04.04 (04.-09.,12.-22.,24., 30.)
06.-08.10.04	06.-08.10.04	06.-08.10.04
19.-21.10.04	19.-21.10.04	19.-21.10.04
25., 27.-29.10.04	25., 27.-29.10.04	25., 27.-29.10.04
26.-30.11.04	26.-30.11.04	26.-30.11.04
02.-04.12.04	02.-04.12.04	02.-04.12.04
05.12.04	05.12.04	05.12.04
06.-07., 11.-12.12.04	06.-07., 11.-12.12.04	06.-07., 11.-12.12.04

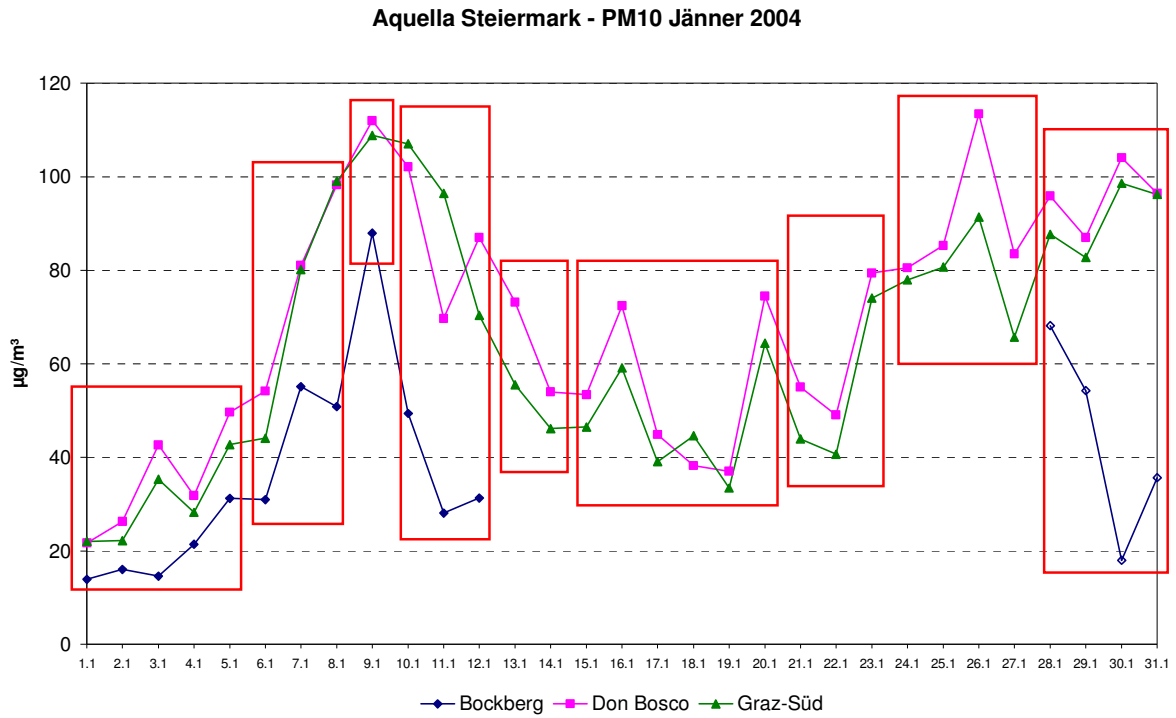


Abbildung 9a

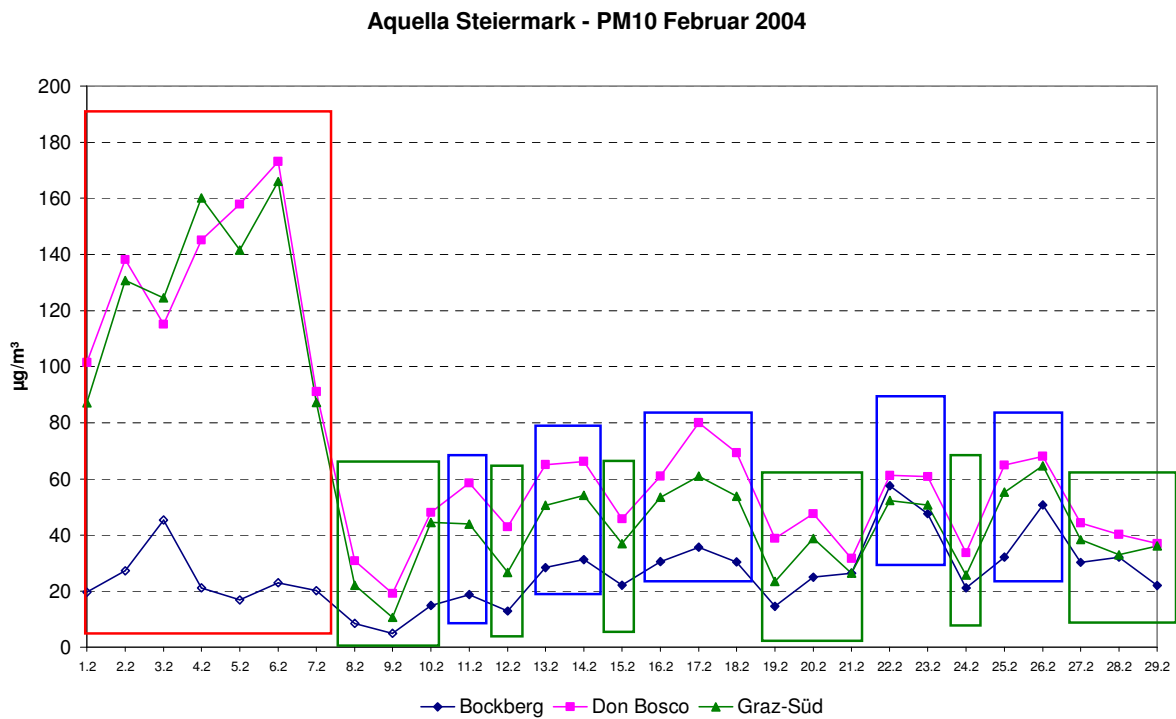


Abbildung 9b

Aquilla Steiermark - PM10 März 2004

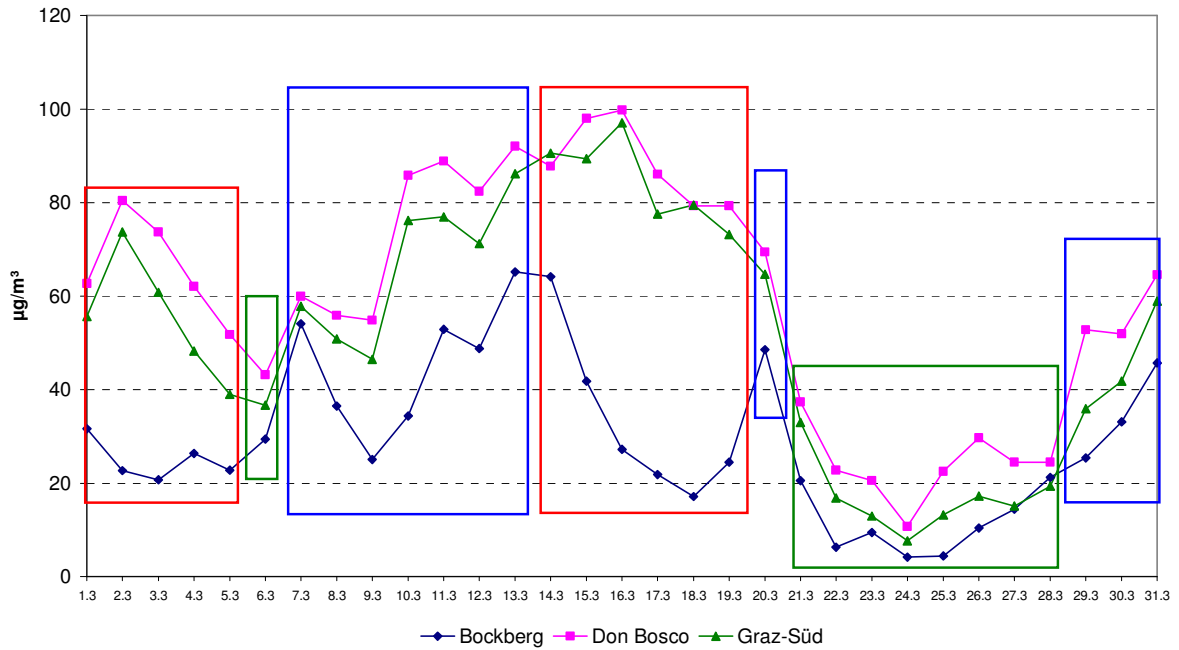


Abbildung 9c

Aquilla Steiermark - PM10 April 2004

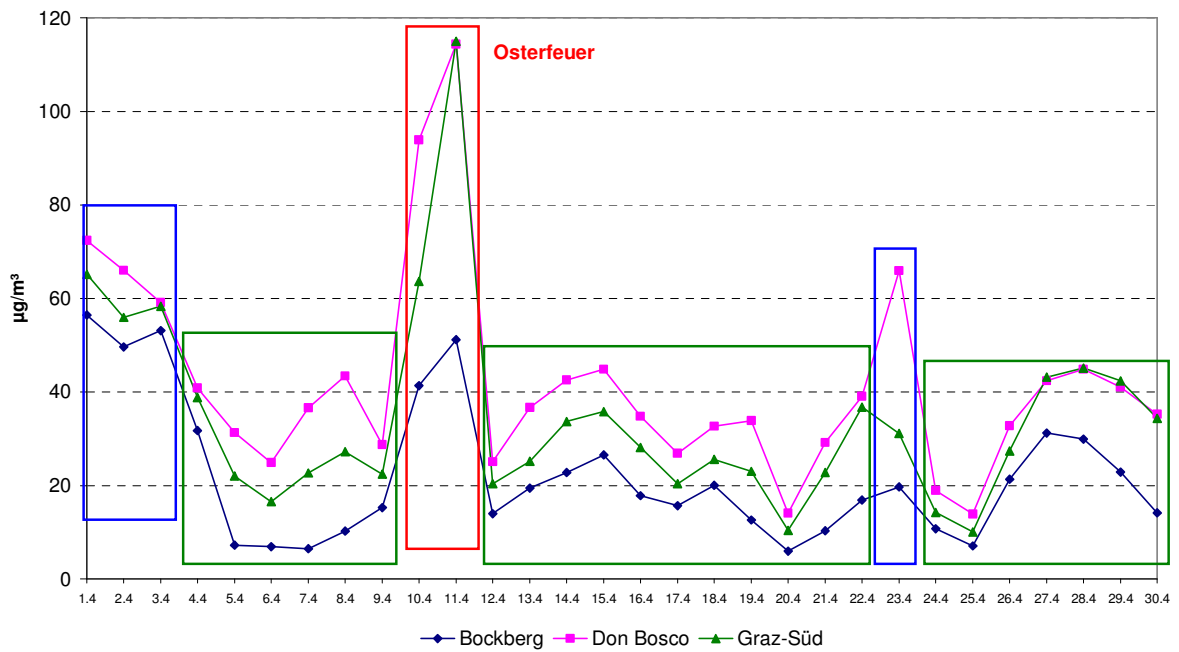


Abbildung 9d

**Aquilla Steiermark - PM10 Mai 2004**

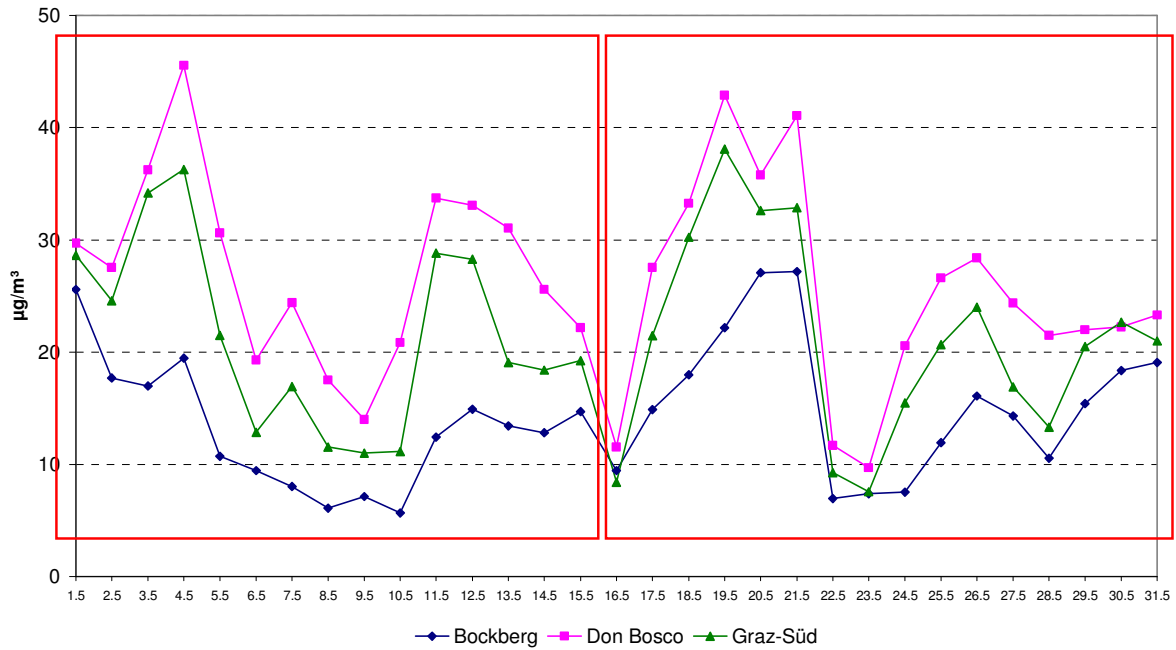


Abbildung 9e

**Aquilla Steiermark - PM10 Juni 2004**

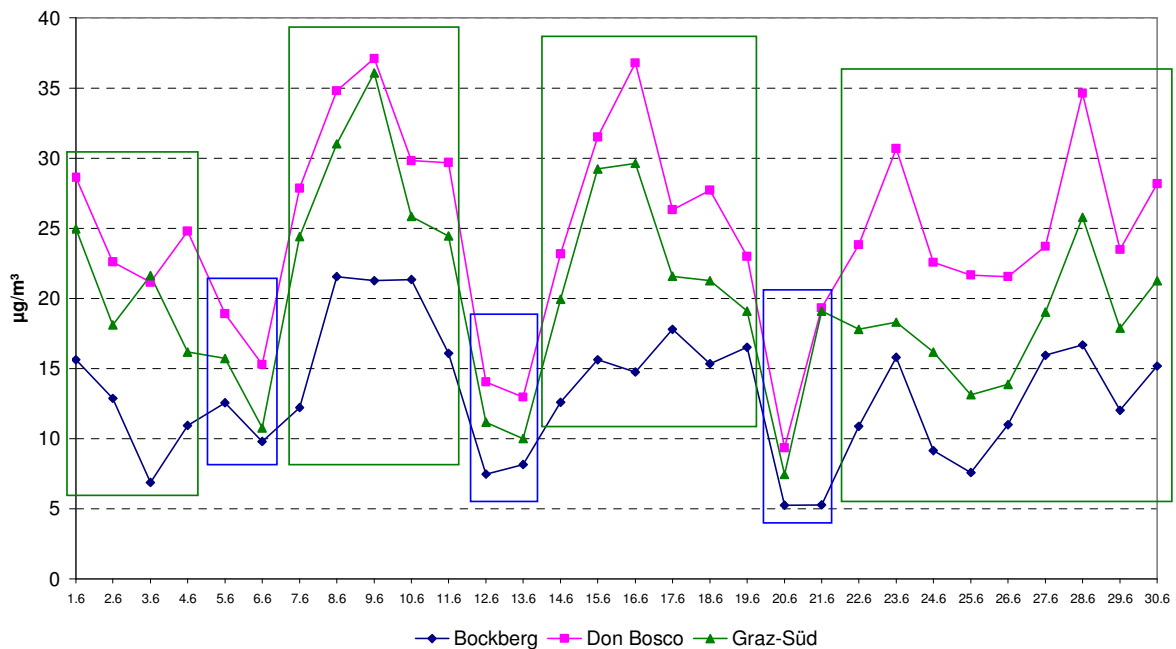


Abbildung 9f



**Aquilla Steiermark - PM10 Juli 2004**

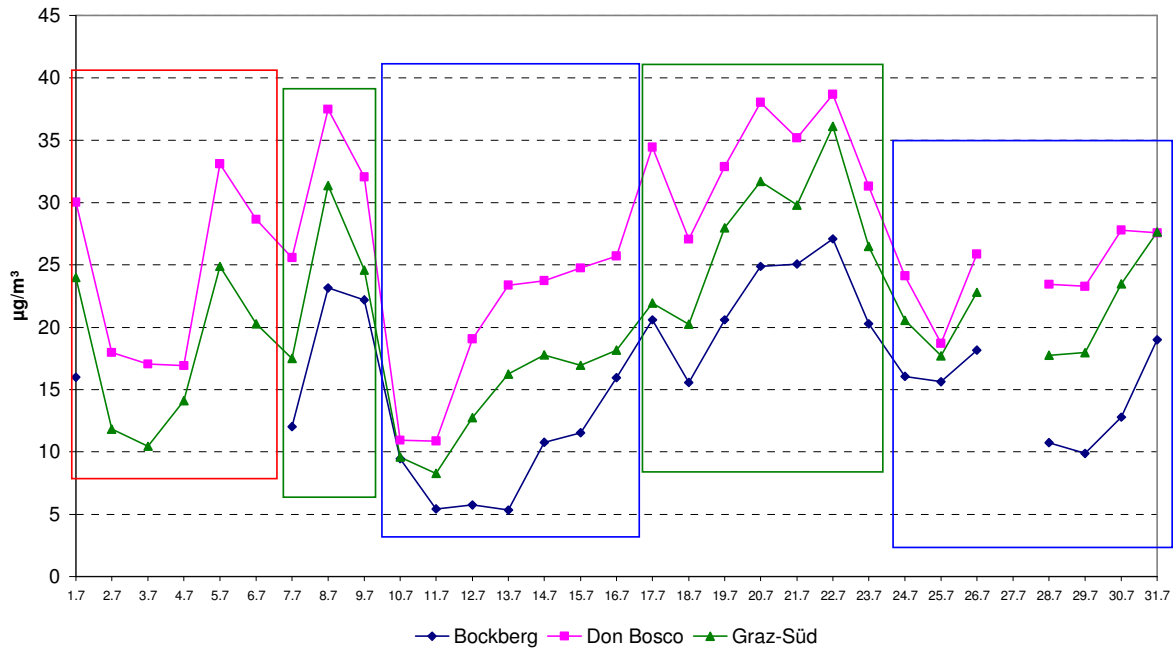


Abbildung 9g

**Aquilla Steiermark - PM10 August 2004**

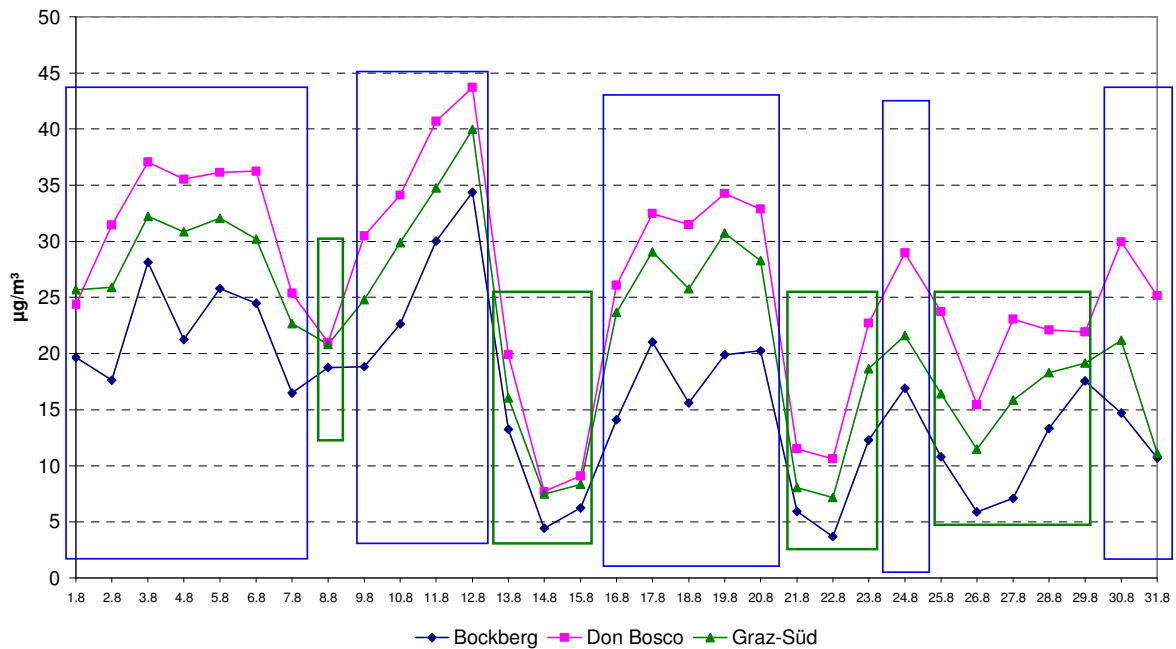


Abbildung 9h

Aquilla Steiermark - PM10 September 2004

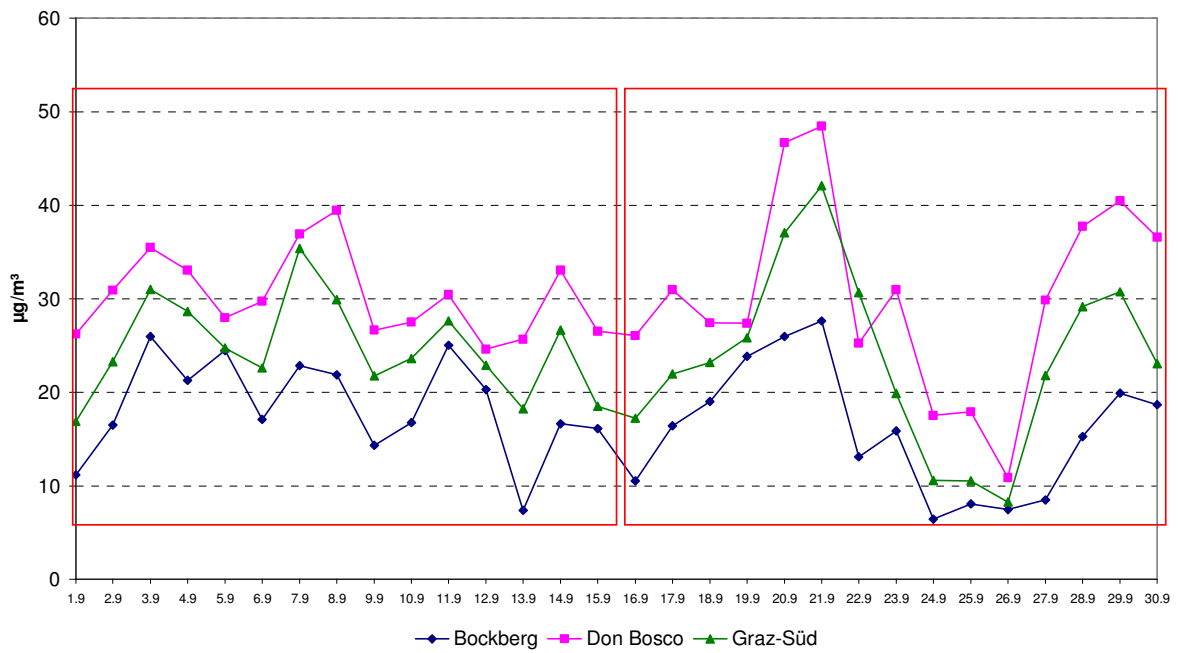


Abbildung 9i

Aquilla Steiermark - PM10 Oktober 2004

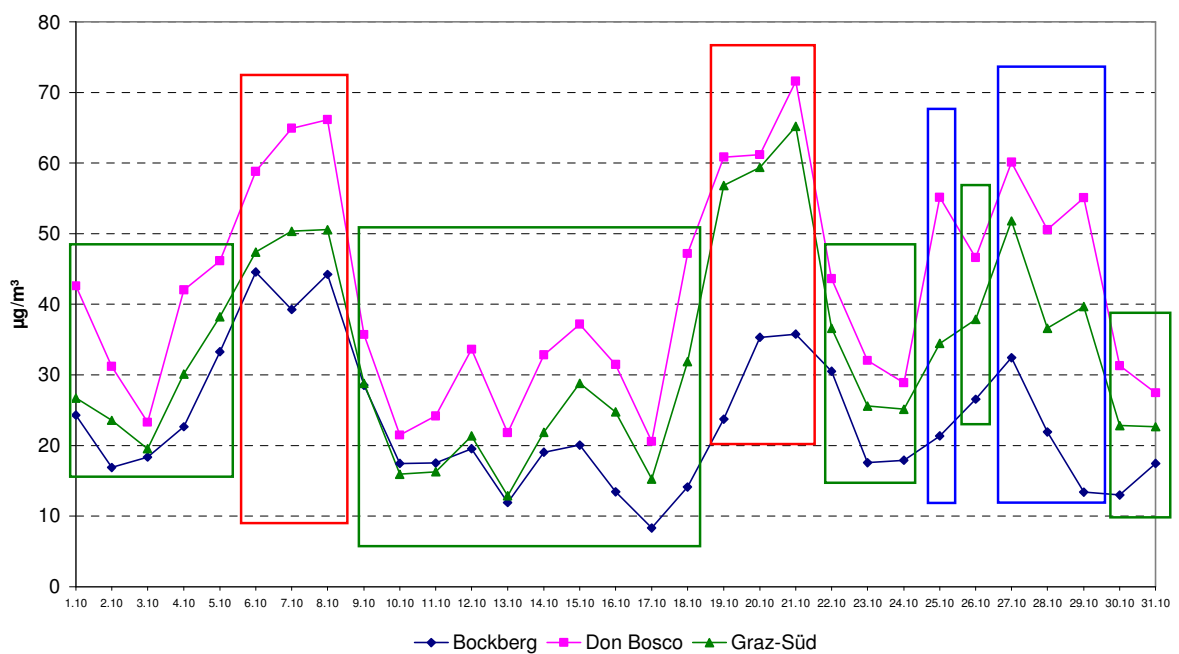


Abbildung 9j

Aquilla Steiermark - PM10 November 2004

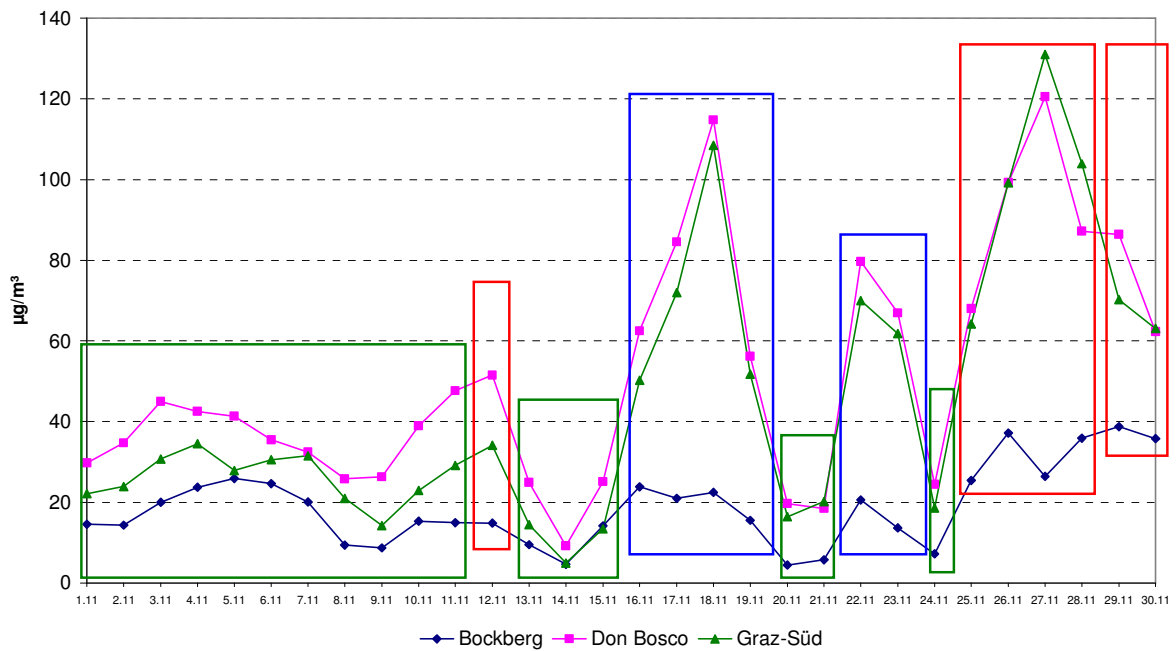


Abbildung 9k

Aquilla Steiermark - PM10 Dezember 2004

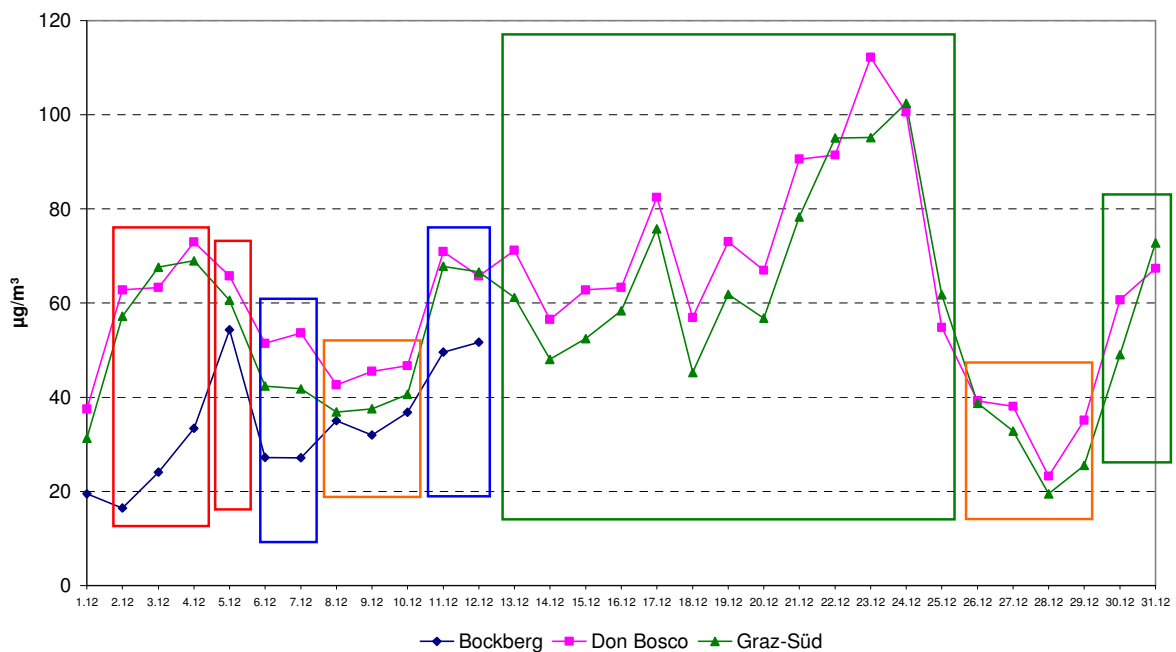


Abbildung 9l

Abbildung 9a-l: PM10-Verlauf an den Grazer AQUELLA Messstellen und Probenpools. Rot umrandete Episoden wurden einzeln analysiert, blau und grün umrandete wurden jeweils in gemeinsamen Pools analysiert.

### 3.2.4 Analytische Methoden

**Lösliche Ionen:**  $Cl^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ , Acetat, Formiat, Succinat, Malonat, Oxalat,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$

Zur Bestimmung der Konzentration der Anionen wird eine Filterstanze ( $\varnothing$  10mm) in 4ml bidestilliertem Wasser 15 min im Ultraschallbad eluiert und der wässrige Extrakt anschließend zentrifugiert. Bei der Bestimmung von Mittelwerten über mehrere Tage werden alle Filterstanzen gemeinsam eluiert und das Elutionsvolumen entsprechend angepasst. Die Konzentration der Ionen wird mittels Gradienten-Ionenchromatographie mit Leitfähigkeitsdetektor bestimmt. Als Eluent wird ein KOH-Gradient im Konzentrationsbereich von 0,5 bis 30mMol, hergestellt von einem Eluenten-Generator (EG40), verwendet. Die Flussrate beträgt 1ml/min. Die Trennung erfolgt über eine AS17 Trennsäule, der eine AG17 vorgeschaltet ist. Die Suppression erfolgt elektrochemisch im Recycling-Modus (ASRS-1). Alle Geräte und Verbrauchsmaterialien sind von Dionex.

Zur Bestimmung der Konzentration der Kationen erfolgt die Extraktion mit 4 ml 0,012 molarer Methansulfonsäure, damit auch säurelösliche Karbonate erfasst werden. Bei der Bestimmung von Mittelwerten über mehrere Tage wird das Elutionsvolumen angepasst. Nach dem Zentrifugieren erfolgt auch die Analyse der Kationen ionenchromatographisch mit Leitfähigkeitsdetektion. Als Eluent wird 12 mMol Methansulfonsäure verwendet. Die Flussrate liegt bei 1 ml/min. Als Trennsäule wird eine CS12 verwendet, der eine CG12 vorgeschaltet ist. Analog zur Bestimmung der Anionen erfolgt die Suppression elektrochemisch im Recycling-Modus (CSRS-1).

Die Kalibration der Anionen- und Kationenanalytik erfolgt mittels externer Standards. Die Standards werden von den Mitarbeitern des CTA hergestellt und mittels Merck® Standards überprüft.

**Kohlenstoff-Summenparameter:** TC/CC/EC/BC/OC

*Gesamtkohlenstoff (Total Carbon, TC)*

Die verwendete Methode beruht auf einer Weiterentwicklung der Verbrennungsmethode von PUXBAUM und RENDL (1983) für die Kohlenstoffbestimmung in Aerosolproben. Eine Filterstanze ( $\varnothing$  12 mm) wird in einem Ofen bei 1000 °C im Sauerstoffstrom (Sauerstoff 4.8, Messer) verbrannt. Die Temperatur und der Sauerstoffstrom gewährleisten eine vollständige Verbrennung aller vorliegenden Kohlenstoffverbindungen; das dabei entstehende Kohlenstoffdioxid wird mit einem nicht-dispersiven IR-Detektor (Maihak SIFOR 200, Messbereich 0-2000 ppmv) gemessen. Die Auswertung erfolgt über die Peakflächen, welche mit einem Chromatographie-Auswertesystem (ATS Winchrom) aufgenommen und integriert werden. Die Kalibration erfolgt mit externen Phthalsäurestandards.

### *Elementarer Kohlenstoff (Elemental Carbon, EC)*

Die Bestimmung des EC erfolgt durch eine zweistufige Pyrolyse der Proben („Cachier-Methode“). In einem ersten Schritt wird eine Filterstanze ( $\varnothing$  12 mm) 2 h bei 340°C im Sauerstoffstrom (Sauerstoff 4.8, Messer) in einem Ofen belassen, um den gesamten organischen Kohlenstoff zu entfernen (Cachier et al. 1989). Der auf der Filterstanze verbliebene Kohlenstoff (EC) wird in einem zweiten Schritt bei 1000°C verbrannt (die TC-Bestimmung und die Kalibration erfolgt wie wie beim Gesamtkohlenstoff). Der Karbonat-Kohlenstoff muss abgezogen werden – er wird nach der unten angeführten Methode (Karbonat-Kohlenstoff CC) bestimmt. In bestimmten Fällen (bei geringen CC-Anteilen, die aufgrund des säurelöslichen Kalzium-Anteils abgeleitet werden kann) kann die Ermittlung des CC entfallen.

### *Karbonat-Kohlenstoff (Carbonate Carbon, CC)*

Der Karbonat-Kohlenstoff wurde über den löslichen Ca-Anteil bestimmt, unter der Annahme, dass Ca vollständig als Karbonat vorliegt. Ausgewählte Proben wurden zur Überprüfung mittels Thermo-optischer Analyse untersucht und ein gutes Übereinstimmen der beiden Methoden festgestellt.

### *Schwarzer Kohlenstoff (Black Carbon, BC)*

Die Konzentration des Black Carbon wird mithilfe eines manuellen Laser-Weißlicht-Fotometers (LBL, Berkeley) ermittelt. Die Kalibration erfolgt extern unter Verwendung von Vergleichsfiltern. Der zur Berechnung der BC Konzentration herangezogene Koeffizient beträgt 19 m<sup>2</sup>/g. International gebräuchliche Werte liegen im Bereich von 8 bis 25 m<sup>2</sup>/g (Lioussé et al. 1993). Bei diesem Gerät endet der lineare Bereich bei einem Messwert von ungefähr 18 µg C/cm<sup>2</sup>, da eine Sättigung erreicht wird. Höhere Messwerte werden durch Vergleich mit EC Werten und Anwendung der Gleichung der Regressionsgeraden korrigiert.

### *Organischer Kohlenstoff (Organic Carbon, OC)*

Der organische Kohlenstoff wird als Differenz TC-CC-EC berechnet.

### *Thermo-optische Kohlenstoffbestimmung*

Die thermo-optische Kohlenstoffbestimmung dient der weiteren Charakterisierung der Kohlenstofffraktionen. Dafür wird ein Filterstanzstück ( $\varnothing$  12 mm) in einem Ofen im Sauerstoffstrom mit einer kontinuierlichen Aufheizrate von 20°C/min auf 800°C erhitzt. Die entweichenden Kohlenstoffverbindungen werden in einem zweiten Ofen katalytisch nachverbrannt und das Kohlenstoffdioxid mit einem nicht-dispersiven IR-Detektor (Maihak UNOR 6N) gemessen. Gleichzeitig wird die optische Veränderung des Filters (Schwärzung durch Verkohlung oder Hellerwerden des Filters infolge Rußverbrennung) mit einem Laser gemessen, dadurch kann der durch die Verkohlung während der Analyse entstandene Artefakt korrigiert werden. Kohlenstoffdioxid, Temperatur und Lasersignal werden gleichzeitig aufgezeichnet. Anhand des Thermogramms kann der Anteil der flüchtigen und nicht flüchtigen organischen Fraktion, sowie der Ruß- und Karbonatanteil bestimmt werden:

Flüchtige und semivolatile organische Substanzen verbrennen bei Temperaturen unter 250°C. Nicht flüchtige organische Verbindungen verbrennen oder zersetzen sich bei Temperaturen zwischen 250 und 400°C. Die Rußverbrennung findet bei Temperaturen zwischen 400° und 500°C und die Decarboxylierung der wichtigsten Karbonate (Ca- und Mg-Karbonat) bei Temperaturen über 550°C statt.

### **Organische Tracer:**

**Apolare Verbindungen:** *Benzo(e)pyren, Indeno(cd)fluoranthren, Indeno(cd)pyren, Benzo(de)anthracen-on, Kohlenwasserstoffe (C27, C28, C29, C31, C33), Reten, Hopane, Sterane, Coronen, Benzo(ghi)perylen*

Die organischen Substanzen werden durch Extraktion vom Filter gelöst. Zuerst wird der Filter geschnitten und mit deuteriertem Standard, zur Wiederfindung, versetzt. Die Filterstückchen werden in einem Extraktionsröhrchen zweimal mit je 5mL Cyclohexan im Ultraschallbad für je 5 Minuten extrahiert. Die vereinten Extrakte werden mit N<sub>2</sub> bei 35±5°C auf 200µl eingengt und mit GC-MS analysiert.

Die gaschromatographischen Analysen werden mit einem HP-6890 Gaschromatographen durchgeführt. Die Probe wird im Splitless Mode (2 min, 300°C) mit einem HP-7683 Autosampler injiziert. Der Gaschromatograph ist mit einer deaktivierten Fused Silica Vorsäule (1 m x 0.32 mm) und einer Kapillarsäule DB-5 MS (95% Dimethyl, 5% Phenylpolysiloxan, 30 m x 0.25 mm ID x 0.25 µm Filmdicke) ausgestattet. Das Temperaturprogramm startet mit 50°C für 2 min, danach ein Heizprogramm, das mit 8°C/min auf 98°C und dann mit 6°C/min auf 290°C aufheizt, danach folgt ein Halt bei 290°C für 20 Minuten. Helium wird als Trägergas verwendet. Der Gaschromatograph ist mit einem Massenspektrometer HP-7683 (70eV) verbunden.

**Polare Verbindungen:** *Hexadecen-9-säure, Laurinsäure, Myristinsäure, Palmitinsäure, Stearinsäure, Pimarsäure, Abietinsäure, Nonanal, Syringol, Syringolaldehyd, Ölsäure, Linolsäure, Cholesterin*

Die analytische Methode wurde ursprünglich für die Bestimmung von organischen Säuren in atmosphärischem Aerosol entwickelt. Der Filter wird geschnitten und die Filterstückchen werden mit einem deuterierten Standard, zur Wiederfindung, versetzt. Die polaren Verbindungen werden mit einer Mischung aus Methanol, Wasser und Aceton im Ultraschallbad extrahiert. Danach erfolgt ein SPE Schritt, um die gewünschten organischen Säuren aus dem Extrakt zu erhalten. Die organischen Säuren werden im Folgenden zu Methylestern derivatisiert. Die gewünschten Substanzen werden dann in Cyclohexan extrahiert und mit GC-MS analysiert.

Gaschromatographische Analysen werden mit einem HP-5890 Gaschromatographen durchgeführt. Die Probe wird im Splitlessmode (2 min; 300°C) mit einem Autosampler GC-

PAL injiziert. Der Gaschromatograph ist mit zwei Kapillarsäulen (95% Dimethyl, 5% Phenylpolysiloxane; 30m x 0.25mm I.D. x 0.25µm Filmdicke) ausgestattet. Das Temperaturprogramm startet mit 50°C für 2min, danach ein Heizprogramm, das mit 8°C/min auf 98°C und dann mit 6°C/min auf 290°C aufheizt, danach folgt ein Halt bei 290°C für 20 Minuten. Helium wird als Trägergas verwendet. Der Gaschromatograph ist mit zwei Detektoren ausgestattet, mit einem Flammenionisationsdetektor und einem Massenspektrometer HP-5971-A (70eV).

**Anhydrozucker:** *Levoglucosan, Galactosan, Mannosan*

Ein Filteraliquot (4,5 – 6,3 cm<sup>2</sup>) wird mit 3 ml bidestilliertem Wasser versetzt und 20 min im Ultraschallbad eluiert und anschließend 3 Minuten mit 13400 rpm zentrifugiert. Anschließend wird der Überstand ionenchromatographisch analysiert (Säule:Carbo Pac PA10; Eluent: NaOH Gradient, Anfangskonzentration: 12% NaOH, Endkonzentration: 16% NaOH). Das verwendete ionenchromatographische System ist ein Bio-LC System der Firma Dionex mit amperometrischer Detektion (ED40). Die Quantifizierung erfolgt gegen externe Standards.

**Cellulose**

Für die enzymatische Cellulose-Bestimmung werden Filteraliquote (ca. 4,5 – 6 cm<sup>2</sup>) mit 3 ml einer 0,05 molaren Citronensäurelösung mit 0,05% Thymol (pH 4,8) versetzt und 15 min im Ultraschallbad eluiert. Danach erfolgt die Zugabe von je 100 µl der gereinigten, verdünnten *Trichoderma reesei* – Cellulase (Celluclast, 1:10 verdünnt) und *Aspergillus niger* – Cellubiase (Novozym 188, 1:100 verdünnt). Dieser Ansatz wird in einem Röhrchen verschlossen 24 h bei 45°C im Wasserbad inkubiert. Anschließend werden die Enzyme durch Erhitzen auf über 80°C (10 min) denaturiert. Nach dem Abkühlen der Lösung auf Raumtemperatur wird zentrifugiert und der Überstand photometrisch bei 340 nm bestimmt. Für die Analyse wurde ein Testkit von Boehringer Mannheim / R – Biopharm zur Bestimmung von D – Glucose in Lebensmitteln eingesetzt.

**HULIS** (*humic like substances*)

Filteraliquote von 2,5-10 cm<sup>2</sup> werden jeweils dreimal mit MilliQ-Wasser und mit NaOH-Lösung (pH13) 20 Minuten im Ultraschallbad extrahiert. Die H<sub>2</sub>O-lösliche und die pH13-lösliche Fraktion werden nach Vereinigung der drei Extrakte mit HNO<sub>3</sub> angesäuert und jeweils auf C-18 Säulchen aufgegeben. Die im Trennmateriale verbleibenden HULIS werden mit Methanol eluiert und mit einer pH5-Lösung (HNO<sub>3</sub> + NaOH) verdünnt. Die Eluate werden anschließend direkt in das FIA-System des „HULIS-Analysators“ aufgegeben. Nach einem weiteren Trennschritt mittels SAX-Säule wird die Probe in den DOC-Analysator geleitet und das bei der Verbrennung entstandene CO<sub>2</sub> mit einem NDIR Detektor gemessen.

**Mineralische Komponenten: Silizium, Aluminium**

Die Analysen der mineralischen Komponenten Silizium und Aluminium werden auf einem Röntgenspektrometer des Typs Philips X'Unique II durchgeführt. Als Primärstrahlungsquelle zur Anregung der Fluoreszenzlinien der nachzuweisenden Elemente wird eine Rh-Röhre verwendet, wobei die Anregungsspannung mit 50kV und die Stromstärke mit 40mA gewählt wurde. Si und Al werden nach spektraler Zerlegung des Fluoreszenzspektrums mit einem PET 200-Analysatorkristall nachgewiesen.

Die Auswertung der gemessenen Intensitäten erfolgt über die Messung von 4 Standards – das sind Celluloseester-Filter, auf die eine genau definierte Menge einer zertifizierten Staubprobe mit den nachzuweisenden Elementen aufgebracht wurde. Aus den gemessenen Intensitäten der zu analysierenden Elemente und den aus der Zusammensetzung des Standardstaubs und aufgebracht Staubmenge berechneten Mengen der Elemente ergibt sich eine Kalibrierfunktion. Nach dieser wurden die in den Luftfiltern gemessenen Elemente als Masse pro Filter ausgewertet.

**Spurenmetalle:**

*ICP-OES: Ca<sub>ges</sub>, Mg<sub>ges</sub>, Cd, Cr, Cu, Zn, V, Fe, Mn, Ba, Ti, Sr, Sn*

Die auf Celluloseester-Filtern gesammelten Proben (1-3 Filter) werden in 100ml Teflonbomben mit Königswasser (2ml HNO<sub>3</sub> konz; 2,5 ml HCl konz; 200 µL HF) im Mikrowellenofen (Multiwave 3000) aufgeschlossen. Während eines 70-Minuten-Programms wird die Probe auf ~ 190°C erhitzt und erreicht einen Druck von ~20 bar. Nach dem Abkühlen werden die Bomben belüftet und die Lösungen in 7 ml Teflonbomben überführt und mit etwas Wasser nachgespült.

Nach Zugabe von 100-200 µL Perchlorsäure werden die Proben langsam auf 150°C erhitzt und nahezu bis zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wird nun in 4ml HCl (5%) aufgenommen, in eine Epruvette überführt, mit Wasser auf 10g aufgefüllt und mit ICP-OES gemessen. Fallweise sind Verdünnungen (1:50) notwendig.

*AAS: Antimon, Arsen, Blei, Palladium, Platin*

Für die Pb-Bestimmung mittels ET-AAS müssen die Proben nach dem Königswasseraufschluss 1:10 verdünnt werden, um im linearen Bereich des Messgerätes zu bleiben. Antimon und Arsen werden meist direkt aus dem Königswasseraufschluss gemessen und nur bei Bedarf verdünnt. Für Pd (ET-AAS) werden auf Grund der geringen Konzentration größere Pools benötigt, weshalb aus den ICP-Proben 2-4 ml (abhängig von Anzahl der zu vereinigenden Proben) entnommen, in einem Glasbecher vereinigt und auf 4ml eingeeengt werden. Für Pt (ET-AAS) können entweder die Pd-Proben herangezogen werden oder sie werden nochmals, wie bei Pd beschrieben, eingeeengt.



### 3.2.5 Nachweisgrenzen

Die Nachweisgrenzen der angewendeten Methoden sind in Tabelle 6 angeführt.

Tabelle 6: Nachweisgrenzen der analysierten Komponenten

<b>Anorganische Stoffe</b>	<b>NWG</b>	<b>Einheit</b>	<b>Organische Stoffe</b>	<b>NWG</b>	<b>Einheit</b>
<i>Anionen:</i>			<i>Kohlenstoff</i>		
Chlorid	0,1	µg/m <sup>3</sup>	Gesamt-C, TC	1	µg/m <sup>3</sup>
Nitrat, Sulfat	0,02	µg/m <sup>3</sup>	Elementarer C, EC	0,1	µg/m <sup>3</sup>
Acetat etc.	0,01	µg/m <sup>3</sup>	Black carbon, BC	0,2	µg/m <sup>3</sup>
<i>Kationen</i>			<i>Macrotracer</i>		
Na	0,1	µg/m <sup>3</sup>	Cellulose	35	ng/m <sup>3</sup>
Ca	0,03	µg/m <sup>3</sup>	Levoglucosan	4	ng/m <sup>3</sup>
NH <sub>4</sub> , K	0,02	µg/m <sup>3</sup>	HULIS (als C)	0,1	µg/m <sup>3</sup>
Mg	0,002	µg/m <sup>3</sup>	<i>Kohlenwasserstoffe</i>		
<i>Hauptelemente - RFA</i>			Alkane, C24–C36		
Al, As, S	0,001	µg/m <sup>3</sup>	PAH	0,03	ng/m <sup>3</sup>
Fe, Ni	0,002	µg/m <sup>3</sup>	<i>Polare org. Verbindungen</i>		
Si	0,003	µg/m <sup>3</sup>	Monocarboxylsäuren	0,1-0,3	ng/m <sup>3</sup>
P	0,004	µg/m <sup>3</sup>	Dicarboxylsäuren	0,6	ng/m <sup>3</sup>
Ca	0,007	µg/m <sup>3</sup>	Abietinsäure	0,1	ng/m <sup>3</sup>
<i>Spurenelemente - ICP</i>			Nonanal		
Ni	10	ng/m <sup>3</sup>			
Ca, Cu, Fe, Zn	1	ng/m <sup>3</sup>			
Ba, Mn, Pb	0,1	ng/m <sup>3</sup>			
Mg, Sr	0,02	ng/m <sup>3</sup>			

In Immissionsproben regelmäßig, bzw. häufig unter der Nachweisgrenze waren die Komponenten Sterane und Hopane, Indeno(cd)pyren, Laurinsäure, Myristinsäure, Pimarsäure, Syringol, Syringolaldehyd, Cholesterin, sowie Cd und Sn. Die Daten für diese Komponenten wurden nicht weiter verwendet.

### 3.3 Qualitätssicherung

Im Rahmen der chemischen Analytik wurden folgende Qualität sichernde Maßnahmen durchgeführt:

- Dokumentation der Daten – Filtercodes
- Rückstellproben
- Ringversuche
- interne Qualitätssicherung – Blindwerte

#### *Dokumentation der Daten – Filtercodes*

Die Filter wurden gestempelt, als Farbstoff wurde eine in Testversuchen erprobte wasserlösliche schwarze Holzbeize verwendet. Die Codes wurden während der Analysen und der Lagerung (Kennzeichnung der Rückstellproben) der Filter beibehalten. Eine weitere Maßnahme um Verwechslungen zu vermeiden, besteht in der nach Station getrennten Lagerung der beprobten Filter.

#### *Rückstellproben*

Es wird, um eine spätere Überprüfung der Analysen durchführen zu können, von jeder gezogenen Probe eine Rückstellprobe aufbewahrt.

#### *Teilnahme an Ringversuchen*

Durch die regelmäßige Teilnahme des Labors an internationalen Ringversuchen (WMO 1995, 1996, 1999 und 2000; JRC-Ispra 1995,1996,1997 und 1998; IFA-Tulln 1995) wird die Qualität der Ionenanalytik überprüft. Im Bereich der Kohlenstoffanalytik erfolgte die Teilnahme an einem Ringversuch im Rahmen des International Aerosol Carbon Round Robin Test Stage I und Stage II, an Intercomp 2000, sowie an Rooftop I und II (2005 und 2006), um eine Sicherung der Qualität der Gesamt- und Elementarkohlenstoffanalysen zu gewährleisten.

#### *Interne Qualitätskontrolle – Blindwerte*

Die Ergebnisse der Analysen wurden durch Erstellung von Ionenbilanzen und Vergleich von Gesamtmasse und Masse aller bestimmten Komponenten rechnerisch überprüft. Wurden bei Bildung der Ionenbilanz mehr als 30% Abweichung (positiv oder negativ) vom Gleichgewicht festgestellt, wurde die Analyse wiederholt. Überstieg die Summe aller identifizierten Komponenten die Masse des gesamten abgeschiedenen Aerosols, so wurden alle Analysen wiederholt und auch die Dokumentation der Massen der Filter vor und nach der Probenahme überprüft.

Blindwerte: Zur Bestimmung der Laborblindwerte wurden die in Abschnitt 3 beschriebenen Analysemethoden herangezogen, als Proben wurden Quarzfaserfilter direkt aus der Packung verwendet. Zur Bestimmung der Feldblindwerte wurden die in Abschnitt 4.3.1 beschriebenen Analysemethoden herangezogen, als Proben wurden Quarzfaserfilter verwendet, welche gleich wie die beprobten Filter behandelt wurden und auch gemeinsam mit den beprobten Filtern in die Magazine der High-Volume Sammler eingelegt waren aber nicht beprobt wurden.

Die Nachweisgrenzen der einzelnen Methoden wurden durch Berechnung der dreifachen Standardabweichung der Feldblindwerte gebildet. Alle Analysenresultate sind Blindwert-korrigiert, die entsprechenden Nachweisgrenzen befinden sich in Tabelle 6.

Standards: Bei Analyse der ionischen Komponenten erfolgte die Kalibration durch 4-5 externe Wiederholstandards pro Run. Die Standards werden von den Mitarbeitern des CTA hergestellt und bei jeder Neuzubereitung mittels Merck<sup>®</sup> Standard überprüft. Dazu wurden der Anionen-Mehrelementstandard II (Nr.1.11448) für Nitrat, Sulfat und Chlorid und die Nitritstandardlösung (Nr. 1.198999) 1:1000 verdünnt und mit den selbst hergestellten Standards verglichen. Der Mehrelementstandard VII (Nr.1.10322) wird nach 1:100 Verdünnung zur Überprüfung aller Kationenstandards herangezogen. Die verwendeten Substanzen zur Standardherstellung (Anionen:  $\text{Na}_2\text{NO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{NO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , Natriumoxalat, KCl, Kationen:  $\text{NaCl}$ ,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ,  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{KNO}_3$  und  $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ) wiesen alle die Reinheit p.a. auf.

Zur Analyse der Komponenten der Kohlenstofffraktionen wurden Phthalsäurestandards (Phthalsäure 9611 p.a. von Merck<sup>®</sup>) verwendet. Es wurden täglich Kalibrationskurven erstellt. Bei Bestimmung der BC-Konzentration erfolgt die Kalibration durch Messungen mit Vergleichsfiltern.

### 3.4 Herstellung von PM<sub>10</sub> – Proben aus gekehrten Staubproben

Zur Herstellung von PM<sub>10</sub>-Aerosolen aus Emissionsproben wie z.B. Straßenstaub, wurde ein Gerät (Elutriator) geplant und gebaut (Abbildung 10). Emissionsproben unterschiedlicher Korngröße werden mit gereinigter und partikelfreier Luft verwirbelt und parallel auf einem Quarzfaser- und einem Metricelfilter gesammelt. Die Probenahme erfolgt über zwei PM<sub>10</sub>-Köpfe. Die Probenherstellung wurde auf möglichst geringe Blindwerte und optimale Sammelzeit optimiert. Die Optimierung umfasste die Verwendung verschiedener Fette zur Abscheidung der Grobfraction, den Vergleich von Teflon- mit Celluloseesterfiltern zur Bestimmung der mineralischen Fraktion und der Spurenmetalle, die Reproduzierbarkeit der Probenahme und die Homogenität der Filterbelegungen.

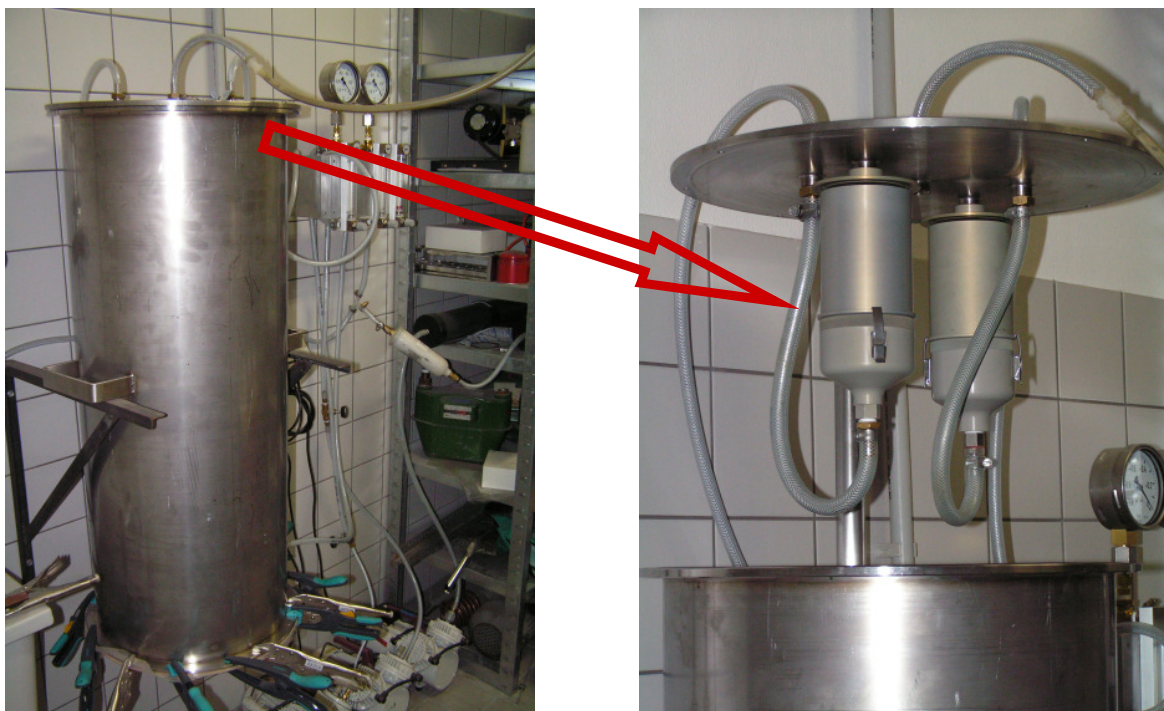


Abbildung 10: Elutriator – Gerät zur Herstellung von PM<sub>10</sub>-Proben (roter Pfeil: PM<sub>10</sub>-Sammeleinheiten)

### Straßenstaub

Mit dem Sammeln von Straßenstaub wurde im Herbst 2003 begonnen. Straßenstaub-Emissionsproben gibt es von 2 Jahreszeiten der Messstellen in Graz. Aus diesen Proben wurden PM<sub>10</sub>-Proben hergestellt. Die Ergebnisse dieser Proben wurden in die Datenbank eingegeben.

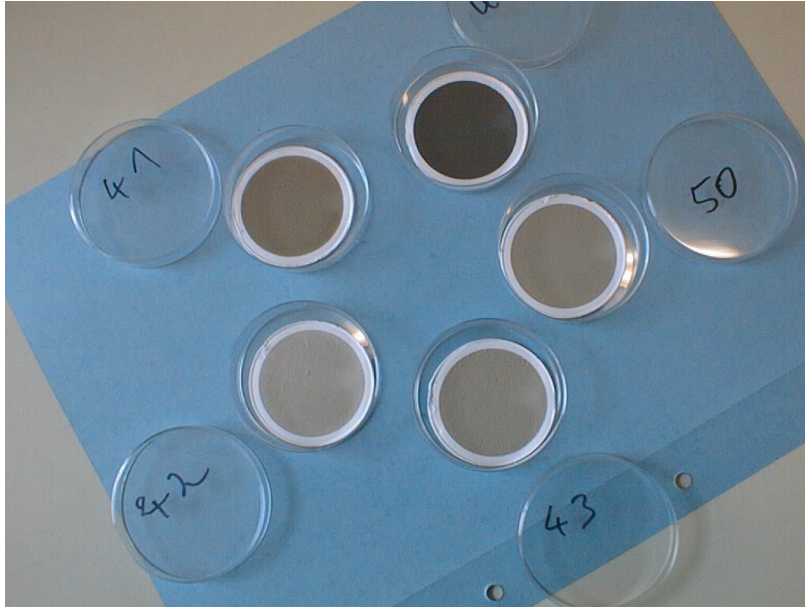


Abbildung 11: PM10 Proben auf 47mm – Filtern aus Kehrraubproben

### 3.5 Entwicklung eines Macrotracer-Modells

Im Verlauf der AQUELLA-Projekte zeigte sich, dass bereits für wichtigste Aerosolquellen entweder einzigartige Tracer oder zumindest Haupt-Tracer zur Verfügung stehen, die als Makrokomponenten im Quellenprofil anzusehen sind. Ausgehend von diesen Tracern wurde ein einfaches Massenbilanz-Modell erstellt, mit welchem 9 Quellen bzw. Quellengruppen aus den Immissionsdaten erklärt werden können. Die verwendeten Makrotracer und deren Anwendung sind in Tabelle 7 angeführt.

Das Macrotracer-Modell beruht auf den Tracern Ruß (EC) für Diesel-Emissionen und Holzrauch. Für Kohleverbrennung wurden aufgrund der Unsicherheit des Tracers keine Quellenanteile abgeleitet. Die EC-Anteile für Holzrauch werden aus der Levoglucosan-Analyse abgeleitet. Die Differenz bildet EC aus Diesel-Emissionen. Aus dem EC für Diesel wird auch der OC und Anteile von sonstigem Brems- und Reifenabrieb- und „normalem“ Straßenabrieb über Emissionsfaktoren abgeleitet; der Abgasanteil nach Tabelle 9, Abrieb nach Emission Inventory Guidebook SNAP Code 070700, 070800<sup>[xiv]</sup>, siehe Tabelle 8.

Tabelle 8 enthält für PKW, LDV und HDV die mittleren Non-Exhaust Emissionsfaktoren und zum Vergleich typische Exhaust Emissionsfaktoren. Im gewichteten Mittel (für eine Flotte mit etwa 10 % HDV) liegt der Non-Exhaust-Anteil bei 30% des Exhaust-Anteils. Nach Düring und Lohmeyer<sup>[xv]</sup> können Non-Exhaust-Anteile auch bis zum 3-fachen des Abgasanteils ausmachen, je nach Verschmutzungsgrad der Straße und Fahrbedingungen. In unserer Analyse finden sich die mineralischen Bestandteile des Straßenabriebs im Quellenanteil Mineralstaub. Für die organischen Anteile des Reifen- und Bremsabriebs werden als

Schätzgröße das 0,3 fache des Abgasanteils angenommen (aus Emission Inventory Guidebook SNAP Code 070700, 070800). Dies stellt nach eigenen Messungen (Kaisermühlentunnel) eine Untergrenze dar, beim Kaisermühlentunnel mit täglichen Staus lag der organische non-exhaust Anteil im groben Bereich (PM10-2,5) bei 0,9. Da in Tunnels der Anteil des wieder aufgewirbelten Materials höher anzunehmen ist, als in offenen Straßen, wird konservativer Weise der Faktor 0,3 angewendet. Der mineralische Anteil von Abrieb und Wiederaufwirbelung ist im Quellenanteil von Mineralstaub enthalten.

Tabelle 7: 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, unbekannte Bioaerosole	-

§ Bereich von  $f_C = 300-1000$

Tabelle 8: Non-Exhaust PM10 Emissionen (Einfache Methodik) und Vergleich mit typischen Abgas-Emissionsraten von Diesel-Fahrzeugen (aus <sup>[xiv]</sup>).

Fahrzeug-klasse	Reifenabrieb g/km	Bremsabrieb g/km	Straßen-Abrieb g/km	Non-Exhaust Summe g/km	Abgas (Diesel) g/km	Non-Exhaust % von Abgas
PKW	0,0064	0,0073	0,0075	0,021	0,06	35
LDV	0,0101	0,0115	0,0075	0,029	0,08	36
HDV	0,0270	0,0320	0,0380	0,097	0,40	24
<b>Gew. Mittel</b>						<b>30</b>

Zur Berechnung der Emissionen aus Verbrennungskraftmaschinen (Abgas) wurden die Ergebnisse einer Studie, die im Frühjahr 2005 im Kaisermühlentunnel / Wien durchgeführt

wurde, herangezogen. Die durchschnittlichen Ergebnisse für PM<sub>2,5</sub> (vorwiegend Abgas) für EC, OC und mineralische Komponenten sind in Tabelle 9 angegeben. Demnach kann aus dem EC<sub>D</sub> – Wert über die Beziehung: Abgas = EC<sub>D</sub> \* 1,33 der Abgasanteil (aus Diesel-Motoren) bestimmt werden. Der „mineralische“ Anteil von 8% stammt nach Literaturangaben nur zum Teil (<1%) aus Inhaltsstoffen des Motoröls und von Abriebsvorgängen im Motorbereich <sup>[xvi]</sup>.

Tabelle 9: Mittelwert von EC- und OC-Konzentrationswerte im Kaisermühlentunnel – Außenluft bereinigte Werte (Limbeck et al.2006<sup>xvii</sup>)

	PM <sub>2,5</sub>		
	mg/veh km	% PM <sub>2,5</sub>	% (EC+OM)
EC Abgas	18	69	75
OC Abgas	5	---	---
OM Abgas	6	23	25
Anorganisch	2	8	---
Summe	26	100	100
„Abgas“ = EC * f	f = 1,33		

Tabelle 10: Vergleich von Umrechnungsfaktoren von Levoglucosan auf Holzrauch-OC.

