

Partikelgrößenverteilungen an den NABEL Standorten Härkingen und Zürich

Hanna Herich, Christoph Hüglin
Abteilung Luftfremdstoffe/ Umwelttechnik
Empa, 8600 Dübendorf

25. März 2013

Projektbericht: Partikelgrößenverteilungen an den NABEL Standorten Härkingen und Zürich.

Impressum

Auftraggeber: Bundesamt für Umwelt (BAFU), Abt. Luftreinhaltung und Chemikalien, CH-3003 Bern. Das BAFU ist ein Amt des Eidg. Departements für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation (UVEK).

Auftragnehmer: Empa, Abteilung Luftfremdstoffe und Umwelttechnik, Überlandstrasse 129, 8600 Dübendorf

Autoren: Hanna Herich und Christoph Hüglin

Begleitung BAFU: Rudolf Weber, Richard Ballaman

Hinweis: Diese Studie/dieser Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU) verfasst. Für den Inhalt ist allein der Auftragnehmer verantwortlich.

Dieser Bericht ist unter www.empa.ch/nabel verfügbar.

Inhaltsverzeichnis

1	Zusammenfassung und Schlussfolgerung	4
1.1	Ergebnisse	4
1.2	Kalibration und Qualitätssicherung	5
1.3	Ausblick	5
2	Résumé et conclusions	6
2.1	Résultats	6
2.2	Calibration et assurance de qualité	7
2.3	Conclusions	7
3	Einleitung	8
4	Messtechnik und Daten	9
4.1	Datenqualität und Datenkorrektur	10
4.1.1	Vergleich SMPS und CPC	12
5	Resultate	14
5.1	Typische Grössenverteilungen	14
5.2	Mehrjährige Trends der Partikelanzahlkonzentration	15
5.3	Vergleich der SMPS Partikelanzahlkonzentration mit anderen Luftschadstoffen	16
5.3.1	Vergleich von Partikelanzahlkonzentration mit CO und NO _x	16
5.3.2	Abhängigkeit der Partikelanzahlkonzentration von der Temperatur	18
5.3.3	Vergleich von Partikelanzahlkonzentration und Russkonzentrationen	21
5.4	Tages und Wochengänge der Partikelanzahlkonzentration	29
5.5	SMPS und APS Partikelanzahlkonzentration	29
	Literatur	34
	Anhang	34

1 Zusammenfassung und Schlussfolgerung

Seit mehreren Jahren werden an den beiden NABEL-Messstationen Härkingen (ländlich, direkt an Autobahn) und Zürich-Kaserne (städtisch) die Anzahlgrößenverteilung von Feinstaubpartikeln im Größenbereich von 10-500 nm kontinuierlich gemessen. Das Ziel dieser Messungen ist es, Informationen über die Konzentration von sehr kleinen Feinstaubpartikeln (ultrafeine Partikel mit einem Durchmesser kleiner 100 nm) sowie Partikeln des sogenannten Akkumulationsmodus (Partikeldurchmesser von 100 nm bis ca. 500 nm) zu gewinnen.

Dies ergänzt die Messungen der totalen Partikelanzahl an sechs NABEL-Messstationen (inkl. Härkingen), bei welchen alle Partikel zwischen 5 nm und ca. 3000 nm gesamthaft erfasst werden.

1.1 Ergebnisse

Dieser Messbericht enthält eine Reihe von beschreibenden Auswertungen der gemessenen Anzahlgrößenverteilungen von Feinstaubpartikeln im Größenbereich von 10-500 nm. Die wichtigsten Ergebnisse können wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Anzahlkonzentration von Feinstaubpartikeln an den NABEL-Standorten Härkingen und Zürich-Kaserne wird von Partikeln mit einem Durchmesser kleiner als 50 nm dominiert.
- In Härkingen ist bei Wind aus dem Verkehrssektor die Anzahlkonzentration dieser ultrafeinen Partikel gegenüber Bedingungen mit Wind aus dem Hintergrundsektor stark erhöht. Der Autobahnverkehr ist eine deutliche Emissionsquelle von Partikeln kleiner als 50 nm.
- Die bei tieferen Lufttemperaturen zunehmenden Konzentrationen verkehrsbedingter ultrafeiner Partikel mit Durchmesser kleiner 50 nm legen nahe, dass diese Partikel zumindest teilweise durch Kondensation von gasförmigen Verbindungen in den Verbrennungsabgasen entstehen. Diese Gase werden beim Einmischen in die Aussenluft stark abgekühlt und können Partikel bilden.
- Am Standort Härkingen ist die Partikelanzahlkonzentration in den Größenklassen bis 50 nm mit der Konzentration von NO_x stark korreliert. Die grösseren Partikelklassen zeigen einen schwächeren linearen Zusammenhang. Im Unterschied hierzu wird für CO der stärkste lineare Zusammenhang für die Partikelgrößenklasse 200-500 nm beobachtet, für Russ zeigt sich wiederum die grösste lineare Korrelation mit der Größenklasse 100-200 nm. Am städtischen Standort Zürich, welcher nicht im unmittelbaren Einflussbereich von starken Emissionsquellen liegt, sind die linearen Zusammenhänge zwischen Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Partikelgrößenklassen und gasförmigen Luftschadstoffen sowie Russ deutlich schwächer.
- Die dominierende Anzahl an ultrafeinen Partikeln trägt nur unwesentlich zur gesamten Volumenkonzentration und somit auch zur Massenkonzentration von Feinstaubpartikeln bei. Die Messung der Massenkonzentration von Feinstaub (z.B. PM₁₀ oder PM_{2.5}) kann daher keine ausreichenden Informationen über die Belastung der Aussenluft mit ultrafeinen Partikeln liefern. Hierzu müssen partikelzählende Messverfahren eingesetzt werden.

- Die Volumenkonzentration von Feinstaubpartikeln an den NABEL-Messstationen Härkingen und Zürich-Kaserne zeigen breite Maxima bei Partikeldurchmessern von 200-300 nm (Akkumulationsmodus). Die Volumenkonzentrationen sind am städtischen Standort Zürich-Kaserne und am Standort Härkingen bei beiden Belastungssituationen (Wind aus Hintergrund- bzw. Verkehrssektor) sehr ähnlich.

1.2 Kalibration und Qualitätssicherung

Die Messungen der Partikelanzahlverteilung an den beiden Messstationen Härkingen und Zürich-Kaserne werden als orientierende Messungen durchgeführt, da das Fehlen einer absoluten Kalibrationsmöglichkeit die Konsistenz längerer Datenreihen stark beeinträchtigt (siehe Abschnitt 4). Die vorliegenden Auswertungen der gemessenen Anzahlgrößenverteilungen zeigen trotzdem den Nutzen dieser Messungen für die Beurteilung der Luftqualität, machen jedoch auch die Grenzen dieses Ansatzes deutlich: Die regelmässig durchgeführten Funktionskontrollen der eingesetzten SMPS-Instrumente sind nicht ausreichend, um über einen längeren Zeitraum konsistente Messwerte mit bekannter Messunsicherheit erheben zu können. Dies wäre jedoch notwendig, um zuverlässige quantitative Aussagen zur zeitlichen Entwicklung der Anzahlkonzentration von Feinstaubpartikeln unterschiedlicher Grösse treffen zu können. Im Rahmen der europäischen Projekte EUSAAR und ACTRIS wurden Empfehlungen zum Betrieb von SMPS-Messsystemen erarbeitet [WBN⁺12]. Die aufgeführten Empfehlungen sollen sicherstellen, dass die bestmögliche Datenqualität erreicht wird. Wesentlich sind hierbei regelmässige Kontrollen der Klassierungsgenauigkeit des SMPS mit Hilfe von Testmessungen mit kugelförmigen Polystyrolpartikeln mit bekanntem Durchmesser, sowie die regelmässige Überprüfung der mit dem SMPS gemessenen Partikelanzahlkonzentration durch Vergleich mit einem kalibrierten Kondensationspartikelzähler (CPC). In Wiedensohler et al. [WBN⁺12] wird zudem empfohlen, dass die Luftprobe vor dem Eintritt in das Messgerät getrocknet werden sollte. Feinstaubpartikel sind zum grossen Teil hygroskopisch, die Anzahlgrößenverteilung hängt daher von der Luftfeuchtigkeit ab. Die Vergleichbarkeit der Anzahlgrößenverteilungen von verschiedenen Messorten wird durch die Messung der Durchmesser von "trockenen" Feinstaubpartikeln verbessert. Durch die bisherigen Messungen im NABEL konnten die Anzahlgrößenverteilungen mit ihren wichtigen Einflussgrößen bereits gut charakterisiert werden. Allerdings erschweren grundsätzliche, methodisch bedingte Kalibrationsprobleme das Erkennen und die Quantifizierung von Langzeittrends. Eine langfristige Weiterführung der Messungen ist deshalb nur sinnvoll, wenn hier Verbesserungen erreicht werden.

1.3 Ausblick

Die Messungen der Anzahlgrößenverteilung von Feinstaubpartikel werden im NABEL daher in Zukunft mit einem verbesserten Qualitätssicherungskonzept durchgeführt. Dieses wird die Empfehlungen von Wiedensohler et al. [WBN⁺12] sowie die Empfehlungen der von 2007 bis 2010 aktiven Fachgruppe des Cercl'Air [Cer10] berücksichtigen.

Die Messungen der Anzahlgrößenverteilungen werden am Standort Zürich-Kaserne fortgesetzt, da dieser Standort repräsentativ für einen grossen Teil der Bevölkerung ist. Der Standort Härkingen ist häufig durch die vom Autobahnverkehr neben der Station emittierten ultrafeinen Partikel dominiert. Die Anzahl dieser verkehrsbedingten Feinstaubpartikel wird gut durch die dort mit einem Kondensationspartikelzähler gemessene gesamte Partikelanzahlkonzentration wiedergegeben.

2 Résumé et conclusions

Depuis plusieurs années, on procède à la mesure en continu de la répartition numérique par taille des poussières fines entre 10 et 500 nm sur les deux stations de mesure NABEL de Härkingen (région rurale, en bordure d'une autoroute) et de Zürich-Kaserne (site urbain). Le but de ces mesures est de recueillir des informations sur les concentrations des poussières ultrafines d'un diamètre inférieur à 100 nm, ainsi que sur les particules dites en mode d'accumulation (particules d'un diamètre de 100 à environ 500 nm). Ces mesures complètent celles du nombre total de particules effectuées sur six stations de mesure NABEL (y compris celle de Härkingen) qui enregistrent globalement toutes les particules d'un diamètre situé entre 5 nm et environ 3000 nm.

2.1 Résultats

Le présent rapport contient une série d'évaluations descriptives des répartitions numériques par taille pour les poussières d'une taille de 10 à 500 nm. Les résultats les plus importants peuvent se résumer comme suit:

- Sur les sites NABEL d'Härkingen et de Zürich-Kaserne, les concentrations numériques des poussières fines sont dominées par les particules d'un diamètre inférieur à 50 nm.
- A Härkingen, en présence de vent venant du secteur de l'autoroute, la concentration numérique de ces particules ultrafines est fortement augmentée par rapport aux situations de vent en provenant du secteur de fond. Le trafic de l'autoroute est une nette source de particules d'une taille inférieure à 50 nm.
- L'augmentation des concentrations des particules ultrafines dues au trafic routier lors des températures basses suggère que ces particules se forment pour le moins en partie par condensation de composés gazeux des gaz d'échappement. Ces composés gazeux se refroidissent fortement lors de leur mélange avec l'air extérieur et peuvent ainsi former des particules.
- Sur le site de Härkingen la concentration numérique des particules des classes de taille jusqu'à 50 nm est fortement corrélée avec la concentration de NO_x alors que cette relation linéaire est plus faible pour les classes de tailles supérieures. A la différence de cela, pour le CO, la plus forte relation linéaire s'observe avec la classe de taille de particules de 200 à 500 nm et pour la suie, avec la classe de taille de 100 à 200 nm. Sur le site urbain de Zurich, qui ne se trouve pas dans la zone d'influence directe de fortes sources d'émissions, ces relations linéaires entre les concentrations numériques des différentes classes de particules et les polluants gazeux, ainsi que la suie, sont nettement moins marquées.
- Le nombre dominant des particules ultrafines ne contribue que dans une mesure peu importante à la concentration volumique totale et aussi très peu à la concentration massique des poussières fines. La mesure des concentrations massiques de poussières fines (p. ex. PM₁₀ ou PM_{2.5}) ne peut donc pas fournir d'informations suffisantes sur la pollution atmosphérique par les particules ultrafines. Il faut utiliser pour cela des méthodes de comptage des particules.
- Les concentrations volumiques de poussières fines sur les stations NABEL de Härkingen et de Zürich-Kaserne présentent de larges maxima pour les diamètres de particules de 200

à 300 nm (particules du mode d'accumulation). Les concentrations volumiques sur le site urbain de Zürich-Kaserne et sur le site de Härkingen sont très semblables pour les deux situations d'exposition (vent venant du secteur de fond et du secteur du trafic routier).

2.2 Calibration et assurance de qualité

Les mesures de la répartition numérique par taille des particules sur les deux stations de mesure de Härkingen et de Zürich-Kaserne sont effectuées à titre informatif car le manque d'une possibilité de calibration absolue compromet fortement la consistance des longues séries de mesure (cf. paragraphe 4). Les présentes évaluations des répartitions numériques par taille des particules démontrent tout de même l'utilité de ces mesures pour l'appréciation de la qualité de l'air mais montrent aussi les limites de cette approche: les contrôles réguliers du fonctionnement des instruments SMPS utilisés ne sont pas suffisants pour permettre d'enregistrer sur une longue période des valeurs de mesure consistantes avec une incertitude de mesure connue. Ce qui serait toutefois nécessaire pour émettre un avis fondé sur l'évolution dans le temps des concentrations numériques des particules de poussières fines de différentes tailles.

Des recommandations sur l'exploitation des systèmes de mesure SMPS ont été émises dans le cadre des programmes européens EUSAAR et ACTRIS [WBN⁺12]. Ces recommandations doivent permettre d'assurer l'atteinte de la meilleure qualité possible des données recueillies. Les points les plus importants sont les contrôles réguliers de la précision du classement effectué par les SMPS à l'aide de mesures tests avec des particules sphériques de polystyrène de diamètres connus ainsi que la vérification régulière des concentrations numériques de particules mesurées avec les SMPS par comparaison avec celles obtenues avec un compteur de particules à condensation calibré (CPC). Wiedensohler et al. [WBN⁺12] conseillent en plus de sécher l'échantillon d'air avant son entrée dans l'appareil de mesure. Les particules de poussières fines sont en majeure partie hygroscopiques et leur distribution numérique par taille dépend donc de l'humidité de l'air. La mesure du diamètre des particules de poussières fines "sèches" améliore la comparabilité des répartitions numériques par taille provenant de différents sites de mesure.

Les mesures réalisées jusqu'ici dans le réseau NABEL ont déjà permis de bien caractériser les répartitions numériques par taille à l'aide de leurs principales grandeurs d'influence. Toutefois des problèmes méthodologiques de calibrage fondamentaux rendent difficile la reconnaissance et la quantification de tendances à long terme. La poursuite sur la durée de ces mesures n'a ainsi de sens que si l'on parvient à les améliorer.

2.3 Conclusions

Dans l'avenir, un concept d'assurance de qualité sera utilisé dans le réseau NABEL pour les mesures de répartitions numériques par taille des poussières fines. Ce concept tiendra compte des recommandations de Wiedensohler et al. [WBN⁺12] ainsi que de celles du groupe Cercl'Air [Cer10]. Les mesures de répartitions numériques par taille sur le site de Zürich-Kaserne seront poursuivies car ce site est représentatif des expositions subies par une grande partie de la population. Le site de Härkingen est fréquemment dominé par les particules ultrafines émises par le trafic sur l'autoroute à proximité de la station. Le nombre de ces particules fines provenant du trafic routier est bien reflété par la concentration numérique totale des particules mesurée sur ce site avec un compteur de particules à condensation (CPC).

