

# Bestimmung des Beitrags der Holzfeuerung zum PM<sub>10</sub>-Feinstaub

 an zwei Messstationen in Baden-Württemberg von Oktober 2008 bis Dezember 2009





# Bestimmung des Beitrags der Holzfeuerung zum PM<sub>10</sub>-Feinstaub

 an zwei Messstationen in Baden-Württemberg von Oktober 2008 bis Dezember 2009



**HERAUSGEBER** LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg  
76231 Karlsruhe, Postfach 100163, [www.lubw.baden-wuerttemberg.de](http://www.lubw.baden-wuerttemberg.de)

**BEARBEITUNG** LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg  
Postfach 100163, 76231 Karlsruhe, [www.lubw.baden-wuerttemberg.de](http://www.lubw.baden-wuerttemberg.de)  
[poststelle@lubw.bwl.de](mailto:poststelle@lubw.bwl.de)

Referat 64 – Labor für Luft- und Sondermessungen

**DOKUMENTATION-NUMMER** 64-01 /2010

**STAND** Dezember 2010

**BERICHTSUMFANG** 48 Seiten



Berichte und Anlagen dürfen nur unverändert weitergegeben werden. Eine auszugsweise Veröffentlichung ist ohne schriftliche Genehmigung der LUBW nicht gestattet.

<b>ZUSAMMENFASSUNG</b>	<b>7</b>
<b>1 EINLEITUNG</b>	<b>8</b>
<b>2 BESCHREIBUNGEN DER MESSPUNKTE</b>	<b>9</b>
2.1 Messstation Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße (Tü-Unt)	11
2.2 Messstation Tübingen Mühlstraße (Tü-M)	12
2.3 Messstation Reutlingen Lederstraße Ost (Rt-L)	13
2.4 Charakterisierung der Messpunkte	14
<b>3 MESSUMFANG, PROBENAHME UND ANALYTISCHE BESTIMMUNGSVERFAHREN</b>	<b>15</b>
3.1 Messumfang	15
3.2 Probenahme	15
3.2.1 PM10-Feinstaub	15
3.2.2 Filterwägung (Gravimetrie)	15
3.3 Analytische Bestimmung der Feinstaubinhaltsstoffe	16
3.3.1 Kohlenstoff	16
3.3.1.1 Elementarer Kohlenstoff (EC) und organisch gebundener Kohlenstoff (OC)	16
3.3.1.2 <sup>14</sup> C-Isotope in organisch gebundenem Kohlenstoff (OC)	16
3.3.2 Ammonium, Nitrat, Sulfat und Chlorid	16
3.3.3 Natrium, Kalium, Calcium, Magnesium, Aluminium, Eisen, Zink, Mangan, Blei, Cadmium, Nickel, Arsen, Antimon	17
3.3.4 Anhydrozucker: Threitol/Erythritol, Levoglukosan, L-(-)-Arabinitol, Mannosan, Galaktosan; Zucker: D-(+)-Mannose, D-(+)-Galaktose, D-(-)Fruktose	17
3.3.5 Benzo(a)pyren und Reten	17
3.4 Gewichtung der untersuchten Parameter	17
<b>4 METEOROLOGISCHE SITUATION</b>	<b>19</b>
4.1 Wind	19
4.2 Temperatur	20
4.3 Niederschlag	22
<b>5 ERGEBNISSE UND DISKUSSION DER IMMISSIONSMESSUNGEN</b>	<b>23</b>
5.1 Vergleich der Immissionsituation im Winter 08/09 und im Sommer 09	23
5.1.1 Betrachtung der Wintermonate 2008/2009	24
5.1.2 Betrachtung der Sommermonate 2009	27
5.2 Eignung der Holztracersubstanzen und Anteilsberechnung des PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung	29
5.2.1 Kalium als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung	31
5.2.2 Levoglukosan als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung	33
5.2.3 Reten und B(a)P als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung	34
5.2.4 Berechnung des PM10-Anteils aus der Holzfeuerung aus elementarem Kohlenstoff und der organischen Masse im PM10-Feinstaub	36



## INHALTSVERZEICHNIS

5.3	Betrachtung der errechneten Anteile an PM10-Feinstaub aus der Holzfeuerung über die Tracer Kalium, Levoglukosan, Benzo(a)pyren und organischer Kohlenstoff	39
-----	--	----

---

<b>6</b>	<b>DER EINFLUSS VON STREUSALZ AUF DIE PM10-KONZENTRATION</b>	<b>44</b>
----------	--	-----------

---

<b>7</b>	<b>FAZIT UND AUSBLICK</b>	<b>46</b>
----------	---------------------------	-----------

---

	<b>LITERATURVERZEICHNIS</b>	<b>48</b>
--	-----------------------------	-----------

---

# Zusammenfassung

Bei der Bewertung von erhöhten PM<sub>10</sub>-Feinstaubkonzentrationen in der Luft wird ein Fokus auf den Verkehr als Quelle gelegt. Da Tage mit PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über dem Tagesgrenzwert von 50 µg/m<sup>3</sup> meist in den Wintermonaten auftreten, liegt es nahe, die Ursache auch im Bereich von kleinen und mittleren Feuerungsanlagen und hier bei in Privathaushalten weit verbreiteten Holzfeuerungsanlagen zu suchen.

Zur Überwachung der Luftqualität betreibt Baden-Württemberg landesweite Messnetze. Das automatische Luftmessnetz überwacht kontinuierlich die Konzentrationen des PM<sub>10</sub>-Feinstaubes und anderer Luftverunreinigungen. Die Spotmessstellen haben die Aufgabe, verkehrsbedingte Belastungsschwerpunkte in den Städten zu dokumentieren.

Für dieses Messprojekt wurden zwei Spotmessstellen ausgewählt, die ähnlich stark vom Verkehr beeinflusst sind, jedoch unterschiedliche PM<sub>10</sub>-Konzentrationen aufweisen. Eine Messstelle liegt hierbei in eher ländlicher Umgebung, die andere Messstelle liegt in der Stadt.

Während der etwa einjährigen Messkampagne wurden die PM<sub>10</sub>-Konzentrationen sowie ausgewählte organische und anorganische Inhaltsstoffe an den Messpunkten analysiert.

Mit Hilfe spezieller Leitsubstanzen, die als Inhaltsstoffe im Feinstaub vorliegen, wurde abgeleitet, dass an den Messstellen der Anteil der Holzfeuerung am PM<sub>10</sub>-Feinstaub in der kalten Jahreszeit bis etwa 30 % betragen kann. Die prinzipielle Vorgehensweise zur Berechnung und Beurteilung der Messergebnisse wurde aus der Literatur entnommen.

Auch der Anteil von Natriumchlorid an PM<sub>10</sub>-Feinstaub ist in den Blick geraten. Im Winter wird es als Streusalz auf die Straßen ausgebracht. Durch den Verkehr aufgewirbelt, wirkt sich dies auf die PM<sub>10</sub>-Feinstaubkonzentrationen aus und trägt ebenfalls zur Überschreitung des zulässigen Tagesmittelwertes bei.

# 1 Einleitung

An zwei Messpunkten in Baden-Württemberg mit Grenzwertüberschreitungen des Tagesmittelwertes für PM<sub>10</sub>-Feinstaub werden neben dem Kraftfahrzeugverkehr auch die Partikelemissionen aus Holzfeuerungsanlagen in die Ursachenanalyse einbezogen. Deren Anteil kann mit den bisher eingesetzten Analyseverfahren für Inhaltsstoffe des Feinstaubes aber nicht bestimmt werden. Spezielle Tracer werden benötigt, die der Holzverbrennung zuzuordnen sind.

Um den Anteil der Emissionen aus Holzfeuerungsanlagen am PM<sub>10</sub>-Feinstaub bestimmen zu können, wurden im Jahre 2008 zunächst Analyseverfahren für die Tracer Levoglukosan und Reten entwickelt:

- Bei der Verbrennung von Holz entstehen durch Pyrolyse aus Zellulose und Hemizellulose Anhydrozuckerbindungen. Neben der Hauptkomponente Levoglukosan bilden sich Mannosan und Galaktosan sowie weitere Zucker, die jedoch in weit geringeren Konzentrationen vorliegen.
- Es können ebenfalls einige PAK identifiziert werden, die auch oder speziell bei Holzfeuerung entstehen. Eine Komponente ist das 7-Isopropyl-1-methylphenanthren, das unter dem Trivialnamen Reten bekannt ist. Reten entsteht ausschließlich bei der Feuerung von Nadelhölzern und dient deshalb als Tracer für die Verbrennung solcher Hölzer.  
B(a)P wurde ebenfalls in das Messprogramm einbezogen.

Neben den organischen Tracern werden auch anorganische Tracer als aussagekräftig angesehen. Hauptsächlich der Kaliumgehalt im PM<sub>10</sub>-Feinstaub wird hierfür herangezogen.

Andere Bestandteile des PM<sub>10</sub>-Feinstaubes, wie der Gehalt an organischem Kohlenstoff (OC) oder elementarem Kohlenstoff (EC), können für die Betrachtung der Anteile ebenfalls dienlich sein.

Die in der 39. BImSchV festgelegten Maximal-Immissionswerte für den Jahres- und die Tagesmittelwerte beziehen sich ausschließlich auf die Masse an PM<sub>10</sub>-Feinstaub [39. BImSchV, 2010]. Es wird keine Differenzierung der Inhaltsstoffe vorgenommen. Für die Festlegung des Beitrags von Holzfeuerungen am PM<sub>10</sub>-Feinstaub sind Kenntnisse über die Zusammensetzung und den Massenanteil nötig.

## 2 Beschreibungen der Messpunkte

Aus dem landesweiten Messnetz zur Überwachung der Luftqualität in Baden-Württemberg wurden zwei Messpunkte ausgewählt, die offensichtlich im Einflussbereich von Holzfeuerungsanlagen liegen

Der Messpunkt Tübingen-Unterjesingen ist in Bezug auf die PM10-Konzentration neben Stuttgart-Neckartor eine relativ hochbelastete Spotmessstelle. Es handelt sich um eine Messstation in der Jesinger Hauptstraße an der B28, die verkehrsbeeinflusst ist und in ländlicher Umgebung liegt.

### ■ Messpunkt Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße (Tü-Unt)

Zum Vergleich wurde der in der Nähe liegende Messpunkt Tübingen Mühlstraße ausgewählt. In Tabelle 2.4.-1 sind die Daten zur Verkehrsbelastung und PM10-Feinstaubkonzentration an den ausgewählten Messstellen aufgeführt. Bei etwa einem Drittel Kfz-, aber um den Faktor vier höheren Lkw-Verkehrsaufkommen, sind in 2008 und 2009 die PM10-Feinstaubkonzentrationen geringer als an der Messstation in Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße.

### ■ Messpunkt Tübingen Mühlstraße (Tü-M) (bis 24. Juni 2009)

Mitte 2009 musste am Messpunkt Tübingen Mühlstraße wegen Baumaßnahmen die Probenahme eingestellt werden. Daher wurde als Ersatz an der B312 der Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost festgelegt.

### ■ Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost (Rt-L) (ab 08. Juli 2009)

Der Messzeitraum erstreckte sich von September 2008 bis Ende Dezember 2009.

Es handelt sich bei den Messpunkten um vom Verkehr beeinflusste Standorte.

An allen Messstationen wurde ein Staubprobenahmegerät Digitel DHA-80 eingesetzt. Zur Bestimmung des Mittelwerts an PM10-Feinstaub und dessen Inhaltsstoffen wurde täglich ein neuer Quarzfaserfilter eingesetzt.

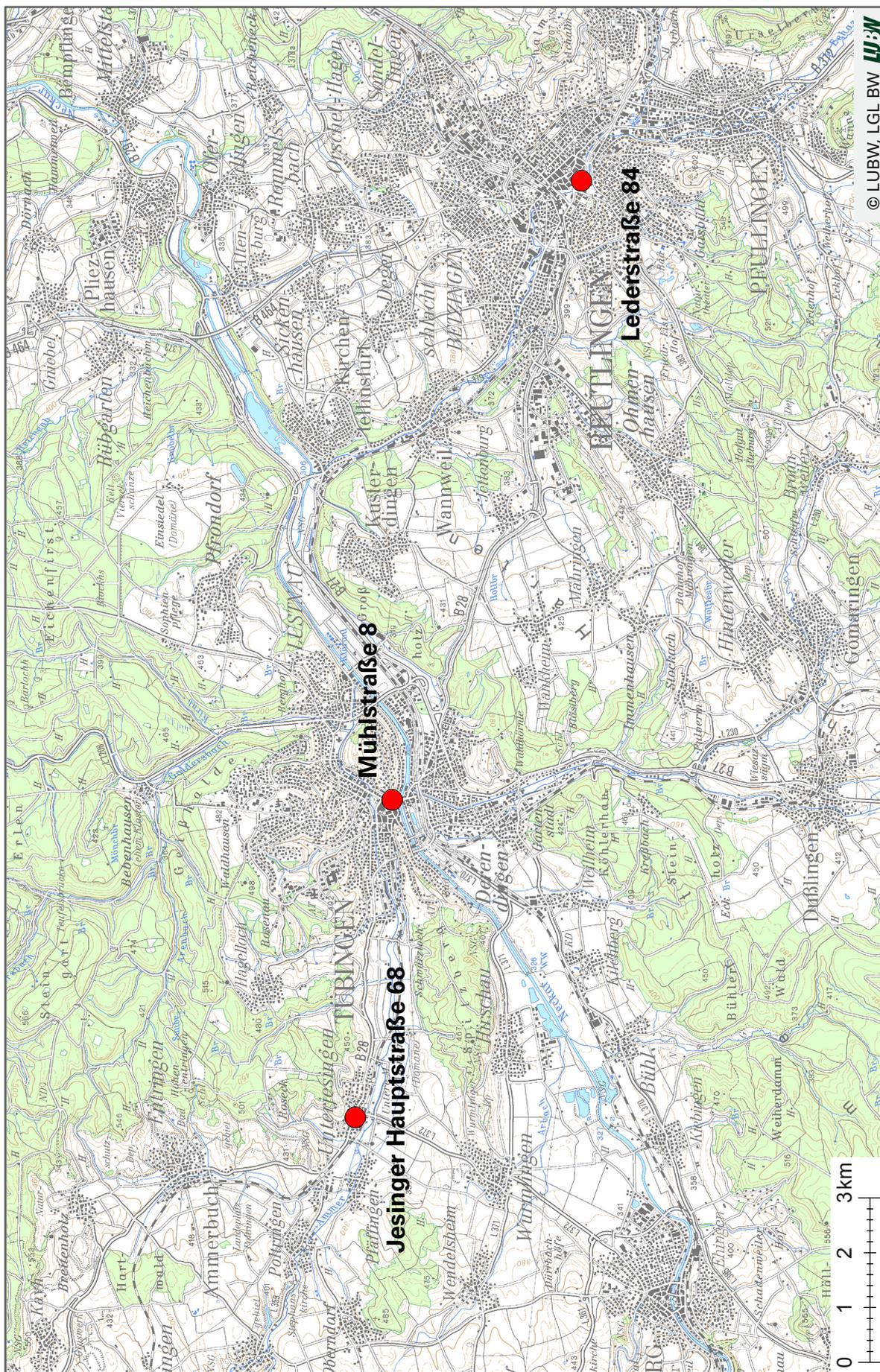


Abbildung 2-1: Lage der Messstationen im Raum Tübingen und Reutlingen



## 2.2 Messstation Tübingen Mühlstraße (Tü-M)

Stationsstandort seit Januar 2006

Geografische Position

Rechtswert 3504348

Spottmessstation von PM10 G

Hochwert 5375846

Höhe 344 m

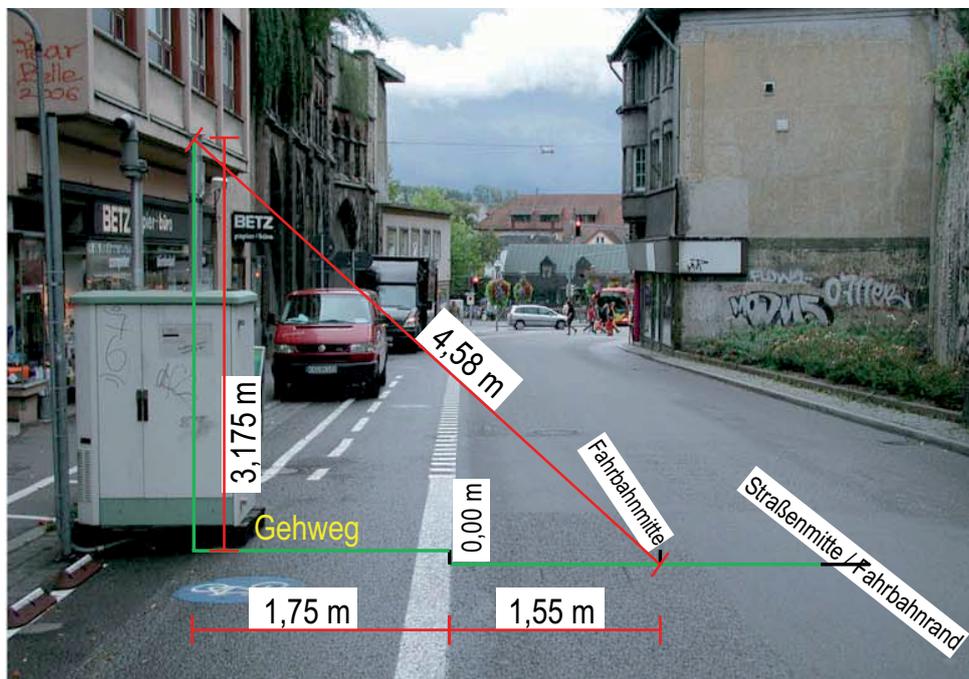


Abbildung 2.2-1: Messpunkt Tübingen Mühlstraße 8

### 2.3 Messstation Reutlingen Lederstraße Ost (Rt-L)

Stationsstandort seit März 2007

Geografische Position

Rechtswert 3515653

Spottmessstation von PM10 G

Hochwert 5372422

Höhe 379 m

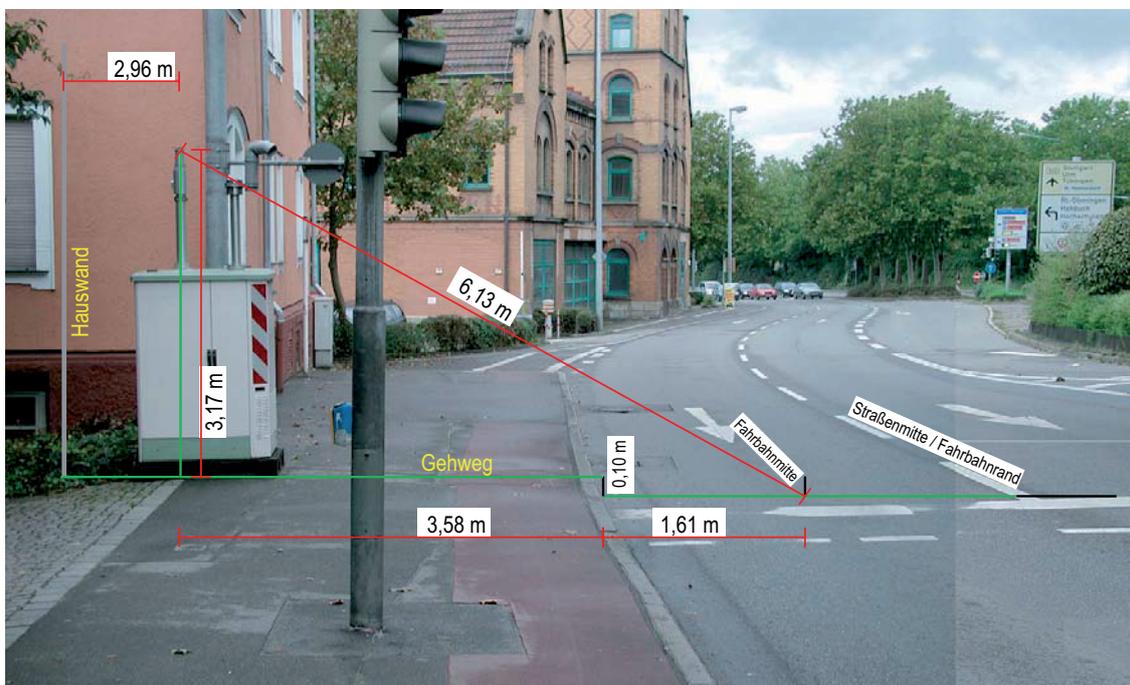


Abbildung 2.3-1: Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost

## 2.4 Charakterisierung der Messpunkte

In Tabelle 2.4-1 sind die relevanten Daten zur Charakterisierung der beschriebenen Messpunkte zusammengestellt. An allen drei Messstationen bleibt die mittlere Jahresbelastung an PM10-Feinstaub unter dem zulässigen Grenzwert der 39. BImSchV von  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Die Anzahl der Überschreitungstage pro Jahr übersteigt in Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße und in Reutlingen Lederstraße Ost den Grenzwert von 35 zulässigen Tagen.

Wie aus Tabelle 2.4-1 hervorgeht, ist Tübingen Mühlstraße der am wenigsten belastete Messpunkt. Die Anzahl der Tage pro Jahr, an denen die PM10-Feinstaubbelastung höher als  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ist (zulässiger PM10-Tagesgrenzwert, 39. BImSchV), liegt bei 30 in 2008 und 27 in 2009. Der Jahresmittelwert an PM10-Feinstaub beträgt  $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$  für das Jahr 2008. Da an der Mühlstraße in Tübingen die Messungen wegen Bauarbeiten im Juni 2009 zeitweise eingestellt wurden, musste als Ersatz auf den Messpunkt in Reutlingen an der Lederstraße ausgewichen werden. Hier liegt der PM10-Jahresmittelwert bei  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in 2008 und  $36 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in 2009. Deutlicher wird der Unterschied der beiden Messpunkte bei der Anzahl der Tage mit Grenzwertüberschreitungen der PM10-Konzentration pro Jahr. Reutlingen Lederstraße Ost weist Überschreitungen an 51 (2008) bzw. 57 (2009) Tagen auf.

