

Abschlussbericht zum Vorhaben

„Analyse des quantitativen Einflusses der Holzverbrennung auf die Feinstaubkonzentration in Berlin und Brandenburg anhand des Tracers Levoglucosan“

- Anschlussprojekt -

Projektpartner:

Das Land Berlin, vertreten durch die
Senatsverwaltung
für Stadtentwicklung und Umwelt
Brückenstraße 6
10179 Berlin
vertreten durch den Senator

Das Land Brandenburg, vertreten durch das
Ministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz
des Landes Brandenburg
14411 Potsdam
vertreten durch die Ministerin

Die Bundesrepublik Deutschland, vertreten durch das
Bundesinstitut für Risikobewertung
Max-Dohrn.Str. 8-10
10589 Berlin
- nachfolgend „BfR“ genannt

Beteiligte Personen

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt:

Martin Lutz

Dr. Andreas Kerschbaumer

Dr. Annette Rauterberg-Wulff

Rainer Nothard

Sebastian Clemen

Ministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz
des Landes Brandenburg

Lutz Schaefer

Landesamt für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz Brandenburg

Rainer Offermann

BfR

Dr. Peter Laux

Sandra Wagener

Einleitung

Im Bereich der Luftreinhaltung ist in den letzten Jahren in Europa, darunter auch in Deutschland, die Holzverbrennung als potentiell signifikante Quelle stetig in den Fokus der Diskussionen um die Einhaltung der Feinstaubgrenzwerte gerückt. Obwohl Holzverbrennung als Quelle zur Feinstaubbelastung prinzipiell bekannt war, wurde sie in den letzten zwei Jahrzehnten in Deutschland wenig diskutiert und ist bei der Grenzwerteinhaltung kaum berücksichtigt worden. Dies ist in erster Linie darauf zurückzuführen, dass die Verwendung von Holz als Heizmaterial in den letzten Jahrzehnten stark zurückgegangen war. Angesichts einer Zunahme an Kaminöfen in den letzten 10 Jahren in Deutschland, wie von Pfeffer und Breuer (2013) aufgeführt, ist die Diskussion um das Thema Holzverbrennung allerdings wieder aufgenommen worden.

So stieg in den letzten Jahren die Anzahl der Untersuchungen und Publikationen zum Thema Holzverbrennung (Creutzmacher, 2011; Pfeffer et al., 2013; Poulain et al., 2011; Wagener et al., 2012). Zudem ist auch den Bundesländern die Relevanz dieser Feinstaubquelle stärker ins Bewusstsein gerückt. Im Oktober 2013 wurde eine Veranstaltung vom Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen (LANUV) organisiert, bei der Behörden, Überwachungsämter und Forschungsinstitutionen aus Deutschland, aber auch der Schweiz und Belgien ihre Ergebnisse zum Thema Holzverbrennung präsentierten und auf die Bedeutung dieser Quelle hinwiesen. Hierbei fand der Immissionsschutz besondere Berücksichtigung und wurde an Beispielen von Feinstaubmessungen in NRW, im Harz und Berlin- Brandenburg, sowie Flandern und diversen Orten in der Schweiz aufgeführt. Aber auch Emissionsmessungen sowie regulatorische und technische Belange, beispielsweise die Anforderungen an Kleinf Feuerungsanlagen wurden diskutiert.

Aufgrund einer Studie aus dem Jahr 2012, die belegte, dass Holzverbrennung als Feinstaubquelle in Berlin nicht zu vernachlässigen ist (Wagener et al., 2012), wurde Ende des Jahres 2012, initiiert von den Ländern Berlin und Brandenburg in Zusammenarbeit mit dem Bundesinstitut für Risikobewertung (BfR), ein Projekt mit dem Ziel gestartet, den Beitrag der Holzverbrennung zur Feinstaubbelastung in beiden Bundesländern zu quantifizieren. Hierbei konnte bestätigt werden, dass Holzverbrennung erheblich zu Feinstaub in den kälteren Jahreszeiten beitragen kann, wobei Spitzenkonzentrationen von $25 \mu\text{g m}^{-3}$ bzw. 48% Anteil- PM_{10} erreicht wurden. Die Konzentrationslevel an Stationen in bzw. nahe Berlin waren vergleich-

bar, eine Station im regionalen Hintergrund Brandenburgs allerdings wies deutlich niedrigere Konzentrationen auf. Aufgrund hoher Korrelationen der Konzentrationen der unterschiedlichen Stationen wurde zunächst davon ausgegangen, dass es sich bei Holzverbrennung um eine eher regional geprägte Quelle handelt. Da allerdings kein Gebiet identifiziert werden konnte, dass für besonders hohe Konzentrationen durch Ferntransport verantwortlich gemacht werden kann und deutlich geringere Konzentration im ländlichen Hintergrund gefunden wurden, wurde geschlossen, dass es sich weniger um eine Quelle aus dem überregionalen Hintergrund, sondern um eine diffus verteilte Quelle handelt. Das würde bedeuten, dass Holzverbrennung im Gegensatz zur Quelle Verkehr, welche durch Hot Spots an bestimmten Orten gekennzeichnet ist, gleichmäßiger über ein großflächiges Gebiet zu hohen Konzentrationen in der kalten Jahreszeit beiträgt.

Vor allem für die Windrichtungsanalysen als Mittel zur Quellidentifizierung der Quelle Holzverbrennung war die in diesem Projekt vorhandene Datengrundlage recht gering, so dass diese Ergebnisse zunächst mehr als Tendenz bewertet werden mussten. Daher wurde ein Anschlussprojekt mit der Gewinnung einer breiteren Datenbasis angestrebt, um eine effizientere und signifikantere Windrichtungsanalyse möglich zu machen. Dieser Bericht präsentiert Ergebnisse, die auf zwei unterschiedlichen Messperioden aufbaut. Zudem werden auch Tage berücksichtigt, die nicht von Inversionswetterlagen geprägt sind. Damit soll verglichen werden, wie stark der Einfluss der meteorologischen Bedingungen auf die Konzentrationen von Holzverbrennung in der Atmosphäre sind.

Experimentalteil

Standort und Probenahme

Für die Probenahme wurde auf dieselben Stationen zurückgegriffen, die auch im Vorgängerprojekt untersucht wurden. Da sich im Vorgängerprojekt zeigte, dass sich aus den Daten der Station Berlin-Neukölln keine zusätzlich für die Quellidentifizierung bedeutsamen Erkenntnisse ziehen lassen, wurde diese Station bei diesen Untersuchungen nicht mehr berücksichtigt, um dafür wiederum die Anzahl der Probenahmetage erhöhen zu können. Abb. 1 zeigt die verbliebenen zwei Berliner Stationen (rot markierte Punkte) aus dem sich im Routine-Betrieb befindlichen Berliner Luftgütemessnetz (BLUME) und zwei Stationen in Brandenburg (schwarz markierte Punkte), ebenfalls aus dem sich im Routine-Betrieb befindlichen Mess-

netz des Landes Brandenburgs gewählt. Die Proben wurden analog zum Vorgängerprojekt mit einem Low Volume Sampler ($2,3 \text{ m}^3 / \text{h}$) für 24 h (0.00 – 0.00) gesammelt. Für die Analyse wurden Proben aus dem Jahr 2013 und 2014 gewählt. Anders als im Vorgängerprojekt wurde nur die kalte Jahreszeit berücksichtigt, da Holzverbrennung im Sommer als vernachlässigbar identifiziert wurde. Weiterhin sollte der Untersuchungszeitraum zwei unterschiedliche Charakteristika aufweisen: Zum einen werden insgesamt 4 Wochen (4x7 Tage) aus den Monaten Januar – April 2013 analysiert, in denen Inversionswetterlagen vorlagen und es auch zu Grenzwertüberschreitungen kam. Zum anderen wurde ein Zeitraum von zwei Monaten täglicher Probenahme ausgewählt, um eine kontinuierliche Periode zu erhalten, in der auch Tage ohne Inversionswetterlage berücksichtigt werden. Diese Untersuchungsphase soll dafür genutzt werden, eine gezieltere Quellenanalyse durchführen zu können. Da im zweiten Untersuchungszeitraum allerdings keine Überschreitungstage für PM_{10} auftraten, dieser Vergleichsaspekt aber als wichtig erachtet wurde, wurde im Nachgang ein weiterer 13-tägiger Zeitraum im Februar / März 2014 ausgewählt. Dort kam es nicht nur zu stark erhöhten Feinstaubwerten, es ließ sich außerdem feststellen, dass es zu diesem frühen Jahreszeitpunkt bereits außergewöhnlich viele Überschreitungstage gab. Dieser Zeitraum konnte allerdings nur für die Berliner Station Frankfurter Allee berücksichtigt werden, da diese Filter für Brandenburg und für Berlin-Buch nicht zur Verfügung standen. Da für die Berliner Station Frankfurter Alle sowie für die Brandenburger Station Bl.-Mahlow nicht für jeden Tag Proben erhältlich waren, kommt es in diesen Datensätzen zu Datenlücken (Fehlen der Probe jedes 3. Tages). Ein weiterer Unterschied zwischen den Probebeständen beider Bundesländer liegt in der Größenfraktion und dem Filtertyp. Während für Berlin $\text{PM}_{2,5}$ auf Quartzfiltern vorlag, musste für Brandenburg auf PM_{10} , teilweise gesammelt auf Glasfaserfiltern, zurückgegriffen werden. Um das Verhältnis von Levoglucosan zwischen PM_{10} und $\text{PM}_{2,5}$ zu bestimmen, wurde bereits im Vorgängerprojekt ein Verhältnis nahe 1 der beiden Fraktionen zueinander ermittelt, worauf auch in diesem Projekt wieder zurückgegriffen wurde. Die ermittelten Konzentration für $\text{PM}_{2,5}$ werden im folgenden also 1:1 als PM_{10} -Konzentrationen betrachtet.