3 Einleitung

Seit 2005 bzw. 2006 wird an zwei Messstationen des NABEL Messnetzes, Härkingen und Zürich-Kaserne, die Anzahlgrössenverteilung von Aerosolpartikeln kontinuierlich bestimmt. Die Messungen dienen zur Beurteilung der Luftqualität und liefern ergänzende Informationen über die Feinstaubbelastung.

Die Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration wird mittels Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) vom Typ TSI 3034 (TSI Inc., Shoreview MN, USA) durchgeführt und erfolgt in 54 Grössenklassen zwischen 10nm und 487nm. Der Grössenbereich beinhaltet somit auch die ultrafeinen Partikel (<100nm), welche z.B. von Verbrennungsprozessen emittiert werden und möglicherweise einen besonders schädlichen Einfluss auf die menschliche Gesundheit haben. Da ultrafeine Partikel nur unwesentlich zur gesamten Feinstaubmassenkonzentration beitragen, kann deren Anteil in der Aussenluft nicht durch massenbezogene Messgrössen (z.B. PM10, PM2.5 oder PM1) abgeschätzt werden.

Zusätzlich zu den Messungen der Partikelanzahlverteilung an den Stationen Härkingen und Zürich-Kaserne werden an insgesamt fünf Standorten des NABEL-Messnetzes (inkl. Härkingen) kontinuierliche Messungen der gesamten (nicht nach der Grösse klassierten) Partikelanzahlkonzentration mit Kondensationspartikelzählern (CPC, Messbereich von 4 nm bis 3 µm) durchgeführt. Ausserdem wird am Standort Härkingen ein Flugzeit-Partikelspektrometer (APS) zur kontinuierlichen Bestimmung der Partikelanzahlverteilung in dem an das SMPS anschliessenden Grössenbereich von 0.5 bis 20µm eingesetzt.

Der städtische Standort Zürich-Kaserne und der ländliche, neben einer Autobahn gelegene Standort Härkingen repräsentieren zwei wichtige Belastungssituationen in der Schweiz. Im Rahmen dieses Berichts werden Resultate der zwischen 2005 und Mitte 2012 an den beiden NABEL Standorten gemessenen Anzahlgrössenverteilungen von Feinstaubpartikeln präsentiert und diskutiert.

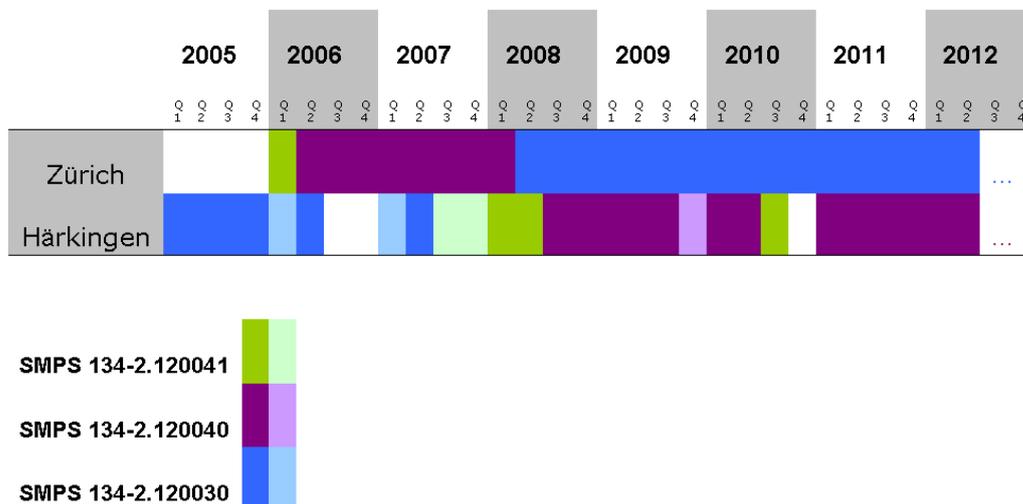


Abbildung 1: Einsatz der drei SMPS Messsysteme an den Stationen Zürich und Härkingen von 2005-2010. Jedes Quartal ist nach eingesetztem Messgerät farbkodiert (Helle Farben: Quartale mit Messausfällen länger als zwei Wochen).

4 Messtechnik und Daten

Für den Einsatz in den NABEL-Messstationen stehen drei SMPS Systeme vom Typ TSI SMPS 3034 (Gerätenummer 134-2.1200-41,- 40 und -30) zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung zur Verfügung. SMPS-Messsysteme klassieren die Feinstaubpartikel aufgrund der Beweglichkeit von elektrisch geladenen Feinstaubpartikeln in einem elektrischen Feld. SMPS-Instrumente weisen den Feinstaubpartikeln einen sogenannten Beweglichkeitsdurchmesser zu (siehe z.B. [Cer10]).

Zwei SMPS-Instrumente werden in Zürich und Härkingen kontinuierlich eingesetzt. Die Messung einer Anzahlgrößenverteilung dauert drei Minuten, drei Größenverteilungen werden zu einem 10-Minuten Mittelwert zusammengefasst (Wartezeit von einer Minute bis zum Start des nachfolgenden Mittelungsintervalls). Das dritte Messgerät dient als Ersatzgerät.

Es ist darauf hinzuweisen, dass sowohl die Messungen der Partikelanzahlverteilung mit SMPS, als auch die der gesamten Partikelanzahlkonzentration mit CPC als orientierende Messungen geplant und durchgeführt werden. Für beide Messgrößen gibt es im Gegensatz zu den typischen gasförmigen Luftschadstoffen keine einfache und praktikable Möglichkeit, die Messgeräte während des Betriebes auf der Station zu kalibrieren und somit die Genauigkeit der Messungen fortwährend zu prüfen. Bei den Messungen der Partikelanzahlkonzentration mit CPC wird im NABEL ein recht strenges und aufwändiges Verfahren zur Sicherung der Datenqualität angewendet. Dieses beinhaltet einen jährlichen Vergleich der eingesetzten Messgeräte im Labor mit einem Referenzmessgerät, welches wiederum beim Eidgenössischen Institut für Metrologie (Metas) kalibriert wird. Um den Aufwand für die Messungen tief zu halten, wurde bei den SMPS-Instrumenten bewusst auf die Anwendung eines umfassenden Qualitätssicherungskonzeptes verzichtet. Die Funktion der SMPS-Instrumente wird jedoch zweiwöchentlich kontrolliert, die Geräte werden zudem regelmässig beim Hersteller revidiert. Zusätzlich werden die eingesetzten Messgeräte sporadisch mit einem weiteren SMPS-Messsystem (TSI SMPS 3936) im Labor der Empa, oder im Rahmen von Testmessungen beim Metas gegen andere SMPS-Messsysteme verglichen.

Wie in den nachfolgenden Abschnitten deutlich wird, ist der gegenwärtige Betrieb der SMPS-Instrumente nicht ausreichend, um sehr genaue und zweifelsfrei konsistente Messreihen zu erheben. Die Messungen liefern dennoch wertvolle Informationen über die typischen Größenverteilungen der Feinstaubpartikel für unterschiedliche Belastungssituationen. Bei einer quantitativen Interpretation der Messergebnisse sowie der zeitlichen Entwicklung der mit den SMPS gemessenen Partikelanzahlkonzentrationen ist dagegen Vorsicht geboten.

Abbildung 1 zeigt den Einsatz der drei SMPS Geräte an den beiden NABEL-Stationen. An der Station Zürich-Kaserne ist die Messreihe bis auf einen längeren Geräteausfall (Mitte 2009) von Januar 2006 bis Juli 2012 lückenlos. In Härkingen traten verschiedentlich Geräteausfälle von über zwei Wochen auf. Für das dritte und vierte Quartal 2006 sowie im vierten Quartal von 2010 liegen keine Messdaten vor. Zwischen November 2008 und Februar 2011 wurde eine dünnere Ansaugleitung verwendet, um eine geringere Verweilzeit der Luftprobe im Probenahmesystem und damit geringere Diffusionsverluste zu erreichen. Es traten jedoch während diesem Zeitraum offensichtliche Minderbefunde auf (siehe Abschnitt 4.1), wahrscheinlich ausgelöst durch Ablagerungen in der Ansaugleitung, an denen verstärkt Partikel abgeschieden wurden. Eine Datenkorrektur ist für diesen Zeitraum noch ausstehend.

Obwohl die drei SMPS Systeme baugleich sind, hat sich gezeigt, dass die Datenqualität der Geräte nicht gleichwertig ist. Während die Messwerte der beiden SMPS 134-2.120041 und 134-2.120030 für den ganzen Größenbereich von 10 nm bis 487 nm gut übereinstimmen, gab es beim SMPS 134-2.120040 Probleme, Partikel im Größenbereich von 10 nm bis etwa 15 nm zu detektieren.

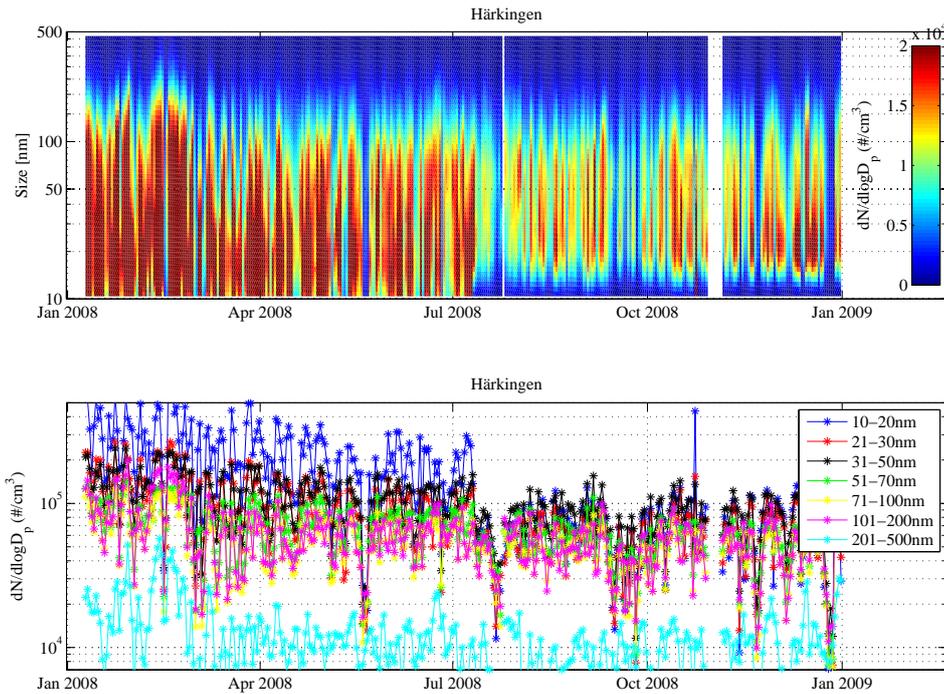


Abbildung 2: Tagesmittelwerte der Partikelgrößen (oben) und Verlauf verschiedener Partikelgrößenklassen (unten) für Härkingen (unkorrigiert).

Dies kann starke Auswirkungen auf die gemessene Partikelanzahlkonzentration haben. Vor allem am verkehrsbelasteten Standort Härkingen, an dem typischerweise eine hohe Anzahlkonzentration ultrafeiner Partikel vorherrscht, machen sich mögliche Verluste deutlich bemerkbar. Auf eine mögliche Datenkorrektur wird in Abschnitt 4.1 eingegangen.

Die Messung einer Partikelgrößenverteilung (scannen durch alle Größenklassen) dauert mit den eingesetzten Instrumenten drei Minuten. Besonders an Standorten an denen die Anzahl und Grösse der Feinstaubpartikel kurzzeit stark variiert, können aufgrund der vergleichsweise langsamen Messzeit falsche Größenverteilungen resultieren. Seit September 2008 ist dem SMPS System in Härkingen daher ein Puffervolumen vorgeschaltet. Die Partikelverluste während der Verweilzeit in diesem Puffervolumen wurde im Labor bestimmt, die Messungen von Härkingen wurden entsprechend korrigiert.

4.1 Datenqualität und Datenkorrektur

Abbildung 2 zeigt den Verlauf der Partikelanzahlkonzentration als Tagesmittelwerte für Härkingen. Zudem ist der Verlauf der Konzentration für verschiedene Partikelgrößenklassen nach [LWW⁺10] dargestellt. Exemplarisch werden die Messwerte des Jahres 2008 gezeigt, die entsprechenden Abbildungen für die anderen Jahre finden sich im Anhang. In Abbildung 2 ist deutlich der Gerätewechsel am 10. Juli 2008 vom SMPS 134-2.120041 auf das SMPS 134-2.120040 zu erkennen. Besonders der Größenbereich mit der höchsten Partikelanzahlkonzentration (10-20 nm) zeigt einen deutlichen Bruch mit tieferen Werten seit Juli 2008. Auch die Größenbereiche von 21-30 nm und von 31-50 nm können durch den Gerätewechsel beeinflusst sein. Die Detektion von Feinstaubpartikeln scheint beim SMPS 134-2.120040 in den kleinsten Größenklassen unvollständig zu sein.

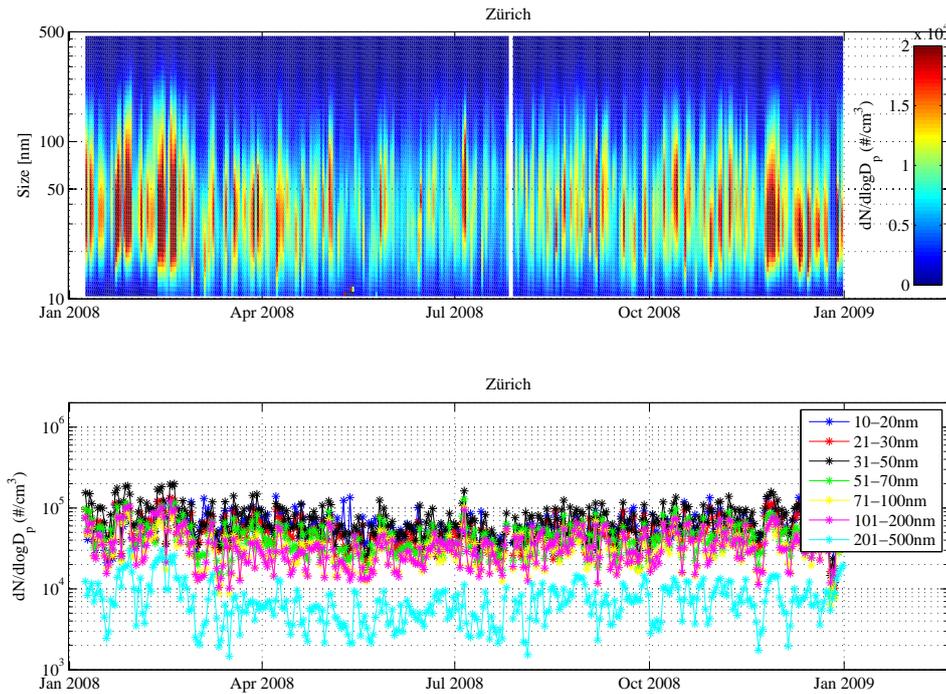


Abbildung 3: Tagesmittelwerte der Partikelgrößen (oben) und Verlauf verschiedener Partikelgrößenklassen (unten) für Zürich.

In Abbildung 3 sind analog zur Abbildung 2 die Messresultate für Zürich-Kaserne ebenfalls für das Jahr 2008 dargestellt. Der Standort Zürich-Kaserne ist den Verkehrsemissionen nicht direkt ausgesetzt, der Anteil von Feinstaubpartikeln im Größenbereich von 10-20 nm ist entsprechend gering. Der Gerätewechsel am 11. Februar 2008 vom SMPS 134-2.120040 auf das SMPS 134-2.120030 ist daher an diesem Standort nur schwach zu erkennen. Dennoch muss auch hier davon ausgegangen werden, dass die Partikel im Größenbereich von 10-50 nm März 2006 und Februar 2008 nicht ganz vollständig gemessen wurden. Das bereits erwähnte Fehlen einer Möglichkeit zur Kalibration mit Referenzmaterialien wirkt sich auch hier sehr nachteilig aus.