Die unterschiedliche Feinstaubbelastung zeigt, dass die beiden Messpunkte keine ähnliche Charakteristik besitzen. Das Verkehrsaufkommen an Kfz ist um das 3-fache höher als in der Mühlstraße in Tübingen. Daher kann der Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost nicht als Ersatzmesspunkt herangezogen werden.

Da sich die Untersuchungen vor allem auf die Zeiten mit hohen PM10-Feinstaubkonzentrationen beziehen (November 08 bis Februar 09), werden die Daten der Messstation Rt-L, die von Juli 09 bis Dezember 09 erfasst wurden, nur in Ausnahmefällen herangezogen.

Der Messpunkt in Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße weist einen PM10-Jahresmittelwert von  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2008) und  $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2009) auf. Die Anzahl der Überschreitungen des PM10-Tagesgrenzwertes pro Jahr liegt hier bei 50 (2008) bzw. 43 (2009). Diese Messstation ist ähnlich stark belastet wie Reutlingen Lederstraße Ost, obwohl das Verkehrsaufkommen wesentlich geringer ist. Demnach tragen noch andere PM10-Quellen zur Feinstaubbelastung bei.

An der Mühlstraße in Tübingen ist die Feinstaubbelastung im Mittel geringer als an der Jesinger Hauptstraße in Tübingen-Unterjesingen, obwohl die Anzahl der Lkw pro Tag um das drei- bis vierfache höher liegt.

Tabelle 2.4-1: Verkehrsbelastungen und PM10-Feinstaubdaten zu den ausgewählten Messstationen

	PM10 max TMW $\mu\text{g}/\text{m}^3$	PM10 Anzahl d. TMW Überschreitungen	PM10 JahresMW $\mu\text{g}/\text{m}^3$	B(a)P JahresMW $\text{ng}/\text{m}^3$	DTV Kfz/Tag	Lkw Lkw/Tag
		<b>2008</b>		<b>2008</b>		
Reutlingen Lederstraße Ost	163	51	35	0,7	34500 <sup>4)</sup>	1500 <sup>4)</sup>
Tübingen Mühlstraße	134	30	27	---	11500 <sup>4)</sup>	1700 <sup>4)</sup>
Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	113	50	32	1,6	16000 <sup>4)5)</sup>	470 <sup>4)5)</sup>
		<b>2009</b>		<b>2009</b>		
Reutlingen Lederstraße Ost	109	57	36	0,7 <sup>2)</sup>	34500 <sup>6)</sup>	1500 <sup>6)</sup>
Tübingen Mühlstraße	123 <sup>1)</sup>	27 <sup>1)</sup>	32 <sup>1)</sup>	1,2 <sup>3)</sup>	---	---
Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	129	43	31	2,2	16300 <sup>5)6)</sup>	440 <sup>5)6)</sup>

<sup>1)</sup> Datenkollektiv 196 Tagesproben (01.01. - 24.06.2009)

<sup>2)</sup> Datenkollektiv 176 Tagesproben (08.07 - 31.12.2009)

<sup>3)</sup> Datenkollektiv 173 Tagesproben (01.01. - 24.06.2009)

--- keine Werte vorhanden

<sup>4)</sup> LUBW Bericht 61-15/2009

<sup>5)</sup> Jährliche Zählung der LUBW zur Bestimmung des durchschnittlichen täglichen Verkehrs (DTV)

<sup>6)</sup> LUBW Bericht 33-06/2010

Alle anderen Werte wurden aus mindestens 355 Tageswerten berechnet.

Quelle: Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg



# 3 Messumfang, Probenahme und analytische Bestimmungsverfahren

## 3.1 Messumfang

Insgesamt wurden für das Messprojekt die nachfolgenden Inhaltsstoffe im PM10-Feinstaub über den Zeitraum von September 2008 bis Ende Dezember 2009 täglich bestimmt.

### Analysenparameter:

Gravimetrie:

- Masse PM10

Anorganische Messobjekte:

- Kohlenstoff als organischer Kohlenstoff (OC) und elementarer Kohlenstoff (EC), <sup>14</sup>C-Anteil
- NH<sub>4</sub>, Chlorid, Nitrat, Sulfat und die Masse Ammonsalze, die sich aus der Summe NH<sub>4</sub>, Nitrat und Sulfat ergibt
- Zn, Al, Mn, Fe, Ca, Mg, Na, K, Pb, Cd, Ni, As, Sb

Organische Messparameter:

- Anhydrozucker: Threitol/Erythritol, Levoglukosan, Arabinitol, Mannosan, Galaktosan
- Zucker: Mannose, Galaktose, Fruktose
- Benzo(a)pyren
- Reten

Meteorologische Daten:

- Temperatur
- Niederschlag
- Windgeschwindigkeit

Am Messpunkt Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße wurden im gesamten Zeitraum diese Parameter analysiert. Da an der Mühlstraße in Tübingen wegen Bauarbeiten die Messkampagne im Juni 09 abgebrochen werden musste, wurden ab Juli 09 die PM10-Filter vom Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost untersucht. Alle Parameter liegen für Tübingen Mühlstraße bis Juni 09 und am Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost von Juli 09 bis Dezember 09 vor.

## 3.2 Probenahme

### 3.2.1 PM10-Feinstaub

Die Probenahme des PM10-Feinstaubes erfolgt an allen drei Stationen gemäß VDI 2463 Blatt 11 „Messen von Partikeln - Messen der Massenkonzentration (Immission) - Filterverfahren – Filterwechsler Digital DHA-80“ als Tagesmittelwert.

Der vorgeschaltete gröbenselektive Lufteinlass weist eine Abscheidewirkung von 50 % für Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser > 10 µm auf. Zur Bestimmung der Feinstaubmasse und anschließender Analyse der Inhaltsstoffe erfolgt täglich eine Probenahme auf Quarzfaserfiltern.

Der Digital High-Volume-Sampler (DHA-80) erfüllt die Anforderungen an Äquivalenzsammler nach DIN EN 12341, „Ermittlung der PM10-Fraktion von Schwebstaub - Referenzmethode und Feldprüfverfahren zum Nachweis der Gleichwertigkeit von Messverfahren und Referenzmessmethode“, 1998. Das Gerät verfügt über einen automatischen Probenwechsler, so dass ohne Wartung 14 Tagesmittelwerte gewonnen werden können. Zusätzlich verbleibt je Probenahme-Intervall ein Filter zur Blindwertkontrolle im Gerät. Der Volumenstrom wird konstant auf 720 m<sup>3</sup>/24 h gehalten. Die Gerätefunktion wird per Fernüberwachung der Pumpenleistung kontrolliert.

Die Probenahme und Feinstaubmassenbestimmung erfolgt auf Filtern mit 150 mm Durchmesser. Zur Bestimmung der Inhaltsstoffe des Feinstaubes werden jeweils Teilfilter mit 47 mm Durchmesser eingesetzt.

### 3.2.2 Filterwägung (Gravimetrie)

Die Bestimmung der PM10-Konzentrationen erfolgt nach DIN EN 12341, 1998: „Ermittlung der PM10-Fraktion von Schwebstaub - Referenzmethode und Feldprüfverfahren zum Nachweis der Gleichwertigkeit von Messverfahren und Referenzmessmethode“. Die für die Probenahme mittels Digital DHA-80 verwendeten Filter werden vor den Probenahme mindestens 48 h bei einer Lufttemperatur

von  $20\text{ °C} \pm 1\text{ °C}$  und einer relativen Luftfeuchte von  $50\% \pm 5\%$  equilibriert, d.h. auf eine definierte Feuchte eingestellt und gewogen. Nach der Bestäubung werden die Filter wieder equilibriert und zurückgewogen.

### 3.3 Analytische Bestimmung der Feinstaubinhaltsstoffe

#### 3.3.1 Kohlenstoff

##### 3.3.1.1 Elementarer Kohlenstoff (EC) und organisch gebundener Kohlenstoff (OC)

In Anlehnung an VDI Richtlinie 2465 Bl.2 „Messen von Ruß (Immission) – Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffes nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffes“.

Die Bestimmung des Rußes als elementarer Kohlenstoff (EC) und organischer Kohlenstoff (OC) im abgeschiedenen Feinstaub PM10 erfolgt durch Verbrennen der Probe unter Sauerstoffatmosphäre und der IR-spektroskopischen Detektion des dabei gebildeten  $\text{CO}_2$ . Das Analyseverfahren der Infrarotspektroskopie erlaubt jedoch keine Unterscheidung zwischen organisch gebundenem (OC) und elementarem Kohlenstoff (EC). Die Spezifität des Verfahrens auf elementaren Kohlenstoff wird durch ein Zweiphasentemperaturprogramm erreicht. Im ersten Schritt wird der organisch gebundene Kohlenstoff zu Kohlendioxid und Wasser verbrannt. Im zweiten Schritt wird der verbleibende Kohlenstoff zu Kohlendioxid verbrannt. Die Bestimmung des Kohlenstoffes erfolgt durch infrarotspektroskopische Analyse des Kohlendioxids.

Das Analyseverfahren ermöglicht nur die Bestimmung des Kohlenstoffgehaltes, nicht aber die Bestimmung anderer Elemente wie Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff oder Schwefel, die in organischen Verbindungen ebenfalls enthalten sind. Die Abschätzung der Konzentration organischer Verbindungen erfolgt daher durch die Multiplikation der Konzentration des organisch gebundenen Kohlenstoffes mit dem Faktor 1,4 nach Grosjean und Friedlander [Grosjean und Friedlander, 1975] und wird im Folgenden organische Masse (OM) genannt.

$$\text{OM} = 1,4 \cdot \text{OC}$$

##### 3.3.1.2 $^{14}\text{C}$ -Isotope in organisch gebundenem Kohlenstoff (OC)

Die Bestimmung erfolgt über die Verbrennung von OC und EC im Sauerstoffstrom über ein Zweiphasentemperaturprogramm. Im ersten Schritt wird bei  $340\text{ °C}$  weitgehend das OC, im zweiten Schritt bei  $650\text{ °C}$  das EC zu  $\text{CO}_2$  verbrannt. Die Fraktionen werden in Quarzampullen, die mit 1 mg Kobaltpulver und 200 mg Manganganulat befüllt sind, gesammelt. Die verschlossenen Ampullen werden 24 h auf  $650\text{ °C}$  erhitzt, dabei bildet sich durch Reduktion fadenförmiger Kohlenstoff, der auf dem Kobaltpulver abgelagert wird. Nach der Trennung vom Manganganulat wird die Probe zur Messung des  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes dem AMS (accelerator mass spectrometry) zugeführt [Szidat et al., 2004].

#### 3.3.2 Ammonium, Nitrat, Sulfat und Chlorid

Zur Bestimmung von Ammonium, Nitrat, Chlorid und Sulfat wird der bestaubte Quarzfaserteilfilter mit Wasser extrahiert. Mit Hilfe der Ionenchromatographie werden Nitrat, Sulfat und Chlorid bestimmt. Die Analyse auf Ammonium erfolgt mittels Spektralphotometrie bzw. Ionenchromatographie. Die Ionen werden nach den aufgeführten Richtlinien bestimmt.

VDI 3497 Blatt 3, 1988-07: „Messen partikelgebundener Anionen in der Außenluft; Analyse von Chlorid, Nitrat und Sulfat mittels Ionenchromatographie mit Suppressortechnik nach Aerosolabscheidung auf PTFE-Filtern“.

DIN EN ISO 10304-1, 1995-04: „Wasserbeschaffenheit - Bestimmung der gelösten Anionen Fluorid, Chlorid, Nitrit, Orthophosphat, Bromid, Nitrat und Sulfat mittels Ionenchromatographie“.

DIN 38406-5, 1983-10: „Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Kationen (Gruppe E); Bestimmung des Ammonium-Stickstoffs (E 5)“.

DIN EN ISO 14911, 1999-12: „Wasserbeschaffenheit - Bestimmung der gelösten Kationen  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  und  $\text{Ba}^{2+}$  mittels Ionenchromatographie - Verfahren für Wasser und Abwasser (ISO 14911:1998)“; Deutsche Fassung EN ISO 14911:1999.

### 3.3.3 Natrium, Kalium, Calcium, Magnesium, Aluminium, Eisen, Zink, Mangan, Blei, Cadmium, Nickel, Arsen, Antimon

Der Teilfilter wird mit einer Säuremischung aus  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{F}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}_2$  mikrowellenunterstützt aufgeschlossen. Die Aufschlusslösung wird zur Trockene eingedampft und danach mit 1 %  $\text{HNO}_3$  aufgenommen. Ein Aliquot dieser Lösung wird mittels ICP – OES analysiert.

DIN EN 14902, 2005-10: „Außenluftbeschaffenheit - Standardisiertes Verfahren zur Bestimmung von Pb/Cd/As/Ni als Bestandteil der PM10-Fraktion des Schwebstaubes“.

VDI 2267 Blatt 5, 1997-11: „Stoffbestimmung an Partikeln in der Außenluft - Messen der Massenkonzentration von Be, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Sb, V, Zn mit Hilfe der optischen Emissionsspektrometrie (ICP-OES) nach Filterprobenahme und Aufschluss in oxidierendem Säuregemisch“.

### 3.3.4 Anhydrozucker: Threitol/Erythritol, Levoglucosan, L(-)-Arabinitol, Mannosan, Galaktosan;

**Zucker: D-(+)-Mannose, D-(+)-Galaktose, D(-)Fruktose**

Die Anhydrozucker und weitere Zuckerverbindungen werden ionenchromatographisch mit amperometrischer Detektion bestimmt.

Die Quarzfaserteilfilter werden in einem Ultraschallbad rein wässrig 45 min extrahiert. Der Extrakt wird anschließend über  $0,45 \mu\text{m}$  Membranfilter filtriert. Die Trennung der Anhydrozucker erfolgt auf einer CarboPac<sup>TM</sup> MA1 (DIONEX) im alkalischen Milieu mittels Gradientenelution:

300 mM NaOH für 20 min, 35 mM/min auf 650 mM NaOH, 650 mM NaOH für 35 min.

Der amperometrische Detektor wird mit einer Goldelektrode im gepulsten Modus betrieben. Vor jeder Probe wird das analytische System mit 1M NaOH für 5 min gereinigt. In Anlehnung an die Veröffentlichungen von Puxbaum et al. [Puxbaum et al. 2007] und Yoshiteru et al. [Yoshiteru I. et al. 2009] werden die Analysen durchgeführt.

### 3.3.5 Benzo(a)pyren und Reten

Die Probenahme und Analyse der polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe Reten und Benzo(a)pyren wird

unter Beachtung von Vorgaben der Richtlinien DIN ISO 12884, 2000: „Bestimmung der Summe gasförmiger und partikelgebundener polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe“ und DIN EN 15549, 2008: „Luftbeschaffenheit – Messverfahren zur Bestimmung der Konzentration von Benzo(a)pyren in Luft“ durchgeführt.

Die Glasfaserteilfilter werden mit Toluol heiß extrahiert, der Extrakt eingeeengt, filtriert und auf ein definiertes Volumen eingestellt. Die beiden Komponenten werden mit Hilfe eines GC-MS quantifiziert. Auf der Basis der oben genannten Richtlinien wurde ein Messverfahren für Reten entwickelt, bei dem als interner Standard 6-Methylchrysen verwendet wird [22. ALS-Kolloquium, Jahresbericht 2009].

## 3.4 Gewichtung der untersuchten Parameter

Um Kenntnisse über die Zusammensetzung des PM10-Feinstaubes zu gewinnen, wurden die Untersuchungen umfassend angelegt.

Die Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs (EC), des organischen Kohlenstoffs (OC) und des <sup>14</sup>C-Anteils sind wichtig für die Beurteilung des Holzfeuerungsanteils im PM10-Feinstaub [LUBW Bericht Nr. 72-01/2009].

Die löslichen Ionen Ammonium, Sulfat, Nitrat und Chlorid wurden in das Projekt mit einbezogen, da es sich um massenrelevante Komponenten des PM10-Feinstaubes handelt. Näher betrachtet wird in diesem Bericht nur das Chlorid.

Von den analysierten Metallen ist bekannt, dass nur Kalium als Holztracer in Frage kommt.

Bei der Analyse der Zucker und Anhydrozucker wurden vorsorglich zahlreiche Komponenten bestimmt, um die Messergebnisse besser beurteilen zu können, da es sich hier um ein neues Analysenverfahren handelt. Im Folgenden wird hiervon der Tracer Levoglucosan verwendet.

Benzo(a)pyren ist ein Indikator für die unvollständige Verbrennung von organischem Material, Reten dient als Leitsubstanz für die Verbrennung von Nadelholz. Daher sind diese Vertreter der PAK's wichtig für die Bestimmung des Holzfeuerungsanteiles im PM10-Feinstaub.

## 4 Meteorologische Situation

Die Messstationen Tübingen Mühlstraße bzw. Reutlingen Lederstraße Ost und Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße befinden sich im Klimabereich des Neckarbeckens. Die mittlere Jahrestemperatur beträgt 8,7 °C, die Niederschlagsmenge im langjährigen Mittel 741 mm. Diese Werte liegen im Bereich der klimatischen Durchschnittswerte für Baden-Württemberg.

Zur Beurteilung von Temperatur, Windgeschwindigkeit und -richtung sowie der Niederschlagsmenge wurden Messwerte aus dem Luftmessnetz der LUBW herangezogen. Für die Messpunkte Tü-M und Tü-Unt werden die meteorologischen Daten der Station Tübingen Derendinger Straße verwendet, da es in Tübingen-Unterjesingen keine Luftmessstation gibt. Für den Messpunkt Rt-L werden die Wetterdaten der Luftmessstation Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße herangezogen.

### 4.1 Wind

Für den Messpunkt Tübingen Mühlstraße (Abbildung 4.1-1) ist aus den Winddaten eine West-Süd-West Hauptwindrichtung oder aber die entgegen gesetzte Richtung zu erkennen. Der Kanalisierungseffekt ergibt sich aus der geographischen Lage im Neckartal, das von West-Süd-West nach Ost-Nord-Ost verläuft.

Für den Messpunkt Reutlingen Lederstraße Ost (Abbildung 4.1-2) ergibt sich ein anderes Bild, da Reutlingen abseits des Neckartales in einer breiten offenen Fläche liegt. Eine Hauptwindrichtung kann hier nicht erkannt werden. Tagsüber ist der Einfluss des Neckartales noch schwach zu sehen, nachts jedoch herrschen Fallwinde von der Schwäbischen Alb vor, die in Tübingen keinen Einfluss haben.

Am Messpunkt Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße (Abbildung 4.1-3) ist die Wirkung des Kanalisierungseffektes des Neckartales noch spürbar, jedoch wird die Windrichtungsverteilung stark von Fallwinden aus dem Schönbuch geprägt. Außerdem führt die Lage am Ende des Ammertales zu einem weiteren Kanalisierungseffekt in Nord-Nord-West Richtung.

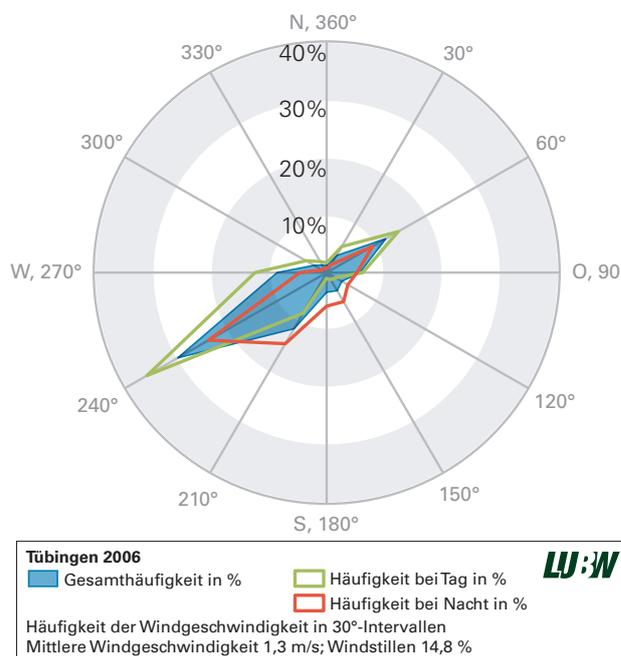


Abbildung 4.1-1: Mittlere Windgeschwindigkeiten in Tübingen 2006 (Quelle: Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg)

Für die Winddaten wurden die Messwerte der Luftmessstationen Tübingen Derendinger Straße und Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße aus dem Luftmessnetz der LUBW

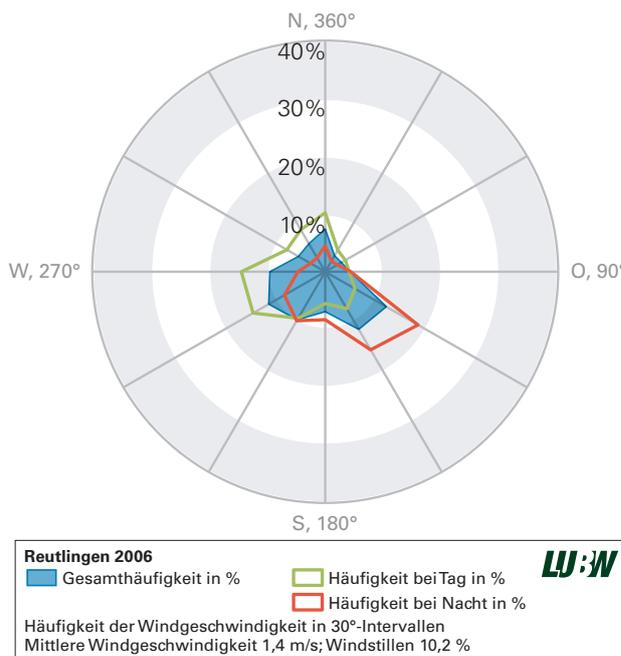


Abbildung 4.1-2: Mittlere Windgeschwindigkeiten in Reutlingen 2006 (Quelle: Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg)

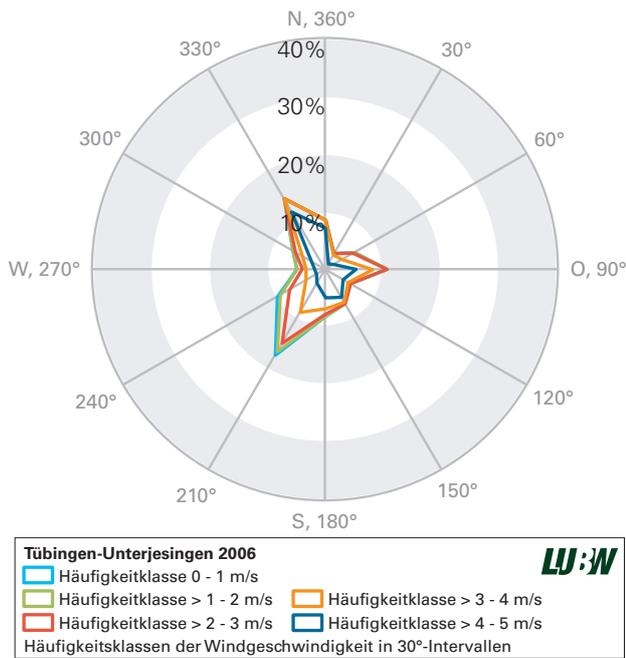


Abbildung 4.1-3: Synthetisches Windverteilungsdiagramm für Unterjesingen, (Berechnet mit Hilfe des Strömungsmodells METRAS PC)

in Baden-Württemberg herangezogen. Die Winddaten für die Messstation Tü-Unt wurden mit Hilfe des Strömungsmodells METRAS PC ermittelt.