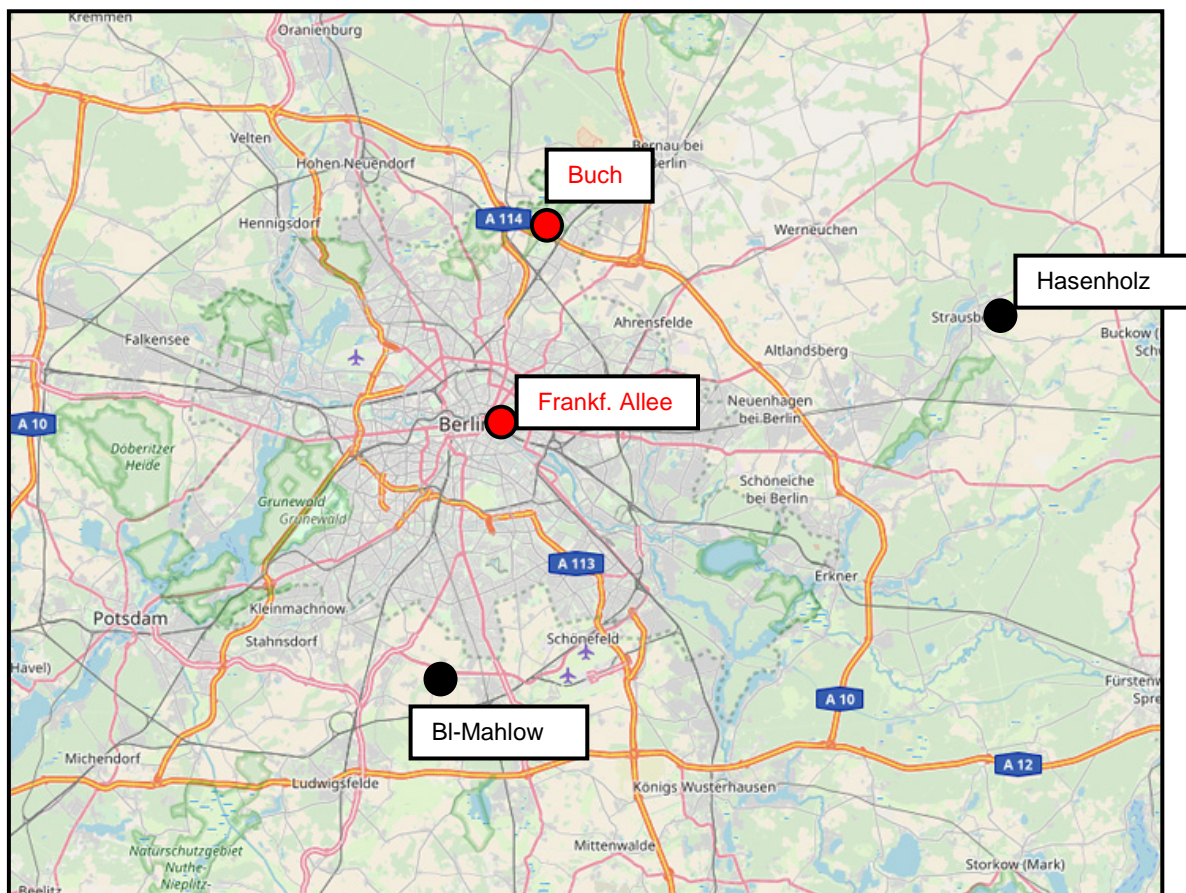


Abbildung 1: Probenahme-Standorte in Berlin und Brandenburg (rot = Berlin, schwarz = Brandenburg),
Karte: OpenStreetMap

Für die Auswertung wurden weiterhin meteorologische Daten hinzugezogen, die von der Messstelle der Freien Universität Berlin in Dahlem, im Südwesten Berlins stammen. Die Niederschlagsdaten wurden im Grunewald, im Westen von Berlin aus dem BLUME-Messnetz genommen. Für die Trajektorienanalyse sowie für die Mischungsschichthöhen wurden GDAS 1-deg Daten für das Hysplit Model angewendet (500 m ü. NN), welche durch das Air Resources Laboratory (ARL) (zugehörig zum National Oceanic and Atmospheric Administration der USA (NOAA)) bereitgestellt werden (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>).

Tabelle 1: Ausgewählte Probenahmetage

		Berlin - Frankf. Allee	Berlin - Buch	Brandenburg - Hasenholz	Brandenburg - Bl-Mahlow
Messzeitraum 1: Januar – April 2013	22.01. – 28.01.2013				
	20.02. – 26.02.2013	Jeden 3. Tag	Täglich	Täglich	Jeden 3. Tag
	07.04. – 13.04.2013	keine Probe			keine Probe
	21.04. – 27.04.2013				
Messzeitraum 2: Oktober – Dezember 2013	15.10. – 15.12.2013	Täglich	Täglich	Täglich; nur bis 10.12.2013	Jeden 3. Tag keine Probe; nur bis 05.12.2013
Messzeitraum 3: Februar – März 2014	25.02. – 15.03.2014	Jeden 3. Tag keine Probe	-	-	-

Analytik

Wie im Vorgängerprojekt wurde die Quantifizierung der Holzverbrennung anhand des Tracers Levoglucosan durchgeführt. Es wurde dabei auf dieselbe Methode zurückgegriffen. Ein Teil der Filterproben (1,7 cm Ø = 2,3 cm²) (Glasfaser (Whatman) und Quarzfaser (Pallflex®)) wurde mit einer Dichlormethan / Methanol-Mischung (80:20) im Ultraschallbad extrahiert, das Extrakt mit Stickstoff bis zur Trockene eingeengt, daraufhin mit N,O-Bis(trimethylsilyl)trifluoroacetamid mit 1% Trimethylchlorosilan (BSTFA + 1% TMCS) und Pyridin derivatisiert und anschließend ins GC-MS injiziert. Die Identifizierung der Substanz erfolgte über einen Standard (Sigma Aldrich), als interner Standard wurde Methyl-b-D-xylanopyranosid (MXP) verwendet. Die Quantifizierung wurde selektiv im single-ion-monitoring Modus über die Massen 333 (Levoglucosan), sowie 204 und 217 (MXP) durchgeführt.

Die Nachweisgrenze für die Methode wurde über Blindfilter bestimmt (Mittelwert + 3*Standardabweichung) und lag bei 0,4 ng. Bei einer Analyse des Filters von 2,3 cm² und einer Injektion von 0,2 µl entspricht dies einer Konzentration von 18,4 ng / m³.

Ergebnisse und Diskussion

Konzentrationen

Tabelle 2 gibt die Mittelwerte und Konzentrationsbereiche der einzelnen Stationen für Levoglucosan, und Tabelle 3 für PM₁₀ an. Hierbei zeichnen sich geringere Levoglucosan-

konzentrationen für den regionalen Hintergrund (Hasenholz) ab, wobei die Konzentrationsunterschiede nicht mehr so deutlich sind wie es im Jahr 2012 beobachtet wurde. Die Levoglucosankonzentrationen erreichen im Mittel bis zu 181 ng m^{-3} an der Berliner Verkehrsstation Frankfurter Allee. In der 1. Periode erreichen die Werte dort sogar 231 ng m^{-3} . Im Vergleich zum Jahr 2012 fällt auf, dass die Station BI-Mahlow deutlich geringere Werte im Jahr 2013 aufweist. Damals lag die Konzentration bei 340 ng m^{-3} , in den kälteren Monaten (Januar / Februar / Oktober) wurden dort sogar im Mittel 406 ng m^{-3} erreicht. Mit 177 ng m^{-3} liegen die Konzentrationen also deutlich niedriger, weiterhin werden in der 1. Messperiode in BI-Mahlow sogar die niedrigsten Konzentrationen aller vier Stationen gemessen, in der 2. Messperiode hingegen ist der Mittelwert mit 189 ng m^{-3} im Vergleich zu den anderen Stationen wieder am höchsten. Die Tendenz zu niedrigeren Levoglucosankonzentrationen ist auch bei den PM_{10} -Konzentrationen zu beobachten, die im Schnitt ca. $11 \mu\text{g m}^{-3}$ niedriger sind als im Messzeitraum 2012. Die geringeren Konzentrationen im Jahr 2013 gegenüber 2012 in Berlin lassen sich vermutlich mit dem milden Klima im Jahr 2013 begründen, was sich auch auf das Heizverhalten auswirkt. Im Messzeitraum Januar / Februar 2012 lag die Temperatur im Mittel noch bei $-7.8 \text{ }^\circ\text{C}$, im Oktober 2012 bei $8.5 \text{ }^\circ\text{C}$. In der Messphase Januar / Februar 2013 wurde eine mittlere Temperatur von -0.5°C gemessen, im Messzeitraum Oktober 2013 liegen die Temperaturen bei 11.7°C , wobei der gesamte Messzeitraum bis Mitte Dezember eine mittlere Temperatur von 6.5°C erreicht.

Im Februar / März 2014 wurden in Berlin zahlreiche Überschreitungstage gemessen. Dies spiegelt sich z.T. auch in den Levoglucosankonzentrationen wieder. Mit 291 ng m^{-3} wird zu diesem Zeitpunkt der höchste Mittelwert an der Frankfurter Allee gemessen.

Tabelle 2: Mittelwert (Gesamt; (1. Periode; 2. Periode)) und Konzentrationsbereiche von Levoglucosan an den 4 Stationen in ng/m^3 .

	N	Mittelwert	Min	Max	Standardabweichung
Frankfurter Allee	79	181 (231; 166)	19	535	110
Buch	88	146 (196; 124)	< NWG	520	118
Hasenholz	85	128 (170; 108)	< NWG	506	111
BI-Mahlow	54	177 (158; 189)	< NWG	607	129
Fr.Alee 2014	13	291	41	522	137

Tabelle 3: Mittelwert (Gesamt; (1. Periode; 2. Periode)) von PM₁₀ an den 4 Stationen in µg/m³.