Die SMPS-Messungen an der Messstation Härkingen nach dem 10. Juli 2008 wurden basierend auf Vergleichsmessungen der gesamten Partikelanzahlkonzentration mittels Kondensationspartikelzähler (CPC, keine grössenaufgelöste Messung) korrigiert (siehe Abschnitt 4.1.1). Dennoch gilt es zu berücksichtigen, dass aufgrund der fehlerbehafteten Messung der Partikelanzahlkonzentrationen in den kleinsten Größenklassen eine quantitative Interpretation der Messwerte von Härkingen ab Juli 2008 unsicher ist.

Schwierig gestaltet sich zudem die Auswertung der Messdaten des SMPS 134-2.120040 in Härkingen seit Januar 2011. Nach Geräteproblemen im August 2010 wurde das Gerät beim Hersteller repariert. Doch auch anschliessend wurden die Partikelanzahlkonzentrationen in einigen Größenklassen nach wie vor unvollständig detektiert, allerdings hatte sich die Detektionseffizienz für Partikel im Größenbereich von 10-50 nm durch die Geräte-reparatur verändert.

4.1.1 Vergleich SMPS und CPC

In Härkingen wird seit 2003 die gesamte Partikelanzahlkonzentration mit einem Kondensationspartikelzähler (CPC, TSI, Typ: 3022A, seit Juli 2009 Typ: 3775) bestimmt. Die mit dem CPC gemessene, nicht grössenaufgelöste Partikelanzahlkonzentration können mit den aufsummierten SMPS-Anzahlgrössenverteilungen verglichen werden. Abbildung 4 zeigt einen Vergleich der Tagesmittelwerte der mit CPC und SMPS gemessenen Partikelanzahlkonzentration in Härkingen für die Jahre 2005 und 2008. Im Allgemeinen ist die Beziehung linear, die mit dem CPC gemessene Partikelanzahlkonzentration ist höher als die mit dem SMPS gemessenen Werte. Dies ist einerseits auf Diffusionsverluste zurückzuführen, andererseits auf den grösseren Messbereich des CPC (7 nm - 10 μm). Für 2005 weichen die ersten Messpunkte direkt nach der Inbetriebnahme des SMPS von den späteren Werten ab, anschliessend ist die Abhängigkeit zwischen CPC und SMPS Anzahl für das gesamte Jahr konstant. In den Messwerten von 2008 ist hingegen der zuvor erwähnte Gerätewechsel deutlich erkennbar. Die Beziehung zwischen SMPS und CPC Partikelanzahlkonzentration vor und nach dem Gerätewechsel ist jedoch jeweils linear.

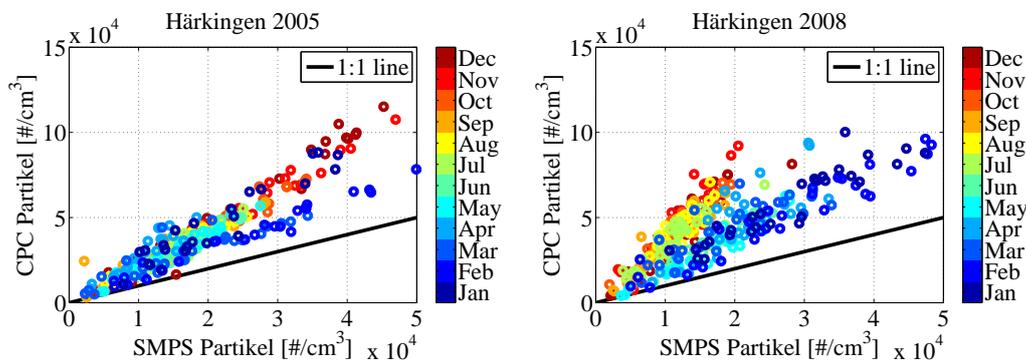


Abbildung 4: Vergleich der mit CPC und SMPS gemessenen gesamten Partikelanzahlkonzentration für 2005 und 2008. Jeder Datenpunkt entspricht einem Tagesmittelwert. Die Farbkodierung entspricht dem Messmonat.

Analog zur Abbildung 4 wurden die Messwerte vor und nach dem 10. Juli 2008 für jede SMPS Grössenklasse gegen die Messwerte des CPC aufgetragen. Anschliessend wurde die lineare Beziehung zwischen der SMPS und der CPC Partikelanzahlkonzentration genutzt, um grössenabhängige Skalierungsfaktoren für die Messwerte vor und nach dem Gerätewechsel zu bestimmen. Abbildung 5 zeigt die grössenabhängigen Skalierungsfaktoren, mit denen die Messwerte des SMPS 134-2.120040 nach dem 10. Juli 2008 korrigiert wurden.

Abbildung 6 zeigt den zeitlichen Verlauf der Tagesmittelwerte der Partikelkonzentration, sowie den Verlauf der Konzentration in den verschiedenen Partikelgrössenklassen für Härkingen nach der Datenkorrektur (nur 2008). Die in Abbildung 2 deutlich erkennbaren Brüche in den Zeitreihen zum Zeitpunkt des Gerätewechsels sind in den korrigierten Daten nicht mehr ersichtlich. Im Anhang befinden sich die entsprechenden Darstellungen für die Messwerte aus den anderen Jahren für die beiden Stationen Härkingen und Zürich-Kaserne.

Für die Messungen von Härkingen ab Januar 2011 wurde in gleicher Weise eine Datenkorrektur basierend auf dem Vergleich der mit CPC und SMPS gemessenen Partikelkonzentrationen durchgeführt (die ermittelten und angewendeten Skalierungsfaktoren sind hier nicht gezeigt).

In diesem Bericht werden in den nachfolgenden Darstellungen der Partikelanzahlkonzentrationen am Standort Härkingen ausschliesslich die korrigierten Daten gezeigt und diskutiert.

Neben den notwendigen Datenkorrekturen aufgrund der unvollständigen Detektion von Parti-

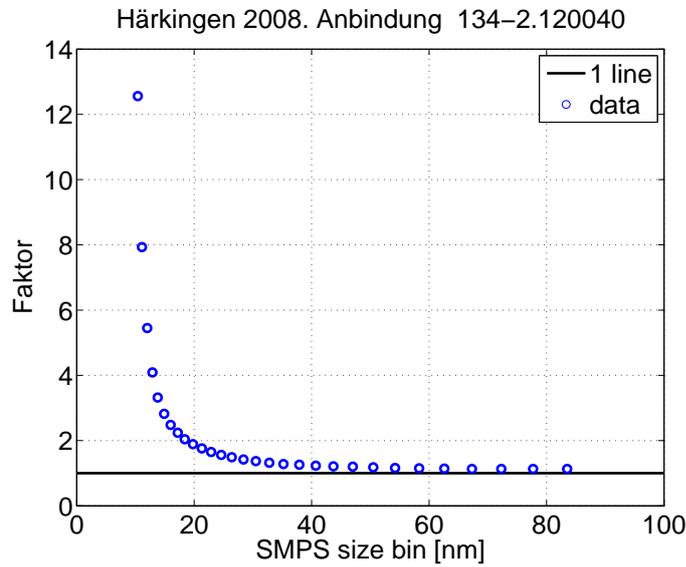


Abbildung 5: Skalierungsfaktoren zur Korrektur der Messdaten des SMPS 134-2.120040.

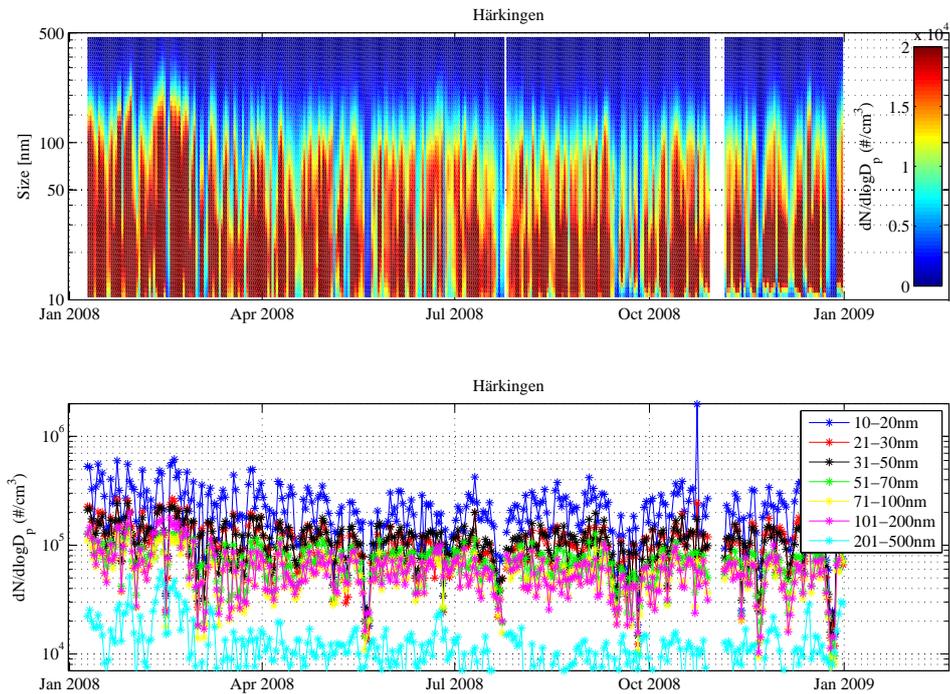


Abbildung 6: Tagesmittelwerte der Partikelgrössen (oben) und Verlauf verschiedener Partikelgrössenklassen (unten) für Härkingen, mit Datenkorrektur anhand von Skalierungsfaktoren (siehe Abb. 5)

keln in den kleinsten Grössenklassen bei einem der SMPS-Geräte, trat in Härkingen eine Inkonsistenz in der Messreihe durch durch Veränderungen in der Ansaugleitung auf: Vor dem 27.11.2008 wurden die Aussenluftproben sowohl dem CPC als auch dem SMPS durch zwei 1/4" Leitungen zugeführt. Zwischen dem 27.11.2008 und dem 23.2.2011 wurde eine gemeinsame 1/8" Ansaugleitung verwendet, im Februar 2011 wurde diese Änderung rückgängig gemacht, seitdem werden wieder die 1/4" Leitungen verwendet. Sowohl die Messungen mit dem CPC als auch diejenigen mit dem SMPS zeigen für den Zeitraum mit der dünneren 1/8"-Leitung zu tiefe Partikelanzahlkonzentrationen (siehe Abbildung 7), das Verhältnis der mit CPC und SMPS erhobenen Messwerte ist für diesen Zeitraum konstant. Eine Korrektur der Daten aus diesem Zeitbereich ist derzeit noch ausstehend.

5 Resultate

5.1 Typische Grössenverteilungen

Die gemessenen Anzahlgrössenverteilungen variieren zeitlich sehr stark und können sich je nach Jahreszeit, Verkehrsaufkommen oder Windrichtung deutlich unterscheiden. Der Standort Härkingen repräsentiert dabei je nach vorherrschender Windrichtung zwei unterschiedliche Belastungssituationen: Bei Wind aus einem Sektor um 220° werden die Emissionen des Autobahnverkehrs zur Messstation transportiert (Verkehrssektor), Wind aus einem Sektor um 45° definiert den ländlichen Hintergrundsektor.

Exemplarisch werden in Abbildung 8 einige für die Messstation Härkingen typische Grössenverteilungen gezeigt. Dazu wurden mittlere Grössenverteilungen (für das Jahr 2009) für den Sommer (Juni, Juli und August, JJA), den Winter (Dezember, Januar und Februar, DJF), für unterschiedliche Windrichtungen (Hintergrundsektor/ Verkehrssektor), sowie für Wochenenden und Werktage berechnet.

In Abbildung 9 sind entsprechend die typischen Grössenverteilungen an der Messstation Zürich-Kaserne dargestellt. Es wurden mittlere Grössenverteilungen (für das Jahr 2006) für verschiedene Bedingungen berechnet, für Sommer (JJA) und Winter (DJF), sowie für Wochenenden und Werktage.

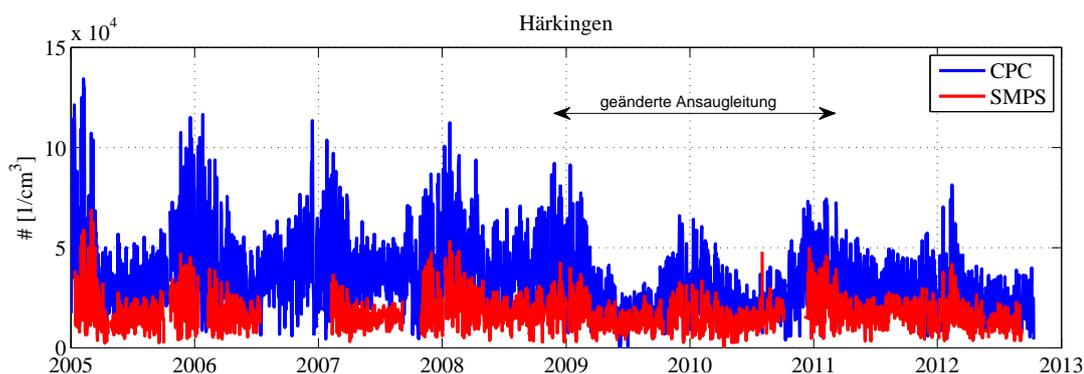


Abbildung 7: Tagesmittelwerte der mit CPC und SMPS an der NABEL-Station Härkingen gemessenen Partikelanzahlkonzentration.

