### Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft

vertreten durch das

### Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Sachgebiet: Referat 51 "Luftqualität"

**Abschlussbericht:** Nr.: 1

Berichtszeitraum: 15.08. bis 04.09.2008

Seitenzahl: 11 Tabellen (Anzahl): 3 Abbildungen (Anzahl): 0

Sonstige Anlagen: Datenanhang

## zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben:

Untersuchung der sommerlichen Belastung mit Holzverbrennungstracern in Seiffen

(Ergänzung des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens: "Einfluss kleiner Holzfeuerungen auf die Immissionssituation – Teil Immissionsmessung")

**Aktenzeichen:** 13-0345.42/275

#### **Autoren:**

Dr. Erika Brüggemann, Dr. Thomas Gnauk, Prof. Dr. Hartmut Herrmann, Dr. Y. Iinuma,

Dr. Konrad Müller

#### **Durchführende Institution:**

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Permoserstr. 15, 04318 Leipzig

Projektleiter: Prof. Dr. Hartmut Herrmann

**Datum** Unterschrift

### **Inhaltsverzeichnis**

- 1. Einleitung
- 2. Überblick über durchgeführte Messungen
- 3. Meteorologische Einordnung der Sommermesskampagne und Auswahl der Messtage zur Ableitung der Grundbelastung in Seiffen
- 4. Ergebnisse und Diskussion
- 4.1. Neuberechnung der Heizungsbeiträge in Seiffen unter Anwendung der Sommer-GB
- 4.2. Abschätzung der Heizungsanteile durch Differenzbildung analog dem Lenschow Ansatz
- 5. Literaturverzeichnis
- 6. Datenanhang

#### **Tabellenverzeichnis**

Tabelle 3.1.: Grundbelastung Seiffen

Tabelle 4.1.1.: Anteile am PMW in SEI für PM<sub>10</sub> nach Perioden

Tabelle 4.1.2.: Mittlere Effekte der Holzheizung aus dem Vergleich von Belastungsproben zur Grundbelastung

# 1. Einleitung

Ziel der vorliegenden Ergänzung zum o. g. Forschungsprojekt über den Einfluss kleiner Holzfeuerungen auf die Immissionssituation in Sachsen war die Schaffung einer präziseren Datengrundlage zur Quantifizierung des Hausbrandanteils an der Partikelbelastung im Messort Seiffen.

Die Messungen für das Hauptprojekt fanden naturgemäß in der winterlichen Heizperiode statt. Zur Beurteilung des Heizungseinflusses war eine Basis notwendig, die der Grundbelastung (GB) im Ort bei möglichst geringem Ferntransporteintrag und Heizungsanteil entsprechen sollte. Aus der Menge der vorliegenden Messtage wurden deshalb diejenigen mit niedrigen Konzentrationen an Levoglucosan, dem Haupttracer für Holzverbrennung, bei westlich/nordwestlicher reiner Luftanströmung, die wenig Ferntransportanteil mitführt, zur Mittelwertbildung für die GB ausgewählt.

Trotzdem musste festgestellt werden, dass die Werte verschiedener Komponenten dabei so hoch ausfielen, dass bei der angestrebten Differenzbildung zur Isolierung des Heizungsanteils in mehreren Fällen negative Werte entstanden. Dieser Effekt war besonders bei dem zum Vergleich mit anderen Modellierungsergebnissen wichtigen Parameter PM<sub>10</sub> unvorteilhaft.

Die GB in Seiffen (GBSEI) für  $PM_{10}$  fiel mit 15,6  $\mu$ g/m³ sehr hoch aus und lässt darauf schließen, dass möglicherweise noch ein unerkannter Beitrag fehlte (Diskussion Trukenmüller: regionaler Hintergrund des Erzgebirges) und/oder die nach minimalen Tracerkonzentrationen erfolgte Auswahl der GB-Tage hinsichtlich des  $PM_{10}$  nicht optimal war. Während der ganzen Wintermessperiode wurde geheizt und sicherlich nicht nur mit Holz, daher konnten auch für die GB keine unbeeinflussten Tage gefunden werden.