Sampling site	Fuel Type	EC mg/g von PM <sub>2,5</sub>	OC mg/g von PM <sub>2,5</sub>	Levoglucosan [mg/g OC]	K mg/g von PM <sub>2,5</sub>	Factor OC/ Levogl.	K/Levoglucosan ratio	Reference
Fire place NE – US	Hardwood		866	129	10,6	7,8	0,09	Fine et al. 2001
	Softwood		911	76,4	10,8	11,9	0,16	
Fire place South-US	Hardwood		787	136	8,7	7,4	0,08	Fine et al. 2002
	Softwood		1000	42,6	5,4	23,5	0,13	
Fire place MidW&W-US	Hardwood	20	767	183	8,9	5,5	0,06	Fine et al. 2004
	Softwood		890	123	3,5	8,1	0,03	
Wood stove US	Hardwood		553	164	17,4	6,1	0,05	Fine et al. 2004
	Softwood		620	353	7,5	2,8	0,03	
Wood stove Austria	Beech	191	513	79	2,1	12,6	0,05	Schmidl 2005
	Spruce	206	537	206	1,6	5,0	0,02	
Asian biomass fuel	Leaves, straw, dung, etc.	32,4	525	79	20	6,6	0,5	Sheesley 2003
Forest Fire SE US PM <sub>2,5</sub>	Pine dominated	39,2	603	95	5,7	10,5	0,1	Lee et al. 2005
Rec. Ave. US						7,35		
Rec. Average Austria PM <sub>10</sub>	70/20/10 MWA <sup>A</sup>	(150)*	519	180	1,7	5,6 <sup>§</sup>	0,02	

<sup>A</sup> Massengewichtetes Mittel bei 70/20/10 % Anteil Fichte, Buche und Briketts (Fichte)

\* Messwerte korrigiert (Verkohlung) <sup>§</sup> entspricht M<sub>H</sub>=Levo\*10,7 (aus Messung)

Levoglucosan ist ein Anhydrozucker, der sich bei der Verbrennung aus Cellulose bildet. Holzrauch enthält in wechselnden Anteilen Levoglucosan, im Mittel jedoch immerhin an die

10%. Die umfangreichsten Untersuchungen der Emission von Levoglucosan bei der Verbrennung von verschiedenen Holzarten in offenen Kaminen und Öfen wurde von der Gruppe von Philip M. Fine durchgeführt <sup>[xviii, xix, xx]</sup>. Diese frühen Arbeiten wurden an US-typischen Holzarten durchgeführt, oft nur mit einem einzigen Verbrennungstest für eine Holzsorte. Auch an unserem Institut wurden Verbrennungsversuche an einem Kachelofen mit typischen heimischen Holzsorten durchgeführt und die Emissionsrelation von Levoglucosan zu OC und PM10 bestimmt <sup>[xxi]</sup>. Der mittlere Umrechnungsfaktor lag dabei etwas unter dem empfohlenen Wert für die USA aus den Fine – Arbeiten.

Die Aufteilung der Quellengruppe Diesel-Emissionen in Anteile aus Verkehr und anderen fossile Quellen erfolgt in Verkehr- und Off-Road Anteile nach dem Schlüssel 3:1 <sup>[xxii]</sup>.

Nicht einfach und relativ unsicher ist die Ableitung eines EC-Wertes für Emissionen aus Kohlefeuerungen. Ein Haupt-Tracer ist zweifellos Arsen, dessen Emissionsrelation zur PM10 Emission bei Kohlefeuerungen zwischen 300 und 10.000 liegt. Für die Abschätzung, welchen Anteil Kohlerauch an PM10 an österreichischen Messstellen aufweisen dürfte, wurde der unterste Bereich von 300-1000 (aus der SPECIATE Datenbank) verwendet. Eine andere Quelle für Arsen wäre die Nichteisenmetall-Verhüttung, deren mögliche Einflüsse erst überprüft werden müssen.

Für von Pflanzenmaterial stammende Bio-Aerosole werden in den USA Alkanmuster als Tracer herangezogen. Aufgrund der Entwicklung der Cellulose-Analytik in PM10 an der TU Wien steht ein neuer Makrotracer zur Verfügung <sup>[xxiii]</sup>, mit einem Umrechnungsfaktor von 2 auf den Quellenbeitrag „Plant Debris“.

### 3.6 Zeitverläufe von PM10

Der PM10 Jahresverlauf an den AQUELLA Graz – Messstellen während der Untersuchungsperiode ist in Abbildung 12 dargestellt. Es zeigt sich, dass Überschreitungen des PM10-Grenzwerts für den Tagesmittelwert praktisch nur während der kalten Jahreszeit vorkommen. Von Mai – August liegen die Messwerte durchwegs unter 50 µg/m<sup>3</sup>. In der warmen Jahreszeit zeigt sich eine starke Parallelität der Kurvenverläufe. Auch an Überschreitungstagen zeigen sich typische Verläufe: Don Bosco und Graz Süd weisen oft ähnliche PM10 – Werte auf.

Die leicht erhöht gelegene Hintergrundmessstelle Bockberg ist einmal innerhalb der Inversion, ein andermal ragt sie darüber hinaus.



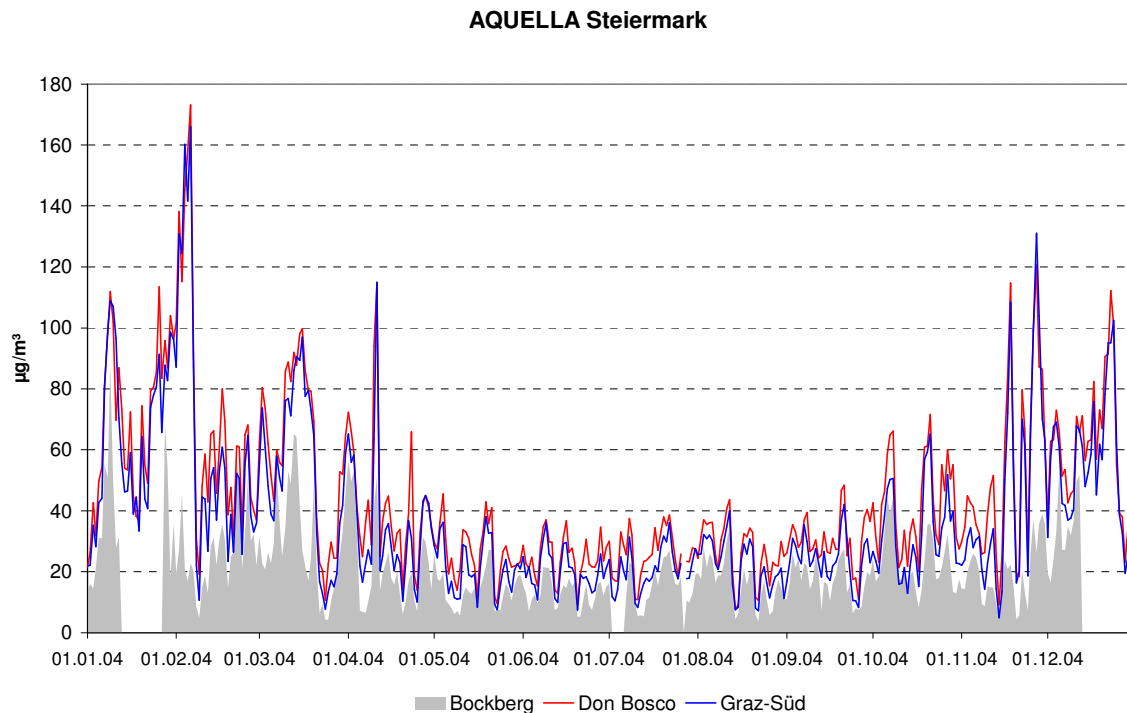


Abbildung 12: Verlauf der PM10 Tagesmittelwerte an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd. Jan.2004-Dez.2004.

Die Auswirkung des verringerten Luftaustausches während der kalten Jahreszeit aufgrund vermehrten Auftretens von Inversionswetterlagen kann anhand des Verlaufs von PM10 Inhaltstoffen von Quellen, deren Emissionsmuster sich zeitlich nur unbedeutend ändert, abgeleitet werden. Eine diesbezüglich bedeutsame Quelle stellt der Kfz-Verkehr dar. Limbeck et al. <sup>[xxiv]</sup> stellten anhand von Palladium-Messungen in Salzburg und Klagenfurt fest, dass der mittlere Wert während des Winterhalbjahres nur um 20% höher lag, als während der warmen Jahreszeit. Ähnliche Ergebnisse zeigen Schwermetalldaten von Wien. In einer 3-jährigen Messserie in New York City lag der maximale Unterschied bei „Elemental Carbon“ zwischen Sommer- (Juli, August, September) und Winterquartal (Jänner, Feber, März) bei 25%. Zwischen Sommer und Herbst (Oktober, November, Dezember) lag die maximale Differenz bei 50%, möglicherweise höher als im Winter aufgrund des Einflusses der Holzheizung <sup>[xxv]</sup>. Das bedeutet, dass der überwiegende Anteil der Zunahme von PM10 während der kalten Jahreszeit auf zusätzliche winterspezifische Quellen zurückzuführen ist.

Das Verhalten der PM10 – Konzentrationswerte während einer Belastungsepisode (März 2004) und während eines Sommermonats (Juni) ist in Abbildung 13 und Abbildung 14 dargestellt.

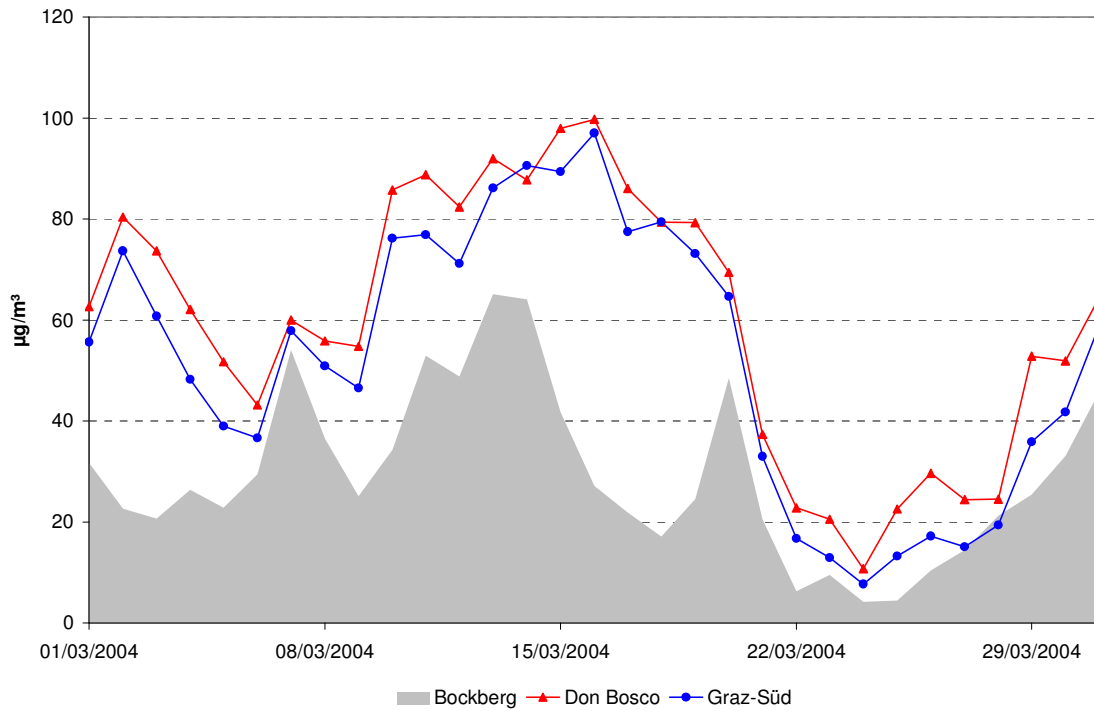


Abbildung 13: Verlauf der Tagesmittelwerte von PM10 im Mai 2004 an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd

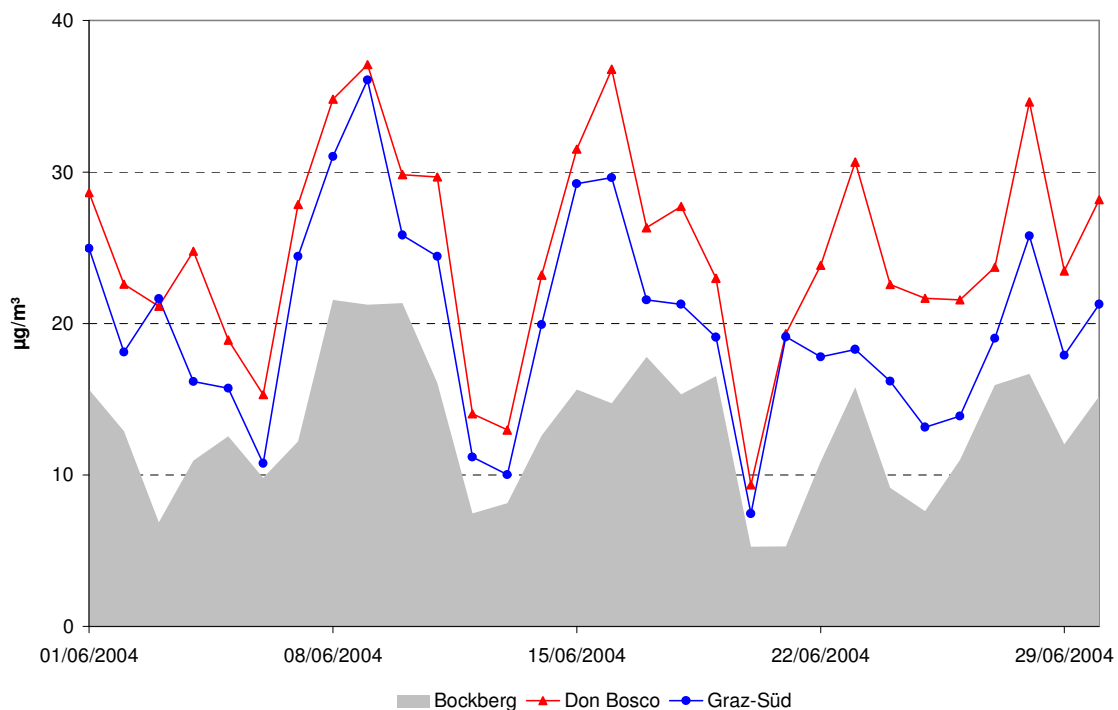


Abbildung 14: Verlauf der Tagesmittelwerte von PM10 im Juli 2004 an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd

An Tagen mit geringen PM10-Konzentrationen sind die Verläufe der PM10-Konzentrationen in Graz Süd und am Bockberg einander sowohl im März, als auch im Juni recht ähnlich. An

Überschreitungstagen setzt sich die Belastung in der Stadt von den Werten am Bockberg deutlich ab (März 2004). Diese „Entkopplung“ ist an den Grazer Messstellen in Überschreibungsperioden während der ganzen Untersuchungsperiode deutlich ersichtlich (Abbildung 12).

### 3.7 Analysenergebnisse / Quellen

Straßenstaubproben wurden in Graz an den AQUELLA – Messstellen zweimal beprobt (Tabelle 11, Abbildung 15 und 16). 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. Am Bockberg besteht der Straßenstaub zum überwiegenden Teil aus Silikaten (96%).

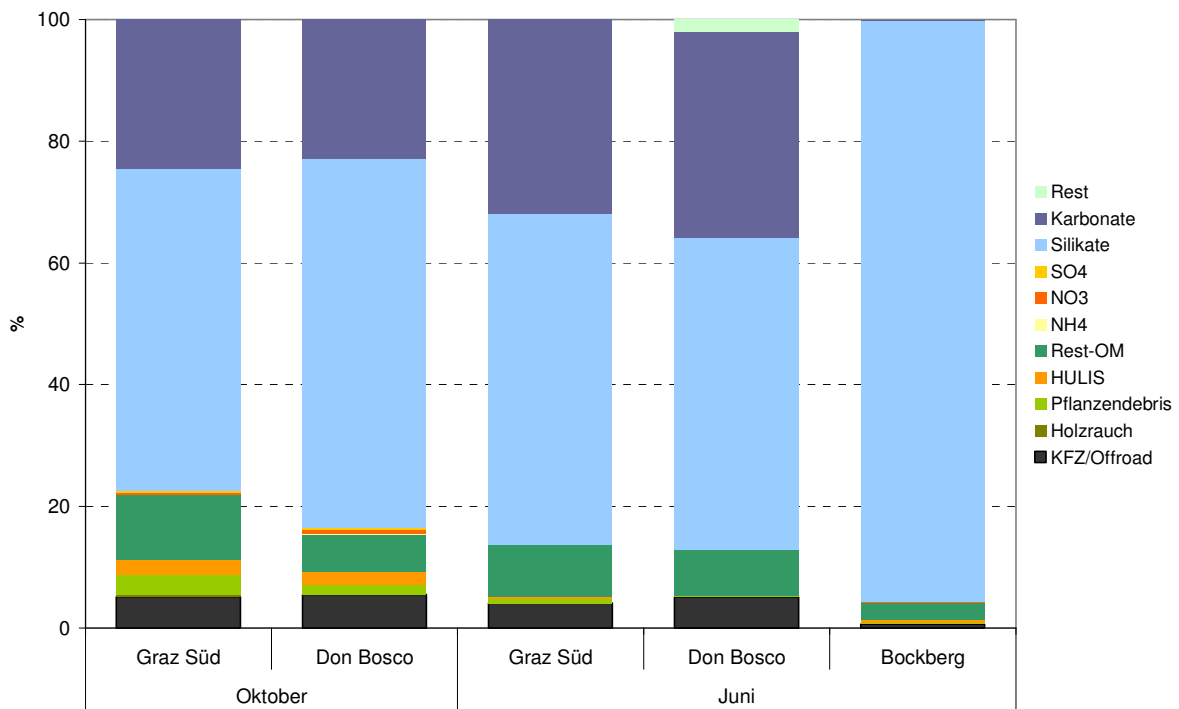


Abbildung 15: Zusammensetzung der Straßenstäube an Grazer Messstellen, geordnet nach Jahreszeiten.

Tabelle 11: Probenahme von Straßenstäuben neben den Messstellen

Messstelle	Probenahme Herbst	Probenahme Sommer
Don Bosco	25.10.2003	15.06.2004
Graz Süd	25.10.2003	15.06.2004
Bockberg	---	15.06.2004

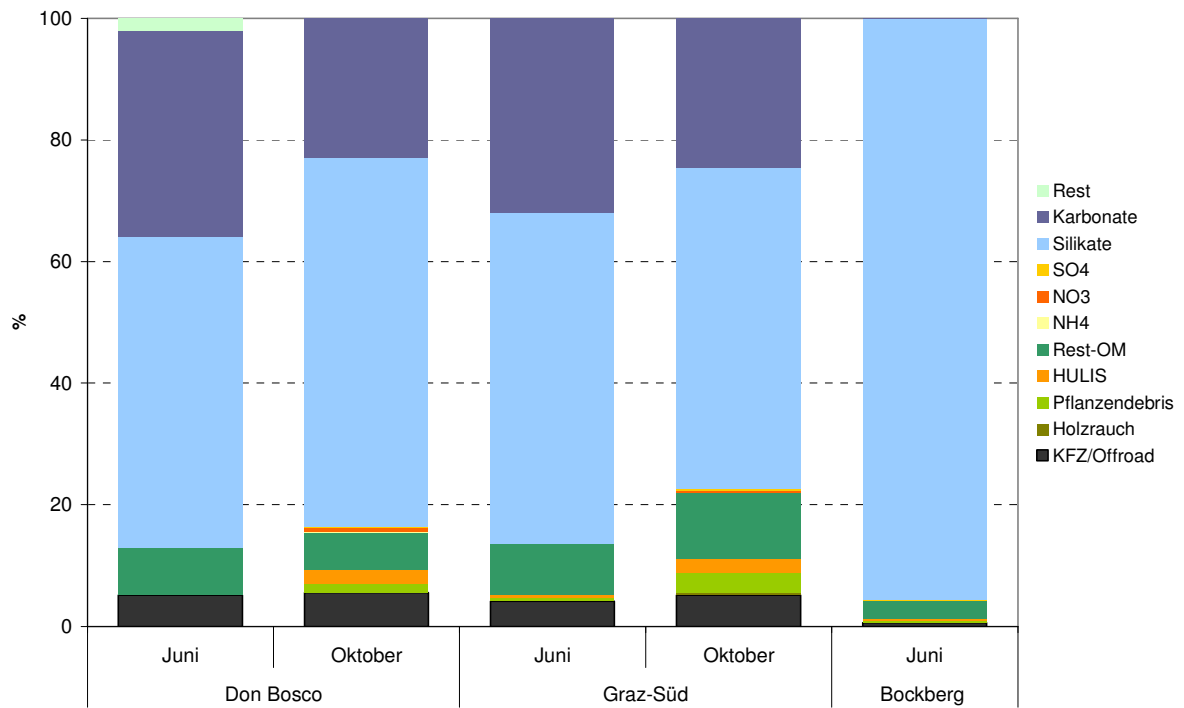


Abbildung 16: Zusammensetzung der Straßenstäube an Grazer Messstellen, geordnet nach Sammelorten.

### 3.8 Analysenergebnisse Raum Graz

Als Überschreitungstage wurden jene Tage definiert, an welchen an der Messstelle Don Bosco PM10 Messwerte über  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lagen. In der Folge werden die Analysenergebnisse für ausgewählte Fälle angegeben. Die Ergebnisse im Detail sind im Datenband angeführt.

#### 3.8.1 Monatsmittelwerte an Überschreitungstagen

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 Metalle Si, Al, Ca und Fe.

Tabelle 12: Mittelwerte der Analysenergebnisse für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den Messstellen Don Bosco und Bockberg, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte am Don Bosco und Bockberg.  $\text{OM}=\text{OC}\cdot 1,7$ ;  $\text{Silikate}=\text{Si}\cdot 2,7$ ;  $\text{Karbonate}=\text{Ca}\cdot 2,5$ .

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

<b>Graz Süd</b>	$\mu\text{g}/\text{m}^3$							
Monat	PM10	EC	OM	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Silikate	Karbonate
Jänner	64,0	6,9	29,4	3,2	7,2	4,7	keine Daten	3,1
April	34,6	3,5	13,9	1,8	1,8	4,0	keine Daten	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

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

Die Ergebnisse der wichtigsten Makrokomponenten für vier charakteristische Monate zeigt Tabelle 12. Für OM wird der Umrechnungsfaktor von 1,7 angewendet; Silikat wird aus  $\text{Si}\cdot 2,7$  berechnet, entsprechend dem Vorkommen von Si in der Erdkruste; Karbonate werden vom Wert des säurelöslichen Kalziums mit dem Faktor 2,5 abgeleitet.

Die Daten geben Einblick in die saisonale Variation der Makrokomponenten. Da EC und OM aus verschiedenen Quellen stammen, wird hier nicht näher auf die Konzentrationswerte der

kohlenstoffhaltigen Komponenten eingegangen. 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. 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 Besonderheiten auf: Minima im Sommer, deutlich höhere Werte an den städtischen verkehrsnahen Messstellen.

### 3.8.2 Metalle

Die „Metalle“ werden im CMB Modell eingesetzt. Gegenüber Messdaten vor 20 Jahren hat die entsprechende Belastung in Europa stark abgenommen. Der Ausdruck Schwermetalle wird an sich für jene potentiell toxischen Metalle verwendet, die nicht Gestein bildend sind. Tatsächlich sind die Grenzen nicht scharf gezogen: a) Alle Metalle weisen auch einen geogenen Anteil auf; b) die potentiell toxischen Metalle gehören nicht alle den Schwermetallen (Dichte über 5 kg/dm<sup>3</sup>) an.

In Abbildung 17 sind die Schwermetalle an der Messstelle Don Bosco für die Monatsmittel der Überschreitungstage dargestellt. In absteigender Konzentration treten auf: Zink, Kupfer / Mangan, Blei und Barium. Titan ist den geogenen Komponenten hinzuzuzählen, bzw. kann als Pigment im weißen Farbstoff in der Straßenmarkierung und in Verputzen eine Rolle spielen. Im Hintergrund dominiert Zink, das auch aus biogenen Quellen stammen kann.

AQUELLA Steiermark: Don Bosco

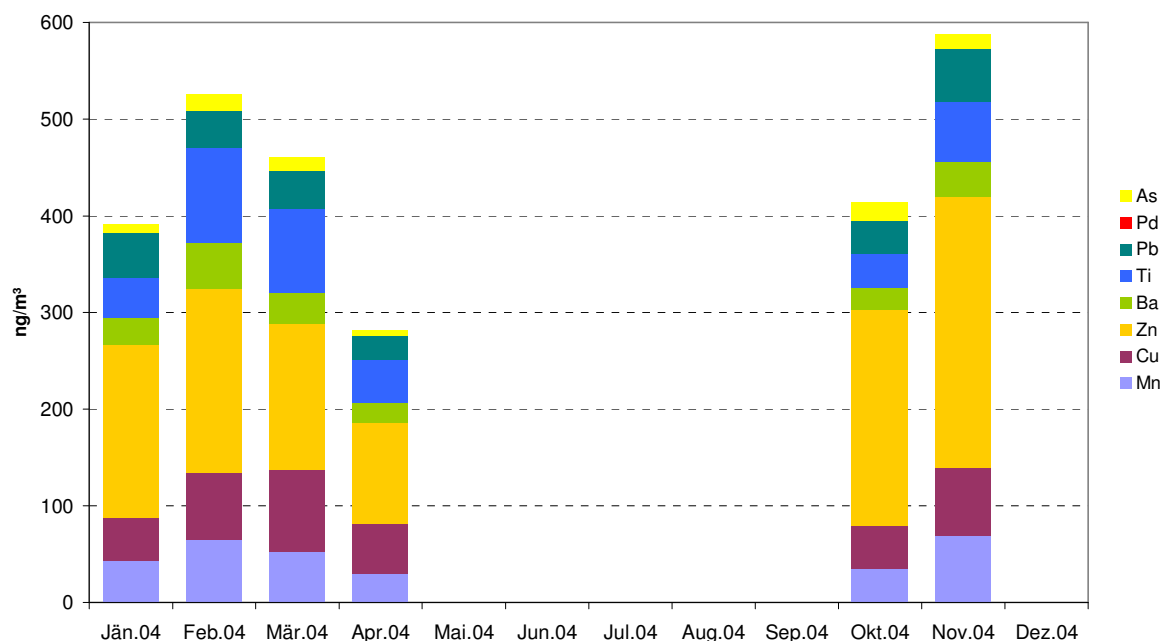


Abbildung 17: Schwermetalle in PM10 an Überschreitungstagen 2004 / Monatswerte an der Messstelle Graz Don Bosco

Tabelle 13: Konzentrationswerte in von Schwermetallen in Graz und Wien 2004 (diese Arbeit), Graz Süd 2000/2001 und Wien AKH 1999/2000 [x] und in München ca. 20 Jahre davor [xxvi] (als Vergleich mit früherer, höherer Metallbelastung).

ng/m³	As	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb	V	Zn
Graz Don Bosco * 2004 PM10	--	0,6	--	1	34	1135	28	7	24	2	148
Wien Rinnböckstraße* 2004 PM10	1	0,4	--	3	20	745	14	9	11	2	46
Graz Süd** „AUPHEP“ 2000/01 PM10	1	0,5	0,1	1	11	166	10	1	28	1	69
Wien AKH** „AUPHEP“ 1999/00 PM10	1	0,4	0,1	1	11	190	7	2	22	2	34
München*** 1981/82 TSP	6	2	1	30	150	2700	63	12	860	9	190

\* Druckaufschluss

\*\* Säureextrakt

\*\*\* Totalaufschluss drucklos

Tabelle 14: Konzentrationswerte von Schwermetallen in Graz 2004 – AQUELLA – Messstellen; Messperiodenmittel bzw. JMW; bei Don Bosco Winter- und Sommerhalbjahr; Winter/Sommer – Verhältnis.

	As	Ba	Cd	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb	Sb	Ti	V	Zn
<b>Bockberg</b>													
Mittel Jan-April	k.A.	2,9	0,6	<N	5,2	192	9,0	3,9	8,5	k.A.	10	2,3	33
„Winter“ (Jan-März)	k.A.	3,5	0,6	<N	4,3	184	8,5	4,0	8,9	k.A.	14	2,1	37
„Frühjahr“ (April)	k.A.	1,3	0,6	<N	7,8	214	11	3,6	7,4	k.A.	1,5	2,7	20
<b>Don Bosco</b>													
JMW	k.A.	19	0,6	0,8	34	1135	28	6,6	24	k.A.	34	2,0	124
Winter (Okt-März)	k.A.	25	0,6	1,6	45	1433	37	7,3	32	k.A.	49	3,2	143
Sommer (April-Sept)	k.A.	14	0,6	0,2	25	902	21	6,1	17	k.A.	22	1,1	106
Winter/Sommer		1,8	1,1	6,9	1,8	1,6	1,7	1,2	1,9		2,2	3,0	1,3
<b>Graz Süd</b>													
Mittel Mai-Nov	0,8	13	<N	9,0	15	589	16	9,3	12	0,5	76	0,8	87
„Herbst“ (Okt-Nov)	0,3	12	<N	5,0	22	917	20	13	18	0,5	38	1,5	111
„Sommer“ (Mai-Sept)	0,9	14	<N	10	13	492	15	8,3	10	0,5	88	0,6	80

Bockberg wurde vom 1. Jänner bis 5 Mai beprobt.

Don Bosco: keine Werte für Dezember.

Graz Süd wurde von Mai bis Mitte Nov beprobt.

<N unter der Nachweisgrenze

k.A. keine Auswertung

### 3.8.3 Organische Tracer

Für die Anwendung im CMB Modell wurden auch organische Tracer in den Proben analysiert. In Abbildung 18 sind Ergebnisse für Überschreitungstage in Graz für die nicht polaren Komponenten angeführt. Nach den US-Profilen kommen relativ gleichverteilte Alkane in Bezug auf die C-Anzahl v.a. bei Verbrennung fossiler Brennstoffe vor, die Alkane mit ungeradzahligem C stammen vorwiegend aus Pflanzenwachsen und deuten auf biogene Anteile („Vegetative Detritus“), möglicherweise auch bei Verbrennung von Laub- oder Nadeln tragenden Baumteilen. Reten ist ein Tracer für Biomasse-Verbrennung. Die weiteren PAH sind Kfz-Abgas-, Holzverbrennungs- und zum Teil Gasverbrennungs-Tracer. Organische Säuren stammen aus vielfältigen Quellen, einschließlich sekundären.



**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Don Bosco**

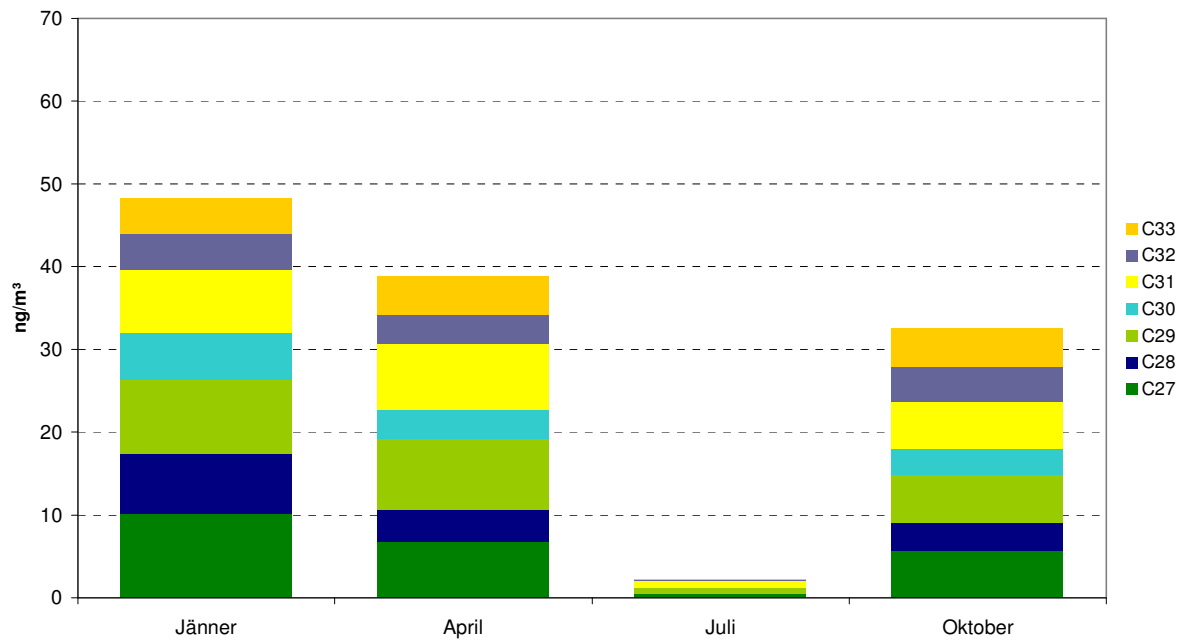


Abbildung 18: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Don Bosco

**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Graz-Süd**

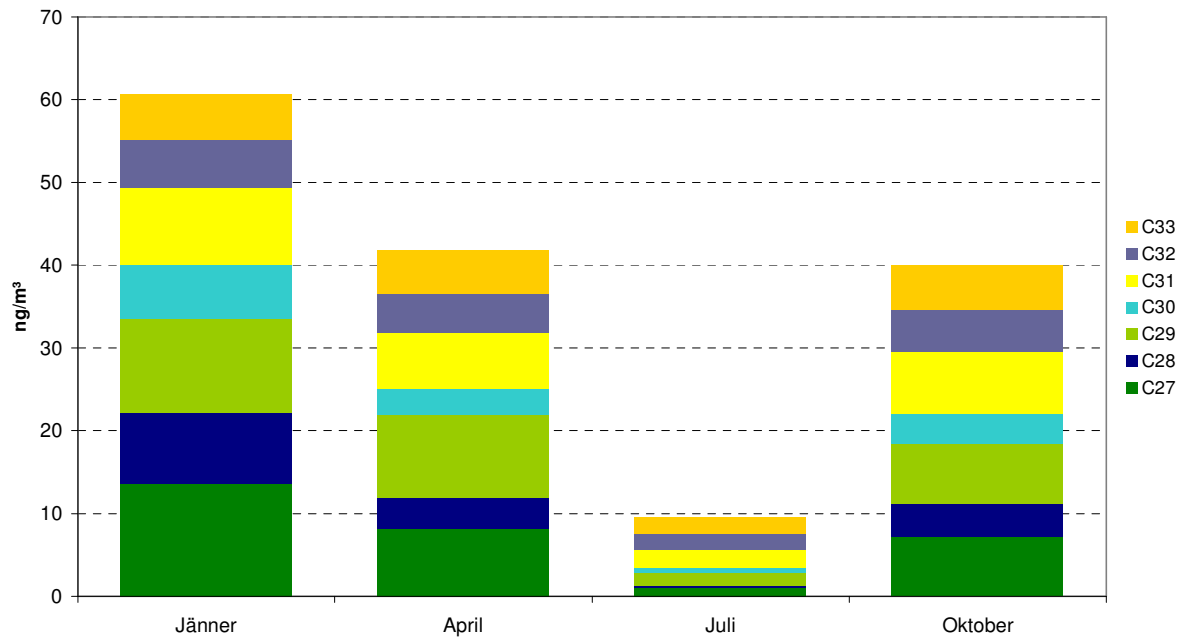


Abbildung 19: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Graz Süd

**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Bockberg**

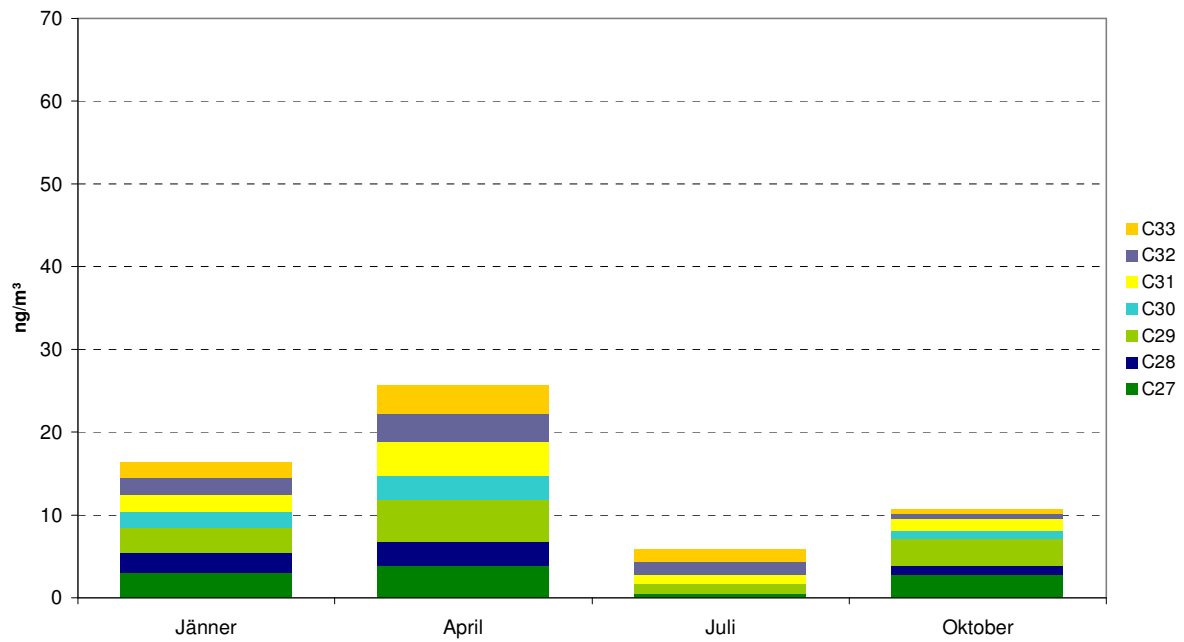


Abbildung 20: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Bockberg

**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Don Bosco**

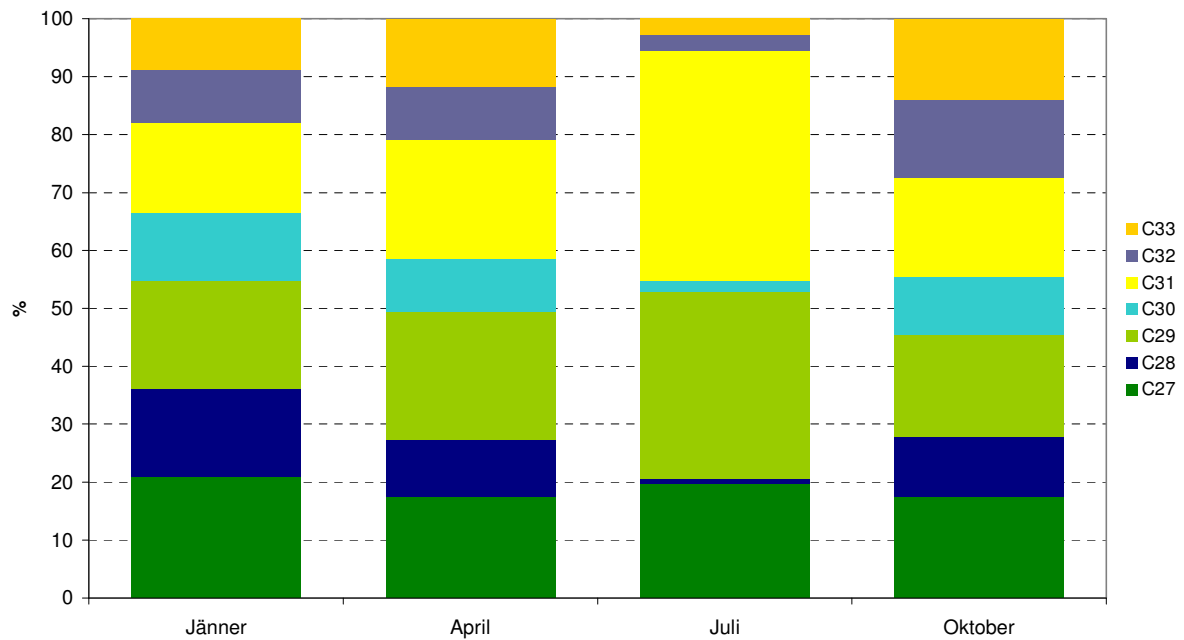


Abbildung 21: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Don Bosco

**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Graz-Süd**

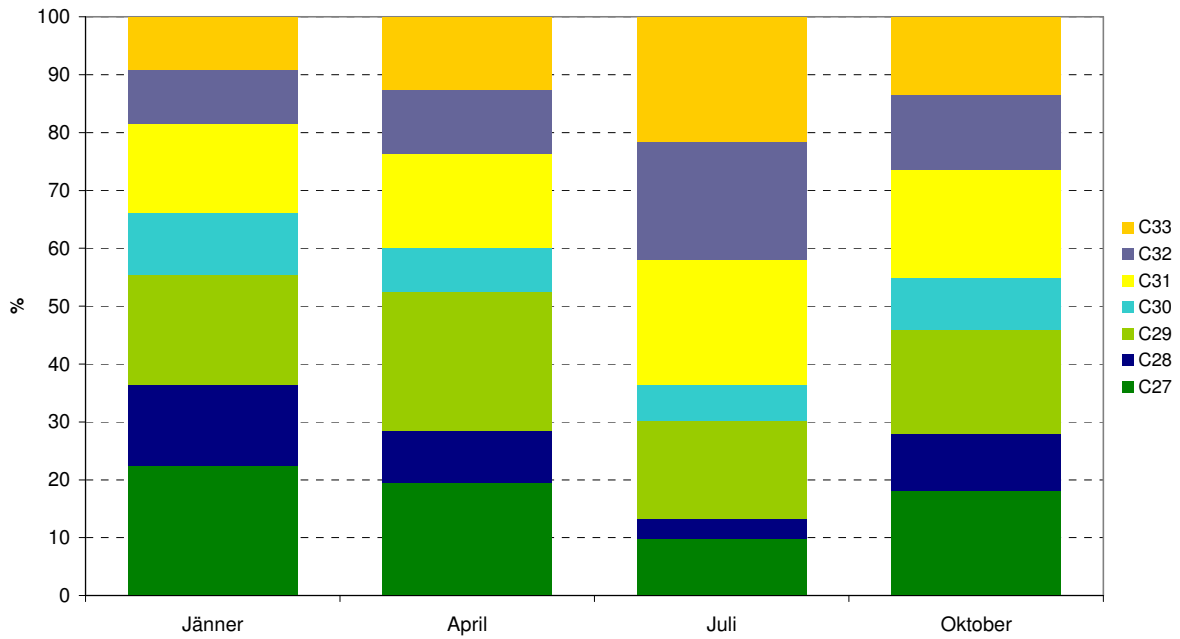


Abbildung 22: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Graz Süd

**AQUELLA Steiermark: n-Alkane an der Messstelle Bockberg**

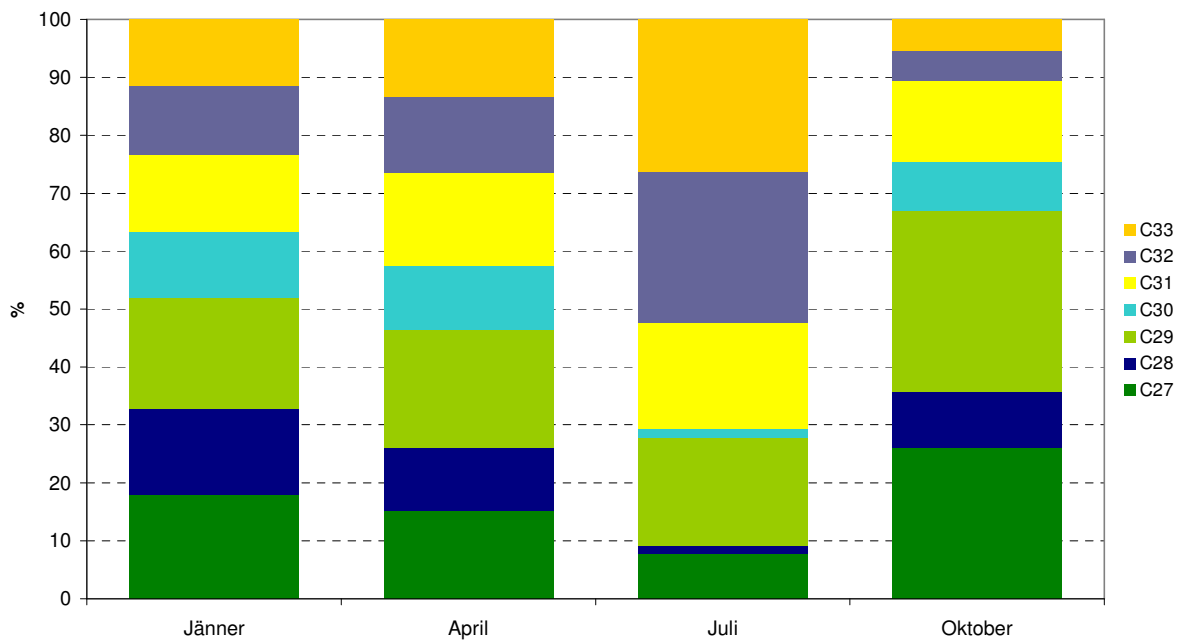


Abbildung 23: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Bockberg

**AQUELLA Steiermark: PAH an der Messstelle Don Bosco**

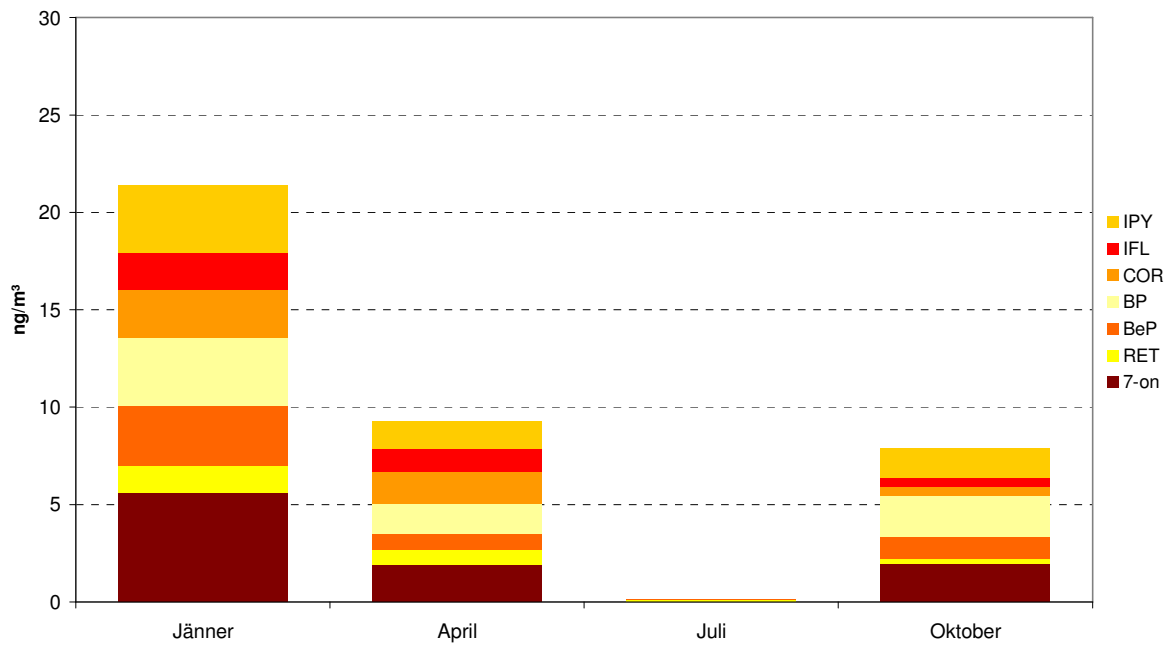


Abbildung 24: Vergleich der PAH an der Messstelle Don Bosco – 4 Monate

**AQUELLA Steiermark: PAH an der Messstelle Graz-Süd**

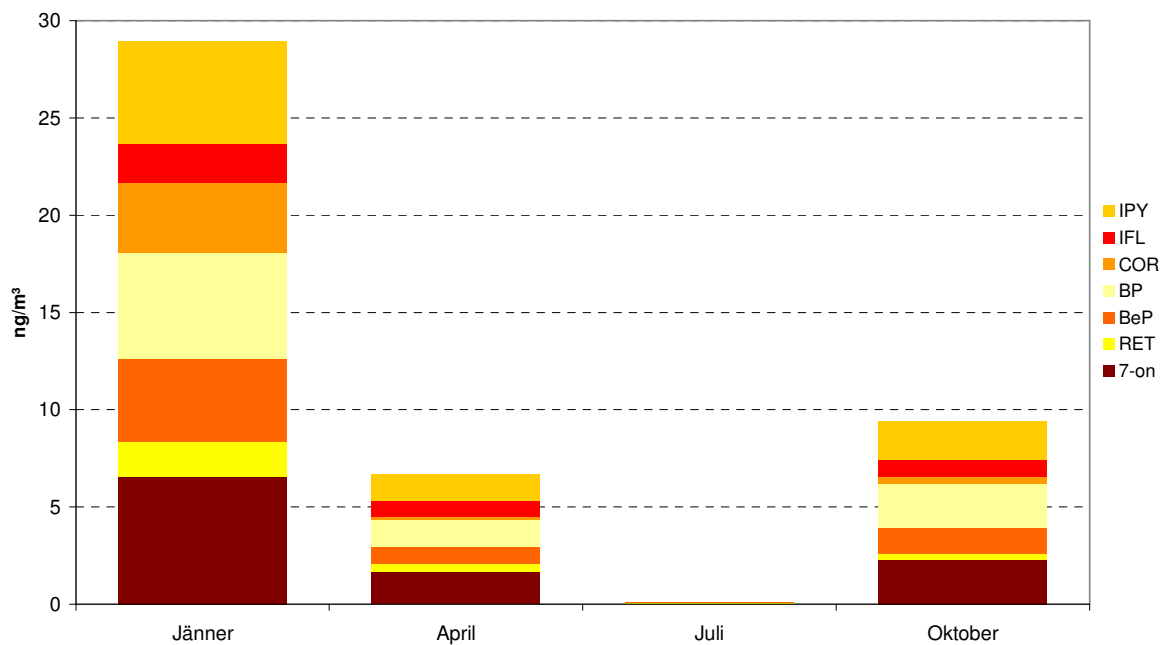


Abbildung 25: Vergleich der PAH an der Messstelle Graz-Süd – 4 Monate

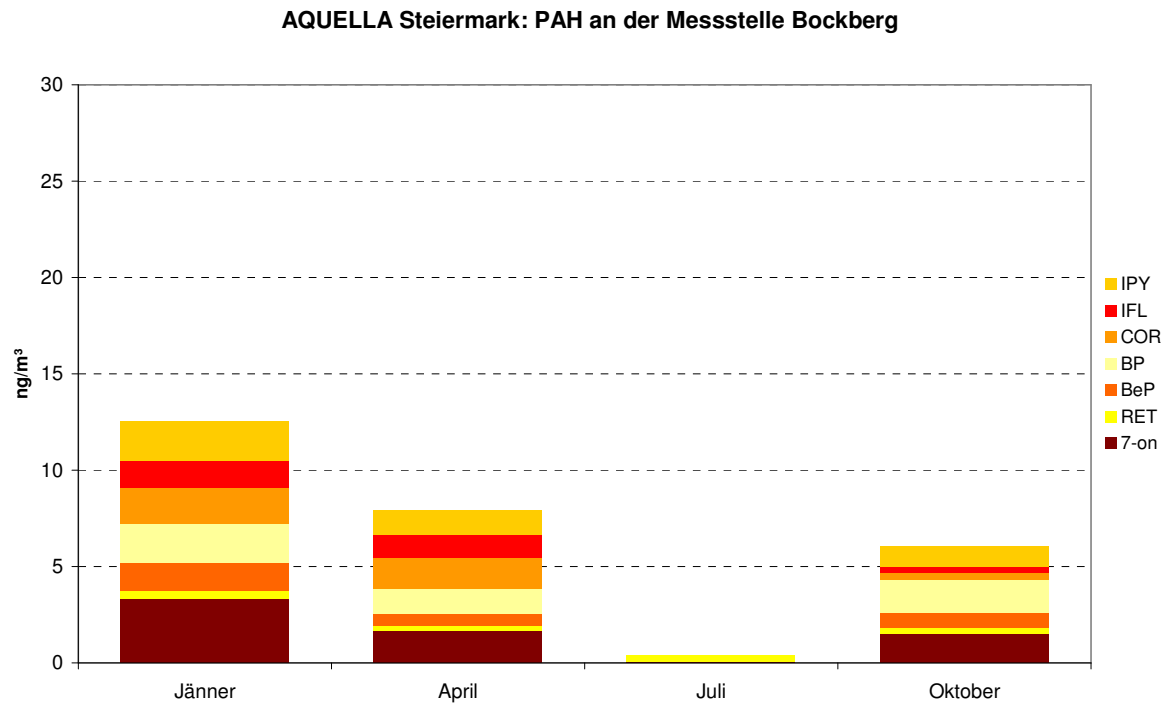


Abbildung 26: Vergleich der PAH an der Messstelle Bockberg – 4 Monate

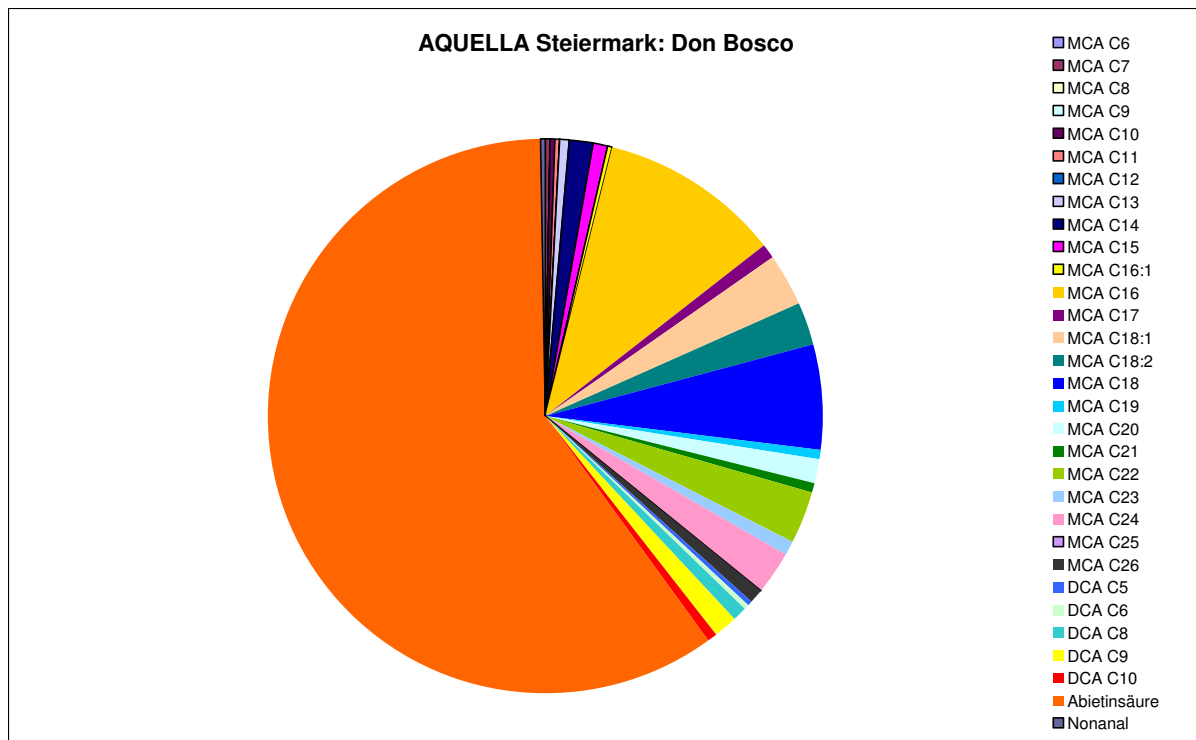


Abbildung 27: Mittelwerte der polaren Tracerkomponenten an Überschreitungstagen bzw. Perioden in Graz Don Bosco

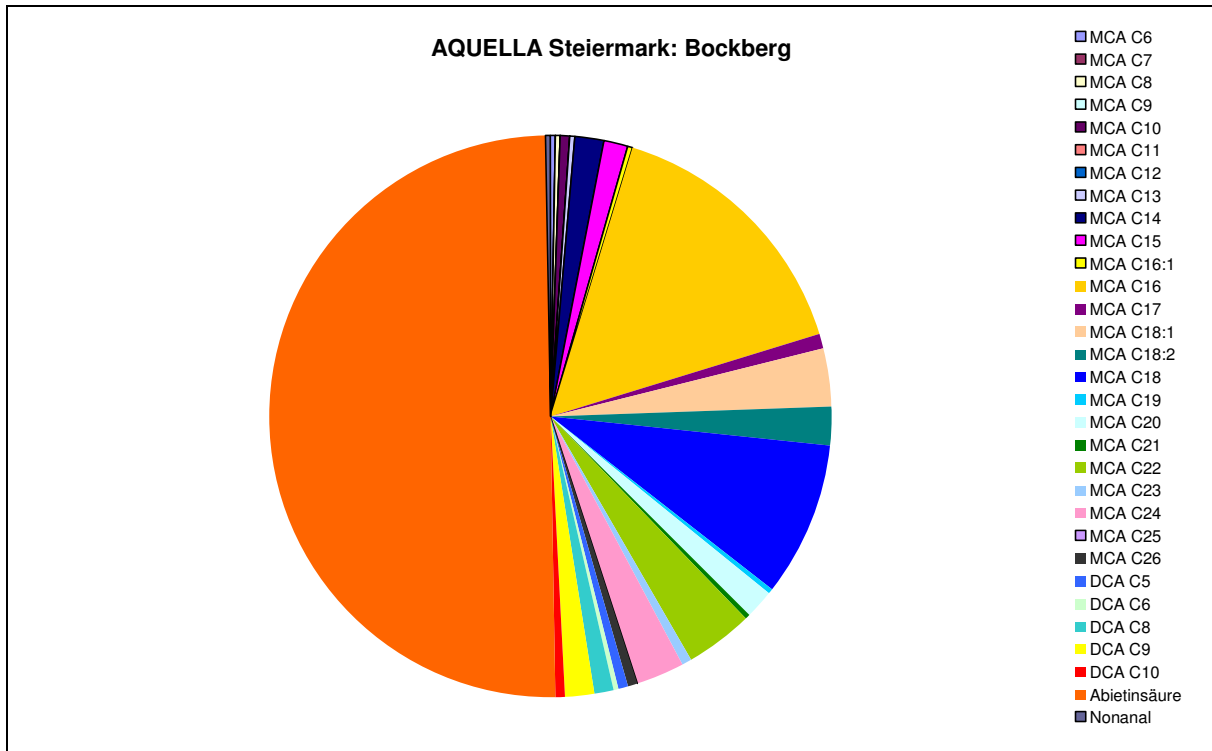


Abbildung 28: Mittelwerte der polaren Tracerkomponenten an Überschreitungstagen bzw. Perioden in Graz Bockberg

Von den apolaren Verbindungen weisen die untersuchten n-Alkane und PAH deutliche jahreszeitliche Unterschiede in den Konzentrationswerten und den Mustern auf.

Die n-Alkane werden bei Verbrennung fossiler Brennstoffe und aus natürlichen Quellen freigesetzt, allerdings in völlig anderen Mustern. Bei Quellen, die auf fossile Rohmaterialien zurückzuführen sind, liegen Alkane mit gerader und ungerader Anzahl von C-Atomen in vergleichbaren Konzentrationen vor – insbesondere bei in Bezug auf die C-Atome benachbarten Verbindungen. Aus der Natur stammende Alkane hingegen weisen ein Muster mit vorwiegend ungeradzahligem C-Atomen auf. Aus dem Verhältnis der Konzentrationen von ungeraden zu geraden C-Atomen ergibt sich der Carbon Preference Index („CPI“), mit welchem auf das Mischungsverhältnis von Beiträgen fossiler und biologischer Quellen zur Alkan-Konzentration geschlossen werden kann. An den Grazer AQUELLA Messstellen liegen während der kalten Jahreszeit deutlich höhere Alkan-Konzentrationswerte vor, als in der warmen (Abbildung 18-Abbildung 23). Im Winter sind Alkane mit geradzahligem C-Atomen ähnlich konzentriert, wie ungeradzahlige, selbst an der Messstelle am Stadtrand Graz Bockberg (Abbildung 20, Abbildung 23). Von April bis Oktober verschieben sich die Anteile und weisen im Sommer insbesondere an der Messstelle am Stadtrand ein biogen dominiertes Muster auf, das v.a. in der relativen Darstellung (Abbildung 23) besonders deutlich wird.

Das Auftreten von PAH in der Grazer Luft ist einer dramatischen Saisonalität unterworfen: Die Konzentration im Jänner ist um Größenordnungen höher als im Juli – sowohl am Stadtrand wie auch in der Stadt. Ein Teil des Unterschieds kann auf unterschiedliche

Verweilzeiten der PAH im Sommer und im Winter zurückgeführt werden. Überwiegend scheinen sich aber die Quellen auszuwirken. Bei Erdgasverbrennung werden zwar nur sehr geringe Anteile an PM10 emittiert, es kommt jedoch zu einer Emission bestimmter PAH, die als Tracer für Erdgasverbrennung fungieren können. Einer jener Tracer, die bei Erdgasverbrennung emittiert werden, ist Benzo(de)anthracen-7-on. Aus Abbildung 24 und Abbildung 25 ist ersichtlich, dass diese Komponente (abgekürzt als 7-on) wie auch die weiteren PAH, die aus verschiedenen anderen Verbrennungsprozessen wie Biomasseverbrennung, Kohleverbrennung und Verbrennungsmotor-Emissionen stammen können, einen sehr deutlichen Jahresgang aufweisen und überwiegend aus der Raumwärmeerzeugung und anderen kleinen Quellen stammen dürften. Reten ist ein Holzrauchtracer und wird vorwiegend bei der Verbrennung von Nadelholz gebildet.

Das Spektrum der polaren organischen Verbindungen ist sehr vielfältig. Von den Verbindungen sind jedoch zahlreiche, wie z.B. viele Dicarbonsäuren, sekundär gebildet und daher nicht für die Quellenanalyse verwendbar. Aus dem untersuchten Spektrum herausragend sind die Abietinsäure (aus Holzverbrennung/Nadelhölzer), Palmitin- und Stearinsäure (aus verschiedenen Quellen) (Abbildung 27 und Abbildung 29). Als spezielle Tracer fungieren für „Küchendämpfe“ Hexadecen-9-säure und Nonanal, für Holzverbrennung Abietinsäure (Nadelhölzer).

#### 3.8.4 Zeitverläufe

##### **Zeitverläufe des silikatischen Mineralstaubs**

Von den zu untersuchenden Komponenten müssen jene, die mit Röntgenfluoreszenzanalyse sowie mit der Thermographie bzw. Verbrennungsanalyse bestimmt werden, als Tagesproben analysiert werden. Somit liegen für jene Komponenten Tageswerte vor, die mit den PM10-Tageswerten verglichen werden können. Im Falle des Siliziums kann dieses als Tracerelement für silikatische Stäube herangezogen werden. Der Umrechnungsfaktor von Si auf silikatisches Material ist 2,7 (siehe auch Tabelle 7).

Die Zeitverläufe sind in den Abbildungen (Abbildung 29 – Abbildung 32) dargestellt; die Monatsmittel der relativen Silikatstaubanteile enthält Tabelle 15.

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco**

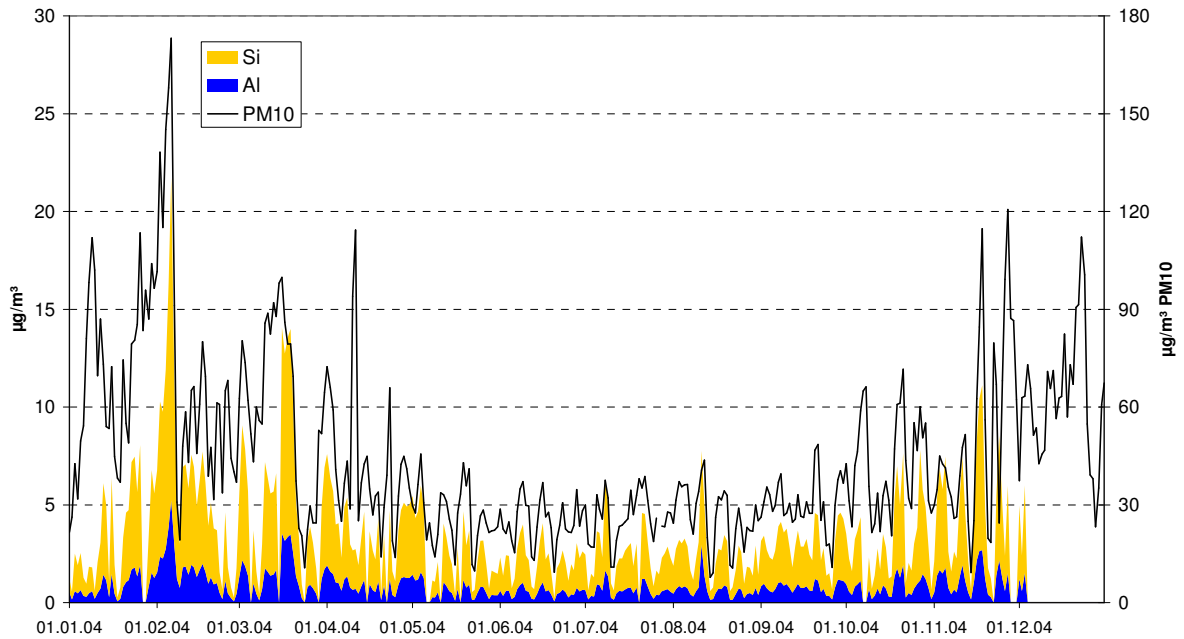


Abbildung 29: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Don Bosco, Jan-Dez 2004.