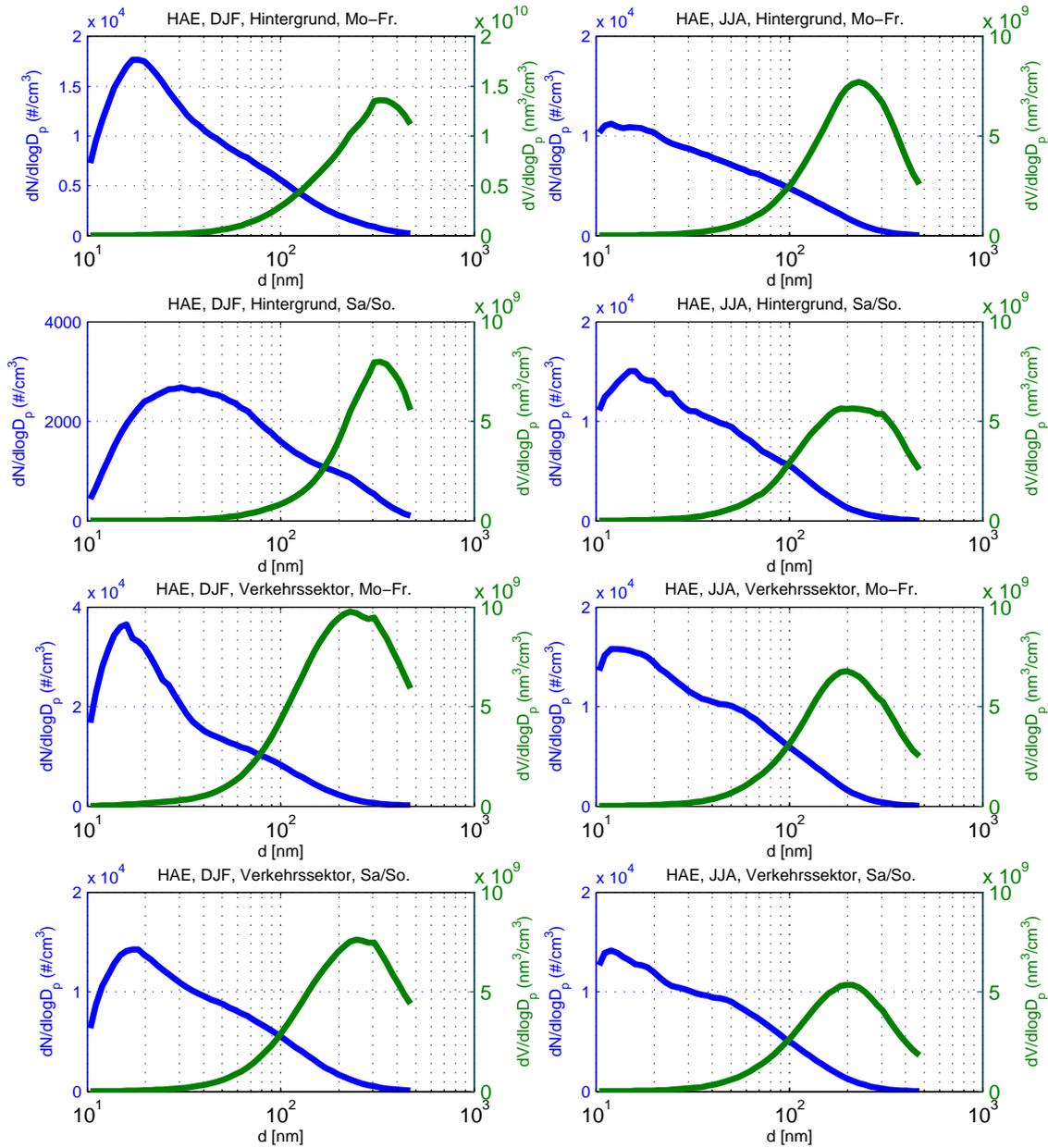


Abbildung 8: Exemplarische SMPS Grössenverteilungen für Härkingen. Es wurden mittlere Grössenverteilungen für verschiedene Bedingungen berechnet, für Sommer (JJA) und Winter (DJF), für unterschiedliche Windrichtungen (Hintergrundsektor/Verkehrssektor), sowie für Wochenenden und Werktage. Linke Y-Achse: Anzahlverteilung (blau), rechte Y-Achse Volumenverteilung (grün).

5.2 Mehrjährige Trends der Partikelanzahlkonzentration

Im weiteren werden die mehrjährigen Trends der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen betrachtet. Dazu wurden Monatsmittel für die in [LWW⁺10] verwendeten sieben Grössenbereichen berechnet. Abbildung 10 zeigt den Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in diesen Grössenklassen in Härkingen in Form von Säulendiagrammen (nicht gestapelt und

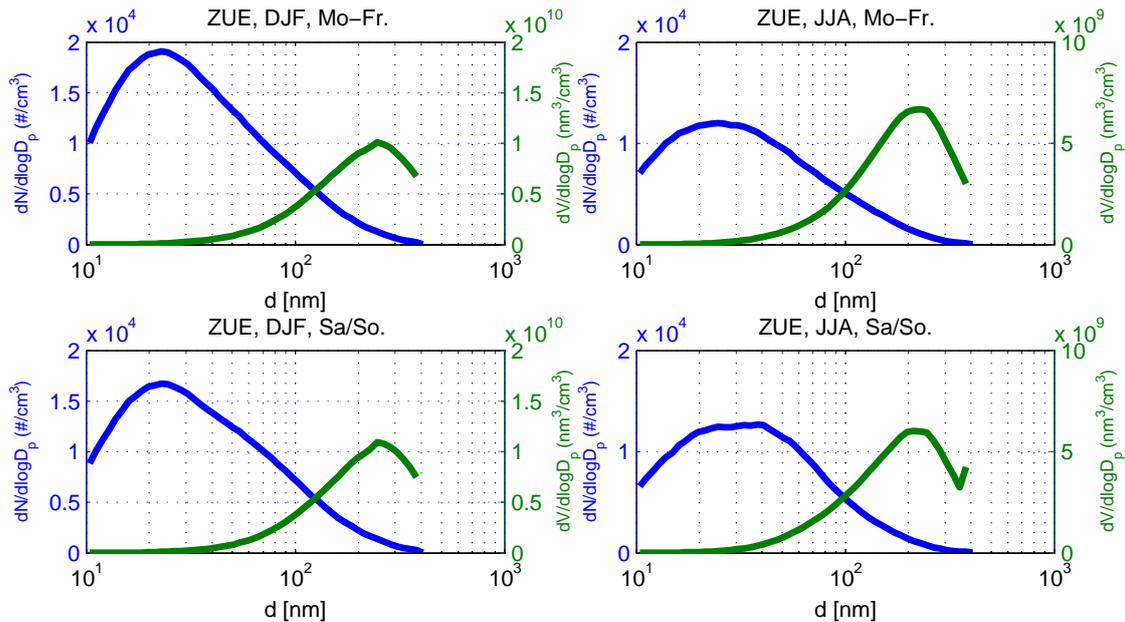


Abbildung 9: Exemplarische SMPS Grössenverteilungen für Zürich. Es wurden mittlere Grössenverteilungen für verschiedene Bedingungen berechnet, für Sommer (JJA) und Winter (DJF), sowie für Wochenenden und Werktage. Linke Y-Achse: Anzahlverteilung (blau), rechte Y-Achse Volumenverteilung (grün).

gestapelt). An die gestapelten Werte wurde eine lineare Funktion angenähert, diese deutet auf leicht abnehmende Partikelanzahlkonzentrationen zwischen 2006 und 2012 hin. Dieser zeitliche Trend ist jedoch wegen den in Abschnitt 4.1) beschriebenen Datenkorrekturen, sowie der noch notwendigen Korrektur der Daten von 2009/2010 (Phase mit veränderter Ansaugleitung) mit Vorsicht zu interpretieren.

Abbildung 11 zeigt den entsprechenden zeitlichen Verlauf der Partikelanzahlkonzentration an der Messstation Zürich-Kaserne für die Zeit von 2006 bis zum Sommer 2012. Auch hier deutet der geschätzte lineare Trend auf eine Abnahme der Partikelanzahlkonzentration im betrachteten Zeitraum hin. Auch an diesem Standort sollte der zeitliche Trend mit Vorsicht interpretiert werden. Wie in Abschnitt 4 erwähnt können SMPS Instrumente im Betrieb in den Messstationen nicht kalibriert werden. Allfällige Veränderungen der Messgenauigkeit während dem Einsatz in den Messstationen können nicht sicher erkannt werden, entsprechend sind die Messfehler nicht genau bekannt.

5.3 Vergleich der SMPS Partikelanzahlkonzentration mit anderen Luftschadstoffen

5.3.1 Vergleich von Partikelanzahlkonzentration mit CO und NOx

An den NABEL Stationen werden die Konzentrationen verschiedener Luftschadstoffe sowie einige meteorologische Grössen kontinuierlich gemessen. Im folgenden wird die Abhängigkeit zwischen der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenbereichen und der Konzentration von

Kohlenmonoxid (CO) und Stickoxiden (NO_x=NO+NO₂) an beiden Standorten untersucht.

In Abbildung 12 ist die Abhängigkeit zwischen NO_x und den Partikelanzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenbereichen an der Messstation Härkingen für das Jahr 2007 dargestellt. Jeder Datenpunkt entspricht einem Tagesmittelwert, an diese wurden lineare Funktionen angepasst und die zugehörigen Bestimmtheitsmasse berechnet. Während die Partikelanzahlkonzentrationen in den kleinen Grössenbereiche relativ gut mit NO_x korrelieren, z.B. N(10-20, 21-30 und 31-50nm und NO_x jeweils mit einem Bestimmtheitsmass von $R^2 > 0.7$, weist die Abhängigkeit zwischen dem Grössenbereich der grössten Partikel N(201- 500nm) und NO_x nur noch ein Bestimmtheitsmass von $R^2 > 0.41$ auf. Der Vergleich zwischen NO_x und den Anzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen wurde auch für Werkstage und Wochenenden getrennt durchgeführt. Dabei zeigten sich keine klaren Unterschiede zu den oben erwähnten Abhängigkeiten (siehe Anhang).

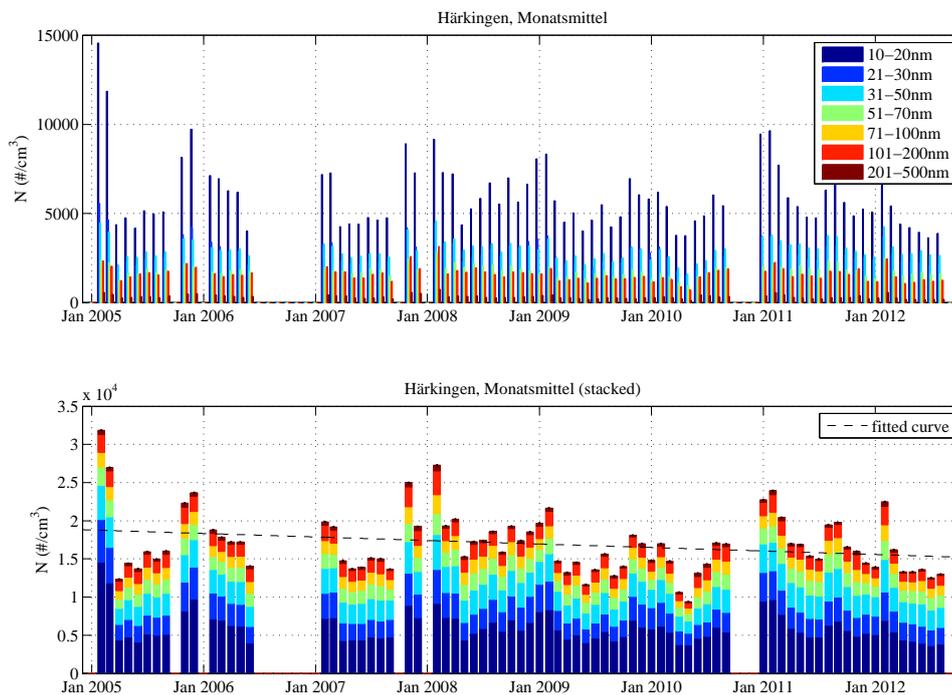


Abbildung 10: Zeitlicher Verlauf der Monatsmittelwerte der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der ländlichen, direkt an einer Autobahn gelegenen Messstation Härkingen (oben: nicht gestapelt; unten: gestapelt). An die gestapelten Messwerte wurde eine lineare Funktion angepasst.

In Abbildung 13 ist die Beziehung zwischen CO und den Partikelkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen für Härkingen exemplarisch für das Jahr 2007 dargestellt. Während die Partikelkonzentrationen in den kleinen Grössenklassen nur schwach mit CO korrelieren, zeigen Partikelkonzentrationen in der grössten Klasse N(201-500nm) und CO eine hohe lineare Abhängigkeit ($R^2 > 0.8$). Auch hier zeigen sich keine klaren Unterschiede zwischen diesen Abhängigkeiten an Werktagen und Wochenenden (siehe Anhang).

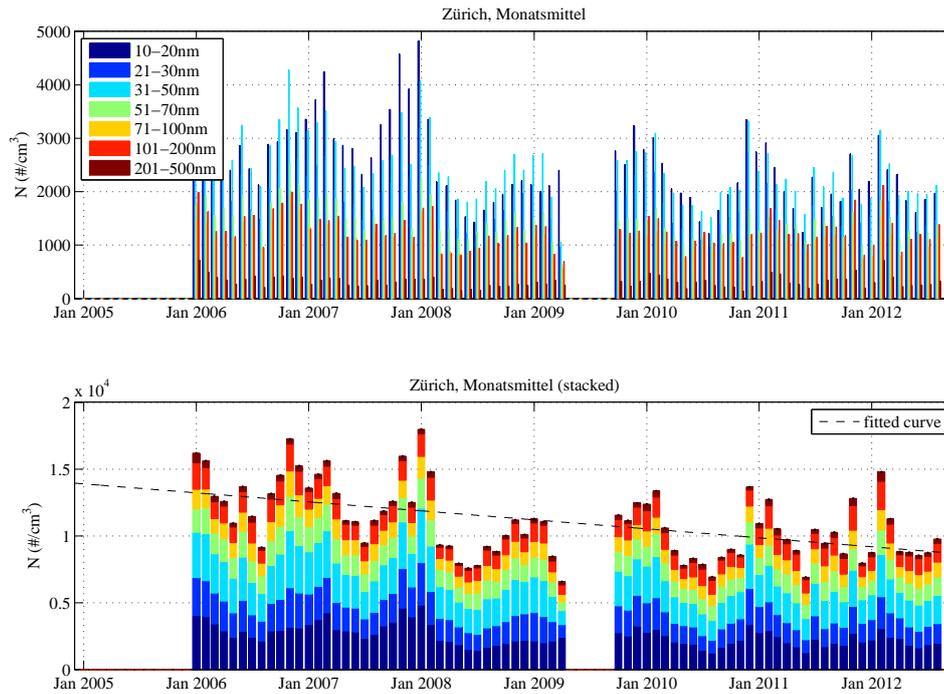


Abbildung 11: Zeitlicher Verlauf der Monatsmittelwerte der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der städtischen Messstation Zürich-Kaserne (oben: nicht gestapelt; unten: gestapelt). An die gestapelten Messwerte wurde eine lineare Funktion angepasst.

Entsprechend den vorherigen Abbildungen sind in den Abbildungen 14 und 15 die Abhängigkeit zwischen den Partikelanzahlkonzentration in unterschiedlichen Grössenklassen und den Immissionskonzentrationen von NO_x und CO am Standort Zürich-Kaserne dargestellt (Messungen des Jahres 2009). Auch hier zeigen die kleinen Partikelgrössen eine höhere lineare Korrelation mit NO_x, allerdings auf tieferem Niveau als in Härkingen ($R^2 \approx 0.5$). Für CO und Partikelanzahlkonzentration sind die Bestimmtheitsmasse für fast alle Grössenklassen ähnlich ($0.4 < R^2 < 0.5$). Die gegenüber Härkingen tieferen Korrelationen zwischen den gasförmigen und hauptsächlich von Emissionen aus Verbrennungsprozessen resultierenden Luftschadstoffen NO_x und CO am städtischen Standort Zürich-Kaserne sind zu erwarten, da dieser Standort in einer parkähnlichen Umgebung nicht unmittelbar durch Emissionen des Verkehrs beeinflusst ist.