Die Windrichtung zeigt auf, woher Einflüsse auf die PM10-Konzentrationen durch den Ferntransport zu erwarten sind. In Tübingen ist ein Eintrag von Feinstaub vor allem den Neckar aufwärts möglich. Die Windverhältnisse in Reutlingen und Tübingen-Unterjesingen zeigen, dass vor allem lokale Einflüsse vorliegen. Die drei Messstationen

liegen zwar nahe beieinander aber eine gegenseitige Beeinflussung der PM10-Konzentrationen durch Ferntransport kann weitgehend ausgeschlossen werden.

Der generelle Einfluss der Windgeschwindigkeiten auf die PM10-Konzentrationen wird im Kapitel 4.2 diskutiert.

## 4.2 Temperatur

Die Abhängigkeit der PM10-Konzentrationen von der Temperatur zeigt Abbildung 4.2-1. In den Wintermonaten steigen die Feinstaubkonzentrationen vor allem an sehr kalten Tagen stark an.

Die Ausbreitung bodennah emittierter Luftschadstoffe hängt von den meteorologischen Bedingungen in der atmosphärischen Grenzschicht ab. Die Mischungsschichthöhe (MLH) ist neben dem vertikalen Windprofil eine wesentliche Bedingung für die Höhe und Entfernung bis zu der diese Stoffe rasch durch Austauschvorgänge in der Atmosphäre verbreitet werden.

Die MLH gibt die Obergrenze des Austauschvolumens der am Boden aufliegenden Luftmassen an. Je niedriger die Mischungsschichthöhe desto geringer ist das Austauschvolumen. Bei mehrere Tage anhaltenden Inversionswetterlagen gehen in der Regel geringe Windgeschwindigkeiten mit dem Absinken von Kaltluft im Bereich des Hochdruckge-

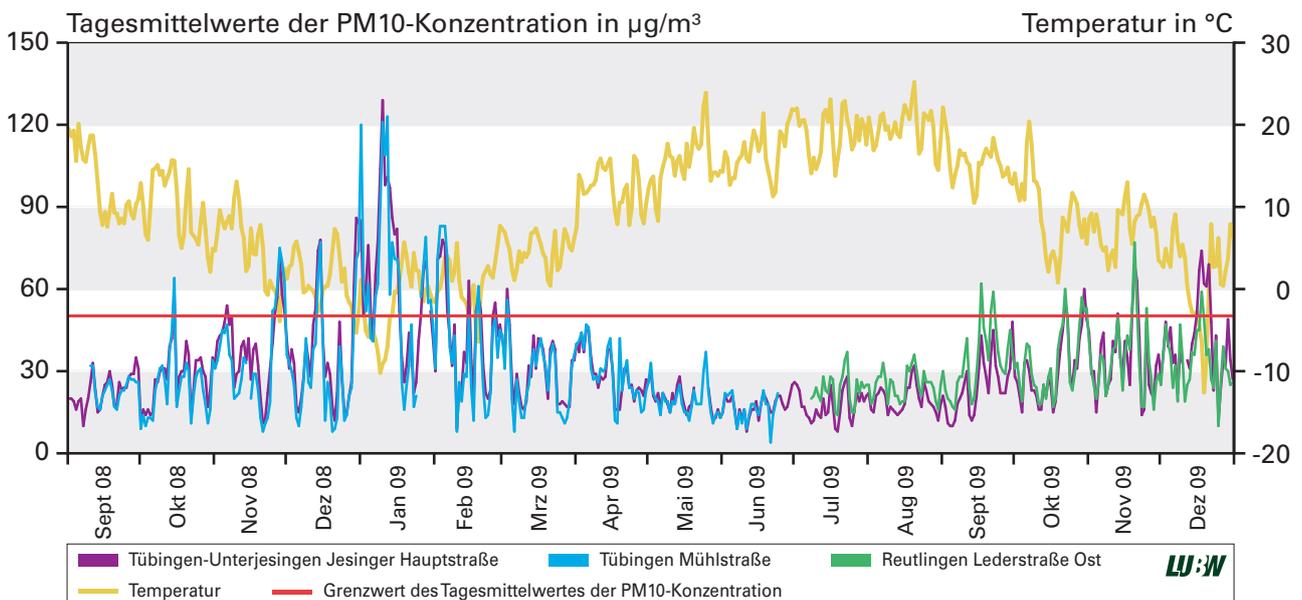


Abbildung 4.2-1: Verlauf der Temperatur und der Tagesmittelwerte der PM10-Konzentration in Tübingen-Unterjesingen, Tübingen und Reutlingen im Zeitraum des Messprojektes

bietet einher, Warmluftzufuhr in der Höhe verstärkt die Inversion zusätzlich.

Besonders geringe MLH treten in den Wintermonaten auf. Diese Inversionswetterlagen bedingen PM10-Grenzwertüberschreitungen.

Bei Inversionswetterlagen liegen die Windgeschwindigkeiten bei sehr geringen Werten bis 0,4 m/s, daher findet kaum Durchmischung statt. In der Abbildung 4.2-2 wird am Beispiel Tübingen-Unterjesingen deutlich, dass bei Windge-

schwindigkeiten unter 1 m/s in den Wintermonaten 08/09 die PM10-Feinstaubkonzentrationen ansteigen und den Tagesgrenzwert von 50 µg/m³ überschreiten.

In der Abbildung 4.2-3 werden über den gesamten Messzeitraum an der Messstation Tübingen Derendinger Straße im Sommer höhere Windgeschwindigkeiten festgestellt. Die Voraussetzungen für die Bildung von Inversionswetterlagen liegen nicht vor und es treten keine Überschreitungen des PM10-Tagesgrenzwertes von April bis September auf.

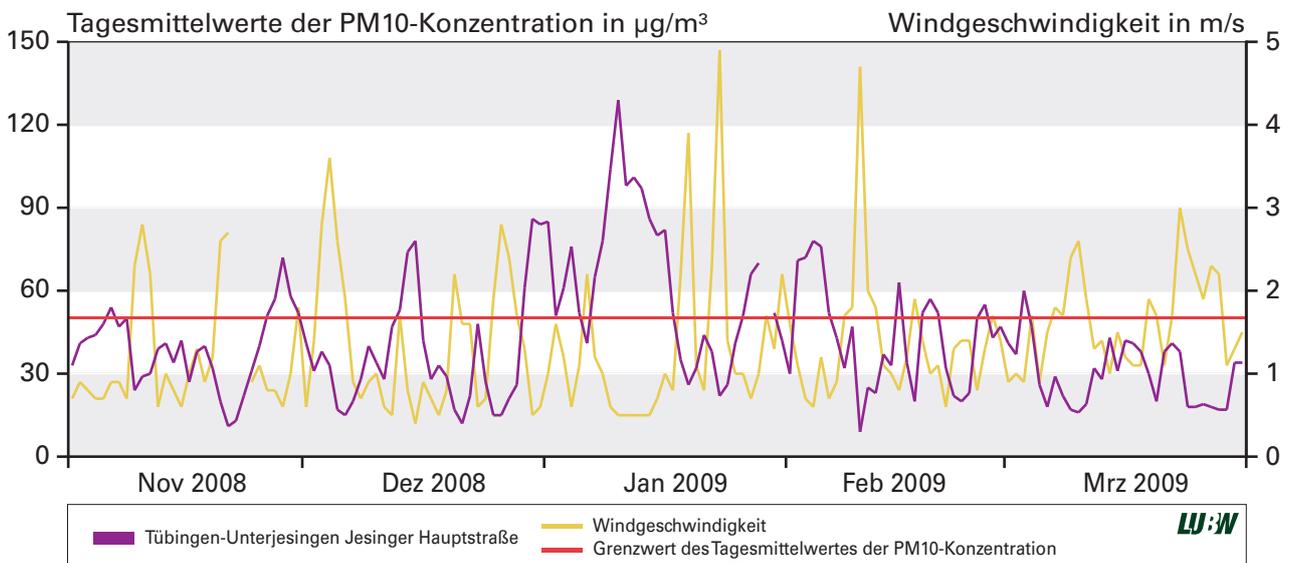


Abbildung 4.2-2: Tagesmittelwerte der PM10-Konzentrationen und Windgeschwindigkeiten in Tübingen-Unterjesingen im Winter 08/09

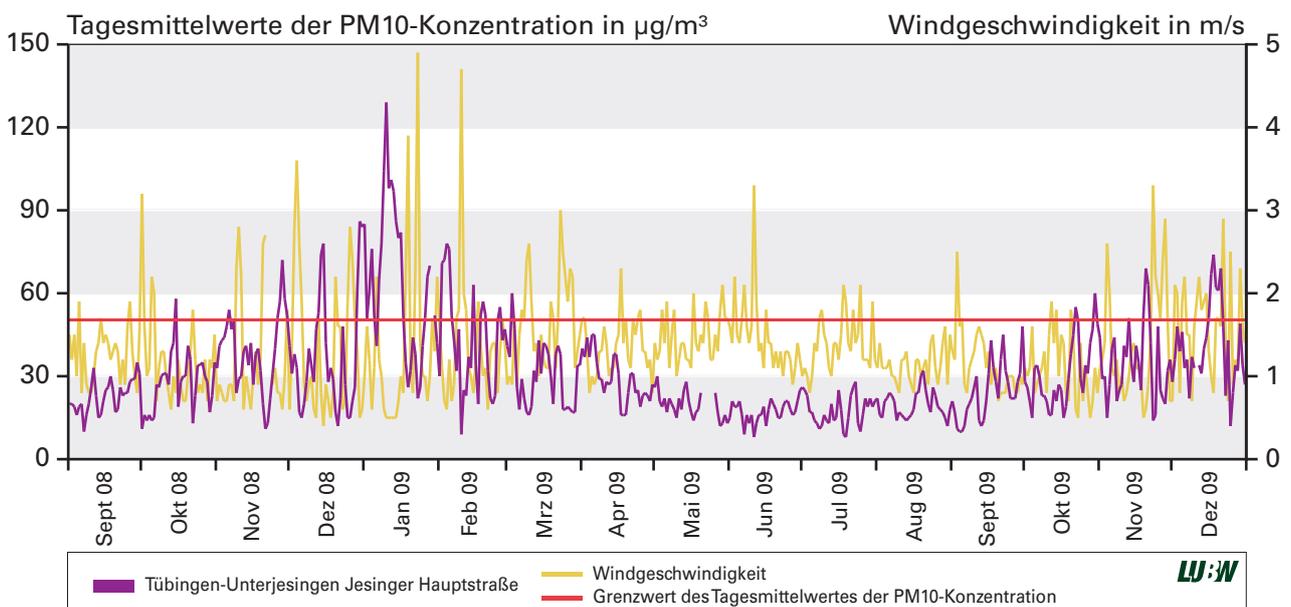


Abbildung 4.2-3: Tagesmittelwerte der PM10-Konzentrationen und Windgeschwindigkeiten in Tübingen-Unterjesingen September 08 – Dezember 09

### 4.3 Niederschlag

Der Niederschlag senkt die PM10-Feinstaubkonzentrationen, durch Auswaschen der Staubpartikel. In Abbildung 4.3-1 ist für den Standort Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße im Messzeitraum Winter 08/09 zu sehen, dass

an Tagen mit Niederschlägen die PM10-Feinstaubkonzentration in der Folge geringer werden. Hört der Niederschlag auf, so werden andere Einflussfaktoren, wie Wind und Temperatur wieder wichtiger und die PM10-Feinstaubkonzentration ändert sich.

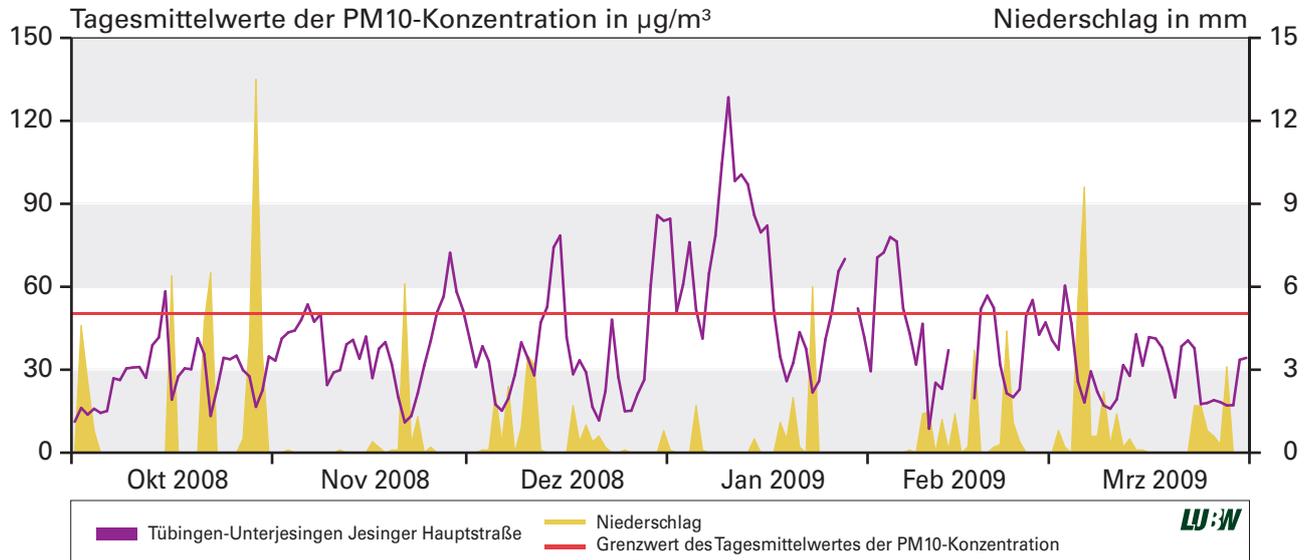


Abbildung 4.3-1: Verlauf der Tagesmittelwerte der PM10-Konzentration und des Niederschlags in Tübingen-Unterjesingen im Winter 08/09

# 5 Ergebnisse und Diskussion der Immissionsmessungen

Im Kapitel 5 werden zur besseren Lesbarkeit im Text die Abkürzungen der Messstationen verwendet (siehe Kapitel 2).

## 5.1 Vergleich der Immissionsituation im Winter 08/09 und im Sommer 09

In Abbildung 4.2-1 sind die Feinstaubkonzentrationen an den Stationen Tü-M, Rt-L und Tü-Unt für den Zeitraum von September 08 bis Dezember 09 mit dem Temperaturverlauf dargestellt. Die Überschreitungen des Grenzwerts von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  pro Tag treten vor allem in den Wintermonaten bei schlechten Austauschbedingungen mit niederen Mischungsschichthöhen, geringen Temperaturen und geringen Windgeschwindigkeiten auf. Maximale Konzentrationen wurden vom 29.12.08 bis 17.01.09 beobachtet.

Der Immissionswert der 39. BImSchV für PM<sub>10</sub>-Feinstaub von  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  für das Jahresmittel wird an allen Stationen nicht überschritten. 2008 ergeben sich für Rt-L und Tü-Unt eine fast gleiche Anzahl an Überschreitungstagen (Rt-L: 51 und Tü-Unt: 50 Überschreitungstage). In Tü-M liegen die PM<sub>10</sub>-Feinstaubkonzentrationen an 30 Tagen über dem zulässigen Tagesgrenzwert (Tabelle 5.1-1).

Für das Jahr 2009 ergibt sich ein anderes Bild, da die Anzahl der Jahresüberschreitungstage in Tü-Unt auf 43 gesunken ist, in Rt-L aber auf 57 ansteigt. Die Jahresmittelwerte liegen auf Vorjahresniveau.

Im Jahr 2009 mussten die Messungen an der Messstation Tü-M im Juni vorübergehend eingestellt werden, daher ist keine Jahresbilanz für 2009 möglich.

Aus Abbildung 4.2-1 wird deutlich, dass die meisten Überschreitungstage an den drei Messpunkten in der kalten Jahreszeit liegen. Die Emissionen aus dem Verkehr bleiben im Jahresverlauf ähnlich und damit auch der Beitrag zur PM<sub>10</sub>-Feinstaubbelastung. Der Ferntransport von Schadstoffen ist an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen häufig durch Inversionswetterlagen eingeschränkt. Die Konzentrationssteigerungen werden durch lokale Quellen verursacht.

Tabelle 5.1-1: Anzahl der Überschreitungstage für Tübingen Mühlstraße, Reutlingen Lederstraße Ost und Tübingen Unterjesingen Jesinger Hauptstraße

Überschreitungen pro Monat	Messstation Tübingen-Unterjesingen	Messstation Tübingen	Messstation Reutlingen
	Jesinger Hauptstr.	Mühlstr.	Lederstr. Ost
<b>2008</b>			
Januar	19	9	16
Februar	13	8	12
März	3	0	1
April	0	0	1
Mai	2	2	3
Juni	0	0	0
Juli	0	0	0
August	0	0	0
September	0	0	0
Oktober	1	1	2
November	6	6	11
Dezember	6	4	5
Anzahl der gemessenen Überschreitungen pro Jahr (> $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )	50	30	51
Anzahl Messwerte	359	363	365
Jahresmittelwert [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	32	27	35
höchster gemessener Wert [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	113	134	136
<b>2009</b>			
Januar	20	20	20
Februar	10	6	14
März	1	1	4
April	0	0	5
Mai	0	0	0
Juni	0	0	0
Juli	0	---	0
August	0	---	0
September	0	---	3
Oktober	2	---	3
November	4	---	5
Dezember	6	0	3
Anzahl der gemessenen Überschreitungen pro Jahr (> $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )	43	27*	57
Anzahl Messwerte	358	196	364
Jahresmittelwert [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	31	32*	36
höchster gemessener Wert [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	129	123	109

--- = Keine verwertbaren Daten

\* = Kein vollständiges Jahresdatenkollektiv



Emissionen aus Holzfeuerungsanlagen treten an kalten Tagen verstärkt auf, daher ist anzunehmen, dass sie einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zu diesen hohen Feinstaubkonzentrationen leisten.

Die meteorologischen Verhältnisse haben je nach Jahreszeit unterschiedlichen Einfluss auf die PM10-Konzentrationen. Die Masse an PM10-Feinstaub sowie die Konzentrationen der Inhaltsstoffe werden über den gesamten Messzeitraum täglich bestimmt, dadurch ist eine Beurteilung der jahreszeitlichen Veränderungen möglich.

### 5.1.1 Betrachtung der Wintermonate 2008/2009

Die nachfolgenden Daten stammen ausschließlich von den Messstationen Tü-M und Tü-Unt. Einige Komponenten mit deren Mittelwerten sowie die minimal und maximal gemessenen Werte sind in Tabelle 5.1.1-1 für den Zeitraum von November 08 bis Februar 09 zusammengestellt. In dieser Zeit kann davon ausgegangen werden, dass Holzfeuerungsanlagen als Zusatzheizung eingesetzt werden, da die Temperaturen niedrig sind. Wie aus der Tabelle 5.1-1 hervorgeht, treten hier auch die meisten Überschreitungen des PM10-Tagesgrenzwertes auf.

In der Heizperiode 08/09 werden vier ausgeprägte Phasen mit Überschreitungen des PM10-Tagesgrenzwertes beobachtet. Vom 25.11.08 bis 30.11.08, vom 13.12. bis 15.12.08 sowie vom 26.01.09 bis 06.02.09 ergaben sich PM10-Konzentrationen bis  $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , vom 29.12.08 bis 17.01.09 wurden Konzentrationen bis  $128 \mu\text{g}/\text{m}^3$  gemessen (Tabelle 5.1.1-1).

Die Verläufe der PM10-Feinstaubkonzentration (Abbildung 5.1.1-1) und der Kaliumkonzentration (Abbildung 5.1.1-2) sind ähnlich. Am Messpunkt Tü-M liegen die Kaliumkonzentrationen leicht unter dem Niveau von Tü-Unt.

Am Neujahrstag 2009 werden für Kalium extrem hohe Konzentrationen gemessen, die durch das Abbrennen von Feuerwerkskörpern an Silvester verursacht werden. In Tü-Unt wurden  $13,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-M  $21,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  Kalium gemessen.