**AQUELLA Steiermark: Graz-Süd**

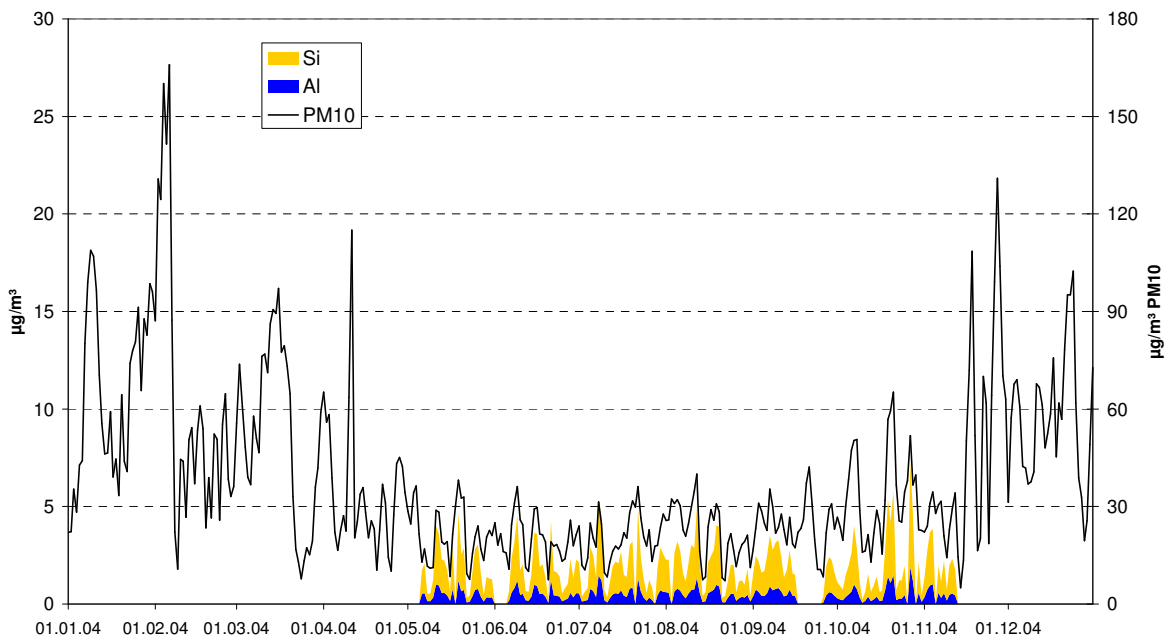


Abbildung 30: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Graz Süd, Jan-Dez 2004



**AQUELLA Steiermark: Bockberg**

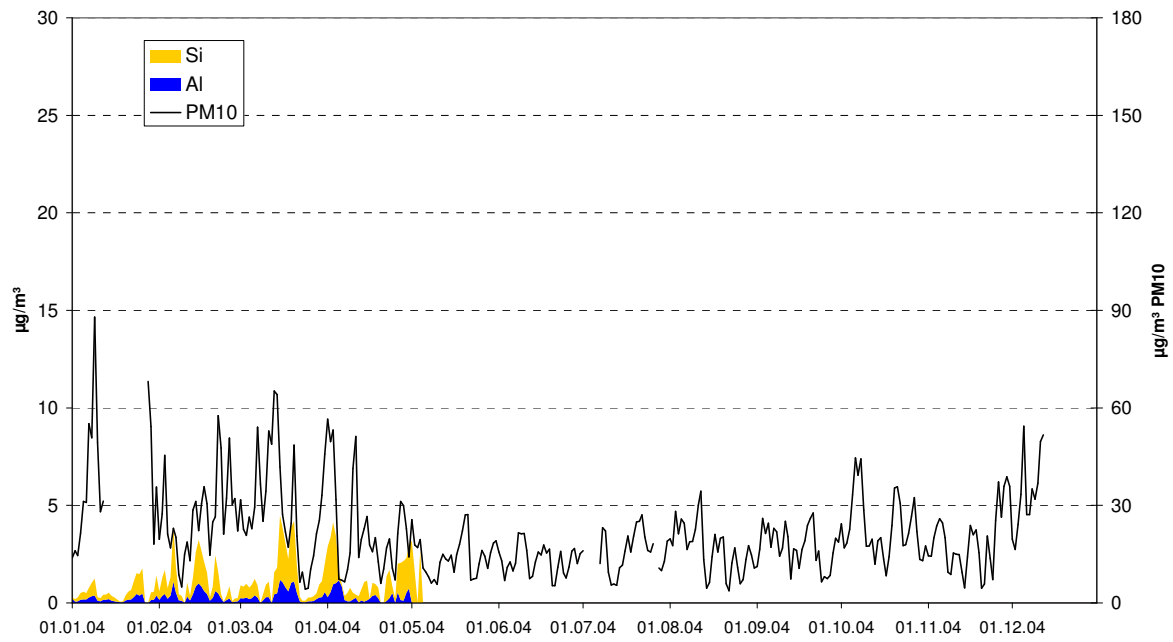


Abbildung 31: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Bockberg, Jan-Dez 2004.

**AQUELLA Steiermark**

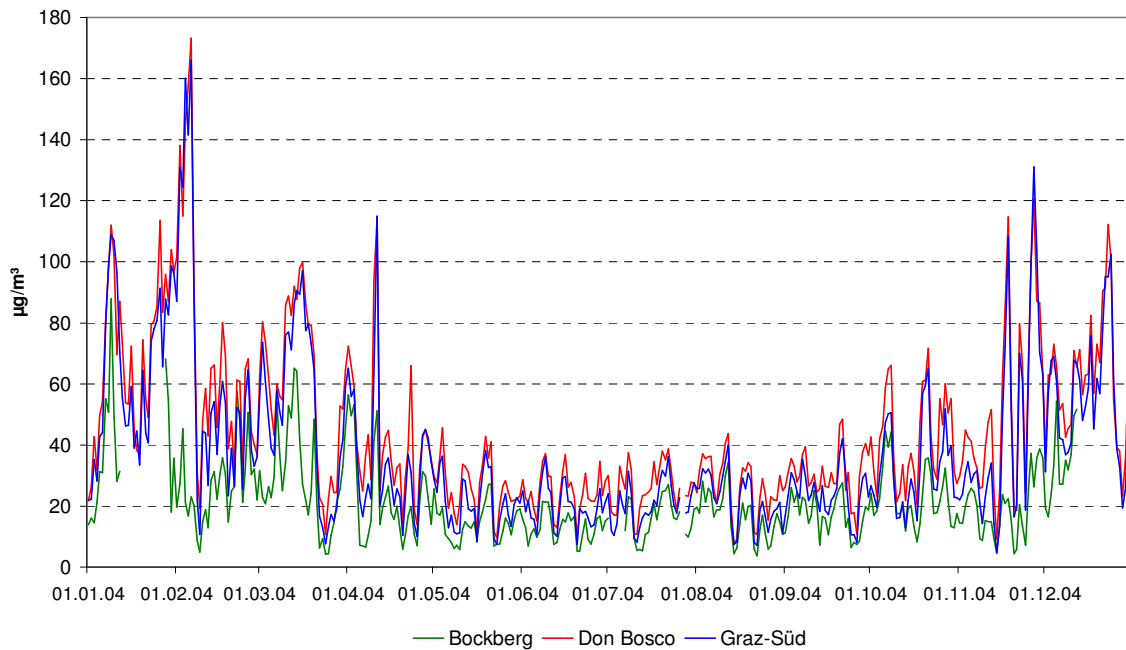


Abbildung 32: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10 an den Grazer Messstellen Bockberg, Don Bosco, Graz Süd; Jan-Dez 2004.

AQUELLA Steiermark

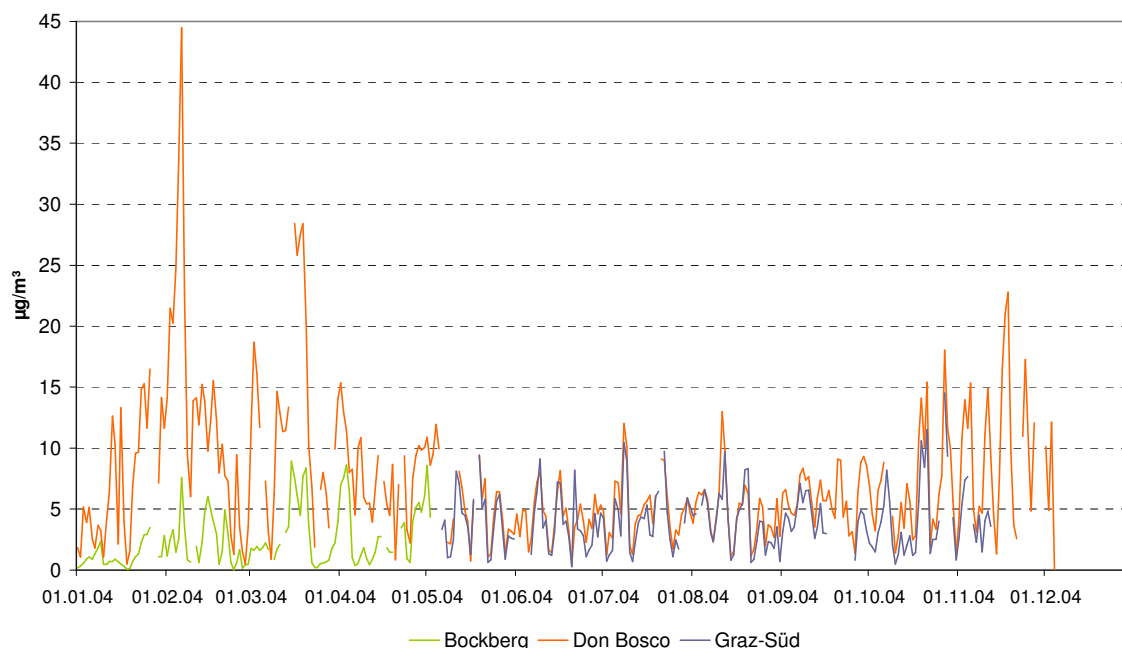


Abbildung 33: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von silikatischem Staub an den Messstellen Bockberg, Don Bosco, Graz Süd; Jan-Dez 2004.

Tabelle 15: Monatsmittel des Silikatanteils (Si\*2,7) in % von der PM10-Konzentration:

	Don Bosco	Graz-Süd	Bockberg
Jänner	9		3,2
Februar	19		9,5
März	21		10
April	18		13
Mai	21	19	32*
Juni	17	17	
Juli	20	19	
August	18	17	
September	20	18	
Oktober	16	12	
November	19	16	
Dezember			
Max	51 (11.8.04)	43 (25.5.04)	43 (30.4.04)
Min	0,2 (10.1.04)	3,0 (13.9.04)	0,1 (28.1.04)

\* 4 Messwerte, dann wurde der Low-Vol-Sammler nach Graz-Süd verlegt

Durchaus überraschend ist das Ergebnis des in weiten Teilen parallelen Verlaufs der Silikatstaub – Werte von PM10 an auseinander liegenden Messstellen (Abbildung 33). Die Ursachen hierfür sind nicht bekannt. Dennoch dürften sowohl relativ großräumige

Phänomene als auch lokales Einwirken für einen längerfristigen Parallel – Lauf der Silikatstaub – Werte an den Messstellen in Graz verursachend wirken.

Die relativen Silikatstaubanteile liegen im Monatsmittel an der Messstelle Don Bosco im Bereich von 9-21%; an der Messstelle Graz-Süd im Bereich 12-19% und an der Messstelle Bockberg im Bereich von 3,2-13%, jedoch nur in einem Beobachtungszeitraum von 4 Monaten. Die Ergebnisse zeigen, dass auch während der warmen Jahreszeit, bei deutlich geringeren PM10 – Werten, als während der kalten Jahreszeit, ähnliche relative Anteile der silikatischen Mineralstaubwerte auftreten. Vorgänge, die zu besonderen Anreicherungen der silikatischen Anteile führen (wie im Feber und März 2004 an der Messstelle Don Bosco, Abbildung 29) müssen noch untersucht werden. Speziell zu prüfen ist ein möglicher Zusammenhang mit Trockenperioden nach Splittstreuung, und mit Aufräumvorgängen des Splitt-Materials.

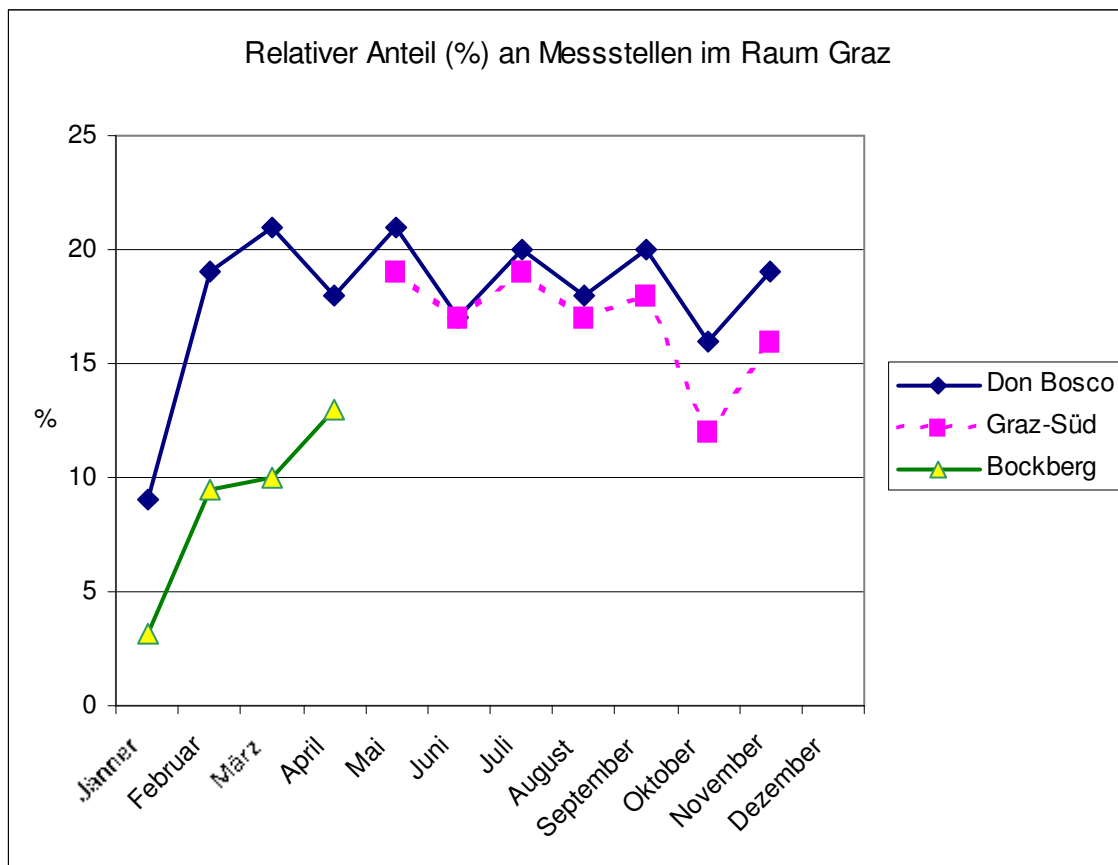


Abbildung 34: Zeitlicher Verlauf des relativen Anteils von silikatischem Material in PM10 an Grazer Messstellen, Zeitraum Jan-Dez 2004

### Zeitverläufe EC und OC

Auch von EC und OC wurden Tagesproben analysiert. Die Zeitverläufe von EC und OC an den Grazer AQUELLA Messstellen sind in den Abbildungen 33-35 dargestellt. Im Vergleich zu silikatischem Material sind während der warmen Jahreszeit ebenfalls ausgeprägte Wochengänge erkennbar. Des Weiteren ist der Verlauf oft parallel zur Massenkonzentration (die Achsen in den Abbildungen sind im Verhältnis 1:2 dargestellt). Die Summe von EC und

OC beträgt im Mittel ein Drittel, fallweise bis zur Hälfte der Massenkonzentration. An der Hintergrundmessstelle liegt ein niedrigerer Absolutwert vor, der Verlauf im Vergleich zu PM10 ist wiederum gleichartig, mit einem Verhältnis von rund 1:4 bis 1:2 (EC und OC gegenüber PM10).

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco**

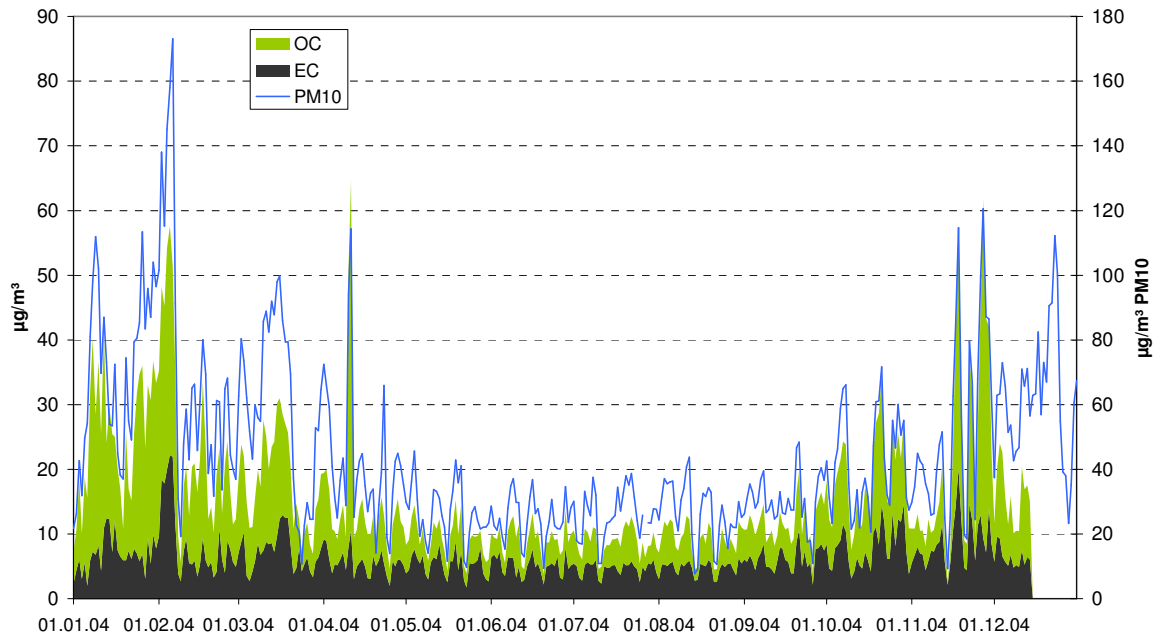


Abbildung 35: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Don Bosco

**AQUELLA Steiermark: Graz-Süd**

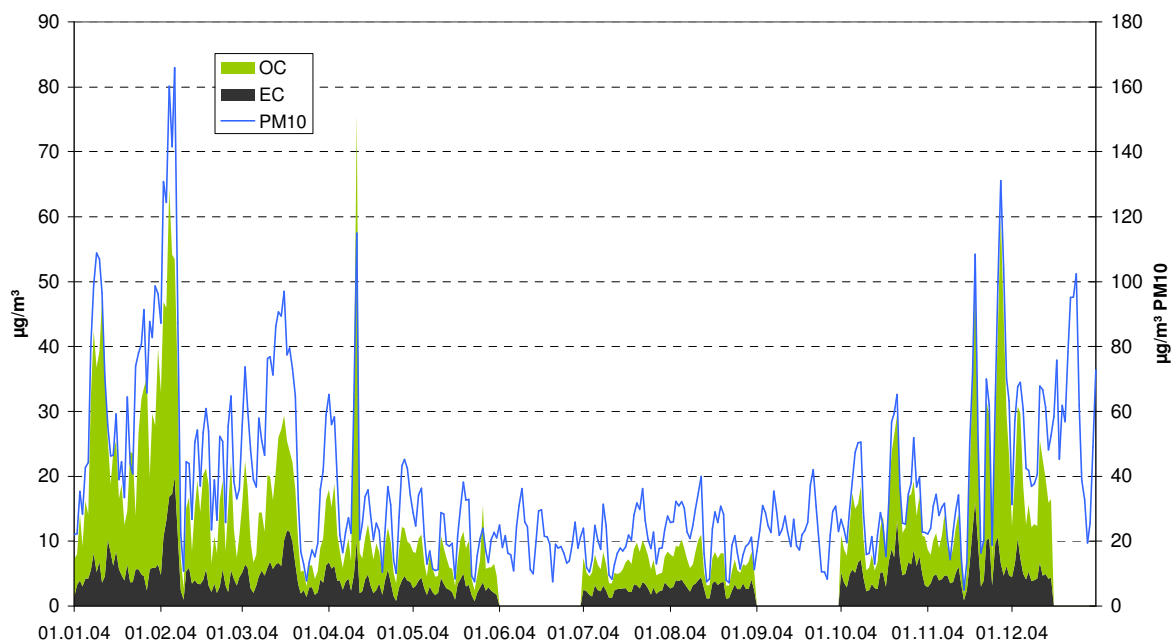


Abbildung 36: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Graz Süd

## AQUELLA Steiermark: Bockberg

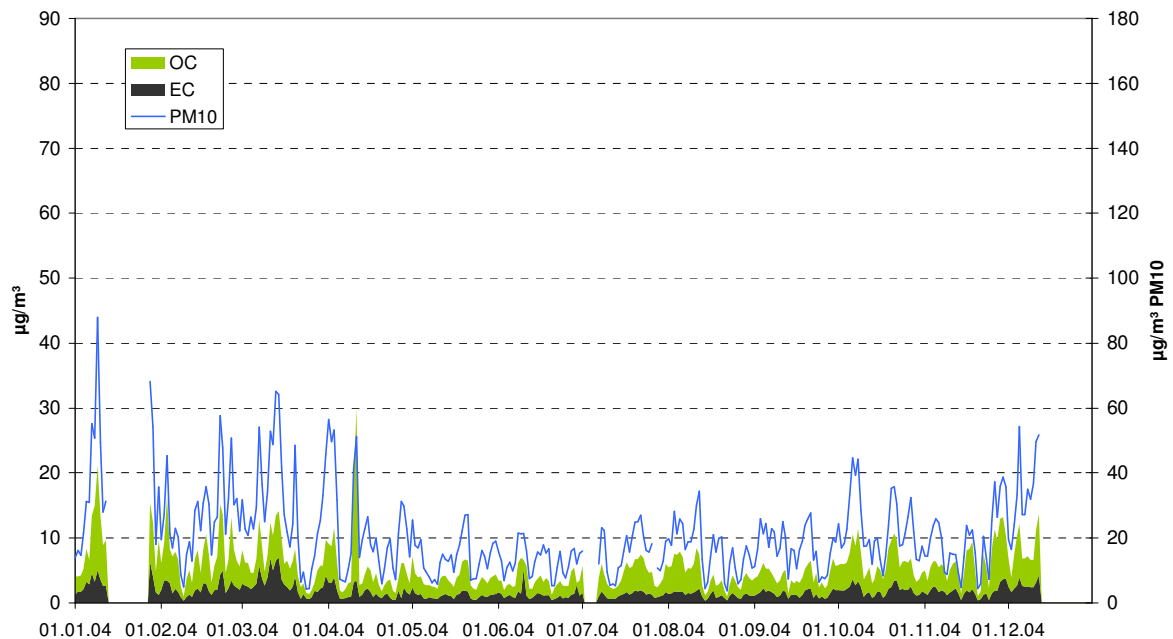


Abbildung 37: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Mesststelle Bockberg

### 3.9 Quellenanalyse mit dem Makrotracer-Model

#### 3.9.1 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 mittlere Zusammensetzung an den AQUELLA-Messstellen in Graz unter Anwendung des Makrotracer-Modells zeigt Abbildung 38.

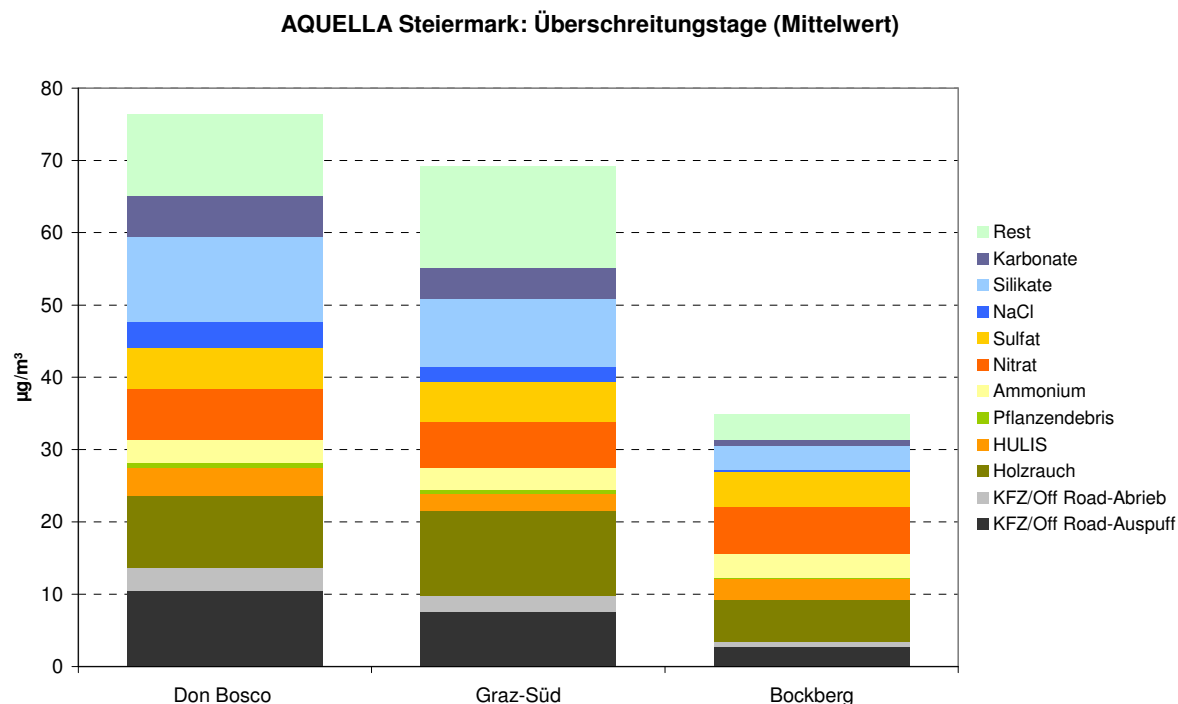


Abbildung 38: Mittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den AQUELLA-Messstellen in Graz

Es ist erkennbar, dass die Vorbelastung an der Messstelle Bockberg im Mittel über die Überschreitungstage im Jahr 2004 etwa 45% des Mittelwertes an der Messstelle Don Bosco ausmacht. Dies bedeutet, dass zur Einhaltung des Grenzwerts von 50 µg/m³ 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-Mittelwert 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.

Tabelle 16: Relative Anteile von Quellen an Überschreitungstagen an den Messstellen Don Bosco und Bockberg und im „Urban Impact“ – Mittel über 2004

Quellengruppe	Don Bosco	Bockberg	„Urban Impact“
Sulfat, Nitrat, Ammonium (Sekundär anorganisch)	21	42	3
Mineralstaub durch Winterbedingungen	23	12	33
Streusalz	5	1	8
Holzrauch und organische Folgeprodukte	18	25	13
Sonstige organische Anteile	9	3	14
Verkehr und andere fossile Quellen:	18	10	24
<b>Abrieb (v.a. Brems-, Reifenabrieb)</b>	<b>4</b>	<b>2</b>	<b>6</b>
<b>Abgas Kfz (v.a. „Dieselruß“)</b>	<b>11</b>	<b>6</b>	<b>14</b>
Abgas sonstige Quellen	3	2	4
Nicht erklärt	6	7	5

Die Quellenanteile an der Messstelle Graz 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 16 erkennbar. Etwa 14% stammen aus Kfz-Abgas, etwa 18% insgesamt aus Verkehr und anderen fossilen Quellen. Auch Streusalz ist im Urban Impact mit 8% nachweisbar. Sekundär anorganische Komponenten im Urban Impact mit etwa 3% Anteil vertreten. Den höchsten Anteil von 33% weisen Mineralstäube (etwa zwei Drittel silikatisch) auf. Der Mineralstaubanteil durch Winterdienst-Vorgänge sollte in den folgenden Jahren deutlich zurückgegangen sein aufgrund einer Reihe von Maßnahmen im Winterdienst.

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 geringe Zusatzbelastungen 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.

Aus Tabelle 16 ist erkennbar, dass mit 6 Quellengruppen 93-94% der PM10 Partikel an der Messstelle Don Bosco und im regionalen Hintergrund erklärt werden können. Es zeigen sich auch die Präferenzen der Quellenbeiträge: Sulfat, Nitrat und Ammonium (Sekundär anorganische Komponenten) sowie Holzrauch und sekundäre organische Folgeprodukte liegen im regionalen Hintergrund angereichert vor. Mineralstaub durch Winterbedingungen, sowie Verkehr und andere fossile Quellen sind dahingegen im Urban Impact angereichert. Die unterschiedlichen Quellenanreicherungen zeigen sich auch optisch erkennbar in der Abbildung 39.

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

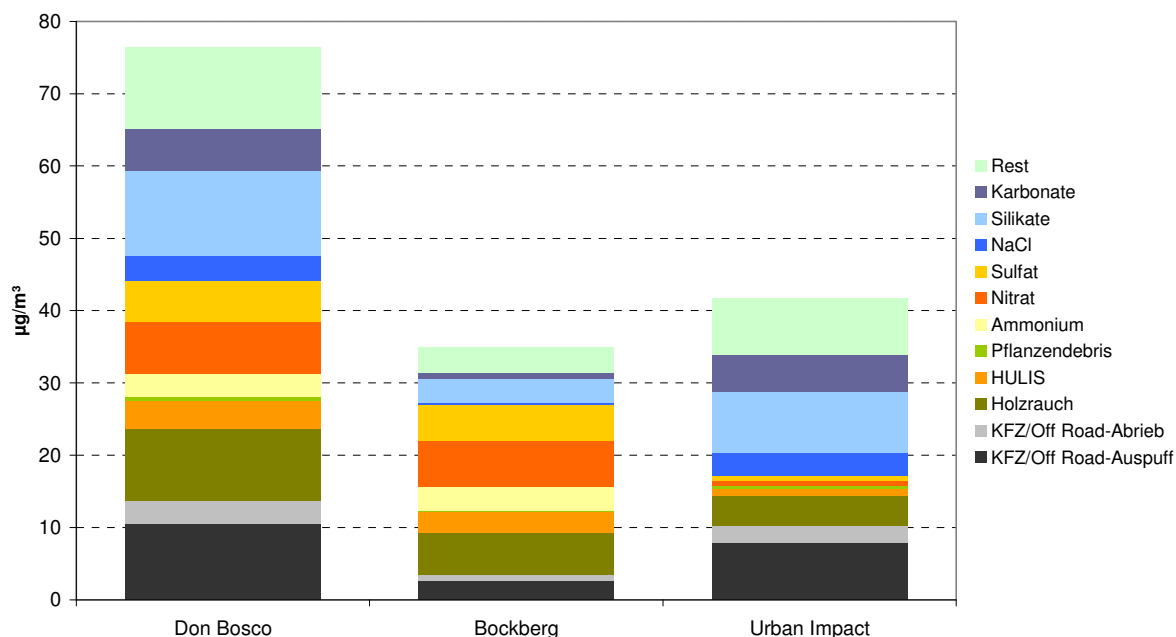


Abbildung 39: Quellenbeiträge für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den Messstellen Graz Don Bosco und Bockberg, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte an Don Bosco und Bockberg.

### 3.9.2 Quellenanteile der Überschreigungsperioden

Die Quellenanteile während der Überschreitungstage bzw. Perioden sind in Abbildung 40 bis Abbildung 43 graphisch dargestellt. Die dazu gehörenden numerischen Werte sind in Tabelle 17 enthalten. Die Ergebnisse zeigen, dass an den einzelnen Überschreitungstagen bzw. Perioden durchwegs unterschiedliche Quellenbeiträge den „Haupt-Beitrag“ bewirken. Die höchsten Absolutwerte werden von den zusammengefassten Quellen „Sulfate und Nitrate“ sowie von Mineralstaub mit relativen Beiträgen von je bis zu etwa 45% verursacht; gefolgt von Holzrauch und verwandten Verbindungen mit bis zu 34%.



**AQUELLA Steiermark: Don Bosco**

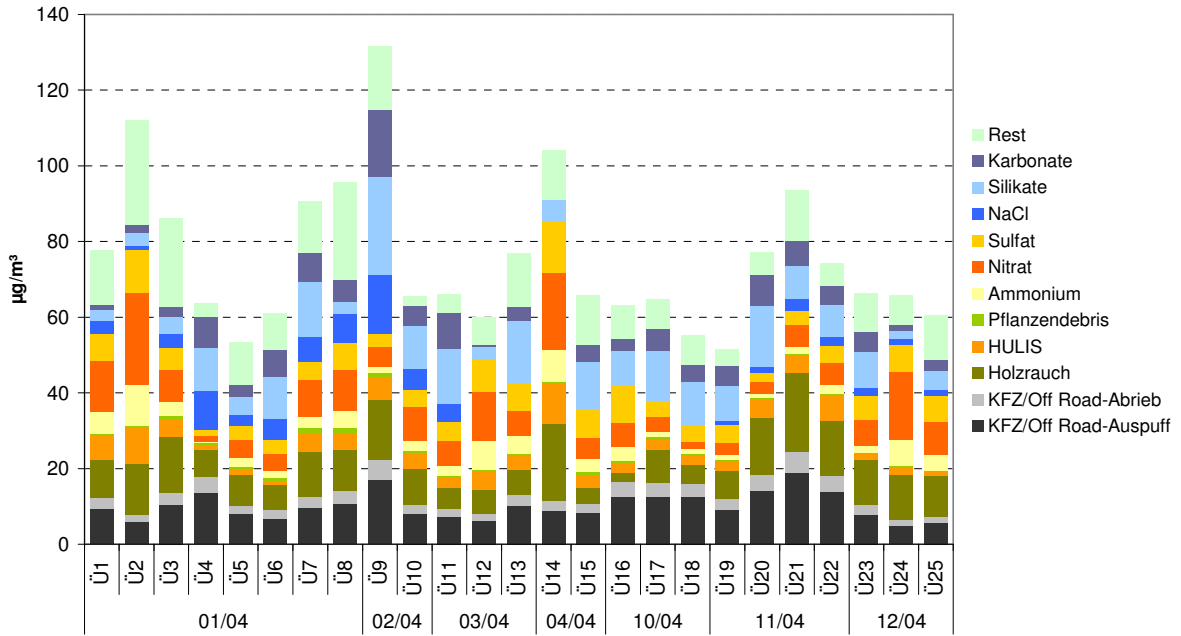


Abbildung 40: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco. (Ü1 – Ü25: Überschreitungen)

**AQUELLA Steiermark: Graz-Süd**

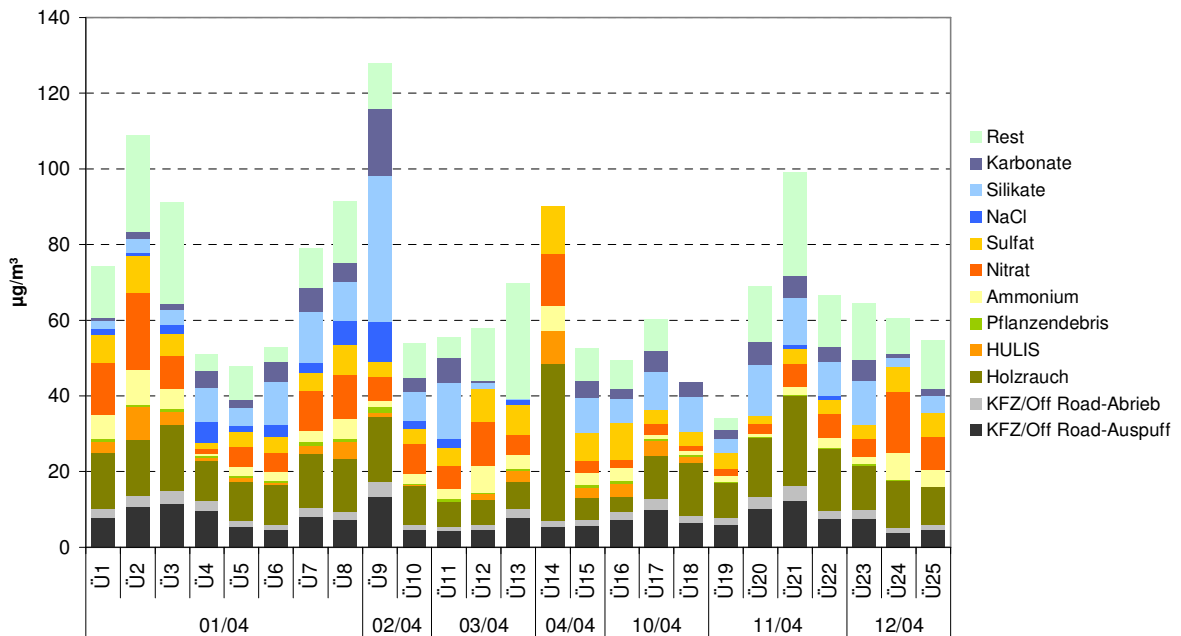


Abbildung 41: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Graz Süd. Die fehlenden HULIS-Werte für November und Dezember wurden anhand der HULIS/Holzrauch Messdaten der Messstelle Bockberg rekonstruiert.

**AQUELLA Steiermark: Bockberg**

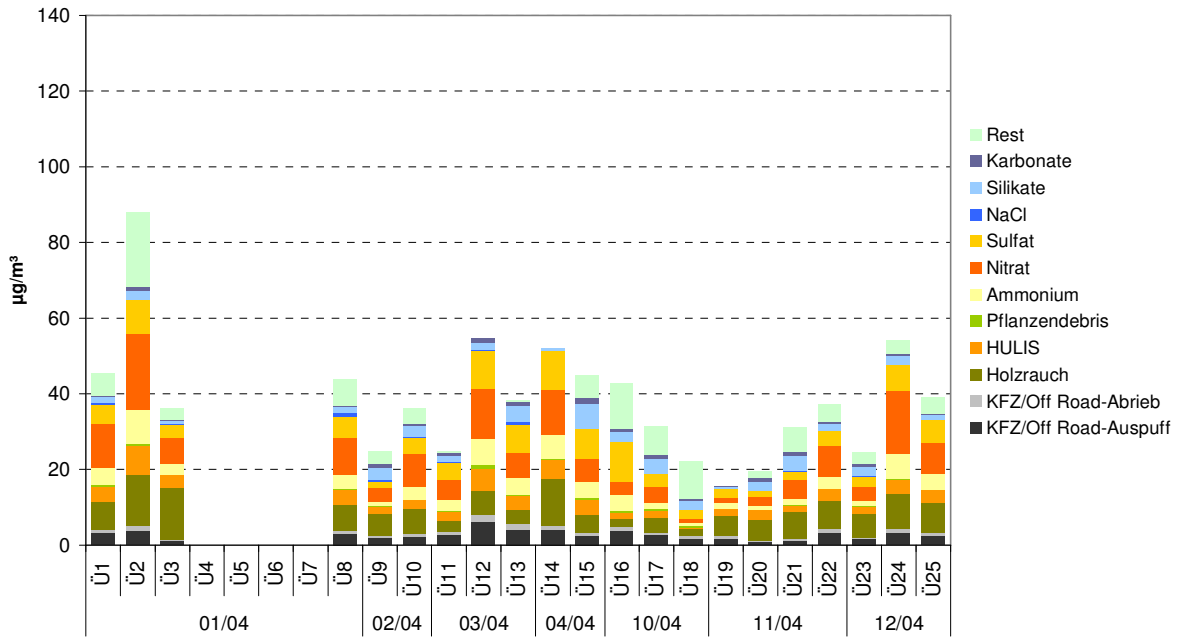


Abbildung 42: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Bockberg.

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

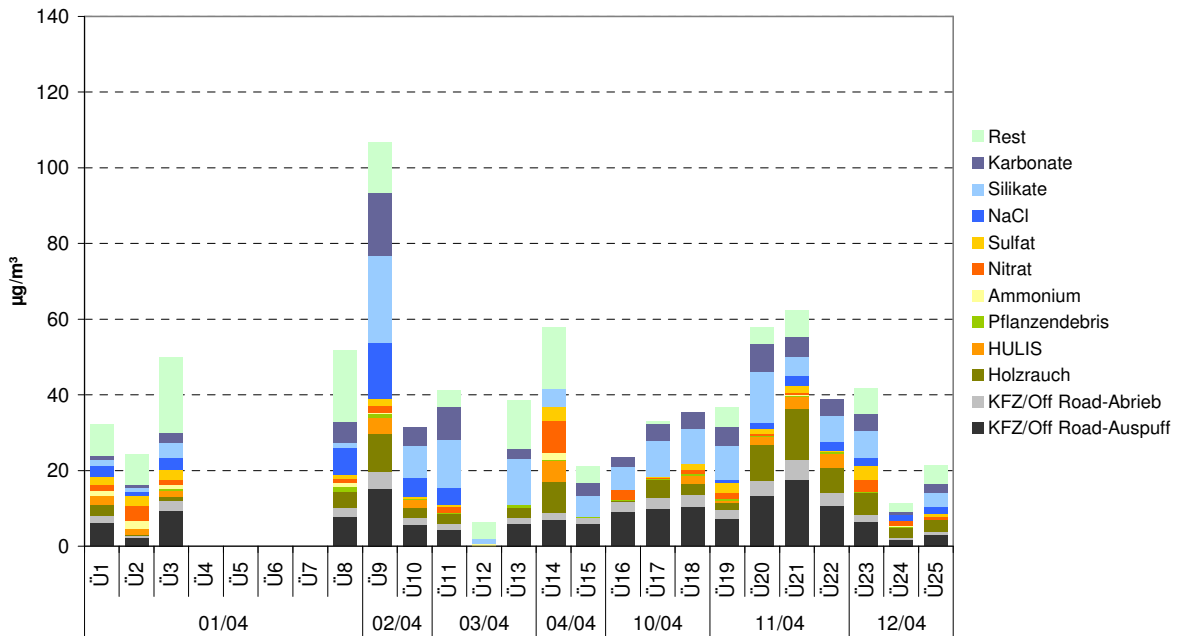


Abbildung 43: Quellenanteile des „Urban Impact“ an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco (im Vergleich zu Bockberg).

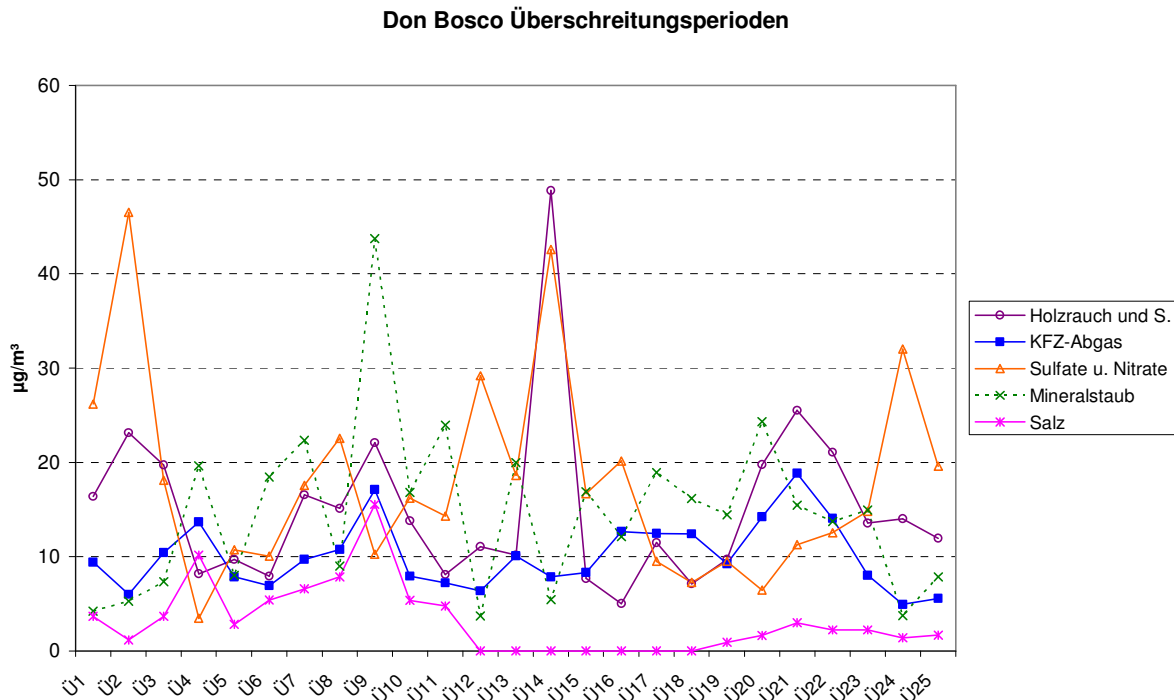


Abbildung 44: Verlauf von zusammengefassten Quellenanteilen (Holzrauch und sekundäre organische Stoffe; Kfz- und Off Road-Abgas; Sulfate und Nitrate; Mineralstaub; Streusalz) an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco. Ü1-Ü25: Überschreitungsperioden

Große Schwankungen in den Überschreitungsperioden weisen anorganischer Mineralstaub (5-36%) und Streusalz (0-16%) auf (Abbildung 44), die Emission dieser Komponenten scheint stark witterungsabhängig zu sein (geringe Emission bei Nässe und Schneedecke; zunehmende Emissionen bei trockener Witterung). Auch die anderen Aerosolkomponenten wie Anorganisches Sekundäraerosol (6-49%), Mineralstaub (5-36%), Holzrauch und HULIS (8-30%), Streusalz (0-16%), und auch Kfz/Off-Road Emissionen (7-29%) weisen erhebliche Schwankungen zwischen den Überschreitungsperioden auf. Die stark schwankenden Quellenbeiträge (Abbildung 44) 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, Bahn, Schifffahrt) oder auch von Kohleverbrennung aus kleineren Feuerungsanlagen. Bedeutsam und zu berücksichtigen sind jedenfalls die Off-Road – Emissionen.

Tabelle 17: Relative Quellenanteile an der Messstelle Don Bosco an Überschreitungsepisoden – Makrotracer-Modell.

Epi Nr	Don Bosco Episoden/ Pools	µg/m³ DB	N Tage	% Kfz/ OffRd Abgas	% Kfz/ OffRd Abrieb	% Holzrauch	% HULIS	% Veg. Debris	% Rest OM	% NH4	% NO3	% SO4	% Na Cl	% Silikate	% Karbonate	% Rest
1	6.-8.1.04	78	3	12	4	13	8	1	14	7	17	9	5	4	2	4
2	09.01.2004	112	1	5	2	12	8	0	9	10	22	10	1	3	2	16
3	10.-12.1.04	86	3	12	4	17	6	1	15	5	10	7	4	5	3	12
4	13.-14.1.04	64	2	22	6	11	1	1	7	1	3	2	16	18	13	-1
5	15.-20.1.04	53	6	15	4	15	3	1	11	4	9	7	5	9	6	10
6	21.-23.1.04	61	3	11	3	11	2	1	11	3	8	6	9	19	12	5
7	24.-27.1.04	91	4	11	3	13	5	2	13	4	11	5	7	16	9	2
8	28.-31.1.04	96	4	11	3	12	4	2	15	5	11	7	8	3	6	12
9	1.2.-7.2.04	132	7	13	4	12	5	1	10	1	4	3	12	20	14	3
10	11., 13., 14., 16.-18., 22., 23., 25., 26.2.04	66	10	12	4	15	6	1	6	4	14	7	8	17	8	-3
11	1.-5.3.04	66	5	11	3	9	4	1	6	4	10	8	7	22	14	2
12	07.03.2004	60	1	11	3	10	8	1	1	12	22	14	0	5	1	11
13	8.-20.3., 29.-31.3.04	77	16	13	4	9	5	1	7	6	8	10	0	22	4	12
14	10.-11.4.04	104	2	8	3	20	10	0	24	8	19	13	0	5	0	-12
15	1.-3., 23.4.04	66	4	13	4	6	5	1	3	5	8	12	0	19	7	17
16	6.-8.10.04	63	3	20	6	4	4	1	9	6	10	16	0	14	5	5
17	19.-21.10.04	65	3	19	6	13	4	1	15	2	6	7	0	20	9	-3
18	25., 27.-29.10.04	55	4	22	7	9	4	1	14	2	4	8	0	21	9	0
19	12.11.2004	52	1	18	5	14	5	1	6	3	6	9	2	18	10	3
20	16.-19., 22.-23.11.04	77	6	18	6	19	6	1	9	1	4	3	2	21	11	-1
21	25.-28.11.04	94	4	20	6	22	5	0	3	2	6	4	3	10	7	11
22	29.-30.11.04	74	2	19	6	19	9	1	0	3	8	6	3	12	7	8
23	2.-4.12.04	66	3	12	4	18	2	0	5	3	10	9	3	14	8	11
24	05.12.2004	66	1	8	2	18	3	0	0	10	28	11	2	4	2	12
25	6.-7., 11.-12.12.04	60	4	9	3	18	2	1	1	7	15	11	3	8	5	19
	Summe		102													
	<b>Mittelwert</b>	<b>76</b>		<b>14</b>	<b>4</b>	<b>13</b>	<b>5</b>	<b>1</b>	<b>9</b>	<b>4</b>	<b>9</b>	<b>7</b>	<b>5</b>	<b>15</b>	<b>8</b>	<b>6</b>

Es wird die Frage nach Import- und Eigenanteilen untersucht. Im gegenständlichen Experiment werden Daten von außerhalb der Stadt (Bockberg) Daten von einer relativ zentral gelegenen verkehrsnahen Station (Don Bosco) gegenübergestellt. Die Differenzdaten können jedenfalls dem Stadteinfluss („Urban Impact“) zugeschrieben werden. Die

Zusammensetzung des „Urban Impact“ kann als typisch für verkehrsnahen Lagen in Graz angesehen werden.

Tabelle 18: Monate mit Überschreitungstagen im Jahr 2004 – Graz Don Bosco; Relative Anteile von PM10 an der Hintergrundmessstelle und im „Urban Impact“ im Vergleich zu PM10 Werten an Überschreitungstagen an der Messstelle Don Bosco

	Jan	Feb	Mar	Apr	Okt	Nov	Dez
Hintergrund %	61	34	49	58	52	32	56
Urban Impact %	39	66	51	42	48	68	44

Tabelle 18 gibt die Anteile vom PM10 am Bockberg (als Hintergrund bezeichnet) im Vergleich zur Messstation Don Bosco an. Diese liegen im Mittel in den Überschreitungsepisoden während der Monate Jänner-April und Oktober-Dezember im Bereich von 32-61%. Dies bedeutet, dass der „Eigenanteil“ von Quellen aus dem Grazer Raum an Überschreitungstagen jedenfalls im Bereich um etwa 39-68% anzusetzen ist. Die höheren Werte stehen jeweils besonders häufig mit mineralischem Staub aus Winterdienst in Verbindung.

### 3.9.3 Quellenanteile Saison-Mittelwerte

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

Die Ergebnisse sind in den Abbildungen dargestellt. Es zeigen sich deutliche monatliche Schwankungen, 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 SO<sub>2</sub> (6,7 kt) gegenüber NO<sub>x</sub> (29,6 kt) emittiert wird (Daten für 2001 aus BLI 1990-2001 [xxvii]), ist die Möglichkeit eines Imports sehr wahrscheinlich. Der Anteil im Urban Impact ist relativ gering.

Bemerkenswert sind die Anstiege der PM10-Monatsmittelwerte von Juli zu Jänner: Die Hälfte des Anstiegs erfolgt im Hintergrund, in der Stadt wird verkehrsnah die zweite Hälfte des Anstiegs von Sommer- zu Winterbedingungen verursacht. Der Anstieg erfolgt überwiegend durch zusätzliche „Winterquellen“ (Holzrauch und verwandtes organisches Material; Ammoniumnitratbildung; „Winterdienst-Stäube“).

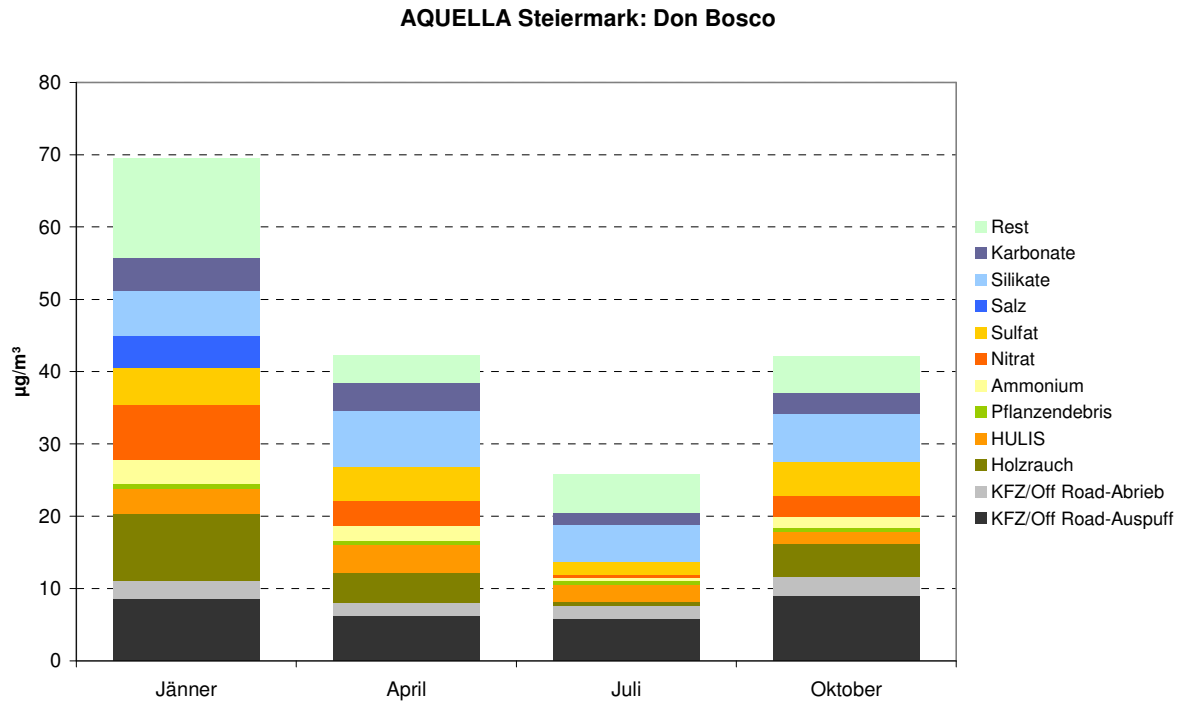


Abbildung 45: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco.

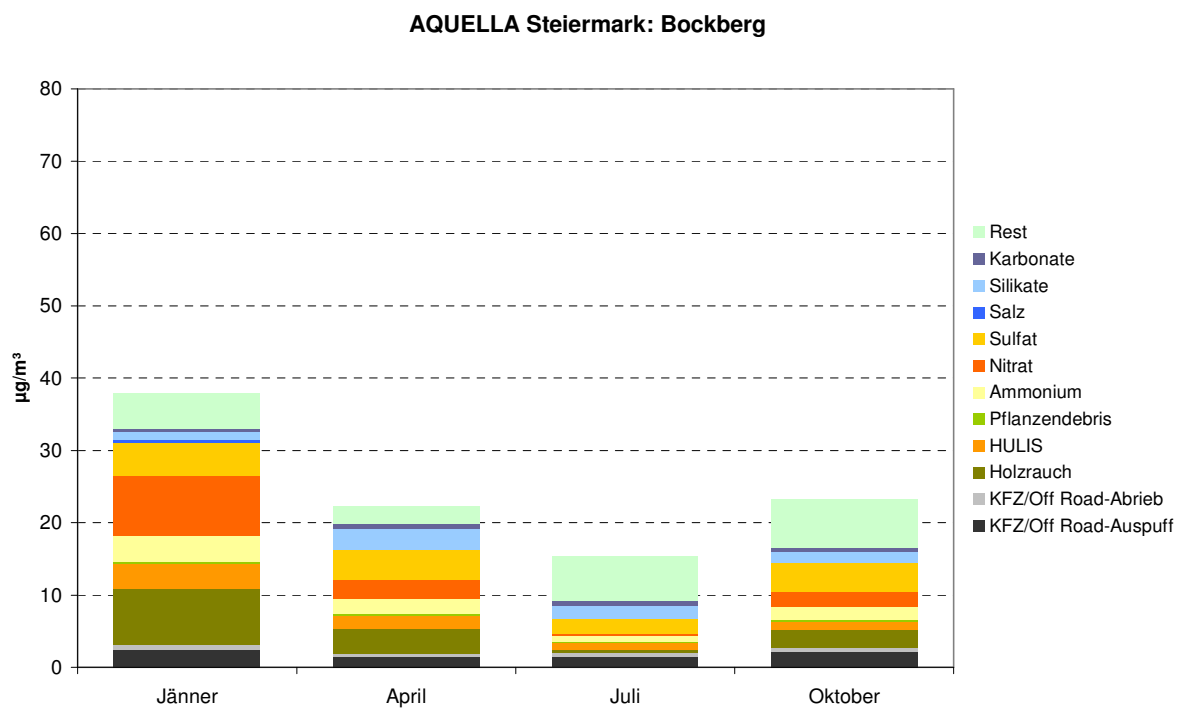


Abbildung 46: Mittelwerte für die Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg

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

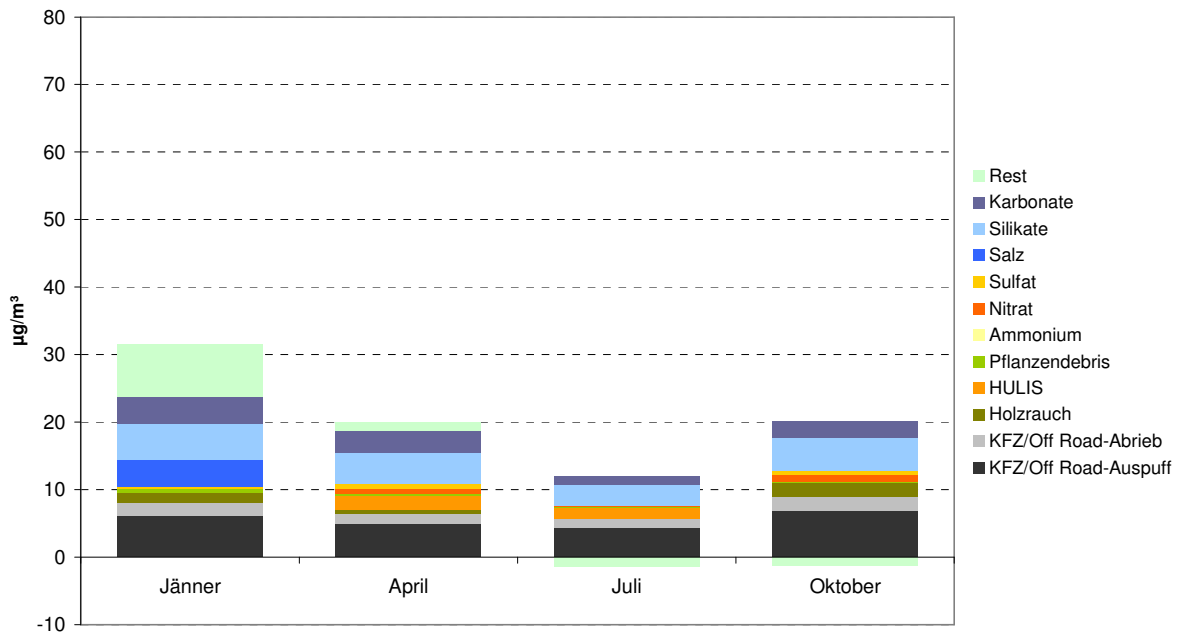


Abbildung 47: Mittelwerte für die Überschreitungstage der Monate(2004) für den „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte an Don Bosco und Bockberg.

**AQUELLA Steiermark: Graz-Süd**

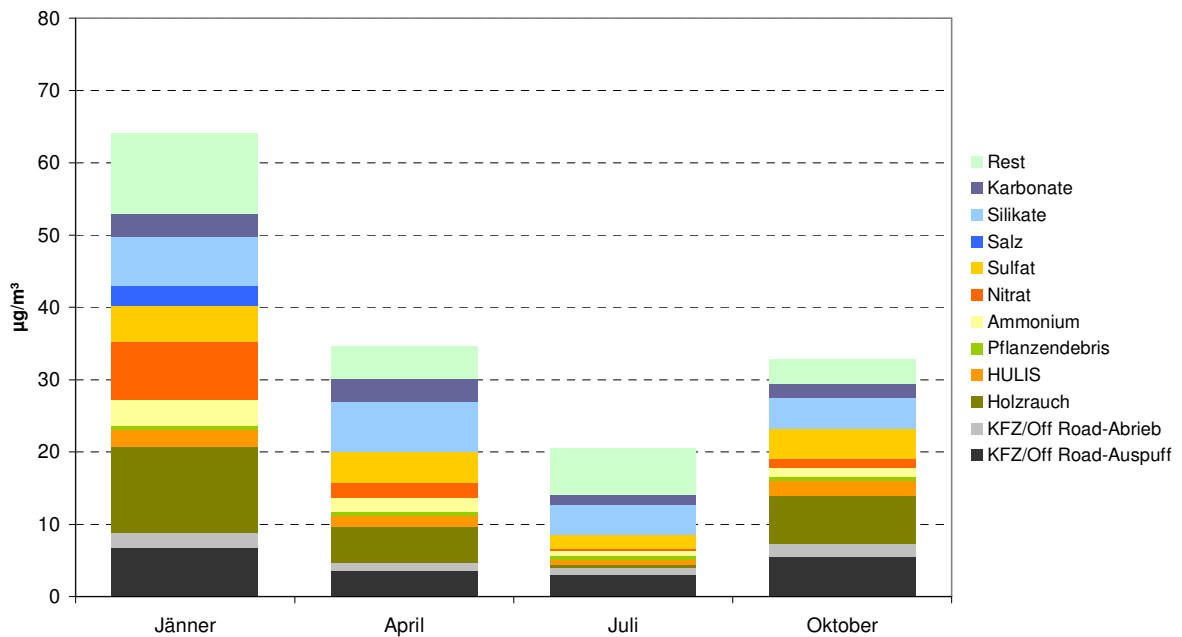


Abbildung 48: Mittelwerte für die Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd

3.9.4 Vergleiche von Tagen mit und ohne Überschreitung

Die unterschiedlichen Zusammensetzungen von PM10 an Tagen unter und über 50 µg/m³ an den Grazer AQUELLA Messstellen sind in den Abbildungen 49-51 dargestellt. Die relative Zusammensetzung ist bei den Fällen < 50 und > 50 µg/m³ 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 identifizierte Komponenten zunehmen.