5.3.2 Abhängigkeit der Partikelanzahlkonzentration von der Temperatur

Primäre ultrafeine Partikel im Grössenbereich < 30 nm können massgeblich durch Nukleation und Kondensation von gasförmigen Verbindungen in Verbrennungsabgasen entstehen, wenn diese beim Einmischen in die Aussenluft abkühlen. Die Stabilität dieser Partikel hängt von der Lufttemperatur ab, entsprechend sind bei tieferen Temperaturen im Einflussbereich von Emissionsquellen höhere Konzentrationen von sehr kleinen Partikeln zu erwarten. Am verkehrsbelasteten Standort in Härkingen ist diese Tendenz erkennbar. Während der Wintermonate zeigt sich in der kleinsten Partikelgrössenklasse (10-20 nm) ein deutlicher Abfall der Partikelkonzentration mit steigender Temperatur, für die Grössenklassen ab 51 nm ist diese Abhängigkeit nur noch gering (Abbildung 16). Während der Sommermonate ist ebenfalls, wenn auch weniger ausgeprägt als im Winter,

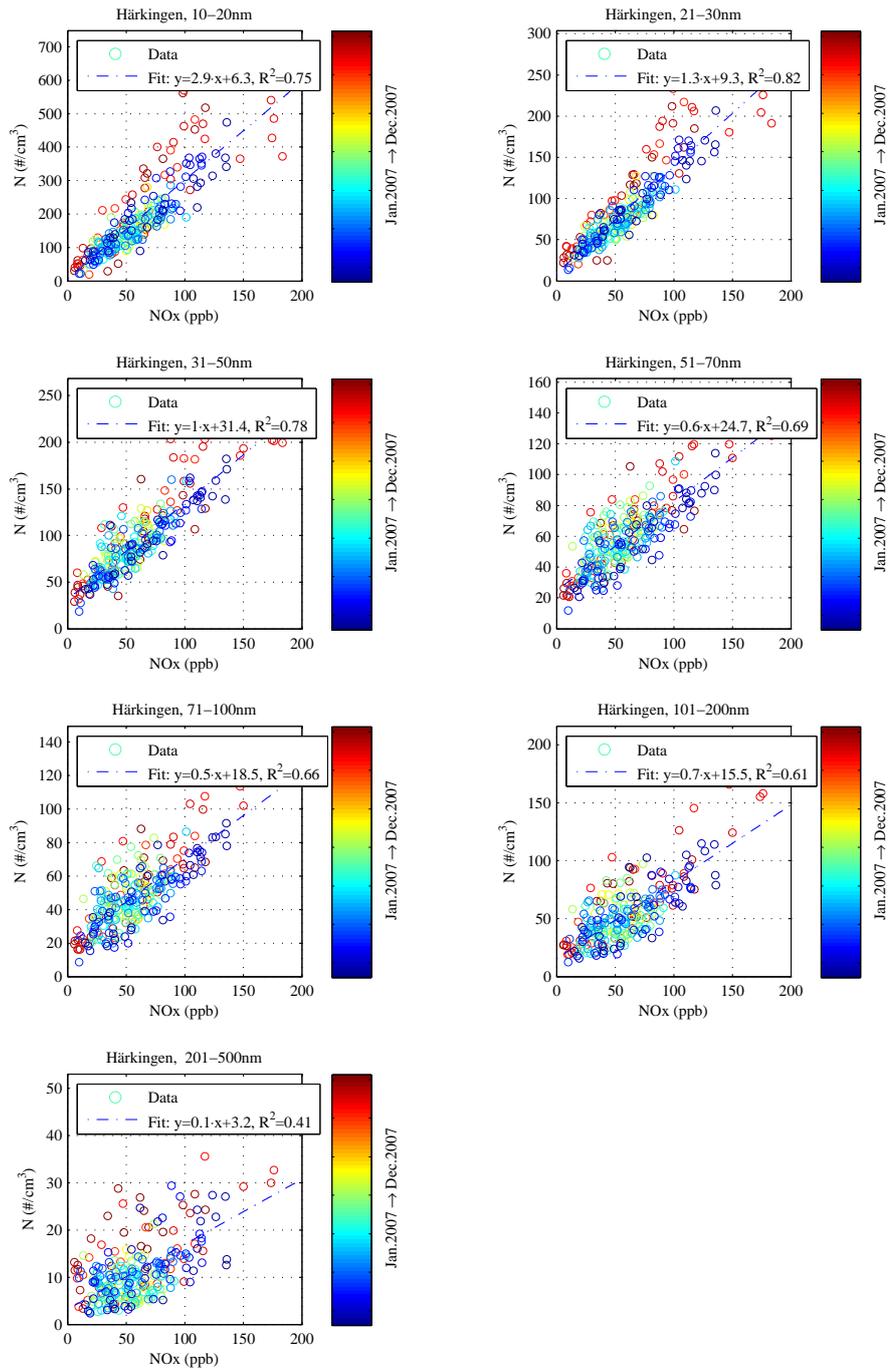


Abbildung 12: Streudiagramme von NO_x gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen in Härkingen für das Jahr 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

eine Abnahme der Partikelkonzentration in der kleinsten Partikelgrössenklasse (10-20 nm) mit steigender Temperatur zu beobachten. Diese Abhängigkeit ist für die grösseren Grössenklassen nicht mehr erkennbar (Abbildung 17). Der in den Abbildungen 16 und 17 erkennbare Zusammen-

hang zwischen den Partikelanzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen und der Lufttemperatur weist auf einen massgeblichen Beitrag der oben erwähnten kondensierten (und wieder verflüchtigen) Partikeln hin.

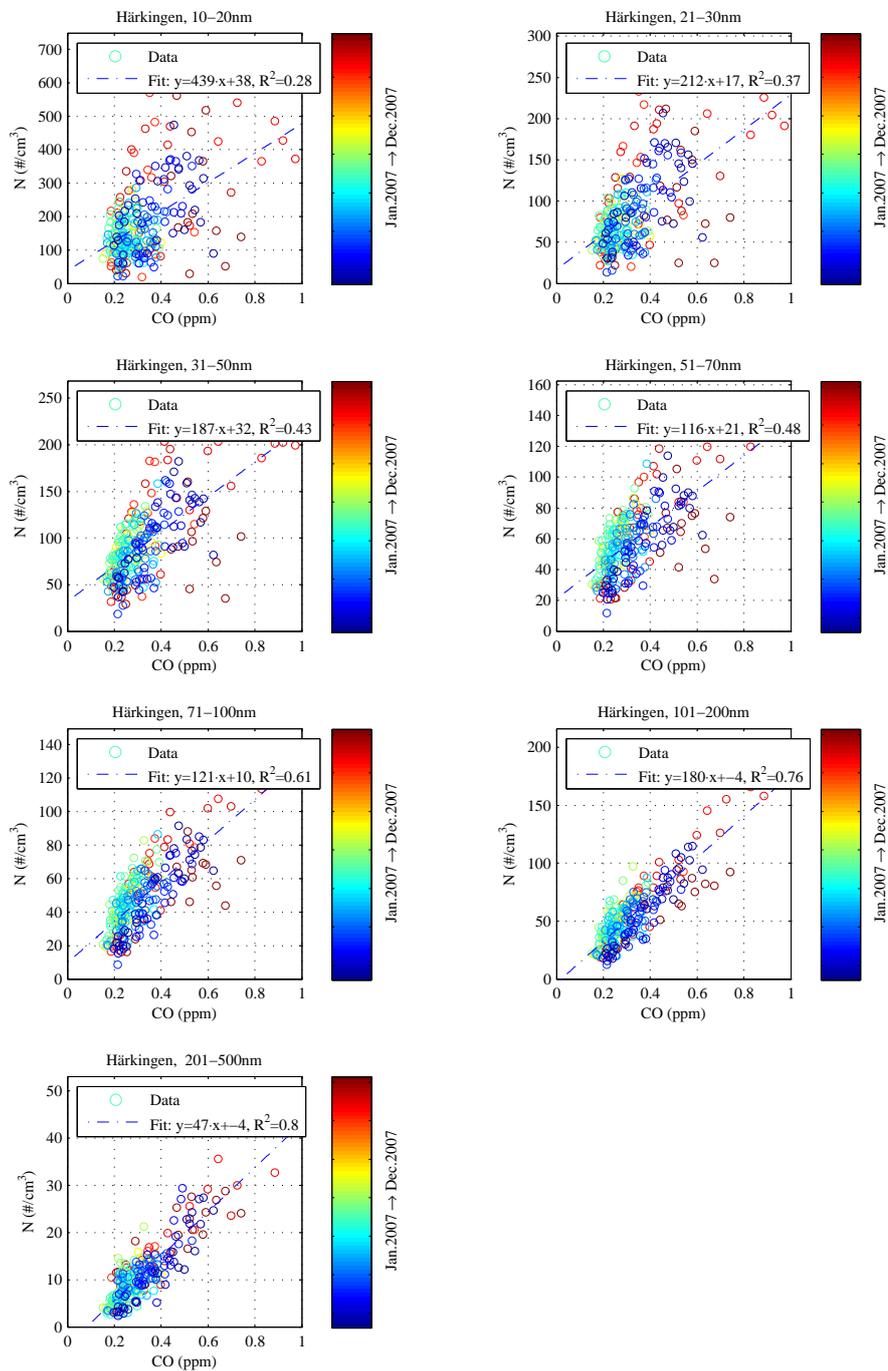


Abbildung 13: Streudiagramme von CO gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen in Härkingen für das Jahr 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

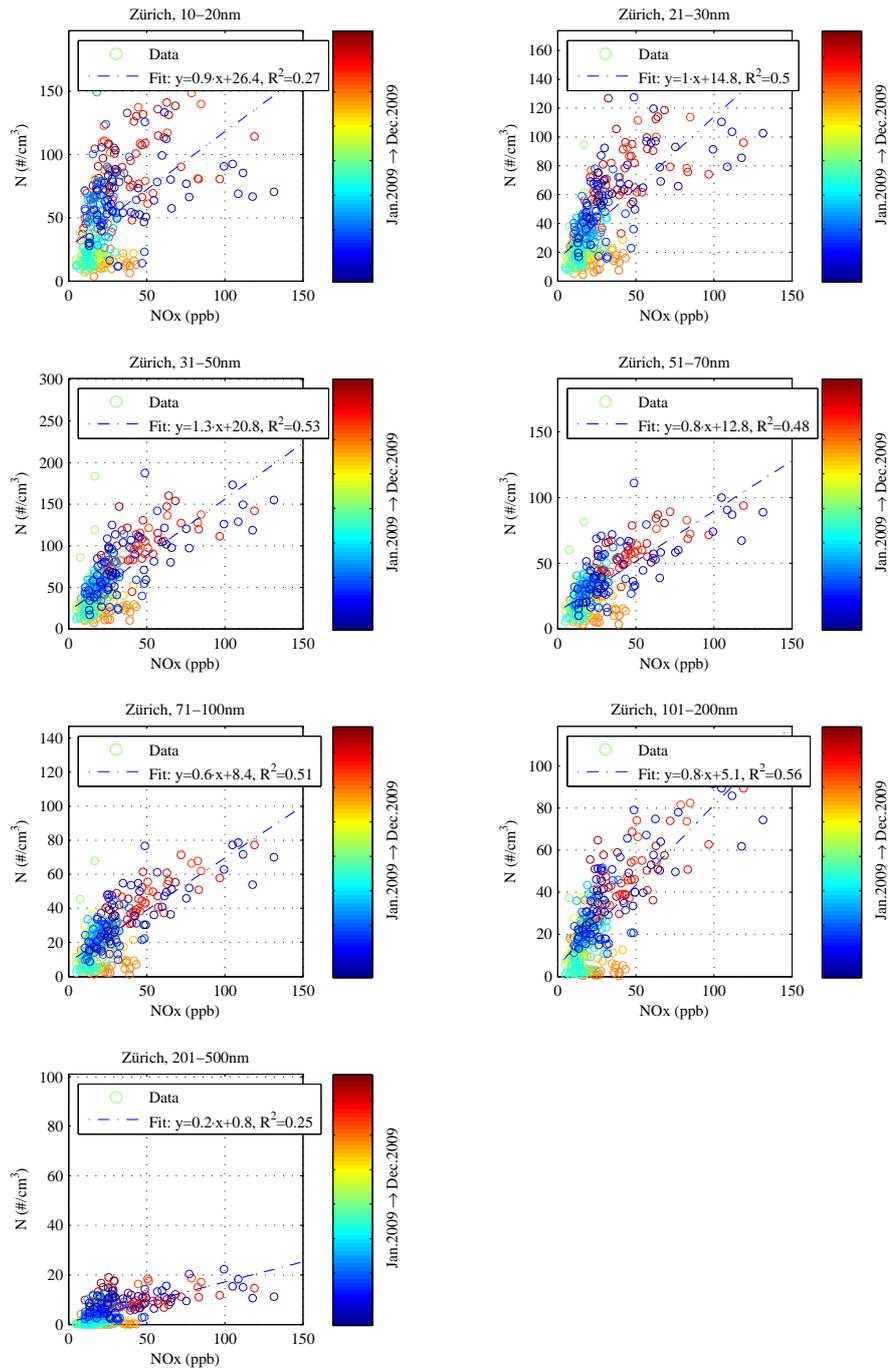


Abbildung 14: Streudiagramme von NO_x gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Station Zürich-Kaserne für das Jahr 2009. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

5.3.3 Vergleich von Partikelanzahlkonzentration und Russkonzentrationen

Im folgenden werden die an den Messstationen Härkingen und Zürich-Kaserne gemessenen Partikelanzahlkonzentrationen mit den dort mit optischen Methoden erhobenen Russkonzentrationen

nen (bzw. Black Carbon, BC) verglichen. Am Standort Härkingen wird seit 2007 ein Multiangle Absorption Photometer (MAAP, Model 5012, Thermo Scientific) betrieben, in der Messstation

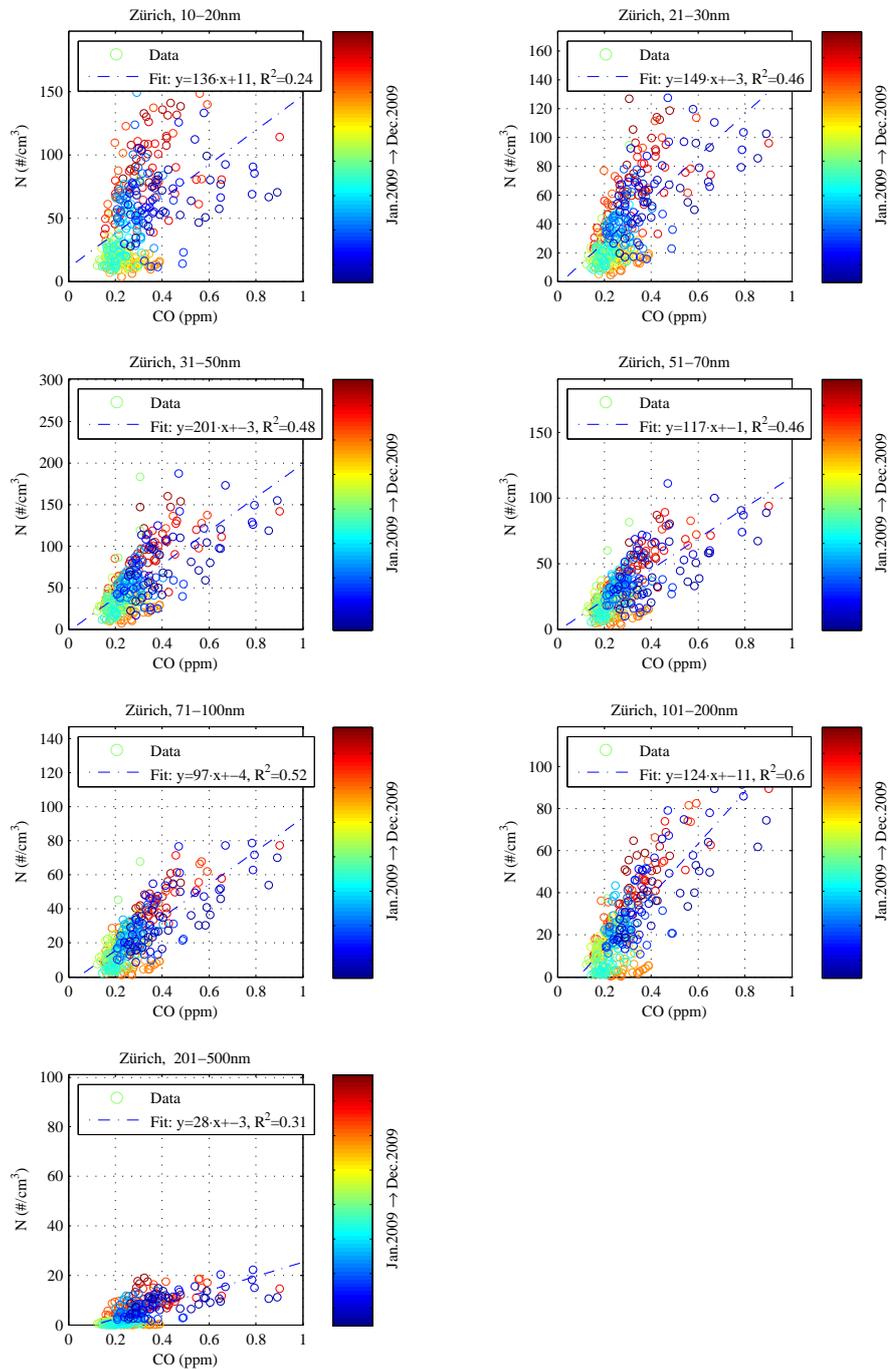


Abbildung 15: Streudiagramme von NO_x gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Station Zürich-Kaserne für das Jahr 2009. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