Aus diesem Grund wurde nach Abschluss des Hauptptojekts eine vierwöchige Sommermesskampagne konzipiert, die garantiert warme und heizungsfreie Tage bei möglichst geringem Ferntransportanteil enthalten sollte. Die Ergebnisse dieser Kampagne und ihre Auswirkungen auf die im Abschlussbericht dargestellten Resultate der Wintermesskampagne sind im vorliegenden Ergänzungsbericht dargestellt.

## 2. Überblick über durchgeführte Messungen

Die ergänzende Sommermesskampagne wurde in Seiffen am gleichen Standort wie die Wintermesskampagne in der Zeit vom 15.08. – 04.09.2008 durchgeführt, dabei kamen die gleichen DIGITEL-High-Volume-Sampler für PM<sub>10</sub>- und PM<sub>1</sub>-Probenahme zum Einsatz. Die

Filterwechsel erfolgten täglich, so dass für jede Größenklasse 21 Tagesproben erhalten

wurden.

Aus den Tagesproben wurden mit den gleichen analytischen Methoden wie im

Abschlussbericht die Partikelkomponenten Massekonzentration, wasserlösliche Ionen,

OC/EC, Alkane und PAK sowie Anhydrozucker, besonders die Holzverbrennungstracer

Levoglucosan und Reten bestimmt. Alle Messwerte für beide Partikelgrößenklassen sind im

Tabellenanhang dargestellt.

An der Station Schwartenberg wurden keine zusätzlichen Probenahmen durchgeführt, an

dieser Station stehen für die Sommerkampagne nur die PM<sub>10</sub>-Tagesmittelwerte zur

Verfügung.

3. Meteorologische Einordnung der Sommermesskampagne und Auswahl der Tage für

die Ableitung der Grundbelastung in Seiffen (GBSEI)

Die zweite Augusthälfte und der Septemberbeginn des Jahres 2008 war eine relativ kühle

Periode mit lediglich einem Sommertag (19.08., Maximaltemperatur 26,3°C), wenig

Niederschlag (nur erwähnenswert am 15./16.08. sowie am 03./04.09.) und nur schwachen

Winden aus meist westlichen Richtungen. Die Trajektorien erstreckten sich über einen

Bereich von SW bis NW.

Für die Auswahl der Messtage zur Festlegung der Grundbelastung in Seiffen waren folgende

Bedingungen maßgebend:

- Levoglucosan – Konzentration möglichst niedrig

- Partikelmasse - Konzentration möglichst niedrig

- Tagesmaximaltemperatur > 20°C

- Windgeschwindigkeit gering (< 1ms<sup>-1</sup>)

- Trajektorien aus SW / West / NW

Durch die Erfüllung dieser Kriterien sollte die Gefahr eines maßgeblichen Heizungs- oder

Ferntransporteinflusses weitgehend ausgeschlossen werden. Aus der Menge der 21 Messtage

wurden unter Berücksichtigung dieser Bedingungen folgende drei Messtage als repräsentativ

für die Grundbelastung in Seiffen im Sommer (daher keine Hausbrandbelastung abgesehen

von möglicher Warmwasserbereitung für private Haushalte) ausgewählt:

Sonntag, 17.08.2008

Mittwoch, 20.08.2008

Donnerstag, 21.08.2008

6

Der Mittelwert dieser drei Tage bildet dann für jede betrachtete Komponente den Wert für die Grundbelastung (GB) in Seiffen.

Tabelle 3.1 Grundbelastung Seiffen

PM1	Massekonz. [μg/m³]	Kalium [µg/m³]	ОС	EC [µg/m³]	TC	Levoglucos. [ng/m³]	$\Sigma$ PAK	Benz(a)pyren [ng/m³]	Reten
<b>MW</b> Stabw	<b>7.01</b> 1.66	<b>0.034</b> 0.016	<b>0.85</b> 0.20	<b>0.59</b> 0.14	<b>1.44</b> 0.34	<b>57.4</b> 19.3	<b>1.545</b> 0.273	<b>0.061</b> 0.016	<b>0.327</b> 0.055
PM10	Massekonz. [µg/m³]	Kalium [µg/m³]	ОС	EC [µg/m³]	TC	Levoglucos. [ng/m³]	∑PAK	Benz(a)pyren [ng/m³]	Reten
<b>MW</b> Stabw	<b>9.59</b> 1.67	<b>0.055</b> 0.026	<b>1.33</b> 0.27	<b>0.39</b> 0.18	<b>1.71</b> 0.45	<b>59.1</b> 16.5	<b>1.513</b> 0.400	<b>0.057</b> 0.017	<b>0.359</b> 0.224