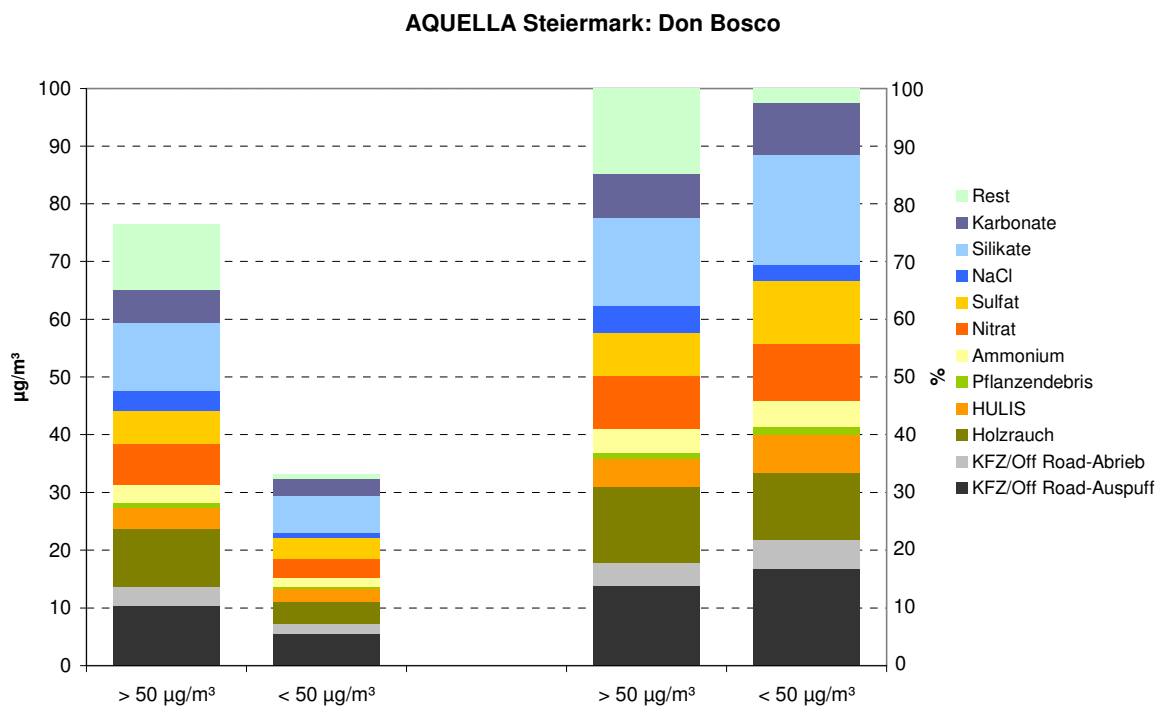


Abbildung 49: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Don Bosco, sowie relative Anteile (rechts im Bild)



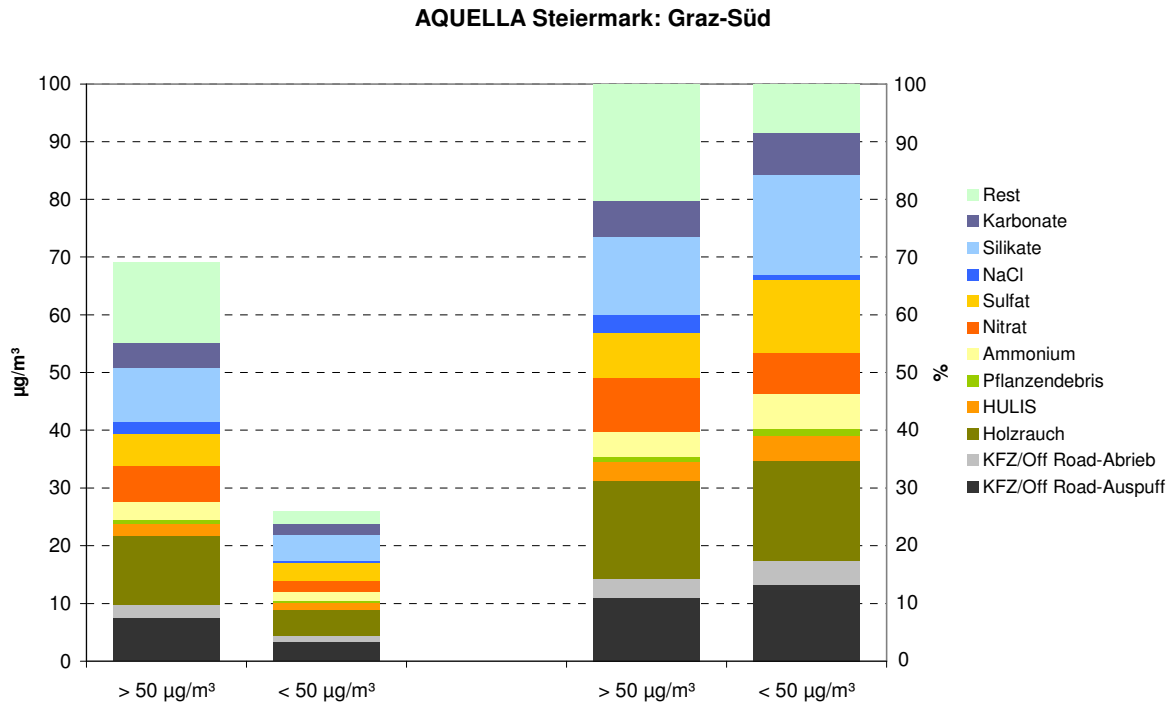


Abbildung 50: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Graz Süd, sowie relative Anteile (rechts im Bild)

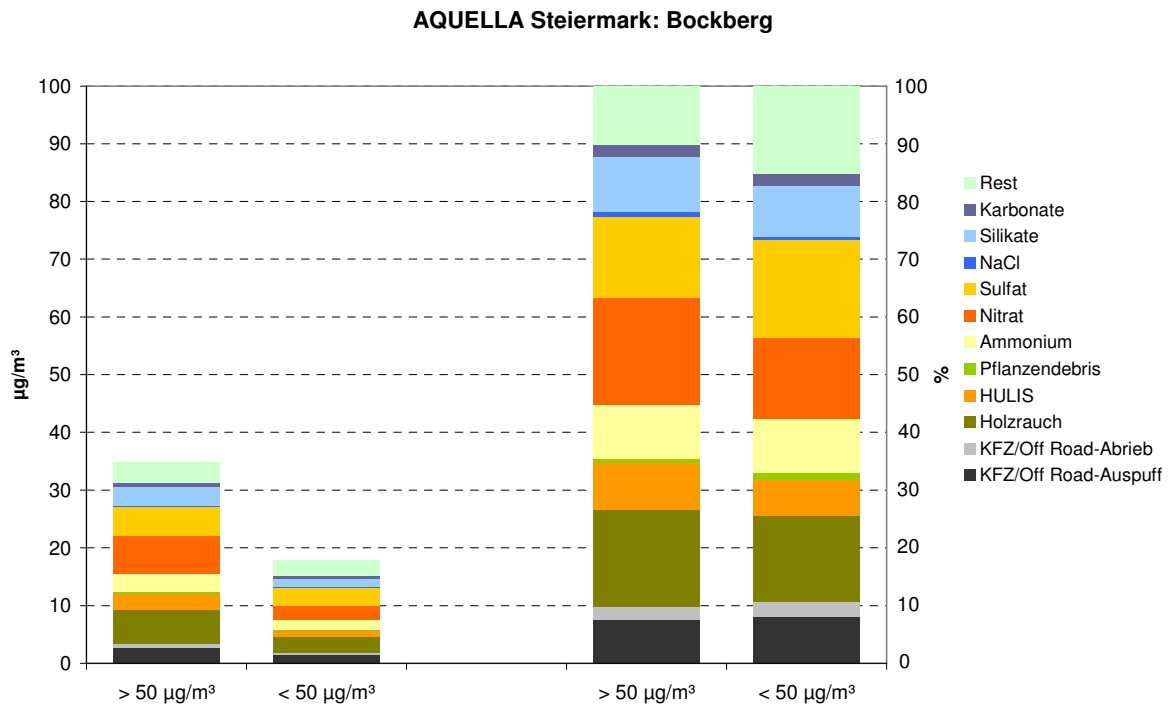


Abbildung 51: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m³ an der Messstelle Bockberg, sowie relative Anteile (rechts im Bild).

Die Abbildung 52 zeigt ein Beispiel von Messperioden mit sehr unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung von PM10 in einer relativen Darstellung. In der Periode vom 1.-7.2.2004 war die PM10 Zusammensetzung von Streusalzrückständen und Mineralstaub, am 7.3.2004 von Sulfat und Nitrat, Ammonium und auch von sekundären organischen Verbindungen dominiert; im ersten Fall waren über 40% des PM10 im Zusammenhang mit Winterdienst-Emissionen, im zweiten Fall bestanden über 45% aus sekundären Aerosolkomponenten. Vom 25.-28.11.2004 machten Holzrauch und Folgeprodukte, sowie Kfz und Off-Road-Emissionen je 27% des PM10 aus, während die sekundären anorganischen Komponenten mit weniger als 15% am Feinstaub beteiligt waren.

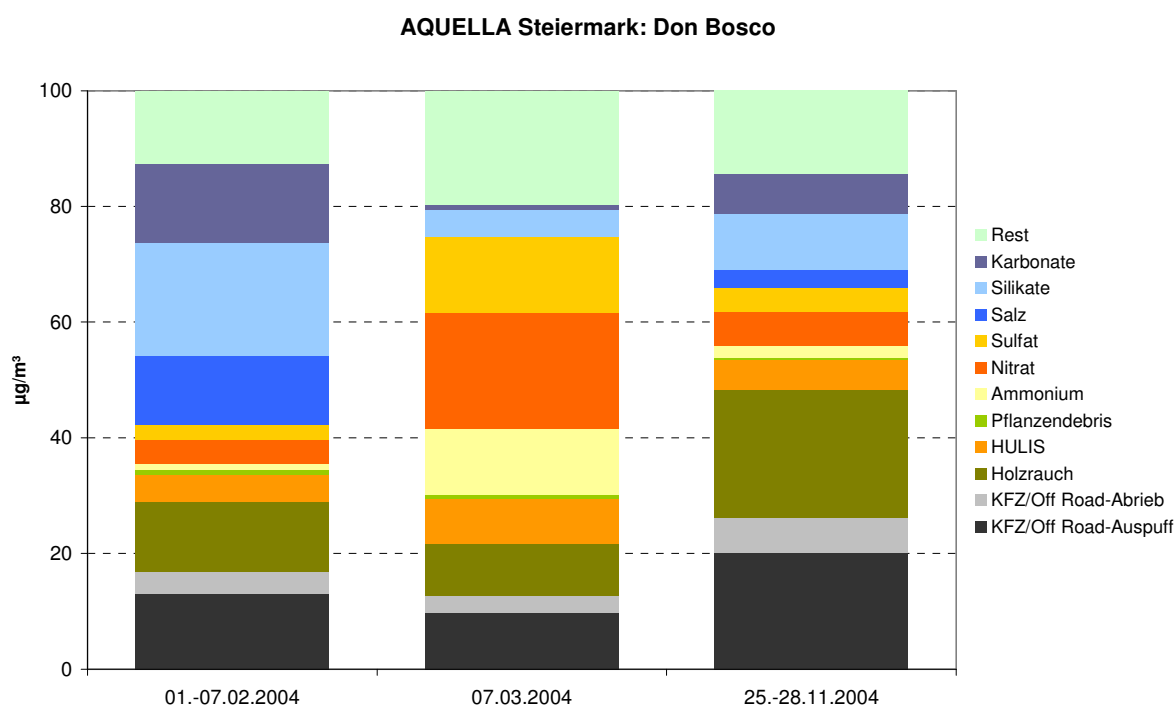


Abbildung 52: Messstelle Don Bosco, Vergleich dreier Ergebnisse an Tagen sehr unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung von PM10; relative Darstellung.

### 3.9.5 Osterfeuer im Großraum Graz

Die Osterfeuer im Großraum Graz ergaben sehr bemerkenswerte Aerosolsignaturen. Die Analyseergebnisse der Osterfeuer - Tage sind in Abbildung 53 dargestellt. Im regionalen Hintergrund (Bockberg) stammen rund 38% des PM10 aus Rückständen der Biomasseverbrennung durch Osterfeuer. An der Messstelle Don Bosco werden 30%, in Graz Süd 34% von PM10 durch Holzrauch und HULIS gebildet. Somit werden etwa 30-38% des PM10 Aerosols im Großraum Graz während der Osterfeuer durch Rauch aus der Verbrennung von Biomasse verursacht. Die Auswirkungen der Osterfeuer auf die regionale Luftbelastung ist in der Abbildung 54 erkennbar. Der enorme Einfluss von Holzrauch, sonstigem organischen Material (in den Balken „Osterfeuer“ in den Abbildungen 53 und 54

als Rest bezeichnet) und von HULIS als organische Sekundärprodukte der Holzverbrennung zeigt sich im Vergleich zu den Überschreitungstagen exklusive der Osterfeuer – Tage.

**AQUELLA Steiermark: Osterfeuer und sonstige Überschreitungstage im April 2004 an der Messstelle Don Bosco**

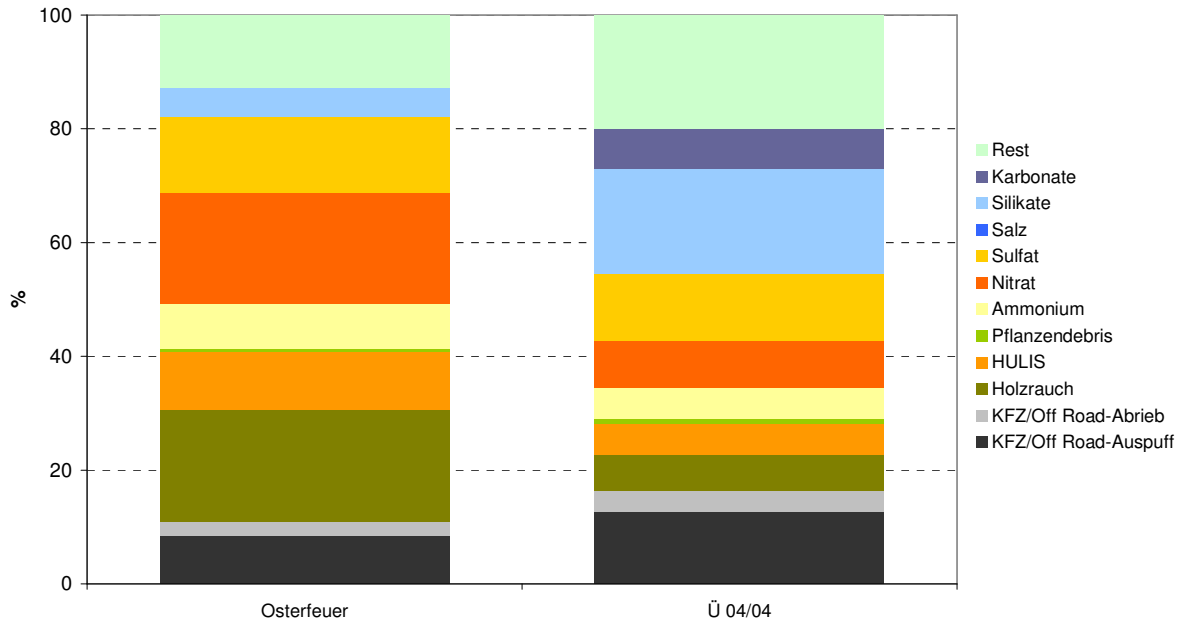


Abbildung 53: Makrotracer Signatur im Großraum Graz infolge der Osterfeuer 2004. Daten der Messstelle Graz Don Bosco - Vergleich Osterfeuer und sonstige Überschreitungstage im April 2004 (Ü 04/04)

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco**

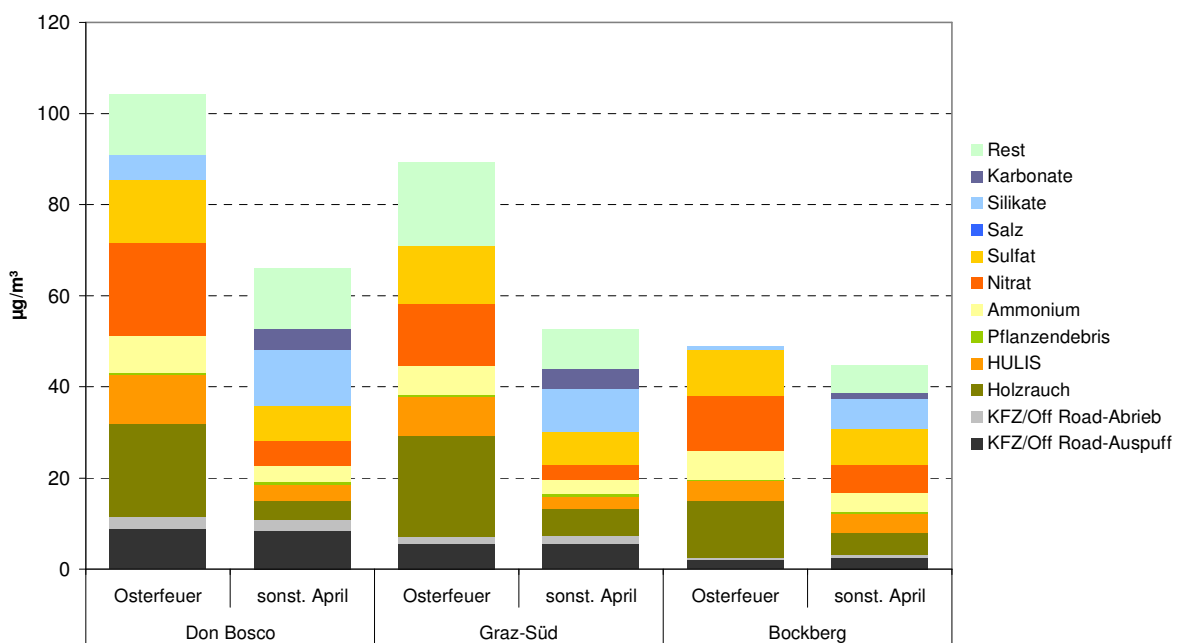


Abbildung 54: Auswirkung der Osterfeuer auf die regionale PM10-Zusammensetzung; Vergleich mit anderen Überschreitungstagen im April an den Messstellen Don Bosco, Graz Süd und Bockberg

3.9.6 „Sommer – Winter“ Vergleich

Die Überschreitungen des TMW-Grenzwerts von 50 µg/m<sup>3</sup> traten 2004 an der Messstelle Graz 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 55-57 sind für die Grazer AQUELLA Messstellen die Quellenbeiträge im Juli den Beiträgen im Jänner gegenübergestellt. Der „Zuwachs“ bei PM10 von Juli zu Jänner beträgt bei Don Bosco 44, bei Graz Süd ebenfalls 44 µg/m<sup>3</sup>. Diesen Zuwächsen stehen 23 µg/m<sup>3</sup> PM10 an der Messstelle Bockberg gegenüber. Dies bedeutet, dass etwa 50% der Zunahme der winterlichen erhöhten Konzentrationswerte im städtischen Hintergrund erfolgt. Der Zuwachs von 23 µg/m<sup>3</sup> im Hintergrund ist, wie aus den Abbildungen ersichtlich ist, vor allem auf die Zunahme des Holzrauchs und dessen Folgeprodukte in der Atmosphäre (HULIS) sowie auf anorganisches Sekundäraerosol (Sulfate und Nitrate) zurückzuführen. Der zusätzliche Zuwachs von ca. 21 µg/m<sup>3</sup> im urbanen Bereich („urban impact“) wird vorwiegend durch Kfz- und Off Road-Abgas (ca. 3-4 µg/m<sup>3</sup>), Mineralstaub (ca. 4-5 µg/m<sup>3</sup>), Streusalz (2-6 µg/m<sup>3</sup>) und Holzrauch (ca. 3-6 µg/m<sup>3</sup>) verursacht.

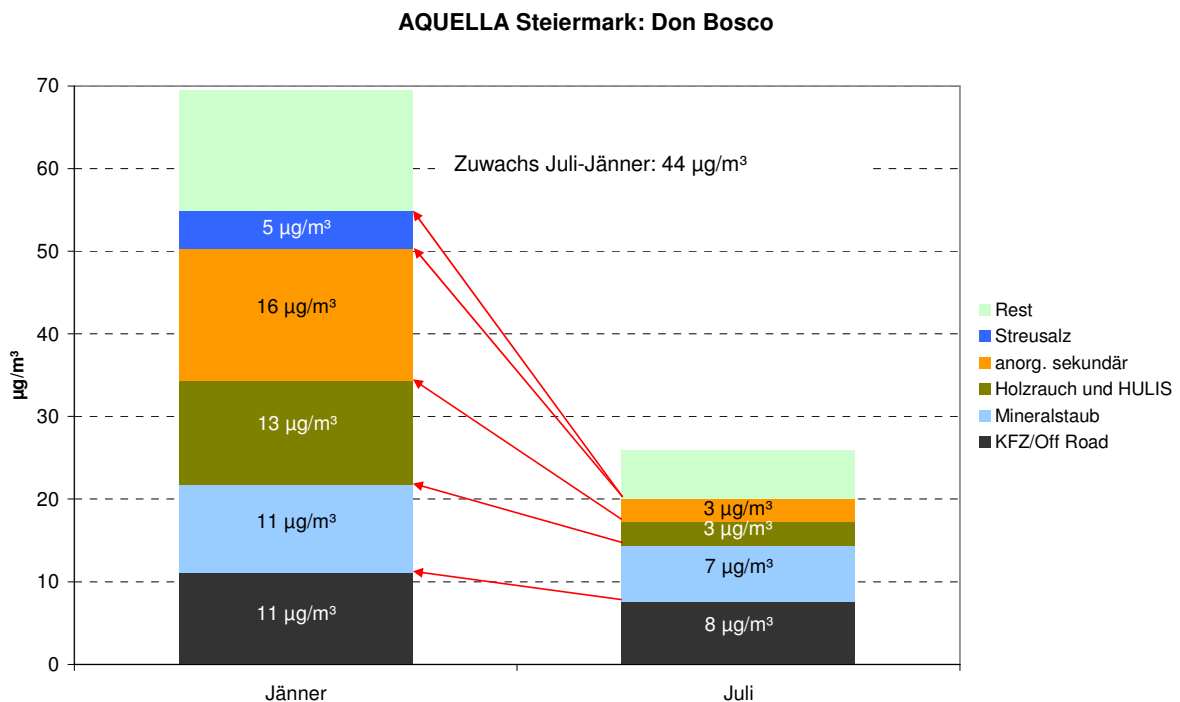


Abbildung 55: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco.

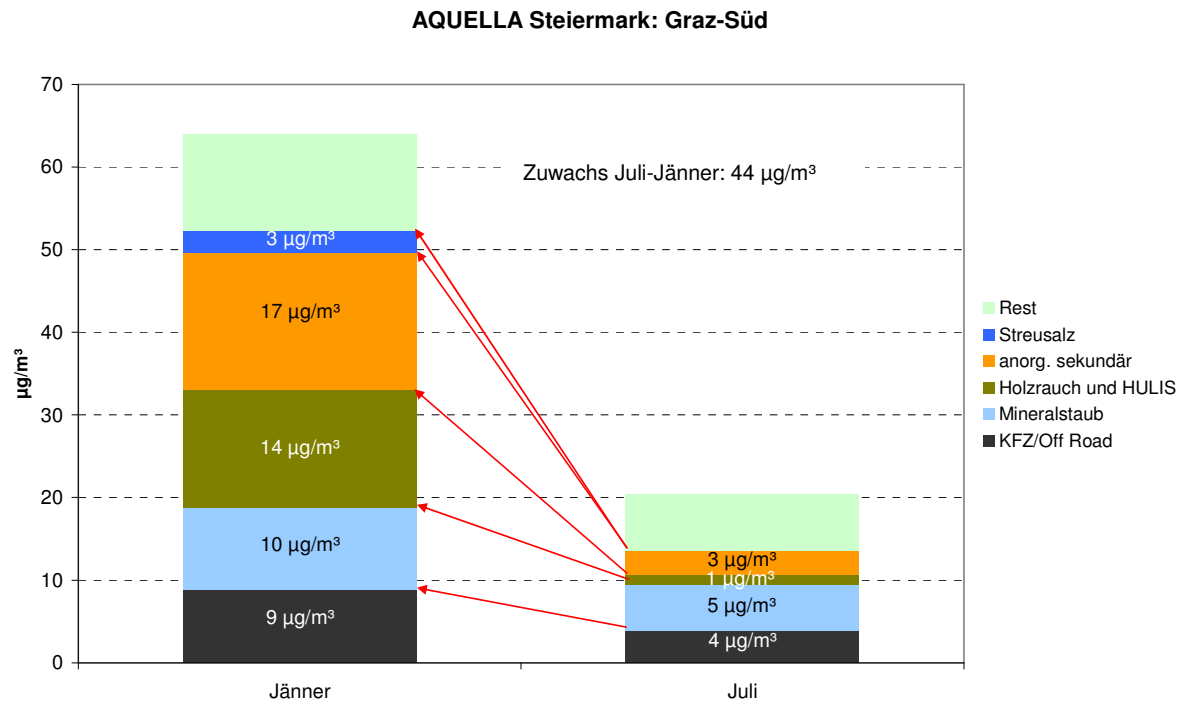


Abbildung 56: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Graz Süd.

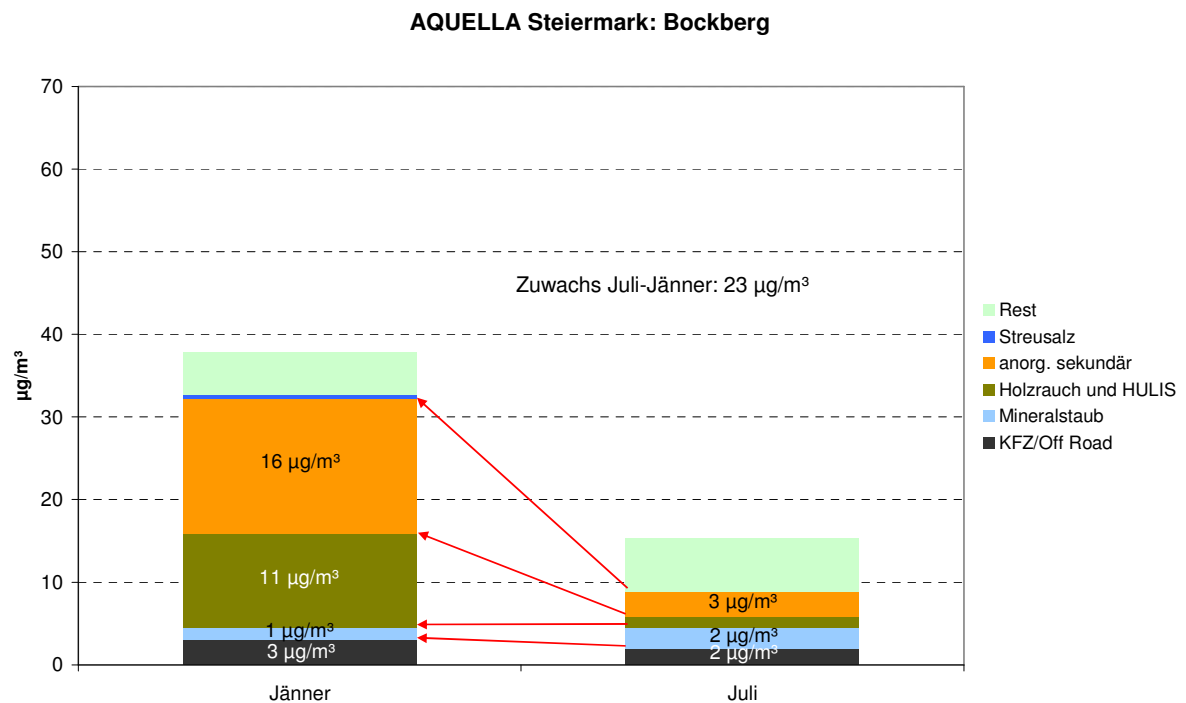
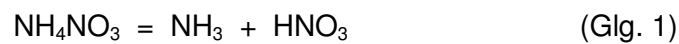


Abbildung 57: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Bockberg.

Der Zuwachs von  $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$  von Juli bis Jänner an der Hintergrundmessstelle Bockberg bedeutet annähernd eine Verdoppelung des Juli-Mittelwertes. Diese Verdoppelung ist überwiegend durch großräumig wirksame „Winterquellen“ im Hintergrund verursacht. Der größte Zuwachs (von über 50% bezogen auf die  $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) wird durch Sulfate und Nitrate verursacht, gefolgt von Holzrauch (einschließlich organischer Sekundärkomponenten – HULIS) mit etwa 50%. Die Zunahme des Quellenanteils von Kfz und Off Road-Abgas beträgt 4% in Bezug auf die Zuwachs-Anteile und ist vor allem 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 ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ), entsprechend Glg. 1 <sup>[xxviii, xxix]</sup>.



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.

### 3.10 Quellenanalyse mit dem CMB-Modell

#### 3.10.1 Modellparameter

Die Modellierung erfolgte mit dem open source Modell CMB 8.2 <sup>[xxx]</sup>. Folgende Quellenprofile wurden verwendet (in Klammer: Herkunft des Profils):

- Diesel-Emissionen (USA <sup>[xxxi, xxxii]</sup>)
- Bremsabrieb (USA <sup>[xxxi, xxxiii]</sup>)
- Reifenabrieb (USA <sup>[xxxi, xxxiii]</sup>)
- Gasverbrennung (USA <sup>[xxxi, xxxiv]</sup>)
- Straßenstaub (TU Wien)
- Pflanzenabrieb (TU Wien)
- Holzrauch (TU Wien)
- Kochen (TU Wien)
- Nitrate und Sulfate (Einzelverbindung)
- HULIS (Einzelverbindung)
- Streusalz (Einzelverbindung)

Ein Profil für Kohleverbrennung wurde nicht verwendet, da in Vorversuchen mit diesen Profilen im Modell Instabilitäten erzielt wurden. Die verwendeten Profile sind im AQUELLA Quality Manual beschrieben.

Das Modell wurde für alle Proben in einem „batch“ gefahren, mit „source elimination“ Option. Die Zahl der Iterationen wurde mit 20 begrenzt, die maximale „Source Uncertainty“ war 20%, die „Minimum Source Projection“ 0.95. Statistische Targets für den „Model Fit“ wurden durch  $r^2$  und  $\chi^2$  kontrolliert.

### 3.10.2 Ergebnisse der Saison-Monate

Die Ergebnisse der Quellen-Modellierung sind für die Saison-Monate in Abbildung 58 bis Abbildung 67 dargestellt, wobei Diagramme mit Absolutwerten und Relativwerten angefertigt wurden. Konzentrationswerte für Pflanzendebris liegen überraschend hoch. Die anderen Konzentrationswerte können mit den Ergebnissen der Makrotracer-Analyse verglichen werden (siehe Kapitel 3.11).

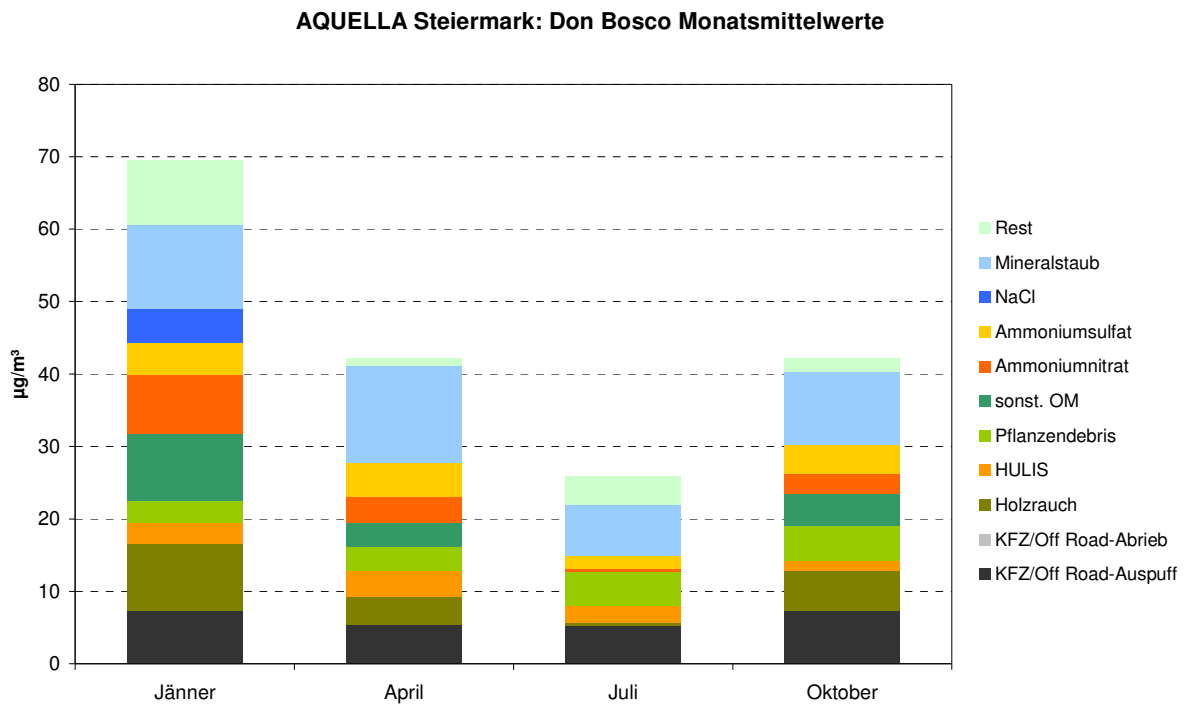


Abbildung 58: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte CMB.

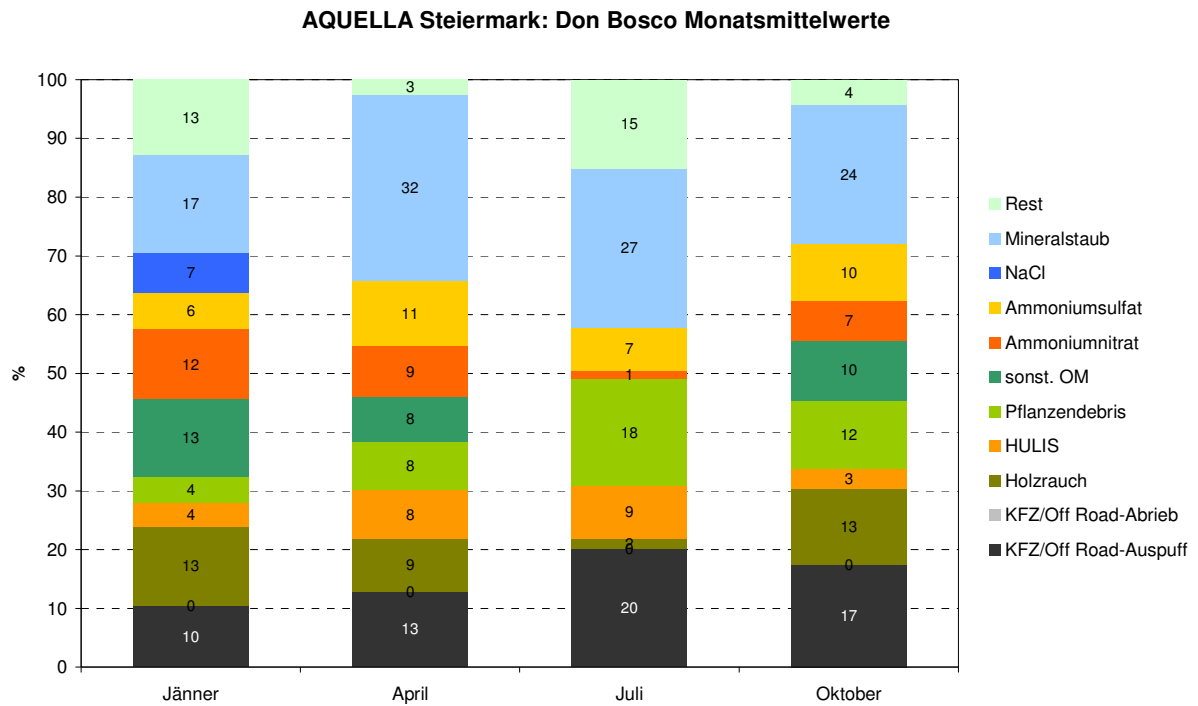


Abbildung 59: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco; Relativwerte CMB.

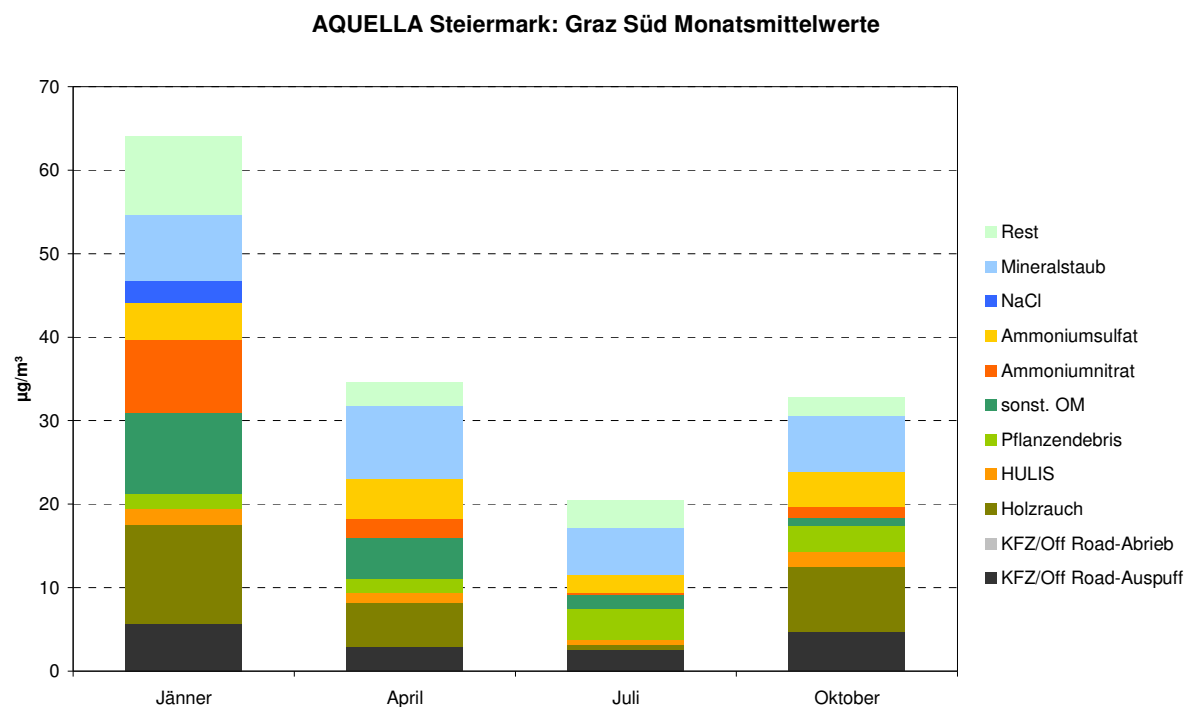


Abbildung 60: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd; Absolutwerte CMB.



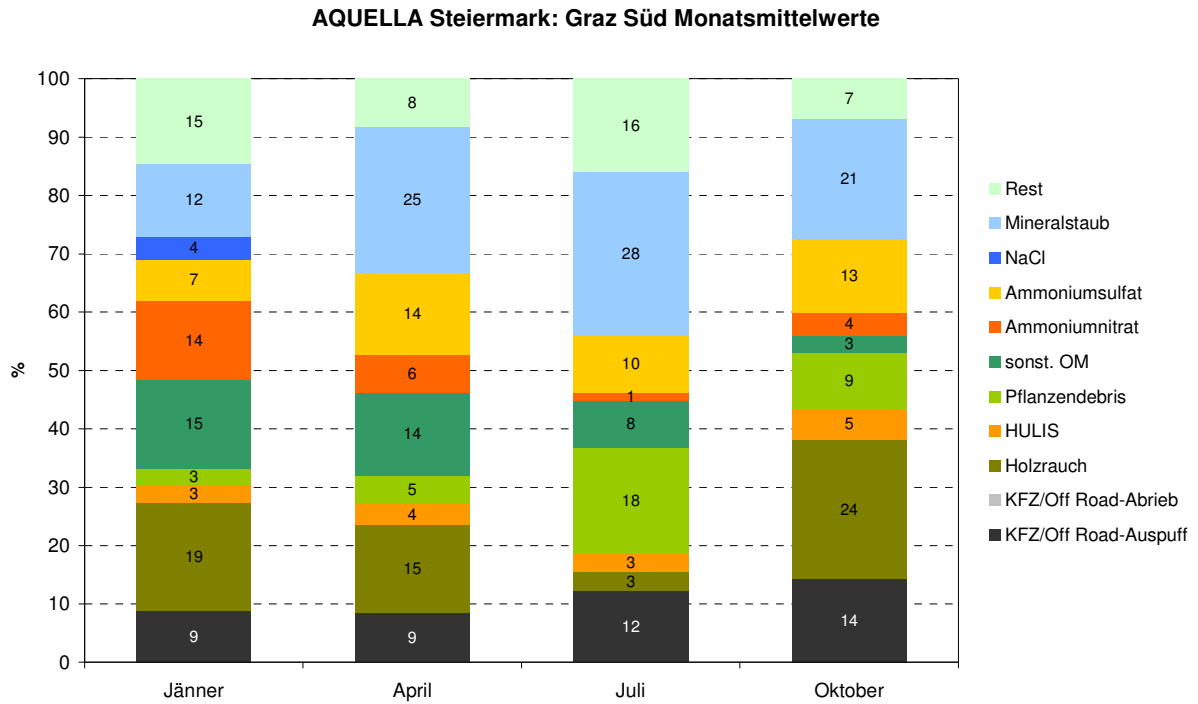


Abbildung 61: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd; Relativwerte CMB.

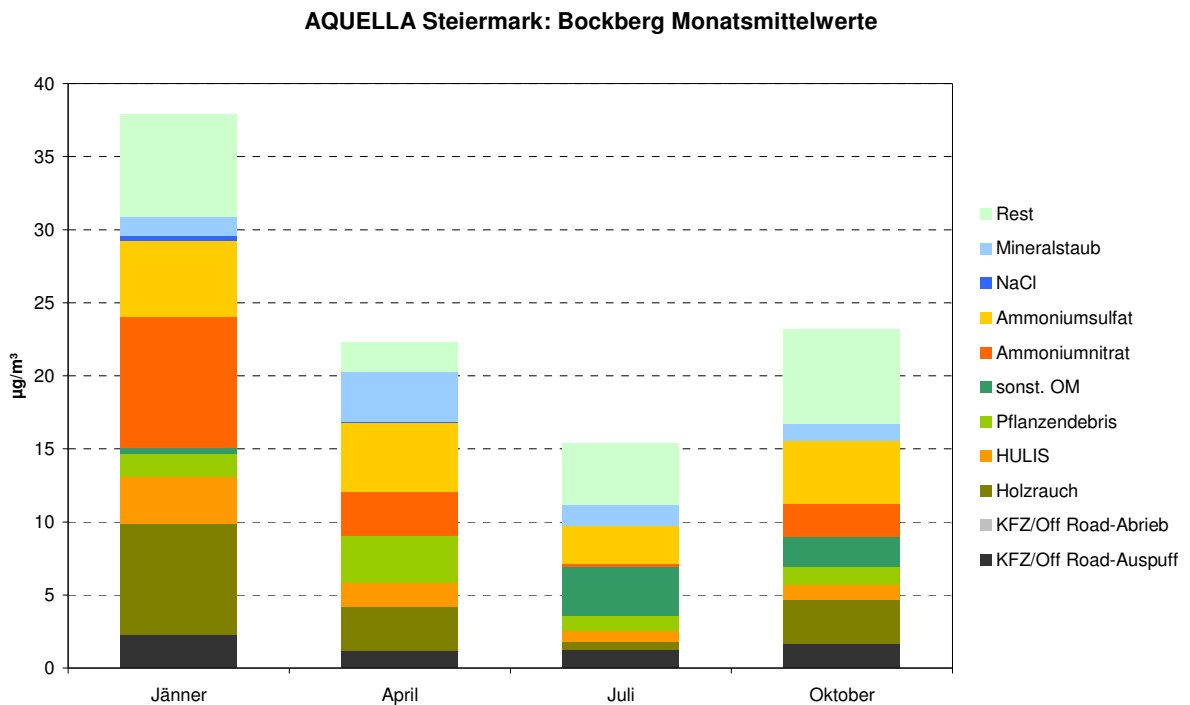


Abbildung 62: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg; Absolutwerte CMB.

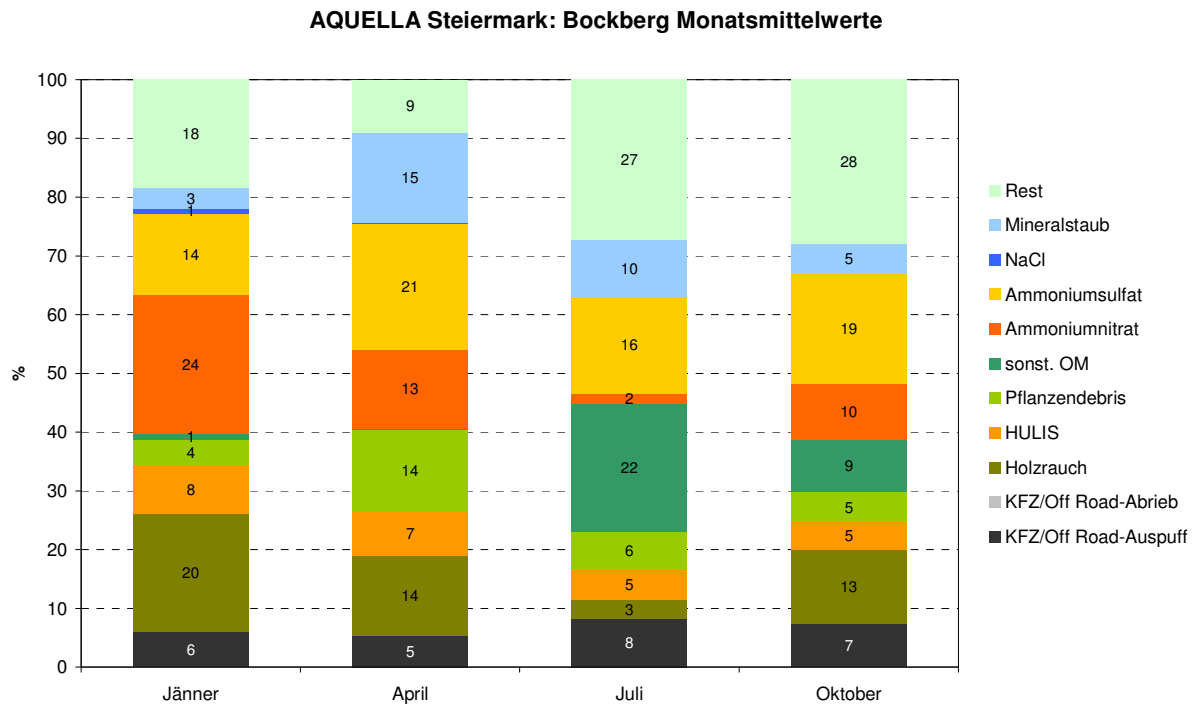


Abbildung 63: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg; Relativwerte CMB.

Für Küchendämpfe und die Verbrennung von Erdgas wurden keine auswertbaren Ergebnisse erhalten.

### 3.10.3 CMB Analyse von Überschreitungperioden

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.

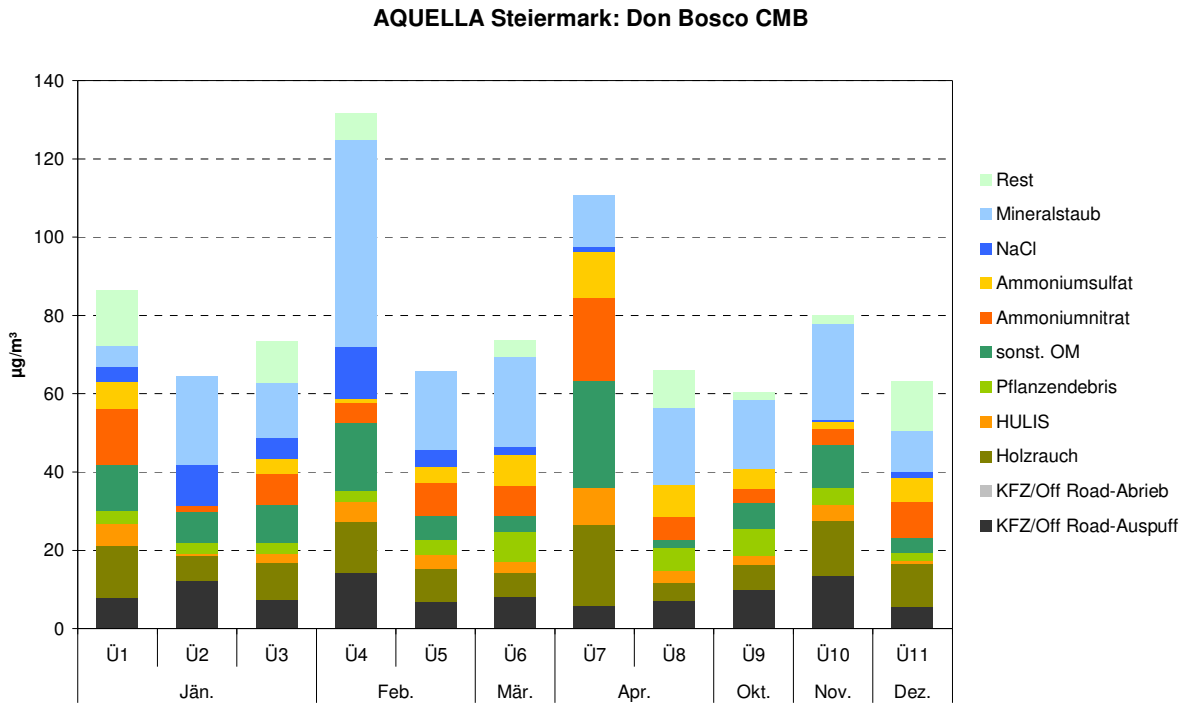


Abbildung 64: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco CMB.

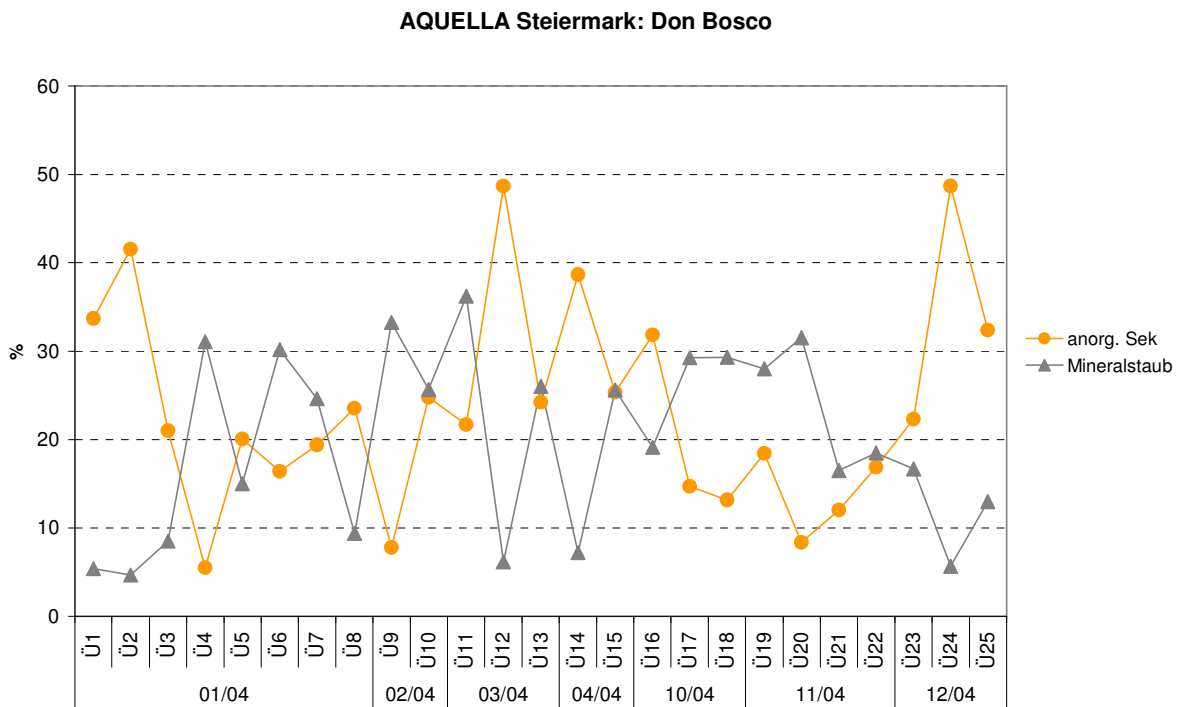


Abbildung 65: Relativanteile von Mineralstaub und Sekundäraerosol an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco

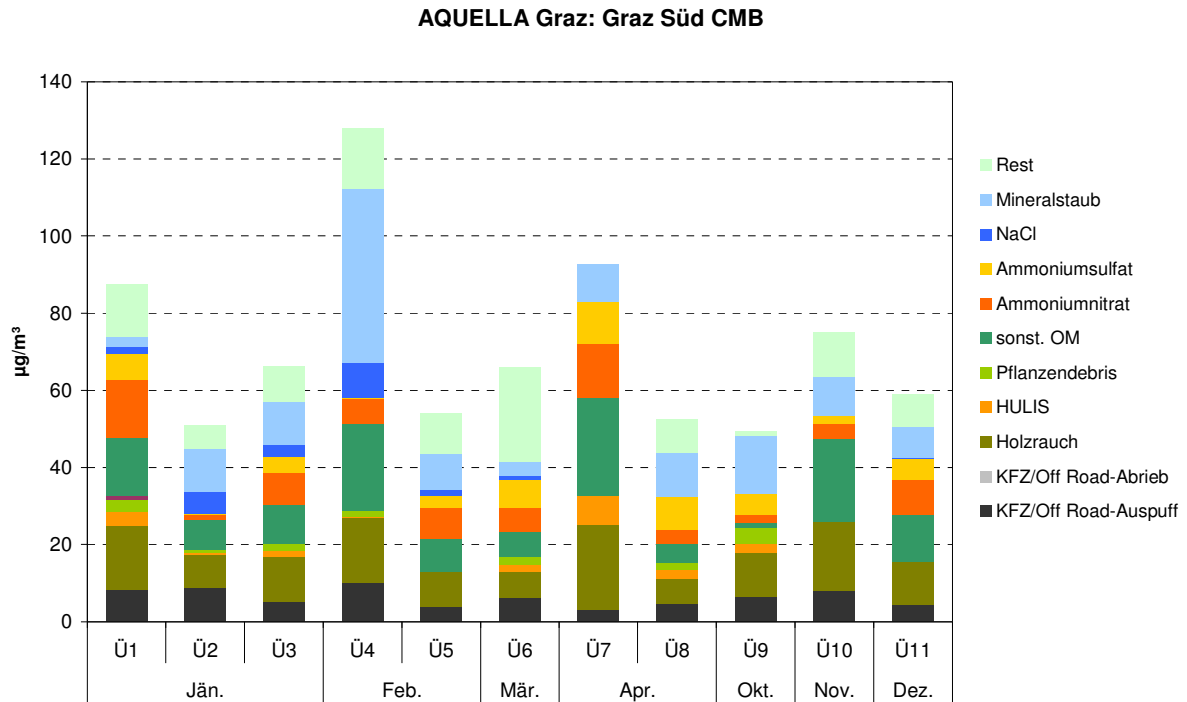


Abbildung 66: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Graz Süd CMB.

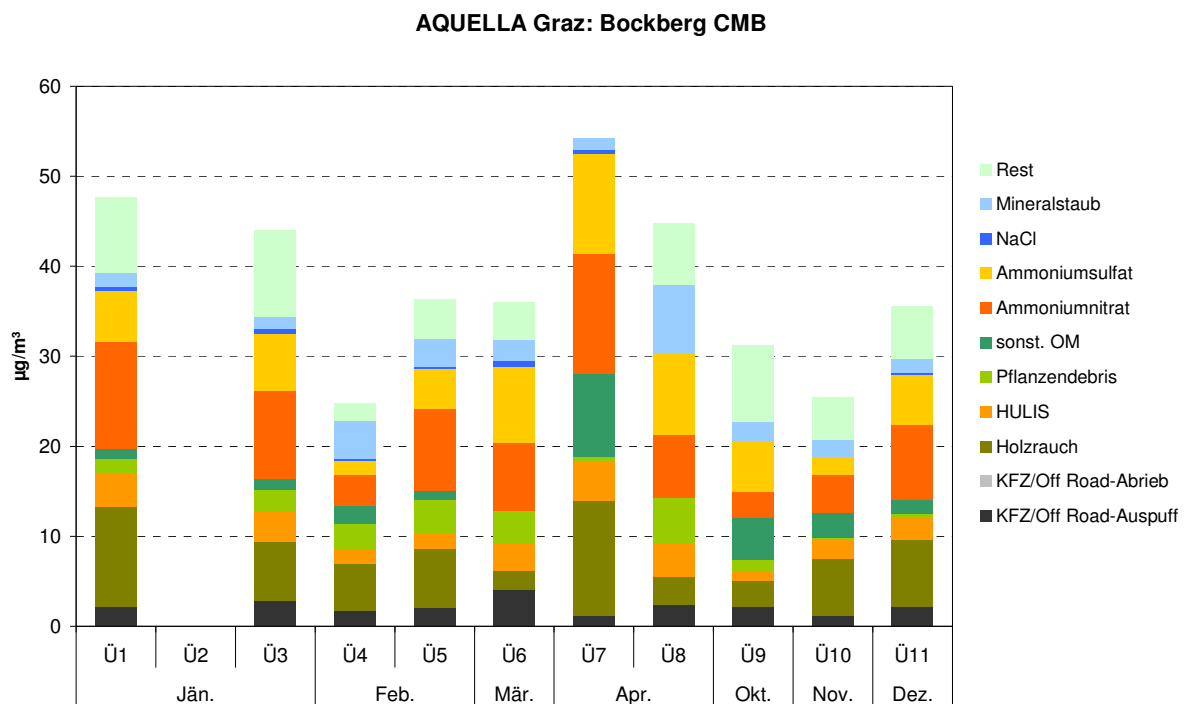


Abbildung 67: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Bockberg CMB.

Der Einfluss von Sekundäraerosol und Mineralstaub ist in der Darstellung in Abbildung 64 ersichtlich: Die beiden Quellen verursachen rund 35-55% der PM10-Belastung an der

Messstelle Don Bosco an Überschreitungstagen, und weisen ein gegenläufiges Massenverhältnis auf. Am Bockberg dominiert Sekundäraerosol und Holzrauch (Abbildung 66).

### 3.10.4 CMB – Massenbilanzen

Das CMB-Modell liefert Kontrollparameter für die Qualität der Modellergebnisse. Als Beispiele sind in den Abbildungen für Don Bosco Jänner und Juli Vergleiche von berechneten und gemessenen Tracerkomponenten sowie von Quellenzuordnungen der angewendeten Tracer angeführt.

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.

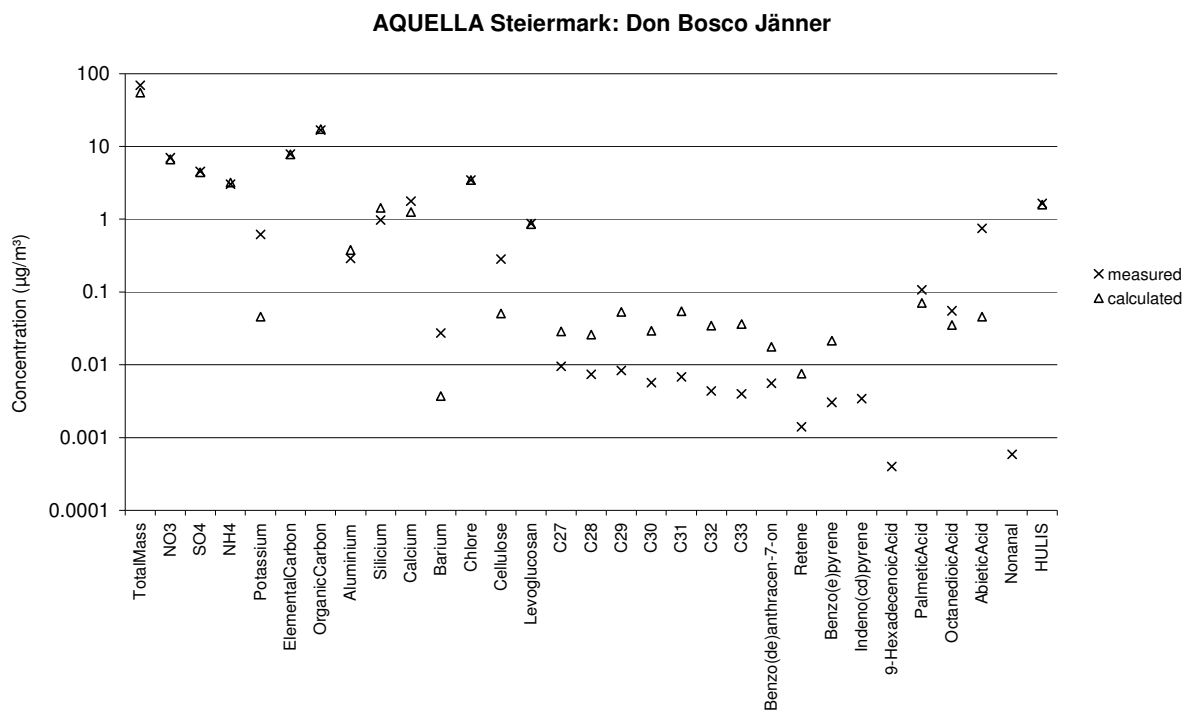


Abbildung 68: Vergleich gemessener und berechneter Traceranteile für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco Jänner**

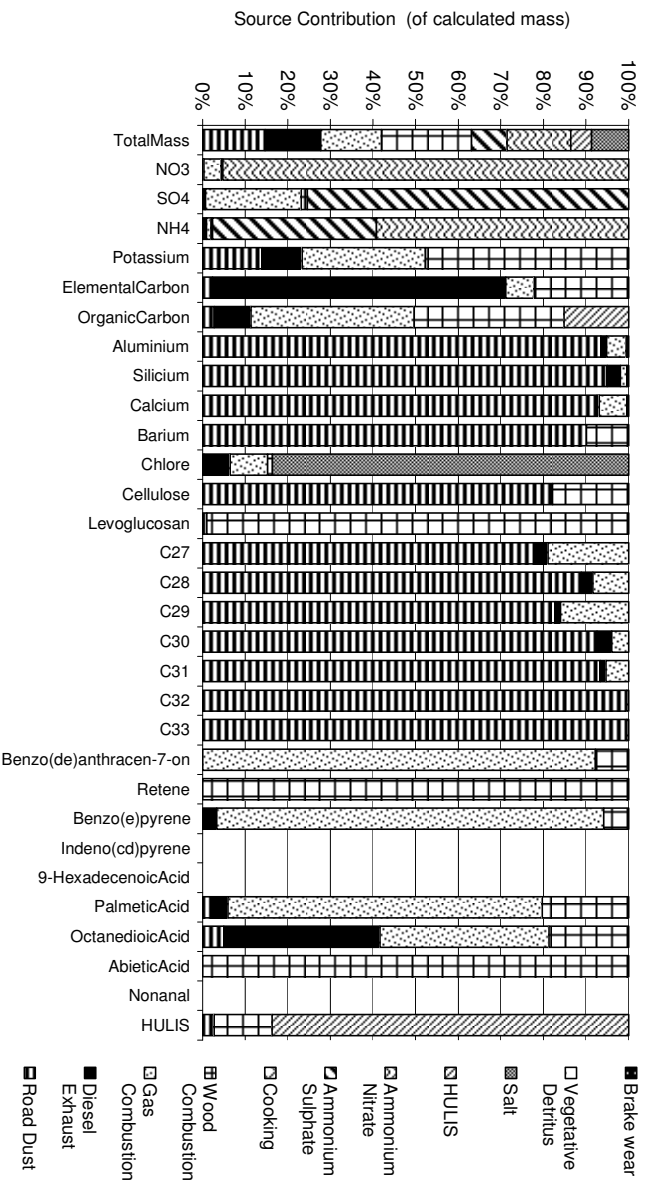


Abbildung 69: Ermittelte Quellenanteile an den Tracern für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Model

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco Juli**

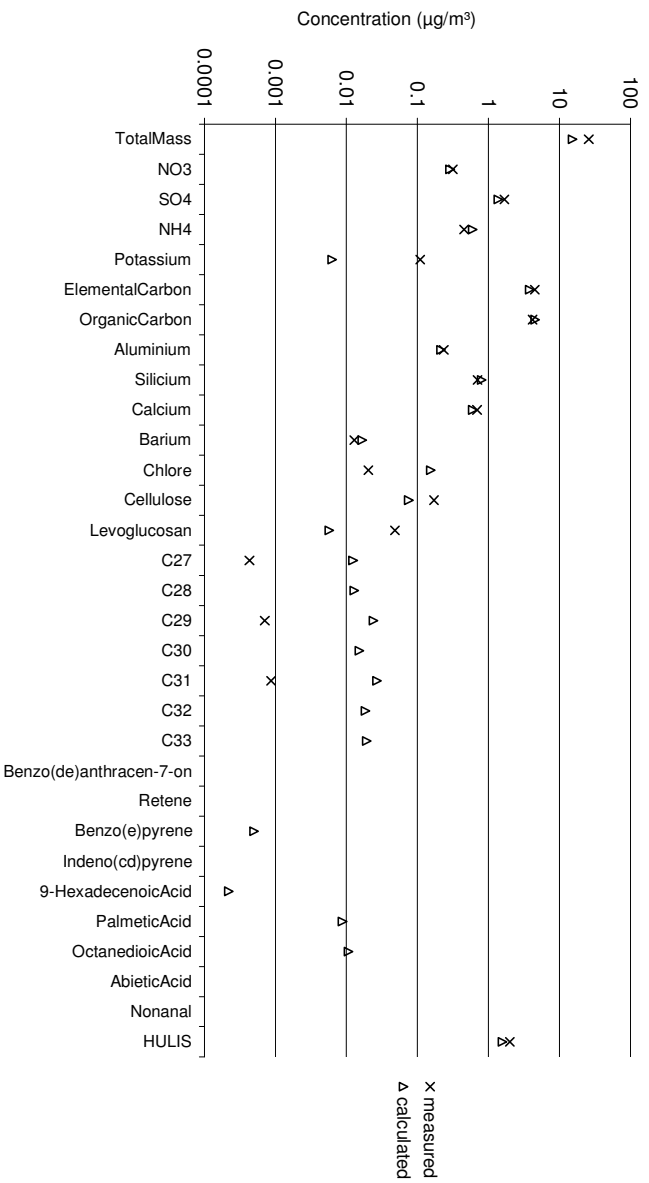


Abbildung 70: Vergleich gemessener und berechneter Traceranteile für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.

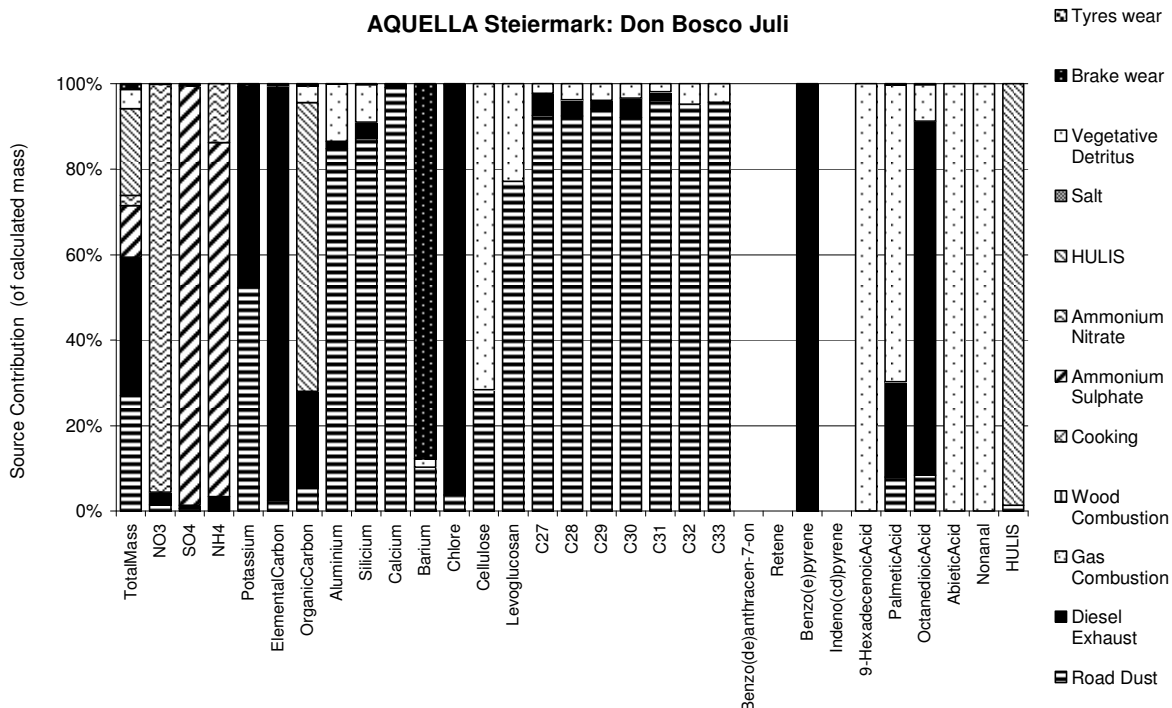


Abbildung 71: Ermittelte Quellenanteile an den Tracern für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.