Da Kalium nicht nur bei der Verbrennung von Holz emittiert wird, sondern auch aus anderen Quellen stammt, muss eine Grundbelastung bei der Beurteilung der Konzentrationen aus der Holzfeuerung berücksichtigt werden. Diese wird aus den von Mai 09 bis August 09 gemessenen Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub errechnet. Die Grundbelastung für beide Messpunkte beträgt  $0,15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Tabelle 5.1.2-1).

Die Konzentrationen von elementarem Kohlenstoff (EC) liegen im Winter im Mittel bei  $6,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-Unt und in Tü-M bei  $4,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Der organisch gebundene Kohlenstoff (OC) weist Mittelwerte von  $10,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-Unt und  $8,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-M auf (Tabelle 5.1.1-1). Der Anteil an OC im PM10-Feinstaub ist etwa doppelt so hoch wie die EC-Konzentration. Beide Komponenten liegen am Messpunkt Tü-Unt in höheren Konzentrationen vor als am Messpunkt Tü-M.

Die Konzentrationen von Benzo(a)pyren unterscheiden sich an den Messpunkten gravierend. Für Tü-M liegt der

Tabelle 5.1.1-1: Mittelwerte, sowie minimale und maximale Werte einiger ausgewählter Komponenten für den Zeitraum 01.11.08 bis 28.02.09

Tagesmittelwerte	Temperatur*	Windgeschwindigkeit*	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	EC $\mu\text{g}/\text{m}^3$	OC $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Chlorid $\mu\text{g}/\text{m}^3$	K $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Lecvoglucosan $\mu\text{g}/\text{m}^3$	B(a)P $\text{ng}/\text{m}^3$
	° Celsius	m/s							
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, Messzeitraum: 01.11.08 bis 28.02.09</b>									
Mittelwert	0,5	1,3	45,5	6,0	10,3	2,0	0,8	1,4	4,7
Maximalwert	11,5	4,9	128,5	12,7	28,9	8,1	13,4	5,4	18,5
Minimalwert	-12,7	0,4	8,7	1,7	1,6	<0,01	0,1	0,2	0,7
<b>Tübingen Mühlstraße, Messzeitraum: 01.11.08 bis 28.02.09</b>									
Mittelwert	0,5	1,3	41,8	4,6	8,4	2,4	0,7	0,9	2,2
Maximalwert	11,5	4,9	122,8	10,8	29,3	11,7	21,3	3,8	10,8
Minimalwert	-12,7	0,4	7,6	1,3	1,3	<0,01	0,1	<0,01	0,1

\* = Luftmessstation Tübingen Derendinger Straße

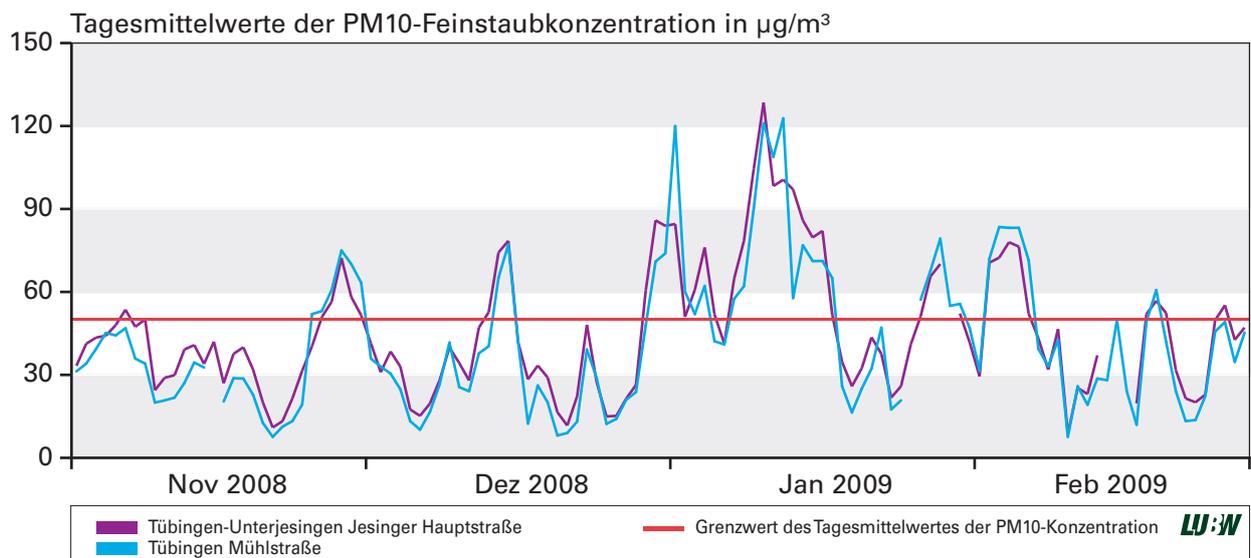


Abbildung 5.1.1-1: Verlauf der Tagesmittelwerte der PM10-Konzentration in Tübingen-Unterjesingen und Tübingen in der Heizperiode 08/09

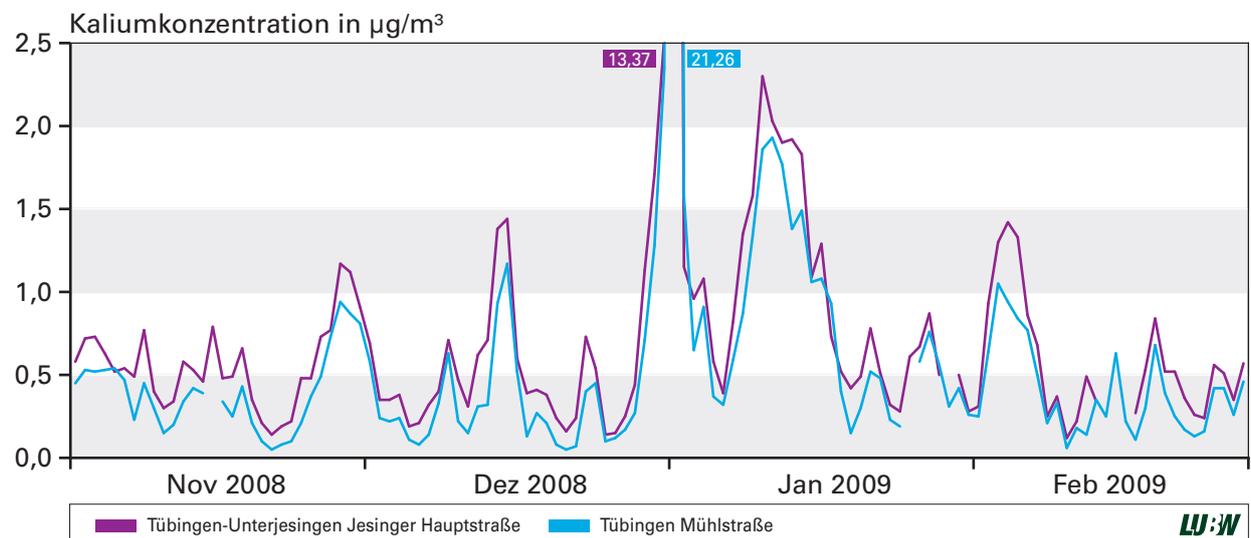


Abbildung 5.1.1-2: Verlauf der Tagesmittelwerte der Kaliumkonzentration in Tübingen-Unterjesingen und Tübingen in der Heizperiode 08/09

Mittelwert in Zeitraum vom 01.01.09 bis 24.06.09 bei 1,2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  und in Tü-Unt bei 2,7  $\text{ng}/\text{m}^3$ .

Der Jahresmittelwert am Messpunkt Tü-Unt beträgt 2,2  $\text{ng}/\text{m}^3$  in 2009 (Tabelle 2.4-1). Dieser Betrag ist mehr als doppelt so hoch wie der Zielwert der 39. BImSchV von 1  $\text{ng}/\text{m}^3$ . Dieser hohe Wert zeigt, dass wahrscheinlich ein nicht zu vernachlässigender Anteil des PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung stammt.

Im Zeitraum zwischen 08.01.09 bis 14.01.09 erreichen die B(a)P-Konzentrationen in Tü-Unt Werte bis zu 18,5  $\text{ng}/\text{m}^3$ . In Tü-M liegt der Maximalwert bei 10,8  $\text{ng}/\text{m}^3$  (Tabelle 5.1.1-1, Abbildung 5.1.1-3).

Bei Levoglukosan und B(a)P sind die Konzentrationen am Messpunkt Tü-Unt höher als am Messpunkt Tü-M. Die Verläufe an den Messpunkten sind ähnlich, wie Abbildung 5.1.1-4 zeigt. Zum Jahreswechsel steigt die Levoglukosankonzentration in Tü-Unt auf den Maximalwert von 5,4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in der Heizperiode an, in Tü-M wird ein Maximum von 3,8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  erreicht.

Die Chloridanteile im PM10-Feinstaub sind an beiden Messpunkten gleich. Die Mittelwerte liegen bei 2,0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-Unt beziehungsweise 2,4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in Tü-M.

Die Verlaufskurven der PM10-Feinstaubkonzentrationen über die Heizperiode (Abbildung 5.1.1-1) für die Standorte

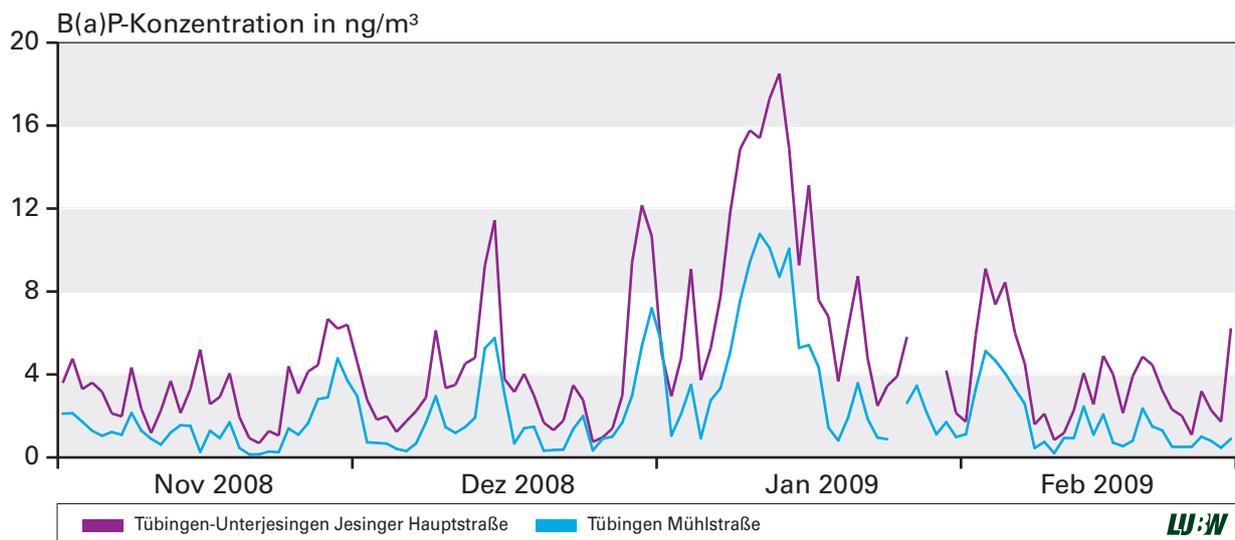


Abbildung 5.1.1-3: Verlauf der Tagesmittelwerte der B(a)P-Konzentration in Tübingen-Unterjesingen und Tübingen in der Heizperiode 08/09

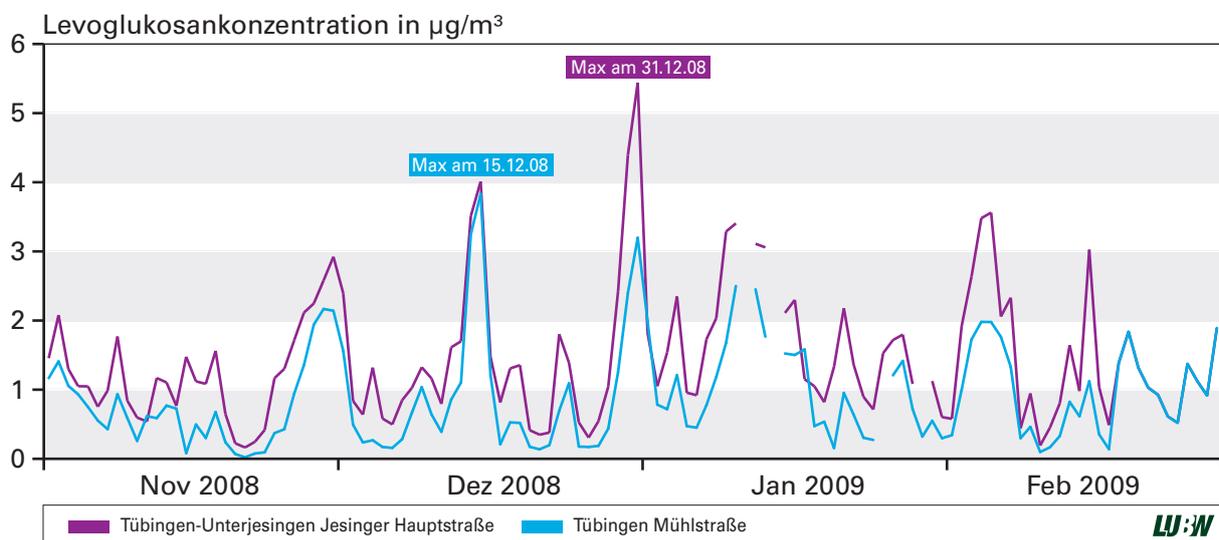


Abbildung 5.1.1-4: Verlauf der Tagesmittelwerte der Levoglucosankonzentration in Tübingen-Unterjesingen und Tübingen in der Heizperiode 08/09

Tü-M und Tü-Unt sind ähnlich. Das Niveau der PM<sub>10</sub>-Feinstaubkonzentrationen ist in Tü-Unt höher als in Tü-M. Bei der Zusammensetzung des Feinstaubes ergeben sich ebenfalls Unterschiede. Die Anteile von Kalium und Levoglucosan sind im PM<sub>10</sub>-Feinstaub in Tü-Unt höher als in Tü-M. Daraus kann auf eine stärkere Nutzung von Festbrennstoffen am Messpunkt Tü-Unt geschlossen werden. Diese Annahme wird durch die hohen B(a)P-Konzentrationen im PM<sub>10</sub>-Feinstaub in Tü-Unt unterstützt.

### 5.1.2 Betrachtung der Sommermonate 2009

Für die Monate vom Mai 09 bis August 09 liegen für den Messpunkt Tü-Unt durchgehend Daten vor. Die Messstation Tü-M musste am 24.06.2009 wegen Bauarbeiten abgebaut werden. Ab 08.07.2009 wurde stattdessen am Messpunkt Rt-L mit der Datenerfassung fortgefahren.

In den Sommermonaten betragen die mittleren Tagestemperaturen zwischen 15 °C und 19 °C. Das Heizen mit Holz ist bei diesen Temperaturen nicht nötig, Lagerfeuer, das Verbrennen von Baumschnitt oder Grillen sowie Waldbrände können einen Einfluss auf die PM10-Feinstaubkonzentrationen haben. In Tabelle 5.1.2-1 sind einige Parameter zur Charakterisierung dieses Zeitraums zusammengestellt.

Die PM10-Feinstaubkonzentrationen sinken unter den Tagesgrenzwert von 50 µg/m<sup>3</sup> ab. Es werden an allen Messstellen maximal 37 µg/m<sup>3</sup> PM10-Feinstaub innerhalb dieser vier Monate gemessen.

Die Kaliumkonzentration im Sommer beträgt ein Viertel der mittleren Kaliumkonzentration in den Wintermonaten und liegt bei 0,15 µg/m<sup>3</sup>. Diese Konzentration beinhaltet die zu berücksichtigende Grundbelastung an Kalium, die zum Beispiel durch biogene Quellen und Aufwirbelung von Bodenbestandteilen verursacht wird.

In den Sommermonaten sind die mittleren Konzentrationen sowie die Maxima und Minima der Konzentrationen von EC und OC nahezu gleich hoch. Die Konzentrationen an den drei Messpunkten unterscheiden sich kaum.

Die mittleren Sommerkonzentrationen an Benzo(a)pyren sowie die auftretenden Maxima, liegen im Sommer auf geringem Niveau und unterhalb des Zielwertes von 1,0 ng/m<sup>3</sup> B(a)P für das Jahresmittel.

Die Levoglukosan-Konzentrationen sind in den Sommermonaten auf ein Zehntel der Konzentrationen im Winter abgesunken. Als Voraussetzung für den Einsatz von Levoglukosan als Tracersubstanz wird angenommen, dass es ausschließlich bei der Holzverbrennung an die Luft abgegeben wird. Dies würde bedeuten, dass im Sommer kein Levoglukosan in PM10-Feinstaub enthalten sein sollte. Diese Annahme hat sich bei den Messungen an den gewählten Standorten nicht bestätigt. Vor allem in Tü-Unt ergab sich eine um 50 % erhöhte Konzentration an Levoglukosan im PM10-Feinstaub vom 01.05. bis 31.08.2009 von 0,23 µg/m<sup>3</sup> (Tabelle 5.1.2-1) im Vergleich zu Tü-M und Rt-L

Bei näherer Betrachtung der täglich ermittelten Levoglukosankonzentrationen in den Sommermonaten ist ein Wochentrend zu beobachten. In der Abbildung 5.1.2-1 wurden die Wochenenden gelb markiert und die Samstage mit den

Tabella 5.1.2-1: Tagesmittelwerte, sowie minimale und maximale Werte einiger ausgewählter Komponenten für den Zeitraum von 01.05.09 bis 31.08.09

Tagesmittelwerte	Temperatur*	Windgeschwindigkeit*	PM10 µg/m <sup>3</sup>	EC µg/m <sup>3</sup>	OC µg/m <sup>3</sup>	Chlorid µg/m <sup>3</sup>	K µg/m <sup>3</sup>	Levoglucosan µg/m <sup>3</sup>	B(a)P ng/m <sup>3</sup>
	° Celsius	m/s							
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, Messzeitraum: 01.05. - 31.08.09</b>									
Mittelwert	17,4	1,4	18,4	4,0	2,9	0,07**	0,15**	0,13	0,23**
Maximalwert	24,0	3,3	32,3	6,6	5,8	0,91	0,33	0,54	0,93
Minimalwert	7,9	0,8	7,6	1,2	1,1	<0,01	0,05	0,02	0,07
<b>Tübingen Mühlstraße, Messzeitraum: 01.05. - 24.06.09</b>									
Mittelwert	15,4	1,5	18,5	3,1	3,0	0,37**	0,15**	0,08	0,14**
Maximalwert	23,1	3,3	37,5	5,0	6,3	1,80	0,35	0,25	0,36
Minimalwert	7,9	1,0	8,8	1,5	1,6	0,10	0,07	0,02	0,02
<b>Reutlingen Lederstraße Ost, Messzeitraum: 08.07 - 31.08.09</b>									
Mittelwert	19,2	1,3	24,2	5,7	3,7	0,35**	0,14**	0,08	0,17**
Maximalwert	25,2	2,1	37,1	8,6	6,4	1,80	0,37	0,25	0,62
Minimalwert	13,8	0,8	14,4	2,5	1,6	0,11	0,06	0,02	0,06

\* = Temperatur an der Messstation Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße für Reutlingen, Temperatur an der Messstation Tübingen Derendinger Straße für Tübingen

\*\* = Grundbelastung

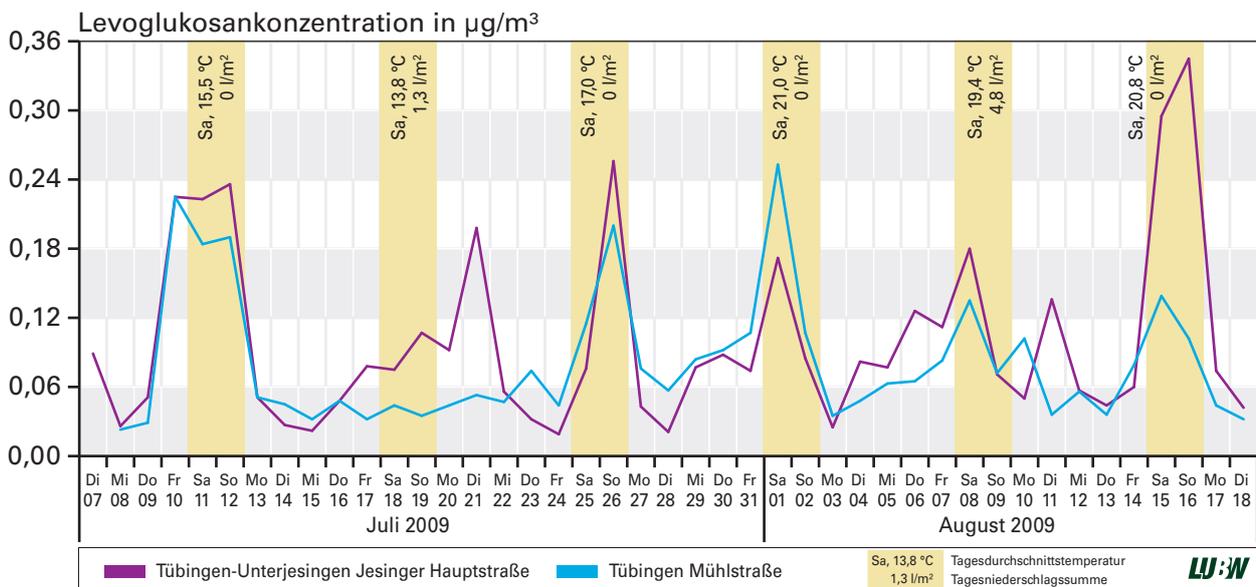


Abbildung 5.1.2-1: Verlauf der Tagesmittelwerte der Levoglukosankonzentrationen in Tübingen-Unterjesingen und in Tübingen im Sommer 09

Tagesdurchschnittstemperaturen und den Tagesniederschlagssummen eingetragen. Es ergibt sich zum Teil das Doppelte bis Dreifache der Levoglukosankonzentrationen als an den Werktagen. Diese Schwankungen treten immer dann auf, wenn die Tagesdurchschnittstemperaturen hoch sind und geringe bis keine Niederschläge vorliegen. Die Ursache können Freizeitaktivitäten wie Grillen oder Lagerfeuer sowie das Verbrennen von Baumschnitt sein. Um diese Vermutungen zu bestätigen wären weitere Untersuchungen über die Emissionen beim Verbrennen von Grillkohle und bei Lagerfeuern nötig. Da die beschriebenen Aktivitäten im Winter nur in Ausnahmefällen stattfinden, wird für Levoglukosan keine Grundbelastung berücksichtigt.