	N	Mittelwert	Min	Max	Standardabweichung
PM ₁₀ Frankfurter Allee	90	30 (42; 25)	11	84	14
PM ₁₀ Buch	82	21 (32; 18)	6	65	12
PM ₁₀ Mahlow	70	20 (29; 17)	5	65	12
PM ₁₀ Hasenholz	85	18 (29; 13)	5	65	13
Fr. Allee 2014	13	58	33	80	14

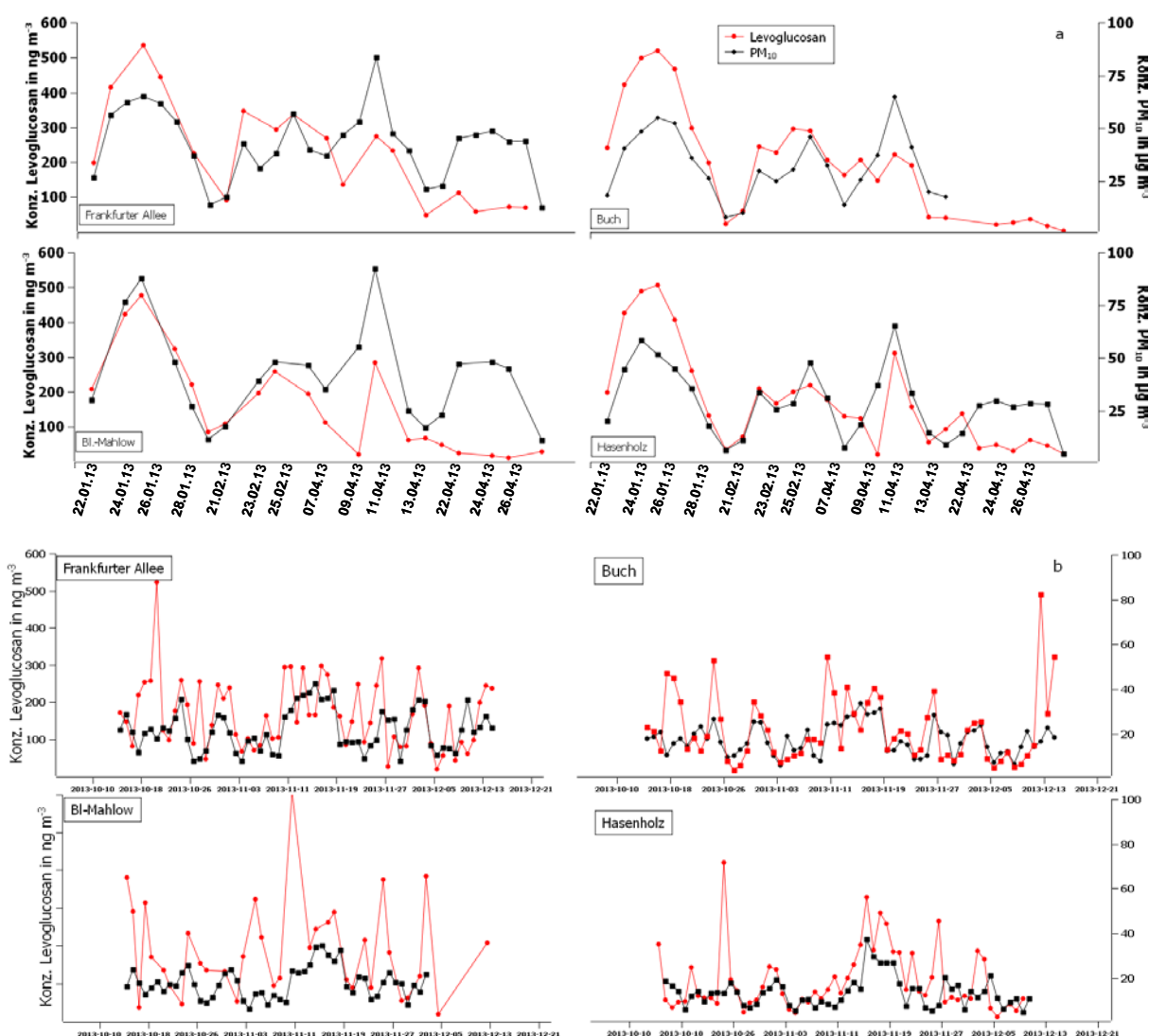


Abb. 3: Levoglucosan- und PM₁₀-Konzentrationen an den vier Stationen.
1. Messzeitraum, b) 2. Messzeitraum

In Abbildung 3 sind die Zeitreihen für die 2 Untersuchungszeiträume aller vier Stationen für Levoglucosan und PM₁₀ aufgeführt. Da es sich um Zeiträume während der Heizperiode handelt, sind keine signifikanten temporalen Konzentrationsunterschiede bzw. saisonalen Konzentrationsverläufe erkennbar. Lediglich im April im ersten Messzeitraum ist eine abnehmende Levoglucosankonzentration festzustellen, während die PM₁₀-Konzentration erhöht bleibt.

Tabelle 4 gibt die Korrelationen von Levoglucosan zwischen den Stationen für den gesamten Untersuchungszeitraum an. Die Korrelationen sind überwiegend signifikant, was auf eine gleichmäßige Verteilung der Levoglucosankonzentrationen über das Untersuchungsgebiet und somit auf eine regional geprägte Quelle hindeutet. Vor allem im ersten Untersuchungszeitraum sind die Korrelationen höher als in Messzeitraum in 2012.

**Tabelle 4: Korrelation von Levoglucosan zwischen den Stationen;
Gesamter Zeitraum, 1. Periode / 2. Periode; nach Pearson.**

	Frankf. Allee	Buch	Hasenholz
Frankf. Allee			
Buch	0,76 0,95 / 0,59		
Hasenholz	0,51 0,92 / 0,32	0,65 0,95 / 0,64	
Mahlow	0,68 0,93 / 0,44	0,84 0,95 / 0,43	0,60 0,95 / 0,31

Fettgedruckte Zahlen zeigen signifikante Korrelationen.

Im Vorgängerprojekt waren die Stationen BI-Mahlow und Hasenholz saisonweise nicht signifikant korreliert mit den anderen Stationen. Im Falle von Hasenholz wurde vermutet, dass ein noch nicht einheitliches Heizverhalten im Herbst im Vergleich zur Stadt vorhanden war, da im Oktober die Heizsaison gerade erst startet. Es wurde diskutiert, dass durch unterschiedliche Witterungsbedingungen und unterschiedliches Heizverhalten zwischen Stadt und Land Unterschiede entstehen. Die Stadt-/ stadtnahen Gebiete wiesen dagegen vermutlich aufgrund ihrer geringen Distanz zueinander immer noch signifikante Korrelationen auf. Im Winter war dann im gesamten Untersuchungsgebiet bereits mit dem Heizen gestartet worden. Die geringen Korrelationen mit der Station BI-Mahlow im Winter waren vorerst nicht zu erklären. In den hier präsentierten Ergebnissen aus dem Jahr 2013 sind die Konzentrationen in

der ersten Messphase, die den Winter repräsentiert, allerdings hoch signifikant mit den anderen Stationen, während die geringe Signifikanz für diese Station eher im Herbst auftritt, was gegenläufig zu den Ergebnissen aus dem Jahr 2012 ist. Weiterhin wurde auf Grund der besonders hohen Konzentrationen vermutet, dass in der näheren Umgebung eine besonders starke Quelle vorhanden ist. Die Daten aus diesem Projekt scheinen diese Vermutung zunächst nicht zu unterstützen, da die Konzentrationen nicht signifikant höher sind. Nichts desto trotz gibt es im Herbst dort höhere Konzentrationen, und wiederum geringere bzw. keine Korrelationen mit den anderen Stationen.

Die Korrelationen von Levoglucosan mit PM_{10} sind geringer als in 2012 (Tabelle 5). Dies ist vermutlich damit zu erklären, dass ein starker Jahresgang, der sowohl für PM_{10} als auch für Levoglucosan grundsätzlich vorhanden ist, in diesem hier gewählten Messzeitraum nicht auftritt. Dennoch sind die Korrelationen mit PM_{10} signifikant, weshalb man von einem Einfluss der Holzverbrennung auf die PM_{10} -Konzentrationen ausgehen kann.

Meteorologie

Temperatur / Heizgradzahl

Um einen Zusammenhang zwischen der Levoglucosankonzentration und dem Heizverhalten herzustellen, wurde die Heizgradzahl (HGZ) berechnet ($20 - \text{gemessene Temperatur}$ für alle Werte mit $T < 15^\circ\text{C}$, 0 für alle Werte mit $T > 15^\circ\text{C}$) und mit Levoglucosan korreliert. Da sich die HGZ aus der Temperatur berechnet, und diese überwiegend unter 15°C lag (Abbildung 4), ist die HGZ nahe -1 zur Temperatur korreliert. Die Korrelationen von Levoglucosan mit der HGZ spiegeln also nahezu die Korrelationen mit der Temperatur mit umgekehrten Vorzeichen wider. Tabelle 5 zeigt, dass schwach signifikante Korrelationen zwischen den Parametern HGZ und Levoglucosan für den gesamten Messzeitraum vorliegen. Die Korrelationen sind jedoch hoch signifikant für den ersten Messzeitraum, aber nicht signifikant für den Herbst. Das bedeutet, dass der Anstieg der Levoglucosankonzentration zwar mit einem erhöhten Heizverhalten in den kälteren Monaten im Vergleich zur wärmeren Jahreszeit zu erklären ist (im April geht die Temperatur und somit auch die HGZ nach oben, siehe Abbildung 4). Während der kälteren Saison allerdings spiegelt sich ein schwankendes Heizverhalten in Abhängigkeit von täglichen Temperaturschwankungen nicht wider.

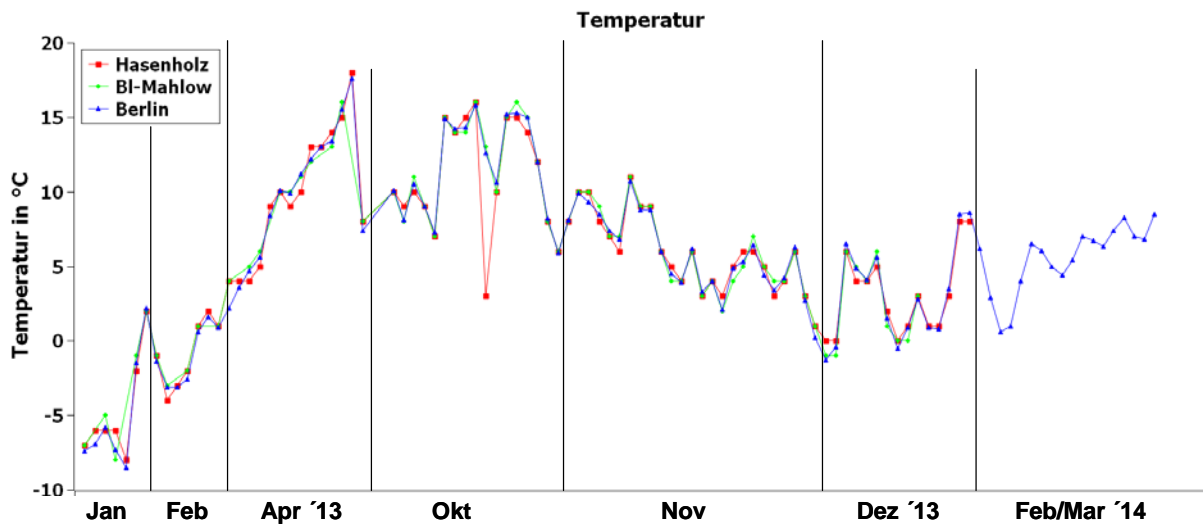


Abbildung 4: Temperaturverlauf für Berlin, Hasenholz und BI-Mahlow.