### 3.11 . Datenvergleiche

#### 3.11.1 Vergleich von CMB und Makrotracer-Ergebnissen

##### Mittelwerte der Saison – Monate

Der Vergleich der Modellergebnisse von Makrotracer und CMB ist numerisch in der Tabelle 19a-c angegeben. In den Saison-Monaten wurden am Don Bosco für CMB gegenüber Makrotracer bei Kfz und Off-Road Emissionen um (-6)-(-11)%, bei Sulfat und Nitrat um (-1) – (-6)% und bei Mineralstaub um (+1) – (+5)% erzielt. Dies bedeutet, dass die beiden Modelle zu ähnlichen Ergebnissen führen, bei Kfz und Off-Road Emissionen sowie bei Sulfat und Nitrat bei CMB mit tendenziell niedrigeren Werten. Für Holzrauch und HULIS, Pflanzendebris und Streusalz werden ähnliche Werte mit CMB erhalten. Die Vergleiche der Ergebnisse für die Saison-Monate für Don Bosco sind in den Abbildungen 71-74 dargestellt. Auch in der Zuteilung des im Makrotracer-Ansatz nicht zugeteilten „sonstigen organischen Materials“ ergeben sich ähnliche Ergebnisse.

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco Jänner**

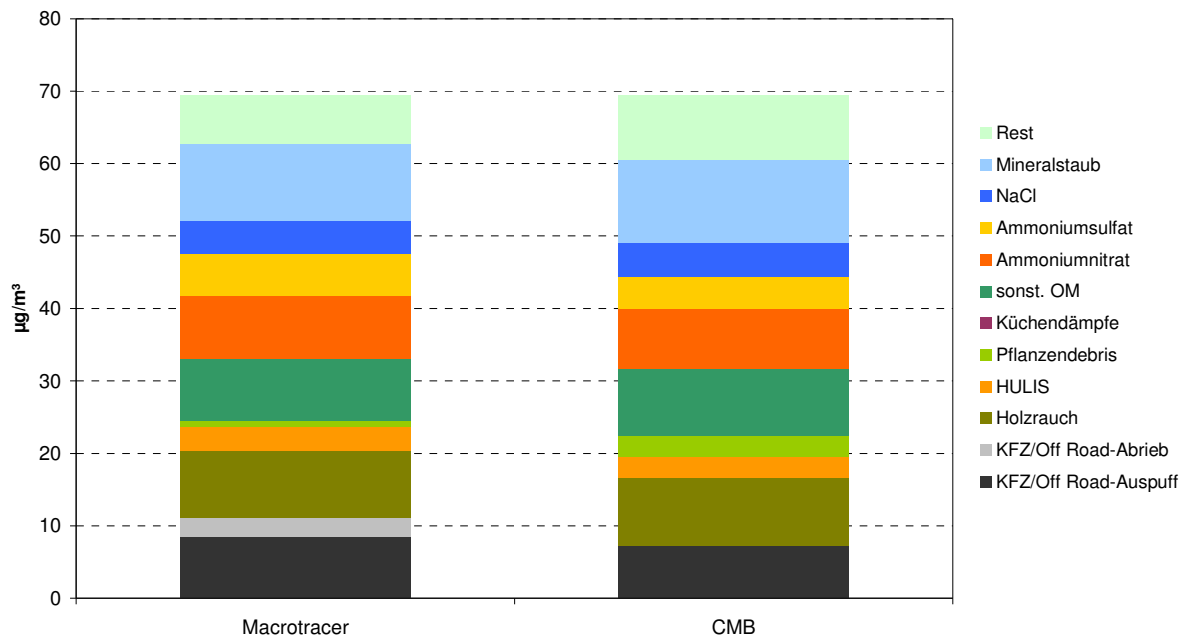


Abbildung 72: Mittelwerte für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

**AQUELLA Steiermark: Don Bosco April**

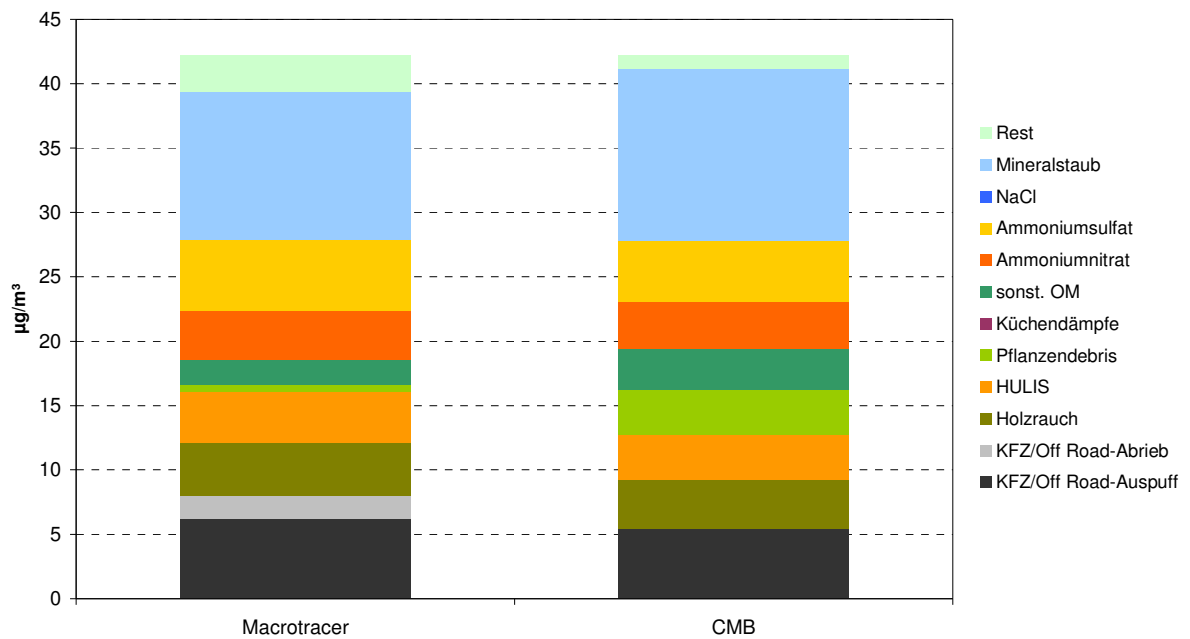


Abbildung 73: Mittelwerte für April 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.



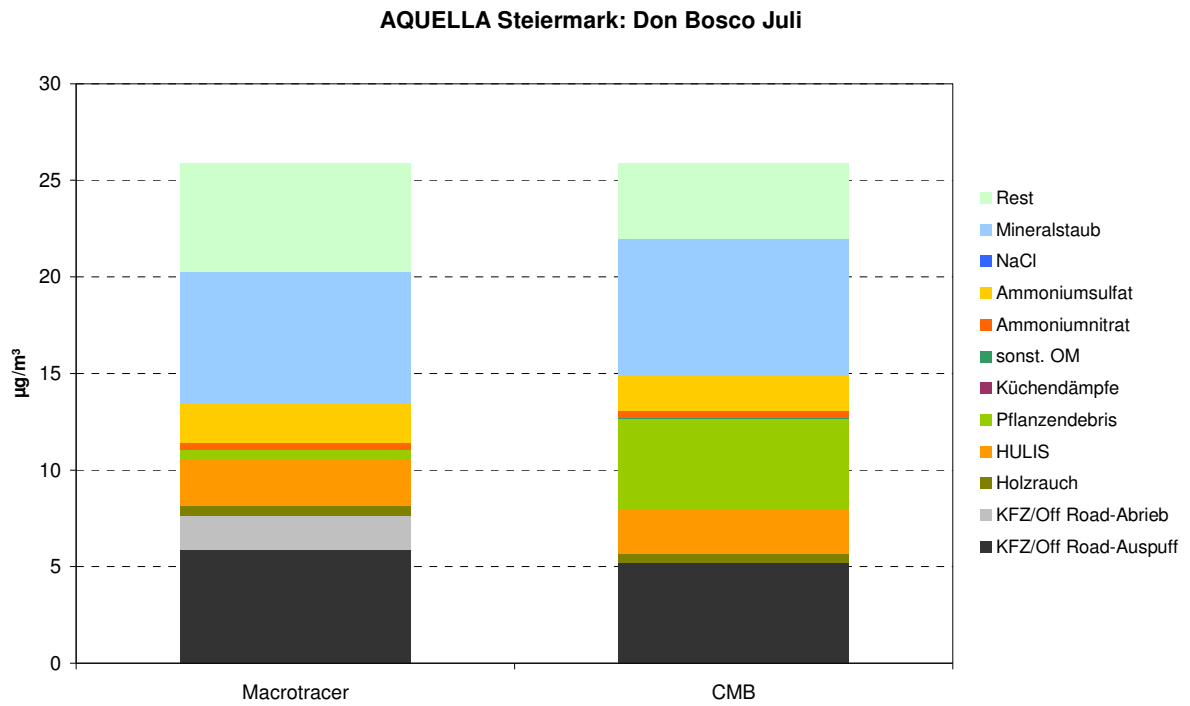


Abbildung 74: Mittelwerte für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

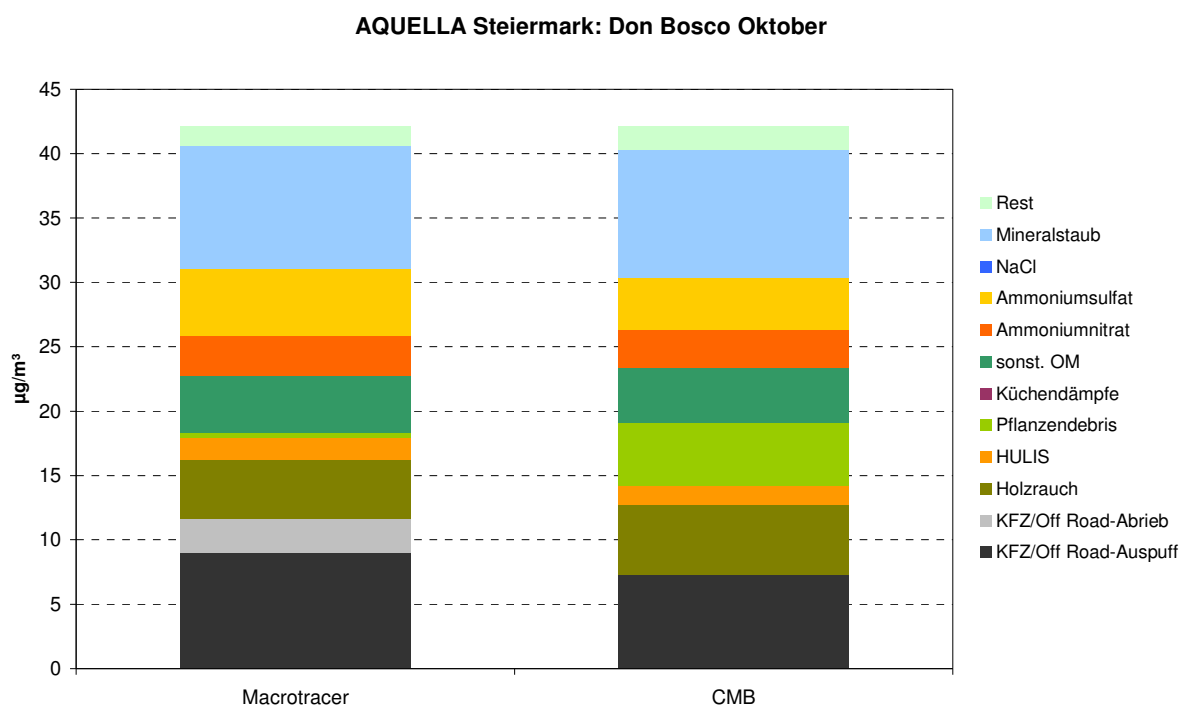


Abbildung 75: Mittelwerte für Oktober 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

### Ergebnisse von Überschreitungsperioden

Auch an einzelnen Überschreitungstagen bzw. einzelnen Überschreitungsperioden werden gut 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.

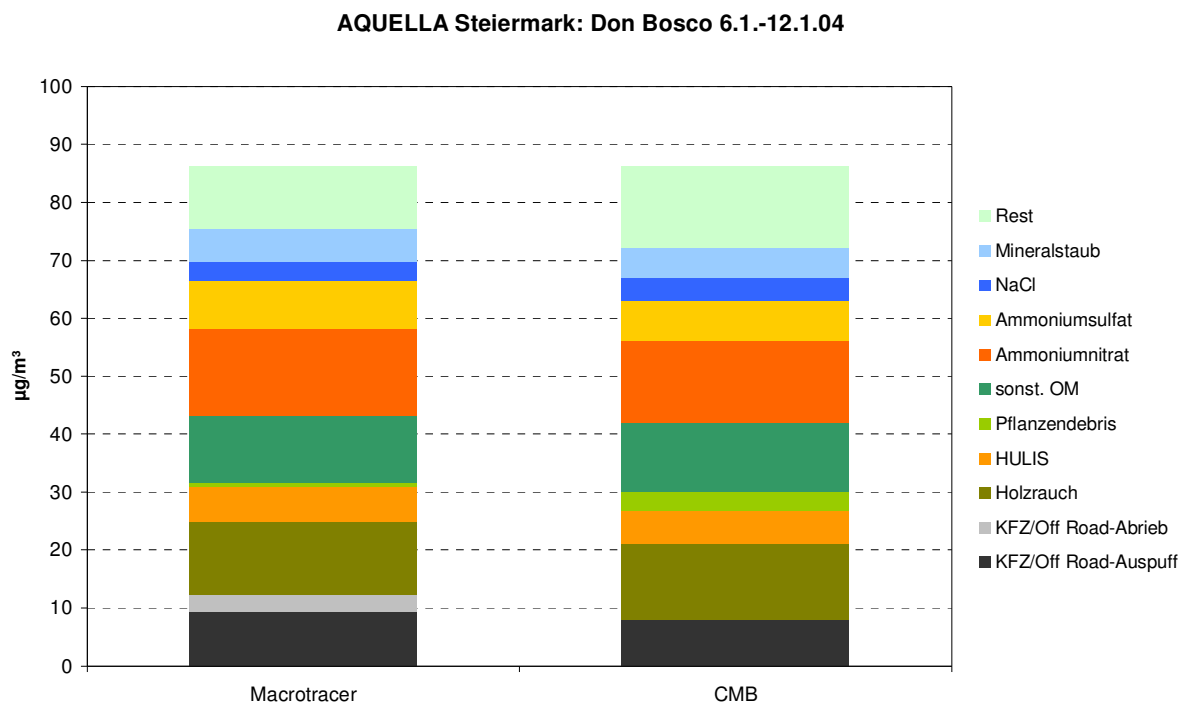


Abbildung 76: Überschreitungsperiode 6.-12.1.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

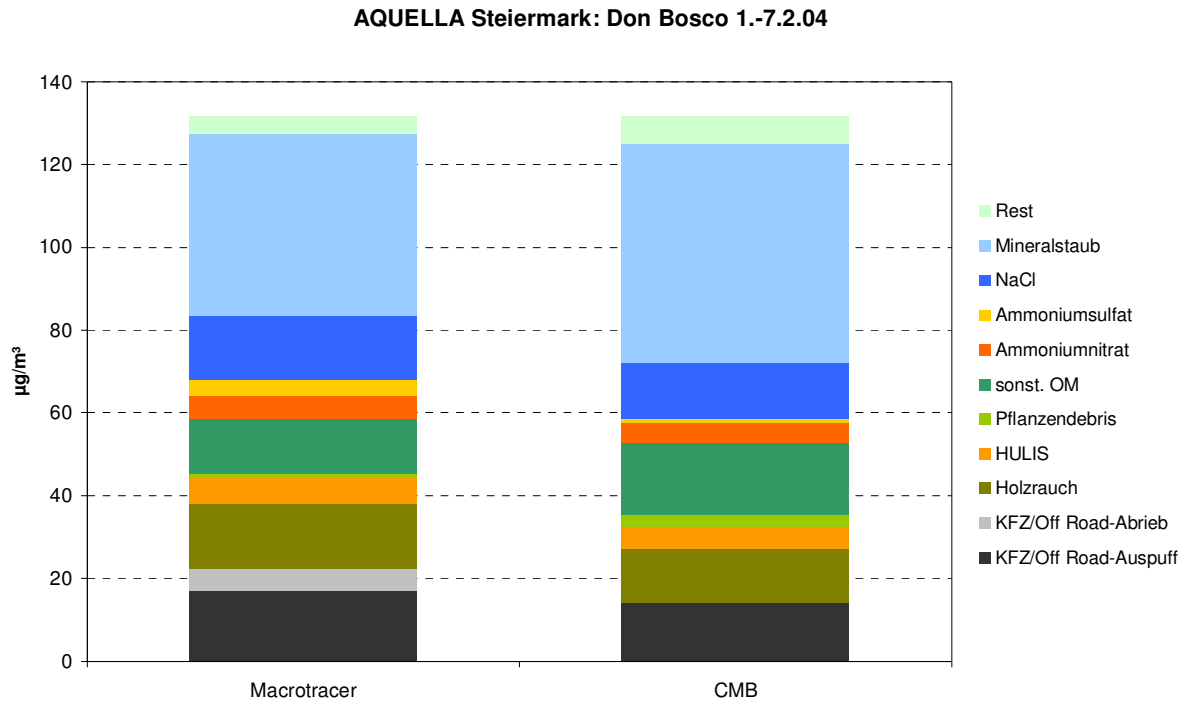


Abbildung 77: Überschreitungsperiode 1.-7.2.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

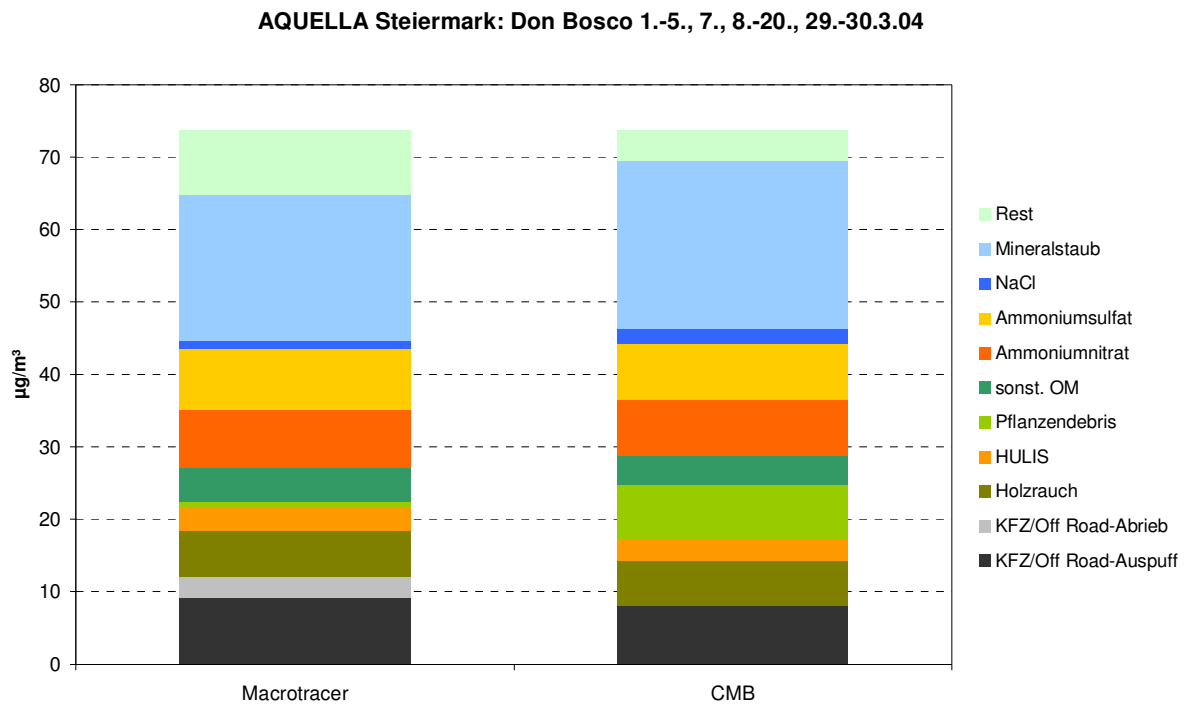


Abbildung 78: Überschreitungstage 1.-5., 7.-20., 29.-31.3.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.

Die Vergleichsdaten im Detail sind in den Tabellen 19a-c angeführt.

Tabelle 19a-c: Vergleichsdaten von Makrotracer und CMB Modellergebnissen für AQUELLA-Ereignisse in Graz; Angaben in % von PM10

Datum	Quelle	Don Bosco		Graz Süd		Bockberg	
		MT	CMB	MT	CMB	MT	CMB
6.-12.1.04	Kfz/OffRoad	14	9	15	10	6	5
	Holzrauch+HULIS	22	22	23	23	34	31
	Sulfate+Nitrate	29	25	30	25	42	37
	Mineralstaub	7	6	5	3	3	3
	Streusalz	5	5	2	2	1	1
	Pflanzendebris	1	4	1	4	1	3
	sonst. OM	14	14	12	17	1	2
13.1.-14.1.04	Kfz/OffRoad	28	19	24	17	Geräteausfall	
	Holzrauch+HULIS	13	11	22	18		
	Sulfate+Nitrate	5	3	7	3		
	Mineralstaub	31	36	27	22		
	Streusalz	16	16	11	11		
	Pflanzendebris	1	5	1	2		
	sonst. OM	7	12	-3	15		
15.-31.1.04	Kfz/OffRoad	16	10	13	8	9	6
	Holzrauch+HULIS	17	16	22	20	24	23
	Sulfate+Nitrate	20	16	24	19	44	37
	Mineralstaub	19	19	21	17	5	3
	Streusalz	7	7	5	5	2	1
	Pflanzendebris	1	4	1	3	1	5
	sonst. OM	13	14	6	15	0	2
1.2.-7.2.04	Kfz/OffRoad	17	11	14	8	10	7
	Holzrauch+HULIS	17	14	14	13	31	28
	Sulfate+Nitrate	8	4	9	5	26	20
	Mineralstaub	33	40	44	35	17	17
	Streusalz	12	10	8	7	2	1
	Pflanzendebris	1	2	1	1	1	12
	sonst. OM	10	13	17	18	7	8
11., 13., 14., 16.- 18., 22., 23., 25., 26.2.04	Kfz/OffRoad	16	11	11	7	8	6
	Holzrauch+HULIS	21	18	19	17	24	23
	Sulfate+Nitrate	25	19	27	21	44	37
	Mineralstaub	26	31	21	17	9	8
	Streusalz	8	7	4	3	1	1
	Pflanzendebris	1	6	0	0	1	10
	sonst. OM	6	9	5	16	2	3

Tabelle 19b:

Datum	Quelle	Don Bosco		Graz Süd		Bockberg	
		MT	CMB	MT	CMB	MT	CMB
1.-5., 7., 8.-20., 29.-31.3.04	Kfz/OffRoad	16	11	13	9	14	11
	Holzrauch+HULIS	13	12	14	13	20	15
	Sulfate+Nitrate	25	21	25	21	50	45
	Mineralstaub	27	31	9	6	12	6
	Streusalz	2	3	3	1	1	2
	Pflanzendebris	1	10	1	3	1	10
	sonst. OM	6	5	2	10	0	0
10.-11.4.04	Kfz/OffRoad	11	6	8	4	5	2
	Holzrauch+HULIS	30	29	34	33	38	38
	Sulfate+Nitrate	41	32	37	28	62	53
	Mineralstaub	5	13	0	11	2	3
	Streusalz	0	1	0	0	0	1
	Pflanzendebris	0	0	0	0	0	1
	sonst. OM	24	26	18	28	0	20
1.-3., 23.4.04	Kfz/OffRoad	16	11	14	9	7	5
	Holzrauch+HULIS	12	12	16	17	20	15
	Sulfate+Nitrate	25	21	26	23	40	36
	Mineralstaub	26	30	26	22	18	17
	Streusalz	0	0	0	0	0	0
	Pflanzendebris	1	9	1	3	1	12
	sonst. OM	3	3	0	10	0	0
6.-8., 19.-21., 25., 27.-29.10.04	Kfz/OffRoad	27	16	20	13	11	7
	Holzrauch+HULIS	13	14	27	28	12	12
	Sulfate+Nitrate	19	14	19	15	30	27
	Mineralstaub	26	29	26	30	12	7
	Streusalz	0	0	0	0	0	0
	Pflanzendebris	1	12	1	9	1	4
	sonst. OM	12	11	6	2	13	15
12., 16.-19., 22.-23., 25.-30.11.04	Kfz/OffRoad	25	17	18	11	7	4
	Holzrauch+HULIS	26	23	24	24	36	33
	Sulfate+Nitrate	12	7	12	8	29	24
	Mineralstaub	25	30	23	14	14	8
	Streusalz	3	1	0	0	0	0
	Pflanzendebris	1	5	0	0	1	1
	sonst. OM	5	14	12	29	8	11
2.-7., 11.-12.12.04	Kfz/OffRoad	13	9	12	8	8	6
	Holzrauch+HULIS	20	19	19	18	30	28
	Sulfate+Nitrate	31	24	30	25	42	39
	Mineralstaub	16	17	17	14	8	4
	Streusalz	3	2	0	0	1	1
	Pflanzendebris	1	3	0	0	0	1
	sonst. OM	2	6	18	21	0	4

Tabelle 19c:

Datum	Quelle	Don Bosco		Graz Süd		Bockberg	
		MT	CMB	MT	CMB	MT	CMB
Jänner	Kfz/OffRoad	16	10	14	9	8	6
	Holzrauch+HULIS	18	18	22	21	30	28
	Sulfate+Nitrate	23	18	26	21	43	37
	Mineralstaub	15	17	16	12	4	3
	Streusalz	7	7	4	4	1	1
	Pflanzendebris	1	4	1	3	1	4
	sonst. OM	12	13	15	15	0	1
April	Kfz/OffRoad	19	13	14	9	8	5
	Holzrauch+HULIS	19	17	19	19	24	21
	Sulfate+Nitrate	24	20	24	21	39	35
	Mineralstaub	27	32	29	25	16	15
	Streusalz	0	0	0	0	0	0
	Pflanzendebris	1	8	2	5	1	14
	sonst. OM	5	8	12	14	0	0
Juli	Kfz/OffRoad	29	20	19	12	13	8
	Holzrauch+HULIS	11	11	6	6	9	8
	Sulfate+Nitrate	10	9	14	11	20	18
	Mineralstaub	26	27	27	28	16	10
	Streusalz	0	0	0	0	0	0
	Pflanzendebris	2	18	2	18	2	6
	sonst. OM	0	0	13	8	18	22
Oktober	Kfz/OffRoad	28	17	22	14	12	7
	Holzrauch+HULIS	15	16	27	29	16	17
	Sulfate+Nitrate	22	16	20	17	33	28
	Mineralstaub	23	24	19	21	9	5
	Streusalz	0	0	0	0	0	0
	Pflanzendebris	1	12	1	9	1	5
	sonst. OM	10	10	1	3	11	9

### 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.

In den USA und Canada wurde Holzrauch als bedeutende Quelle von PM<sub>10</sub> oder PM<sub>2.5</sub> erkannt <sup>[viii, xxxv]</sup>. Andere bedeutende Quellen für Biomasse-Rauch sind Waldbrände <sup>[xxxvi, xxxvii]</sup> und landwirtschaftliche Feuer einschließlich der Verbrennung von Gartenabfällen <sup>[xxxviii]</sup>. In Europa sind Arbeiten über erhöhte Partikel in Gemeinden mit hohem Anteil an Holzfeuerungen v.a. in Skandinavien erschienen <sup>[xxxix, xl]</sup>. Für einen möglichen großräumigen Einfluss von Biomasse-Rauch auf PM<sub>10</sub> in Europa gab es aber bis dato keine Daten, obwohl Emissionsinventuren auf derartiges hindeuten: Entsprechend einer globalen Emissionsinventur <sup>[xli]</sup> stammen 60% der primären pyrogenen Emissionen von OC in Europa aus Biomasseverbrennung. Angesichts eines Anteiles von ca. 50% Sekundärkomponenten im Europäischen PM<sub>10</sub> entspricht der Wert von 60% Holzrauch im Primäraerosol etwa 30% Anteil am PM<sub>10</sub> in der Immission.

In Europa wurde das Projekt „CARBOSOL“ durchgeführt, für welches unser Institut Cellulose und Levoglucosan-Daten lieferte. Eine Aufstellung der Ergebnisse enthält Tabelle 20.

Tabelle 20: Relativer Beitrag (%) von „Biomasse Rauch“ und „Plant Debris“ zu Organischem Material (OM) in PM<sub>2.5</sub> Proben. 2-Jahres Durchschnitt für Sommer und Winter Quartale. Daten von Puxbaum et al. <sup>[xlii]</sup>

Beitrag zu OM [%]		Azoren	Aveiro	Puy de Dome	Schauins- land	Sonn- blick	K- Pusztza
Sommer	Biomasse Rauch	2	6	1	2	4	3
	Plant debris	5	2	5	5	5	6
	Summe	7	8	6	7	9	9
<b>Winter</b>	<b>Biomasse Rauch</b>	<b>18</b>	<b>44*</b>	<b>21</b>	<b>21</b>	<b>23</b>	<b>47</b>
	Plant debris	6	1	10	6	22	2
	Summe	24	69	31	27	45	49

\* Emissionsfaktor für Portugal: 4, für andere Orte 7,35 [OC/Levoglucosan].

Aus den CARBOSOL-Daten kann abgeleitet werden, dass in Europa im Winter 20–50% der feinteiligen organischen Aerosols (OM in PM<sub>2,5</sub>) aus Biomasse-Verbrennung stammen. In Emissionsgebieten (Alpine Täler, Kleingemeinden mit hohem Scheit-Holzanteil bei der Raumwärme) kann der Anteil noch deutlich höher sein.

Die meisten publizierten Daten über Biomasse-Rauch zu organischem oder PM<sub>2,5</sub> Aerosol in ländlichen oder städtischen Regionen, die mit Europa vergleichbar sind, stammen aus Rezeptor-Modell-Studien aus den USA und Canada. An vier Orten im Raum von Los Angeles ergab das CMB Modell einen Anteil von 5-22% Holzrauch am organischen Material (OM) im Jahresmittel <sup>[vii]</sup>. An acht ländlichen und urbanen Orten im Südosten der US trug die Biomasseverbrennung 25-66% zu organischem Material (OM) im Jahresmittel bei, mit

Winterwerten durchwegs > 50% <sup>[viii]</sup>. Aus diesen Arbeiten ist ableitbar, dass Biomasse-Rauch im Winter in den Südost-US die dominante Quelle des organischen Aerosols darstellt. Im Vergleich mit den Europa-Werten von CARBOSOL liegen die US-Werte, umgerechnet auf den Anteil in PM, in einem völlig vergleichbaren Bereich (Tabelle 21).

Tabelle 21: Relative Anteile von Quellen an Überschreitungstagen an der Messstelle Graz Don Bosco, Wien Rinnböckstraße und Vergleich mit Daten von anderen Orten – Jahresmittel. Graz und Wien: Angaben für Überschreitungstage und für „JMW“ aus Makrotracer-Modell

Quellengruppe	Don Bosco PM10 Makrotracer Ü-Tage/„JMW“	Rinnböckstraße PM10 Makrotracer Ü-Tage/„JMW“	4 Orte Raum LA PM2.5 CMB	8 Orte SE-USA PM2.5 CMB	4 Orte Georgia/ Alabama PMF
Sekundär anorganisch	21 / 21	34 / 31	38-51	42	39-52
Mineralstaub	23 / 21	20 / 23	11-13	2	2-3
Streusalz	5 / 2	2 / 2	-	-	-
Holzrauch u. org. sekundär	18 / 16	13 / 9	1-11	15	9-29
Andere organische Anteile	9 / 8	4 / 2	4-5	-	-
Verkehr und andere fossile Quellen	18 / 21	13 / 18	14-42	18	x-17
Kochen	-	/ 3	5-9	3	-
Sonstige Quellen	-	-	Reifen: 0,7-1	k.A.	Industrielle Qu.:12-18
Nicht erklärt	7 / 8	17 / 0		k.A.	11-14

\* aus CMB „JMW“ ... Mittel aus Jan, Apr, Jul, Okt

Am Bockberg lag der Anteil von Holzrauch an Überschreitungstagen bei Einbeziehung der organischen Folgeprodukte, die auf Holzrauch zurückzuführen sind, bei 25%, im Urban Impact lag Holzrauch noch bei 13%.

Es ist überraschend, dass die Identifizierung von Biomasse – Rauch als bedeutende Quelle und bedeutendster Beitrag zu organischen feinen Teilchen in Europa nicht früher nachgewiesen wurde.

### 3.11.2 Die Aufteilung des Verkehrs-Beitrags

Die Aufteilung der Quellengruppe Verkehr und andere fossile Quellen erfolgt nach der Aufteilung der Ruß-Emissionen - nach Abzug des Holzrauchanteils in Verkehrs- und Off-Road Anteile - nach dem Schlüssel 3:1 <sup>[xxii]</sup>. Der Anteil des organischen Materials im Abgas entspricht dem Verhältnis zum Verkehrs-Ruß entsprechend den Ergebnissen einer Messung im Kaisermühlentunnel 2005 <sup>[xliii]</sup>. Nicht berücksichtigt derzeit sind die allfälligen Anteile von



Kohlefeuerungs-Emissionen, die für den Grazer Raum als eine unbekannte Größe darstellen und möglicher Weise auch im Ferntransport nicht vernachlässigbar sind.

Im Fall des Urban Impacts für die Messstelle Don Bosco, die als spezielle Messstelle nahe einer stark befahrenen Kreuzung besonders verkehrsbetont ist, liegt der Beitrag von Kfz-Abgas, Brems- und Reifenabrieb, sowie Anteilen der Off-Road Emissionen bei etwa 21%. Diese können nach den Emissionsdaten und Emissionsinventuren auf folgende Anteile gesplittet werden:

Bei Vernachlässigung eines Einflusses von Kohlefeuerungen ergeben sich 5% für Off-Road Emissionen, 5% für Kfz-Abrieb (Reifen- und Bremsabrieb) und 11% für Kfz-Abgasemissionen, davon je etwa die Hälfte (je 5,5%) für PKW und für Liefer- und Lastfahrzeuge.

Für die Überschreitungstage wurden an der Messstelle Graz Don Bosco 14% des PM10 den Exhaust-Emissionen von Off-Road und Kfz-Verkehr zugeordnet. Weitere 4% entfallen auf Brems- und Reifenabrieb. Der Anteil des Straßenabriebs und der Wiederaufwirbelung kann aus Monaten geringerer Mineralstaubbelastung abgeschätzt werden, bzw. aus dem „Urban Impact“. Im Juli 2004 lag der aus dem Urban Impact abgeleitete Anteil von Straßenabrieb und der Wiederaufwirbelung bei 100 % der Exhaust-Emissionen, im Oktober bei 110%. Im Juli und Oktober-Mittel lagen die Non-Exhaust Emissionen (Brems- und Reifenabrieb, Straßenabrieb und Wiederaufwirbelung) insgesamt bei 130-140% der Exhaust-Emissionen, wobei nicht zwischen Off-Road und Kfz-Emissionen unterschieden wurde. In den anderen Monaten lagen die Mineralstaub-Werte deutlich höher, als im Juli und Oktober. Es ist anzunehmen, dass die 1,3:1 Relation Non-Exhaust-Exhaust für Kfz-Emissionen eher eine Obergrenze darstellt, da Off-Road Quellen im Bausektor deutlich höhere Anteile bewirken dürften. Weitere Quellen wie Landwirtschaft und Winterdienst bewirken eine Erhöhung des scheinbaren „Non-Exhaust“-Anteils auf 180-200% in den anderen Monaten.

### 3.11.3 Die Mineralstaubanteile

Der größte Anteil mit 32% an Überschreitungstagen im Urban Impact an der Messstelle Don Bosco wird durch Mineralstaub silikatischen und karbonatischen Typs gebildet. Es ist anzunehmen, dass diese hohen Anteile nicht durch normalen Straßenabrieb gebildet werden. Die möglichen Ursachen sind Streusplitt, oder anderes Straßen verschmutzendes Material von Reifen oder Ladegut.

Die Auftausalze – NaCl – liegen bei beachtlichen 8%. Sollte sich die Vermutung bestätigen, dass die hohen Anteile des Mineralstaubs im Wesentlichen durch Streusplitteinwirkung zustande kommen, dann wären durch winterliche Einflüsse im Bereich „Winterdienst“ insgesamt 40% des zusätzlichen PM10 an der Messstelle Don Bosco von dieser Quellenkategorie.

Das Splittmaterial in den Wintersaisonen von 2004 war nach Angaben der Stadtverwaltung Basalt. Es war jedoch analytisch im Jänner 2004 sowie insgesamt an den Überschreitungstagen etwa ein Drittel des Mineralstaubs in PM10 karbonatisch. Kalk- und dolomithaltiges Material könnte im Gehsteigbereich Verwendung gefunden haben. Des

Weiteren kann karbonatisches Material aus Straßenabrieb, aber auch von Baustellen und sonstigen staubgenerierenden Vorgängen stammen.

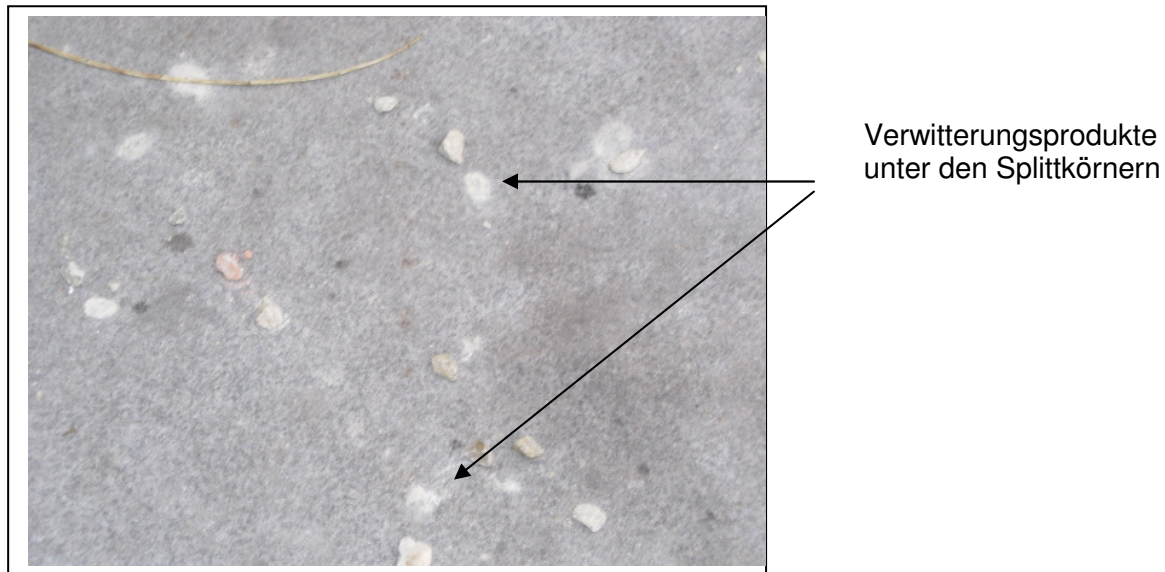


Abbildung 79: Verwitterungsprodukte unter Dolomit Splittkörnern – Im Hof der TU Wien, Dezember 2004

Es wäre zu untersuchen, ob durch nicht direkt mit der Streuung verbundene Vorgänge (Straßenabrieb, Gehsteig-Streuung, Baustellenemissionen) karbonatische PM10 Stäube generiert werden.

Die Staubentwicklung durch mineralische Stäube aus dem Winterdienst dürfte durch verschiedene Ursachen erfolgen.

So lange Schnee liegt, oder die Straße feucht ist, wird die Staubentwicklung nicht merkbar sein. Bei winterlichem, kaltem Schönwetter (antizyklonaler Hochdrucklage) werden Splittanteile auf der Fahrdecke verrieben werden. Diese Produkte werden dann auf die Seite geschleudert und finden sich in den Parkspuren. Die Fahrstreifen sind dann relativ sauber und der Staub findet sich in Streifen neben den Fahrspuren. Nicht erfasst sind die Prozesse, wie es zur Wieder – Verwirbelung kommt. In Frage kommen Fahrzeuge, die knapp am Rand fahren, sowie der eigentliche Einkehrvorgang, der mehrere Wochen in Anspruch nehmen kann. Die Messergebnisse zeigen, dass vermutlich beide Vorgänge eine Rolle spielen. Zum einen wird in den Wintermonaten an trockenen Tagen erhöhter Mineralstaub beobachtet. Zum anderen treten im Spätwinter (meist März) regelmäßig hohe Mineralstaubanteile auf, die möglicher Weise mit dem Einkehrvorgang im Jahr 2004 in Verbindung sind.

Die Frage, wie das Fahrverhalten die Mineralstaubentwicklung aus dem Winterdienst-Material beeinflusst, kann aus den Daten der vorliegenden Studie nicht beantwortet werden, da Untersuchungen des Fahrverhaltens nicht vorgesehen waren.

Das Auftreten von Mineralstaub an der Messstelle Graz Don Bosco kann als „episodisch“ bezeichnet werden: Tage mit sehr niedrigem Mineralstaubanteil (bei vermutlich nasser oder Schnee bedeckter Fahrbahn) wechseln mit Tagen hoher Mineralstaubbelastung ab (Abbildung 80). Die hohen Werte von Mineralstaub im März dürften mit der Einkehrperiode

zusammen hängen. Frappant sind die gegenläufig auftretenden Anteile von Mineralstaub und Sekundäraerosol (Abbildung 88).

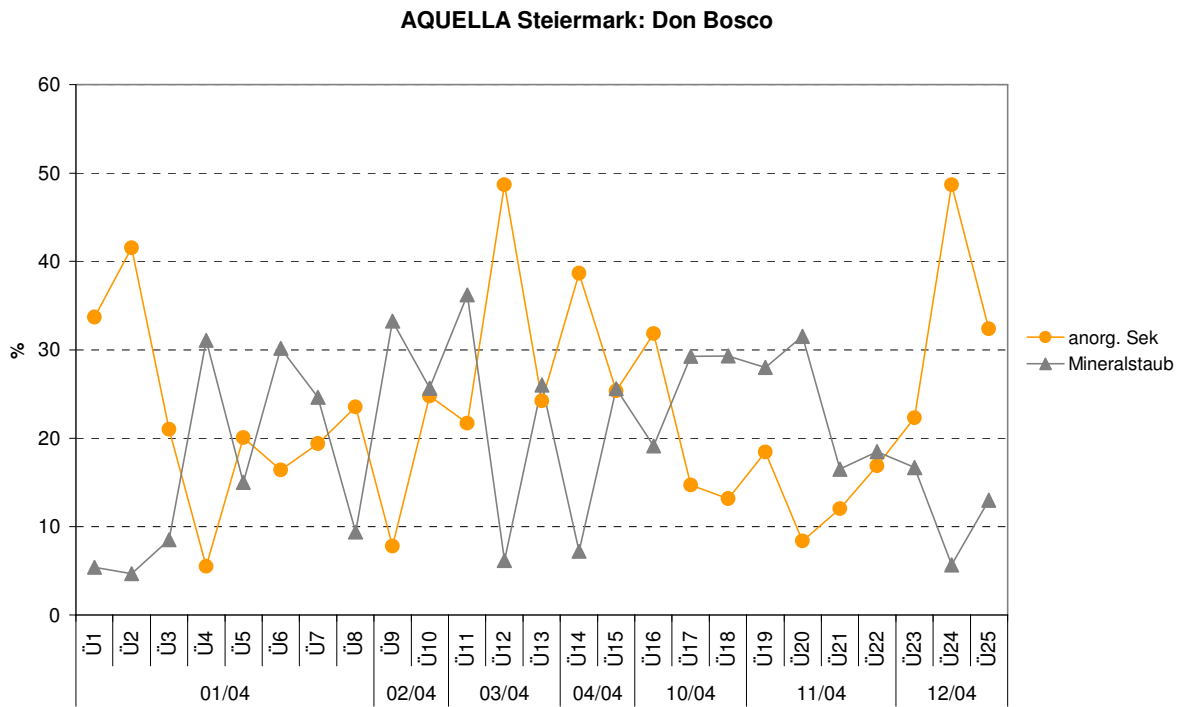


Abbildung 80: Verlauf von Mineralstaub und Sekundäraerosol (Sulfate und Nitrate) an der Messstelle Don Bosco, Überschreitungsepisoden 2004

### 3.12 Städtevergleich Graz – Wien – Salzburg

Ein Vergleich der mittleren Anteile von Quellen an Überschreitungstagen ist für drei verkehrsnahen Messstellen in Wien, Graz und Salzburg in Abbildung 81 und Abbildung 82 dargestellt. Die Quellenbeiträge an den drei Messorten sind unterschiedlich: An der Messstelle Salzburg Rudolfsplatz sind im Mittel über die Überschreigungsperioden Kfz- und Off-Road-Anteile sowie Holzrauch und HULIS ähnlich wie in Wien Rinnböckstraße; Sulfat und Nitrat etwas geringer, Mineralstaub v.a. bei den karbonatischen Anteilen 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 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**

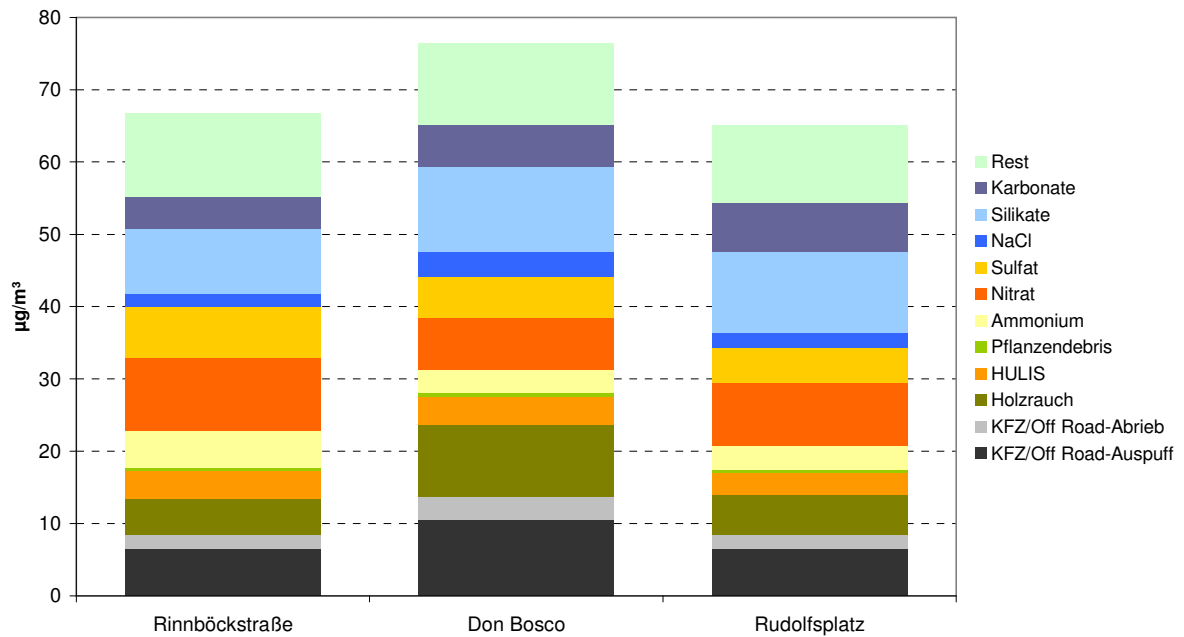


Abbildung 81: Vergleich der drei Städte – verkehrsnahen Messstellen (Wien Rinnböckstraße; Graz Don Bosco; Salzburg Rudolfsplatz), Überschreitungsepisoden 2004, Makrotracer-Quellendaten – Absolutwerte

**AQUELLA: Vergleich der verkehrsnahen Messstellen**

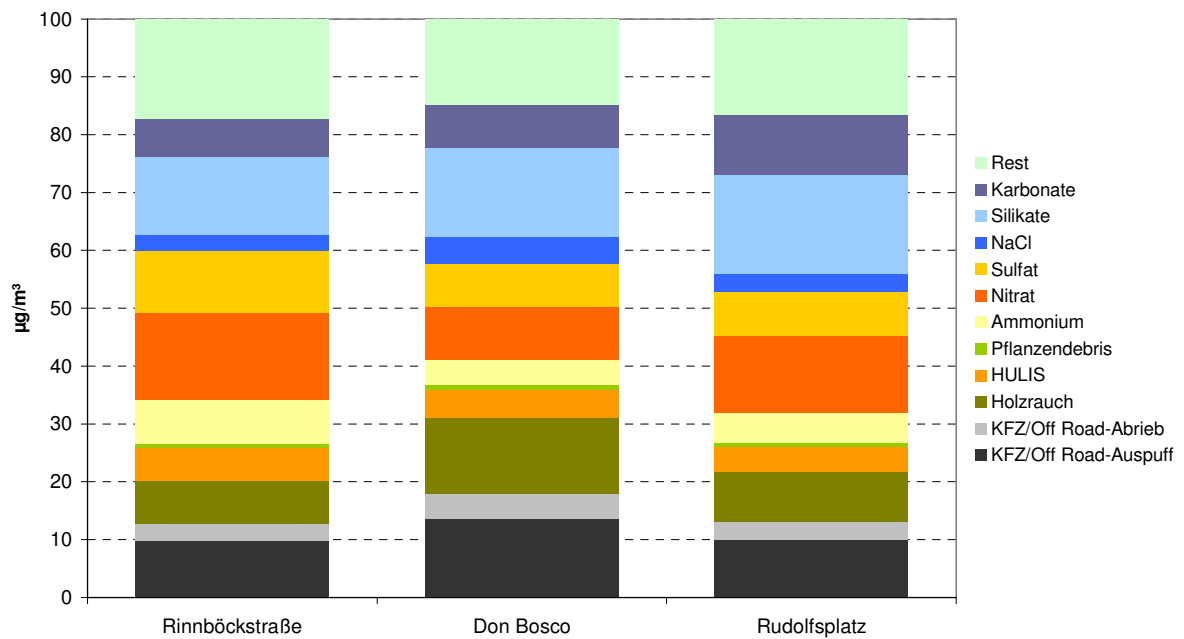


Abbildung 82: Vergleich der drei Städte – verkehrsnahen Messstellen (Wien Rinnböckstraße; Graz Don Bosco; Salzburg Rudolfsplatz), Überschreitungsepisoden 2004, Makrotracer-Quellendaten – Relativwerte

### 3.13. Überschreitungen – Einfluss der Vorbelastung

#### 3.13.1 Der Beitrag der Vorbelastung

Aufgrund der Lage des Bockbergs, etwa 18 km südlich von Graz, kann diese Messstelle als regionale Hintergrundmessstelle für den Raum Graz angesehen werden. In Tabelle 22 sind die PM10 Messdaten der regionalen Hintergrundmessstelle im Vergleich zu den urbanen, verkehrsnahen Messstellen (Don Bosco, Graz Süd) angeführt.

Tabelle 22: Vergleich der PM10 Werte an Überschreitungstagen an den Messstellen Graz Don Bosco, Graz Süd mit Vorbelastungswerten am Bockberg.

Epi Nr.: Episode Nr.; N Tage: Zahl der Tage im Pool; DB: Don Bosco; GS: Graz Süd; BB: Bockberg; Charakteristik: Haupt-Quellen in den Stadtstationen; AS: Ammoniumsalze; H: Holzrauch; Min: Mineralstaub; NaCl: Streusalz-Staub; G: Gemischte Quellen

Epi Nr	Don Bosco Episoden/ Pools	DB $\mu\text{g}/\text{m}^3$	N Tage	Charakteristik	$\Delta$ DB-BB	Belastung Graz Süd $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\Delta$ GS-BB	Vorbelastung Bockberg $\mu\text{g}/\text{m}^3$
<b>1</b>	6.-8.1.04	78	3	AS, H	32	74	29	<b>46</b>
<b>2</b>	09.01.2004	112	1	<b>AS, H</b>	24	109	21	<b>88</b>
<b>3</b>	10.-12.1.04	86	3	AS, H	50	91	55	<b>36</b>
4	13.-14.1.04	64	2	Min, NaCl, Kfz		51		
5	15.-20.1.04	53	6	G		48		
6	21.-23.1.04	61	3	G		53		
7	24.-27.1.04	91	4	G		79		
<b>8</b>	28.-31.1.04	96	4	G	52	91	47	<b>44</b>
9	1.2.-7.2.04	132	7	G	107	128	103	25
<b>10</b>	11., 13., 14., 16.-18., 22., 23., 25., 26.2.04	66	10	G	29	54	18	<b>36</b>
11	1.-5.3.04	66	5	Min, H, AS	41	55	31	25
<b>12</b>	07.03.2004	60	1	<b>AS</b>	6	58	4	<b>54</b>
<b>13</b>	8.-20.3., 29.-31.3.04	77	16	G	38	70	31	<b>38</b>
<b>14</b>	10.-11.4.04	104	2	AS, H	58	89	43	<b>46</b>
<b>15</b>	1.-3., 23.4.04	66	4	G	21	53	8	<b>45</b>
<b>16</b>	6.-8.10.04	63	3	G	21	49	7	<b>43</b>
17	19.-21.10.04	65	3	G	33	60	29	32
18	25., 27.-29.10.04	55	4	G	33	41	18	22
19	12.11.2004	52	1	G	37	34	19	15
20	16.-19., 22.-23.11.04	77	6	Min, H, Kfz	58	69	49	19
21	25.-28.11.04	94	4	H, Kfz	62	99	68	31
<b>22</b>	29.-30.11.04	74	2	G	37	67	29	<b>37</b>
23	2.-4.12.04	66	3	G	42	65	40	25
<b>24</b>	05.12.2004	66	1	<b>AS, H, Min</b>	11	61	6	<b>54</b>
<b>25</b>	6.-7., 11.-12.12.04	60	4	G	21	55	16	<b>39</b>
	Summe		102					

Rot: Vorbelastung  $>50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ; Violett: Vorbelastung  $>35 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Es ist erkennbar, dass die Überschreitung von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  an der regionalen Hintergrundmessstelle relativ selten auftrat, dass jedoch an den Überschreitungstragen (definiert durch Überschreitung an der Don Bosco) im Hintergrund häufig PM10-Werte von

über 35 µg/m<sup>3</sup> vorlagen, die dem Ballungsraum nur mehr wenig Spielraum für das „urbane Inkrement“ ließen.

Die Betrachtung der Zusammensetzung von Partikel PM<sub>10</sub> an der Hintergrundmessstelle Bockberg zeigt, dass an Überschreitungstagen 42% von den Komponenten durch Sulfate und Nitrate, und 25% von Holzrauch und verwandten organischen Substanzen gebildet werden; insgesamt somit 67% aus diesen Quellen stammen. Lediglich 8% stammen von Diesel-Abgas. Die Holzrauch-Emissionen führen damit zu erheblich höheren Feinstaub-Werten im Hintergrund, als die Kfz- und Off Road-Abgasemission (Tabelle 23).

Tabelle 23: Quellenanteile an der 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<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>, Feuchte / Hohe Ferntransportanteile

Mineralstaub: Karbonatischer und silikatischer Staub, überwiegend 2-10 µm, verstärkt im Feb/März

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 23).

An zweiter Stelle stehen PM<sub>10</sub>-Anteile aus Holzrauch und HULIS (25%) (Tabelle 23). 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 PM<sub>10</sub> 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 (Wörgetter und Moser, 2005). 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%.

**Die Hintergrundbelastung für Graz wird an Überschreitungstagen in erster Linie durch Ammoniumsulfat und –nitrat“ (42%), in zweiter Linie durch Holzrauch und HULIS (25%) verursacht. Die Summen aus Anorganischen Sekundärkomponenten („Ammoniumsulfat und –nitrat“) und Holzrauch liegen bei ca. 67% des PM10. Kfz- und Off Road-Abgas weist als Quellenbeitrag einen Bereich von 8% auf, der etwa zu gleichen Teilen auf Off Road-Maschinen, Nutzfahrzeuge und PKW aufzuteilen ist.**

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.

### 3.13.2 Überlegungen zu einer zulässigen Zusatzbelastung in einem Ballungsgebiet

Wenn für ein Ballungsgebiet an Überschreitungstagen die Hintergrundbelastung bereits im Mittel 35 µg/m<sup>3</sup> bzw. 70% der Konzentrationswerte ausmacht, die zur Überschreitung führen (Tabelle 24), 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 µg/m<sup>3</sup> zu vermeiden, oder es ist 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. Es gibt zu dieser Frage derzeit keine Fachliteratur oder Lehrmeinung. Es soll daher an dieser Stelle zu dieser Frage Stellung genommen werden. Wenn der TMW-Grenzwert bei 50 µg/m<sup>3</sup> liegt, sollte das zulässige Inkrement in einem Ballungsraum 50% dieses Wertes betragen. Dies bedeutet, dass der Hintergrundwert nicht höher als 25 µg/m<sup>3</sup> betragen sollte, so dass ein Inkrement von 25 µg/m<sup>3</sup> möglich wäre.

**Der Hintergrundwert sollte nicht mehr als 25 µg/m<sup>3</sup> betragen; damit sollte ein Inkrement von 25 µg/m<sup>3</sup> im Ballungsgebiet möglich sein.**

Tabelle 24: PM10 Konzentration an der Hintergrundmessstelle im Verhältnis zur beobachteten Konzentration an den verkehrsnahen Messstelle und „Urban Impact“ an der verkehrsnahen Messstelle (Daten für Überschreitungstage an den Rezeptormessstellen)

Graz	Don Bosco	Bockberg	Urban Impact
PM10 µg/m <sup>3</sup>	76	35	42
PM10 %	100	46	54

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.

**Bei Hintergrundwerten über 50% des TMW-Grenzwerts sollte eine Überschreitung in einem Ballungsgebiet nicht den Aktivitäten des Gebietes angelastet werden.**

### 3.13.3 Die Hauptkomponenten an den belasteten Messstellen an Überschreitungstagen

Für AQUELLA – Graz wurden die in Tabelle 25 angeführten Belastungs-Messstellen ausgewählt. Es handelt sich um verkehrsnah, an stark befahrenen Straßen gelegene Messstellen.

Tabelle 25: „Belastungsmessstellen“ und urbane Hintergrundmessstelle im Projekt AQUELLA – Graz

Land/Stadt	Messstelle	Anmerkung	PM10 „JMW“ $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Graz	Don Bosco	Wohngebiet/Straßennah	45
Graz	Graz Süd	Wohngebiet/Straßennah	38
Steiermark	Bockberg	Regionaler Hintergrund	25

„JMW“ Mittel aus den Monaten Jänner, April, Juli, Oktober

Die Hauptquellenanteile an den Belastungs-Messstelle Don Bosco sind in Tabelle 26 angeführt, ebenso der durch Differenzbildung erhaltene „Local Impact“. Als „Local 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 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 für jedermann feststellbar – an dieser Seite müsste auch angesetzt werden. In der Gruppe Mineralaerosol und Auftausalz sind jedenfalls die in der kalten Jahreszeit besonders ausgeprägten Staub- und Salzkomponenten



zu verstehen. Verschmutzungsgrad des Straße-Fahrbahnrand-Gehsteigsystems und spezielle Witterungsfolgen scheinen ebenfalls von Bedeutung zu sein. Weitere Beiträge zu Mineralaerosol stammen auch von der Verwitterung von Fassaden und von Staub aus Baustellen.

Da im Messwert für die jeweilige Rezeptormessstelle im Mittel an den Überschreitungstagen 46% an Komponenten des Hintergrundaerosols enthalten sind, ist für die Erstellung von Maßnahmen in einer Stadt der „Local Impact“ die bedeutsame Größe. Infolge der Straßennähe kann die Differenz zwischen Don Bosco und Bockberg auch als „Local Impact“ angesehen werden.

Eines der überraschenden Ergebnisse des AQUELLA-Projektes war nun die Feststellung, dass in Graz (Don Bosco) der „Local Impact“ überwiegend (zu 41%) durch die Gruppe Mineralaerosol und Auftausalz gebildet wird, in zweiter Linie durch Kfz- und Off-Road Abgas (zu 19%) und an dritter Stelle mit 12% liegt die Quellengruppe „Holzrauch und HULIS“. Die sonstigen organischen Anteile (14%) sind derzeit nicht zuordenbar, stammen aber sehr wahrscheinlich aus Verbrennungsvorgängen. Der Quellenbeitrag Kfz- und Off-Road Abgas ist etwa zu gleichen Teilen auf Off-Road, Nutzfahrzeuge und PKW aufzuteilen (Tabelle 26).

Tabelle 26: Hauptquellenanteile an der AQUELLA-Messstelle Graz Don Bosco an Überschreitungstagen (Graz, 2004). Local Impact: Durch Differenzbildung zwischen den Daten der verkehrsnahen und der Hintergrundmessstelle erhalten.

	%	%
<b>Graz</b>	Don Bosco	Local Impact
KFZ+OffRoad-Abgas	14	<b>19</b>
Holzrauch+HULIS	<b>18</b>	<b>12</b>
Sonstige org. Anteile	9	14
Anorganisch Sekundär	<b>21</b>	3
Auftausalz	5	8
Mineralstaub	<b>23</b>	<b>33</b>
<b>PM10</b>	<b>76 µg/m<sup>3</sup></b>	<b>42 µg/m<sup>3</sup></b>

Holzrauch+HULIS: Holzrauch und Sekundäranteile von Holzrauch

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

Anorganisch Sekundär: NH<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>, Feuchte / Ferntransportanteile

Mineralstaub: Karbonatischer und silikatischer Staub, überwiegend 2-10 µm, verstärkt im Feb/März

**Die Zusatzbelastung („Local Impact“) wird in Graz Don Bosco an Überschreitungstagen in erster Linie durch „Mineralaerosol und Auftausalz“ (41%) verursacht. An zweiter Stelle liegt im Local Impact an der Messstelle Graz Don Bosco Kfz- und Off-Road Abgas mit einem Quellenbeitrag von 19%, der etwa zu gleichen Teilen auf Off-Road, Nutzfahrzeuge und PKW aufzuteilen ist. „Holzrauch und HULIS“ liegen mit einem Quellenbeitrag von 12% an dritter Stelle.**

Die bedeutsamsten Anteile im „Local Impact“ stammen aus den Quellengruppen „Mineralaerosol und Auftausalz“ (Tabelle 26). 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<sub>x</sub>-Emission. Kurzfristig wäre zu erwägen, auch dem Benzin-Motor wieder Beachtung zu schenken.

### 3.14 Schlussfolgerungen aus der Quellen-Modellierung

- Die Überschreitungen im Grazer Raum finden überwiegend während des Winterhalbjahres statt. Die Untersuchung des Anstiegs von Juli auf Jänner zeigt, dass dieser zu etwa 50% im Hintergrund stattfindet und vor allem durch winterspezifische Quellen wie Holzrauch und Ammoniumnitrat verursacht wird.
- Relativ häufig ist an Überschreitungstagen der Hintergrund bereits belastet (Bockberg mit PM10-Werten über 35 µg/m<sup>3</sup>): Die Zusatzbelastung, die in Graz zur Überschreitung führt, wird meist durch Salz und Mineralstaub, durch Kfz und Off-Road-Abgasemissionen, und in dritter Linie durch Holzrauch verursacht.
- Da etwa 45% der PM10 Belastung an verkehrsnahen AQUELLA-Messstellen (Graz Don Bosco; Graz Süd) aus der Hintergrundbelastung stammen, ist die Reduktion der Hintergrundbelastung von erheblicher Bedeutung.
- Die Hintergrundbelastung wird an allen AQUELLA-Messstellen überwiegend durch anorganisches Sekundäraerosol und durch Holzrauch und verwandte Komponenten verursacht.
- Der Hintergrundwert sollte nicht höher als 25 µg/m<sup>3</sup> betragen, damit ein Inkrement von 25 µg/m<sup>3</sup> 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 verkehrsnahen Stadtmessstellen von AQUELLA („Local Impact“) wird weitgehend durch Mineralaerosol und Auftausalz dominiert (in Don Bosco ca. 40 %).
- Reduktionsmaßnahmen sollten
  - a) großräumig  
auf Reduktion von Präkursoren für Ammoniumsulfat und –nitrat und Verbesserung der Situation bei Festbrennstoffen ausgerichtet werden,
  - b) lokal  
Methoden der klassischen Staubbekämpfung für den Bereich Gehsteige – Straße – Fahrzeug (verstärkte Reinigung, Einsatz feuchter Reinigungsmethoden nicht nur im Bereich der Straßenmitte) verstärken.  
Maßnahmen zur Reduktion der Partikel-Emission bei Diesel Fahrzeugen, Aggregaten und sonstigen Maschinen („Partikel-Filter“) vorsehen (unter weitgehender Beachtung einer Emissionsneutralität von NO<sub>2</sub>).  
Bei Baustellen sollten ebenso Maßnahmen zur Staubvermeidung getroffen werden.

- Die Entwicklung von „emissionsarmen Holzöfen“ sollte gefördert werden.

## 4 PM10 und Meteorologische Einflüsse

### 4.1 Vorbetrachtungen

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, chemische Umwandlung und Abreicherung von Schadstoffen im Allgemeinen.