Die Chlorid-Konzentrationen sinken im Sommer auf etwa ein Fünftel der Konzentrationen ab, die im Winter auftreten (Tabelle 6-1).

Die Konzentrationen, der betrachteten Komponenten zeigen im Zeitraum von Mai 09 bis August 09 keine Auffälligkeiten. Diese Daten werden zum Vergleich und zur Beurteilung der Ergebnisse im Winterhalbjahr 08/09 benötigt.

## 5.2 Eignung der Holztracersubstanzen und Anteilsberechnung des PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung

Um den Anteil von Immissionen aus einem bestimmten Quelltyp bestimmen zu können, müssen die Emissionsfaktoren der entsprechenden Leitsubstanzen bekannt sein. Ein Emissionsfaktor ist das Verhältnis aus der Masse eines freigesetzten (emittierten) Stoffes zu der eingesetzten Masse eines Ausgangsstoffes z.B. mg Feinstaub pro kg Holz. Emissionsfaktoren werden stoff- und prozessspezifisch ermittelt. Bei Brennstoffen kann der Emissionsfaktor auch auf den Energieinhalt (Heizwert) bezogen werden z.B. mg Feinstaub pro Mega Joule eingesetzte Energie (mg/MJ). Multipliziert man die eingesetzte Energiemenge mit dem für den freigesetzten Stoff und für den Prozess spezifischen Emissionsfaktor, so kann die emittierte Schadstoffmenge ermittelt werden. Bei längeren Prozessen muss auch die zeitliche Komponente einbezogen werden.

Da unterschiedliche Feuerungsarten, Betriebs- und Lastzustände sowie Brennstoffe berücksichtigt werden sollen, kann nur ein mittlerer Emissionsfaktor angegeben werden.

Die Ermittlung der Emissionsfaktoren war für dieses Messprogramm nicht vorgesehen, daher wird auf Literaturdaten zurückgegriffen. Im Rahmen des Projekts „Einfluss von Emissionen aus der Gebäudeheizung auf Feinstaubimmissionen im Raum Augsburg“ der Universität Augsburg im Juni 2009 [Studie Augsburg, 2009] werden umfassende Untersuchungen zu Emissionen von Einzelraumfeuerungen für feste Brennstoffe beschrieben. Betrachtet werden die Emissionen beim Einsatz von Holz, wie Fichte und Buche, in verschiedenen Mischungsverhältnissen, so wie unterschiedliche Betriebszustände und verschiedene Ofenkonstruktionen. Die Abbrandbedingungen variieren sehr stark, da sie von vielen Faktoren abhängig sind. Je nach Beschickung des Ofens, der Bauart sowie der Luftzufuhr ergeben sich Gesamtstaubemissionen von 20 mg/MJ bis 800 mg/MJ.

Es wurde für Einzelraumfeuerungsanlagen ein mittlerer Emissionsfaktor für Gesamtstaub in Höhe von 120 mg/MJ ermittelt [Studie Augsburg, 2009].

Im vorliegenden Projekt werden primäre Partikel und ihre Konzentrationen in PM10-Immissionen betrachtet. Da die Verbrennung von Hölzern die einzige Quelle für Levoglukosan im Aerosol ist, kann es als idealer Tracer für die Holzverbrennung angesehen werden. Die Stabilität des Moleküls beim atmosphärischen Transport spricht ebenfalls dafür [Simoneit, 2002; Jorden, et al., 2006].

Benzo(a)pyren entsteht bei der Verbrennung von biogenen Materialien. Es wird z.B. bei der Holzverbrennung und bei der Verbrennung von Kohle in Kraftwerken emittiert.

Kalium ist einer der wichtigsten Mikronährstoffe von Pflanzen. Bei der Verbrennung von Holz, das 0,1 % - 0,8 % Kalium in der Trockenmasse enthält, wird es als Leitkomponente freigesetzt. Anders als bei Levoglukosan (Kapitel 5.1.2) liegt bei Kalium eine nennenswerte Grundbelastung vor, die sich aus der Aufwirbelung von Bodenbestandteilen und biologischem Material wie Pflanzenbestandteilen zusammensetzt. Dies muss bei der Berechnung der Massenbilanzen zur Bestimmung des PM10-Feinstaubanteils aus der Holzverbrennung auf der Basis von Kalium berücksichtigt werden.

Zur Darstellung des Anteils an PM10-Feinstaub aus der Holzverbrennung kann auch die Konzentration an organisch gebundenem Kohlenstoff (OC) herangezogen werden. Sie setzt sich aus den bei der unvollständigen Verbrennung von fossilen Brennstoffen freigesetzten organischen Verbindungen, sowie Pollen, Sporen und sekundären organischen Verbindungen aus Vorläufersubstanzen zusammen. Bei der Beobachtung der OC-Konzentrationen über den Verlauf eines Jahres kann eine Abhängigkeit von der Temperatur festgestellt werden (Tabelle 5.2-1). Im Sommer liegen die OC-Konzentrationen unterhalb der Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs (EC) und stammen hauptsächlich aus der unvollständigen Verbrennung des Treibstoffes aus dem Kraftfahrzeugverkehr, aus Kraftwerken und biogenen Quellen. Der Anteil von OC steigt in den Wintermonaten deutlich an und kann somit nicht ausschließlich den oben genannten Quellen zugeschrieben werden. Während der Heizperiode kommt OC durch die Verbrennung von Holz hinzu. Die Konzentrationen von EC im PM10-Feinstaub werden hauptsächlich durch den Verkehr verursacht. Kraftwerke und auch kleine

Tabelle 5.2-1: Übersicht der monatlichen Mittelwerte von Temperatur und PM10-Feinstaub, sowie von ausgewählten Inhaltsstoffen

Monatsmittelwerte	Temperatur*	PM10-Feinstaub	EC	OC	K	Levoglukosan	BaP
	° Celsius	µg/m <sup>3</sup>	ng/m <sup>3</sup>				
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, 2008</b>							
September	12,6	23	5,4	3,9	0,2	0,2	1,0
Oktober	9,4	28	6,1	5,3	0,3	0,7	1,7
November	4,3	39	6,5	9,5	0,6	1,2	3,3
Dezember	0,4	37	6,0	8,4	0,6	1,5	4,1
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, 2009</b>							
Januar	-3,4	63	6,4	13,3	1,0**	1,7	8,0
Februar	0,5	43	4,7	10,0	0,6	1,4	3,7
März	4,3	30	4,7	5,4	0,4	0,8	2,3
April	11,6	29	4,6	4,2	0,3	0,3	0,8
Mai	15,2	19	3,7	2,6	0,2	0,2	0,3
Juni	16,5	17	3,6	2,6	0,1	0,1	0,3
Juli	18,6	18	4,3	3,2	0,1	0,1	0,2
August	19,3	20	4,3	3,3	0,2	0,1	0,2
September	15,4	24	4,2	3,0	0,2	0,1	0,6
Oktober	9,4	31	5,8	6,1	0,4	1,0	2,8
November	6,6	34	6,4	8,5	0,5	1,7	3,7
Dezember	4,1	41	5,0	9,5	0,6	1,7	4,0
<b>Tübingen Mühlstraße, 2008</b>							
September	12,6	24	4,6	3,6	0,2	0,1	0,5
Oktober	9,4	24	4,8	4,3	0,3	0,3	0,7
November	4,3	35	4,6	7,5	0,4	0,7	1,5
Dezember	0,4	31	4,4	6,6	0,4	0,9	1,9
<b>Tübingen Mühlstraße, 2009</b>							
Januar	-3,4	61	5,5	12,2	0,8**	1,0	4,0
Februar	0,5	41	3,8	7,1	0,4	1,0	1,6
März	4,3	28	3,5	4,0	0,3	0,4	0,7
April	11,6	29	4,3	4,6	0,3	0,2	0,4
Mai	15,2	20	3,3	3,2	0,2	0,1	0,2
Juni	16,5	17	3,0	2,8	0,1	0,1	0,1
<b>Reutlingen Lederstraße Ost, 2009</b>							
Juli	18,9	23	6,0	3,5	0,1	0,1	0,1
August	19,7	25	5,4	3,9	0,2	0,1	0,2
September	15,4	33	6,0	4,3	0,2	0,1	0,4
Oktober	9,3	33	6,6	5,3	0,3	0,4	1,0
November	7,7	34	6,9	6,1	0,3	0,5	1,2
Dezember	1,7	33	5,4	6,5	0,3	0,5	1,3

\* = Temperatur an der Messstation Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße für Reutlingen,  
Temperatur an der Messstation Tübingen Derendinger Straße für Tübingen

\*\* = Monatsmittelwert ohne den 01.01.2009

**LUBW**

und mittlere Kleinf Feuerungsanlagen tragen ebenfalls dazu bei. Die Konzentrationen bleiben über den gesamten Messzeitraum auf gleichem Niveau. Diese Feststellung deckt sich mit Ergebnissen aus der Literatur [LUBW Bericht Nr. 72-01/2009].

Zur Unterstützung dieser Annahme wurden Teilproben der PM10-Filter jedes Messpunktes zur Bestimmung des <sup>14</sup>C-Anteils im OC-Gehalt des PM10-Feinstaubes zur Analyse an die Universität Bern geschickt. Die <sup>14</sup>C-Messungen ermöglichen eine Unterscheidung zwischen Kohlenstoff

aus biogenen Quellen, wie bei der Verbrennung von Holz, das in den letzten 50 Jahren gewachsen ist, und fossilen Quellen, wie die Verbrennung von Erdöl und dessen Komponenten [Szidat S. et al., 2006]. Fossile Quellen enthalten keine  $^{14}\text{C}$ -Isotope mehr, da sie über die Jahrtausende zerfallen sind. Biogene Materialien dagegen weisen ein Isotopenverhältnis von  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  auf, das dem aktuellen Niveau entspricht. Über diese Annahme kann der Anteil des organischen Kohlenstoffs aus fossilen bzw. biogenen Quellen bestimmt werden.

Die untersuchten Filter stammen von Tagen mit PM10-Konzentrationen  $> 70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , bei diesen konnten für beide Standorte ein Anteil von OC aus nicht fossilen Quellen von 75-87 % berechnet werden. Dies bedeutet, dass etwa 80 % des organischen Kohlenstoffs biogenen Ursprungs ist, also aus der Holzfeuerung stammt.

### 5.2.1 Kalium als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung

Im Rahmen der Augsburger Studie wurde durch Emissionsmessungen von Gesamtstaub und der Bestimmung der Konzentrationen an Kalium im emittierten Gesamtstaub bei unterschiedlichen Brandbedingungen ein Bestimmtheitsmaß von  $R^2 = 0,6104$  für Kalium ( $\mu\text{g}/\text{mg}$  Gesamtstaub) in Abhängigkeit von Gesamtstaub ( $\text{mg}/\text{MJ}$ ) festgestellt. Liest man beim mittleren Emissionsfaktor für Gesamtstaub von  $120 \text{ mg}/\text{MJ}$  im Korrelationsdiagramm die Kaliumkonzentration ab liegt sie bei  $58 \text{ mg}$  Kalium pro  $\text{g}$  Staubemission.

Die zahlreichen Einflussfaktoren auf die Konzentration von Kalium bei der Verbrennung führen zu einer beträchtlichen Streuung der Messergebnisse, daher ist der mittlere Anteil von  $5,8 \%$  Kalium im Gesamtstaub mit einer erheblichen Unsicherheit behaftet. Nach Abschätzung dürfte diese Unsicherheit bei  $\pm 50 \%$  liegen [Studie Augsburg, 2009].

Der Emissionsfaktor für Kalium bezieht sich auf die Gesamtstaubmenge, die jedoch bei Emissionen aus mit Holz bestückten Kleinf Feuerungsanlagen mit dem PM10-Feinstaub gleichgesetzt werden kann. Studien zeigen übereinstimmend, dass  $90 - 93 \%$  des Gesamtstaubes aus häuslicher Verbrennung einen aerodynamischen Durchmesser kleiner als  $10 \mu\text{m}$  haben und damit PM10-Feinstaub sind [LfU Bayern, 2007].

Der mittlere Emissionsfaktor von  $58 \text{ mg K}/\text{g PM10}$  soll dazu genutzt werden den Anteil an PM10-Feinstaub aus Holzfeuerungsanlagen für die in dieses Messprojekt einbezogenen Messpunkte zu berechnen. Dies setzt voraus, dass die Emissionsbedingungen an den Messstationen Tü-Unt, Tü-M und Rt-L im Durchschnitt mit denen im Augsburger Messprojekt übereinstimmen.

Bei den Korrelationen von Kalium mit den Tracersubstanzen, organisch gebundener Kohlenstoff, Benzo(a)pyren und Levoglukosan, zeigen sich an allen drei Messpunkten gute Übereinstimmungen. Für den organischen Kohlenstoff und B(a)P ergeben sich Bestimmtheitsmaße  $> 0,80$ , Levoglukosan korreliert etwas schlechter ( $R^2 = 0,69 - 0,80$ ). Auf Grund dieser Ergebnisse aus Tabelle 5.2.1-1 kommt Kalium als anorganische Substanz genauso wie die organischen Verbindungen als Tracer für die Holzverbrennung in Frage.

Gleichung 5.2.1-1: Gleichung für die lineare Korrelation der Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub mit anderen Inhaltsstoffen.

$$C_{T,I} = m + C_{K,I} \cdot b$$

- $C_{T,I}$  Tracerkonzentration im PM10-Feinstaub in den Immissionen
- $C_{K,I}$  Kaliumkonzentration im PM10-Feinstaub in den Immissionen
- m Achsenabschnitt
- b Steigung

Tabelle 5.2.1-1: Korrelation ausgewählter Komponenten mit Kalium

Y = bx + m	Bestimmtheitsmaß $R^2$	Achsenabschnitt m	Steigung b
<b>Tübingen Mühlstraße</b>			
B(a)P	0,81	-0,39	4,68
Reten	0,70	0,02	0,20
Levoglukosan	0,69	-0,04	1,64
OC	0,86	1,38	12,80
PM10	0,79	13,52	52,47
EC	0,40	3,15	3,13
<b>Reutlingen Lederstraße Ost</b>			
B(a)P	0,71	-0,26	4,26
Reten	0,17	0,08	0,24
Levoglukosan	0,72	-0,17	1,97
OC	0,80	1,71	14,14
PM10	0,64	15,55	65,98
EC	0,31	4,32	7,61
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße</b>			
B(a)P	0,86	-0,66	7,60
Reten	0,48	0,03	0,48
Levoglukosan	0,80	-0,12	2,41
OC	0,88	1,33	12,42
PM10	0,83	12,80	46,21
EC	0,42	3,72	3,64

Es werden alle Werte des jeweiligen Messpunktes über den gesamten Messzeitraum einbezogen. Die Daten der Regressionsgeraden mit Bezug zur Kaliumkonzentration (unabh. Variable) sind angegeben. 

Da der Kaliumanteil im Umweltaerosol nicht ausschließlich aus der Holzverbrennung stammt, sondern auch andere Substanzen wie Pflanzenmaterial und Aufwirbelungen von Bodenbestandteilen dazu beitragen, muss dies als „Grundbelastung“ ( $C_{K,G}$ ) in der Berechnung berücksichtigt werden.

Zur Ermittlung der Grundbelastung kann der Achsenabschnitt der Korrelationsgeraden von Kalium mit Levoglukosan  $C_{K,I} = f(C_{Lev,I})$  herangezogen werden, falls keine Bestimmung der Kaliumkonzentration für die Sommermonate durchgeführt wurde.

Durch die Messung der Kaliumkonzentration im Sommer innerhalb dieses Messprojekts ist ein Vergleich der über den Achsenabschnitt der Korrelationsgeraden ermittelten Grundbelastung und der gemessenen Konzentrationen möglich. Die mittlere Kaliumkonzentration im Sommer 2009 errechnet sich aus den Tagesmittelwerten, die zwischen dem 01.05.2009 und dem 31.08.2009 ermittelt wurden. In dieser Zeit kann davon ausgegangen werden, dass Holzfeuerung nicht wesentlich zur Kaliumkonzentration im PM10-Feinstaub beiträgt.

In Tabelle 5.2.1-2 sind die Grundbelastungen von Kalium  $C_{K,G}$  für alle Messpunkte aufgeführt. Unterschieden wird zwischen der Grundbelastung, die aus dem Achsenabschnitt der Korrelationsgeraden der Kalium- und Levoglukosankonzentration im PM10-Feinstaub bestimmt wird und den gemessenen Kaliumkonzentrationen im PM10-

Feinstaub im Sommer 2009. An der Messstation Tü-M liegt eine Abweichungen der Grundbelastung von  $0,036 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und an der Messstation Tü-Unt von  $0,033 \mu\text{g}/\text{m}^3$  nach oben vor. Dies entspricht im Mittel einer Staubmenge von  $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Am Messpunkt Rt-L ist die Grundbelastung für Kalium aus dem Achsenabschnitt des Korrelationsdiagramms um  $0,09 \mu\text{g}/\text{m}^3$  höher als der aus den gemessenen Werten errechnete Mittelwert. Allerdings stehen für das Korrelationsdiagramm nur Kalium- und Levoglukosankonzentrationen für das zweite Halbjahr 2009 zur Verfügung und somit nicht die belasteten Monate Januar und Februar.

Die Grundbelastungen der drei Messpunkte aus den Achsenabschnitten des jeweiligen Korrelationsdiagramms sind in allen Fällen niedriger als die gemessenen Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub zwischen Mai 09 und August 09. Für die weiteren Berechnungen werden die Mittelwerte der gemessenen Kaliumkonzentration des PM10-Feinstaubes für den jeweiligen Messpunkt im Sommer 2009 als Grundbelastung benutzt.

Über die Gleichung 5.2.1-2 werden die PM10-Feinstaubkonzentrationen berechnet, die sich aus den Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub unter Berücksichtigung von  $C_{K,G}$  ergeben.  $C_{PM10Holzf}$  stellt allgemein die Konzentration an PM10-Feinstaub dar, der aus der Holzfeuerung stammt. Für die Anteile aus der Holzfeuerung berechnet aus der Kaliumkonzentration  $C_{K,PM10Holzf}$  ergeben sich

Tabelle 5.2.1-2: Bestimmtheitsmaße und Achsenabschnitte der Korrelationsgeraden in Abhängigkeit von Levoglukosan zur Bestimmung der Grundbelastung an Kalium im Zeitraum von 01.05.09 bis 31.08.09, sowie die prozentualen Anteile des PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung

Messzeitraum der Messstellen	Tübingen Mühlstraße	Reutlingen Lederstraße Ost	Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	Einheit
<b>Grundbelastung rechnerisch</b>				
Kalium	10.09.08 - 24.06.09	08.07.09 - 31.12.09	01.09.08 - 31.12.09	
Bestimmtheitsmaß	0,69	0,72	0,80	
Achsenabschnitt Korr $C_{K,I} = f(C_{Lev,I})$	0,114	0,128	0,114	$\mu\text{g}/\text{m}^3$
<b>Grundbelastung gemessen</b>				
Kalium	01.05.09 - 24.06.09	08.07.09 - 31.08.09	01.05.09 - 31.08.09	
Mittelwerte Sommer (gemessen)	0,146	0,137	0,154	$\mu\text{g}/\text{m}^3$
<b>PM10-Feinstaub</b>				
	Nov. 08 - Feb. 09	Okt. 09 - Dez. 09	Nov. 08-Feb 09	
Berechnete Anteile aus der K-Konzentration	14*	9*	18*	%
Berechnete Anteile aus der K-Konz., Winter	17**		23**	%

\* = Mittelwerte über angegebenen Messzeitraum

\*\* = Winter 08/09 hoch belastete Phasen ohne 31.12.08 - 02.01. 09



Gleichung 5.2.1-2: Berechnung der Konzentration an PM10-Feinstaub, aus der Holzverbrennung über die Kaliumkonzentration.

$$C_{K,PM10Holzf} = \frac{C_{K,I} - C_{K,G}}{C_{K,E}}$$

- $C_{K,PM10Holzf}$  Anteil der Primärpartikel aus der Holzverbrennung
- $C_{K,I}$  Kaliumkonzentration in den Immissionen
- $C_{K,E}$  Emissionsfaktor für Kalium in Partikelemission aus der Holzfeuerung, 58 ng K/ $\mu$ g PM10
- $C_{K,G}$  Kaliumkonzentration, Grundbelastung

im Winterhalbjahr (Nov. 08 – Feb 09, Okt. -Dez. 09) am Messpunkt Tü-M 14 %, in Tü-Unt 19 %. Für den Messpunkt Rt-L liegen Messwerte nur von Juli 09 bis Dezember 09 vor, so dass keine hoch belasteten Zeiträume berücksichtigt werden können und der Anteil aus der Holzfeuerung am PM10-Feinstaub deshalb mit 9 % (Okt. - Dez. 09) geringer ausfällt. Betrachtet man nur die hoch belasteten Zeiträume im Winter 08/09 (24.11.08 – 06.02.09 ohne 31.12.08 - 02.01.2009) liegen die Anteile mit 17 % (Tü-M) und 23 % (Tü-Unt) deutlich höher (Tabelle 5.2.1-2).

Diese Zeiträume sind durch geringe Temperaturen gekennzeichnet und dadurch ist eine vermehrte Nutzung von Holzfeuerungsanlagen naheliegend. Geringe Windgeschwindigkeiten und häufig auftretende Inversionswetterlagen tragen zur Erhöhung der PM10-Feinstaubkonzentrationen bei.