Tabelle 5: Korrelationen von Levoglucosan mit PM₁₀ und meteorologischen Parametern.

	PM ₁₀ ¹	HGZ ¹	HGZ ²	Misch. ¹	Misch. ²	Wind (v) ¹	Wind (v) ²
Levo_FrankfAllee	0.41	0.37	0.75 / 0.02	-0.43	-0.74 / -0.44	-0.41	-0.33 / -0.44
Levo_Buch	0.65	0.55	0.75 / 0.23	-0.50	-0.68 / -0.50	-0.44	-0.40 / -0.50
Levo_BI-Mahlow	0.40	0.45	0.78 / 0.26	-0.40	-0.85 / -0.37	-0.38	-0.42 / -0.37
Levo_Hasenholz	0.71	0.45	0.70 / -0.26	-0.58	-0.65 / -0.52	-0,47	-0.46 / -0.52
Levo_FrankfAllee '14	0.66	0.74		-0.60		-0.65	

¹ Gesamter Messzeitraum; ² 1. Messzeitraum / 2. Messzeitraum; ³ 2. Messzeitraum

Windgeschwindigkeit und Mischungsschicht

Weiterhin wurden die Levoglucosankonzentrationen mit der Windgeschwindigkeit und der Mischungsschicht korreliert. Die Korrelationen geben an, ob ein Anstieg der Levoglucosankonzentrationen mit austauscharmen meteorologischen Bedingungen einhergeht. Die Korrelationen sind sowohl für die Mischungsschicht als auch für die Windgeschwindigkeit negativ signifikant. Das bedeutet, dass erhöhte Konzentrationen auch mit Akkumulation aufgrund austauscharmer Wetterlagen entstehen können. Im Falle der Mischungsschicht sind die Korrelationen für den 1. Messzeitraum im Winter hoch signifikant, während sie für die 2.

Messphase wie für den gesamten Messzeitraum wieder schwächer signifikant sind. Somit spiegelt sich ein ähnlicher Trend wie bei der HGZ beobachtet wieder und ist vermutlich auf saisonale Witterungsbedingungen, die mit ansteigender Temperatur und ansteigenden Mischungsschichten einhergehen, zurückzuführen. Auffällig sind die Korrelationen zwischen Mischungsschicht und PM_{10} in der 1. Messphase (nicht in Tabelle dargestellt), die mit 0.31 – 0.64 deutlich niedriger sind als die der Mischungsschicht mit Levoglucosan. Dies deutet darauf hin, dass die Verteilung der Holzverbrennungsemissionen schwächer von eingetragenen Luftmassen und stärker von Akkumulation geprägt ist als die von gesamt PM_{10} .

Windrichtungsanalyse

Die in Abb. 5 gezeigten Windrosen geben einen Überblick über die vorherrschenden Windgeschwindigkeiten und Windrichtungen an Tagen mit hohen Levoglucosankonzentrationen für den gesamten Messzeitraum. Die Windgeschwindigkeit ist für die erste und zweite Messperiode dargestellt. Es zeigt sich, dass in der winterlichen ersten Messperiode keine bestimmte Windrichtung vorherrscht, während die zweite Messperiode deutlich von westlichen Winden geprägt ist, was im Gegensatz zu den Beobachtungen in 2012 steht. Mit Ausnahme von einem Tag ist keine vorherrschende Windrichtung erkennbar, für die besonders hohe Windgeschwindigkeiten auszumachen sind. Ähnlich sieht es für die Levoglucosankonzentrationen in Abhängigkeit der Windrichtung aus. Es können keine signifikant höheren Konzentrationen über den gesamten Messzeitraum für eine bestimmte Windrichtung festgestellt werden. Im Jahr 2012 wurden tendenziell höhere Levoglucosankonzentrationen für die Winde aus östlicher Richtung beobachtet, wobei an den Stationen Buch und BI-Mahlow hohe Konzentrationen auch bei Südwinden zu beobachten waren.

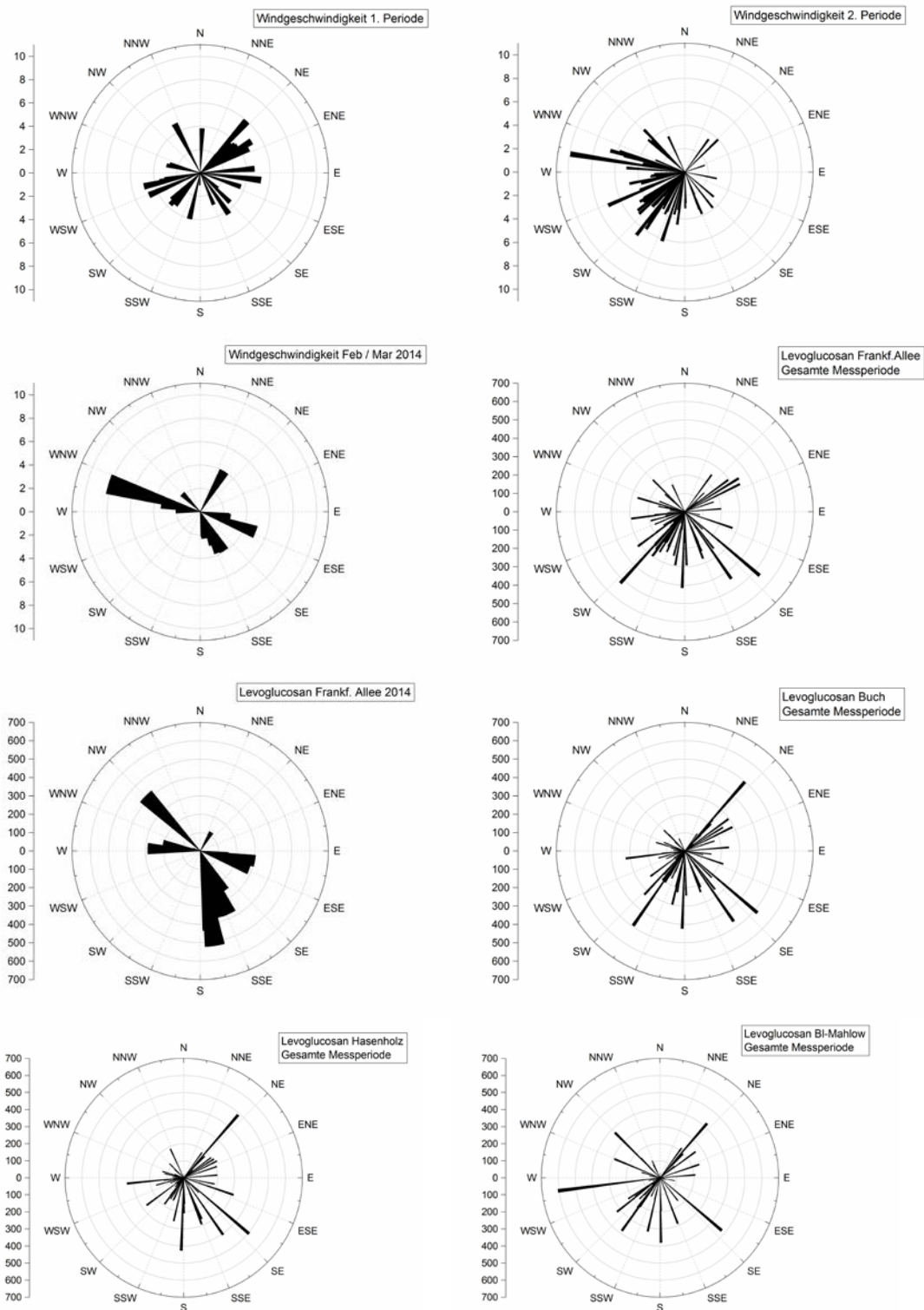


Abb. 5: Windgeschwindigkeit (in $m s^{-1}$) und Levoglucosankonzentration (in $ng m^{-3}$) an den Stationen in Abhängigkeit der Windrichtung

Des Weiteren wurden auch Windtrajektorien für die Zeiträume berechnet. Ähnlich wie für das Jahr 2012 zeichnet sich auch hier kein ganz klares Bild ab, was darauf schließen ließe, dass erhöhte Holzverbrennung mit Ferntransport aus einem bestimmten Gebiet zu erklären ist. Dennoch sind für zwei Zeiträume Tendenzen zu erkennen. Im Januar 2013 traten über mehrere Tage hinweg Konzentrationen $> 400 \text{ ng m}^{-3}$ Levoglucosan an allen Stationen auf. Zwar werden auch an anderen Tagen während der gesamten Messphase Konzentrationen $> 300 \text{ ng m}^{-3}$ erreicht, allerdings treten diese meist nicht aufeinanderfolgend sondern eher als einzelne Events auf. Im Februar / März 2014 hingegen an der Frankfurter Allee sind die Konzentrationen wieder fast durchgehend über 300 ng m^{-3} . Für die Januar-Periode ist auffällig, dass die Luftmassen überwiegend aus östlichen Gebieten kommen (Abbildung A1), während für die Februar/März-Periode in 2014 Luftmassen aus südlicher Richtung überwiegen (Abbildung A2). In diesen Zeiten sind vor allem die PM_{10} -Werte besonders hoch gewesen. Im Herbst 2013 werden Luftmassen überwiegend aus westlichen (NNW – SSW) Richtungen beobachtet, Grenzwertüberschreitungen gab es keine. An den Tagen, an denen dort die Levoglucosankonzentration $> 300 \text{ ng m}^{-3}$ steigt sind wiederum weder mit Winden aus östlicher Richtung noch mit einer einheitlichen Windrichtung zu beschreiben. Diese Ergebnisse zeigen, dass Holzverbrennungsemissionen aus südlicheren Regionen oder Osteuropa durchaus die Konzentrationen in Berlin und Brandenburg beeinflussen können. Allerdings sind ansteigende Konzentrationen nicht ausschließlich dadurch zu erklären sondern werden auch durch andere meteorologische Bedingungen wie durch die Mischungsschicht beeinflusst.