Neben der Emissionsstärke bestimmen die atmosphärischen Ausbreitungsbedingungen wie Temperaturschichtung und Windgeschwindigkeit die Immissionskonzentration. Jahresverläufe von PM10 zeigen ein deutliches Konzentrationsminimum in den Sommermonaten, wobei von Mai bis einschließlich September 2004 keine Überschreitungen von  $50\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Tagesmittelwert) an den AQUELLA Messstellen in Graz zu verzeichnen sind. Turbulente Vertikalbewegungen (Konvektion), hervorgerufen durch die Sonneneinstrahlung im Sommer, bewirken eine stärkere Durchmischung der bodennahen Atmosphäre und verhindern die Anreicherung primär emittierter Partikel. Da von Oktober bis März in der Grenzschicht der Atmosphäre ( $< 1\text{-}2\text{ km}$ ) oft stabile Schichtung bzw. Inversion herrscht, werden turbulente Bewegungen bzw. ein Vertikaltransport in höhere Schichten verringert. Der Abtransport von Feinstaub mit einer Strömung in höheren Schichten ist somit unterbunden. Inversion bedeutet Temperaturzunahme mit der Höhe, stabile Schichtung eine Temperaturabnahme mit der Höhe kleiner als  $1^\circ\text{C}$  pro 100 Meter. Inversionen (sehr stabile Schichtungen) treten vor allem als bodennahe Strahlungsinversionen (infolge nächtlicher Abstrahlung des Bodens) oder hohe Absinkinversionen (durch absinkende Luftmassen in Hochdruckgebieten) auf. Häufig liegt die Sperrschicht im Bereich der Obergrenze von Nebel, Wolken oder Dunst. ( $\rightarrow$  4.4. Inversionen in Graz)

Wesentlich verantwortlich für den Abtransport und die Verdünnung von primär emittiertem Aerosol ist die Windstärke, da etwa Inversionen durch auffrischenden Wind aufgelöst werden können. Je besser eine Region durchlüftet ist, desto geringer ist die Neigung zur Anreicherung von lokalen Emissionen, wobei hier Becken und Täler wesentlich benachteiligt sind. Wichtig zu beachten ist hierbei, dass bei mäßigem Wind zwar primär gebildetes Aerosol abtransportiert, jedoch Sekundär- und Primärpartikel aus anderen Regionen antransportiert werden. Um den lokalen bzw. regionalen Beitrag zur Gesamtkonzentration abschätzen zu können, werden im Folgenden Stadtmessstellen mit Hintergrundstationen unter Berücksichtigung der Bodenwindrichtung verglichen. Die Quellregionen der Vorläufersubstanzen von Sekundäraerosol werden durch Rückwärtstrajektorien gefunden und somit qualitative Aussagen über den Ferntransport getroffen ( $\rightarrow$  4.6. Analyse der Überschreitungsepisoden im Raum Graz). Bei der Abreicherung von PM10 sind Niederschlagsereignisse mit größeren Niederschlagsmengen von Relevanz (nasse Deposition).

Alle zuvor genannten meteorologischen Größen sind direkt abhängig von der vorherrschenden Wetterlage, die somit den wichtigsten Parameter zur Begründung von

erhöhten Feinstaubbelastungen darstellt. In der Auswertung des Jahres 2004 werden die Wetterlagen für Europa nach Tabelle 27 klassifiziert.

Tabelle 27: Wetterlagenklassifikation für Europa (Quelle: ZAMG Wien)

H: Hoch über West- und Mitteleuropa	h: Zwischenhoch
H <sub>z</sub> : Zonale Hochdruckbrücke	HF: Hoch mit Kern über Fennoskandien
HE: Hoch mit Kern über Osteuropa	N: Nordlage
NW: Nordwestlage	W: Westlage
SW: Südwestlage	S: Südlage
G: Gradientschwache Lage	TS: Tief südlich der Alpen
TWM: Tief über dem westlichen Mittelmeer	TSW: Tief im Südwesten Europas
TB: Tief bei den Britischen Inseln	TR: Meridionale Tiefdruckrinne
Tk: Kontinentales Tief	Vb: Tief auf der Zugstraße Adria – Polen

Die Häufigkeit winterlicher Hochdruckwetterlagen bestimmt in hohem Maß die Anzahl an PM<sub>10</sub> Grenzwertüberschreitungen. Hochdruckwetterlagen sind im Winter mit besonders ungünstigen Ausbreitungsbedingungen verbunden, da diese mit meist schwachen Winden, keinem Niederschlag und häufiger Inversionsbildung einhergehen. Dementsprechend verbleiben Emissionen tendenziell über der Quellregion - eine Anreicherung von Feinstaub ist die Folge. Zudem werden häufig Luftmassen aus Ost- bzw. Südosteuropa nach Österreich transportiert, die durch Überstreichen von Gebieten mit hohen Emissionen wesentlich zum ferntransportierten Teil an PM<sub>10</sub> beitragen. Sekundär gebildetes Aerosol wie etwa Ammoniumsulfat oder Ammoniumnitrat überwiegt (→ 4.6.). 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 Advektion Ozeanischer Luftmassen im Raum Graz geht demgegenüber mit höheren Windgeschwindigkeiten und guten Ausbreitungsbedingungen einher. Die bevorzugte Windrichtung ist bei atlantischen Luftmassen West bis Nord, bei Luft aus dem Mittelmeerraum Südwest bis Südost. Inversionen werden „ausgeräumt“ und somit die vertikale Durchmischung der Atmosphäre „angekurbelt“. Niederschläge sind keine Seltenheit und bestimmen konkret die Abreicherung von Feinstaub. Da über West- und Mitteleuropa einerseits weniger PM<sub>10</sub> Vorläufersubstanzen (insbesondere SO<sub>2</sub>) aufgenommen werden, bzw. vorhandene Vorläufersubstanzen über „rain-out“ und „wash-out“ Prozesse entfernt werden können, tragen die Luftmassen, die aus diesen Regionen kommen, deutlich weniger zum Ferntransport bei als andere. Repräsentativ für Vorläufersubstanzen aus Biomasse-Verbrennung steht dafür etwa die Häufigkeit von Bränden in Europa in Abbildung 83.

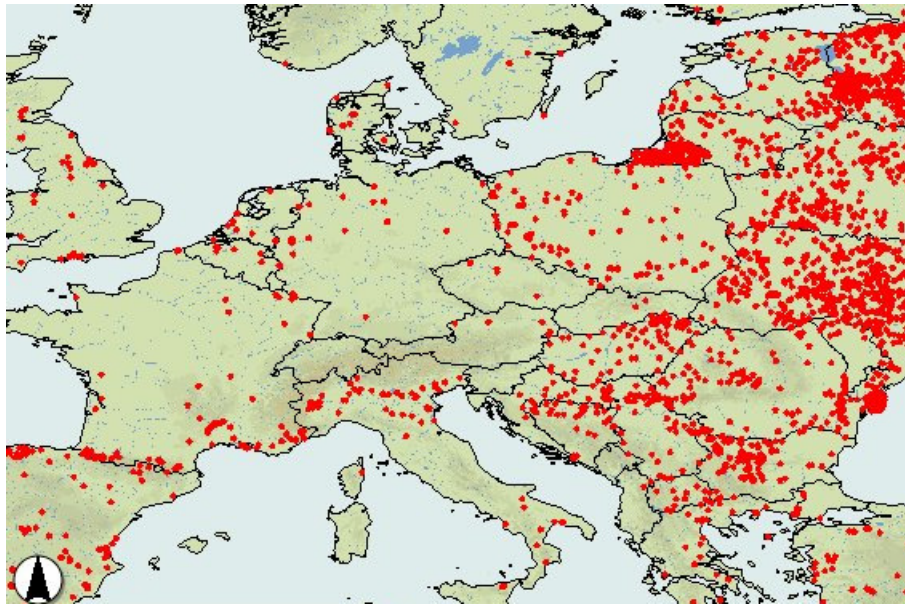


Abbildung 83: Zeitraum 1.1-30.4.2004: Häufigkeit von Bränden in Europa.

Quelle: Web Fire Mapper, <http://maps.geog.umd.edu/default.asp>

MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) Rapid Response System detektiert Brände, wenn diese nicht durch Wolken verdeckt sind. MODIS ist an Bord eines NASA Aqua und Terra Satelliten. Ein roter Punkt repräsentiert den Mittelpunkt eines 1km Pixels, welches mindestens ein Feuersignal enthält. Die Wahrscheinlichkeit ein Feuer mit 100m<sup>2</sup> zu detektieren liegt typischerweise bei etwa 50%; unter idealen Bedingungen sogar Feuer mit 50m<sup>2</sup> und 100% Wahrscheinlichkeit.

#### 4.2 Die Witterung in Österreich im Jahr 2004

Die Niederschlagsmengen des Jahres 2004 bewegen sich zwischen 70 und 130% der Klimaperiode 1961–1990 (Abbildung 84), also ungefähr am Durchschnitt, wobei auch der Raum Graz am Klimamittelwert liegt. Anfang und Ende Jänner 2004 bringen gradientschwache Lagen teilweise sonniges Wetter mit vorwiegend Wind aus südlichen Richtungen, auch Hochnebel und leichter Schneefall sind keine Seltenheit. Zu Monatsmitte hingegen bewirkt atlantische Luft mit Regenfällen, Nordwinden und milderem Temperaturen gute Ausbreitungsbedingungen im Raum Graz.

Von 20. Jänner bis 19. Februar 2004 herrschen meist Nordwest bzw. Südwestlagen, die sich mit Hochdrucklagen abwechseln. Entsprechend sonnig mit Tagesmitteltemperaturen über dem Gefrierpunkt startet der Februar, zu Monatsende kommen jedoch durch Tiefdruckeinfluss ergiebige Schneefälle zustande. Hochdruckgebiete und gradientschwache Lagen bewirken im März 2004 oft sehr ähnliche Witterungsverhältnisse wie Anfang Februar. Ein Tiefdrucksystem auf dem Weg von der Adria nach Polen äußert sich nicht nur mit Regenfällen zwischen 21. und 24.3.2004, sondern auch mit dementsprechend geringen Feinstaubkonzentrationen in Graz. Auch im April liegt Österreich häufig im Einfluss von Tiefdruckgebieten. Von Mai bis einschließlich September werden an den AQUELLA

Messstellen in Graz wegen günstiger Ausbreitungsbedingungen durch die hohe Sonneneinstrahlung keine Grenzwertüberschreitungen verzeichnet.

Beinahe ausschließlich Südwest- bis Nordwest und Tiefdrucklagen bescheren dem Oktober 2004 sehr milde Temperaturen und zudem häufige, teilweise ergiebige Regenfälle in Graz – ähnlich auch die erste Novemberhälfte. Von Mitte November bis etwa 25. Dezember können sich schließlich Hochdrucklagen mit zuerst sehr sonnigem Wetter durchsetzen, wobei besonders Mitte Dezember Hochnebel und Tagesmitteltemperaturen deutlich unter dem Gefrierpunkt sehr häufig sind.

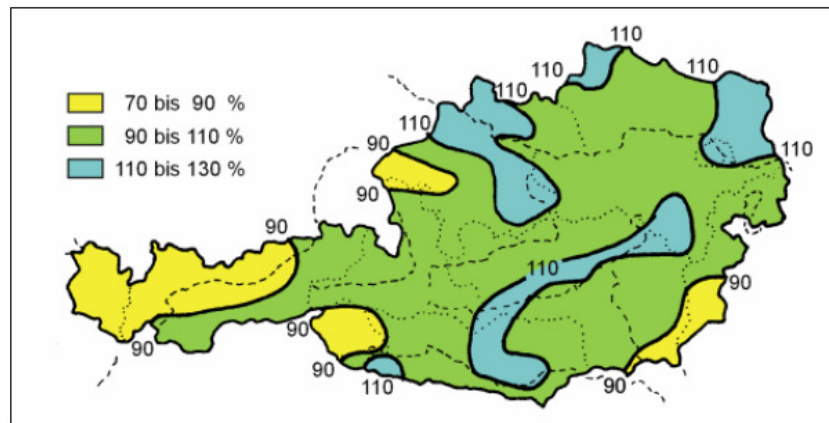


Abbildung 84: Niederschlagsmengen 2004 in Prozent des Mittelwerts der Klimaperiode (1961 – 1990), Quelle: Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik

Die Witterungsverhältnisse während Überschreitungsepisoden beschreibt Punkt 4.6.

### 4.3 Topographische Einflüsse

In Bezug auf die zuvor genannten meteorologischen Parameter, wie Windgeschwindigkeit und vertikale Durchmischung sind alpine Becken und Täler deutlich benachteiligt gegenüber den gut durchlüfteten Regionen wie etwa das Österreichische Alpenvorland. Eine rasche Anreicherung von primär emittierten Feinstaubpartikeln tritt dort bevorzugt ein. In tieferen Lagen sammelt sich kältere Luft (Inversion), wodurch ein vertikaler Luftmassenaustausch inhibiert und somit das belastete Luftvolumen durch die umgebenden Erhöhungen gefangen ist. Für den außeralpinen Raum ist allerdings eher der Ferntransport von Sekundäraerosol relevant. Stau von Luftmassen an den Alpen bewirkt in Verbindung mit Stauniederschlägen eine PM10 Anreicherung, bei stabiler Schichtung und schwachen Winden besteht hingegen die Möglichkeit der Anreicherung. Luv- und Leeeffekte sind für die betreffende Region maßgebend.

Für Graz spielt der topographische Einfluss eine tragende Rolle. Am bedeutendsten hierbei ist die Tatsache, dass das Grazer Becken bei Nordwest- bzw. Westwinden in Lee der Alpen liegt. Ozeanische Luftmassen vom Atlantik werden abgeblockt und die Durchlüftung mit wenig belasteter Luft damit erschwert. Durch den Leeeffekt der Alpen einerseits und die extreme Beckenlage andererseits, stellen sich im Raum Graz oft äußerst ungünstige

Ausbreitungsbedingungen generell für Schadstoffe ein. Beginnend im Norden mit dem Schöckl (1445 m) liegt Graz mit einer Seehöhe von etwa 363 Metern sehr abgesenkt gegenüber dem Umland. Stetig abfallend Richtung Süden grenzt das Hügelland im Westen mit Erhöhungen wie etwa dem Gaisberg (636 m) bzw. dem Buchkogel (656m) und im Osten mit Seehöhen bis knapp 600 Meter an die Stadt. Außer im eher schmalen Murtal im Süden des Grazer Beckens (ca. 300 m) betragen die Seehöhen in dieser Umgebung gut 400 bis hin zu 550 Meter am Buchkogel.

Staueffekte von Luftmassen bei schwachen Südströmungen an den Hängen im Norden des Grazer Beckens wirken sich eher negativ auf den Abtransport von Feinstaub aus. Zudem ist durch die Beckenlage der Stadt die Voraussetzung für beständige Inversionen gegeben.

#### 4.4 Inversionen in Graz

Um Inversionen einschätzen zu können, werden Radiosondenaufstiege von Graz Thalerhof um 03:00 UTC untersucht. Dabei liegt das Augenmerk auf Inversionen im Höhenbereich der Hügellandschaft rund um das Grazer Becken, also Inversionen mit Untergrenzen unterhalb von etwa 900hPa und einem Temperaturanstieg zwischen zwei Messpunkten von mehr als 1 °C. Bei einer derartigen Schichtung der bodennahen Atmosphäre und generell schwachem Wind wird der Abtransport der Stadtluft behindert, was zu erhöhten Immissionskonzentrationen führen kann. Höhere Inversionen (über 900 hPa) sind für die Feinstaubbelastung im Raum Graz von eher untergeordneter Rolle.

Geringe Bewölkung, die starke Ausstrahlung der Erdoberfläche und schwacher Wind während der Nacht bewirken die Ausbildung von Bodeninversionen. Im Gegensatz zu abgehobenen Inversionen würde Bewölkung (z.B. Hochnebel) Bodeninversionen durch atmosphärische Gegenstrahlung zerstören. Bei zu starkem Wind wird die bodennah gebildete Kaltluft turbulent durchmischt und abtransportiert. Der Einfluss der Windrichtung auf die vertikale und horizontale Temperaturverteilung äußert sich möglicherweise durch Stau der gebildeten Kaltluft an den Ausläufern der Alpen im Norden bei z.B. leichtem Südwind (inversionsfördernd). Zu beachten ist jedoch, dass die maximalen Emissionen von PM10 tendenziell tagsüber stattfinden und somit die Gefahr der nächtlichen Anreicherung von Feinstaub in bodennahen Schichten geringer ist.

Die Radiosondendaten wurden für das gesamte Jahr 2004 untersucht und in Punkt 4.6. zur Analyse der Überschreitungsepisoden bei Relevanz diskutiert. Weitaus dominierend sind mächtige Bodeninversionen mit Obergrenzen unter 900hPa, abgehobene Inversionen tauchen dabei selten auf. An 262 Tagen (72%) des Jahres 2004 werden von der Radiosonde Inversionen tiefer als 850 hPa mit einem Temperaturanstieg zwischen zwei Messpunkten über 1 °C gemessen. Für die Wintermonate (Jan.04 bis Mitte April.04 und Okt.04 bis Dez.04) ergibt sich eine relative Häufigkeit von 70% an Tagen mit Inversion.

Inversionswetterlagen sind häufig mit beständigen Hochnebeldecken verbunden, wobei sich in bzw. oberhalb der Wolkenschicht ein starker Temperaturanstieg mit der Höhe ergibt. Oft liegt damit die Inversionsuntergrenze im Bereich der Erhöhungen, die die Stadt umgeben. Herrscht nun auch unter der Hochnebeldecke Inversion, sinken zusätzlich Schadstoffe von hohen Schornsteinen zu Boden. Die Erfassung dieser teils nur in der Nacht gebildeten



Inversionen (3 UTC) ist noch unzureichend um Aussagen über die Ausbreitungsbedingungen unter Tags treffen zu können.

Gerade die untersten hundert Meter über Bodenniveau werden von der Radiosonde nur unzureichend erfasst, da diese erst ab etwa 100 Meter über Grund Messwerte liefert. Um die thermische Schichtung der untersten Atmosphäre besonders auch tagsüber abzuschätzen, werden im Punkt 4.6. Zeitreihen von Temperaturdifferenzen (Halbstundenmittel) zwischen den Stationen Graz-Mitte mit jeweils höher gelegenen Stationen wie etwa Schlossberg oder Graz-Platte dargestellt. Zusätzlich werden Vertikalprofile der Temperatur anhand von ausgewählten Stationen in verschiedener Höhe betrachtet.

#### **4.5 PM10 – Windrosen**

Die Auswertung der Windrosen beschränkt sich auf die Monate des Winterhalbjahres 2004, also Jänner bis Mitte April und Oktober bis Dezember, da hohe PM10 Konzentrationen auf eben diese Monate beschränkt sind. Zeiträume mit fehlenden PM10 Daten konnten nicht berücksichtigt werden.

In den Windrichtungssektoren sind die mittleren PM10 Konzentrationen an den AQUELLA-Messstellen und die relative Häufigkeit der Windrichtung dargestellt. Die Auflösung der Sektoren liegt bei 45° Intervallen entsprechend den Hauptwindrichtungen. Die Winddaten wurden von der ZAMG Wien zur Verfügung gestellt. Die Windrichtung stammt von drei Tageszeiten: 7, 14 und 19 Uhr MOZ, denen jeweils ein PM10 Tagesmittelwert zugewiesen wurde. Nach Mittelung über den betrachteten Zeitraum wurden die PM10 Konzentrationen den Windrichtungssektoren zugeordnet.

Die Häufigkeit der Windrichtung an der Messstelle Graz-Universität in Abbildung 85 weist ein deutliches Minimum im West- bzw. Südwestsektor auf. Bevorzugte Windrichtungen waren in den Wintermonaten 2004 eher Südost (17%), besonders aber Nordost (21%) und Nordwest. Die Darstellung ermöglicht einen direkten Vergleich der AQUELLA Messstellen für die verschiedenen Windrichtungen. Tendenziell ergeben sich für beide Stadtmessstellen, Don Bosco und Graz Süd, in allen Windrichtungen bereits im Halbjahresmittel Konzentrationen über bzw. knapp unter 50 µg/m<sup>3</sup>, mit Augenmerk auf den Nordostsektor mit bis zu 65 µg/m<sup>3</sup>. Generell sind westliche Sektoren aller AQUELLA Stationen etwas geringer belastet als östliche Sektoren, was auf die in Graz eher seltene Advektion atlantischer Luftmassen zurückzuführen ist. Die Messstelle Don Bosco hebt sich allseits um 5 bis 9 µg/m<sup>3</sup> von Graz-Süd ab und zeigt oft über das Doppelte der Werte am Bockberg. Berücksichtigt man nun den EU-Grenzwert von 50 µg/m<sup>3</sup>, dann liegen die Stadtmessstellen im Winterdurchschnitt bereits teilweise darüber. Bei Hintergrundwerten von durchschnittlich 25 µg/m<sup>3</sup> darf nun die Stadt Graz maximal den gleichen Wert – also nur einen geringen „urban impact“ - zur Gesamtbelastung beitragen, um unter 50 µg/m<sup>3</sup> zu bleiben.

**Graz - Winter 2004**  
**Relative Häufigkeit der Windrichtung**  
**Mittlere PM10 Konzentration**

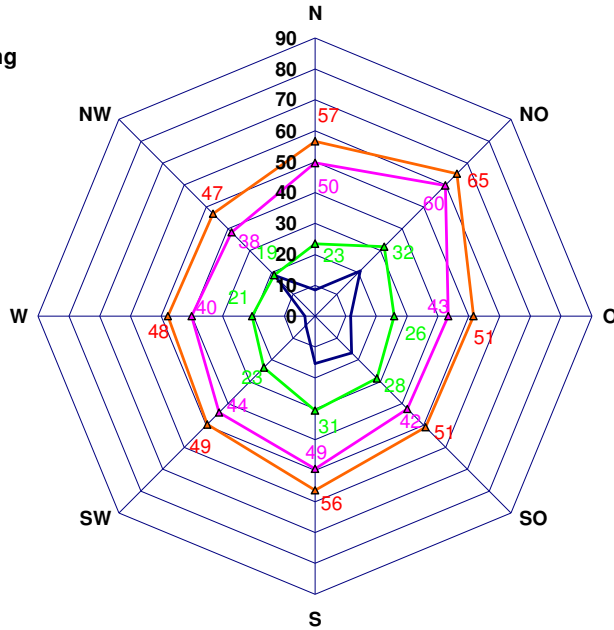
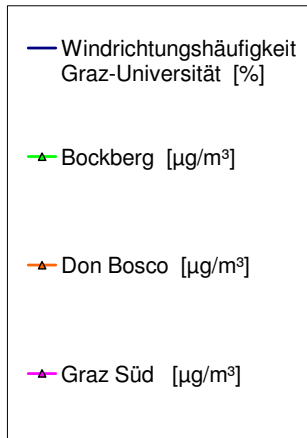
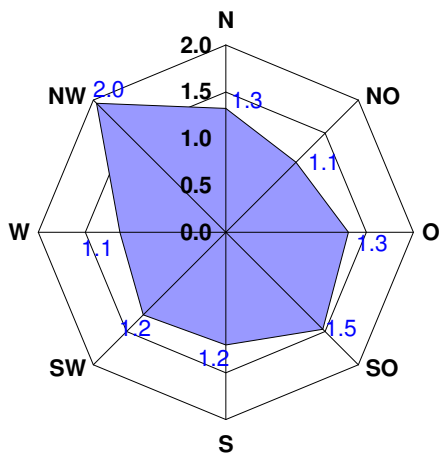


Abbildung 85: PM10 Windrose mit relativer Häufigkeit der Windrichtung (Graz Universität) für die Wintermonate 2004 (Jan.-Apr. und Okt.-Dez.). Seehöhe der Station: 366m; Anemometerhöhe: 34m.



Windstärke in Beaufort	m/s
0	0,0 - <0,5
1	0,5 - <2,1
2	2,1 - <3,6
3	3,6 - <5,7
4	5,7 - <8,2
5	8,2 - <11,3
6	11,3 - <14,4
7	14,4 - <17,5
8	17,5 - <21,1
9	21,1 - <24,7
10	24,7 - <28,8
11	28,8 - <32,9
12	>32,9

■ Mittlere Windstärke [Beaufort]

Abbildung 86: Mittlere Windstärke der Wintermonate 2004 als Funktion der Windrichtung für Graz Universität aus den 7, 14 und 19 MOZ Beobachtungen.

Das Maximum der Windstärke liegt eindeutig bei Nordwestwind, was auf die hohen Windgeschwindigkeiten bei Westwetterlage deutet. Mit knapp über einem Beaufort in anderen Sektoren wird die generell windschwache Lage von Graz bestätigt.

In Abbildung 87 werden nur Tage betrachtet, an denen mindestens eine AQUELLA Station mit Tagesmittelwert über 50 µg/m³ liegt; das heißt sobald der Grenzwert an einer der drei Stationen überschritten ist, werden die PM10 Konzentrationen einem Windsektor zugeordnet. Es ergibt sich an den beiden Stadtmessstellen eine in allen Windrichtungssektoren sehr ähnliche PM10 Konzentration, leicht gedämpft im Südostsektor. Am Bockberg treten die höchsten Konzentrationen an Überschreitungstagen bei Südwind (Graz Universität) auf. Die bei allen Windrichtungen derart gleichartigen PM10 Mittelwerte, unterstreichen die Unabhängigkeit der Belastungsstärke von der Windrichtung an Überschreitungstagen für die Stadt Graz.

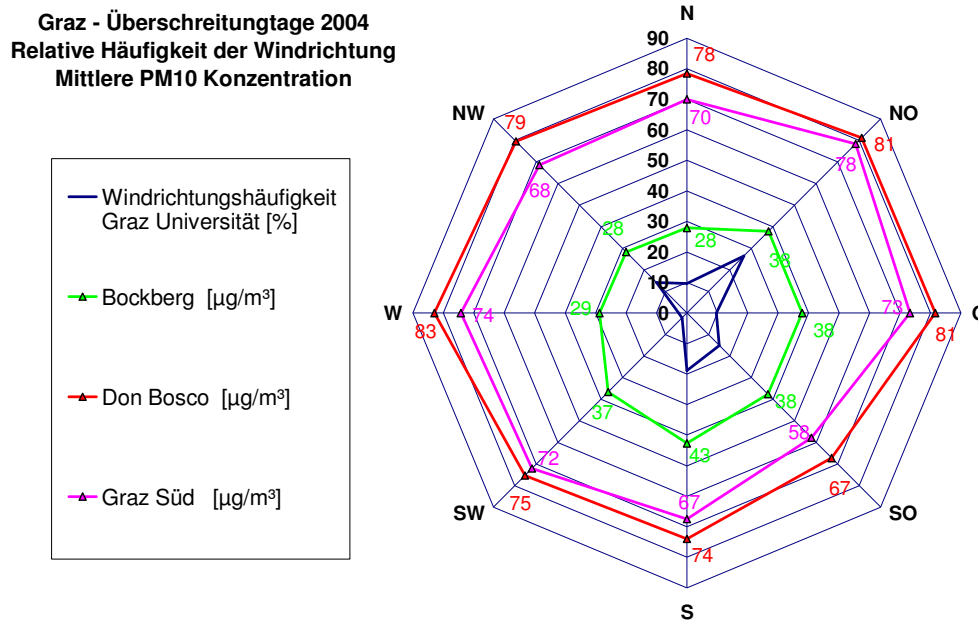


Abbildung 87: PM10 Windrose mit relativer Häufigkeit der Windrichtung (Graz Universität) für Tage mit PM10 Konzentrationen größer als 50 µg/m³ an einer der drei AQUELLA Messstellen.

Im Vergleich zu Abbildung 85 zeigt sich eine Abnahme der Häufigkeit der Windrichtung im Nordwestsektor, jedoch eine Zunahme der Nordost- und Südwinde, die bevorzugte Windrichtungen an Überschreitungstagen darstellen.

Tabelle 28: Darstellung der Mittleren PM10 Konzentrationen der Wintermonate 2004 als Referenz zu Abbildung 85 und Abbildung 87. Sehr hoch liegt die Anzahl der Tagesmittelwerte über dem EU-Grenzwert an der Messstelle Don Bosco.

	Wintermittel [µg/m³]	Tage über 50µg/m³
Bockberg	26	16
Don Bosco	55	87
Graz Süd	48	72

## **Analyse ausgewählter Überschreitungsepisoden im Raum Graz**

Die Überschreitungstage liegen in der Regel eingebettet in so genannten „Episoden“, in denen ungünstige meteorologische Bedingungen für eine PM<sub>10</sub> Anreicherung sorgen. Oft herrscht winterliches Hochdruckwetter mit entweder generell sehr wenig Wind aus verschiedenen Richtungen oder mit Wind aus eher südlichen Richtungen im Grazer Raum.

Die Gründe für eine PM<sub>10</sub> Überschreitungsepisode sollen aus den Witterungsbedingungen bzw. aus den meteorologischen Größen erkannt werden. Mögliche PM<sub>10</sub> 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 PM<sub>10</sub> Konzentrationen**
- **Mischformen**

4 typische Überschreitungsepisoden wurden untersucht:

- **Episode 1: 6. - 14.1.2004**
- **Episode 2: 1. - 7.2.2004**
- **Episode 3: 10. - 11.4.2004**
- **Episode 4: 16. - 19.11.2004 und 22. - 23.11.2004 und 25. - 30.11.2004**

### 4.5.1 Analyse der Episode 1 (6.-14.01.2004)

Von der Universität Köln sind im Rahmen des EURAD – Projektes („Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell) modellierte PM<sub>10</sub> Verteilungen für Europa täglich abrufbar (<http://www.eurad.uni-koeln.de/>). In den folgenden Abbildungen sind die prognostizierten PM<sub>10</sub> Belastungen als maximale Tagesmittelwerte in Europa dargestellt.

In der modellierten Verteilung wird das Maximum der Belastung im Raum Graz zwischen 35 und 50 µg/m<sup>3</sup> für den 9.1.2004 vorhergesagt, was schlussendlich auch eintrifft – jedoch mit deutlich höheren Werten in Graz. Österreich ist im Modell zu diesem Zeitpunkt von einer Zone hoher PM<sub>10</sub> Werte von Westen, Norden und Osten umgeben. Wetterbedingt zieht die hohe Belastung am 12.1.2004 in Richtung Osten ab. Hier lässt das EURAD-Modell qualitativ gute Aussagen über bevorstehende PM<sub>10</sub> Episoden zu.

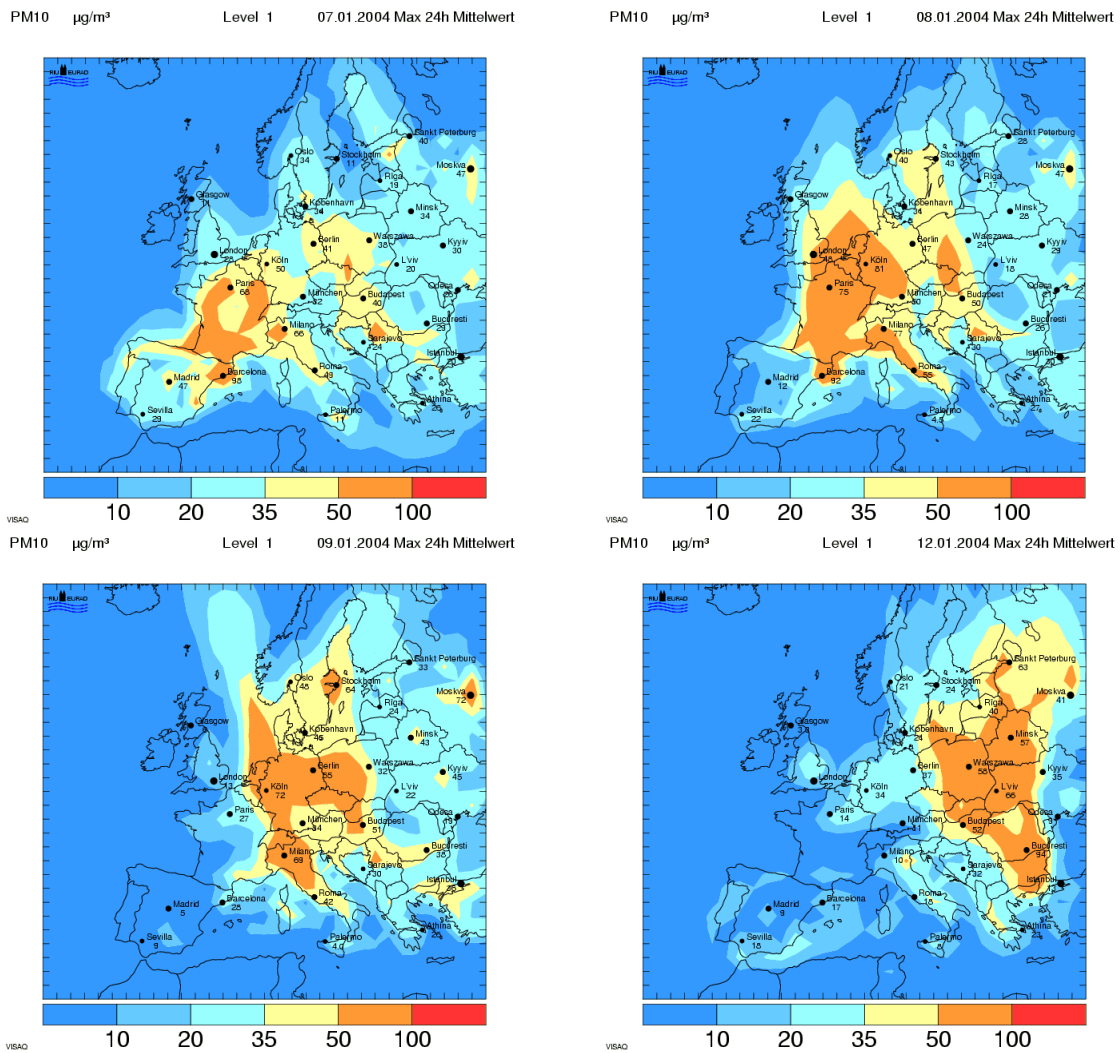


Abbildung 88 a-d: Modellierte PM10 Belastung in Europa während der Episode 6.-14.1.2004.

Zum Vergleich der Zeitreihen von PM10 und meteorologischen Parametern wird in Abbildung 89 die gesamte relevante meteorologische Information gemeinsam mit PM10 Daten dargestellt. Relevante Größen wie Windgeschwindigkeit, Niederschlagssumme, Niederschlagsart, Mitteltemperatur, Minimumtemperatur, Maximumtemperatur, Sonnenscheindauer, relative Feuchte und atmosphärischer Druck werden verwendet (Daten: ZAMG Wien; Tagesmittelwerte). Hinzu kommen noch die PM10 Tagesmittelwerte der AQUELLA Messstationen und der PM10 Messstelle Graz Platte (661 m Seehöhe) als zweite Hintergrundstation. Vorsicht ist beim Ablesen der Werte geboten, da sich die Reihen einmal auf die linke, einmal auf die rechte Ordinate beziehen. An der unteren Abszisse sind das Datum und die am Beobachtungstag herrschende Wetterlage zu sehen. Die Wetterlagenklassifikation für Österreich bzw. für Europa (Tabelle 27) wurde von der Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik Wien erstellt. Die Bodenwindrichtung der Station Graz Oeverseepark als Tagesmittelwert (Seehöhe: 348 m; Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at), Halbstundenmittel) ist auf der zweiten Abszisse aufgetragen. Da die Windgeschwindigkeit der Station Graz Universität von Beaufort hier in km/h ungerechnet ist, kommen teilweise „konstante“ Werte zustande. Bodeninversionen werden durch die in Abbildung 95 dargestellten Temperaturdifferenzen erfasst. Um den Bodendruck in Abbildung

89 an die Skalierung der linken Ordinate anzupassen, werden die Tagesmittelwerte des Drucks minus 900 hPa gerechnet.

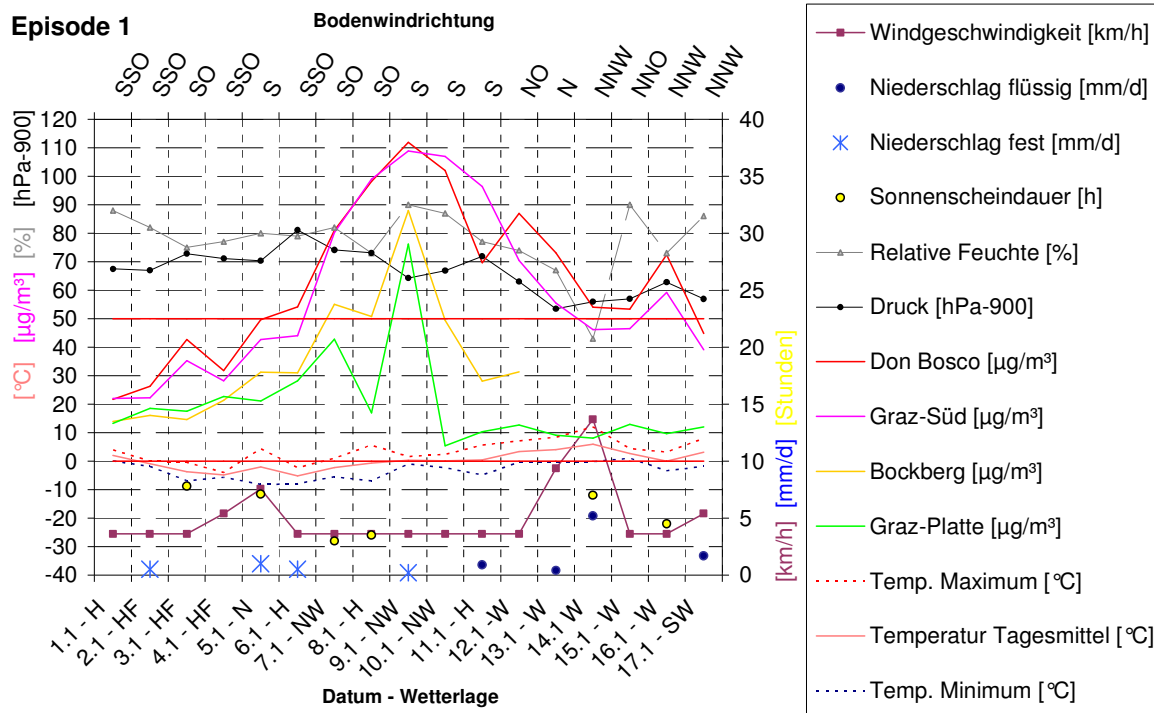


Abbildung 89: Episode 1 (6.-12.1.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz-Universität.

Am 6., 8. und 11.1.2004 wird an der Abszisse Hochdrucklage angezeigt, was bei schwachem Druckgradient über Österreich grundsätzlich die Möglichkeit zur Anreicherung von primären Partikeln darstellt (→Wetterlage). Um die unterschiedliche räumliche Verteilung von Feinstaub in Abbildung 89 mit entweder hohen oder niedrigen Werten im Hintergrund verstehen zu können, müssen die Bodenwindverhältnisse, der großräumige Luftmassentransport und besonders auch die thermische Schichtung berücksichtigt werden. Nun scheint auf den ersten Blick durch hohe Werte im Hintergrund und Süd- bis Südostwind von 7.1.2004 bis 9.1.2004 ein großräumiger Aerosoltransport aus südlicher Richtung vorzuliegen. In den Tagen danach liegen trotz teilweise Niederschlägen und höherer Windgeschwindigkeit (13.-14.1.2004) nur noch die AQUELLA-Stadtmessstellen auf hohem Niveau, was eine Entkoppelung der Stadtluft von einer gering belasteten Hintergrundluft durch Inversion bedeutet. Diese Vermutungen werden durch die weiteren Analysen bestätigt.

Besonders in Abbildung 90b überwiegt der sekundär gebildete Anteil an PM10 (HULIS; SO<sub>4</sub> und NO<sub>3</sub> jeweils mit NH<sub>4</sub>-Anteilen) an allen drei AQUELLA Messstellen und schwappt so zu sagen über Graz hinweg. Holzrauch ist auch an der Hintergrundmessstelle in erhöhter Konzentration zu erkennen. Die bereits sehr hohe Belastung am Bockberg bei Südwind besonders am 9.1.2004 ist ein Hinweis für überwiegend Advektion von Feinstaub aus anderen Regionen (→ Trajektorien). Ein „urban impact“ ist in den Abbildung 90a-c vor allem am Kfz/Offroad-Anteil und an Substanzen wie Karbonaten, Silikaten und NaCl zu erkennen, die vermutlich von Streumaterialien aus dem Winterdienst stammen. Die Beiträge der Stadt liegen bei 21% etwa am 9.1.2004 und 45% in der gesamten Episode 1.

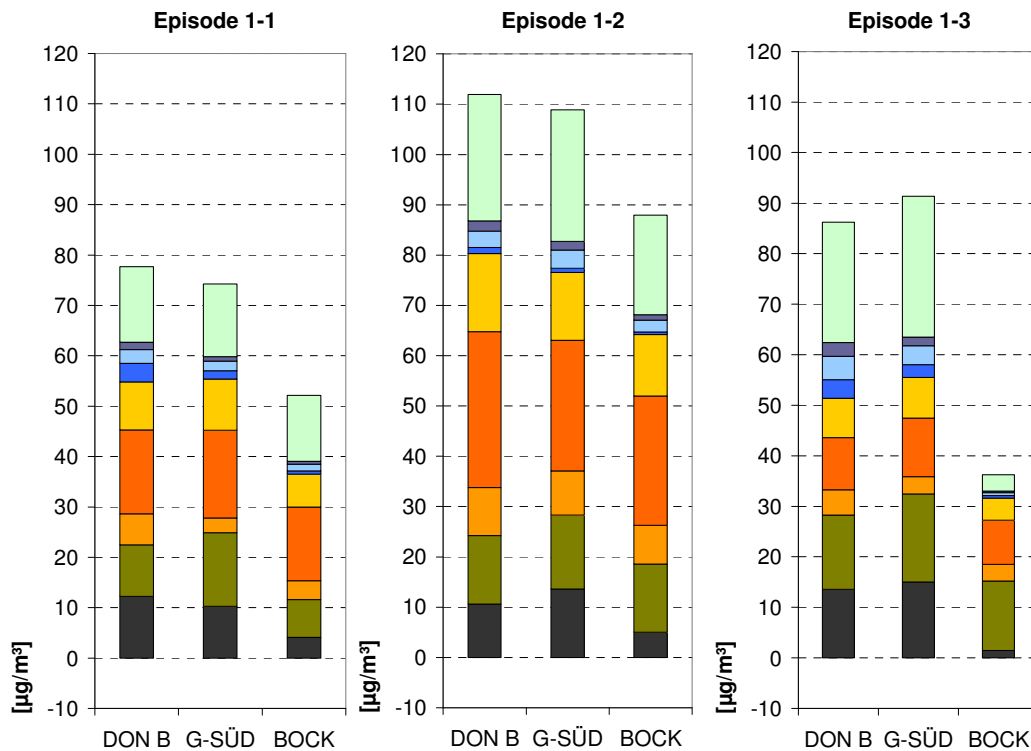


Abbildung 90 a-c: Chemische Analyse der Episode 1:

- Episode 1-1: 6.-8.1.2004 (a)
- Episode 1-2: 9.1.2004 (b)
- Episode 1-3: 10.-12.1.2004 (c)

Eine genaue Analyse der Windverhältnisse am Bockberg und in der Stadt Graz in den Abbildung 91a/b zeigt, dass die AQUELLA-Messstelle am Bockberg in der Überschreitungsepisode 1 wenig von der Belastung in der Stadt beeinflusst wird. Die Feinstaubbelastung am Bockberg ist hauptsächlich von der Strömungsrichtung abhängig, die in den Abbildung 91a/b mit grünen Strichen gekennzeichnet ist. Wegen fehlender PM10 Halbstundenmittel am Bockberg wurde die Schwebstaubkonzentration in den Abbildung 91 geplottet. Am 7.1.2004 weht der Wind an beiden Messstellen aus südlichen Richtungen und flaut besonders bei Graz-Süd in der zweiten Tageshälfte auf unter 0,5 m/s ab, was ein rasantes Ansteigen der Stadtbelastung zur Folge hat. Zuvor jedoch besteht bei Südwind und sehr ähnlichen Belastungen an beiden Messstellen die Sicherheit, dass hier nur geringfügig die Stadt zum „urban impact“ beiträgt. Am 8.1.2004 in den Vormittagsstunden zeigt sich jedoch kurzzeitig genau das Gegenteil, denn hier scheint der Bockberg bei Nordwind mit entsprechend geringen Schwebstaubkonzentrationen von der Messstelle Graz-Süd mit einer Maximalbelastung von über 180  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (PM10) entkoppelt zu sein. Ein Blick auf die thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre in Abbildung 96 bestätigt, denn das Bestehen einer starken Inversion zwischen 7. und 8.1.2004 ist deckungsgleich mit den höchsten Belastungen in der Stadt. Bei derartiger Inversionslage ist ein Abtransport von Luftmassen aus dem Grazer Becken völlig unterbunden und zusätzlich sinken Schadstoffe auch von hohen Schornsteinen zu Boden, was hier nur kurzzeitig der Fall war.

Besonders am 9.1.2004 fällt ein Maximum der Schwebstaubkonzentration am Bockberg auf. Dies deutet auf den Ferntransport von Feinstaub aus südlichen Regionen. Danach stellen

sich ab 10.1.2004 sehr schlechte Ausbreitungsverhältnisse im Grazer Becken ein. In dieser Zeit ist die Windgeschwindigkeit von Graz Süd im Vergleich zum Bockberg durch die auftretenden Inversionen sehr gering.

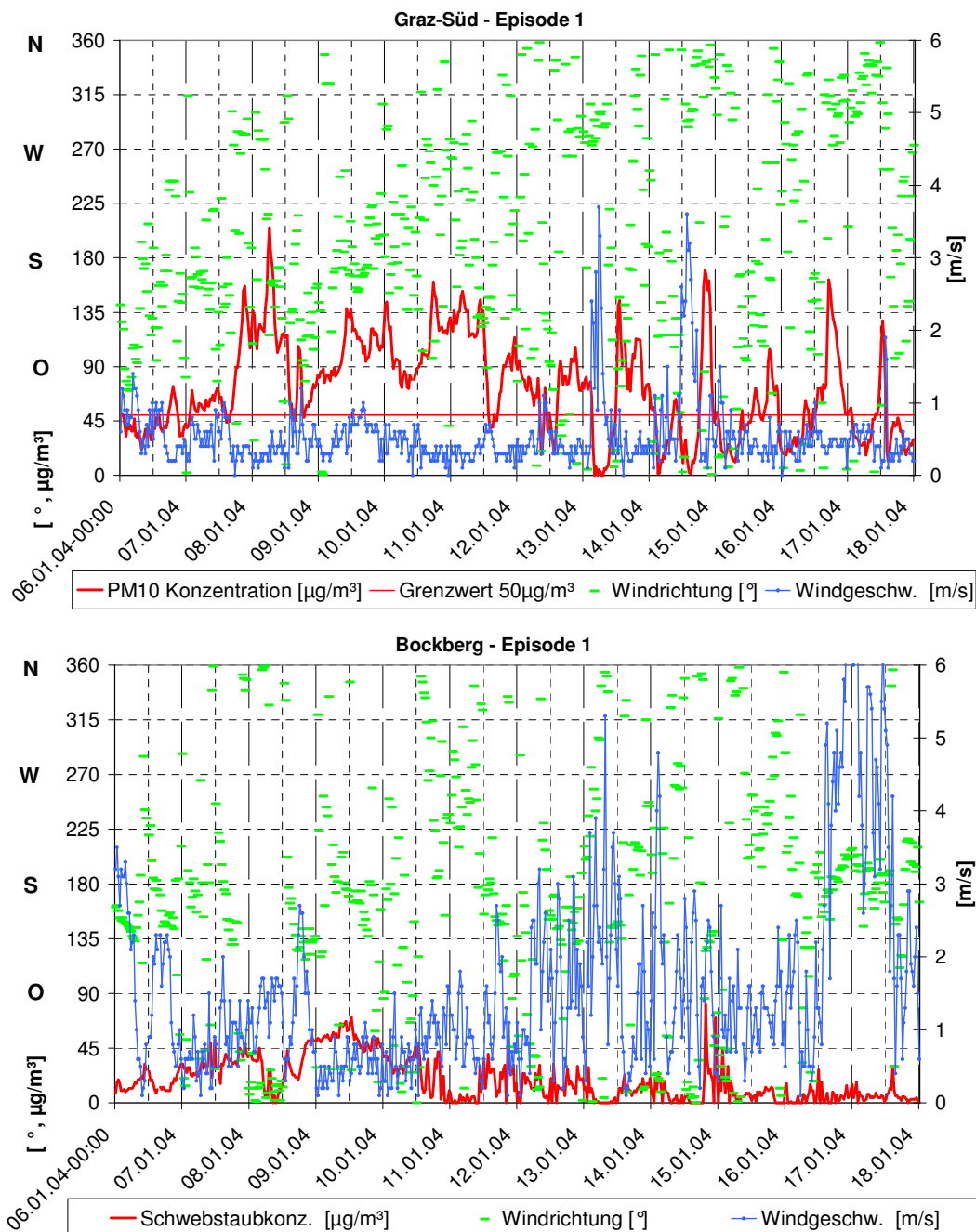


Abbildung 91: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit der Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 1.

Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

Nun führten in der Episode 1 teilweise die sehr schlechten Ausbreitungsbedingungen und teilweise die Advektion von überwiegend Sekundäraerosol und Holzrauch vor allem aus südlichen Regionen zur PM10 Überschreitung (→Rückwärtstrajektorien).



In Abbildung 91a wird deutlich, dass auch nach 11.1.2004 besonders Überschreitungen durch städtisches Aerosol gegeben sind, denn die häufigen Inversionen (Abbildung 95) führen zur Entkoppelung der Luft im Grazer Becken zu den Luftmassen darüber. Erkennbar ist dies z.B. an lebhaften Winden am Bockberg entgegen den beinahe stehenden Luftmassen im Stadtgebiet beim Vergleich der Abbildung 91a mit der Abbildung 91b. Auffällig ist hier das abrupte PM<sub>10</sub> Minimum am 13.1.2004 ca. um 6 Uhr (Graz-Süd), wo kurzzeitig frischer Westwind auch die primär emittierten Partikel der Stadt abtransportiert. Anders als bei Tagesmittelwerten ist klar ersichtlich, dass besonders bei Primäraerosol die bodennahen Strömungsverhältnisse eine Abreicherung konkret bestimmen und zwar gilt ein reziproker Zusammenhang: Starker Wind bewirkt schnelle Verdünnung und Abtransport der Emissionen (Abbildung 92), bedeutet aber keinesfalls zwingend eine geringe Feinstaubkonzentration, da auf diese Weise sekundär gebildetes Aerosol aus entfernten Gebieten antransportiert werden kann.

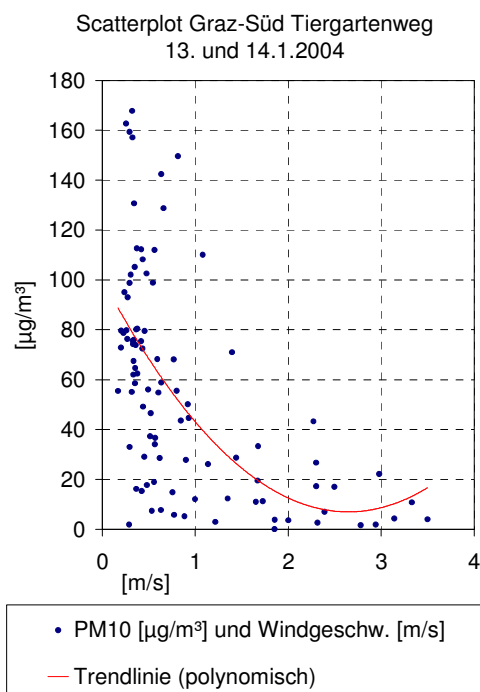


Abbildung 92: Streudiagramm: PM<sub>10</sub> Konzentration als Funktion der Windgeschwindigkeit.

Um bevorzugte Windrichtungen und Windgeschwindigkeiten in ausgewählten Episoden herauszufinden und entsprechende Rückschlüsse auf die PM<sub>10</sub>-Konzentration zu ziehen, werden Feinstaub-Windrosen in Abbildung 93 verwendet. Die Stationshöhen von Graz Süd und Bockberg betragen 340 und 449 Meter, dementsprechend gestaltet sich die Windgeschwindigkeit am Bockberg in den Abbildung 93b und d höher. Die etwas ungewöhnlichen Einheiten der Windgeschwindigkeit (1/10 km/h) und der relativen Häufigkeit der Windrichtung (%) sind nötig, um PM<sub>10</sub> Daten mit

der Windinformation in einer Windrose anschaulich darstellen zu können. Für die Bockberg Windrosen wurden wieder Schwebstaubkonzentrationen verwendet (Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at)).

Da von 6.-9.1.2004 die Überschreitungsart eher mit Sekundäraerosol besteht, werden in den Abbildung 93 a/b die Episoden 1-1 und 1-2 zusammengelegt. Hier zeigen sich die Schwebstaubwerte am Bockberg bereits auf hohem Niveau – teilweise über  $50\mu\text{g}/\text{m}^3$  (b). NNO als zweite bevorzugte Windrichtung am Bockberg ist, wie auch hier ersichtlich, mit Advektion gering belasteter Luft verbunden, was an der Messstelle Graz Süd durch die Entkopplung der Stadtluft bei Inversion nicht zu erkennen ist (a/b).

Sehr geringe Konzentrationen am Bockberg zeigen sich nach 10.1.2004, da hier der Bockberg meist über der Inversion des Grazer Beckens liegt und nur gering belastete

Luftmassen nach Österreich transportiert werden (Abbildung 94d). Dementsprechend auch die mittleren PM10- bzw. Schwebstaubbelastungen in den einzelnen Sektoren.

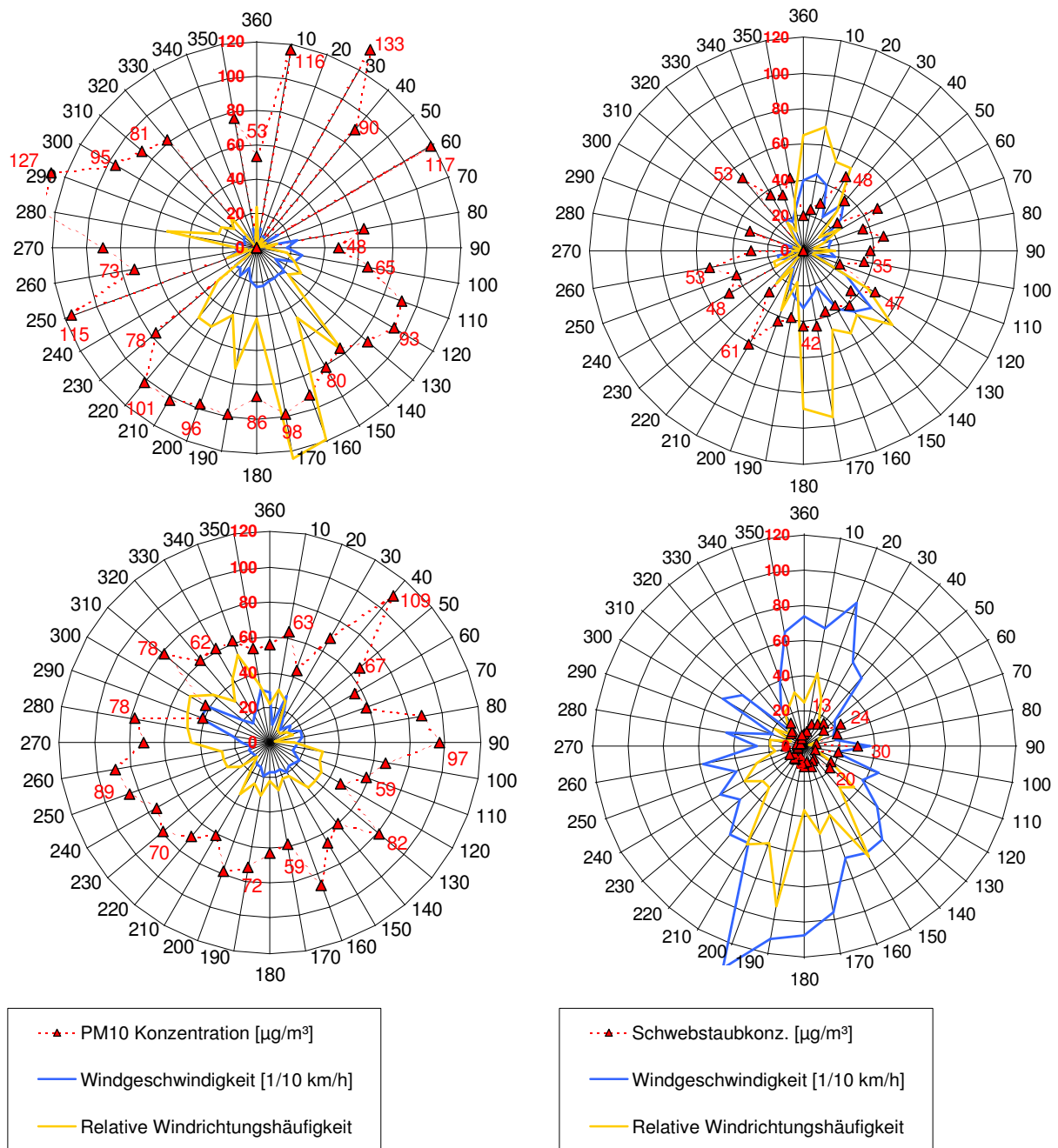


Abbildung 93 a/b/c/d:

Links (a),(c): PM10-Windrosen für Graz-Süd      Rechts (b),(d): Schwebstaub-Windrosen für Bockberg

a / b: 6.1.2004 (0 Uhr) – 10.1.2004 (12 Uhr)      c / d: 10.1.2004 (12 Uhr) – 18.1.2004 (0 Uhr)

Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

Rückwärtstrajektorien:

Am Webserver des National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) Air Resources Laboratory (ARL) können mit dem HYSPLIT-Modell (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) sowohl Vorwärts- als auch Rückwärtstrajektorien gerechnet werden. Die Berechnungen beruhen auf meteorologischen Reanalysedaten (www.arl.noaa.gov/ready.html) <sup>xliv xlv</sup>

Abbildung 94 a/b zeigt drei Rückwärtstrajektorien mit unterschiedlichen Höhen (10, 50, 150m) am Startpunkt über Graz-Hauptplatz (Koordinaten: 47,07°N / 15,44°E) mit einer Laufzeit von 120 Stunden. Im Vertikalschnitt ist zusätzlich die Trajektorienhöhe über Bodenniveau des Modells (Meters AGL) als Funktion der Zeit dargestellt.

lat: 47.0713 lon.: 15.4394 hghts: 10, 50, 150 m AGL

Trajectory Direction: Backward Duration: 120 hrs Meteo Data: reanalysis  
 Vertical Motion Calculation Method: Model Vertical Velocity  
 Produced with HYSPLIT from the NOAA ARL Website (http://www.arl.noaa.gov/ready/)

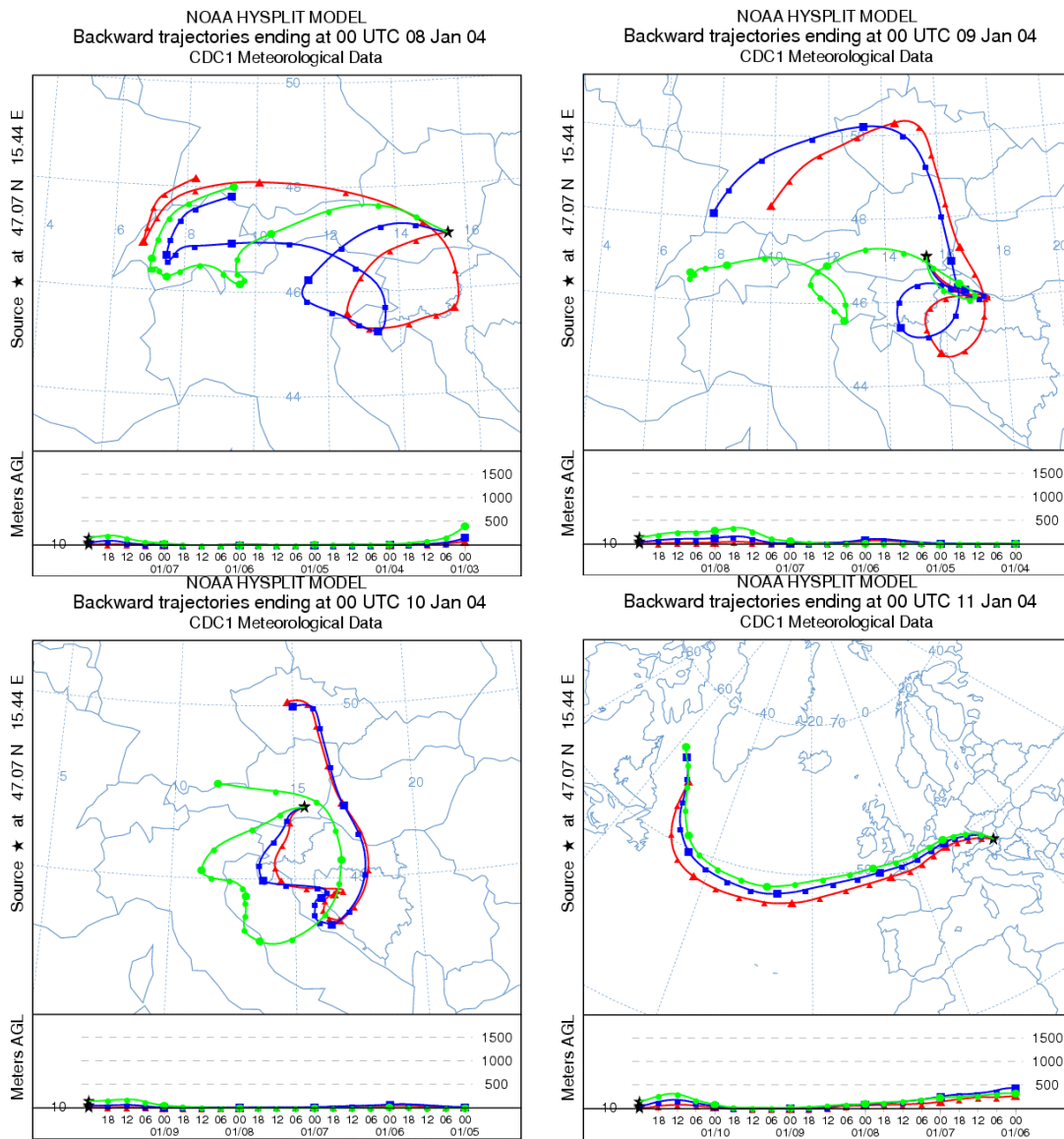


Abbildung 94 a-d: Rückwärtstrajektorien: für 8./9./10./11.1.2004 (jeweils 0 UTC)

In den Abbildung 94 a, b und c überquert die Luft zwei mal Teile Österreichs, wobei vor dem Grazer Raum vor allem Gebiete in Slowenien, Norditalien und Kroatien überströmt werden. Auch in der Schweiz, Deutschland, Tschechien und Österreich könnten hier PM10-Vorläufersubstanzen wie etwa NO<sub>x</sub> aufgenommen werden. Derartige Trajektorienbahnen verdeutlichen die sehr schwachen Strömungen bei gradientschwachen Lagen (Trajektorienlaufzeit: 120 Stunden), bei denen zur Aufnahme von PM10 Vorläufersubstanzen und deren Umwandlung ausreichend Zeit zur Verfügung steht. Auffrischender Wind aus überwiegend westlicher Richtung ab 10.1.2004 (12 Uhr) am Bockberg (Abbildung 91b) passt gut zu den Rückwärtstrajektorien in Abbildung 94 d, was im Hintergrund niedrige PM10 Werte bedeutet und somit zwingend Quellen im Grazer Stadtgebiet für weitere Überschreitungen verantwortlich macht.

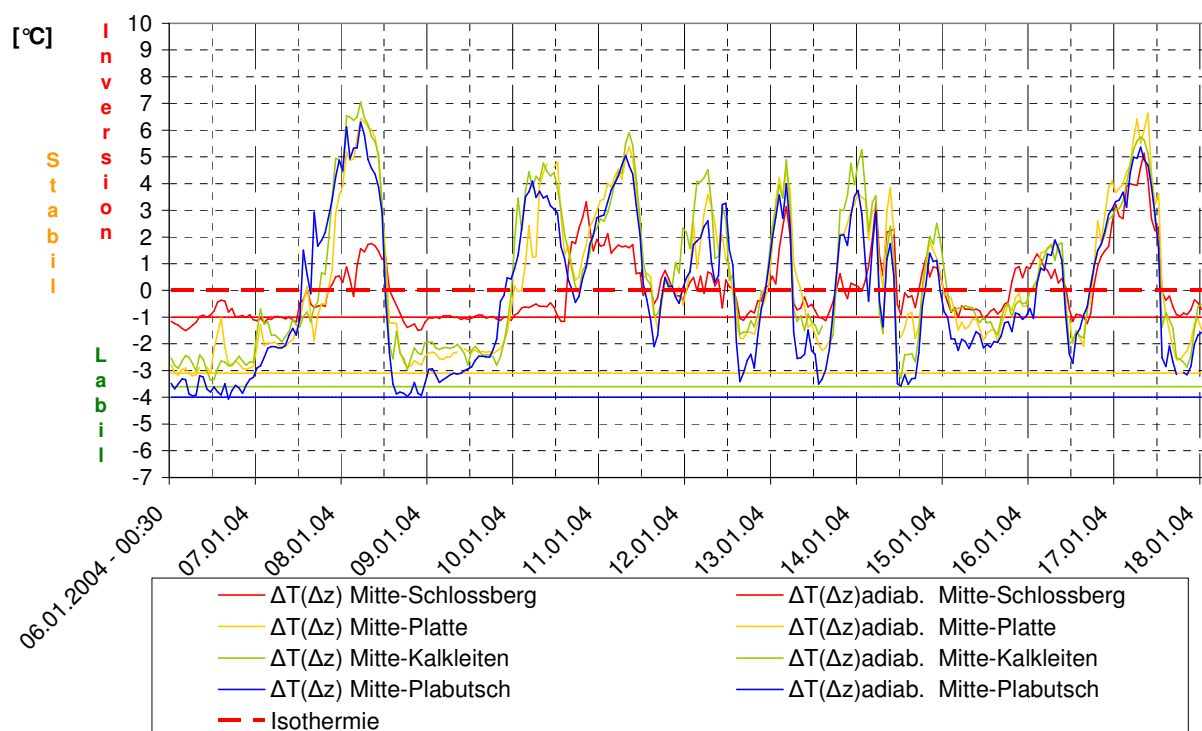


Abbildung 95: Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen und adiabatischen Temperaturdifferenzen in Episode 1 zwischen den Stationen

- Graz-Mitte (350m) und Schlossberg (450m)
- Graz-Mitte und Graz-Platte (661m)
- Graz-Mitte und Kalkleiten (710)
- Graz-Mitte und Plabutsch (754m)

aus Stundenmittelwerten errechnet. (Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at))

$-1\text{ }^\circ\text{C}/100\text{m} = \Delta T/\Delta z_{\text{adiab.}}$  entspricht dem trockenadiabatischen Temperaturgradienten (konstant), d.h. ohne diabatische Prozesse wie etwa Kondensation zwischen beiden Niveaus. Eine derartige Temperaturabnahme mit der Höhe bedeutet neutrale Schichtung. Der Höhenunterschied der betrachteten Stationen ergibt die Temperaturdifferenzen

$\Delta T(\Delta z)_{\text{adiab.}}$  bei adiabatischer Schichtung in Tabelle 29, die in Abbildung 95 jeweils als konstante, waagrechte Referenzlinien zu erkennen sind.