### 5.2.2 Levoglukosan als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung

Auf Grund der in Kapitel 5.2.1 beschriebenen guten Korrelationen der Konzentrationen von Levoglukosan und Kalium (Tabelle 5.2.2-2) kann der Emissionsfaktor des Kaliums  $C_{K,E}$  von 58 mg K/g PM10-Feinstaub zur Berechnung des Emissionsfaktors für das Levoglukosan  $C_{Lev,E}$  herangezogen werden.

Über die Steigung b der Korrelationsgeraden von Levoglukosan- und Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub lassen sich die Emissionsfaktoren von Levoglukosan  $C_{Lev,E}$  für alle Standorte der Messstationen ermitteln [Studie Augsburg, 2009].

Gleichung 5.2.2-1: Gleichung zur Berechnung des Emissionsfaktors für Levoglukosan

$$C_{K,E} (\mu\text{g K}/\mu\text{g PM10}) \cdot b = C_{Lev,E} (\mu\text{g Lev}/\mu\text{g PM10})$$

In Tabelle 5.2.2-1 sind die für Levoglukosan ermittelten Emissionsfaktoren an den einzelnen Standorten aufgeführt. Aus den gemessenen Levoglukosankonzentrationen im PM10-Feinstaub wird mit  $C_{Lev,E}$  die PM10-Feinstaubkonzentration aus der Holzfeuerung  $C_{Lev,PM10Holzf}$  berechnet.

Der mittlere Emissionsfaktor bezogen auf die drei Messpunkte liegt bei 0,116  $\mu\text{g Lev}/\mu\text{g PM10}$ . Der Emissionsfaktor für Levoglukosan, der in der Augsburger Studie ermittelt wird, beträgt 0,126  $\mu\text{g Lev}/\mu\text{g PM10}$ . Da die Emissionsfaktoren trotz der unterschiedlichen Standorte und Messbedingungen innerhalb des angenommenen Fehlerbereichs von 50 % liegen kann davon ausgegangen werden, dass die Emissionsbedingungen in Augsburg denen an den Messstationen Rt-L, Tü-M und Tü-Unt ähnlich sind. Der Literaturwert wird bestätigt, deshalb wird für die weitergehenden Betrachtungen der Emissionsfaktor für Levoglukosan von 0,126  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  aus der Augsburger Studie verwendet.

Wie in Kapitel 5.2 ausgeführt wird keine Grundbelastung für Levoglukosan berücksichtigt. Auf der Basis dieser Annahme werden die weiteren Berechnungen durchgeführt. Dabei ergeben die mittleren Anteile, des aus Levoglukosan berechneten PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung, über die Zeit in der geheizt wird (Nov. 08 – Feb 09) in Tü-Unt 26 % und in Tü-M 18 %. In Rt-L wurden die Levoglukosankonzentrationen von Oktober 09 bis Dezember 09 ermittelt, sodass die kalte Jahreszeit nur zum Teil erfasst werden kann.

Tabelle 5.2.2-1: Berechnung des Emissionsfaktors von Levoglukosan mit Hilfe des Emissionsfaktors von Kalium (58 ng K/ $\mu$ g PM10) und der Steigung b der Regressionsgeraden aus der Korrelationsgeradengleichung von Kalium und Levoglukosan

	b	$C_{K,E}$ ( $\mu\text{g K}/\mu\text{g PM10}$ )	$C_{Lev,E}$ ( $\mu\text{g Lev}/\mu\text{g PM10}$ )
Tübingen Mühlstraße	1,64	0,058	0,095
Reutlingen Lederstraße Ost	1,97		0,114
Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	2,41		0,140
<b>Mittelwert</b>			<b>0,116</b>
Augsburg			0,126

Tabelle 5.2.2-2: Bestimmtheitsmaße und Achsenabschnitte der Korrelationsgeraden in Abhängigkeit von Kalium mit Levoglukosan, sowie die prozentualen Anteile des PM10-Feinstaubes aus der Holzfeuerung

Messstellen	Tübingen Mühlstraße	Reutlingen Lederstraße Ost	Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	Einheit
Gesamter Messzeitraum	10.09.08 - 24.06.09	08.07.09 - 31.12.09	01.09.08 - 31.12.09	
Bestimmtheitsmaße	0,69	0,72	0,80	
Messzeitraum	01.05.09 - 24.06.09	08.07.09 - 31.08.09	01.05.09 - 31.08.09	
Mittelwerte Sommer	0,08	0,08	0,13	µg/m <sup>3</sup>
<b>PM10-Feinstaub</b>				
	Nov. 08 - Feb. 09	Okt. 09 - Dez. 09	Nov. 08-Feb. 09	
Berechneter Anteil aus Levoglukosan	18*	11*	26*	%
Berechnete Anteile aus Levoglukosan, Winter	18**		27**	%

\* = Mittelwerte über angegebenen Messzeitraum

\*\* = Winter 08/09 hoch belastete Phasen ohne 31.12.08 - 02.01. 09

**LUBW**

te. Dort ist der PM10-Anteil aus der Holzfeuerung etwa 11 %. Betrachtet man ausschließlich die hoch belasteten Zeiten vom 24.11.08 – 06.02.09, so steigen die Anteile auf 18 % (Tü-M) und 27 % (Tü-Unt).

### 5.2.3 Reten und B(a)P als Tracer für Biomasse- bzw. Holzverbrennung

In einer Projektarbeit mit dem Thema „Applikation eines Messverfahrens zur Analyse von Reten in der Immission“ wurden die Probenahme sowie die Analytik zur Bestimmung von Reten untersucht. In Folge der physikalischen Eigenschaften von Reten kann es in der Atmosphäre an Partikeln akkumuliert, aber auch in der Gasphase vorkommen. Ob dies so zutrifft wurde in dieser Projektarbeit überprüft. Im Luftmessnetz werden im Rahmen dieses Messprogramms nur partikelsammelnde Messverfahren eingesetzt. Die Anteile von Reten, die in der Gasphase vorliegen, können nicht erfasst werden.

Mit Hilfe eines speziellen Probenahmeverfahrens, bei dem den klassischen Filtern zur Sammlung der Partikelphase geeignete Adsorber für die Gasphasenanteile nachgeschaltet wurden, zeigte sich, dass Reten nur zu einem geringen Teil auf den Staubfiltern angereichert wird.

Um Messwerte zu erhalten, die Rückschlüsse auf die Feinstaubfracht von Holzfeuerungen über die Retenkonzentration zulassen, ist eine Probenahme mit den in der PM10-Messroutine eingesetzten Quarzfiltern nicht sinnvoll. Eine quantitative Abscheidung des Retens findet nicht statt.

Benzo(a)pyren hingegen findet sich zu 100 % auf Partikel abgelagert und wird quantitativ bei der Probenahme erfasst. Das Bestimmtheitsmaß aus der Korrelation der Konzentration von B(a)P mit der Konzentration des PM10-Feinstaubes an den Messpunkten Tü-Unt und Tü-M liegt bei 0,72 und 0,68 (Tabelle 5.2.3-1). Ebenfalls gute Bestimmtheitsmaße mit B(a)P treten für Komponenten auf, die als Holztracer in Frage kommen. Am Messpunkt Rt-L ist das Bestimmtheitsmaß für die Korrelation der B(a)P-Konzentration mit der PM10-Feinstaubkonzentration sehr niedrig, dies ist wie bei den anderen Komponenten auf die geringe Anzahl an Messungen zurückzuführen.

Auf Grund der guten Korrelationen der Konzentrationen von B(a)P und Kalium (Tabelle 5.2.3-1) kann der Emissionsfaktor des Kaliums  $C_{K,E}$  von 58 mg K/g PM10-Feinstaub zur Berechnung des Emissionsfaktors für das Benzo(a)pyren  $C_{B(a)PE}$  herangezogen werden.

Über die Steigung b der Korrelationsgeraden von B(a)P- und Kaliumkonzentrationen im PM10-Feinstaub lassen sich die Emissionsfaktoren von Benzo(a)pyren  $C_{B(a)PE}$  für alle Standorte der Messstationen ermitteln.

Tabelle 5.2.3-1: Bestimmtheitsmaße aus der Korrelation der B(a)P-Konzentration als abhängige Variable mit ausgewählten Substanzen

B(a)P Unabhängige Variable	Bestimmtheitsmaß R <sup>2</sup>		
	Tü-M	Rt-L	Tü-Unt
Levoglukosan	0,73	0,87	0,78
OC	0,86	0,68	0,84
Kalium	0,81	0,71	0,86
PM10	0,68	0,38	0,72

**LUBW**

Gleichung 5.2.3-1: Gleichung zur Berechnung des Emissionsfaktors für B(a)P

$$C_{K,E} (\mu\text{g K}/\mu\text{g PM}_{10}) \cdot b = C_{B(a)P,E} (\text{ng B(a)P}/\mu\text{g PM}_{10})$$

In Tabelle 5.2.3-2 sind die berechneten Emissionsfaktoren für die einzelnen Standorte aufgeführt. Der mittlere Emissionsfaktor bezogen auf die drei Messpunkte liegt bei 0,32 ng B(a)P/ $\mu\text{g PM}_{10}$ .

Bei der Betrachtung der einzelnen Messpunkte in Tabelle 5.2.3-3 fällt auf, dass bei Tü-Unt die Konzentrationen an B(a)P im PM<sub>10</sub>-Feinstaub hoch sind. Der Jahresmittelwert

Tabelle 5.2.3-2: Berechnung des Emissionsfaktors von Benzo(a)pyren mit Hilfe des Emissionsfaktors von Kalium (58 ng K/ $\mu\text{g PM}_{10}$ ) und der Steigung der Regressionsgeraden b aus der Korrelationsgeradengleichung von Kalium und B(a)P

	b	$C_{K,E}$ ( $\mu\text{g K}/\mu\text{g PM}_{10}$ )	$C_{B(a)P,E}$ (ngB(a)P/ $\mu\text{g PM}_{10}$ )
Tübingen Mühlstraße	4,68	0,058	0,271
Reutlingen Lederstraße Ost	4,26		0,247
Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	7,60		0,441
<b>Mittelwert</b>			<b>0,320</b>

LUBW

Tabelle 5.2.3-3: Maximale und minimale Konzentrationen, sowie Mittelwerte von B(a)P im Messzeitraum

	Bemerkungen	B(a)P ng/m <sup>3</sup>
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, (357 Messwerte): 01.09.08 bis 31.12.09</b>		
Mittelwert 2009 (MW)	01.01.09 – 31.12.09	2,2
MW Sommer(1.5.-31.8.09)	Grundbelastung	0,23
Maximalwert	13.01.09	18,5
Minimalwert	09.08.09	0,07
<b>Tübingen Mühlstraße, (173 Messwerte): 10.09.08 bis 24.06.09</b>		
MW 2009	01.01.09 – 24.06.09	1,2
MW Sommer(1.5.-24.6.09)	Grundbelastung	0,14
Maximalwert	11.01.09	10,8
Minimalwert	21.06.09	0,02
<b>Reutlingen Lederstraße Ost, (176 Messwerte): 08.07.09 bis 31.12.09</b>		
MW 2009	08.07.09 – 31.12.09	0,7
MW Sommer(8.7.-31.8.09)	Grundbelastung	0,17
Maximalwert	20.11.09	3,4
Minimalwert	18.07.09	0,06

LUBW

für 2009 liegt bei 2,2 ng/m<sup>3</sup> PM<sub>10</sub>-Feinstaub und ist damit mehr als das Zweifache des Zielwertes für B(a)P der Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft [39. BImSchV] von 1,0 ng/m<sup>3</sup>. Am Messpunkt Tü-M liegt ein Mittelwert von 1,2 ng/m<sup>3</sup> aus 173 Messwerten vom 01.01. bis 24.06.2009 vor.

Die Grundbelastung in Tü-Unt (0,23 ng/m<sup>3</sup>) ist ebenfalls leicht erhöht im Vergleich zu den beiden anderen Messpunkten (Rt-L 0,17 ng/m<sup>3</sup>, Tü-M 0,14 ng/m<sup>3</sup>).

Im Winter erreichen die maximalen Konzentrationen an B(a)P das 75-fache der Grundbelastung in Tü-Unt und Tü-M (Tabelle 5.2.3-3). Am Messpunkt Tü-M jedoch ist das Niveau wesentlich niedriger.

Der Anteil am PM<sub>10</sub>-Feinstaub aus der Holzfeuerung, aus  $C_{B(a)P,PM_{10}Holzf}$  berechnet, ist gleich dem Anteil, berechnet aus  $C_{Lev,PM_{10}Holzf}$  und liegt in Tü-Unt im Winter 08/09 bei 30 % und von Oktober 09 bis Dezember 09 bei 29 %. Am Messpunkt Tü-M ergibt sich ein Anteil aus der Holzfeuerung aus  $C_{B(a)P,PM_{10}Holzf}$  von 15 % und aus  $C_{Lev,PM_{10}Holzf}$  von 18 % (Tabelle 5.3-2).

Da die berechneten Anteile aus der Levoglukosan- und B(a)P-Konzentration an den Messpunkten nahezu gleich sind liegt die Annahme nahe, dass beide Substanzen aus derselben Quelle stammen. Levoglukosan entsteht vor allem bei der Verbrennung von Holz, B(a)P kann aus der Holzverbrennung aber auch aus dem Straßenverkehr kommen. Die unterschiedliche Verkehrsbelastung an beiden Messpunkten liefert keine schlüssige Begründung für die festgestellten B(a)P-Konzentrationen. Trotz erhöhtem Lkw-Verkehr werden in Tü-M deutlich geringere B(a)P-Konzentrationen ermittelt. Der Verkehr, kann also nicht die Quelle für die hohen und unterschiedlichen Konzentrationen sein. Ein Eintrag von B(a)P von außen kann eine Ursache sein [Bericht Augsburg 2009]. Näher liegt jedoch, die verstärkte Nutzung von Holzfeuerungen in Tübingen-Unterjesingen.

Um die hohen Konzentrationen an der Messstation Tü-Unt beurteilen zu können, wäre eine umfassende Untersuchung der möglichen Quellen im Ort und in der Umgebung nötig.

#### 5.2.4 Berechnung des PM10-Anteils aus der Holzfeuerung aus elementarem Kohlenstoff und der organischen Masse im PM10-Feinstaub

Quellen für elementaren Kohlenstoff (EC) sind vor allem die Verbrennung fossiler Brennstoffe durch Kraftfahrzeuge, Kraftwerke und Hausbrand. Organisch gebundener Kohlenstoff (OC) entsteht bei der unvollständigen Verbrennung von fossilen Brennstoffen. Daneben sind natürliche Quellen vorhanden, wie z.B. Sporen und Pollen, und es bilden sich sekundäre organische Verbindungen aus Vorläufersubstanzen, wie Terpene. Analysiert werden kann nur der Anteil des Kohlenstoffes im PM10-Feinstaub. Dieser liegt aber in Form von organischen Verbindungen vor, die Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff oder Schwefel enthalten können. Daher wird der organisch gebundene Kohlenstoff mit Hilfe eines Faktors in die organische Masse (OM) umgerechnet (Kapitel 3.3.1.1).

In den Abbildungen 5.2.4-1 und 5.2.4-2 wird die Entwicklung der EC- und OM-Konzentration im Messzeitraum dargestellt. Die EC-Konzentration verläuft mit großen Amplituden aber ohne ausgeprägten Jahrgang. Bei den OM-Konzentrationen ist ein deutlicher Anstieg ab Dezember 08 zu erkennen. Ende März 09 nähern sich die Konzentrationen von EC und OM wieder an. Der Jahrgang der OM-Konzentrationen ähnelt dem der PM10-Konzentrationen (Abbildung 4.2-1). Im Dezember 08 und Januar 09 treten durch die vorherrschenden meteorologischen Bedingungen verstärkt Inversionswetterlagen auf, so dass keine Verdünnungseffekte bei OM und PM10-Feinstaub zum Tragen kommen. Zusätzlich wird verstärkt PM10-Feinstaub aus Holzfeuerungen zugeführt, deshalb steigen die Konzentrationen an.

Zur Abschätzung der Anteile der Holzfeuerung von OM wird das mittlere EC/OM Verhältnis in den Sommermonaten von Mai 09 bis August 09 berechnet. Nun wird mit Hilfe des Faktors  $F_{So}$  die Belastung an organischem Material über das ganze Jahr berechnet, dessen Quellen der Verkehr und biologische Substanzen sind. Die Differenz zur gesamten organischen Masse wird als Beitrag der Holzfeuerung  $OM_{Holzf}$  zum PM10-Feinstaub betrachtet [LUBW Bericht Nr. 72-01/2009].

Diese Berechnungen wurden für die Heizperioden von Oktober 08 bis März 09 sowie für Oktober 09 bis Dezem-

ber 09 durchgeführt. Für September und April ergeben sich keine plausiblen Ergebnisse, da es sich um Übergangsmonate handelt.

Wie aus Tabelle 5.2.4-1 ersichtlich ist, liegt der Faktor  $F_{So}$  für 2009 bei Tü-Unt in der Höhe von 1,0. Bei Tü-M und Rt-L basiert die Rechnung auf den Monaten Mai 09 und Juni 09 bzw. Juli 09 und August 09, da für diese Messpunkte nur Messdaten aus zwei Sommermonaten zur Verfügung stehen. Die Faktoren  $F_{So}$  liegen in Höhe von 0,7 und 1,1.

Am Messort Tü-Unt ergeben sich bis zu 21 % PM10-Feinstaubanteil, der aus der organischen Masse berechnet wird und aus der Holzverbrennung stammt. An den Messorten Tü-M und Rt-L liegen die Anteile bei 15 % und 13 %.

Zur Plausibilisierung der Daten werden die Anteile  $OM_{Holzf}$  an OM mit den Ergebnissen der  $^{14}C$ -Untersuchungen verglichen. In den untersuchten Tagesproben stammen etwa 80 % des organisch gebundenen Kohlenstoffs laut  $^{14}C$ -Analytik aus der Holzfeuerung (Kapitel 5.2). Wird die Masse  $OM_{Holzf}$  auf die gesamte organische Masse OM im PM10-Feinstaub bezogen ergibt sich für die selben Tagesproben ein Anteil von etwa 70 %. Diese Ergebnisse bestätigt die jeweilige Vorgehensweise.

Bei der Betrachtung der als Tracer in Frage kommenden Substanzen konnten Berechnungen für den Holzfeuerungsanteil im PM10-Feinstaub über die Kalium-, B(a)P- und Levoglukosankonzentrationen mit Hilfe der Emissionsfaktoren durchgeführt werden. Die organische Masse aus der Holzfeuerung wird über den Faktor  $F_{So}$  bestimmt. Die Ergebnisse werden im folgenden Kapitel erörtert.