Mit diesen neuen Werten wird analog zum Abschlussbericht eine erneute Abschätzung des Hausbrandanteils bzw. der Zusatzbelastung durch Holzheizung durchgeführt.

### 4. Ergebnisse und Diskussion

### 4.1. Neuberechnung der Heizungsbeiträge in Seiffen unter Anwendung der Sommer-GB

Die in Tabelle 5.1. des Hauptprojekt-Abschlussberichts aufgeführten Zusatzbelastungen durch Holzheizungen beruhen auf den Levoglucosan-Messungen an allen Messtagen unter Verwendung der Grundbelastung aus der Wintermesskampagne. Für die im vorliegenden Zusatzbericht abgeleiteten Werte für PM<sub>1</sub> und PM<sub>10</sub> wurden die Messtage der drei definierten Perioden und der GB-Wert der zusätzlichen Sommermessperiode zugrunde gelegt.

Für die übrigen behandelten Partikelparameter wurde wie im Hauptbericht (z.B. Tab. 4.1.3.2.) die Differenzbildung PMWSEI – GBSEI – PMWSW unter Benutzung des GBSEI-Sommerwertes durchgeführt und der Rest als Heizungsbeitrag definiert (PMW = Periodenmittelwert). Dabei wird GBSEI vorwiegend als lokale Verkehrsbelastung und PMW hauptsächlich als Ferntransporteintrag betrachtet. Aus den Ergebnissen der drei Perioden wurde dann ein Gesamtmittelwert gebildet. PMW sind in Tabelle 4.1.1., Gesamtwerte in Tabelle 4.1.2. zusammengefasst.

Darüber hinausgehende Interpretationen auf der Grundlage von Überlegungen analog zum Lenschow-Ansatz besonders für PM<sub>10</sub>, das die einzige zum Vergleich mit

Modellierungsergebnissen geeignete Größe darstellt, werden im Anschluss erörtert und mit den aus den Levogluconwerten abgeleiteten Anteilen verglichen.

Tabelle 4.1.1. Anteile am PMW in SEI (= 100%) für PM<sub>10</sub> nach Perioden

Periode 1		PMWSEI	PMWSW	GBSEI(So)	RestSEI
		$[\mu g C/m^3]$	[%]	[%]	[%]
PM10	TC	13,7	35	13	52
	EC	4,6	50	9	61
	OC	9,1	28	15	57
	K	0,56	34	10	56
Periode 2					
PM10	TC	7,8	58	22	20
	EC	3,1	69	13	18
	OC	4,7	49	28	23
	K	0,38	48	14	38
Periode 3					
PM10	TC	6,1	66	28	6
	EC	2,2	65	18	17
	OC	4,0	67	33	0
	K	0,33	47	17	36

Die Anwendung dieser Art der Differenzbildung bei den Werten für die Partikelmasse-Konzentration  $PM_{10}$  führte mit dem GBSEI-Winterwert von 15,6  $\mu g/m^3$  in Periode 2 und 3 zu negativen Werten. Bei Verwendung des GBSEI-Sommerwerts von 9,6  $\mu g/m^3$  gelangt nur noch Periode 3 in den negativen Bereich. Die Reduzierung der Grundbelastung durch den Einsatz des Sommerwertes war auf alle Fälle ein Schritt in die richtige Richtung, aber möglicherweise noch nicht ausreichend, weil weitere Effekte eine Rolle spielen. Auf diese Möglichkeit wurde in dem Diskussionsbeitrag von A. Trukenmüller (UBA) hingewiesen.