Tabelle 29: Höhenunterschied und trockenadiabatische Temperaturdifferenz:

	Mitte-Schlossb.	Mitte-Kalkleiten	Mitte-Platte	Mitte-Plabutsch
$\Delta z$ [m]	100	360	311	404
$\Delta T(\Delta z)_{\text{adiab.}}$ [°C/100m]	-1,0	-3,6	-3,1	-4,0

Nun ist im zeitlichen Verlauf die thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre über Graz einzuschätzen. Eine Temperaturabnahme mit der Höhe stärker als  $\Delta T/\Delta z_{\text{adiab.}}$  bedeutet labile Verhältnisse – sonst stabile Schichtung oder Inversion. Zu beachten ist, dass sich durch Erwärmung der hangnahen Luftschichten an höher gelegenen Stationen tagsüber höhere Temperaturen als in der freien Atmosphäre ergeben was zu stabile Verhältnisse anzeigen könnte.

Durch sehr schwachen Wind herrschen z.B. am 8.1.2004 bis etwa 12 Uhr sehr stabile Verhältnisse, was zu den höchsten Konzentrationen der Episode 1 führt. Danach wird die Inversion durch aufziehende Bewölkung mit leichtem Schneefall zerstört (9.1.2004). Die PM10 Konzentration sinkt zwar, bleibt aber durch Advektion von Sekundäraerosol mit leichtem Südwind auf hohem Niveau. Besonders ab 10.1.2004 beeinflusst die stabile Schichtung mit häufigen bodennahen Inversionen die PM10 Konzentration an der Messstelle Graz-Süd. In diesen Tagen ist der Inversionstagesgang deutlich zu erkennen (Inversionsbildung durch nächtliche Abstrahlung).

Auch die Auswertung von Radiosondendaten des 3 Uhr UTC Aufstieges am Flughafen Graz ergibt am 8., 10., 11., 12., 13., 14., 16., und 17.1.2004 stark ausgeprägte Inversionen im Höhenbereich zwischen Bodenniveau und durchschnittlich 700 Meter über Grund, was auch in etwa dem Kammniveau der Erhöhungen rund um Graz entspricht.

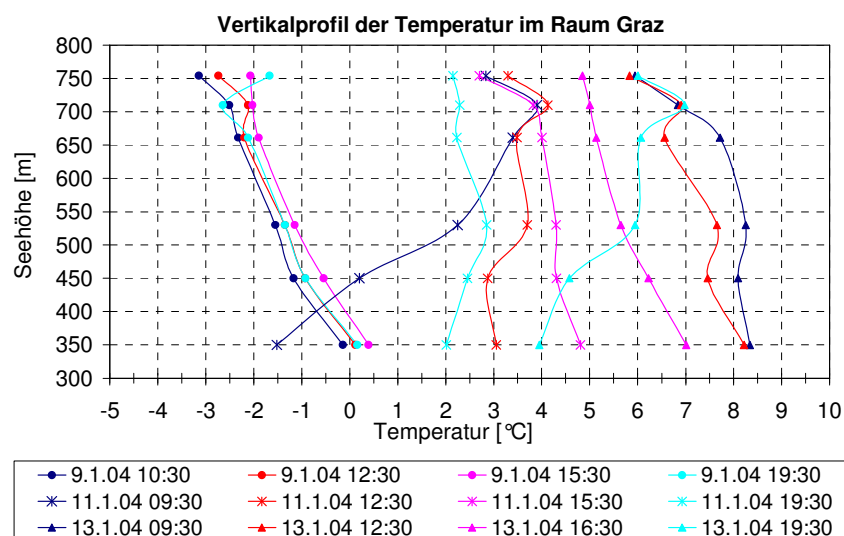
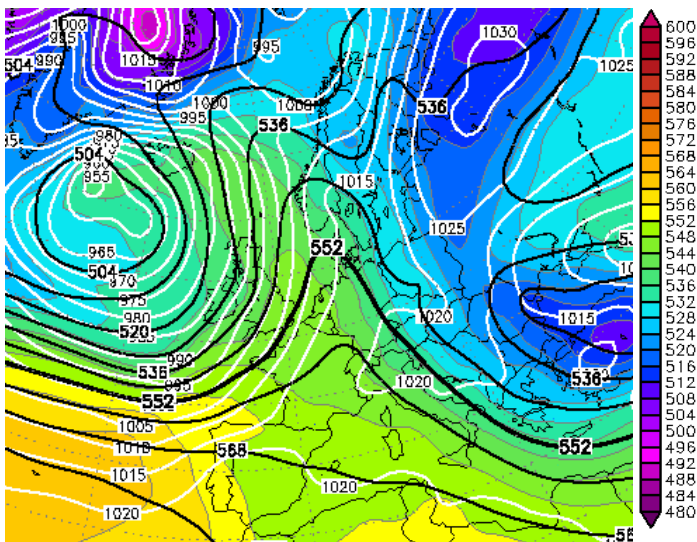


Abbildung 96: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre an ausgewählten Tagen mit den Stationen Graz-Mitte (350m), Schlossberg (450m), Hubertushöhe (530m), Graz-Platte (661m), Kalkleiten (710m) und Plabutsch (754m). (Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at))

In Abbildung 96 wird der Temperaturverlauf mit der Höhe bei stark ausgeprägter Bodeninversion am 11.1.2004 (09:30) anschaulich dargestellt – im Gegensatz zu den beinahe adiabatischen Verhältnissen etwa am 9.1.2004. Hier soll exemplarisch die starke Variabilität der Schichtung der bodennahen Atmosphäre angezeigt werden.

Wetterlage:



Hoher Druck und kontinentale Kaltluft liegen über Teilen Russlands bis Ost- und Mitteleuropa, ein Hochdruckkeil in 500hPa überquert Europa von West nach Ost bzw. schwächt sich in weiterer Folge ab. Eine derartige Lage schafft die Voraussetzungen für eine mögliche Überschreitungsepisode.

Abbildung 97: Großwetterlage am 8.1.2004 um 0 UTC aus den Analysekarten des GFS-Modells: 500hPa Geopotential [gpm] (schwarze Linien), Bodendruck [hPa] (weiß), relative Topographie H500-H1000 [gpm] (Farbflächen) (www.wetter3.de).

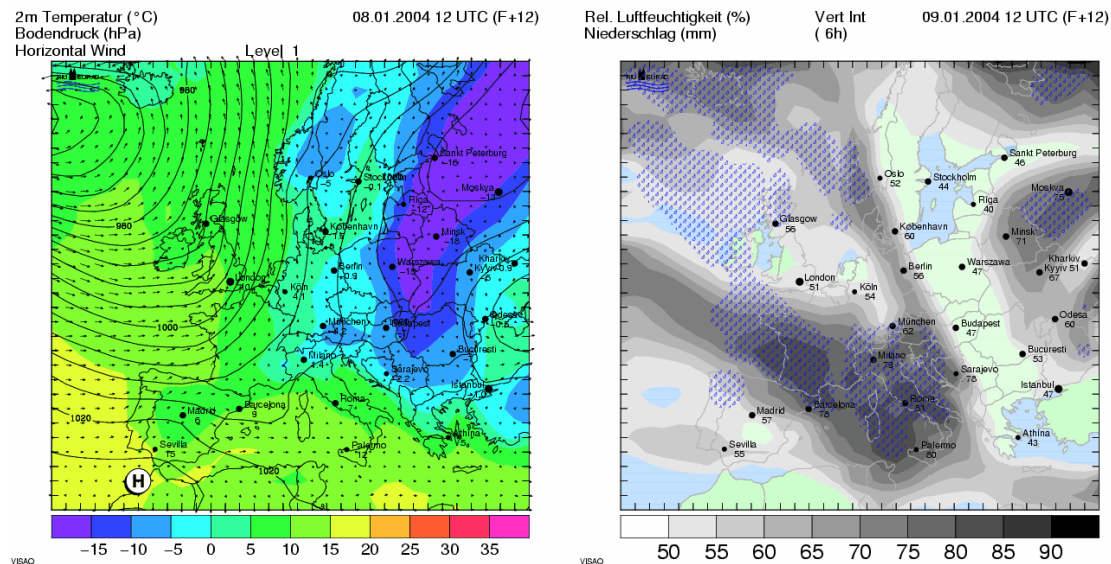


Abbildung 98 a: Temperaturverteilung, Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 8.1.2004 um 12 UTC.

Abbildung 98b: Vertikal integrierte Relative Feuchte (%) dargestellt mit Niederschlagsgebieten für 9.1.2004 um 12 UTC (MM5-Modell).

(Quelle: Rheinisches Institut für Umweltforschung, www.eurad.uni-koeln.de)

Ein Tiefdrucksystem nähert sich Europa von Westen (Abbildung 98a), wobei ein Frontensystem Mitteleuropa überquert (b), was in Graz zwar die Inversion auflöst und kurzfristig bessere Ausbreitungsbedingungen schafft, jedoch mit einer Südströmung Sekundäraerosol nach Österreich transportiert.

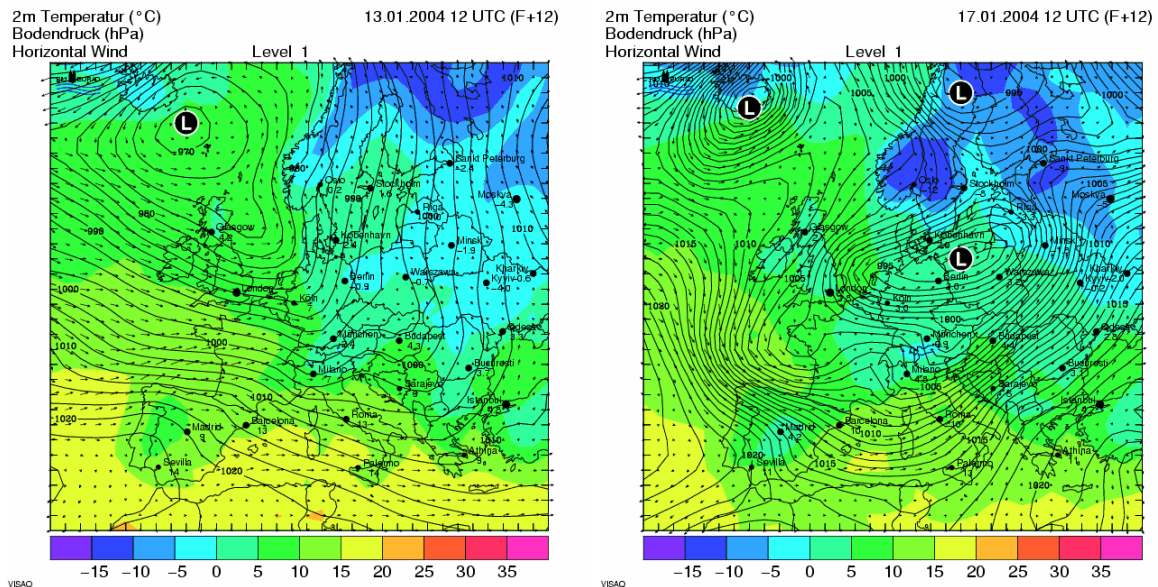


Abbildung 99 a: Wetterlage am 13. und 17.1.2004 ([www.eurad.uni-koeln.de](http://www.eurad.uni-koeln.de)).

Durch die nach wie vor sehr windschwache Lage mit Inversion im Grazer Becken kann Primäraerosol trotz kräftigem Tiefdruckeinfluss in Mitteleuropa nicht abtransportiert werden.

4.5.2 Analyse der Episode 2 (1.-7.2.2004)

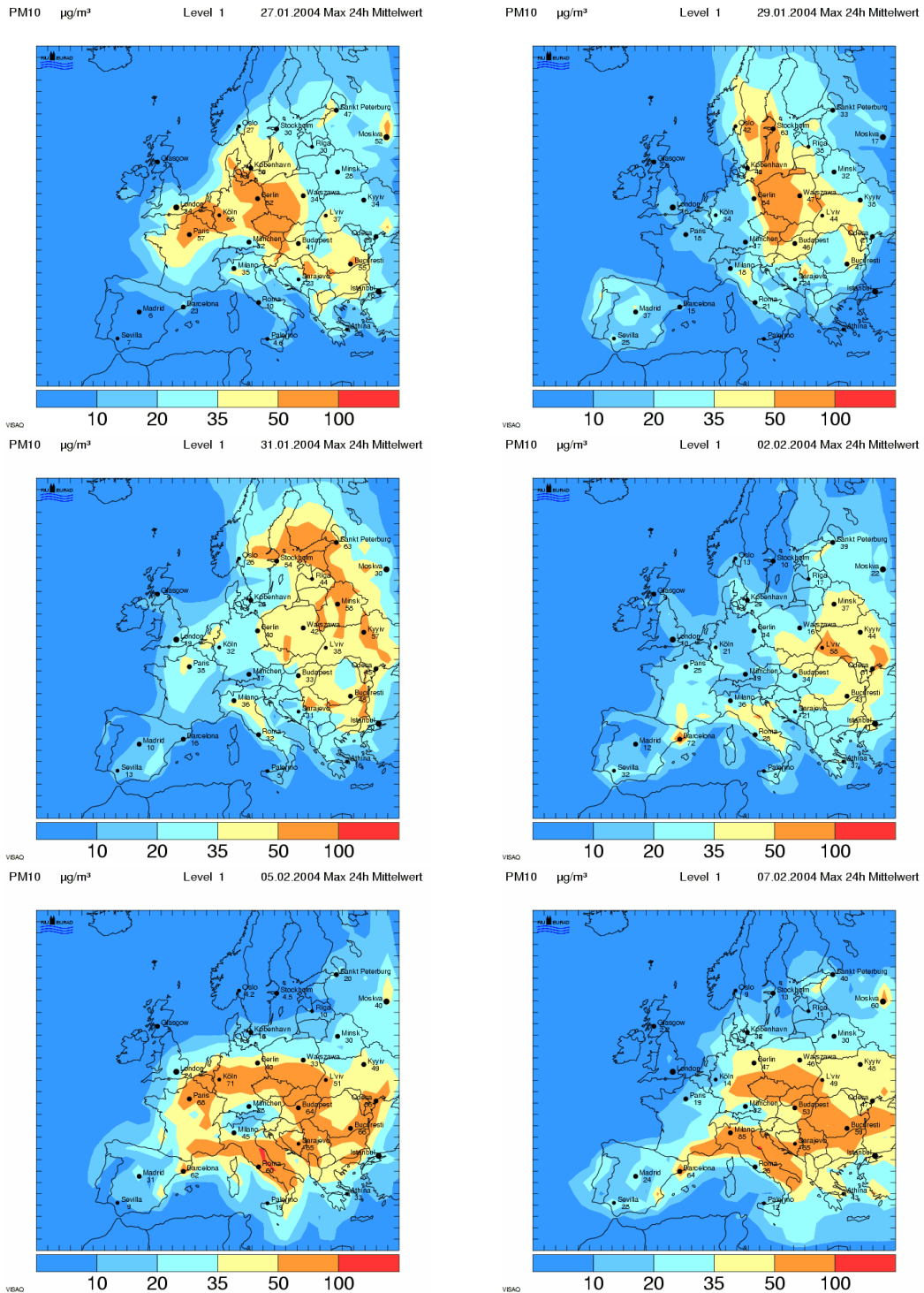


Abbildung 100 a-f: Modellierter PM10 Belastung in Europa während der Episode 2.

Besonders für die Stadt Graz prognostiziert das EURAD-Modell die Feinstaubkonzentration der Episode 2 bei weitem zu gering, da Alpine Becken vom Modell nicht aufgelöst werden. Eine gute Prognose für hohe Hintergrundwerte lassen die Abbildungen jedoch sehr wohl zu, da das PM10 Maximum an den Hintergrundmessstellen in Abbildung 101 mit der Maximalbelastung in Abbildung 100a/b auch quantitativ übereinstimmt.



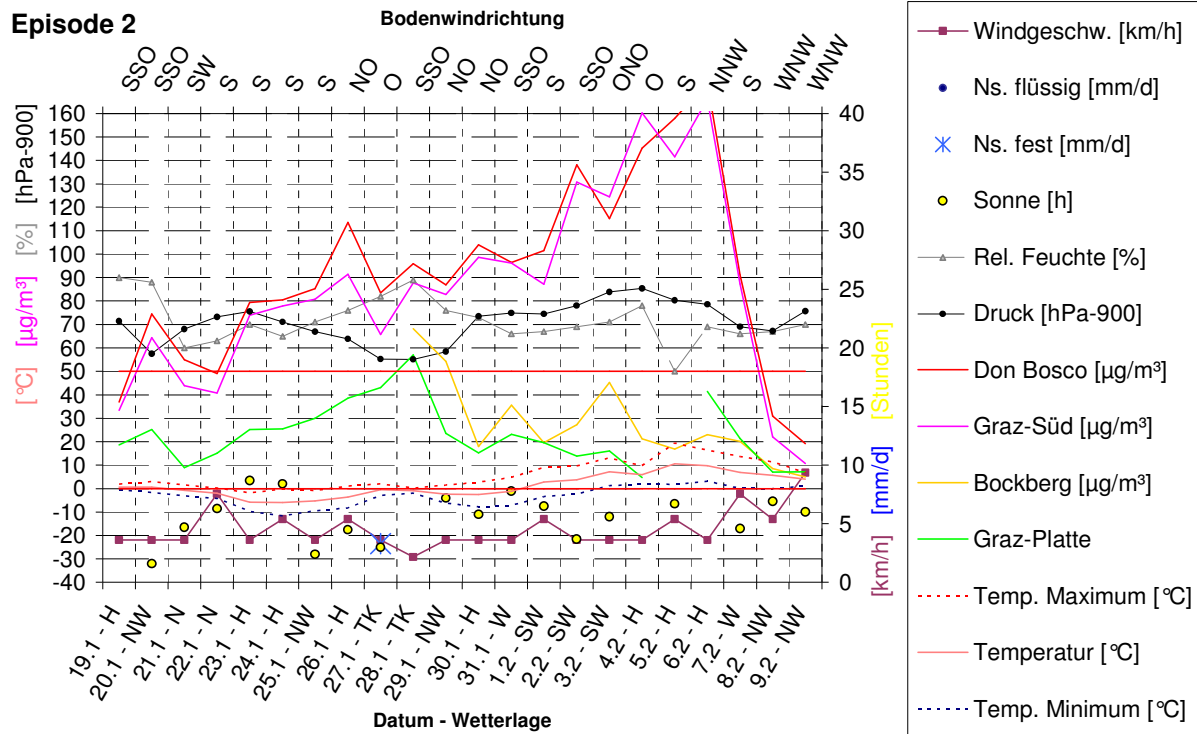
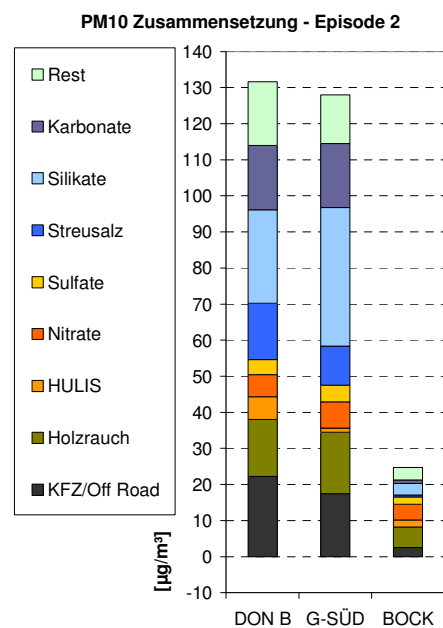


Abbildung 101: Episode 2 (1.-7.2.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz-Universität.

Die zweite signifikante Episode weist die höchsten PM10 Konzentrationen (über 160µg/m³ Tagesmittelwert) des Jahres 2004 auf, jedoch nur für Don Bosco und Graz-Süd. An den Hintergrundmessstellen sind beinahe keine Überschreitungen des EU-Grenzwerts zu verzeichnen. Ein klares Bild der herrschenden Witterung zeigt Abbildung 101 mit nur einem



Niederschlagsereignis, dementsprechend viel Sonnenschein und großen Temperaturtagesgängen ab 30.1.2004 (→Inversionen). Zwischen 4. und 6.2.2004 wird Hochdrucklage klassifiziert, was auch mit der Maximalbelastung an den AQUELLA-Stadtmessstellen zusammenfällt.

Die Chemische Analyse in Abbildung 102 bestätigt die PM10 Zusammensetzung bei derartigen Witterungsverhältnissen. Trockene Straßen sorgen für bedeutende Beiträge an Streusalz und Mineralstäuben im Grazer Stadtgebiet, wobei auch Kfz-Abgase und Holzrauch bemerkenswert sind. Sekundär gebildete Partikel sind in der Episode 2 im Mittel von nur geringer Bedeutung (→Rückwärtstrajektorien).

Abbildung 102: Chemische Analyse der Episode 2 (1.-7.2.2004).

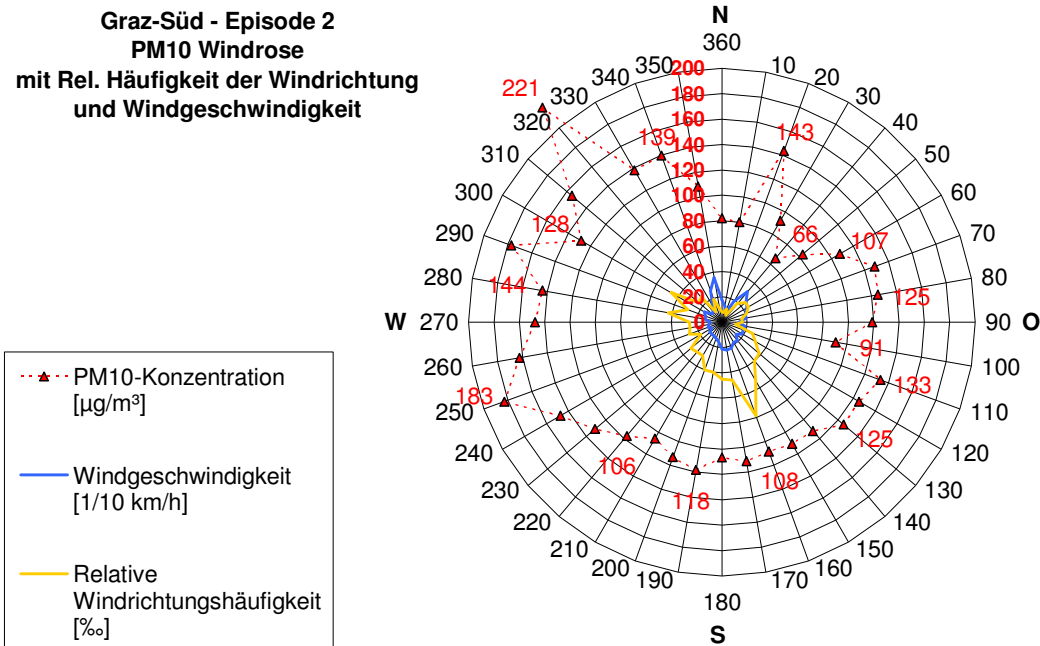


Abbildung 103: PM10 Windrose für den Zeitraum 26.1.2004 – 7.2.2004 für die Messstelle Graz-Süd. Stationshöhe: 348m. Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

In Abbildung 103 ist SSO als bevorzugte Windrichtung an der Messstelle Graz-Süd zu erkennen. Im Nord- bzw. Nordostsektor zeigen sich die Minima, im Nordwestsektor hingegen die Maxima in der PM10 Konzentration. Da sich die Windgeschwindigkeit in allen Sektoren auf sehr tiefem Niveau (ca. 2 km/h) befindet, darf hier keinesfalls ein großräumiger Aerosoltransport aus Nordwest angenommen werden. Generell sind Windrosen bei sehr schwachen Winden mit Vorsicht zu interpretieren.

Beim Vergleich der beiden Abbildung 104 a und b kann von 26. bis 29.1.2004 eine Mischform der Überschreitungsart festgestellt werden, denn durch bereits hohe Schwebstaubwerte am Bockberg bei überwiegend Südost bis Nordostwind bedarf es nur noch eines kleinen „urban impacts“ um über  $50\mu\text{g}/\text{m}^3$  zu gelangen. Das heißt, vor der eigentlichen Episode 2 befinden sich die PM10 Werte durch Advektion von Feinstaub aus anderen Regionen (→ Trajektorien) und Beiträgen aus dem Grazer Stadtgebiet bereits über dem EU-Grenzwert an den AQUELLA Stadtmessstellen.

Ab 30.1.2004 liegen die Aerosolhauptquellen in der Stadt Graz selbst - begründet durch die geringe Feinstaubkonzentration am Bockberg, beinahe stehende Luft und extrem beständige Inversion (Abbildung 106) über dem Grazer Becken. Windgeschwindigkeiten am Bockberg über 5 m/s etwa am 1.2.2004 werden durch die sehr stabile Schichtung der bodennahen Atmosphäre an der Messstelle Graz-Süd kaum bemerkt. In Abbildung 104a sticht besonders der stark ausgeprägte Tagesgang der PM10 Halbstundenmittelwerte ins Auge, mit den Maxima jeweils in den Abendstunden (verkehrsstarke Zeiten). Frischer Nordwestwind am 7.2.2004 beendet die Episode 2.

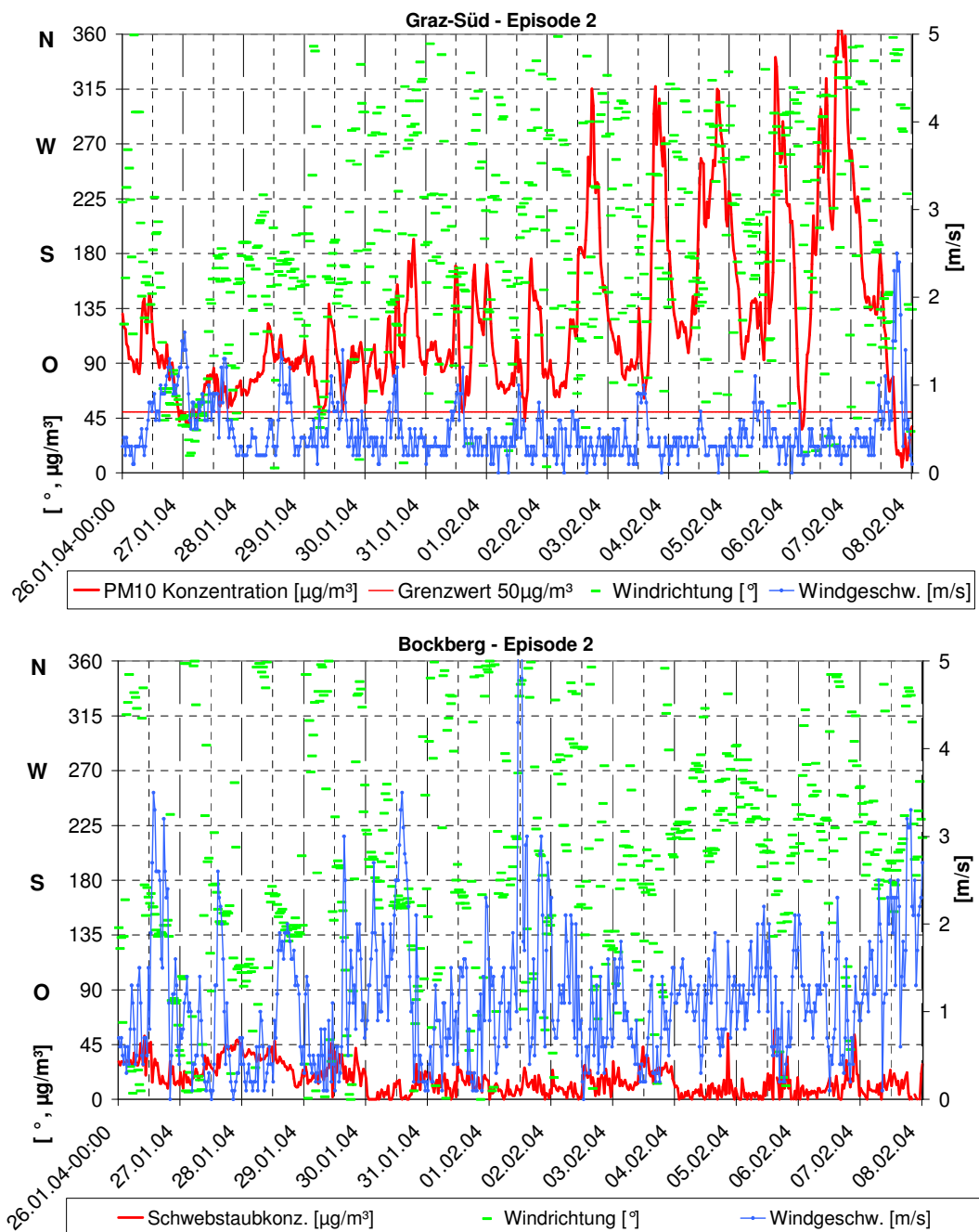


Abbildung 104: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit an den Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 2.

Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

Rückwärtstrajektorien:

Die Trajektorienbahnen über Südosteuropa (Abbildung 105a) bestätigen hohe Werte im Hintergrund am 26. und 27.1.2004 – ähnlich auch in Abbildung 105b mit Luftmassen aus Regionen westlich bzw. südwestlich der Steiermark. Als Quellregionen für etwaige

Vorläufersubstanzen von Sekundäraerosol am Beginn der Episode 2 können vor allem Gebiete am Balkan festgelegt werden, bis hin zu Ungarn, der Slowakei, Tschechien und sogar Nordostösterreich. Dabei ist zu beachten, dass die Trajektorienhöhe meist am Bodenniveau oder wenig darüber liegt, was bei Überströmen von Gebieten mit hohen Emissionen zwingend eine Anreicherung von Schadstoffen darstellt.

In Abbildung 105c bilden absinkende Luftmassen aus Nordwesteuropa die Grundlage für geringe Belastung der Hintergrundstationen, da in Höhen bis über 2500 Meter über Grund weder Primärpartikel noch Vorläufersubstanzen für Sekundäraerosol aufgenommen werden können.

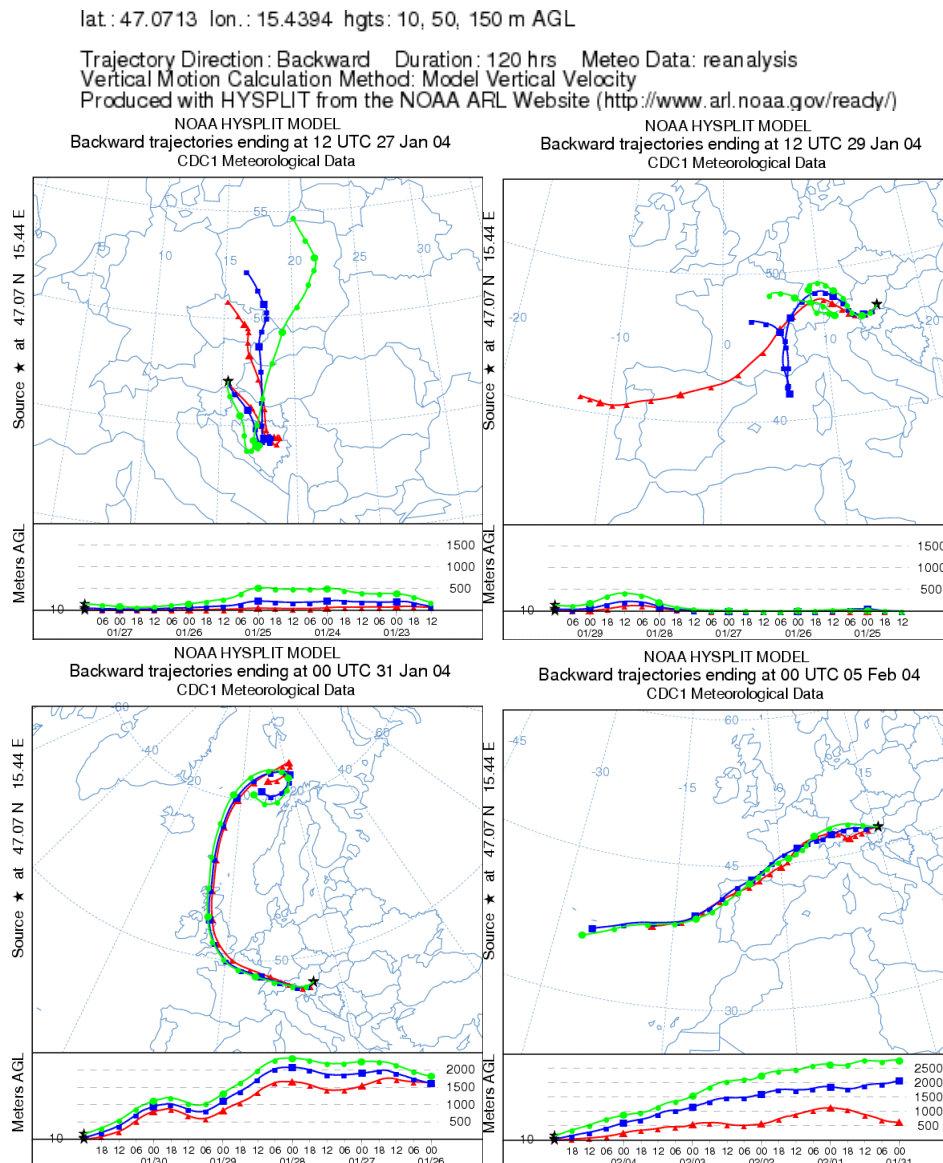


Abbildung 105 a-d: Rückwärtstrajektorien für 27. (12 UTC), 29. (12 UTC), 31.1.2004 (0 UTC) und 5.2.2004 (0 UTC).

Die bodennahe Atmosphäre im Grazer Becken ist bei leichtem bis mäßigem Wind vor 29.1.2004 neutral bzw. leicht stabil geschichtet, was in der eigentlichen Episode 2 ein Ende hat. Eine mächtige und bereits knapp über Bodenniveau stark ausgeprägte Inversion führt zu einem quasi rundum abgeschlossenen Grazer Becken, wo besonders primär emittierte

Mineralstaube durch trockene Straßenverhältnisse (Abbildung 101: Sonnenscheindauer) praktisch gefangen sind. Die maximalen Temperaturanstiege von Graz-Mitte zum Schlossberg betragen hier oft bereits 3°C auf 100 Meter Höhenunterschied; zu etwa Graz Plabutsch bereits 10°C auf 400m Meter Höhenunterschied, was eine sehr hochreichende stabile Schichtung bedeutet.

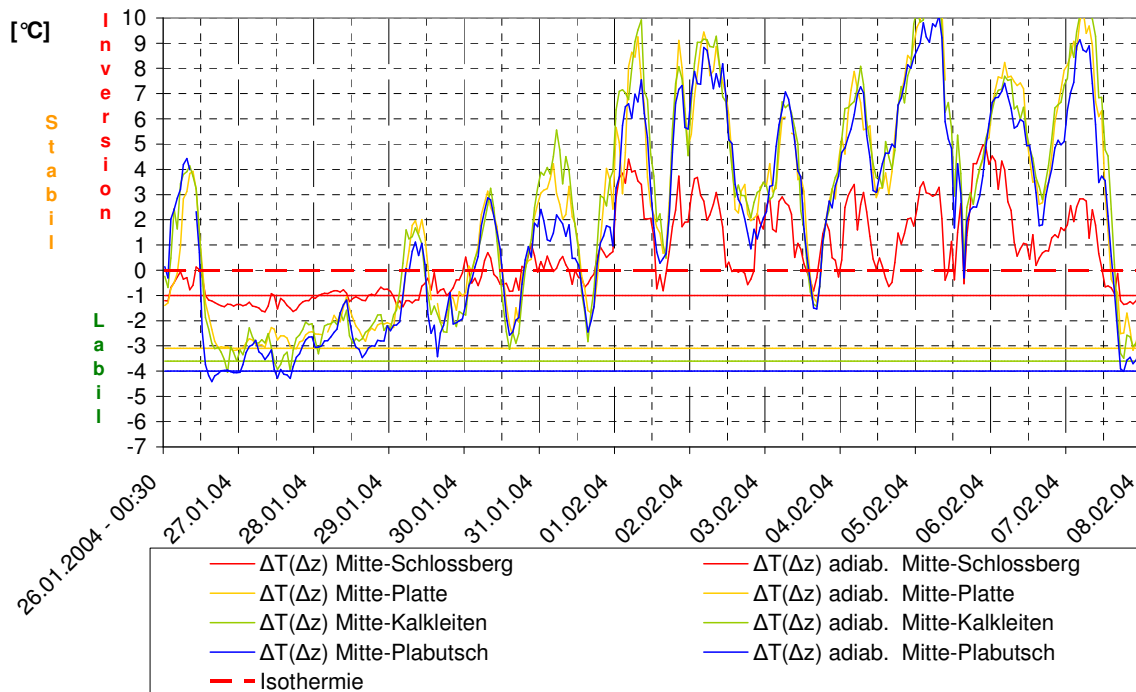
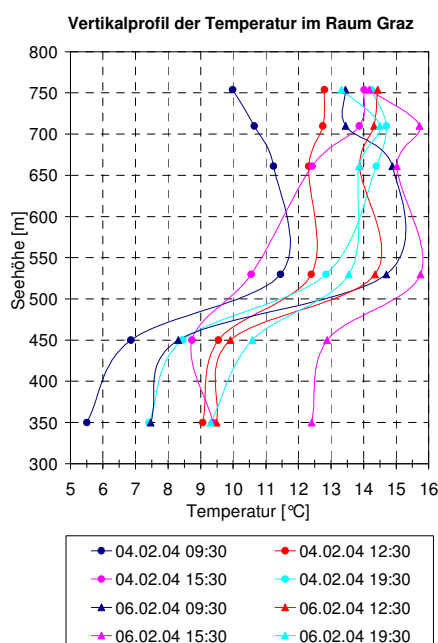


Abbildung 106: Zeitlicher Verlauf von Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen und adiabatischen Temperaturdifferenzen als Referenz in Episode 2 (1.-7.2.2004).



Die jeweils nächtliche Verstärkung der Inversion kann in Abbildung 106 gut beobachtet werden. Die am 4. und 6.2.2004 vorliegende thermische Schichtung in Abbildung 107 zeigt typische Verhältnisse bei Hochnebel. Die Untergrenze der Sperrschicht liegt bei etwa 450 Metern über Grund und es ergeben sich teilweise über 6°C/100m Temperaturanstieg mit der Höhe.

Das Durchgreifen des Windes am 7.2.2004 in den Abendstunden (Abbildung 104) passt exakt mit der Auflösung der Inversion in Abbildung 106 und der damit verbundenen Abreicherung von Feinstaub zusammen. Auch die Auswertung der Radiosondendaten (3 UTC) liefert wie erwartet tiefe Inversionen zwischen 30.1.2004 und 7.1.2004 mit Obergrenzen meist unter 700 Meter Meereshöhe.

Abbildung 107: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre.

Wetterlage:

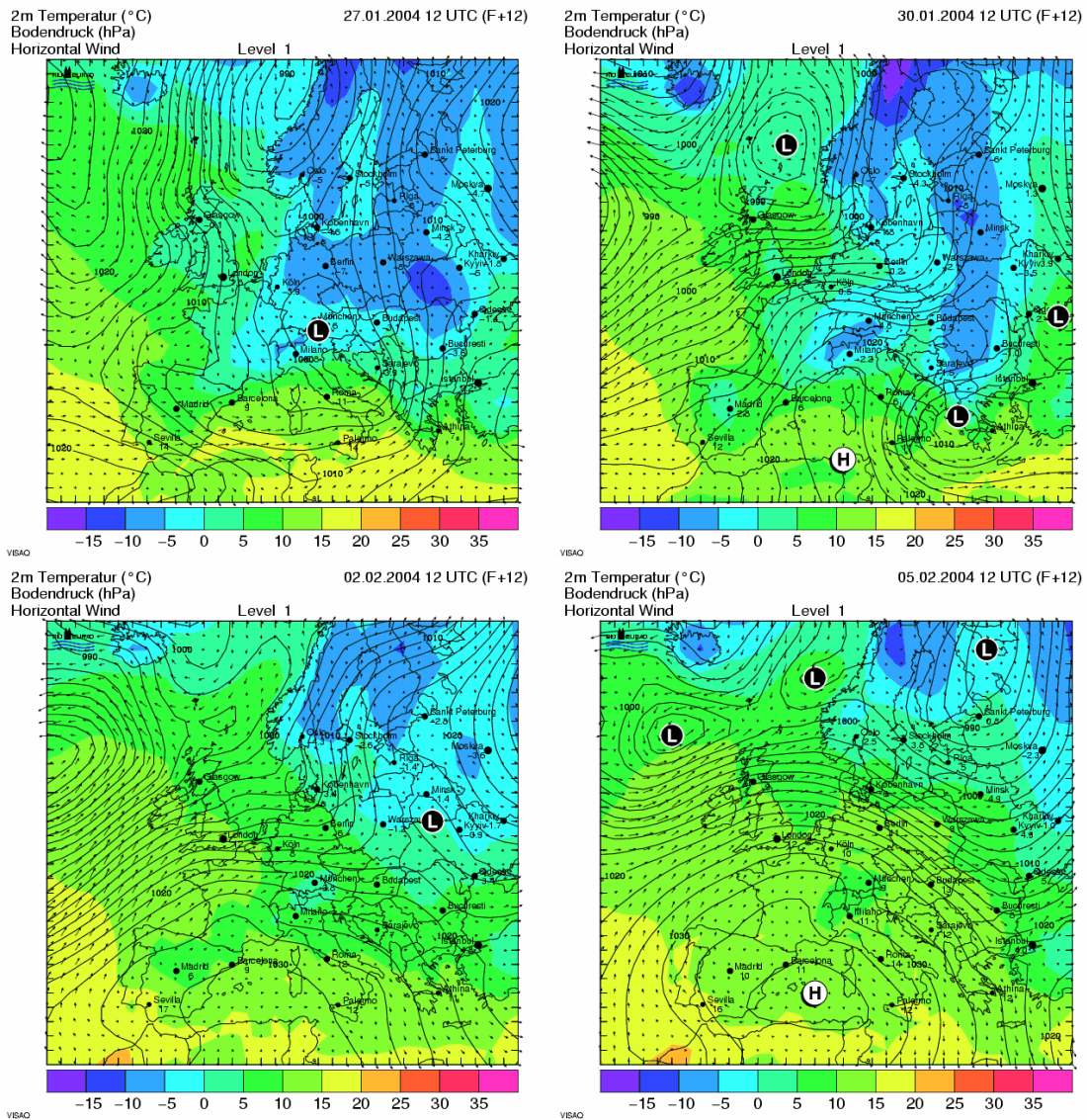


Abbildung 108 a-d: Temperaturverteilung (Farbflächen), Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 27./30.1.2004 und 2./5.2.2004

Ein Tief liegt am 26.1.2004 südlich von Großbritannien, wandert Richtung Osten und vertieft sich in weiterer Folge (a). Am 26. und 27.1.2004 überstreicht die zuvor aus nördlichen Regionen antransportierte Luft Gebiete am Balkan und äußert sich im Grazer Raum mit Süd- bis Nordostwind (a). Ab etwa 30.1.2004 stellt sich die für die weiteren Tage in Europa interessante bodennahe Südwest bzw. Westströmung ein, die durch Leeeffekte der Alpen im Grazer Stadtgebiet kaum Einfluss nehmen kann (b/c/d). Trotz atlantischer Luftmassen, mit geringer Vorbelastung, steigen die AQUELLA Messstellen durch Inversionswetterlage in der Stadt anders als im Grazer Umland weit über den EU-Grenzwert.

4.5.3 Analyse der Episode 3 (10.-11.4.2004; Osterfeuer)

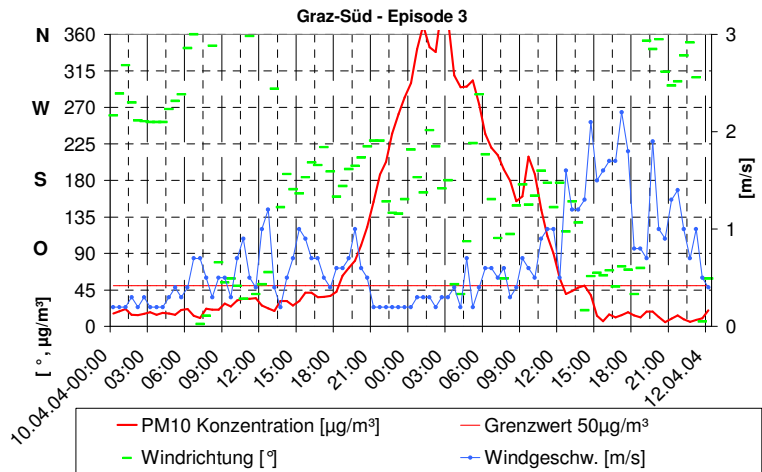
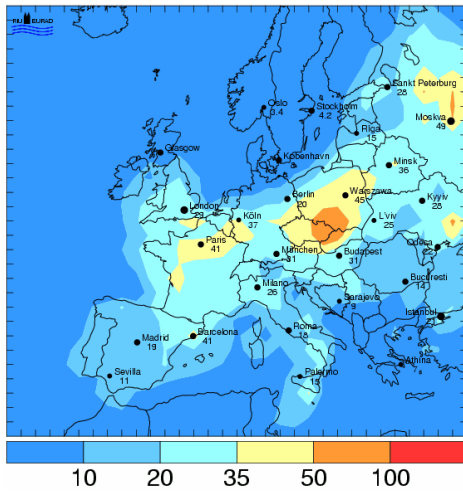


Abbildung 109 (links): Modellierter PM10 Belastung am 11.4.2004 als maximaler 24-Stunden Mittelwert [µg/m³] (EURAD-Modell).

Abbildung 110 (rechts): PM10 Konzentration, Windgeschwindigkeit und Windrichtung als Funktion der Zeit an der Station Graz-Süd.

Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

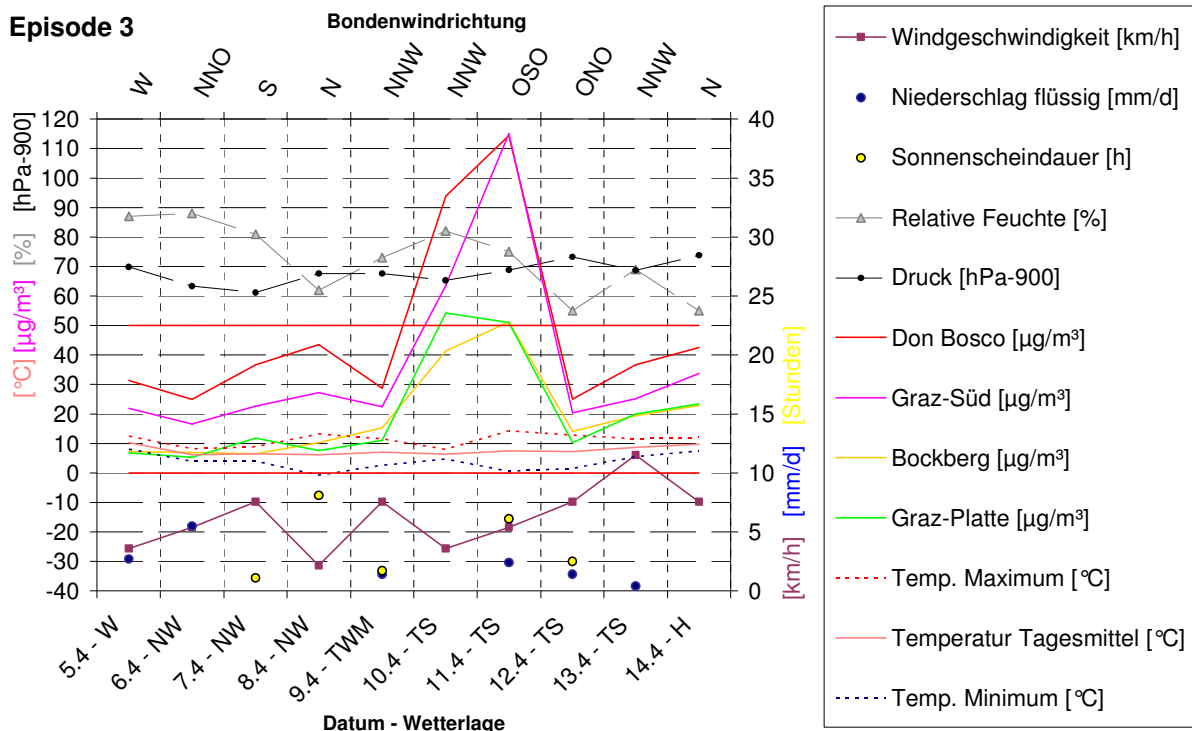


Abbildung 111: Episode 3 (10.-11.4.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz Universität.

Das EURAD-Modell sagt für 11.4.2004 eine erhöhte Feinstaubkonzentration im Nordosten Österreichs vorher, was aber nichts mit den Grenzwertüberschreitungen an den AQUELLA-Messstellen im Raum Graz zu tun hat. Die Episode 3 wurde durch die Osterfeuer am

10.4.2004 gegen 18:00 eingeleitet (Abbildung 110), und erreichte über  $360\mu\text{g}/\text{m}^3$  an der Station Graz-Süd in den darauf folgenden Stunden. Die Emissionen durch offene Feuer im Grazer Becken und Umgebung werden durch nahezu Windstille und eine leichte Inversion (Abbildung 112) nur schwer verdünnt bzw. abtransportiert.

Wetterbestimmend in der Episode 3 ist ein leichtes Tiefdruckgebiet südlich der Alpen (Abbildung 111 / Abbildung 115), was eher nicht typisch für eine Überschreitungsepisode ist. Die PM10 Verläufe in Abbildung 111 zeigen hohe Werte (ca.  $50\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) an den Hintergrundstationen und etwa das Doppelte an den Stadtmessstellen.

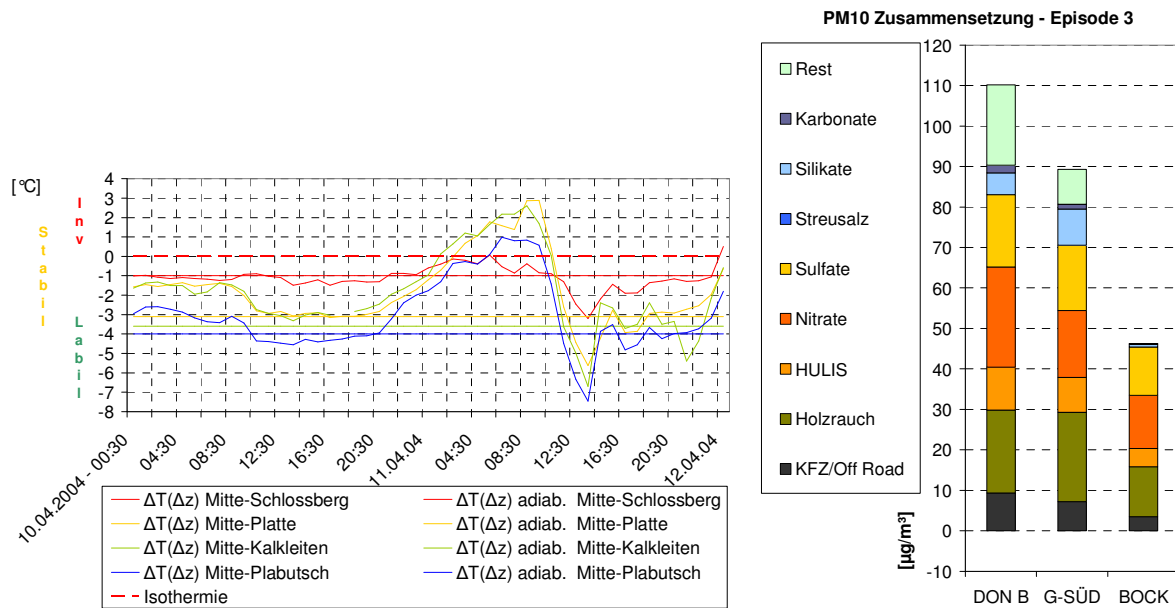


Abbildung 112 (links): (Episode 10.-11.4.2004) Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen.

Abbildung 113 (rechts): Chemische Analyse der Episode 3.

Entsprechend den Osterfeuern als vermutliche Hauptquellen der PM10 Überschreitung ergibt sich die chemische Analyse der Abbildung 113, in der einerseits Holzrauch und andererseits sekundär gebildete Substanzen die Hauptkomponenten von PM10 darstellen, die möglicherweise in Zusammenhang mit der Biomasseverbrennung bei Osterfeuern stehen. Eine schnelle Abreicherung der Schadstoffe erfolgt am 11.4.2004 in den Vormittagsstunden, da erstens durch aufrischenden Wind die Inversion „ausgeräumt“ und damit die zuvor emittierten Partikel abtransportiert werden - die offenen Feuer als Hauptquellen sind bereits versiegt.



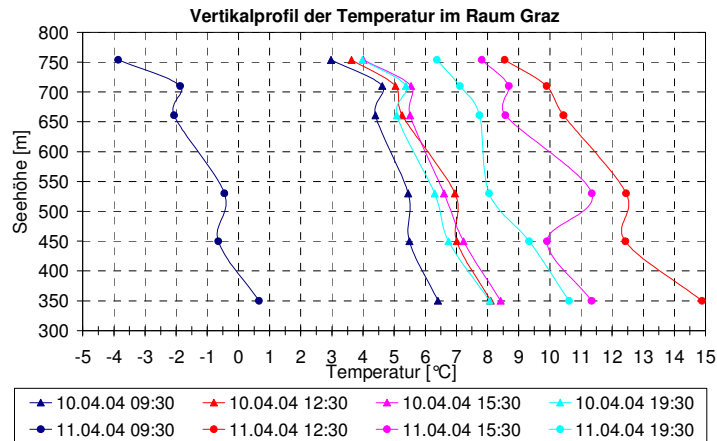


Abbildung 114: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre am 10. und 11.4.2004. Eher neutrale bzw. leicht stabile Schichtung am 10.4.2004 steht teilweise labilen Verhältnissen mit einem starken Tagesgang der Temperatur am 11.4.2004 gegenüber.

Wetterlage

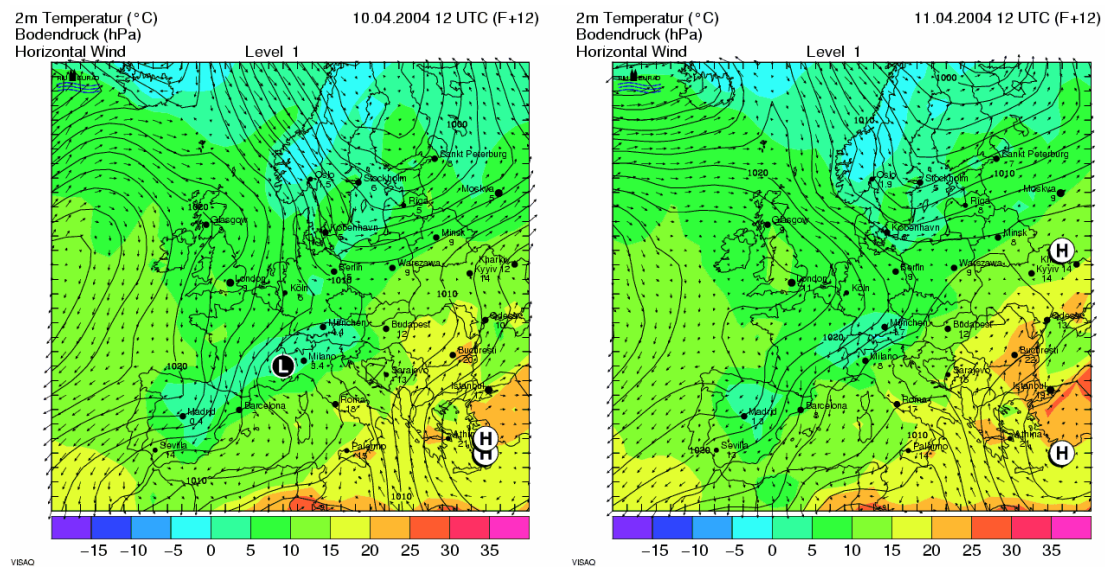


Abbildung 115 a / b: Temperaturverteilung, Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 10. und 11.4.2004 (12 UTC).

Die Wetterlage zeigt keine Besonderheit, die tendenziell zu einer Feinstaubepisode führen würde.

4.5.4 Analyse der Episode 4 (16.-19.11.2004, 22.-23.11.2004 und 25.-30.11.2004)

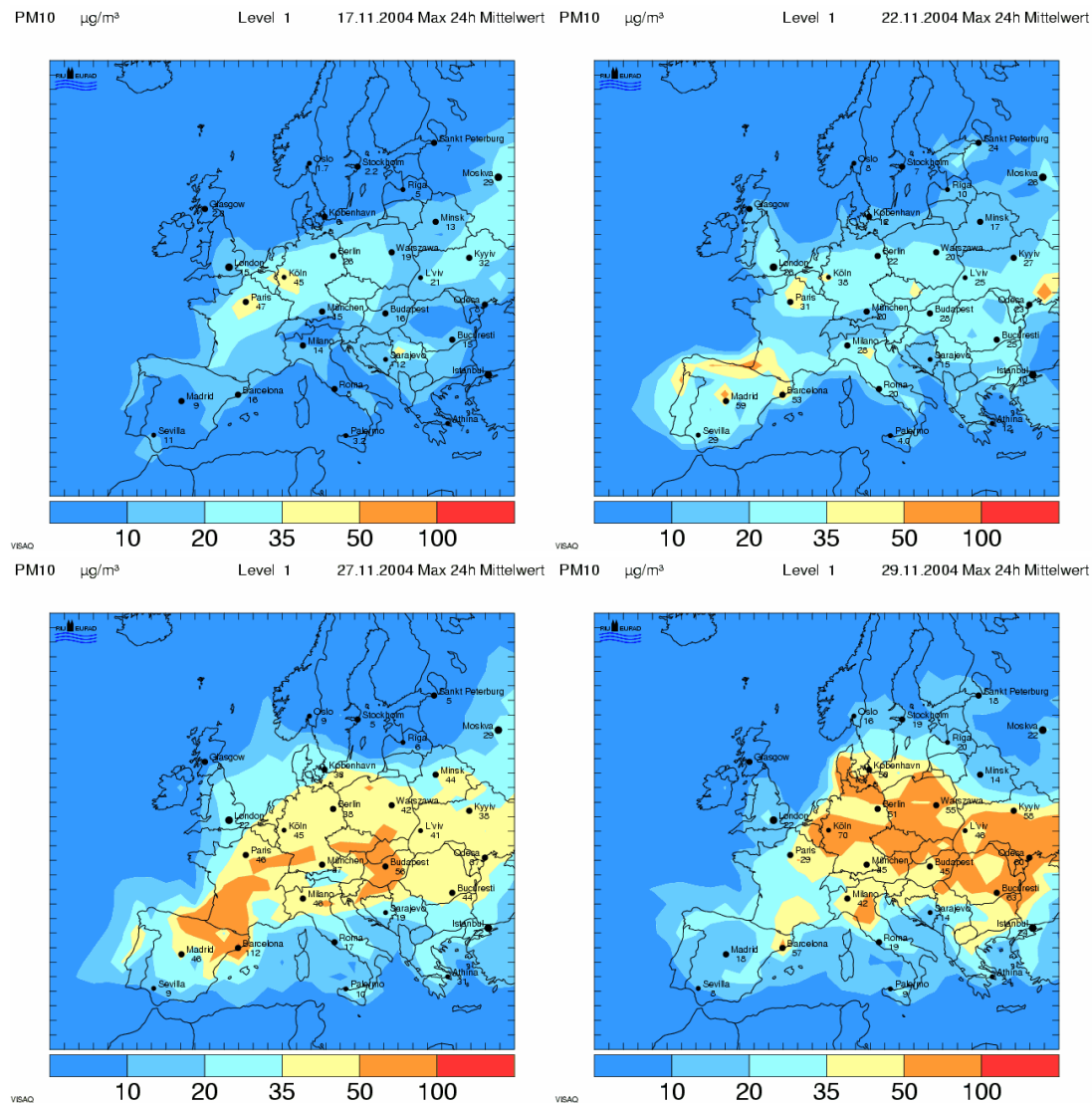


Abbildung 116 a-d: Modellierte PM10 Belastung in Europa während der Episode 4.

Die ersten Grenzwertüberschreitungen der Episode 4 werden in der modellierten PM10 Verteilung des EURAD-Modells praktisch nicht erfasst. Erst verspätet am 29.11.2004 breitet sich im Modell eine Zone hoher PM10 Konzentration über die Steiermark aus.

In Wirklichkeit beschreiben die PM10 Verläufe der Grazer AQUELLA-Stationen drei voneinander unabhängige „Belastungspeaks“ in der zweiten Novemberhälfte 2004.

In Abbildung 117 ist ein Wechselspiel zwischen Windgeschwindigkeit und PM10 Konzentration bereits an den Tagesmittelwerten gut zu erkennen, wobei an den Belastungsschwerpunkten die Tagesmittelwindrichtung Südost (Oeverseepark) ins Auge sticht. Die Wetterlagenklassifikation wechselt mit Nordwest- bis Westlagen und verschiedenen Tiefdrucklagen. Bockberg und Graz-Platte wandern in ähnlicher Weise „parallel“ zu den Stadtmessstellen, übersteigen jedoch nie den EU-Grenzwert.

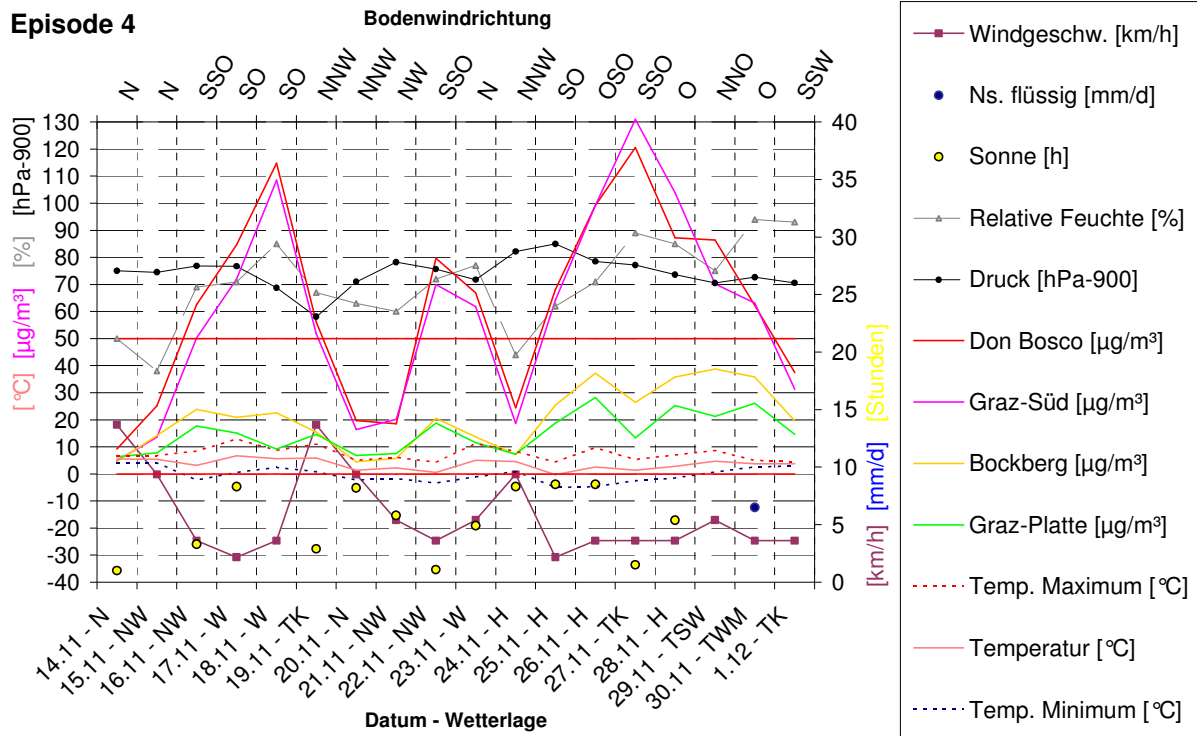


Abbildung 117: Episode 3 (16.-30.11.2004): PM10 Zeitreihen mit meteorologischen Parametern der Station Graz Universität.

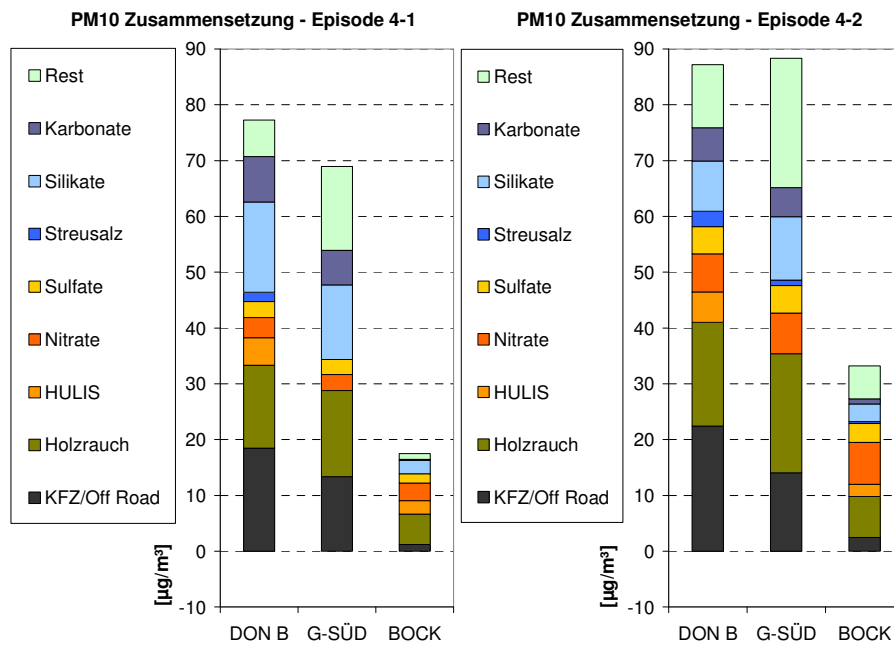


Abbildung 118 a/b: Chemische Analyse der Episode 4-1 (16.-19. und 22.-23.11.2004) und der Episode 4-2 (25.-30.11.2004)

HULIS ist aufgrund fehlender Daten in Abbildung 118 bei Graz-Süd nicht vorhanden. In Episode 4-1 treten an der Station Don Bosco besonders durch Kraftfahrzeuge verursachte Partikel entweder aus der Quelle Kfz-Auspuff oder als Mineralstäube durch Wiederaufwirbelung bei trockenen Straßen auf. Der Anteil des Holzrauchs als Feinstaubquelle ist in Episode 4-2 eine der bedeutendsten Aerosolbestandteile. Die derart

hohen „urban impacts“ in Episode 4-1 und 4-2 führen zur Vermutung, dass besonders in der Übergangszeit (Spätherbst) Biomasse als Heizmaterial verwendet wird. Der wesentlichste Unterschied zwischen den beiden Teilepisoden ist die höhere Hintergrundbelastung am Bockberg in Abbildung 118b, was zusätzlich ferntransportierte PM10-Anteile zwischen 25. und 30.11.2004 bedeuten kann (→ Rückwärtstrajektorien).