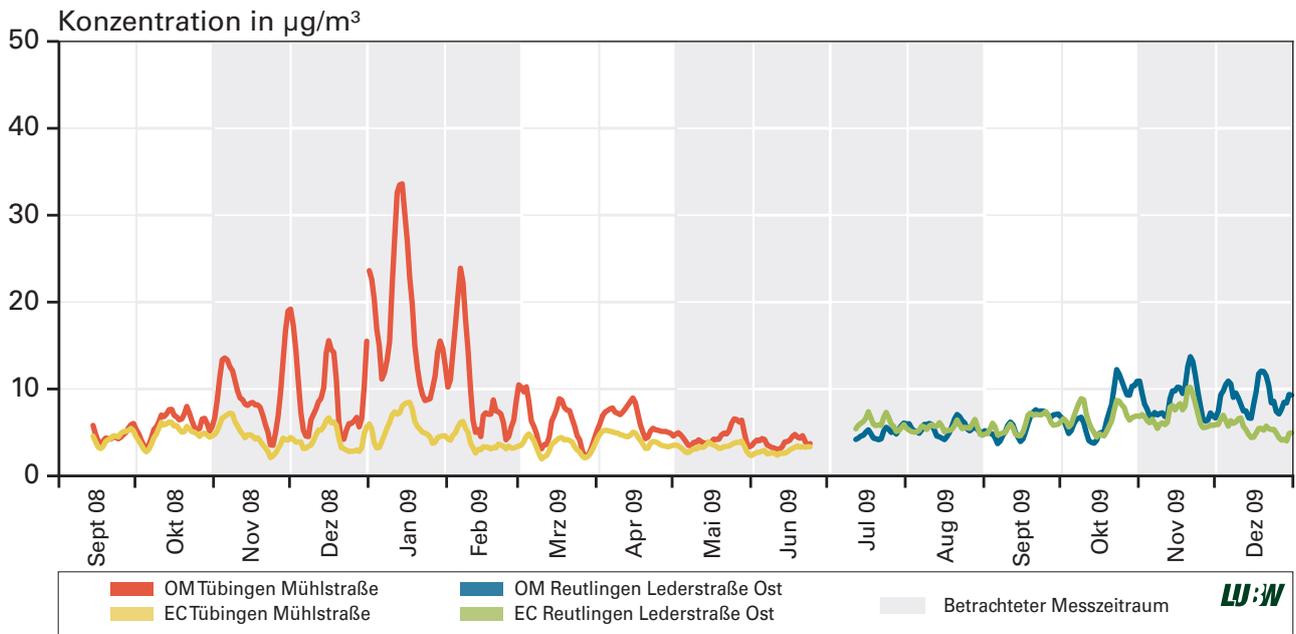


Abbildung 5.2.4-1: Verlauf der OM- und EC-Konzentration bei Tübingen Mühlstraße und Reutlingen Lederstraße Ost über den Messzeitraum (5 Perioden gleitender Durchschnitt)

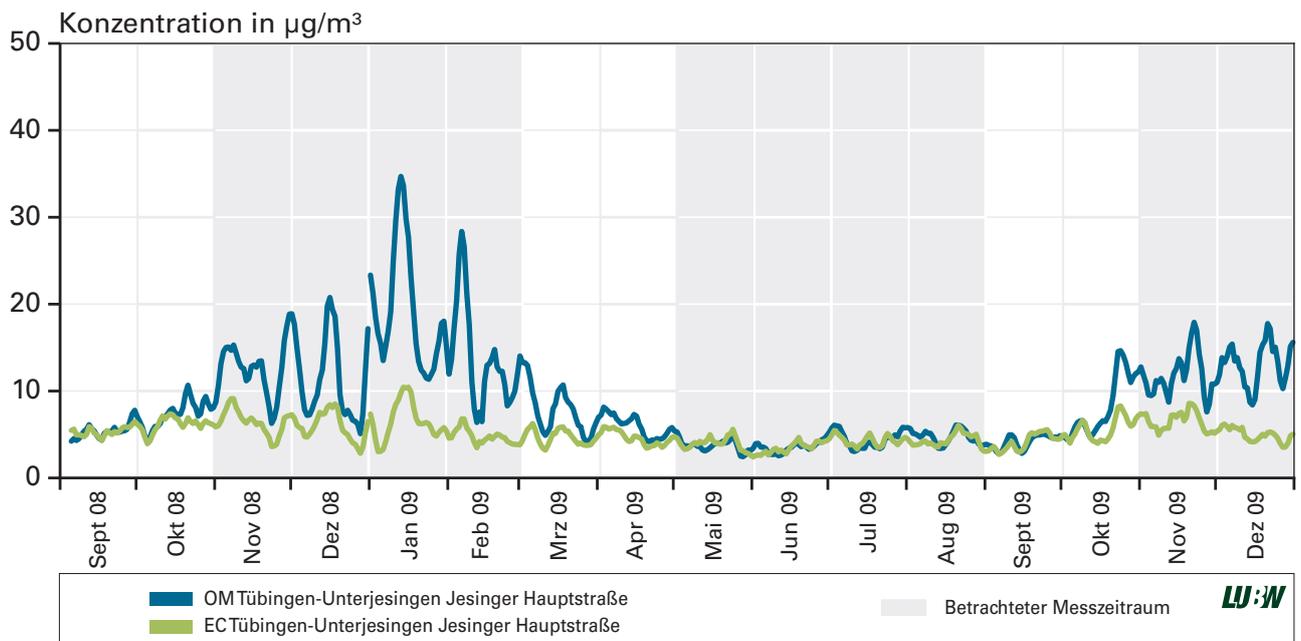


Abbildung 5.2.4-2: Verlauf der OM- und EC-Konzentration bei Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße über den Messzeitraum (5 Perioden gleitender Durchschnitt)

Tabelle 5.2.4-1: Berechnung des PM10-Feinstaubanteils aus der Holzfeuerung über die OC-Konzentration im PM10-Feinstaub

Monatsmittelwerte	Temperatur*	PM10-Feinstaub µg/m <sup>3</sup>	EC µg/m <sup>3</sup>	OC µg/m <sup>3</sup>	OM=OC*1,4 µg/m <sup>3</sup>	EC/OM	OM <sub>So</sub> =EC/F <sub>So</sub> µg/m <sup>3</sup>	OM <sub>Holz</sub> µg/m <sup>3</sup>	OM <sub>Holz</sub> %
	° Celsius								
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, 2008</b>									
September***	12,6	23	5,4	3,9	5,5	1,0			
Oktober	9,4	28	6,1	5,3	7,4	0,8	6,1	1,3	5
November	4,9	39	6,5	9,5	13,2	0,5	6,5	6,7	17
Dezember	0,4	37	6,0	8,4	11,7	0,5	6,0	5,7	15
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, 2009</b>									
Januar	-3,4	63	6,4	13,3	18,6	0,3	6,4	12,2	20
Februar	0,5	43	4,7	10,0	13,9	0,3	4,7	9,2	21
März	4,3	30	4,7	5,4	7,6	0,6	4,7	2,9	10
April***	11,6	29	4,6	4,2	5,9	0,8			
Mai	15,2	19	3,7	2,6	3,6	1,0			
Juni	16,5	17	3,6	2,6	3,6	1,0	F <sub>So</sub> *** = 1,0		
Juli	18,6	18	4,3	3,2	4,5	1,0			
August	19,3	20	4,3	3,3	4,6	0,9			
September***	15,4	24	4,2	3,0	4,2	1,0			
Oktober	9,4	31	5,8	6,1	8,6	0,7	5,8	2,8	9
November	6,6	34	6,4	8,5	11,9	0,5	6,4	5,5	16
Dezember	4,1	41	5,0	9,5	13,4	0,4	5,0	8,4	21
<b>Tübingen Mühlstraße, 2008</b>									
September***	12,6	24	4,6	3,6	5,1	0,9			
Oktober***	9,4	24	4,8	4,3	6,0	0,8			
November	4,3	35	4,6	7,5	10,5	0,4	6,5	3,9	11
Dezember	0,4	31	4,4	6,6	9,2	0,5	6,3	2,9	9
<b>Tübingen Mühlstraße, 2009</b>									
Januar	-3,4	61	5,5	12,2	17,1	0,3	7,9	9,2	15
Februar	0,5	41	3,8	7,1	9,9	0,4	5,4	4,5	11
März	4,3	28	3,5	4,0	5,7	0,6	4,9	0,7	3
April***	11,6	29	4,3	4,6	6,4	0,7			
Mai	15,2	20	3,3	3,2	4,5	0,7			
Juni	16,5	17	3,0	2,8	3,9	0,8	F <sub>So</sub> *** = 0,7		
<b>Reutlingen Lederstraße Ost, 2009</b>									
Juli	18,9	23	6,0	3,5	4,9	1,2	F <sub>So</sub> *** = 1,1		
August	19,7	25	5,4	3,9	5,4	1,0			
September***	15,4	33	6,0	4,3	6,0	1,0			
Oktober	9,3	33	6,6	5,3	7,4	0,9	6,0	1,4	4
November	7,7	34	6,9	6,1	8,6	0,8	6,3	2,3	7
Dezember	1,7	33	5,4	6,5	9,1	0,6	4,9	4,2	13

\* = Temperatur an der Messstation Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße für Reutlingen,  
Temperatur an der Messstation Tübingen Derendinger Straße für Tübingen  
\*\* = F<sub>So</sub> Faktor zur Berechnung des OM, dessen Quellen der Verkehr und biologische Substanzen sind.  
\*\*\* = Übergangsmonte, es ergeben sich keine plausiblen Werte



### 5.3 Betrachtung der errechneten Anteile an PM10-Feinstaub aus der Holzfeuerung über die Tracer Kalium, Levoglukosan, Benzo(a)pyren und organischer Kohlenstoff

Die Verbrennungsbedingungen der Holzfeuerungsanlagen haben großen Einfluss sowohl auf die Gesamtemission als auch auf die Konzentrationen der organischen und anorganischen Komponenten im PM10-Feinstaub. Neben den verwendeten Brennstoffen und der Bauart der Öfen ist auch das Nutzerverhalten für die entstehenden Emissionen ausschlaggebend [Studie Augsburg, 2009]. Grundsätzlich liegen bei vollständiger Verbrennung ein geringerer organischer Anteil und ein höherer Kalium-Anteil im PM10-Feinstaub vor. Die unterschiedlichen Nutzerverhalten sind eine mögliche Erklärung für die verschiedenen Anteile von PM10 berechnet aus Kalium, Levoglukosan und B(a)P. Eine hohe Korrelation der beiden organischen Komponenten Levoglukosan und Benzo(a)pyren mit Kalium ist vorhanden (Tabelle 5.2.1-1). Dies weist daraufhin, dass relativ konstante mittlere Verbrennungsbedingungen an den Standorten herrschen, die zu gleichmäßigen Emissionen aus sauerstoffreicher und sauerstoffarmer Verbrennung führen.

Um die Verbrennungsbedingungen an den Standorten Tü-Unt, Tü-M und Rt-L abschätzen zu können, werden die Steigungen  $b$  der Korrelationsgeraden (Gleichung 5.3-1) von Kalium und Levoglukosan in Tabelle 5.3-1 dargestellt.

Gleichung 5.3-1: Korrelationsgleichung für Kalium- und Levoglukosan-Konzentrationen

$$C_{K,I} = C_{K,G} + C_{Lev,I} \cdot b$$

$C_{K,G}$  : Grundbelastung an Kalium (Immission)

$C_{Lev,I}$  : Konzentration von Levoglukosan (Immission)

$C_{K,I}$  : Konzentration von Kalium (Immission)

An den Messpunkten des Messprojektes liegen im Mittel Verbrennungsbedingungen mit geringerer Sauerstoffzufuhr vor. Dies gilt unter der Voraussetzung, dass keine Brennstoffe mit hohen Kaliumanteilen eingesetzt werden. In Augsburg wurde im Mittel mehr Sauerstoff zugeführt.

Sauerstoffmangel erzeugt höhere organische Emissionen. Am deutlichsten wird dies am Messpunkt Tü-Unt (Tabelle

Tabelle 5.3-1: Steigung der Korrelationsgeraden von Kalium mit Levoglukosan an den Messstandorten im Vergleich zu Augsburg

Messstelle	Steigung $b$
Tübingen Mühlstraße	0,42
Reutlingen Lederstraße Ost	0,36
Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße	0,33
Augsburg (Mittelwert des Stadtgebietes)	0,46

**LUBW**

5.3-2), wo bei der Berechnung der Anteile aus der Holzfeuerung der Anteil an PM10-Feinstaub, berechnet aus der Levoglukosankonzentration, wesentlich höher liegt, als der Anteil an PM10-Feinstaub, berechnet aus der Kaliumkonzentration. Entsprechend verhalten sich auch die PM10-Anteile aus der Holzfeuerung, die aus der B(a)P-Konzentration im PM10-Feinstaub berechnet werden.

Für die Grundbelastung werden die Sommermonate Mai 09 bis August 09 herangezogen. Hierbei wird vorausgesetzt, dass keine Emission aus der Holzfeuerung vorliegt. Für Kalium und B(a)P wird als Grundbelastung die mittlere Konzentration der Komponente am jeweiligen Standort in diesen vier Monaten berücksichtigt (Tabelle 5.2.1-2, Tabelle 5.2.3-3). Bei der Berechnung von  $OM_{Holzf}$  wird das Verhältnis von EC/OC über denselben Zeitraum ermittelt und daraus die Grundbelastung berechnet. Bei Levoglukosan wird keine Grundbelastung berücksichtigt (Kapitel 5.2.2).

In den Übergangsmonaten März 09 und April 09 sowie September 08 und 09 und Oktober 08 und 09 sind die Schwankungen der PM10-Feinstaubkonzentrationen so groß, dass teilweise bei Abzug der Grundbelastung negative Emissionen erhalten werden. Diese Zeiträume werden nur eingeschränkt betrachtet.

Bei sinkenden Temperaturen steigt die Konzentration an PM10-Feinstaub. Gleiches gilt für die Konzentrationen der Tracer. Die Anteile sind jedoch unterschiedlich wie Tabelle 5.3-2 deutlich macht.

Bei Tü-Unt wird ein mittlerer Anteil aus der Holzfeuerung von 26 % von November 08 bis Februar 09 aus den Levoglukosan- und 30 % aus den B(a)P-Konzentrationen berechnet. Der Beitrag, der sich aus der Holzfeuerung aus Kalium und der organischen Masse ergibt, liegt jedoch bei 20 % bzw.

Tabelle 5.3-2: Berechnete PM10-Anteile aus der Holzfeuerung auf der Grundlage verschiedener Tracersubstanzen

Temperatur* ° Celsius	PM10- Feinstaub µg/m³	OM <sub>10</sub> Holz		C <sub>Lev,PM10</sub> Holz		PM10-Anteil berechnet aus Lev		C <sub>K,PM10</sub> Holz		PM10-Anteil berechnet aus K		C <sub>B(a)P</sub> PM10Holz		PM10-Anteil berechnet aus B(a)P	
		µg/m³	%	µg/m³	%	µg/m³	%	µg/m³	%	µg/m³	%	µg/m³	%	µg/m³	%
<b>Tübingen-Unteresingen Jesinger Hauptstraße, 2008</b>															
September	12,6	23		1,7	8			1,0	5			2	10		
Oktober	9,4	28	1,3	5	5,4	20		2,9	10			5	17		
November	4,3	39	6,7	17	9,6	25	26 <sup>I</sup>	7,0	18			9	24	30 <sup>I</sup>	
Dezember	0,4	37	5,7	15	11,8	32		7,7	21			12	32		
<b>Tübingen-Unteresingen Jesinger Hauptstraße, 2009</b>															
Januar	-3,4	63	12,2	19	13,3	21		14,6 <sup>III</sup>	23			24	39		
Februar	0,5	43	9,2	21	11,2	26		7,0	16			11	25		
März	4,3	30	2,9	10	6,2	21		3,7	12			7	22		
April	11,6	29			2,7	9		2,2	8			2	7		
Mai	15,2	19													
Juni	16,5	17													
Juli	18,6	18													
August	19,3	20													
September	15,4	24						0,7	3			1	5		
Oktober	9,4	31	2,8	9	8,0	26		4,5	15			8	26		
November	6,6	34	5,5	16	13,6	40	33 <sup>II</sup>	6,7	19			11	32	29 <sup>II</sup>	
Dezember	4,1	41	8,4	21	13,7	34		7,8	19			12	29		
<b>Tübingen Mühlstraße, 2008</b>															
September	12,6	24			1,0	4		0,7	3			1	4		
Oktober	9,4	24			2,3	9		1,9	8			2	7		
November	4,3	35	3,9	11	5,9	17	18 <sup>I</sup>	4,3	12			4	12	15 <sup>I</sup>	
Dezember	0,4	31	2,9	9	7,1	23		4,6	15			5	18		
<b>Tübingen Mühlstraße, 2009</b>															
Januar	-3,4	61	9,2	15	8,1	13		11,3 <sup>III</sup>	18			12	20		
Februar	0,5	41	4,5	11	7,8	19		4,3	11			5	11		
März	4,3	28	0,7	3	3,5	12		2,3	8			2	6		
April	11,6	29			1,7	6		1,8	6						
Mai	15,2	20													
Juni	16,5	17													
<b>Reutlingen Lederstraße Ost, 2009</b>															
Juli	18,9	23													
August	19,7	25													
September	15,4	33						1,1	3			1	2		
Oktober	9,3	33	1,4	4	3,3	10		2,5	7			3	8		
November	7,7	34	2,3	7	3,9	11	11 <sup>II</sup>	3,3	10			3	9	9 <sup>II</sup>	
Dezember	1,7	33	4,2	13	4,0	12		3,5	10			4	11		

\* = Temperatur an der Messstation Reutlingen Friedrich-Ebert-Straße für Reutlingen, Temperatur an der Messstation Tübingen Derendinger Straße für Tübingen

I = November 08 bis Februar 09

II = Oktober 09 bis Dezember 09

III = 01.01.09 ist nicht mit einbezogen

18 %. Entsprechend verhalten sich die berechneten Anteile im Zeitraum von Oktober 09 bis Dezember 09. Diese Anteile von PM10-Feinstaub aus der Holzfeuerung, berechnet aus der B(a)P-Konzentration sind hoch. Die entsprechenden Anteile bei Tü-M und Rt-L liegen dagegen auf einem Niveau mit der  $OM_{\text{Holzf}}$  und den errechneten Anteilen aus der Kaliumkonzentration.

An der Messstation Tü-M liegt der Anteil an PM10-Feinstaub im Winter 09/09, berechnet aus der Levoglukosankonzentration, bei 18 % sowie 12 % für  $OM_{\text{Holzf}}$  bzw. 14 % berechnet aus der Kaliumkonzentration. Dieselbe Situation ergibt sich von Oktober bis Dezember 09 für diesen Standort.

Der über den Emissionsfaktor errechnete PM10-Anteil der Holzfeuerung aus den Levoglukosankonzentrationen ist an allen Messpunkten höher als die Anteile, die sich aus  $OM_{\text{Holzf}}$  und aus der Berechnung über die Kaliumkonzentrationen ergeben.

Bei Levoglukosan handelt es sich um eine organische Verbindung, deren Kohlenstoffanteile in die organische Masse eingehen, die aus der OC-Konzentration im PM10-Feinstaub

berechnet wird. Bei der Beurteilung der Ergebnisse ist zu berücksichtigen, dass das gesamte Levoglukosan im organischen Kohlenstoff enthalten ist. Somit kann der aus der Levoglukosankonzentration errechnete Anteil am PM10-Feinstaub aus der Holzfeuerung nicht größer sein als der Anteil von  $OM_{\text{Holzf}}$  der sich aus dem Gehalt an organisch gebundenem Kohlenstoff ergibt.

Die Analyse von reinem Levoglukosan mit Hilfe eines LECO-Gerätes, das zu Bestimmung der OC/EC-Konzentration in PM10-Feinstaub benutzt wird, ergab bei einer Wiederfindungsrate von 96 % ein OC-Anteil von 88 % aus Levoglukosan, womit die Annahme bestätigt wird.

Berechnet man nun die PM10-Anteile aus der Holzfeuerung aus den gemessenen Levoglukosan-Konzentrationen mit dem mittleren Emissionsfaktor ( $C_{\text{Lev,E}} = 0,126 \mu\text{g Lev}/\mu\text{g PM10}$ ) ergeben sich Werte, die teilweise wesentlich höher liegen als  $OM_{\text{Holzf}}$ . Wird aber die Schwankungsbreite des Emissionsfaktors von  $\pm 50\%$  berücksichtigt, ergibt sich eine gute Übereinstimmung (Tabelle 5.3-3).

Der Fehler, der bei den Emissionsfaktoren angenommen wird, liegt bei  $\pm 50\%$ . Die PM10-Feinstaubkonzentration

Tabelle 5.3-3: Vergleich der berechneten Anteile der Holzfeuerung aus der organischen Masse und aus Levoglukosan mit verschiedenen Emissionsfaktoren

Messpunkt	Emissionsfaktor $C_{\text{Lev,E}}$			$OM_{\text{Holzf}}$	Emissionsfaktor $C_{\text{Lev,E}}$			$OM_{\text{Holzf}}$
	-50%	mittlerer	+50%		-50%	mittlerer	+50%	
Datum	0,063	0,126	0,189	%	0,063	0,126	0,189	%
	% Anteile berechnet aus Levoglukosan			Mittelwert	% mittlerer Anteil Nov. 08 bis Dez. 09			Mittelwert
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße</b>								
2008								
November	40	25	17	17				
Dezember	50	32	21	15				
2009					52	26	17	18
Januar	43	21	14	19				
Februar	52	26	17	21				
<b>Tübingen Mühlstraße</b>								
2008								
November	34	17	11	11				
Dezember	45	21	15	9				
2009					36	18	12	15
Januar	26	13	9	15				
Februar	38	19	13	11				

aus der Holzfeuerung, berechnet aus der Levoglukosan-, Benzo(a)pyren- und Kaliumkonzentration mit dem höheren bzw. niederen Emissionsfaktor, wird in den Abbildungen 5.3-1 und 5.3-2 berücksichtigt.

Die PM10-Feinstaubanteile aus der Holzfeuerung, die über die Kalium-, Levoglukosan- und B(a)P-Konzentrationen errechnet werden, sind durch die Ermittlung des Emissionsfaktors für Levoglukosan und B(a)P aus dem Emissionsfaktor für Kalium voneinander abhängig. Völlig unabhängig ist die Berechnung der organischen Masse ( $OM_{Holzf}$ ), die aus der Holzfeuerung stammt. Beim Vergleich der PM10-Feinstaubanteile aus  $C_{K,PM10Holzf}$  und  $OM_{Holzf}$  liegt eine gute Übereinstimmung vor (Tabelle 5.3-2). Bei den PM10-Feinstaubanteilen aus der Holzfeuerung, die über die Levoglukosan- und B(a)P-Konzentrationen berechnet werden, ergeben sich höhere Anteile der Holzfeuerung am PM10-Feinstaub. Ursache dafür kann der mittlere Emissionsfaktor sein, der die Verbrennungsbedingungen an den beiden Messpunkten nicht ideal abbildet. Bei der Erhöhung des Emissionsfaktors um 50 % auf 0,189  $\mu\text{g}$  Levoglukosan pro  $\mu\text{g}$  PM10-Feinstaub ergibt sich eine bessere Übereinstimmung mit  $OM_{Holzf}$ . Ebenso wenn der um 50 % erhöhte Emissionsfaktor für B(a)P von 0,46 ng B(a)P/ $\mu\text{g}$  PM10 verwendet wird.

Der Vergleich der Daten für Tü-Unt und Tü-M im Dezember 08 liefert für den Messpunkt Tü-Unt (Tabelle 5.3-2) grundsätzlich einen höheren PM10-Feinstaubanteil aus der Holzfeuerung.

Die berechneten PM10-Feinstaubkonzentrationen aus der Holzfeuerung, die über die Levoglukosan- und B(a)P-Konzentrationen erhalten werden, liegen leicht über dem Wert von  $OM_{Holzf}$  jedoch noch in dem zu berücksichtigenden Fehlerbereich. Auch die PM10-Feinstaubanteile aus der Holzfeuerung, die über die Kaliumkonzentrationen berechnet werden, sind ähnlich hoch wie die Anteile von  $OM_{Holzf}$  und leicht unter dem PM10-Feinstaubanteil, der aus der Levoglukosankonzentration berechnet wird. Die Tage um Silvester können zur Beurteilung der Beiträge aus der Holzfeuerung aus der Kaliumkonzentration nicht herangezogen werden, da hier der Einfluss des Abbrennens von Feuerwerkskörpern vorliegt.

In den Abbildungen 5.3-1 und 5.3-2 liegen an einzelnen Tagen sowohl in Tü-Unt aber vor allem in Tü-M die  $C_{Lev,PM10Holzf}$  erheblich über  $OM_{Holzf}$  und  $C_{K,PM10Holzf}$  (11. - 17.12.08 für Tü-M). Innerhalb dieses Zeitraumes bildet der mittlere Emissionsfaktor für Levoglukosan die Situation nicht ab.