Wie schon für das Jahr 2012 beobachtet, lässt sich kein Trend erkennen, dass an Tagen mit stark erhöhten Konzentrationen an einer Station gegenüber den anderen Stationen eine bestimmte Windrichtung vorherrschte. Aus dem Vergleich der Ergebnisse aus der Windrosen- und Trajektorienanalyse lässt sich schließen, dass erhöhte Levoglucosanwerte zwar eher mit Emissionen aus Orten östlich und nördlich von Berlin einhergehen, Spitzenkonzentrationen allerdings nicht zwingend mit dem Ferntransport aus östlicher Richtung zu begründen sind. Dass Gebiete östlich von Deutschland nicht maßgeblich für die hohen Levoglucosankonzentrationen verantwortlich ist wurde zudem erneut durch die insgesamt geringeren Konzentrationen in Hasenholz im Gegensatz zu den städtischen / stadtnahen Stationen deutlich, was darauf hindeutet, dass die zunehmende Bevölkerung in Richtung Berliner Großraum einen deutlichen Beitrag leistet.

Beitrag der Holzverbrennung an PM_{10}

Um den Beitrag der gesamten Holzverbrennung an PM_{10} bestimmen zu können, ist ein Umrechnungsfaktor für das Verhältnis zwischen Levoglucosan und PM_{10} welches aus Holzverbrennung entsteht (PM_{10bb}) nötig. Da dieser in der Regel während der Messungen nicht mitbestimmt wird, wird häufig auf Literaturwerte zurück gegriffen (Fine et al., 2002, 2004; Gelencser et al., 2007; Schmidl et al., 2011). Solche ermittelten Werte basieren auf der direkten Messung von Holzverbrennung unter Ausschluss anderer Quellen. In der vorangegangenen Studie in Berlin für das Jahr 2012 wurde ein Faktor zwischen 0.045 und 0.08 mit einer höheren Gewichtung zu kleineren Faktoren als Umrechnungsfaktor angewendet, der sich an den Studien von Wagener et al. (2012), Pffer und Breuer (2013) und Schmidl et al. (2011) orientiert und wurde zu besseren Vergleichszwecken hier erneut verwendet. Mit einer Sensitivitätsanalyse (Latin-Hypercube) wurde wie im Vorgängerprojekt ein Mittelwert und der dazugehörige Größenbereich (10- und 90-Perzentil) berechnet (Tabelle 6).

Die ermittelten Beiträge der Holzverbrennung liegen zwischen 0.2 und 12.1 $\mu\text{g} / \text{m}^3$ (Abbildung 6) über den gesamten Messzeitraum betrachtet, prozentual werden Beiträge zwischen 0.6 – 65.3 % an PM_{10} erreicht (Tabelle 6). Der prozentuale Beitrag ist an der Station Frankfurter Allee wie auch schon im Vorjahr am geringsten, da dort der Verkehr als starke lokale Quelle im Vordergrund steht. Die höchsten prozentualen Werte werden in Hasenholz erreicht, was aber in erster Linie auch auf z.T. sehr geringe PM_{10} -Werte im Vergleich zu den anderen Stationen zurückzuführen ist. Der Trend, dass die Holzverbrennung in Hasenholz als ländliche Hintergrundstation, wo Quellen wie Verkehr eine geringere Rolle spielen, weniger zu PM_{10} beiträgt als in Buch oder BI-Mahlow, setzt sich in diesem Jahr im Vergleich zu 2012 nicht fort.

Tabelle 6a: PM_{10bb} und sein prozentualer Anteil an PM_{10} an den Stationen für 2. Messperiode.

	Median PM_{10bb} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	10%-Perzentil; 90%- Perzentil PM_{10bb} ($\mu\text{g m}^{-3}$) ¹⁾	% PM_{10bb} an PM_{10} (Median)	Min – Max % PM_{10bb} an PM_{10} ²⁾
FrankfAllee	4.3	3.7; 4.8	11.4	2.4 – 20.8
Buch	3.9	3.3; 4.3	15.5	4.4 – 25.2
Hasenholz	2.1	1.3; 2.8	11.4	1.0 – 33.0
Blankenfelde-Mahlow	2.1	1.8; 2.3	11.8	0.6 – 22.5

Tabelle 6b: PM_{10bb} und sein prozentualer Anteil an PM₁₀ an den Stationen für 2. Messperiode.

	Median PM _{10bb} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	10%-Perzentil; 90%- Percentil PM _{10bb} ($\mu\text{g m}^{-3}$) ¹⁾	% PM _{10bb} an PM ₁₀ (Median)	Min – Max % PM _{10bb} an PM ₁₀ ²⁾
FrankfAllee	3.0	2.6; 3.3	13.2	1.7 – 46.7
Buch	1.9	1.7; 2.1	12.3	3.2 – 56.4
Hasenholz	1.4	1.3; 1.6	12.8	1.6 – 65.3
Blankenfelde-Mahlow	3.0	2.5; 3.4	18.6	4.1 – 51.1
FrankfAllee 2014	5.4	4.6; 6.1	9.8	2.4 – 15.6

¹⁾ bezogen auf berechneten Median durch Angabe eines Faktorgrößenbereichs.

²⁾ bezogen auf gesamten Konzentrationsbereich.

Abbildung 6 zeigt die PM₁₀-Werte und die berechneten PM_{10bb}-Gehalte. Wie vorab erwähnt, wird der Grenzwert von 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ in der 2. Messperiode nicht überschritten, in der ersten Messperiode nur an wenigen Tagen. Es wird ersichtlich, dass an Tagen mit höheren PM₁₀-Konzentrationen nicht zwangsläufig auch erhöhte PM_{10bb}-Konzentrationen gemessen wurden, dennoch sind, wie auch schon an den Korrelationen gesehen, Tendenzen von erhöhten PM₁₀ und PM_{10bb}-Konzentrationen zu erkennen. In der Frankfurter Allee hätte an zwei von fünf Tagen eine Überschreitung durch die vollständige Reduktion von Holzverbrennung vermieden werden können, in BI-Mahlow an einem von drei Tagen, in Hasenholz an zwei von drei Tagen und in Buch alle drei Tage mit Grenzwertüberschreitung. Es sei allerdings nochmals darauf hingewiesen, dass die hier angewandten Verhältnisbereiche im unteren Bereich der Literatur liegen. Es ist demnach nicht auszuschließen, dass der Anteil der Holzverbrennung dadurch überschätzt wird.

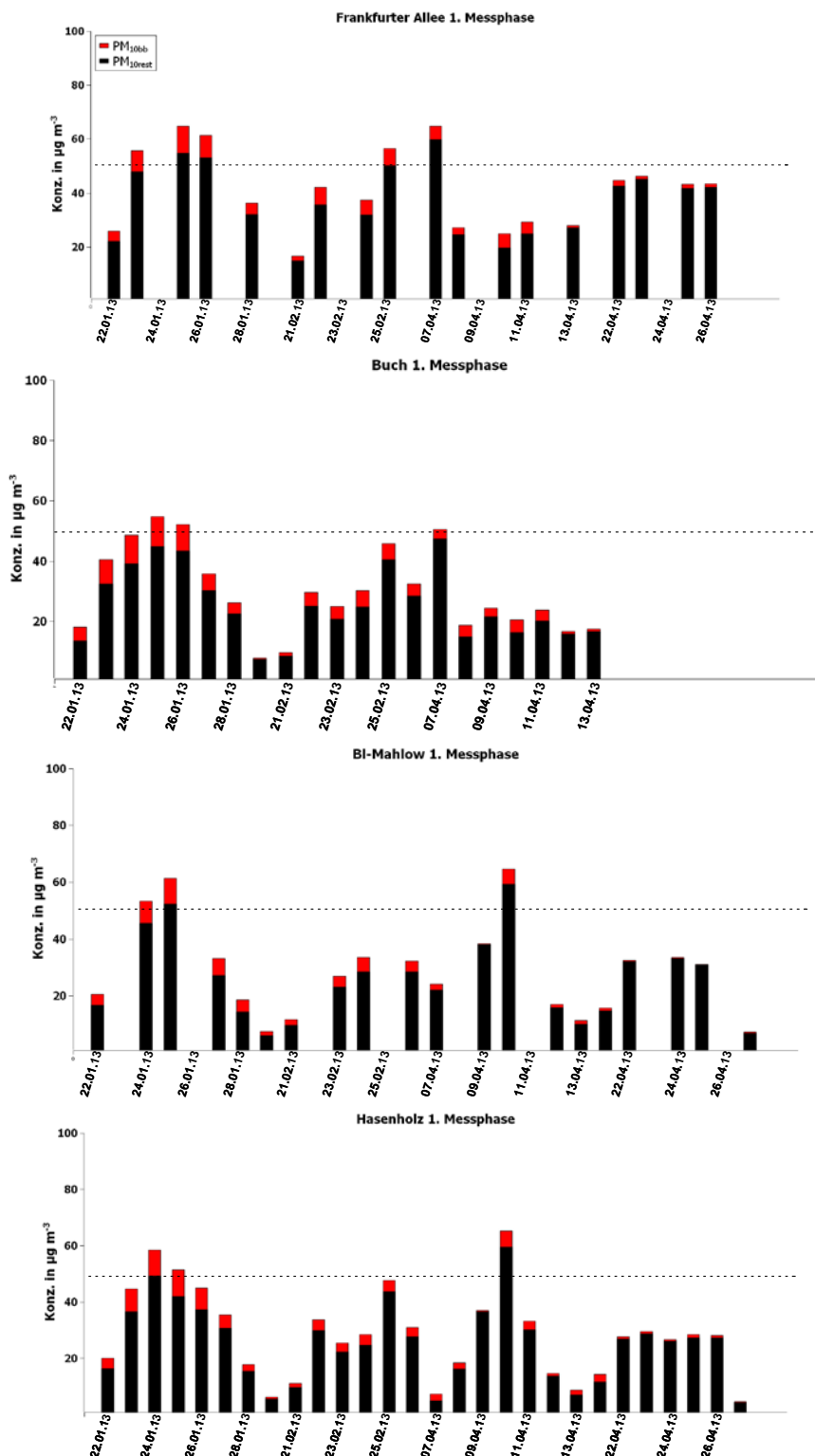


Abbildung 6a: Zusammensetzung von PM_{10bb} und PM_{10rest} an den vier Stationen, 1 Messzeitraum. Die gestrichelte Linie gibt den Grenzwert von PM₁₀ an.