Die Ableitung der PM<sub>1</sub>- und PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung aus den Levoglucosan-Konzentrationen wurde im vorliegenden Zusatzbericht wegen der besseren Vergleichbarkeit mit anderen chemischen Komponenten für die drei betrachteten Perioden einzeln vorgenommen und dann gemittelt, im Hauptbericht waren noch alle Messtage berücksichtigt worden. Die Einführung der GBSEI aus der Sommermesskampagne 2008 führt dabei sowohl bei PM<sub>1</sub> als auch bei PM<sub>10</sub> zu höheren Anteilen der Zusatzbelastung durch Holzfeuerung (Tab. 4.1.2.).

Tabelle 4.1.2. Mittlere Effekte der Holzheizung aus dem Vergleich von Belastungsperioden zur Grundbelastung

	Zusatzbelastung					,	
3.5	unter Verwendung von GB (Winter)				unter Verwendung von GB (Sommer)		
Messgröße	Bereich	Mittelwert	Abgeleitet aus	Bereich	Mittelwert	Abgeleitet aus	
Masse PM <sub>10</sub>	3 – 35 %	11 %	allen Messtagen	9 – 27 %	18 %	Perioden 1,2,3	
Masse PM <sub>2.5</sub>	2 - 22 %	10 %	allen Messtagen	, _,,,			
Masse PM <sub>1</sub>	3 – 46 %	12 %	allen Messtagen	13 – 61 %	28 %	Perioden 1,2,3	
Masse aus Partikelanzahl (10 <d<sub>p&lt;600 nm)</d<sub>	4 – 70 %	28 %	allen Messtagen				
Partikelanzahlkonzentration (10 <d<sub>p&lt;600 nm)</d<sub>	7 – 76 %	31 %	allen Messtagen				
Kalium in PM <sub>10</sub>	5 – 35 %	17 %	Perioden 1,2,3	36 – 56 %	43 %	Perioden 1,2,3	
TC in PM <sub>10</sub>	3 – 51 %	24 %	Perioden 1,2,3	6 – 52 %	26 %	Perioden 1,2,3	
WSOC in PM <sub>10</sub>	19 – 38 %	26 %	Perioden 1,2,3				
$\sum PAK$ in $PM_{10}$	34 – 54 %	43 %	Perioden 1,2,3	30 – 73 %	55 %	Perioden 1,2,3	
Benzo(a)pyren	PM <sub>1</sub> : 40 – 65 %	51 %	Perioden 1,2,3	PM <sub>1</sub> : 0 – 72 %	52 %	Perioden 1,2,3	
	PM <sub>10</sub> : 44 – 49 %	47 %	Perioden 1,2,3	$PM_{10}$ : 0 – 81 %	53 %	Perioden 1,2,3	
Reten	$PM_1: 0-60 \%$	29 %	Perioden 1,2,3	$PM_1: 0-76 \%$	43 %	Perioden 1,2,3	
	$PM_{10}$ : 25 – 25 %	31 %	Perioden 1,2,3	$PM_{10}$ : 0 – 67 %	36 %	Perioden 1,2,3	

Im Vergleich mit Tabelle 5.1. aus dem Projektabschlussbericht steigt der Anteil der Zusatzbelastung bei allen betrachteten Komponenten an. Besonders stark ist der Anstieg bei der Feinpartikelfraktion  $PM_1$ , deren Zusatzanteil sich von 11 % auf 28 % erhöht und nach dieser Berechnung nunmehr mit der aus der Partikelanzahl berechneten Masse übereinstimmt. Der Holzheizungseffekt steigt bei der  $PM_{10}$  - Fraktion nicht ganz so stark von 11 % auf 18 %, was durchaus nachvollziehbar ist, wenn in Betracht gezogen wird, dass Holzfeuerungen vorwiegend kleinere Partikel emittieren und die Partikelanzahlmessung sich auf Teilchen mit Dp < 600 nm beschränkt.

### 4.2. Abschätzung der Heizungsanteile durch Differenzbildung analog dem Lenschow - Ansatz

Der uns über das LfULG zugegangene Diskussionsbeitrag von A. Trukenmüller (UBA) kommt zu dem Schluss, dass die für  $PM_{10}$  durch Differenzbildung analog dem Lenschow-Ansatz erhaltenen Negativwerte vermeidbar sein könnten, wenn eine regionale Grundbelastung definiert und zur erhaltenen Restmassekonzentration in Seiffen addiert werden könnte.