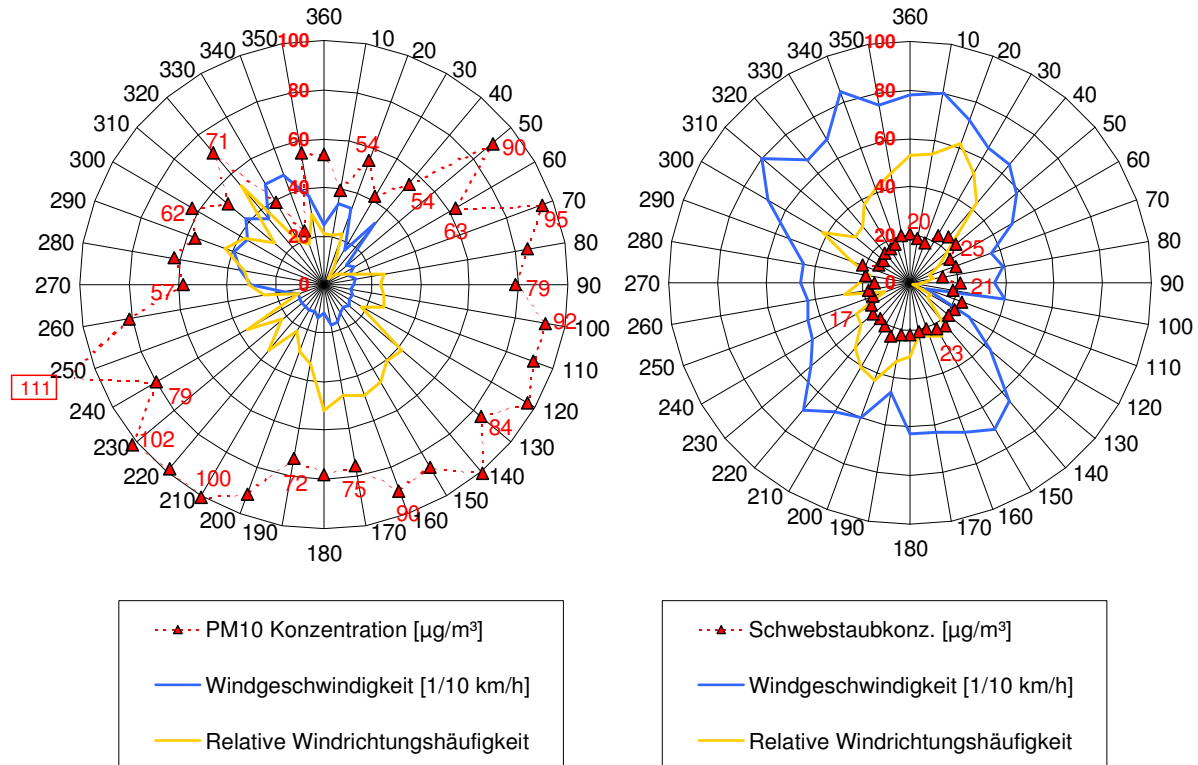


Abbildung 119 a/b: Feinstaub-Windrosen für den Zeitraum 16.11.2004 (0 Uhr) bis 1.12.2004 (0 Uhr) der Messstelle Graz-Süd (links) und Bockberg (rechts).

Auffällig ist in der PM10-Windrose der Station Graz-Süd die Zerteilung der mittleren PM10 Konzentrationen in den Windrichtungssektoren. Es zeigen sich von West bis Nordost die geringsten Konzentrationen. Südost und Nordwest stellen die bevorzugten Windrichtungen dar, wobei die Windstärke die Maxima zwischen West und Nord aufweist. Die im Mittel sehr geringen Schwebstaubwerte am Bockberg bei allen Windrichtungen unterstreichen die Vermutung, dass die Verantwortung für die Überschreitungsepisode 3 vor allem primär emittierten Partikeln aus der Biomasseverbrennung und dem Straßenverkehr im Grazer Stadtgebiet zuzuschreiben ist.

Besonders in Abbildung 120a ist das Wechselspiel zwischen Feinstaubkonzentration und Windgeschwindigkeit gut zu erkennen, denn das Durchgreifen des Windes im Grazer Stadtgebiet bedeutet einen abrupten Abtransport der belasteten Stadtluft. Genaue Betrachtung liefert, dass zwischen 15. und 19.11.2004 am Bockberg mit vorwiegend Südwestwind eine leicht erhöhte Schwebstaubbelastung herrscht (→ Rückwärtstrajektorien) und zusätzlich an der Station Graz-Süd bei nahezu Windstille die Feinstaubwerte kontinuierlich steigen. Mit kräftigem Nordwestwind besonders am 20. und 21.11.2004 überstreicht sehr saubere Luft aus Westeuropa auch die Stadt Graz (Abbildung 121b) – sehr ähnlich auch am 24.11.2004 mit überwiegend Nordwind. Im letzten Teil der Episode 4, etwa

ab 25.11.2004 wird im Grazer Umland die Advektion von Sekundärpartikel, aber auch von primären Emissionen wie Holzrauch aus Gebieten wie etwa der Poebene vermutet (Abbildung 121e). An dieser Stelle ist natürlich der Stadteinfluss am Bockberg zu berücksichtigen, da Stadtaerosol bei Inversionshöhen über 700m und Wind aus oft nördlichen Richtungen Richtung Süden transportiert werden kann. Die Stärke dieses Effekts kann nur wage durch den Vergleich der PM10-Tagesmittelwerte der Station Graz-Platte mit Bockberg abgeschätzt werden.

Nun werden im Grazer Becken durch überaus schlechte Ausbreitungsbedingungen (geringe Windgeschwindigkeit + Inversion) städtische Emissionen im gefangenen Luftvolumen angereichert, was im Endeffekt eine Mischform der Überschreitungsarten ergibt, die Ferntransport von bereits belasteten Luftmassen (ca.  $30\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) mit „urban impacts“ bis zu  $60\mu\text{g}/\text{m}^3$  kombiniert.

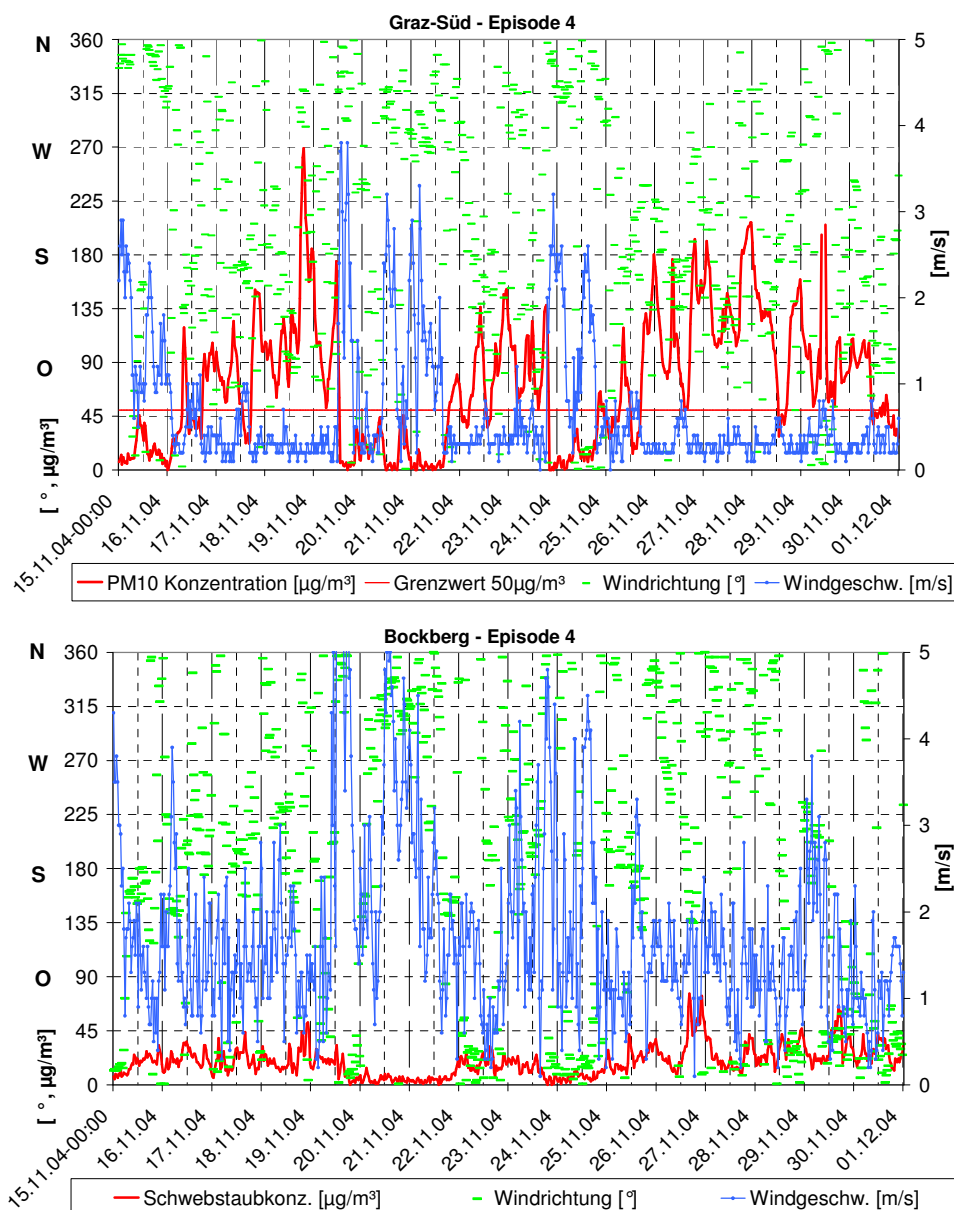


Abbildung 120: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit der Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 4. Daten: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at) (Halbstundenmittelwerte)

Rückwärtstrajektorien:

lat : 47.0713 lon : 15.4394 hgts: 10, 50, 150 m AGL

Trajectory Direction: Backward Duration: 120 hrs Meteo Data: reanalysis  
Vertical Motion Calculation Method: Model Vertical Velocity  
Produced with HYSPLIT from the NOAA ARL Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/>)

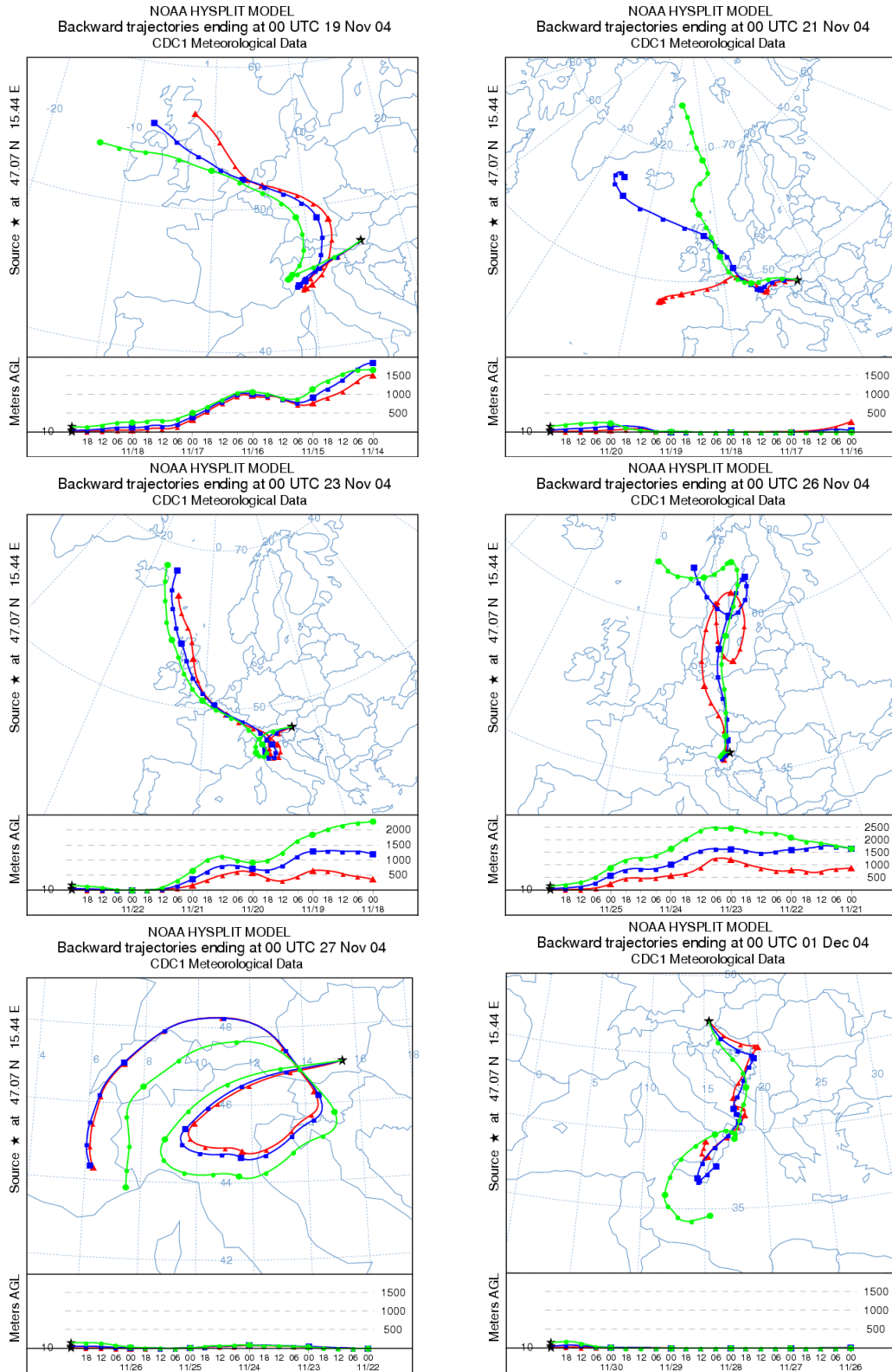


Abbildung 121 a-f: Rückwärtstrajektorien für die Episode 4

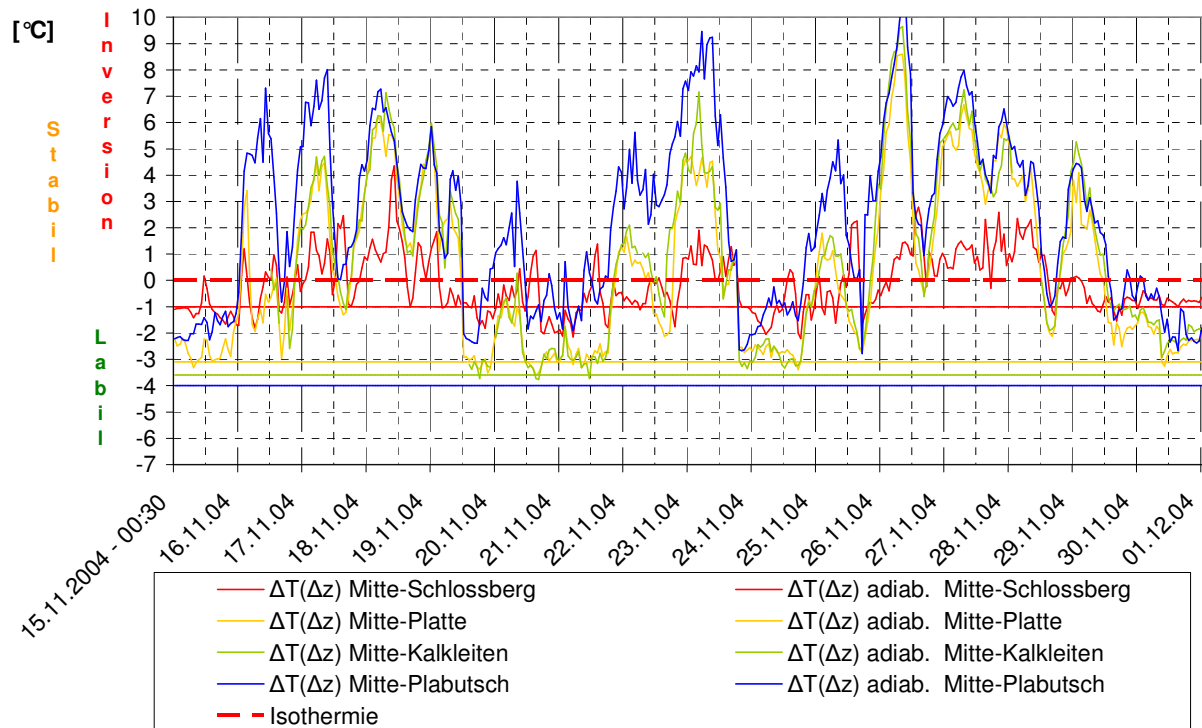
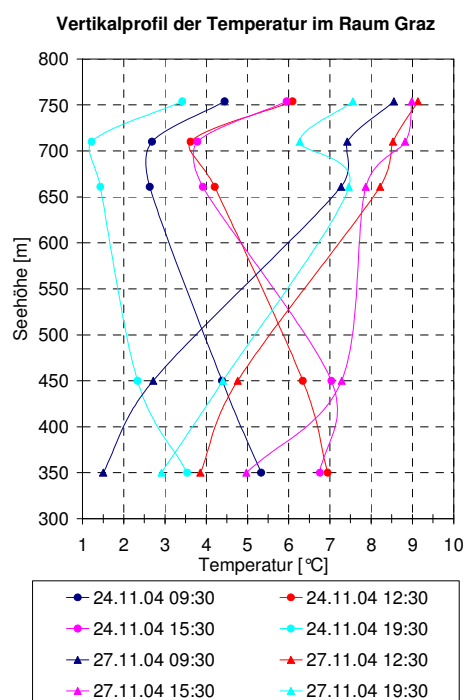


Abbildung 122: Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen in der Episode 4.



Die sehr beständigen Inversionen fallen einerseits exakt mit den PM10 Belastungsschwerpunkten, andererseits mit den windschwächsten Zeiten im Stadtgebiet zusammen. Der einfache Zusammenhang zwischen Windstärke und vertikaler Durchmischung der bodennahen Atmosphäre spiegelt sich hier wieder, denn ist die Stadt Graz gut durchlüftet, befinden sich die Feinstaubwerte durchgehend auf tiefem Niveau.

Die Abbildung 123 soll exemplarisch die unterschiedlichen Vertikalprofile der Temperatur bei völlig verschiedenen Windverhältnissen demonstrieren, mit eben frischem Nordwestwind und neutraler bis leicht stabiler Schichtung am 24.11.2004, entgegen der stark stabilen Schichtung am 27.11.2004.

Abbildung 123: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre am 24. und 27.11.2004.

Passend zum Temperaturvergleich von Tal- mit Bergstationen werden in den Radiosondendaten (3 Uhr UTC, Flughafen Graz) die stärksten Temperaturanstiege mit der Höhe (8-11 °C) am 17., 18., 23., 26., 27. und 28.11.2004 gefunden.

Wetterlage:

2m Temperatur (°C) 18.11.2004 12 UTC (F+36)  
 Bodendruck (hPa)  
 Horizontal Wind Level 1

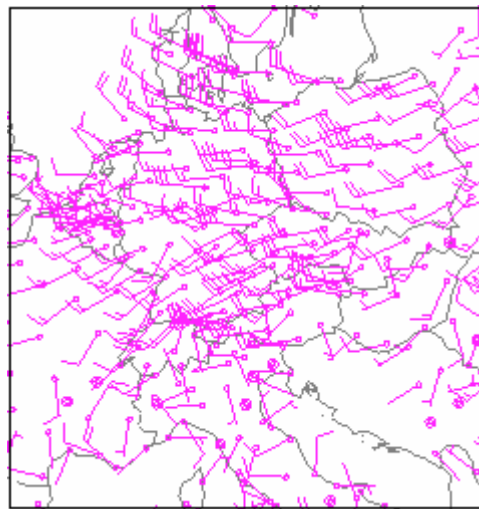
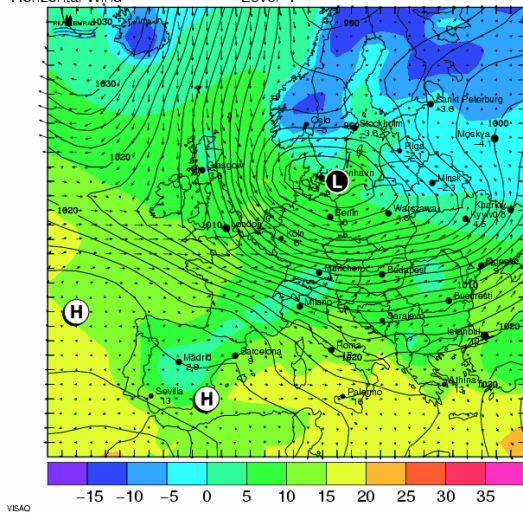
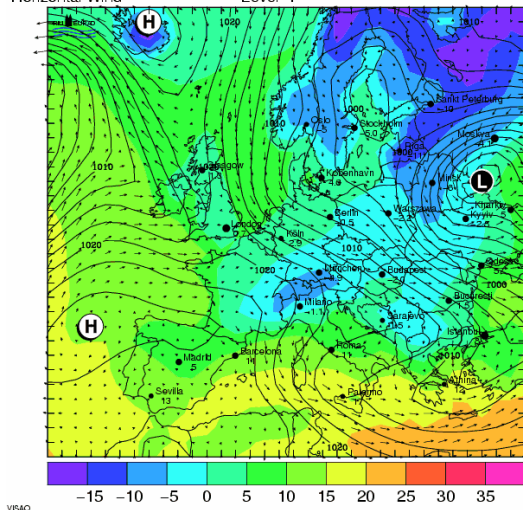


Abbildung 124 (links): Wetterlage nach der Prognose des MM5-Modells am 18.11.2004.

Abbildung 125 (rechts): Beobachtete Windrichtung und Windgeschwindigkeit am 18.11.2004 um 12 UTC ([www.wetterzentrale.de](http://www.wetterzentrale.de))

Die Abbildung 125 unterstreicht noch einmal die abgeschirmte Lage der Stadt Graz von atlantischen Luftmassen durch den Alpenbogen. Ein Tief mit Kern über Südschweden liegt mit starkem Druckgradient über Mitteleuropa was sich im Großteil Österreichs mit lebhaftem Westwind äußert – nicht aber in der Steiermark und vor allem nicht in Graz.

2m Temperatur (°C) 20.11.2004 12 UTC (F+12)  
 Bodendruck (hPa)  
 Horizontal Wind Level 1



2m Temperatur (°C) 27.11.2004 12 UTC (F+12)  
 Bodendruck (hPa)  
 Horizontal Wind Level 1

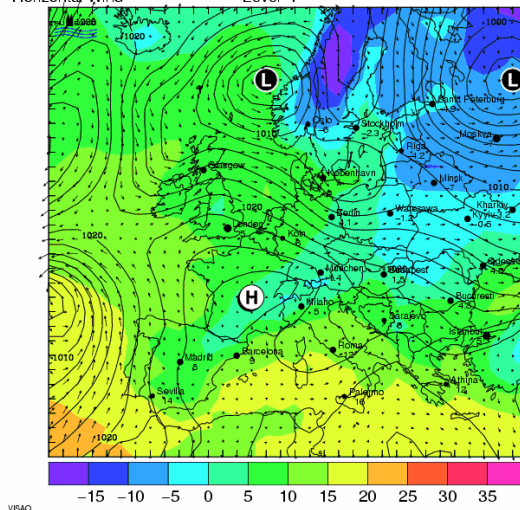


Abbildung 126 a/b: Wetterlage nach der Prognose des MM5-Modells am 20. und 27.11.2004.

Die sehr beständige Nordwest- bzw. Westanströmung in Episode 4 greift z.B. am 20.11.2004 auch im Grazer Becken durch – anders als z.B. am 27.11.2004.



#### 4.6 Monate geringer PM10 Belastung

Die beträchtlichen Feinstaubepisoden im Jänner, Februar und März 2004 werden durch die meist sehr ungünstigen Witterungsbedingungen in Graz hervorgerufen. Ende Februar und Ende März 2004 können jedoch höhere Windgeschwindigkeiten und teils ergiebige Schnee und Regenfälle die Feinstaubkonzentration dämpfen. Dies wird oft durch Tiefdrucksysteme im nördlichen Mittelmeer ausgelöst, da auf diese Weise ozeanische Luftmassen den Südrand der Alpen erreichen. „Rain- und Washout-Prozesse“ tragen in diesen Luftmassen konkret zur Abreicherung von Feinstaub bei. Ähnlich gestaltet sich auch der April mit häufigen Niederschlägen im Raum Graz. Von Anfang Mai bis Ende September sind durch günstige meteorologische Bedingungen (→ 4.1; 4.4) praktisch keine Überschreitungen des EU-Grenzwertes an den Grazer AQUELLA Messstellen zu nennen.

Im Oktober 2004 dominieren West und Südwestwetterlagen das Witterungsgeschehen, die mit ausgiebigen Regenfällen verbunden sind. Dabei korrelieren die Minima in der Feinstaubbelastung gut mit den niederschlagsreichen Zeiten, wobei sich an den sonnigen Tagen jedoch bereits einzelne Überschreitungen etablieren können. Nach einer sehr gering belasteten ersten Novemberhälfte mit häufigen Nordwinden leitet die Episode 4 eine Zeit hoher PM10 Belastung ein, die bis etwa Ende Dezember andauert.

#### 4.7 Zusammenfassung der meteorologischen Analyse

Die Grundvoraussetzungen für eine PM<sub>10</sub> 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 PM<sub>10</sub> 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) <sup>[xlvij]</sup> 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 <sup>[xlviii]</sup> 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<sub>x</sub>-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 30). 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 <sup>[xlvij]</sup> 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 30: 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

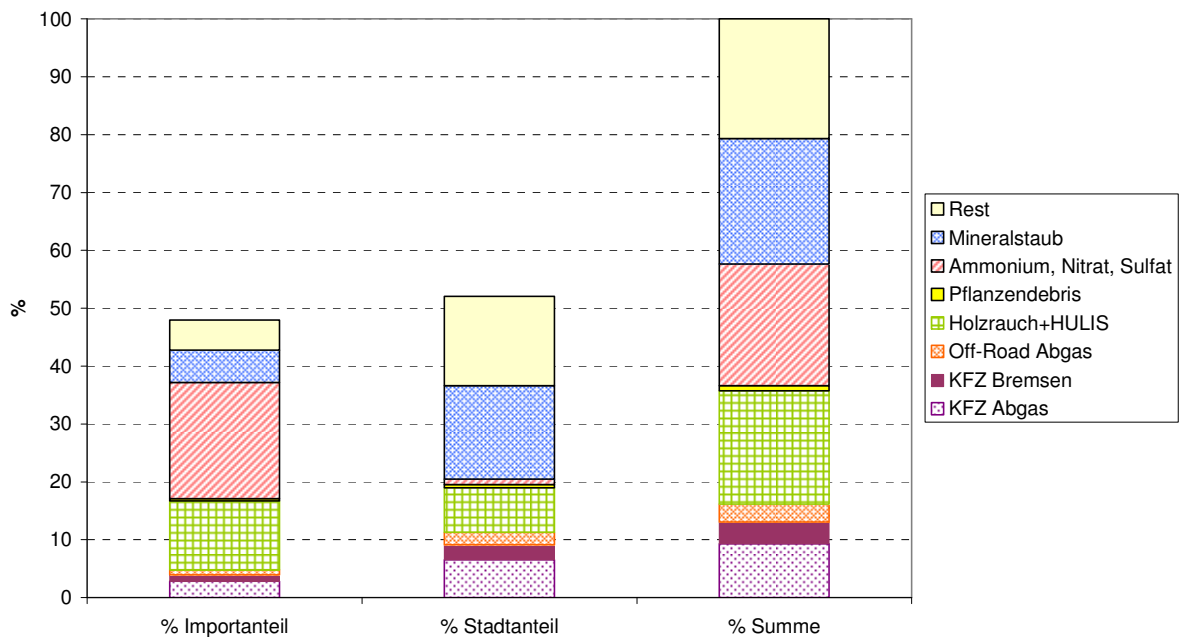


Abbildung 127: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).

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 127 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 128 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.

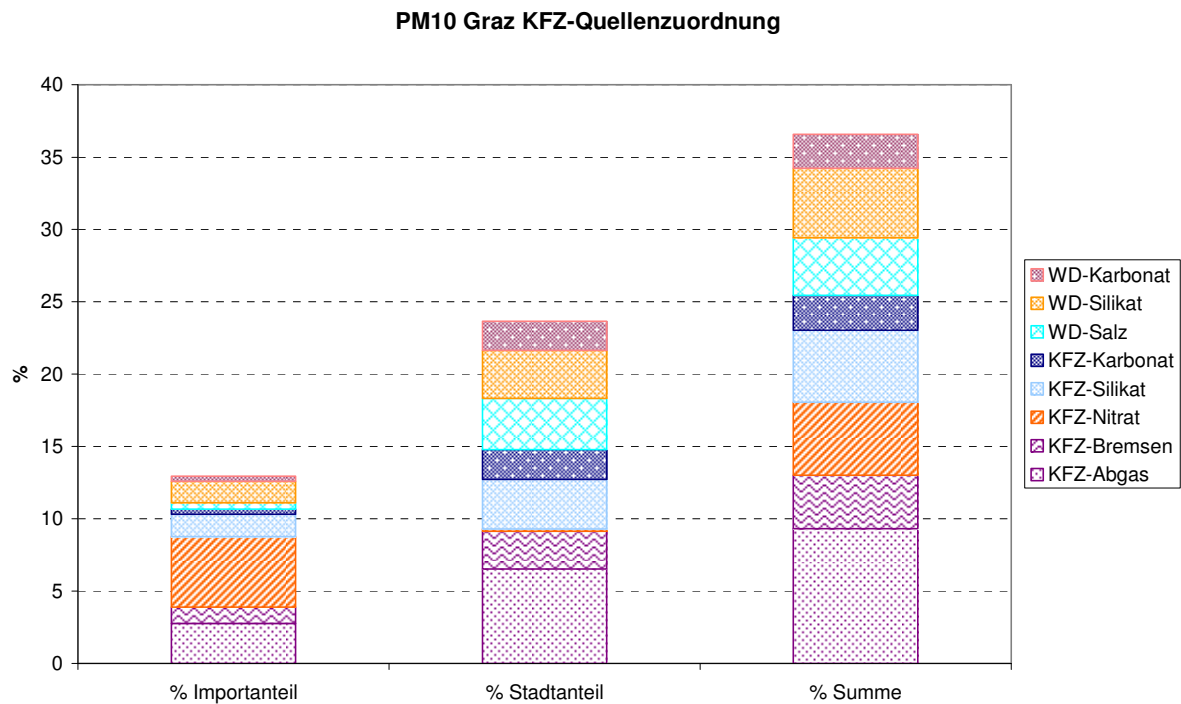


Abbildung 128: Aufteilung der durch direkte und indirekte Auswirkung des Kfz-Verkehrs entstehenden mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze). WD: Winterdienstanteile; Kfz: Anteile durch Kfz-Verkehr ohne Winterdienst

Es ist aus der Abbildung 128 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 über wiegend 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<sub>x</sub> Emissionen bei Neufahrzeugen.
- Unterstützung der EU Vorhaben bei der Reduktion von SO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> 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 Feinstaubs 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.

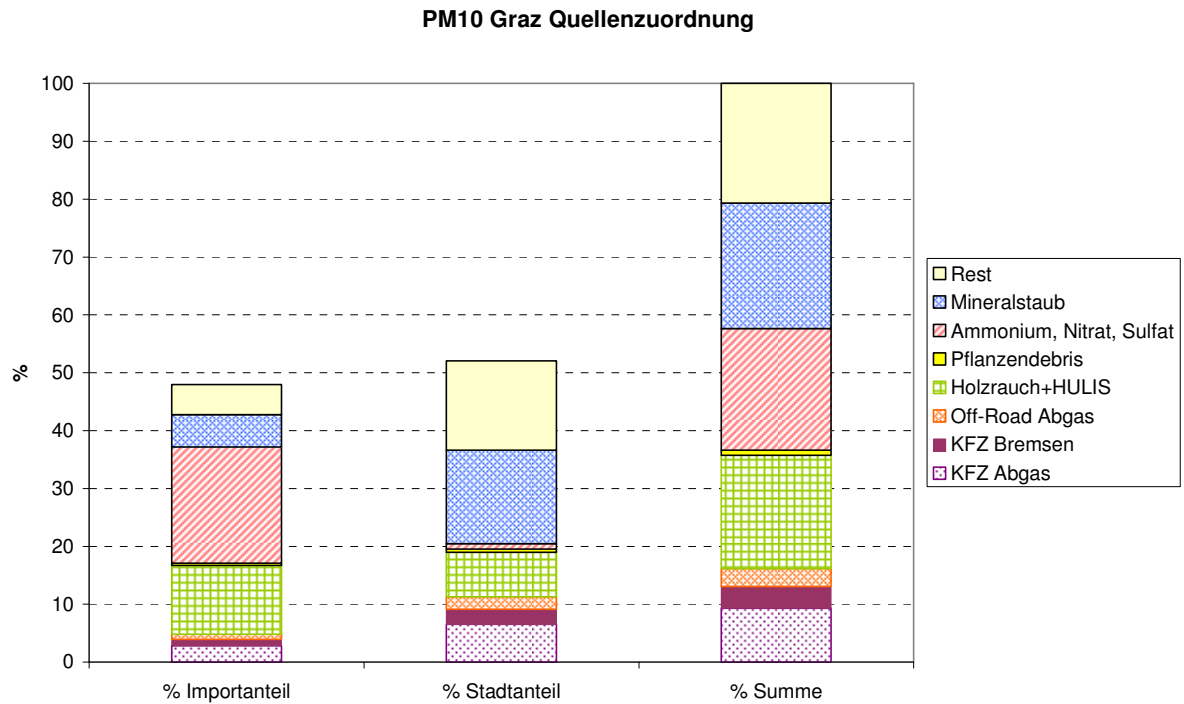


Abbildung 129: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).



## 7 Verzeichnisse

### 7.1 Verzeichnis der Abbildungen

Abbildung 1: Schematische Darstellung der Aktivitäten im CMB Modell. Durchgezogene Pfeile: AQUELLIS – Bereich; Gepunktete Pfeile: AQUELLA – Bereich.....	10
Abbildung 2: Aerosolquellenverteilung PM10 nach ARC in Österreich – unter Einbezug eines gemessenen Anteils von 35% sekundär anorganischen Komponenten.....	12
Abbildung 3: Lage der AQUELLA Steiermark – Messstellen .....	16
Abbildung 4: Messstelle Graz Don Bosco.....	16
Abbildung 5: Messstelle Graz Süd.....	17
Abbildung 6: Messstelle Bockberg.....	17
Abbildung 7: Aufteilung der Quarzfaserfilter .....	18
Abbildung 8: Segmentierung der Jänner-Proben .....	19
Abbildung 9a-l: PM10-Verlauf an den Grazer AQUELLA Messstellen und Probenpools. Rot umrandete Episoden wurden einzeln analysiert, blau und grün umrandete wurden jeweils in gemeinsamen Pools analysiert. ....	27
Abbildung 10: Elutriator – Gerät zur Herstellung von PM <sub>10</sub> -Proben (roter Pfeil: PM10-Sammeleinheiten) .....	36
Abbildung 11: PM10 Proben auf 47mm – Filtern aus Kehrstaubproben.....	37
Abbildung 12: Verlauf der PM10 Tagesmittelwerte an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd. Jan.2004-Dez.2004. ....	41
Abbildung 13: Verlauf der Tagesmittelwerte von PM10 im Mai 2004 an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd .....	42
Abbildung 14: Verlauf der Tagesmittelwerte von PM10 im Juli 2004 an den Messstellen Bockberg (Hintergrund), Don Bosco und Graz Süd .....	42
Abbildung 15: Zusammensetzung der Straßenstäube an Grazer Messstellen, geordnet nach Jahreszeiten.....	43
Abbildung 16: Zusammensetzung der Straßenstäube an Grazer Messstellen, geordnet nach Sammelorten.....	44
Abbildung 17: Schwermetalle in PM10 an Überschreitungstagen 2004 / Monatswerte an der Messstelle Graz Don Bosco .....	47
Abbildung 18: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Don Bosco.....	49
Abbildung 19: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Graz Süd .....	49
Abbildung 20: n-Alkane Monatsmittelwerte; Messstelle Bockberg .....	50
Abbildung 21: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Don Bosco	50
Abbildung 22: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Graz Süd...	51
Abbildung 23: Relative Darstellung – Vergleich der n-Alkane an der Messstelle Bockberg...	51
Abbildung 24: Vergleich der PAH an der Messstelle Don Bosco – 4 Monate.....	52
Abbildung 25: Vergleich der PAH an der Messstelle Graz-Süd – 4 Monate .....	52
Abbildung 26: Vergleich der PAH an der Messstelle Bockberg – 4 Monate .....	53
Abbildung 27: Mittelwerte der polaren Tracerkomponenten an Überschreitungstagen bzw. Perioden in Graz Don Bosco .....	53
Abbildung 28: Mittelwerte der polaren Tracerkomponenten an Überschreitungstagen bzw. Perioden in Graz Bockberg .....	54
Abbildung 29: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Don Bosco, Jan-Dez 2004.....	56
Abbildung 30: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Graz Süd, Jan-Dez 2004 .....	56
Abbildung 31: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10, Silizium und Aluminium an der Messstelle Bockberg, Jan-Dez 2004. ....	57
Abbildung 32: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von PM10 an den Grazer Messstellen Bockberg, Don Bosco, Graz Süd; Jan-Dez 2004.....	57

Abbildung 33: Zeitlicher Verlauf (Tagesmittelwerte) von silikatischem Staub an den Messstellen Bockberg, Don Bosco, Graz Süd; Jan-Dez 2004. ....	58
Abbildung 34: Zeitlicher Verlauf des relativen Anteils von silikatischem Material in PM10 an Grazer Messstellen, Zeitraum Jan-Dez 2004.....	59
Abbildung 35: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Don Bosco.....	60
Abbildung 36: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Graz Süd.....	60
Abbildung 37: Verlauf von EC und OC im Vergleich zu PM 10; TMW Jan-Dez 2004; Messstelle Bockberg.....	61
Abbildung 38: Mittelwerte der abgeleiteten Ergebnisse für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den AQUELLA-Messstellen in Graz.....	62
Abbildung 39: Quellenbeiträge für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den Messstellen Graz Don Bosco und Bockberg, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte an Don Bosco und Bockberg. ....	64
Abbildung 40: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco. (Ü1 – Ü25: Überschreitungen).....	65
Abbildung 41: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Graz Süd. Die fehlenden HULIS-Werte für November und Dezember wurden anhand der HULIS/Holzrauch Messdaten der Messstelle Bockberg rekonstruiert. ....	65
Abbildung 42: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Bockberg.....	66
Abbildung 43: Quellenanteile des „Urban Impact“ an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco (im Vergleich zu Bockberg).....	66
Abbildung 44: Verlauf von zusammengefassten Quellenanteilen (Holzrauch und sekundäre organische Stoffe; Kfz- und Off Road-Abgas; Sulfate und Nitrate; Mineralstaub; Streusalz) an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco. Ü1-Ü25: Überschreigungsperioden.....	67
Abbildung 45: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco. ....	70
Abbildung 46: Mittelwerte für die Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg.....	70
Abbildung 47: Mittelwerte für die Überschreitungstage der Monate(2004) für den „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte an Don Bosco und Bockberg.....	71
Abbildung 48: Mittelwerte für die Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd.....	71
Abbildung 49: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m <sup>3</sup> an der Messstelle Don Bosco, sowie relative Anteile (rechts im Bild).....	72
Abbildung 50: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m <sup>3</sup> an der Messstelle Graz Süd, sowie relative Anteile (rechts im Bild).....	73
Abbildung 51: Vergleich der PM10 Zusammensetzung an Wintertagen < 50 und > 50 µg/m <sup>3</sup> an der Messstelle Bockberg, sowie relative Anteile (rechts im Bild).....	73
Abbildung 52: Messstelle Don Bosco, Vergleich dreier Ergebnisse an Tagen sehr unterschiedlicher chemischen Zusammensetzung von PM10; relative Darstellung. ....	74
Abbildung 53: Makrotracer Signatur im Großraum Graz infolge der Osterfeuer 2004. Daten der Messstelle Graz Don Bosco - Vergleich Osterfeuer und sonstige Überschreitungstage im April 2004 (Ü 04/04).....	75
Abbildung 54: Auswirkung der Osterfeuer auf die regionale PM10-Zusammensetzung; Vergleich mit anderen Überschreitungstagen im April an den Messstellen Don Bosco, Graz Süd und Bockberg.....	75
Abbildung 55: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco.....	76
Abbildung 56: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Graz Süd.....	77
Abbildung 57: Vergleich der Quellenanteile im Jänner und Juli 2004 an der Messstelle Bockberg.....	77
Abbildung 58: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte CMB.....	79

Abbildung 59: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Don Bosco; Relativwerte CMB.....	80
Abbildung 60: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd; Absolutwerte CMB.....	80
Abbildung 61: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Graz Süd; Relativwerte CMB.....	81
Abbildung 62: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg; Absolutwerte CMB.....	81
Abbildung 63: Mittelwerte für Saison- Monate (2004) an der Messstelle Bockberg; Relativwerte CMB.....	82
Abbildung 64: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco CMB. ....	83
Abbildung 65: Relativanteile von Mineralstaub und Sekundäraerosol an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Don Bosco .....	83
Abbildung 66: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Graz Süd CMB.....	84
Abbildung 67: Quellenanteile an Überschreitungstagen im Jahr 2004 an der Messstelle Bockberg CMB. ....	84
Abbildung 68: Vergleich gemessener und berechneter Traceranteile für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.....	85
Abbildung 69: Ermittelte Quellenanteile an den Tracern für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.....	86
Abbildung 70: Vergleich gemessener und berechneter Traceranteile für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.....	86
Abbildung 71: Ermittelte Quellenanteile an den Tracern für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; CMB-Modell.....	87
Abbildung 72: Mittelwerte für Jänner 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte. ....	88
Abbildung 73: Mittelwerte für April 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte. ....	88
Abbildung 74: Mittelwerte für Juli 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.....	89
Abbildung 75: Mittelwerte für Oktober 2004 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte.....	89
Abbildung 76: Überschreigungsperiode 6.-12.1.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte. ....	90
Abbildung 77: Überschreigungsperiode 1.-7.2.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte. .....	91
Abbildung 78: Überschreitungstage 1.-5., 7.-20., 29.-31.3.04 an der Messstelle Don Bosco; Absolutwerte. ....	91
Abbildung 79: Verwitterungsprodukte unter Dolomit Splittkörnern – Im Hof der TU Wien, Dezember 2004.....	98
Abbildung 80: Verlauf von Mineralstaub und Sekundäraerosol (Sulfate und Nitrate) an der Messstelle Don Bosco, Überschreigungsepisoden 2004 .....	99
Abbildung 81: Vergleich der drei Städte – verkehrsnahen Messstellen (Wien Rinnböckstraße; Graz Don Bosco; Salzburg Rudolfsplatz), Überschreigungsepisoden 2004, Makrotracer- Quellendaten – Absolutwerte.....	100
Abbildung 82: Vergleich der drei Städte – verkehrsnahen Messstellen (Wien Rinnböckstraße; Graz Don Bosco; Salzburg Rudolfsplatz), Überschreigungsepisoden 2004, Makrotracer- Quellendaten – Relativwerte .....	100
Abbildung 83: Zeitraum 1.1-30.4.2004: Häufigkeit von Bränden in Europa.....	110
Abbildung 84: Niederschlagsmengen 2004 in Prozent des Mittelwerts der Klimaperiode (1961 – 1990), Quelle: Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik .....	111
Abbildung 85: PM10 Windrose mit relativer Häufigkeit der Windrichtung (Graz Universität) für die Wintermonate 2004 (Jan.-Apr. und Okt.-Dez.). Seehöhe der Station: 366m; Anemometerhöhe: 34m.....	114
Abbildung 86: Mittlere Windstärke der Wintermonate 2004 als Funktion der Windrichtung für Graz Universität aus den 7, 14 und 19 MOZ Beobachtungen.....	114

Abbildung 87: PM10 Windrose mit relativer Häufigkeit der Windrichtung (Graz Universität) für Tage mit PM10 Konzentrationen größer als 50 µg/m <sup>3</sup> an einer der drei AQUELLA Messstellen. ....	115
Abbildung 88 a-d: Modellierte PM10 Belastung in Europa während der Episode 6.-14.1.2004. ....	117
Abbildung 89: Episode 1 (6.-12.1.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz-Universität. ....	118
Abbildung 90 a-c: Chemische Analyse der Episode 1: ....	119
Abbildung 91: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit der Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 1. ....	120
Abbildung 92: Streudiagramm: PM10 Konzentration als Funktion der Windgeschwindigkeit. ....	121
Abbildung 93 a/b/c/d:.....	122
Abbildung 94 a-d: Rückwärtstrajektorien: für 8./9./10./11.1.2004 (jeweils 0 UTC).....	123
Abbildung 95: Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen und adiabatischen Temperaturdifferenzen in Episode 1 zwischen den Stationen.....	124
Abbildung 96: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre an ausgewählten Tagen mit den Stationen Graz-Mitte (350m), Schlossberg (450m), Hubertushöhe (530m), Graz-Platte (661m), Kalkleiten (710m) und Plabutsch (754m). (Daten: <a href="http://www.umwelt.steiermark.at">www.umwelt.steiermark.at</a> ) ....	125
Abbildung 97: Großwetterlage am 8.1.2004 um 0 UTC aus den Analysekarten des GFS-Modells: 500hPa Geopotential [gpdm] (schwarze Linien), Bodendruck [hPa] (weiß), relative Topographie H500-H1000 [gpdm] (Farbflächen) ( <a href="http://www.wetter3.de">www.wetter3.de</a> ). ....	126
Abbildung 98 a: Temperaturverteilung, Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 8.1.2004 um 12 UTC. ....	126
Abbildung 99 a: Wetterlage am 13. und 17.1.2004 ( <a href="http://www.eurad.uni-koeln.de">www.eurad.uni-koeln.de</a> ).....	127
Abbildung 100 a-f: Modellierte PM10 Belastung in Europa während der Episode 2.....	128
Abbildung 101: Episode 2 (1.-7.2.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz-Universität. ....	129
Abbildung 102: Chemische Analyse der Episode 2 (1.-7.2.2004). ....	129
Abbildung 103: PM10 Windrose für den Zeitraum 26.1.2004 – 7.2.2004 für die Messstelle Graz-Süd. Stationshöhe: 348m. Daten: <a href="http://www.umwelt.steiermark.at">www.umwelt.steiermark.at</a> (Halbstundenmittelwerte) ....	130
Abbildung 104: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit an den Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 2. ....	131
Abbildung 105 a-d: Rückwärtstrajektorien für 27. (12 UTC), 29. (12 UTC), 31.1.2004 (0 UTC) und 5.2.2004 (0 UTC).....	132
Abbildung 106: Zeitlicher Verlauf von Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen und adiabatischen Temperaturdifferenzen als Referenz in Episode 2 (1.-7.2.2004). ....	133
Abbildung 107: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre.....	133
Abbildung 108 a-d: Temperaturverteilung (Farbflächen), Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 27./30.1.2004 und 2./5.2.2004.....	134
Abbildung 109 (links): Modellierte PM10 Belastung am 11.4.2004 als maximaler 24-Stunden Mittelwert [µg/m <sup>3</sup> ] (EURAD-Modell). ....	135
Abbildung 110 (rechts): PM10 Konzentration, Windgeschwindigkeit und Windrichtung als Funktion der Zeit an der Station Graz-Süd. ....	135
Abbildung 111: Episode 3 (10.-11.4.2004): PM10 Zeitreihen mit Meteorologischen Parametern der Station Graz Universität. ....	135
Abbildung 112 (links): (Episode 10.-11.4.2004) Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen.....	136
Abbildung 113 (rechts): Chemische Analyse der Episode 3. ....	136

Abbildung 114: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre am 10. und 11.4.2004. .....	137
Abbildung 115 a / b: Temperaturverteilung, Bodendruck, Windrichtung u. Geschwindigkeit über Europa aus der 12-stunden Prognose des MM5-Modells für 10. und 11.4.2004 (12 UTC). ....	137
Abbildung 116 a-d: Modellerte PM10 Belastung in Europa während der Episode 4. ....	138
Abbildung 117: Episode 3 (16.-30.11.2004): PM10 Zeitreihen mit meteorologischen Parametern der Station Graz Universität. ....	139
Abbildung 118 a/b: Chemische Analyse der Episode 4-1 (16.-19. und 22.-23.11.2004) und der Episode 4-2 (25.-30.11.2004).....	139
Abbildung 119 a/b: Feinstaub-Windrosen für den Zeitraum 16.11.2004 (0 Uhr) bis 1.12.2004 (0 Uhr) der Messstelle Graz-Süd (links) und Bockberg (rechts). ....	140
Abbildung 120: a/b: Windgeschwindigkeit, Windrichtung, PM10 Konzentration (Graz Süd) und Schwebstaubkonzentration (Bockberg) als Funktion der Zeit der Stationen Graz-Süd (a) und Bockberg (b) in Episode 4. Daten: <a href="http://www.umwelt.steiermark.at">www.umwelt.steiermark.at</a> (Halbstundenmittelwerte) .....	141
Abbildung 121 a-f: Rückwärtstrajektorien für die Episode 4 .....	142
Abbildung 122: Zeitlicher Verlauf der Temperaturdifferenzen zwischen ausgewählten Stationen in der Episode 4. ....	143
Abbildung 123: Thermische Schichtung der bodennahen Atmosphäre am 24. und 27.11.2004. ....	143
Abbildung 124 (links): Wetterlage nach der Prognose des MM5-Modells am 18.11.2004. ....	144
Abbildung 125 (rechts): Beobachtete Windrichtung und Windgeschwindigkeit am 18.11.2004 um 12 UTC ( <a href="http://www.wetterzentrale.de">www.wetterzentrale.de</a> ).....	144
Abbildung 126 a/b: Wetterlage nach der Prognose des MM5-Modells am 20. und 27.11.2004. .....	144
Abbildung 127: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).....	148
Abbildung 128: 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	149
Abbildung 129: Aufteilung der mittleren PM10 Konzentrationen an Überschreitungstagen 2004 an den verkehrsnahen Messstellen in Graz in Stadt- und Importanteile (Import über die Stadtgrenze).....	152

## 7.2 Verzeichnis der Tabellen

Tabelle 1: „Haupt-Quellen“ und Unterteilungen, deren Unterscheidungsmöglichkeit in AQUELLIS untersucht wird.....	12
Tabelle 2: Tracerkomponenten in AQUELLA.....	13
Tabelle 3: Wichtige Tracer im CMB Modell („unique“ und Haupt-Tracer).....	14
Tabelle 4: Liste der gepoolten und nicht gepoolten Analysen .....	20
Tabelle 5: Liste der analysierten Pools (Rote Schrift: Überschreigungsperioden, schwarze Schrift: Perioden ohne Grenzwertüberschreitung an der Messstelle Don Bosco) .....	21
Tabelle 6: Nachweisgrenzen der analysierten Komponenten .....	33
Tabelle 7: Makrotracer und abgeleitete Quellen im Makrotracer-Modell .....	38
Tabelle 8: Non-Exhaust PM10 Emissionen (Einfache Methodik) und Vergleich mit typischen Abgas-Emissionsraten von Diesel-Fahrzeugen (aus <sup>[xiv]</sup> ). ....	38
Tabelle 9: Mittelwert von EC- und OC-Konzentrationswerte im Kaisermühlentunnel – Außenluft bereinigte Werte (Limbeck et al.2006) .....	39
Tabelle 10: Vergleich von Umrechnungsfaktoren von Levoglucosan auf Holzrauch-OC.....	39

Tabelle 11: Probenahme von Straßenstäuben neben den Messstellen .....	44
Tabelle 12: Mittelwerte der Analysenergebnisse für die Überschreitungstage im Jahr 2004 an den Messstellen Don Bosco und Bockberg, sowie der „Urban Impact“, gebildet aus der Differenz der jeweiligen Analysenwerte am Don Bosco und Bockberg. $OM=OC*1,7$ ; Silikate= $Si*2,7$ ; Karbonate= $Ca*2,5$ .....	45
Tabelle 13: Konzentrationswerte in von Schwermetallen in Graz und Wien 2004 (diese Arbeit), Graz Süd 2000/2001 und Wien AKH 1999/2000 [x] und in München ca. 20 Jahre davor [] (als Vergleich mit früherer, höherer Metallbelastung).....	47
Tabelle 14: Konzentrationswerte von Schwermetallen in Graz 2004 – AQUELLA – Messstellen; Messperiodenmittel bzw. JMW; bei Don Bosco Winter- und Sommerhalbjahr; Winter/Sommer – Verhältnis.....	48
Tabelle 15: Monatsmittel des Silikatanteils ( $Si*2,7$ ) in % von der PM10-Konzentration:.....	58
Tabelle 16: Relative Anteile von Quellen an Überschreitungstagen an den Messstellen Don Bosco und Bockberg und im „Urban Impact“ – Mittel über 2004 .....	62
Tabelle 17: Relative Quellenanteile an der Messstelle Don Bosco an Überschreitungsepisoden – Makrotracer-Modell.....	68
Tabelle 18: Monate mit Überschreitungstagen im Jahr 2004 – Graz Don Bosco; Relative Anteile von PM10 an der Hintergrundmessstelle und im „Urban Impact“ im Vergleich zu PM10 Werten an Überschreitungstagen an der Messstelle Don Bosco .....	69
Tabelle 19a-c: Vergleichsdaten von Makrotracer und CMB Modellergebnissen für AQUELLA-Ereignisse in Graz; Angaben in % von PM10 .....	92
Tabelle 20: Relativer Beitrag (%) von „Biomasse Rauch“ und „Plant Debris“ zu Organischem Material (OM) in PM2.5 Proben. 2-Jahres Durchschnitt für Sommer und Winter Quartale. Daten von Puxbaum et al. [] .....	95
Tabelle 21: Relative Anteile von Quellen an Überschreitungstagen an der Messstelle Graz Don Bosco, Wien Rinnböckstraße und Vergleich mit Daten von anderen Orten – Jahresmittel. Graz und Wien: Angaben für Überschreitungstage und für „JMW“ aus Makrotracer-Modell .....	96
Tabelle 22: Vergleich der PM10 Werte an Überschreitungstagen an den Messstellen Graz Don Bosco, Graz Süd mit Vorbelastungswerten am Bockberg. Epi Nr.: Episode Nr.; N Tage: Zahl der Tage im Pool; DB: Don Bosco; GS: Graz Süd; BB: Bockberg; Charakteristik: Haupt-Quellen in den Stadtstationen; AS: Ammoniumsalze; H: Holzrauch; Min: Mineralstaub; NaCl: Streusalz-Staub; G: Gemischte Quellen .....	101
Tabelle 23: Quellenanteile an der Hintergrundmessstelle Bockberg; Makrotracer-Ergebnisse; Mittel der Überschreitungsepisoden .....	102
Tabelle 24: PM10 Konzentration an der Hintergrundmessstelle im Verhältnis zur beobachteten Konzentration an den verkehrsnahen Messstelle und „Urban Impact“ an der verkehrsnahen Messstelle (Daten für Überschreitungstage an den Rezeptormessstellen). .....	103
Tabelle 25: „Belastungsmessstellen“ und urbane Hintergrundmessstelle im Projekt AQUELLA – Graz .....	104
Tabelle 26: Hauptquellenanteile an der AQUELLA-Messstelle Graz Don Bosco an Überschreitungstagen (Graz, 2004). Local Impact: Durch Differenzbildung zwischen den Daten der verkehrsnahen und der Hintergrundmessstelle erhalten. ....	105
Tabelle 27: Wetterlagenklassifikation für Europa (Quelle: ZAMG Wien) .....	109
Tabelle 28: Darstellung der Mittleren PM10 Konzentrationen der Wintermonate 2004 als Referenz zu Abbildung 85 und Abbildung 87. Sehr hoch liegt die Anzahl der Tagesmittelwerte über dem EU-Grenzwert an der Messstelle Don Bosco.....	115
Tabelle 29: Höhenunterschied und trockenadiabatische Temperaturdifferenz:.....	125
Tabelle 30: Abgeleitete Anteile für Import (über die Stadtgrenze) und Stadtanteile für PM10 an Überschreitungstagen in % der Immissionsbelastung in Graz (verkehrsnahen Einwirkung) .....	148
Tabelle 31: Abkürzungen der Substanznamen .....	159

## Verzeichnis der Abkürzungen:

Tabelle 31: 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)fluoranthren
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

## 8 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 Friedlander S.K., 1973. Chemical element balances and identification of air pollution sources. *Environ.Sci.Technol.* 7, 235-240.
- iii Gordon G.E., 1980. Receptor models. *Environ.Sci.Technol.* 14, 792-800.
- iv Cooper J.A., Watson J.G., 1980. Receptor oriented methods of air particulate source apportionment. *J.Air Pollut. Contr.Assoc.* 30, 1116-1125.
- v Wopenka B., 1982. Kombination von mikrochemischen und faktorenanalytischen Methoden zur Charakterisierung von atmosphärischen Aerosolmissionen. Dissertation, TU Wien.
- vi Puxbaum H., Wopenka B., 1984. Die Anwendung von Rezeptormodellen zur Aerosolquellenanalyse. Ein Review. *Fresenius Zeitschrift für Analytische Chemie.*
- vii Schauer J.J., Rogge W.F., Hildemann L.M., Mazurek M.A., Cass G.R., Simoneit B.R.T., 1996. Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers. *Atmos.Environ.* 30, 3837-3855
- viii Zheng M., Cass G.R., Schauer J.J., Edgerton E.S., 2002. Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in the Southeastern United States using solvent-extractable organic compounds as tracers. *Environ.Sci.Technol.* 36, 2361-2371
- ix Winiwarter W., Trenker C., Höflinger W., 2001. Österreichische Emissionsinventur für Staub; Studie im Auftrag des UBA, ARC-S-0151.
- x Puxbaum H., Gomiscek B., Kalina M., Bauer H., Salam A., Stopper S., Preinig O., Hauck H., 2004. A dual site study of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> aerosol chemistry in the larger region of Vienna, Austria. *Atmos.Environ.* 38, 3949-3958.
- xi Kunit M., Puxbaum H. (1996) Enzymatic determination of the cellulose content of atmospheric aerosols. *Atmos.Environ.* 30, 1233-1236.
- xii Limbeck A., Rendl J., Puxbaum H., 2003. ETAAS determination of palladium in environmental samples with on-line pre-concentration and matrix-separation. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 18, 161 - 165.
- xiii Bauer H., Kasper-Giebl A., Löflund M., Giebl H., Hitzemberger R., Zibuschka F., Puxbaum H., 2002. The contribution of bacteria and fungal spores to the organic carbon content of cloud water, precipitation and aerosols. *Atmos.Res.* 64, 109-119.
- xiv Emission Inventory Guidebook 2003, Road vehicle tyre & break wear, & road surface wear. Activities 070700-070800.
- xv Düring I., Lohmeyer A., 2004. Modellierung nicht motorbedingter PM<sub>10</sub> Emissionen von Straßen. KRdL-Expertenforum Staub und Staubinhaltsstoffe 10./11.11.04 Düsseldorf
- xvi Lough G.C., Schauer J.J., Park J.-S., Shafer M.M., Deminter J.T., Weinstein J.P., 2005. Emissions of metals associated with motor vehicle roadways. *Environ. Sci. Technol.* 39, 826-836.
- xvii Limbeck A., Handler M., Puls C., Puxbaum H., 2006. Bestimmung der Partikel-Emissionen (PM<sub>10</sub>) von Kraftfahrzeugen. Bundesministerium für Verkehr, Innovation und Technologie, Straßenforschung Heft 558.



- 
- xxviii Fine P.M., Cass G.R., Simoneit B.R.T., 2001. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from Fireplace Combustion of Woods Grown in the Northeastern United States. *Environmental Science and Technology* 35, 2665-2675.
- xix Fine P.M., Cass G.R., Simoneit B.R.T., 2002. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Woods Grown in the Southern United States. *Environmental Science and Technology* 36, 1442-1451.
- xx Fine P.M., Cass G.R., Simoneit B.R.T., 2004. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Wood Types Grown in the Midwestern and Western United States. *Environmental Engineering Science* 21, 387-409.
- xxi Schmidl C., 2005. Diplomarbeit, TU Wien.
- xxii Pucher E., Sekanina A., Rüdiger H., 2006. *Unsere Luft 1980-2015*. 6. Auflage. ÖAMTC-Akademie Wien.
- xxiii Puxbaum H., Tenze-Kunit M. (2003) Size distribution and seasonal variation of atmospheric cellulose. *Atmospheric Environment* 37, 3693-3699.
- xxiv Limbeck A., Rendl J., Heimbürger G., Kranabetter A., Puxbaum H., 2004. Seasonal variation of palladium, elemental carbon and aerosol mass concentrations in airborne particulate matter. *Atmospheric Environment* 38, 1979-1987.
- xxv Bae M.-S., Demerjian, K.L., Schwab J.J., 2006. Seasonal estimation of organic mass to organic carbon in PM<sub>2.5</sub> at rural and urban locations in New York State. *Atmospheric Environment* 40, 7467-7479.
- xxvi Steiger M., 1991. Die anthropogenen und natürlichen Quellen urbaner und maritimer Aerosole charakterisiert und quantifiziert durch Multielementanalyse und chemische Rezeptormodelle. Dissertation Universität Hamburg. Schriftenreihe Angewandte Analytik des Inst. F. Angew. und org. Analytik der Universität Hamburg
- xxvii Anderl M., Poupa S., Ritter M., 2003. Bundesländer Luftschadstoff-Inventur. Umweltbundesamt Wien, Berichte BE-185.
- xxviii Stelson A.W., Seinfeld J.H., 1982, Relative humidity and temperature dependence of the ammonium nitrate dissociation constant. *Atmospheric Environment* 16, 983-992.
- xxix 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.
- xxx 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/>.
- xxxi 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.
- xxxii 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.

- 
- 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.
- xxxiii 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.
- xxxiv 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.
- xxxv Liu W., Wang Y., Russell A., Edgerton E.S., 2005. Atmospheric aerosol over two urban-rural pairs in the southeastern United States: Chemical composition and possible sources. *Atmospheric Environment* 39, 4453-4470.
- xxxvi Ward T.J., Smith G.C., 2005. The 200/2001 Missoula Valley PM<sub>2.5</sub> chemical mass balance study, including the 2000 wildfire season – seasonal source apportionment. *Atmospheric Environment* 39, 709-717.
- xxxvii Sapkota et al., 2005. *Environmental Science and Technology* 39, 24-32.
- xxxviii Jimenez J., Wu C-F., Claiborn C., Gould T., Simpson C.D., Larson T., Sally Liu L.-J., 2005. Agricultural burning smoke in eastern Washington-part I: Atmospheric characterization. *Atmospheric Environment*, Article in press.
- xxxix Boman C.B., Forsberg A.A., Järnholm B.G., 2003. Adverse health effects from ambient air pollution in relation to residential wood combustion in modern society. *Scand. J. Work Environ. Health*, 29, 251-260.
- xl Larsson E.H., Johansson C., Johansson L., Swietlicki E., Brorström-Lunden E., 2006. Is levoglucosan a suitable quantitative tracer for wood burning? – Comparison with receptor modelling on trace elements in Lycksele, Sweden. Submitted manuscript.
- xli 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.
- xlii Puxbaum H., Caseiro A., Sánchez-Ochoa A., Kasper-Giebl A., Claeys M., Gelencsér A., Legrand M., Preunkert S., Pio C., Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. Submitted to *J. Geophys. Res.*
- xliii Handler M., Puls C., Zbiral J., Marr I., Puxbaum H., Limbeck A., Size and composition of particulate emissions from motor vehicles in the Kaisermühlen-Tunnel, Vienna. Submitted paper
- xliv Draxler, R.R. and Rolph, G.D., 2003. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

---

xlv Rolph, G.D., 2003. Real-time Environmental Applications and Display system (READY) Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

xlvi Anderl M. et al., 2006. Emissionstrends 1990-2004. Umweltbundesamt Report REP-0037

xlvii Pucher E., Sekanina A., Rüdiger H., 2006. Unsere Luft 1980-2015. 6. Auflage. ÖAMTC-Akademie Wien.

Online:

- Web Fire Mapper: <http://maps.geog.umd.edu/default.asp>
- Rückwärtstrajektorien: [www.arl.noaa.gov/ready.html](http://www.arl.noaa.gov/ready.html)
- Umweltbundesamt: [www.umweltbundesamt.at](http://www.umweltbundesamt.at)
- Land Steiermark: [www.umwelt.steiermark.at](http://www.umwelt.steiermark.at)
- Zentralanstalt f. Meteorologie u. Geodynamik: [www.zamg.ac.at](http://www.zamg.ac.at)
- Rheinisches Institut für Umweltforschung: [www.eurad.uni-koeln.de](http://www.eurad.uni-koeln.de)
- [www.wetterzentrale.de](http://www.wetterzentrale.de)