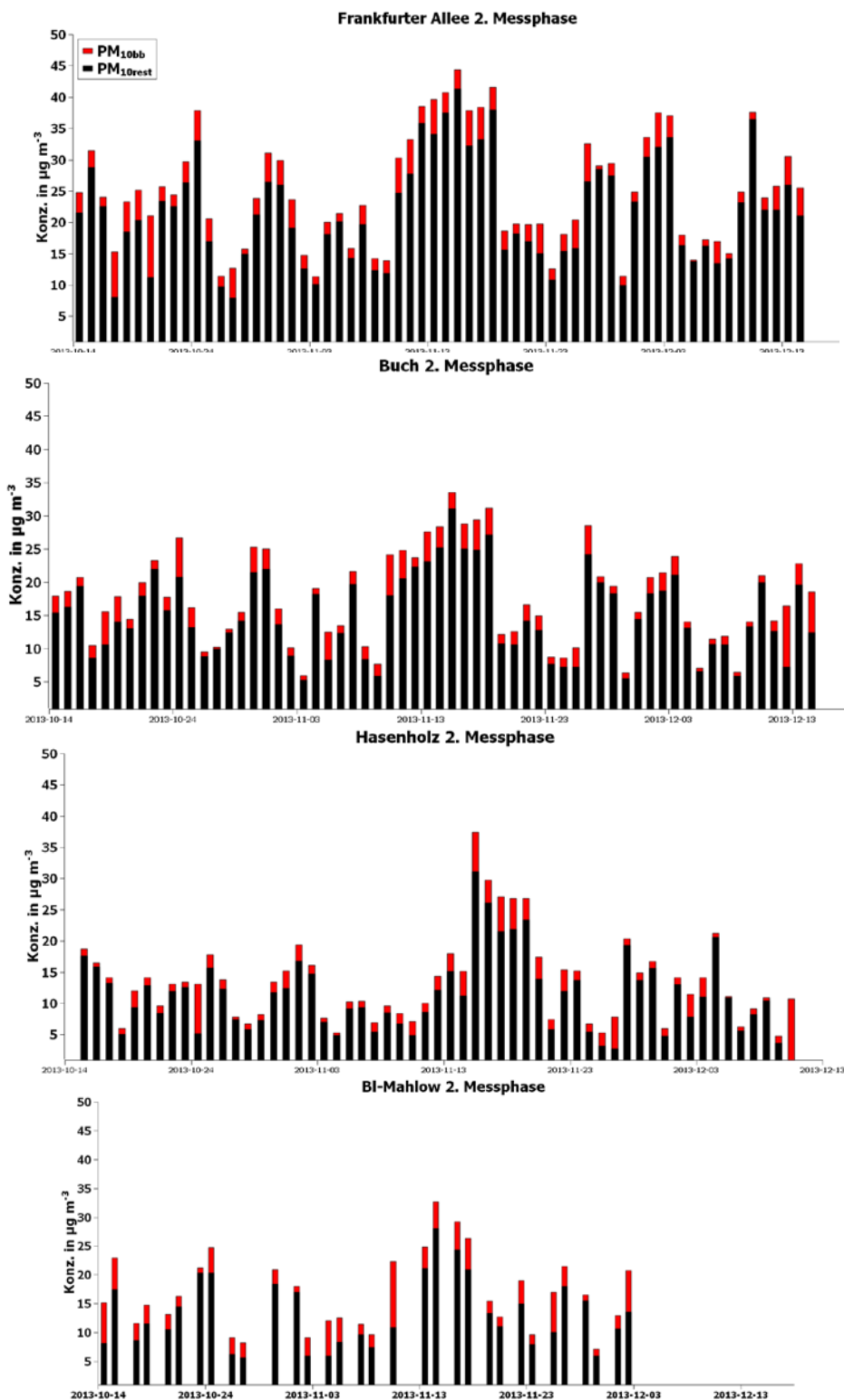


Abbildung 6b: Zusammensetzung von $\text{PM}_{10\text{bb}}$ und $\text{PM}_{10\text{rest}}$ an den vier Stationen.

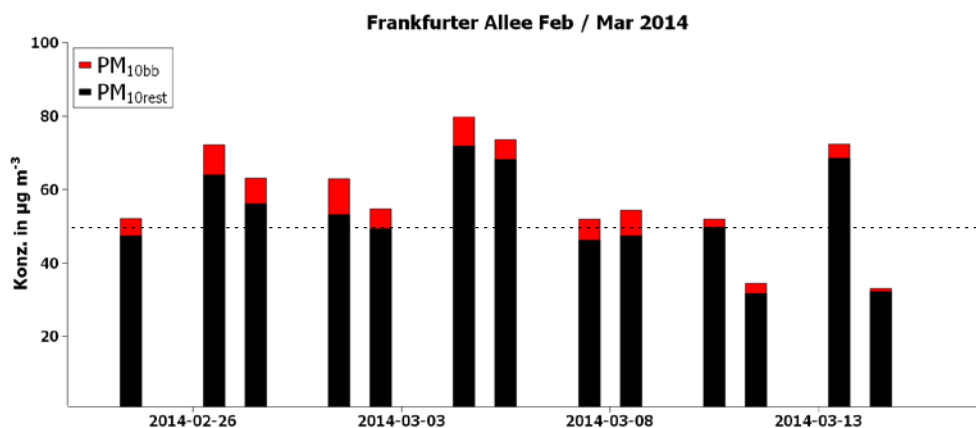


Abbildung 6c: Zusammensetzung von PM₁₀bb und PM^{10rest} an den vier Stationen.

Da der Winter in 2013 sehr mild war, wurden zusätzlich noch 13 Probenahmetage im Februar und März 2014 an der Frankfurter Allee zur Auswertung mit hinzugezogen, da es in dieser Zeit zu zahlreichen Überschreitungstagen kam. Abbildung 6c zeigt, dass an 5 von 13 Tagen die Grenzwertüberschreitung bei vollständigem Ausschluss der Holzverbrennung theoretisch hätte vermieden werden können. An anderen Tagen waren die Überschreitungen so groß, dass allein durch vollständige Reduktion der Holzverbrennung der Grenzwert noch immer überschritten gewesen wäre. Im Vergleich zu der 1. und 2. Messperiode im Winter und Herbst 2013 sind die Konzentrationen an PM₁₀bb im Mittel teilweise fast doppelt so hoch an der Frankfurter Allee (Tabelle 6a und 6b). Relativ zur PM₁₀-Konzentration hingegen stellt sich ein anderes Bild dar. Die PM₁₀bb-Werte steigen nicht so stark an wie PM₁₀, weshalb der prozentuale Anteil von PM₁₀bb an PM₁₀ abnimmt. Dies zeigt deutlich, dass die Holzverbrennung nicht ausschließlich ausschlaggebend für die Grenzwertüberschreitungen sein kann.

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Studie wurden für Winter und Herbst 2013 und für den Winter 2014 für zwei Berliner sowie zwei Brandenburger Messstationen PM_{2,5} bzw. PM₁₀ Proben auf den Tracer Levoglucosan analysiert, um darüber den Beitrag der Holzverbrennung zum Feinstaub im Untersuchungsgebiet zu quantifizieren. Es zeigte sich, wie bereits in vorangegan-

genen Studien in Berlin, aber auch in anderen Teilen Deutschlands, dass Holzverbrennung erheblich zu Feinstaub in den kälteren Jahreszeiten beitragen kann, wobei im Jahr 2013 Spitzenkonzentrationen von $12,1 \mu\text{g m}^{-3}$ erreicht wurden. Der maximale prozentuale Anteil lag bei über 65% Anteil an PM_{10} an der Hintergrundstation. Die mittleren Konzentrationen an den vier Stationen betragen zwischen $1,4 \mu\text{g m}^{-3}$ an der ländlichen Hintergrundstation und $4,3 \mu\text{g m}^{-3}$ an der Verkehrsstation, was einem mittleren prozentualen Anteil von 11,4 – 18,6% an PM_{10} entspricht. Die Konzentrationslevel waren überwiegend vergleichbar zwischen den Stationen, die Station im regionalen Hintergrund zeigte insgesamt die niedrigsten Konzentrationen, die Verkehrsstation die höchsten. Weiterhin wurde eine kurze Messperiode im Februar und März 2014 für die Verkehrsstation ausgewertet, die von zahlreichen Grenzwertüberschreitungen geprägt war. Dort wurden insgesamt mit $5,4 \mu\text{g m}^{-3}$ im Mittel die höchsten $\text{PM}_{10\text{bb}}$ Konzentrationen gemessen. Durch die insgesamt hohen PM_{10} -Werte war der prozentuale Anteil mit 9,8% jedoch der niedrigste. Der Konzentrationsverlauf zwischen den Stationen war ähnlich, was zunächst darauf hindeutet, dass es sich um eine eher regional geprägte Quelle handelt. Insgesamt waren die Konzentrationen niedriger als noch im Vorgängerprojekt für das Jahr 2012 ermittelt. Vor allem an der stadtnahen Brandenburger Station BI-Mahlow konnten die damals auffällig hohen Konzentrationen aus dem Jahr 2012 nicht erneut gemessen werden. Die insgesamt niedrigeren Konzentrationen sind in erster Linie auf mildere Temperaturen und niedrigere PM_{10} -Werte zurückzuführen, da Grenzwertüberschreitungen kaum bzw. im Herbst gar nicht auftraten.