Auf anderem Weg und unter Einbeziehung der Sommermesswerte sind wir zum gleichen Ergebnis gelangt. Die Abschätzung des Heizungsanteils in Seiffen kann danach wie folgt vorgenommen werden:

HASEI: Heizungsanteil Seiffen GBSEI: Grundbelastung Seiffen

PBWSEI: Periodenmittelwert Seiffen GBSW: Grundbelastung

Schwartenberg

PBWSW: Periodenmittelwert FT: Ferntransport

Schwartenberg VKSEI: Verkehr Seiffen

Bei Subtraktion der Grundbelastung vom Periodenmittelwert in Seiffen bleiben Ferntransportund Heizungsanteil übrig:

$$PMWSEI - GBSEI(So) = FT + HASEI$$
 (1)

GBSEI(So) entspricht etwa dem normalen Verkehrsaufkommen in Seiffen ohne Tourismus, mit minimalem Ferntransport (Westlagen) und ohne Heizung (warme Sommertage). Der Periodenmittelwert am Schwartenberg setzt sich vorwiegend aus Beiträgen des Ferntransports und des regionalen Hintergrunds zusammen, der mit GBSW(So) gleichgesetzt wird:

$$GBSEI(So) = VKSEI$$
 (2)

$$PMWSW = FT + GBSW(So).$$
 (3)

Damit wird (1) zu

$$HASEI = PMWSEI - GBSEI(So) - FT$$
(4)

und mit

$$FT = PMWSW - GBSW(So)$$
 (5)

umgeformt zu

$$HASEI = PMWSEI - GBSEI(So) - (PMWSW - GBSW(So)), \tag{6}$$

woraus

$$HASEI = PMWSEI - GBSEI(So) - PMWSW + GBSW(So)$$
(7)

als Bestimmungsgleichung für den Hausbrandanteil in Seiffen resultiert.

Im vorliegenden Fall ist diese Gleichung nur auf  $PM_{10}$  anwendbar, da auf dem SW keine weitern Partikelkomponenten während der Sommerkampagne 2008 gemessen werden konnten. Für die GB-Tage ergab sich ein  $PM_{10}$ -Mittelwert von 7,5 ( $\pm$  2,3)  $\mu$ g/m³.

Aus (7) resultiert für die drei definierten Perioden

Per. 1 HASEI = 
$$42.2 - 9.6 - 18.8 + 7.5 = 21.3 \mu g/m^3$$

Per. 2 HASEI = 
$$31.0 - 9.6 - 16.9 + 7.5 = 12.0 \,\mu g/m^3$$

Per. 3 HASEI = 
$$24.8 - 9.6 - 21.4 + 7.5 = 1.3 \,\mu\text{g/m}^3$$

Negative Werte wurden in diesem Fall und nach diesem Verfahren nicht mehr festgestellt.

Als Anteile des HASEI am PMWSEI ergeben sich für Periode 1 50,5 %, Periode 2 38,7 % und Periode 3 5,2 %. Der Mittelwert aus diesen Periodenmittelwerten beträgt 31,5 %. Damit sind die großen Differenzen zwischen physikalischen Messungen und aus chemischen Analysen abgeleiteten Hausbrand- bzw. Holzheizungsanteilen beseitigt, allerdings bleibt noch eine Lücke für PM<sub>10</sub> zwischen den 18 % aus Tracerberechnungen und den ca. 30% aus den Differenzbetrachtungen bestehen. Ursache dafür könnte sein, dass neben Holz auch andere Brennstoffe in den Hausheizungen zum Einsatz gekommen sind.

### 5. Literaturverzeichnis

Das Literaturverzeichnis wurde durch den Ergänzungsbericht nicht verändert und ist im Original-Abschlussbericht zu finden.

### 6. Datenanhang

Die Tabelle mit allen Daten der Sommerkampagne befindet sich auf der mitgelieferten CD.