Zürich-Kaserne wird die Russkonzentration seit 2009 mit einem Aethalometer (Model AE-10, Magee Scientific) bestimmt. Die Konzentrationen von Russ (BC) werden kontinuierlich mit einer

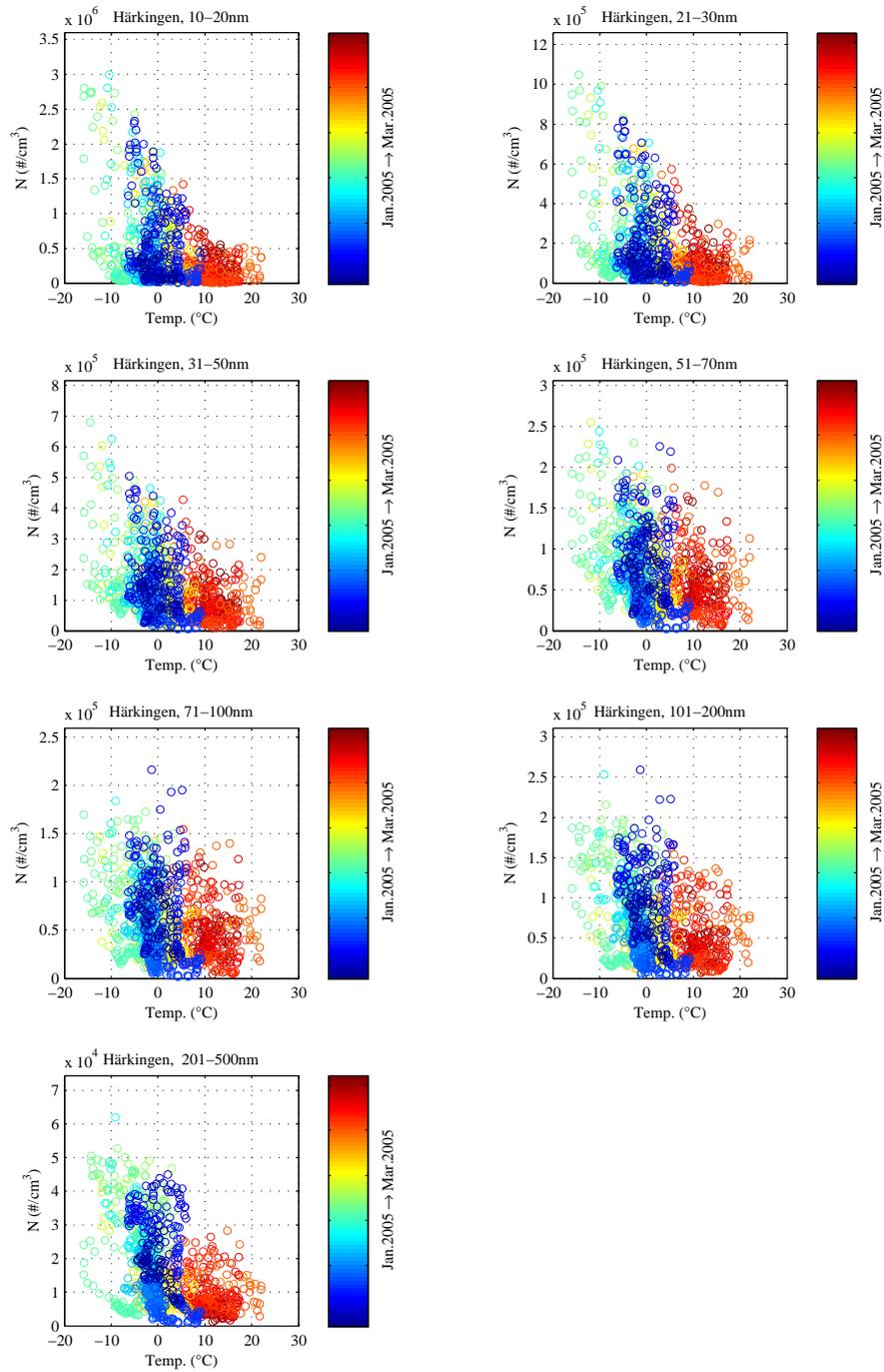


Abbildung 16: Streudiagramme der Lufttemperatur gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Station Hürkingen für den Winter (DJF) im Jahr 2005. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

Zeitaufösung von zehn Minuten erfasst.

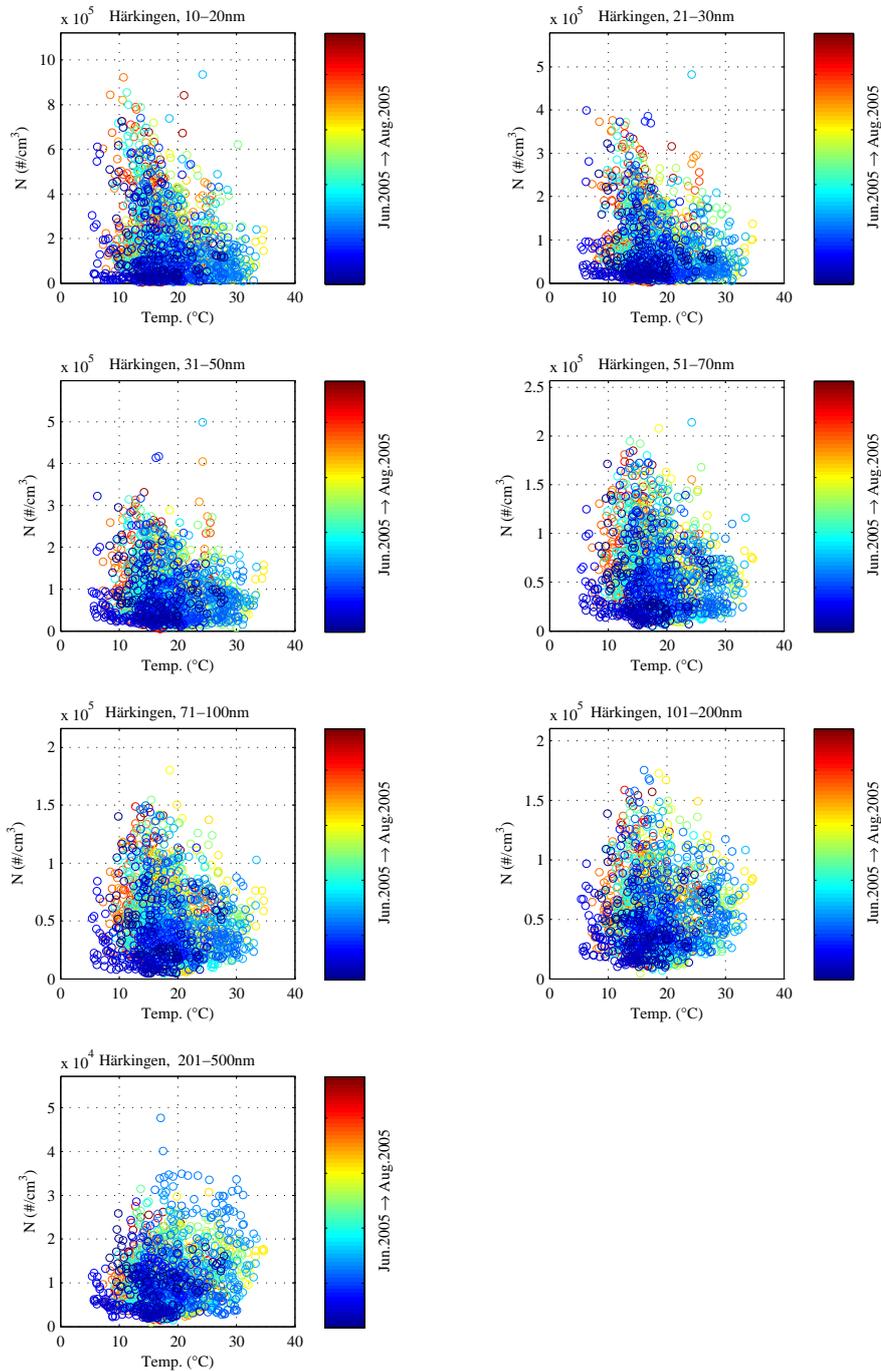


Abbildung 17: Streudiagramme der Lufttemperatur gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Station Hürkingen für den Sommer (JJA) im Jahr 2005. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

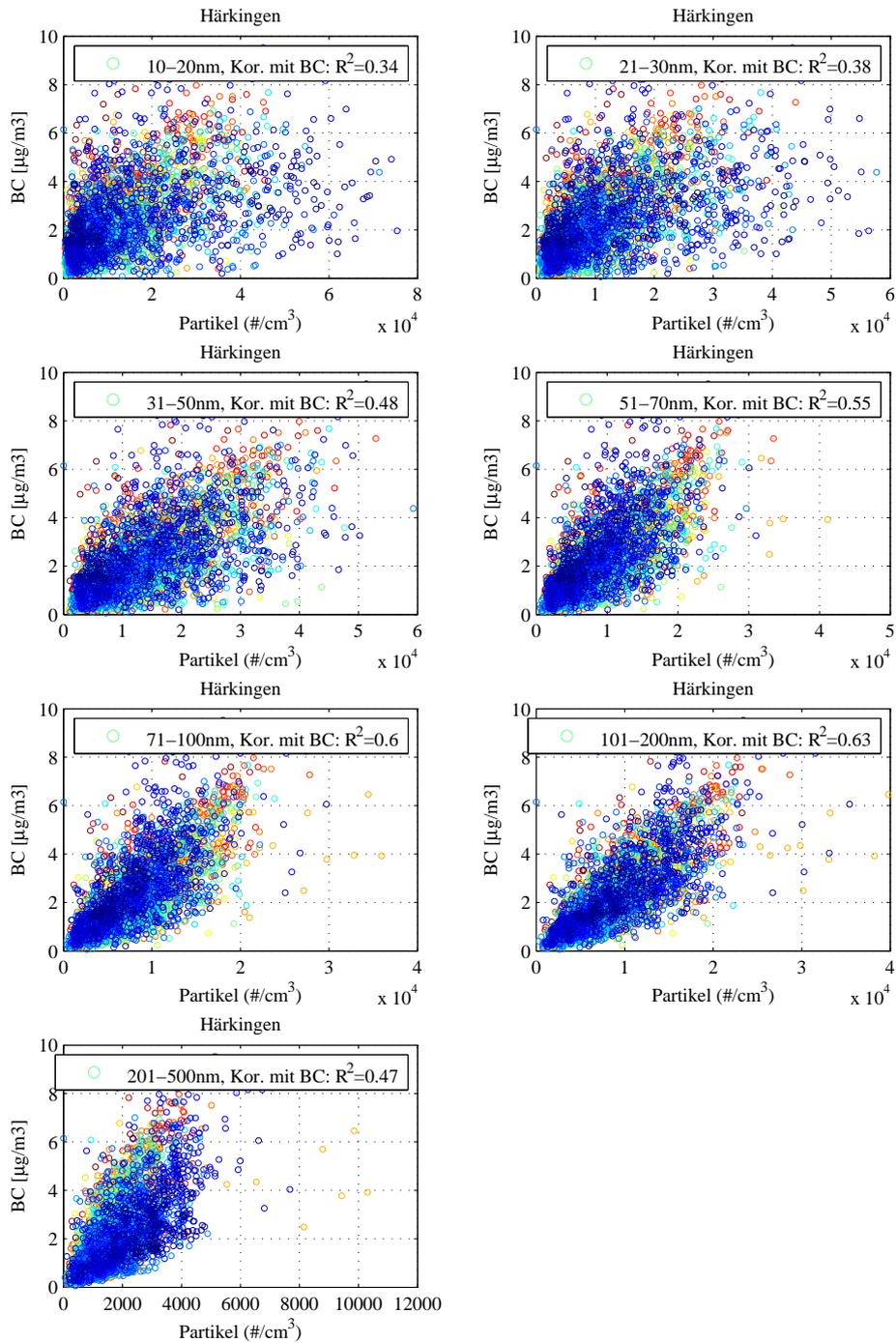


Abbildung 18: Streudiagramme der Russkonzentration (BC) gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen in Härkingen für das Jahr 2009. Jeder Messwert entspricht einem Stundenmittelwert.

Abbildung 18 zeigt Streudiagramme der Stundenmittelwerte der Russkonzentration (BC) gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen in Härkingen (Messwerte des Jahres 2009). Der grösste lineare Zusammenhang zwischen BC und Partikelanzahlkonzentrationen

werden für Feinstaubpartikel in den Grössenbereichen von 71-100 nm und 101-200 nm beobachtet ($R^2=0.60$ bzw. $R^2=0.63$). Dies ist nicht überraschend, da der Durchmesser von Russpartikel typischerweise in diesen Grössenbereich fällt und am Standort Härkingen angenommen werden kann, dass die Partikelanzahlkonzentration im Grössenbereich von 71-200 nm von Russpartikeln dominiert wird. Am Standort Zürich-Kaserne ist der lineare Zusammenhang zwischen BC und den Partikelanzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen mit Bestimmtheitsmassen von $R^2=0.06$ bis $R^2=0.17$ deutlich geringer als in Härkingen (siehe Anhang).

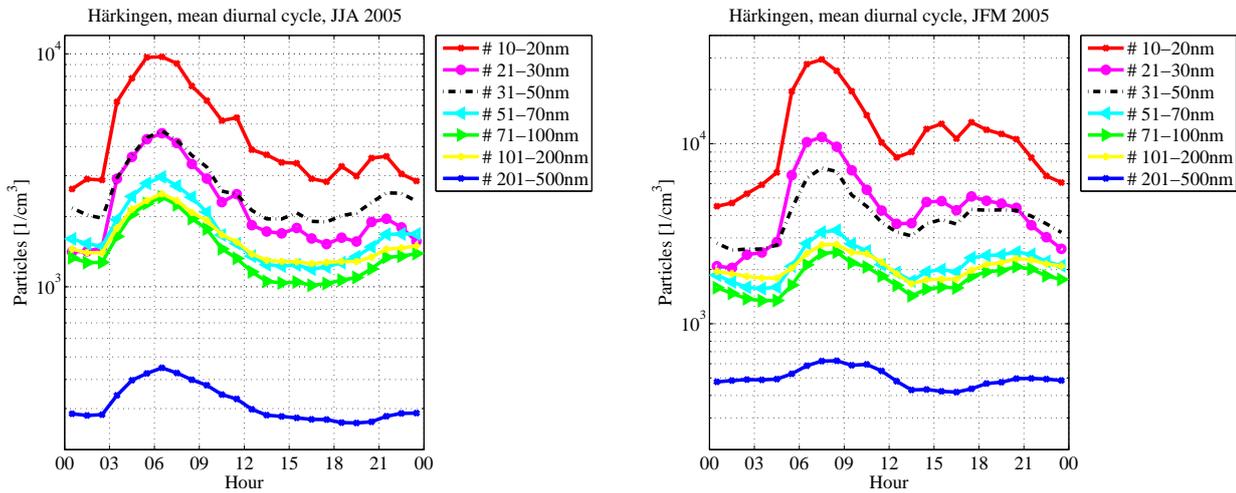


Abbildung 19: Mittlerer Tagesgang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messstation Härkingen während der Sommermonate Juni, Juli und August, sowie während des Winters (Januar, Februar und März).