Trotz erhöhter Levoglucosankonzentrationen während zwei Phasen bei Winden aus östlicher und südlicher Richtung kann kein Gebiet eindeutig identifiziert werden, aus dem durch Ferntransport Luftmassen mit erhöhten Holzverbrennungsemissionen heran transportiert werden. Auch wenn erhöhte Werte für diese kurzen Zeiträume ausgemacht werden, muss eine gleichzeitige Erhöhung der PM_{10} -Konzentration berücksichtigt werden, der prozentuale Anteil an $\text{PM}_{10\text{bb}}$ zu PM_{10} im Falle der Frankfurter Allee verringert sich sogar im Vergleich 2013 zu 2014. Weiterhin sind diese Messphasen nicht nur durch südliche und östliche Winde geprägt, sondern auch durch geringere Mischungsschichten (Abbildung A3 im Anhang), was zusätzlich für die Konzentrationserhöhung verantwortlich sein kann. Ein besonderer Einfluss v.a. aus östlichen Gebieten kann auch, wie schon im Vorgängerprojekt angesprochen, eher ausgeschlossen werden, da Konzentrationen in der östlich gelegenen Hintergrundstation am geringsten sind und an der zentral gelegenen Berliner Verkehrsstation am höchsten, was auf

einen nicht zu vernachlässigenden lokalen Einfluss hindeutet. Wie schon im Vorgängerprojekt kann zu dem Schluss gelangt werden, dass Holzverbrennung im Gegensatz zur Quelle Verkehr, welche durch Hot Spots an bestimmten Orten gekennzeichnet ist, gleichmäßiger über ein großflächiges Gebiet zu hohen Konzentrationen in der kalten Jahreszeit beiträgt. Abschließend lässt sich zusammenfassen, dass auch nach einer Erhöhung der Datenbasis für das Jahr 2013 gegenüber 2012 bestätigt werden kann, dass Holzverbrennung nicht in erster Linie auf Ferntransport zurückgeführt werden kann. Vielmehr stellt es auch ein lokales Problem dar, welches an kalten Tagen unter ungünstigen meteorologischen Bedingungen zu hohen Belastungen führen kann.

Referenzen

ARL <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>

Bestimmung des Beitrags der Holzfeuerung zum PM10-Feinstaub an zwei Messstationen in Baden-Württemberg von Oktober 2008 bis Dezember 2009, LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg 76231 Karlsruhe, Postfach 100163, Dezember 2010, 48 Seiten.

Creutzmacher, H., 2011. Determination of the contribution of wood burning to the ambient PM10 concentration. *Gefahrst Reinhalt L 71*, 498-506.

Fine, P.M., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 2002. Organic compounds in biomass smoke from residential wood combustion: Emissions characterization at a continental scale. *J Geophys Res-Atmos* 107.

Fine, P.M., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 2004. Chemical characterization of fine particle emissions from the wood stove combustion of prevalent United States tree species. *Environ Eng Sci* 21, 705-721.

Gelencser, A., May, B., Simpson, D., Sanchez-Ochoa, A., Kasper-Giebl, A., Puxbaum, H., Caseiro, A., Pio, C., Legrand, M., 2007. Source apportionment of PM2.5 organic aerosol over Europe: Primary/secondary, natural/anthropogenic, and fossil/biogenic origin. *J Geophys Res-Atmos* 112.

Pfeffer, U., Breuer, L., Einfluss von Holzverbrennung auf die Partikelbelastung (PM10) in Nordrhein-Westfalen. Vorlage zur 104. Sitzung des LAI-Ausschusses Luftqualität / Wirkungsfragen / Verkehr am 22. Und 23. Januar 2013 in Naumburg/Saale, 2013.

Pfeffer, U., Breuer, L., Gladtko, D., Schud, T.J., 2013. Contribution of wood burning to the exceedance of PM10 limit values in North Rhine-Westphalia Dedicated to Prof. Dr. Peter Bruckmann on occasion of his 65th birthday. *Gefahrst Reinhalt L 73*, 239-245.

Poulain, L., Iinuma, Y., Müller, K., Birmili, W., Weinhold, K., Brüggemann, E., Gnauk, T., Hausmann, A., Loschau, G., Wiedensohler, A., Herrmann, H., 2011. Diurnal variations of ambient particulate wood burning emissions and their contribution to the concentration of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Seiffen, Germany. *Atmos Chem Phys* 11, 12697-12713.

Schmidl, C., Lüssler, M., Padouvas, E., Lasselsberger, L., Rzáca, M., Cruz, C.R.S., Handler, M., Peng, G., Bauer, H., Puxbaum, H., 2011. Particulate and gaseous emissions from manually and automatically fired small scale combustion systems. *Atmos Environ* 45, 7443-7454.

Wagener, S., Langner, M., Hansen, U., Moriske, H.J., Endlicher, W.R., 2012. Source apportionment of organic compounds in Berlin using positive matrix factorization - Assessing the impact of biogenic aerosol and biomass burning on urban particulate matter. *Sci Total Environ* 435, 392-401.

Anhang

Tabelle A1: Tage mit Levoglucosan -Konzentrationen > 300 ng m⁻³

Frankfurter Allee	Buch	BI-Mahlow	Hasenholz
23.01.2013	23.01.2013	24.01.2013	23.01.2013
25.01.2013	24.01.2013	25.01.2013	24.01.2013
26.01.2013	25.01.2013	27.01.2013	25.01.2013
22.02.2013	26.01.2013	15.10.2013	26.01.2013
25.02.2013	25.10.2013	05.11.2013	10.04.2013
21.10.2013	11.11.2013	11.11.2013	25.10.2013
27.11.2013	13.12.2013	26.11.2013	16.11.2013
27.02.2014	15.12.2013	03.12.2013	
28.02.2014			
02.03.2014			
05.03.2014			
08.03.2014			
09.03.2014			

An Tagen mit > 300 ng m⁻³ kommen die Luftmassen überwiegend aus nördlicher bis östlicher Richtung. Ausnahmen sind mit gelb gekennzeichnet.

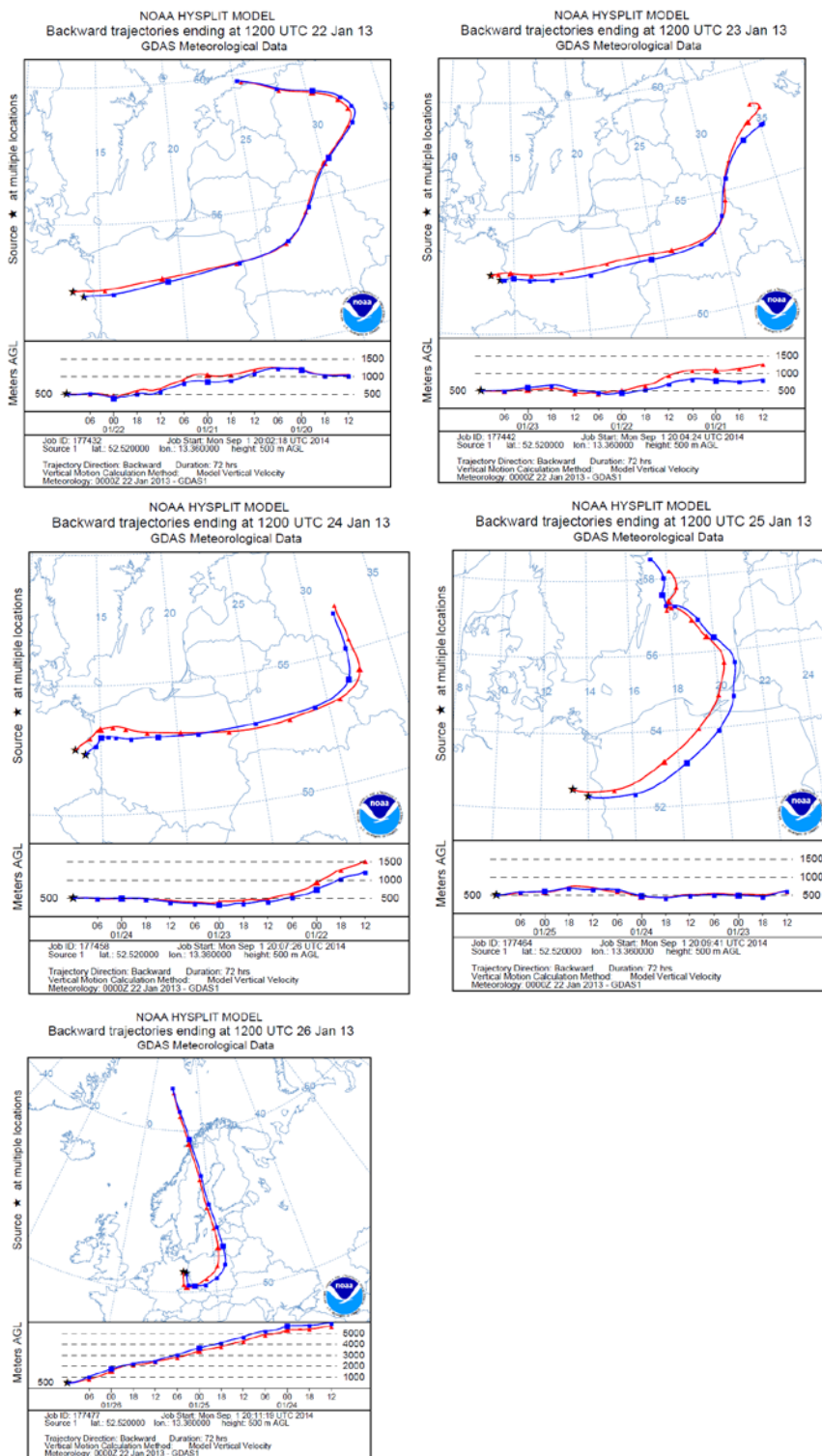
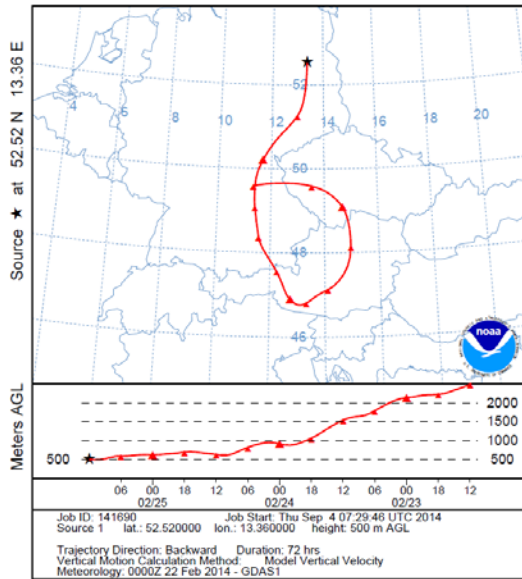
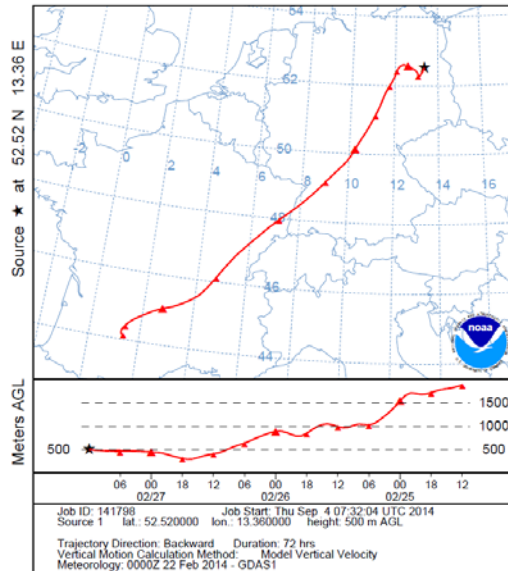