Im Januar 2009 liegen  $C_{Lev,PM10Holzf}$  und  $C_{K,PM10Holzf}$  an beiden Messpunkten innerhalb des Fehlerbereichs auf dem Niveau der  $OM_{Holzf}$ . Ab dem 07.01.09 - 17.01.09 ergeben sich in Tü-Unt höhere PM10-Feinstaubkonzentrationen, die über die B(a)P-Konzentrationen berechnet werden. Dies geht mit niederen Temperaturen bis -10 Grad und geringen Windgeschwindigkeiten einher, so dass sich B(a)P in der Luft anreichern kann. Es findet keine Verdünnung statt. Ein hoher Wärmebedarf führt dazu, dass die Holzfeuerungen mit besseren Ausbrandbedingungen betrieben werden. Dabei wird mehr Kalium emittiert, daher steigt  $C_{K,PM10Holzf}$  leicht über  $OM_{Holzf}$ . Am Messpunkt Tü-M sind diese Verhältnisse nicht so stark ausgeprägt. Hohe  $C_{PM10Holzf}$  aus Kalium- und B(a)P-Konzentration liegen nur am 13. und 14.01.09 vor.

Bis Ende Januar sind  $C_{Lev,PM10Holzf}$  und  $C_{B(a)P,PM10Holzf}$  mit  $C_{K,PM10Holzf}$  an beiden Standorten vergleichbar.

Die Berechnung der Holzfeuerungsanteile am PM10-Feinstaub über vier Komponenten des PM10-Feinstaubes zeigt, dass sich die Emissionsbedingungen täglich ändern können. Ist der Wärmebedarf hoch, steigt die Kaliumkonzentration im PM10-Feinstaub und somit auch  $C_{K,PM10Holzf}$ . Wird die Holzfeuerung mit gedrosselter Luftzufuhr betrieben, erhöht sich  $C_{Lev,PM10Holzf}$  und  $C_{B(a)P,PM10Holzf}$ .

Bei der Berechnung der PM10-Feinstaubanteile aus der Holzfeuerung über die verschiedenen Tracer ergeben sich Unterschiede in den Anteilen am PM10-Feinstaub. Ursache sind die mittleren Verbrennungsbedingungen, die sich an einem Standort von Tag zu Tag unterscheiden können. Deshalb sind bei diesen Berechnungen die Fehlergrenzen zu berücksichtigen.

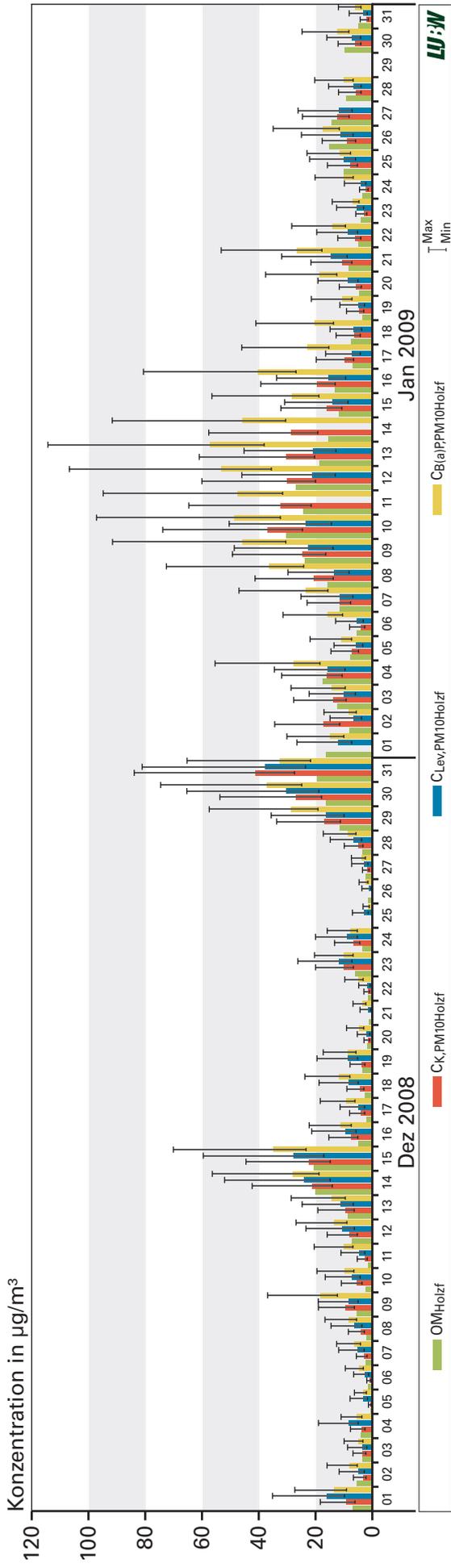


Abbildung 5.3-1: Vergleich von  $\text{OM}_{\text{Holz}}$  mit den Konzentrationen von  $\text{PM}_{10}$ -Feinstaub aus der Holzfeuerung, berechnet aus den Konzentrationen von Levoglucosan, Bl(a)P und Kalium in Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße vom 01.12.2008 bis 31.01.2009

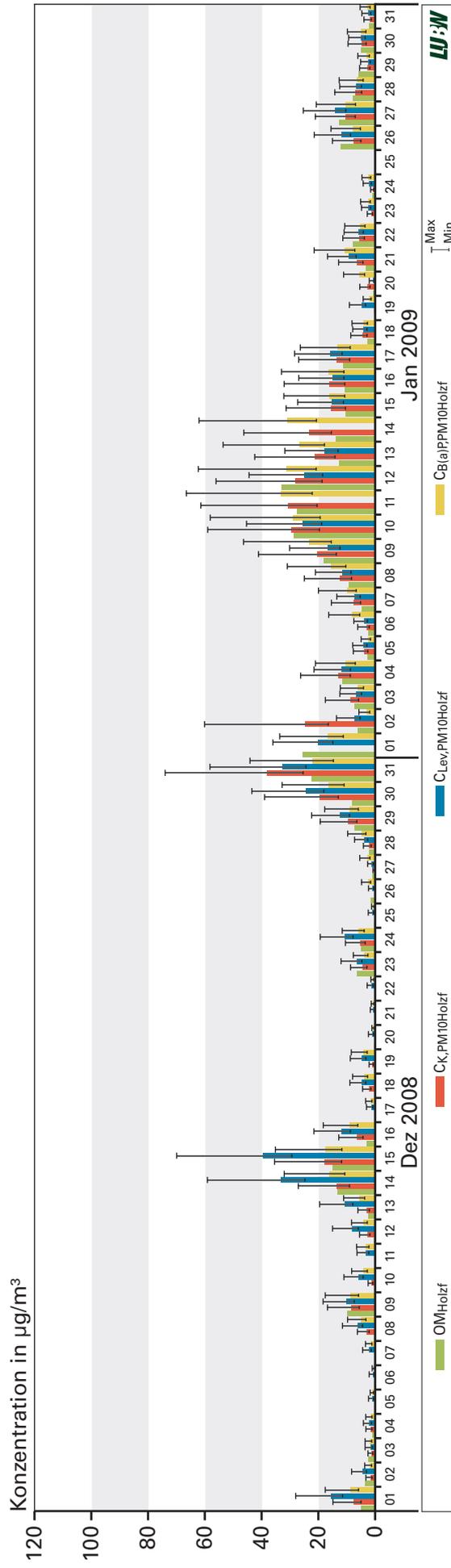


Abbildung 5.3-2: Vergleich von  $\text{OM}_{\text{Holz}}$  mit den Konzentrationen von  $\text{PM}_{10}$ -Feinstaub aus der Holzfeuerung, berechnet aus den Konzentrationen von Levoglucosan, Bl(a)P und Kalium in Tübingen Mühlstraße vom 01.12.2008 bis 31.01.2009

# 6 Der Einfluss von Streusalz auf die PM10-Konzentration

Das in Wasser aufgelöste Streusalz bildet durch die Aufwirbelungen im Straßenverkehr feine Tröpfchen, die eine ähnliche Teilchengröße wie PM10-Feinstaub haben. Diese können durch den PM10-Abscheider auf den Feinstaubfilter gelangen und dadurch die PM10-Feinstaubwerte beeinflussen.

Ob Streusalz (95 – 98 % aus Kochsalz, NaCl), das als Tauhilfe auf den Straßen bei Glätte und Schneefall zum Einsatz kommt, einen Anteil im PM10-Feinstaub aufweist, wird für den Messpunkt Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße für das Jahr 2009 im Folgenden berechnet.

In Tabelle 6-1 ist der Anteil von NaCl im PM10-Feinstaub über die festgestellten Chlorid- und Natriumkonzentrationen wiedergegeben.

Die hohen Konzentrationen an NaCl in den Monaten Januar und Februar, in denen auch die Wahrscheinlichkeit einer Schneebedeckung hoch ist, bestätigen die Annahme, dass das im PM10-Feinstaub gefundene Chlorid zum großen Teil aus dem Streusalz kommt. Der Eintrag von Chlorid aus der Holzfeuerung ist vernachlässigbar, da der Chlorid-Anteil in Holz unter 0,1 % liegt [ITADA-Projekt 10, 1995].

In den Sommermonaten Mai 09 bis August 09 liegen die Anteile an NaCl bei einem Fünftel der maximalen Konzentrationen, die im Winter auftreten (Tabelle 6-1). Der Ursprung dieser „Grundbelastung“ ist der Eintrag von Seesalz über den Ferntransport und die Aufwirbelung von Mineralstaub.

Laut EU-Richtlinie 2008/50/EG [EU-Richtlinie 2008/50/EG, 2008] können Überschreitungen des PM10-Tagesgrenzwertes aufgrund der Ausbringung von Streusalz auf Straßen bei der Beurteilung der Einhaltung der Luftqualitätsgrenzwerte unberücksichtigt bleiben.

Nach der Subtraktion der, über die Cl-Konzentrationen, errechneten NaCl-Konzentrationen des PM10-Feinstaubes wird der Einfluss des Streusalzes auf die Überschreitungs-

häufigkeit des PM10-Tagesgrenzwertes deutlich (Tabelle 6-2). Eine Verringerung der Anzahl der Überschreitungstage ergibt sich in den Monaten, in denen auch Schneefall oder Eisglätte zu erwarten sind. Im konkreten Fall reduzieren sich die Überschreitungstage im Jahr 2009 in Tübingen-Unterjesingen von 43 Tage auf 34 Tage und liegen damit unterhalb der zulässigen Anzahl von 35 Überschreitungstagen pro Jahr mit einem PM10-Tagesmittelwert von  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Um belastbare Angaben über den Einfluss des Streusalzes auf die Überschreitung des PM10-Tagesgrenzwertes zu machen, fehlen Wetterbeobachtungen an den Messstationen, wie Eis- und Schneebedeckung und Regen oder Schneefall. In der Regel umfassen die meteorologischen Daten ausschließlich den Niederschlag in Form der Wassermenge pro  $\text{m}^2$  und die Temperatur.

Die Anzahl der Einsätze der Straßenmeisterei sowie die aufgebrachte Streusalzmenge ist ferner von Interesse, um den Zusammenhang zweifelsfrei nachzuweisen.

Tabelle 6-1: Monatsmittelwerte von Chlorid und Natrium und deren Anteile am PM10-Feinstaub bei Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße

Monat	Anteil NaCl im PM10		Anteil NaCl im PM10		Mittelwerte % PM10
	Chlorid $\mu\text{g}/\text{m}^3$	aus Cl %	Na $\mu\text{g}/\text{m}^3$	aus Na %	
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße</b>					
November	0,99	5,2	0,75	4,2	
Dezember	1,12	6,2	0,79	5,5	
Januar	2,90	8,6	1,86	8,6	
Februar	3,19	13,2	2,30	11,6	7,9*
Mai	0,20	2,3	0,16	1,7	
Juni	0,04	2,5	0,16	0,4	
Juli	0,04	2,2	0,13	0,4	
August	0,05	2,1	0,15	0,5	1,5**
November	0,40	1,8	0,18	2,2	
Dezember	1,42	5,3	0,95	5,0	

\* = Mittelwert PM10 Winter, November 08 bis Februar 09

\*\* = Mittelwert PM10 Sommer, Mai 09 bis August 09



Tabelle 6-2: Berechnung der Überschreitungstage unter Berücksichtigung des Streusalzes

Monat	Überschreitungstage pro Monat	
	Mit Streusalz (NaCl)	Ohne Streusalz (NaCl)
<b>Tübingen-Unterjesingen Jesinger Hauptstraße, 2009</b>		
Jan 09	20	16
Feb 09	10	6
Mrz 09	1	1
Apr 09	0	0
Mai 09	0	0
Jun 09	0	0
Jul 09	0	0
Aug 09	0	0
Sep 09	0	0
Okt 09	2	2
Nov 09	4	4
Dez 09	6	5
<b>Überschreitungstage</b>	<b>43</b>	<b>34</b>

**LUBW**

## 7 Fazit und Ausblick

Mit Hilfe der Daten, die im Rahmen dieses Projekts erfasst wurden, ist es gelungen, Rückschlüsse auf die Holzfeuerung als Quelle eines Teils des PM10-Feinstaubes zu ziehen.

Die Berechnungen des Holzfeuerungsanteils wurden anhand mehrerer Inhaltsstoffe durchgeführt. Sie zeigen, dass neben der Erfassung der PM10-Belastung zur Identifikation der Quellen die Bestimmung der Konzentrationen von

- Kalium
- Levoglukosan
- Benzo(a)pyren
- elementarem und organisch gebundenem Kohlenstoff

im PM10-Feinstaub herangezogen werden können.

Um über die Konzentrationen von PM10-Inhaltsstoffen einen Anteil der PM10-Konzentration aus der Holzfeuerung berechnen zu können, sind die entsprechenden Emissionsfaktoren nötig. Emissionsmessungen mit dem Ziel, Emissionsfaktoren für Holztracer zu erhalten, wurden bislang nur für Kalium mit verwertbaren Ergebnissen durchgeführt [Bericht Augsburg, 2009]. Die Emissionsfaktoren für Levoglukosan und B(a)P werden über den Emissionsfaktor des Kaliums errechnet (Gleichung 5.2.2-1 und 5.2.3-1). Deshalb müssen die Ergebnisse der Berechnung der Holzfeuerungsanteile am PM10-Feinstaub aus Levoglukosan

und B(a)P in Abhängigkeit von den errechneten PM10-Anteilen aus der Holzfeuerung für Kalium betrachtet werden. Eine Bestimmung der Emissionsfaktoren von Levoglukosan und B(a)P direkt aus den Emissionen würde eine unabhängige Berechnung des Holzfeuerungsanteils möglich machen. Genaue Erkenntnisse über das Verhalten dieser Tracer, je nach Ausbrandbedingungen, könnten Rückschlüsse auf die Optimierung der Verbrennung von Holz erbringen und eine Senkung der Tracerkonzentration und damit des PM10-Anteils aus der Holzfeuerung nach sich ziehen.

Zur Abschätzung des Holzfeuerungsanteiles im PM10-Feinstaub haben sich ebenfalls die Ermittlungen der EC- und OC-Konzentrationen als geeignet herausgestellt.

In Tabelle 7-1 sind nochmals die Emissionsfaktoren sowie die mittleren Beiträge zur PM10-Feinstaubimmission aus der Holzfeuerung in den ausgewählten Messzeiträumen zusammengefasst. Die Emissionsfaktoren können mit einem Fehler von  $\pm 50\%$  behaftet sein [Bericht Augsburg, 2009].

Tabelle 7-1: Anteil des PM10-Feinstaubes, der aus der Holzfeuerung stammt, für die jeweiligen Messstationen

		Kalium	Levoglukosan	B(a)P	OM <sub>Holz</sub>	Mittelwerte
Emissionsfaktor		0,58 µg K/µg PM10	0,126 µg/µg PM10	0,32 ng/µg PM10		
Messpunkte		%	%	%	%	%
Tübingen-Unterjesingen	Nov 08 – Feb 09	20	26	30	18	24
Jesinger Hauptstraße	Okt 09 – Dez 09	18	33	29	15	24
Tübingen	Nov 08 – Feb 09	14	18	15	12	15
Mühlstraße	Okt 09 – Dez 09	-	-	-	-	-
Reutlingen	Nov 08 – Feb 09	-	-	-	-	-
Lederstraße Ost	Okt 09 – Dez 09	9	11	9	8	9

Reten kann als Leitsubstanz für die Holzfeuerung im Rahmen der landesweiten Messroutine für PM10-Feinstaub nicht herangezogen werden, da es nicht quantitativ auf den erfassten Partikeln vorliegt. Um Reten als Tracer zu nutzen wäre eine Modifizierung der Probenahme nötig. Dann wäre eine Aussage über die Nutzung von Nadelholz bei der Holzfeuerung möglich.

Im Mittel bleibt in der kalten Jahreszeit für den Messpunkt Tübingen-Unterjesingen ein Beitrag der Holzfeuerung zum PM10-Feinstaub von 24 % und am Vergleichsmesspunkt in Tübingen Mühlstraße ergeben sich 15 %. Der Unterschied ist unter Berücksichtigung des Fehlers von  $\pm 50$  % gering. Die Immission von Bestandteilen aus der Holzverbrennung ist demnach weit verbreitet und nicht nur als lokaler Einfluss zu betrachten.

Im Rahmen der Untersuchungen des PM10-Feinstaubes wurden die Natriumchloridkonzentrationen bestimmt. Laut EU-Richtlinie 2008/50/EG ist es unter bestimmten Voraussetzungen erlaubt, diese Anteile aus den PM10-Feinstaubkonzentrationen heraus zu rechnen (Kapitel 6). In Tabelle 6-2 ist dies für den Messpunkt Tü-Unt durchgeführt worden. Die Anzahl der Überschreitungstage pro Jahr reduziert sich erheblich und kann unter die Anzahl der zulässigen Überschreitungstage des PM10-Tagesgrenzwertes von 35 pro Jahr fallen.

Ziel des Messprojektes war die Bestimmung der Anteile am PM10-Feinstaub, die aus der Holzfeuerung stammen. Über die betrachteten Tracer Kalium, Levoglukosan, B(a)P und organische Masse ist dies unter Berücksichtigung der breiten Fehlergrenze von  $\pm 50$  % möglich.

# Literaturverzeichnis

22. **ALS-Kolloquium, Jahresbericht 2009:** PM10-Staubinhaltsstoffe aus Holzfeuerungen in der Immission: Erste Ergebnisse aus Baden-Württemberg; Creutzmacher H., LUBW Baden-Württemberg
39. **BImSchV, 2010:** 39. Verordnung zur Durchführung des Bundesimmissionsschutzgesetzes in der Fassung vom 02.08.2010, Bundesgesetzblatt 2010, Teil1 Nr.40, S.1065ff
- EU-Richtlinie 2008/50/EG, 2008:** EU-Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa
- Grosjean und Friedlander, 1975:** Gasparticle distribution factors for organic and other pollutants in the Los Angeles atmosphere. Grosjean D., Friedlander S. K., Journal of the Air Pollution Control Association 1975; 25 (10), 1039-1044
- ITADA-Projekt 10:** Alternative Kulturen, Nachwachsende Rohstoffe: Anbau von Energiepflanzen zur Ganzpflanzengewinnung mit verschiedenen Beerntungsmethoden; Schwachholzverwertung, Bericht über die Versuchsjahre 1994 - 1995, IfuL Müllheim
- Jorden et al., 2006:** Levoglucosan as an atmospheric tracer for woodsmoke. Jorden T. B., Seen A. J., Jacobsen G. E., Atmos. Environ. 40 (2006) Nr.27, S. 5316-5321
- LfU Bayern, 2007:** Endbericht zum Forschungsvorhaben; Praxistest zur Erhebung der Emissionssituation von Pelletfeuerungen im Bestand, Bayrisches Landesamt für Umwelt, 2007
- LUBW Bericht 61-15/2009:** Ergebnisse der Spotmessungen 2008, Karlsruhe 2009; Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg, Bericht Nr. 61-25/2009
- LUBW Bericht 33-06/2010:** Ergebnisse der Spotmessungen 2009, Karlsruhe 2010; Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg, Bericht Nr. 33-09/2010
- LUBW Bericht Nr. 72-01/2009:** Untersuchung von massenrelevanten Inhaltsstoffen in Feinstaub PM10, Karlsruhe 2009; Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg, Bericht Nr. 72-01/2009
- Puxbaum et al., 2007:** Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. Puxbaum H., Caseiro A., Sanchez-Ochoa A., Kasper-Giebl A., Claeys M., Gelencser A., Legrand M., Preunkert S. and Pio C., Journal of Geophys. Res., Vol. 112, D23S05, doi: 10.1029/2006JD008114, 2007
- Simoneit, 2002:** Biomassburning – A review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. Simoneit B. R. T., Appl. Geochem. 17 (2002) Nr.3, S. 129-162
- Studie Augsburg, 2009:** Einfluss von Emissionen aus der Gebäudeheizung auf Feinstaubimmissionen im Raum Augsburg. Universität Augsburg, Juni 2009
- Szidat et al., 2004:** THEODORE, a two step heating system for the EC/OC determination of radiocarbon ( $^{14}\text{C}$ ) in the environment. Szidat S., Jenk T. M., Gäggeler H. W., Syndal H.-A., Hajdas I., Bonani G., Sauer M., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 223-224 (2004) 829-836
- Szidat et al., 2006:** Contribution of fossil fuel, biomass-burning and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by  $^{14}\text{C}$ . Szidat S., Jenk T. M., Syndal H.-A., Kalberer M., Wacker L., Hajdas I., Kasper-Giebl A., Baltensperger U., Journal of Geophys. Res., 111, D07206, doi: 10.1029/2005JD006590, 2006
- Yoshiteru I. et al., 2009:** A highly resolved anion-exchange chromatographic method for determination of saccharidic tracers for biomass combustion and primary bio-particles in atmospheric aerosol. Yoshiteru I., Engling G., Puxbaum H., Herrmann H., Atmospheric Environment 43 (2009) 1367-1371