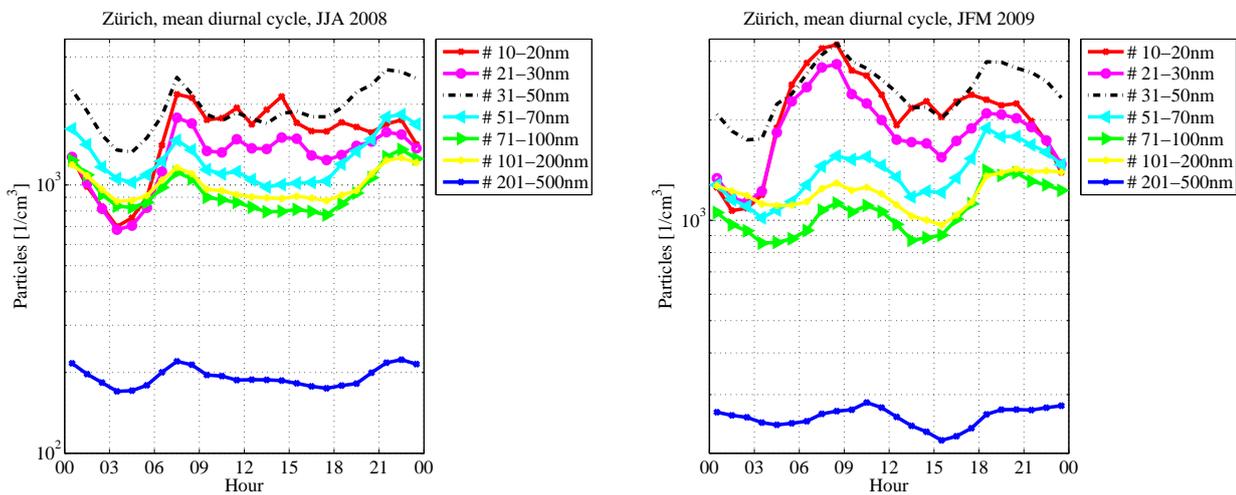


Abbildung 20: Mittlerer Tagesgang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messstation Zürich-Kaserne während der Sommermonate Juni, Juli und August, sowie während des Winters (Januar, Februar und März).

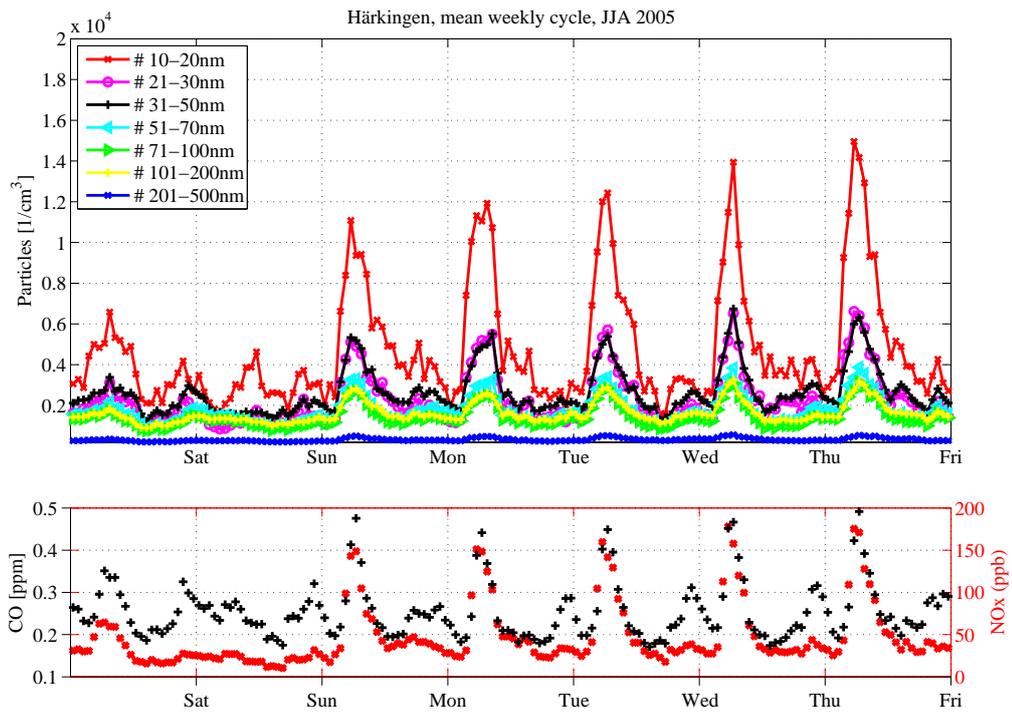


Abbildung 21: Wochengang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Hårkingen (Juni, Juli und August).

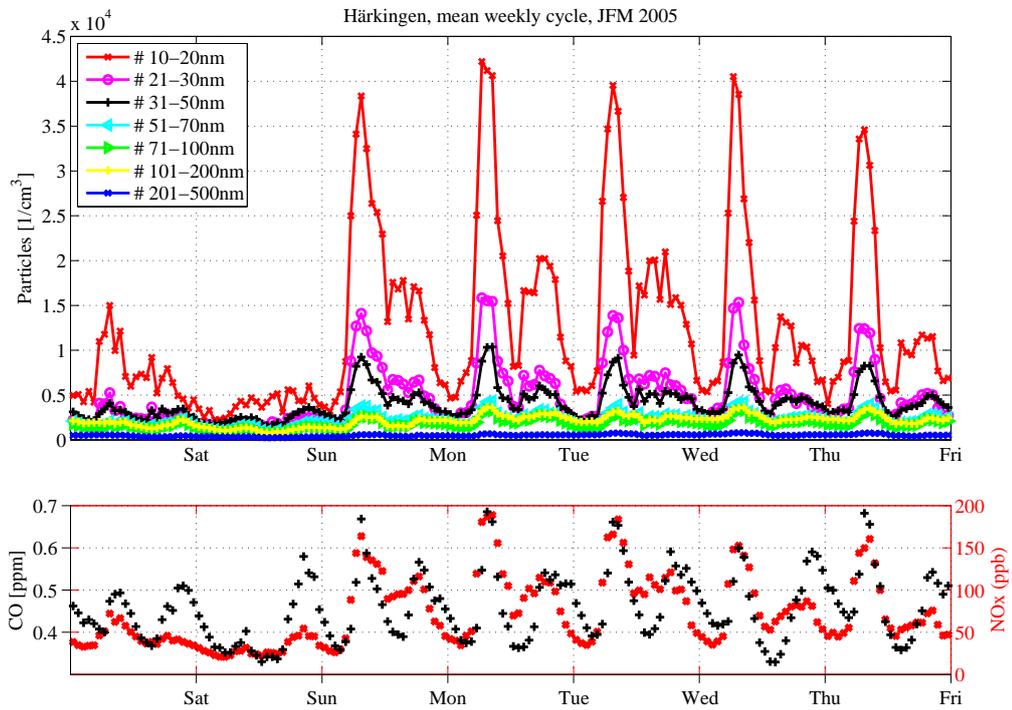


Abbildung 22: Wochengang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Hårkingen (Januar, Februar und März).

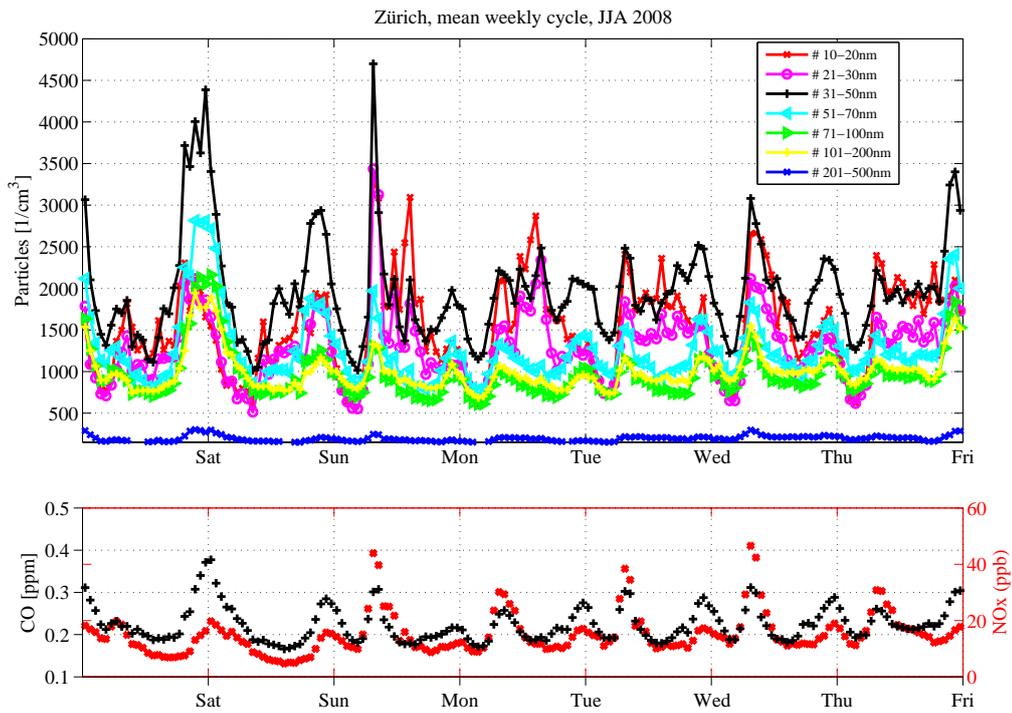


Abbildung 23: Wochengang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Zürich-Kaserne (Juni, Juli und August).

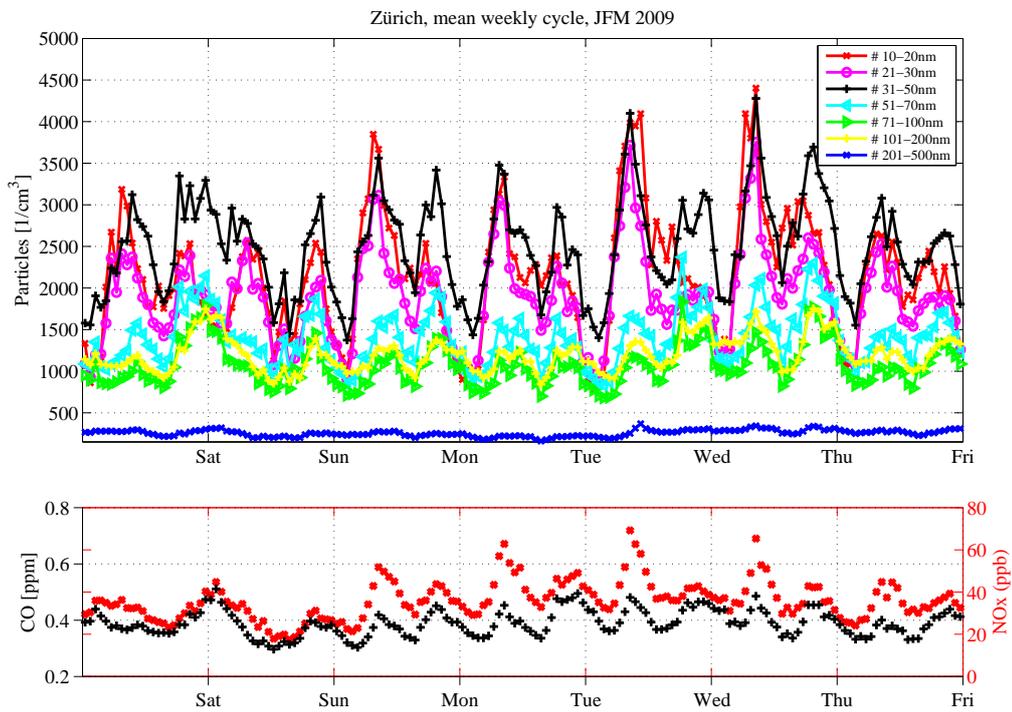


Abbildung 24: Wochengang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Zürich-Kaserne (Januar, Februar und März).

5.4 Tages und Wochengänge der Partikelanzahlkonzentration

In Abbildung 19 ist der mittlere Tagesgang der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Härkingen während der Sommermonate (JJA) sowie während der Wintermonate (Januar, Februar und März) dargestellt. An der Messstation Härkingen werden die höchsten Partikelkonzentrationen in allen Grössenklassen morgens und abends während den Hauptverkehrszeiten erreicht. Im Winter sind die Partikelkonzentrationen während der Hauptverkehrszeiten bis zu dreimal so hoch wie im Sommer. Im Sommer fallen die Konzentrationen im Verlauf des Nachmittags auf deutlich tiefere Werte ab, was auf die ansteigende Grenzschichthöhe und eine damit verbundene erhöhte Verdünnung der Feinstaubpartikel zurückzuführen ist. Dieser meteorologische Einfluss ist im Sommer stärker ausgeprägt als während der kälteren Jahreszeit. Abbildung 20 zeigt dieselben mittlere Tagesgänge an der Messstation Zürich-Kaserne. Während in Härkingen die Partikelanzahlkonzentration im Grössenbereich von 10-20 nm klar dominieren, sind die Partikelanzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen an der Messstation Zürich-Kaserne gleichmässiger verteilt. An der Station Zürich-Kaserne sind die morgendlichen Maxima in der Partikelanzahlkonzentration deutlich weniger markant als in Härkingen. Interessant ist zudem, dass an der Messstation Zürich-Kaserne die Partikelanzahlkonzentrationen in den grösseren Klassen (51-70 nm, 71-100 nm und 101-200 nm) im Verlauf der Nacht am höchsten sind.

Die Abbildungen 21 und 22 zeigen den mittleren Wochengang der Partikelanzahlkonzentrationen in den verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messstation Härkingen getrennt für Sommer und Winter. Zudem sind die der Wochenverlauf der beiden Luftschadstoffe CO und NO_x dargestellt. An der Station Härkingen ist sowohl im Sommer als auch im Winter ein klarer Wochengang der Partikelkonzentration in allen Grössenklassen zu erkennen. Die Partikelanzahlkonzentrationen sind am Wochenende deutlich geringer als an den Werktagen. Dies weist auf einen grossen Einfluss der Emissionen des Schwerverkehrs an den Werktagen auf die Partikelanzahlkonzentration an diesem Standort hin. Die Feinstaubpartikel im Grössenbereich von 10-20 nm dominieren sowohl an den Werktagen wie auch am Wochenende gesamte Partikelanzahlkonzentration.

In Abbildung 23 und 24 sind die an der Messstation Zürich-Kaserne gemessenen mittleren Wochengänge für Sommer und Winter dargestellt. An diesem Standort sind die Wochengänge sowohl im Sommer als auch im Winter deutlich weniger ausgeprägt als in Härkingen. An den Werktagen sind die Partikelanzahlkonzentrationen in den kleinen Grössenklassen während der morgentlichen Hauptverkehrszeit am höchsten. An der Messstation Zürich-Kaserne werden sowohl am Wochenende als auch an den Werktagen die grössten Anzahlkonzentrationen bei den Partikeln im Grössenbereich von 31-50 nm registriert.

5.5 SMPS und APS Partikelanzahlkonzentration

Seit 2008 wird in der Messstation Härkingen zusätzlich zum SMPS ein aerodynamischer Flugzeit-spektrometer (Aerodynamic Particle Sizer, APS 3320, TSI Inc. Shoreview MN, USA) eingesetzt. Dieses Instrument misst Anzahlverteilungen von Feinstaubpartikeln mit einem Aerodynamischen Durchmesser im Bereich von 0.5 bis 20 μm (51 Grössenklassen).