Abbildung A1: Trajektorien für den Zeitraum 22. – 26.01.2013. In dieser Messphase kamen die Luftmassen überwiegend aus östlicher Richtung.

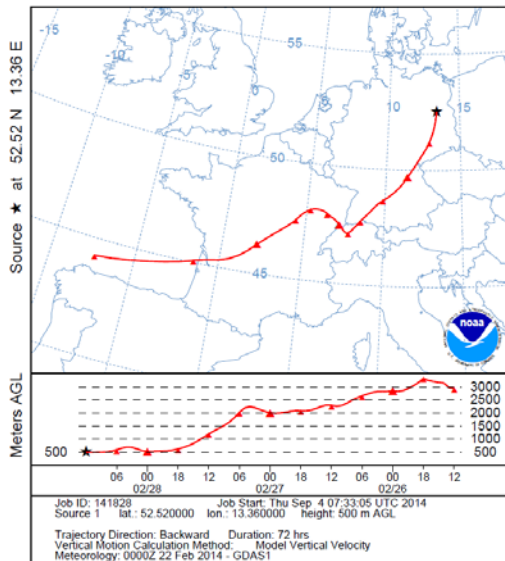
NOAA HYSPLIT MODEL
Backward trajectory ending at 1200 UTC 25 Feb 14
GDAS Meteorological Data



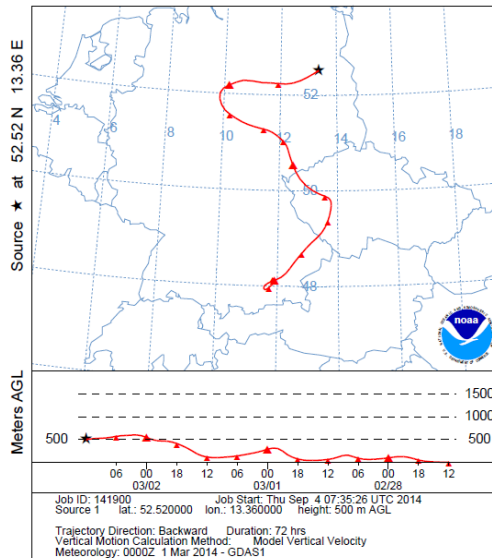
NOAA HYSPLIT MODEL
Backward trajectory ending at 1200 UTC 27 Feb 14
GDAS Meteorological Data



NOAA HYSPLIT MODEL
Backward trajectory ending at 1200 UTC 28 Feb 14
GDAS Meteorological Data



NOAA HYSPLIT MODEL
Backward trajectory ending at 1200 UTC 02 Mar 14
GDAS Meteorological Data



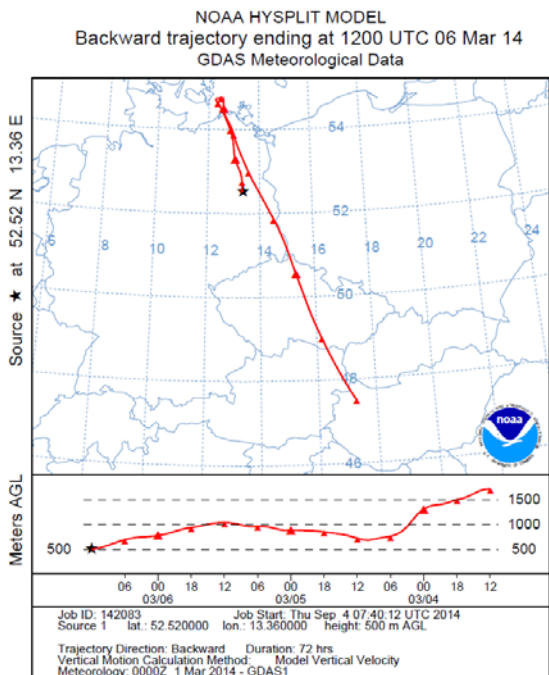
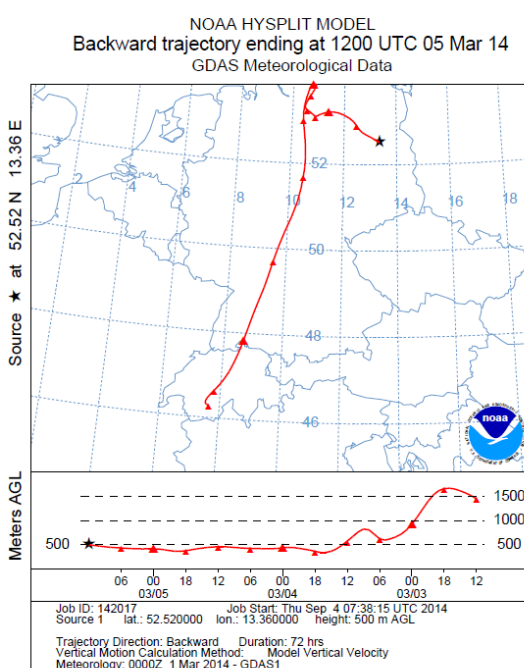
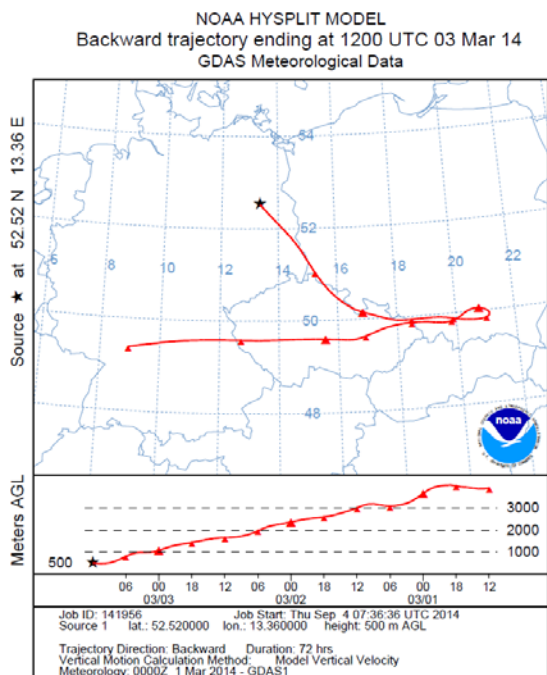


Abbildung A2: Trajektorien für den Zeitraum 25.02 – 09.03.2014. In dieser Messphase kamen die Luftmassen überwiegend aus südlicher Richtung.

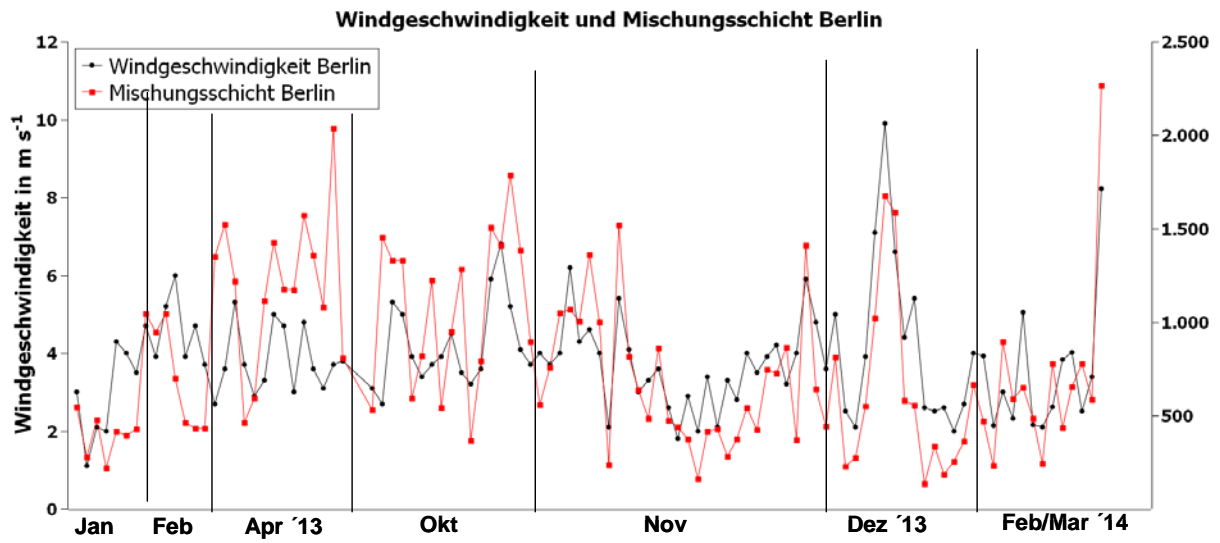


Abbildung A3: Windgeschwindigkeit und Mischungsschicht