Die vom APS ausgegebenen Bewegungsdurchmesser können leicht in Bewegungsdurchmesser der SMPS-Instrumente umgerechnet werden (Skalierung mit einem Faktor in den im We-

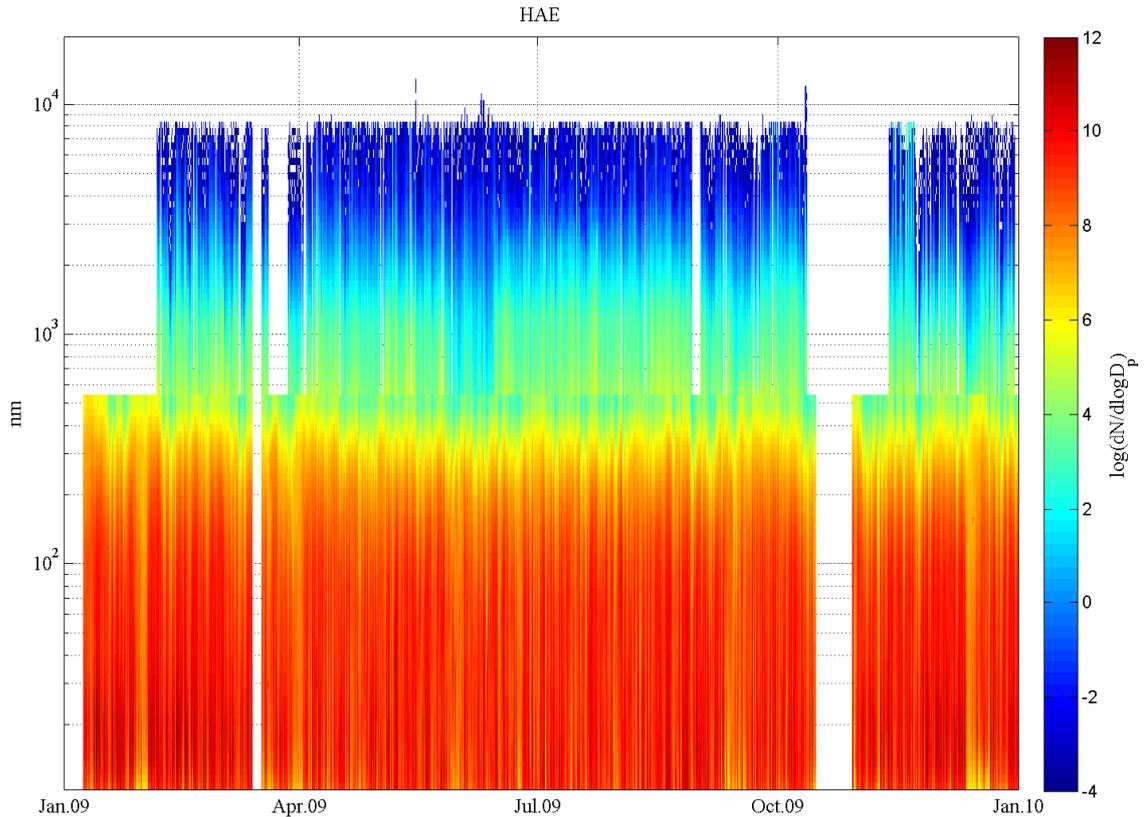


Abbildung 25: Partikelanzahlverteilung im Grössenbereich von 10nm bis $20\mu\text{m}$ an der NABEL-Station Härkingen während des Jahres 2009. Die Partikelanzahlverteilungen wurden aus zeitgleichen Messungen mit einem SMPS und einem APS zusammengesetzt.

sentlichen die Partikeldichte eingeht). Die an der Messstation Härkingen gemessenen Partikelanzahlverteilungen wurden entsprechend umgerechnet und mit den zeitgleich gemessenen SMPS-Daten zu Verteilungen zusammengefasst, die einen Grössenbereich von 10 nm bis $20\mu\text{m}$ abdecken. Abbildung 25 zeigt diese resultierenden Partikelanzahlverteilungen für das Jahr 2009 (Stundenwerte). Es ist sofort ersichtlich, dass die Partikelanzahlkonzentrationen im Messbereich des APS ($D_p = 0.5$ bis $20\mu\text{m}$) gegenüber den Partikelanzahlkonzentrationen im Messbereich des SMPS ($D_p = 10\text{-}500$ nm) vernachlässigbar klein sind.

Mit den kombinierten Partikelanzahlverteilungen von zeitgleichen Messungen mit SMPS und APS wurden Tagesgänge für verschiedene Grössenklassen berechnet. Diese Darstellung ermöglicht eine Beurteilung, ob am verkehrsbelasteten Standort Härkingen auch die grösseren Feinstaubpartikel ($D_p > 500$ nm) durch Emissionen des Verkehrs auf der nahegelegenen Autobahn dominiert wird. Um den Einfluss des Verkehrs abschätzen zu können wurden die Partikelanzahlverteilungen nach Windrichtung sortiert.

In Abbildung 26 sind Tagesgänge für Wind aus dem Hintergrundsektor ($45^\circ \pm 30^\circ$), sowie aus dem Verkehrssektor ($220^\circ \pm 30^\circ$), jeweils für die Wintermonate Dezember bis Februar und die Sommermonate Juni bis August dargestellt. Aufgrund der grossen Konzentrationsunterschiede in den Grössenklassen sind die Verteilungen logarithmisch dargestellt. Während in den Grössenklassen < 500 nm bei Wind aus dem Verkehrssektor deutliche Tagesgänge mit stark erhöhten Partikelanzahlkonzentrationen am Tag erkennbar sind, zeigen sich in dieser logarithmischen Darstellung für die Grössenklassen > 500 nm schwächer ausgeprägte Tagesgänge. Insbesondere in der Grössenklasse von 3.5 bis 6 μm ist bei Wind aus dem Verkehrssektor ein markanter Tagesgang und damit ein Einfluss von Emissionen des Strassenverkehrs auf die Anzahlkonzentration dieser gröbere Partikelfraktion erkennbar. Es sollte bei der Interpretation jedoch berücksichtigt werden, dass die Anzahlkonzentrationen von Feinstaubpartikel in diesem Grössenbereich sehr klein ist.

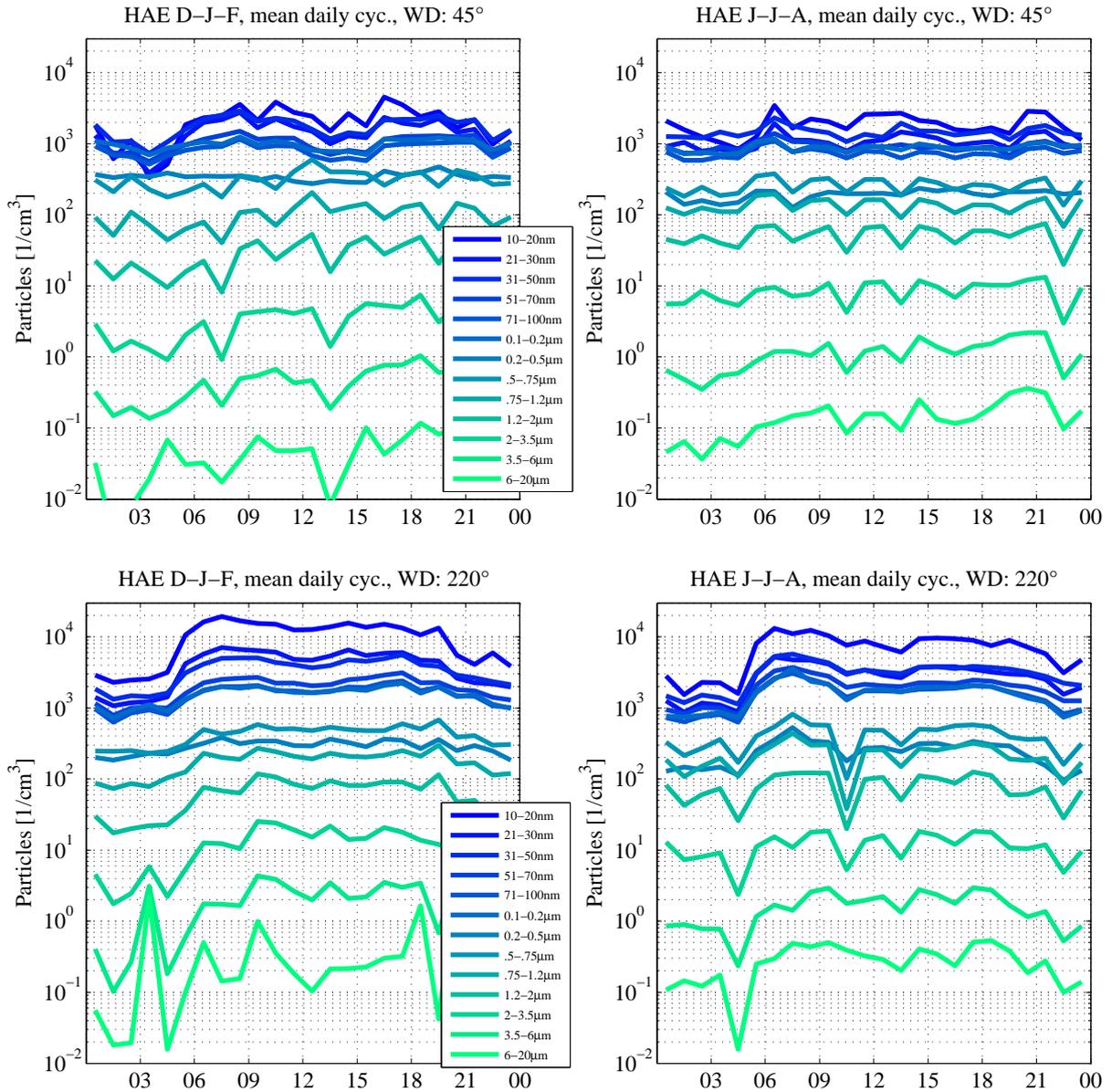


Abbildung 26: Mittlerer Tagesgang der Anzahlkonzentrationen in den mit SMPS und APS gemessenen Grössenklassen an der Station Härkingen abhängig von Windrichtung und Jahreszeit.

Abbildung 27 zeigt ein Streudiagramm der mit dem APS gemessenen Partikelanzahlkonzentration ($D_p = 500\text{nm}-20\mu\text{m}$) und der Konzentration von NO_x . Es ist auch hier keine Abhängigkeit zwischen der Anzahlkonzentration grösserer Feinstaubpartikel und dem Indikator für Verkehrsemissionen NO_x erkennbar.

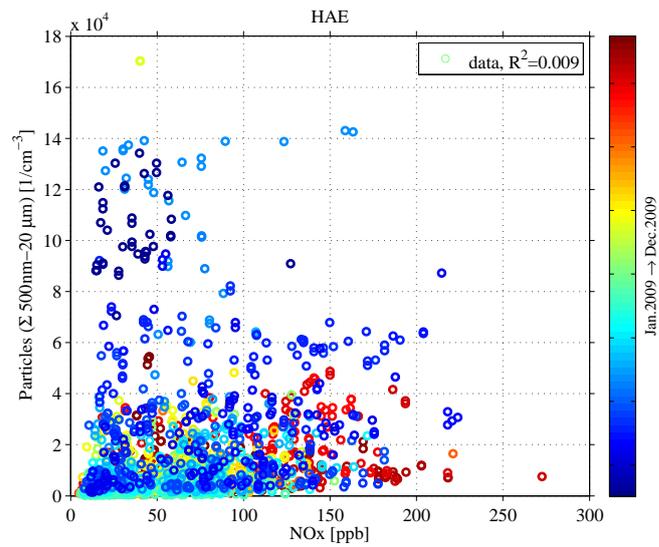


Abbildung 27: Gesamte Partikelanzahlkonzentration im Grössenbereich von 500 nm-20 μm (alle Grössenklassen des APS) und Konzentration von NOx bei Wind aus dem im Verkehrssektor.

Literatur

- [Cer10] CERCL’AIR, Fachgruppe P.: Messung der Partikelanzahlkonzentration und Partikelgrößenverteilung, Empfehlung Nr. 28. (2010)
- [LWW⁺10] LÖSCHAU, G. ; WIEDENSOHLER, A. ; WEHNER, B. ; BIRMILI, W. ; GERWIG, H.: Messung der Anzahl von ultrafeinen Partikeln in der Außenluft in einem Luftgütemessnetz – Teil 2: Ergebnisse einer verkehrsnahen Langzeitmessung. In: *Gefahrstoff-Reinhalung der Luft* 5 (2010), S. 183–187
- [WBN⁺12] WIEDENSOHLER, A. ; BIRMILI, W. ; NOWAK, A. ; SONNTAG, A. ; WEINHOLD, K. ; MERKEL, M. ; WEHNER, B. ; TUCH, T. ; PFEIFER, S. ; FIEBIG, M. ; FJÄRAA, A. M. ; ASMI, E. ; SELLEGRI, K. ; DEPUY, R. ; VENZAC, H. ; VILLANI, P. ; LAJ, P. ; AALTO, P. ; OGREN, J. A. ; SWIETLICKI, E. ; WILLIAMS, P. ; ROLDIN, P. ; QUINCEY, P. ; HÜGLIN, C. ; FIERZ-SCHMIDHAUSER, R. ; GYSEL, M. ; WEINGARTNER, E. ; RICCOBONO, F. ; SANTOS, S. ; GRÜNING, C. ; FALON, K. ; BEDDOWS, D. ; HARRISON, R. ; MONAHAN, C. ; JENNINGS, S. G. ; O’DOWD, C. D. ; MARINONI, A. ; HORN, H.-G. ; KECK, L. ; JIANG, J. ; SCHECKMAN, J. ; McMURRY, P. H. ; DENG, Z. ; ZHAO, C. S. ; MOERMAN, M. ; HENZING, B. ; LEEUW, G. de ; LÖSCHAU, G. ; BASTIAN, S.: Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions. In: *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (2012), Nr. 3, 657–685. <http://dx.doi.org/10.5194/amt-5-657-2012>. – DOI 10.5194/amt-5-657-2012

Anhang

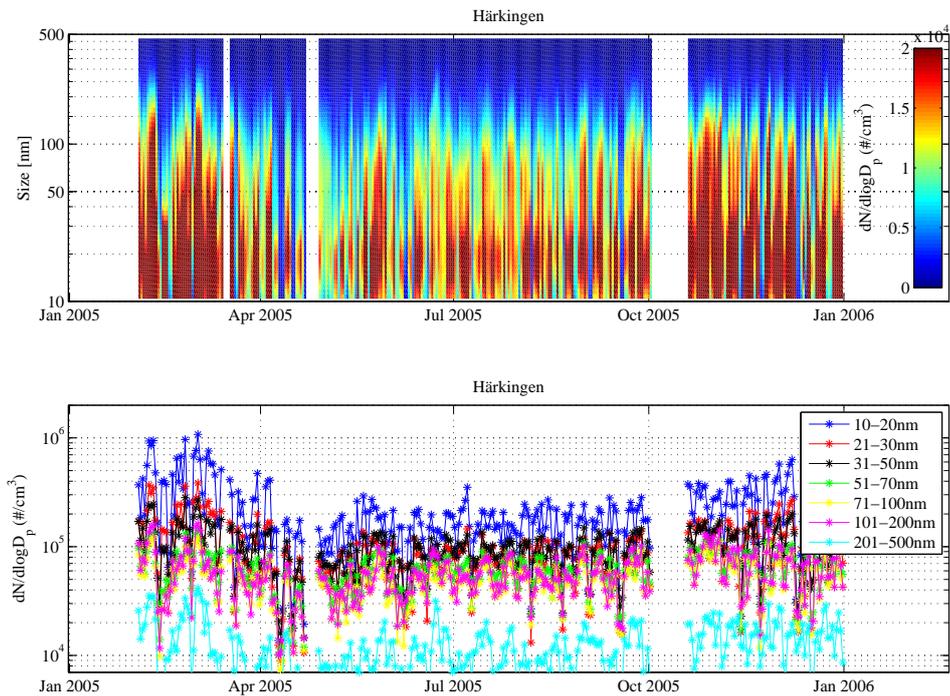


Abbildung 28: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen im Jahr 2005.

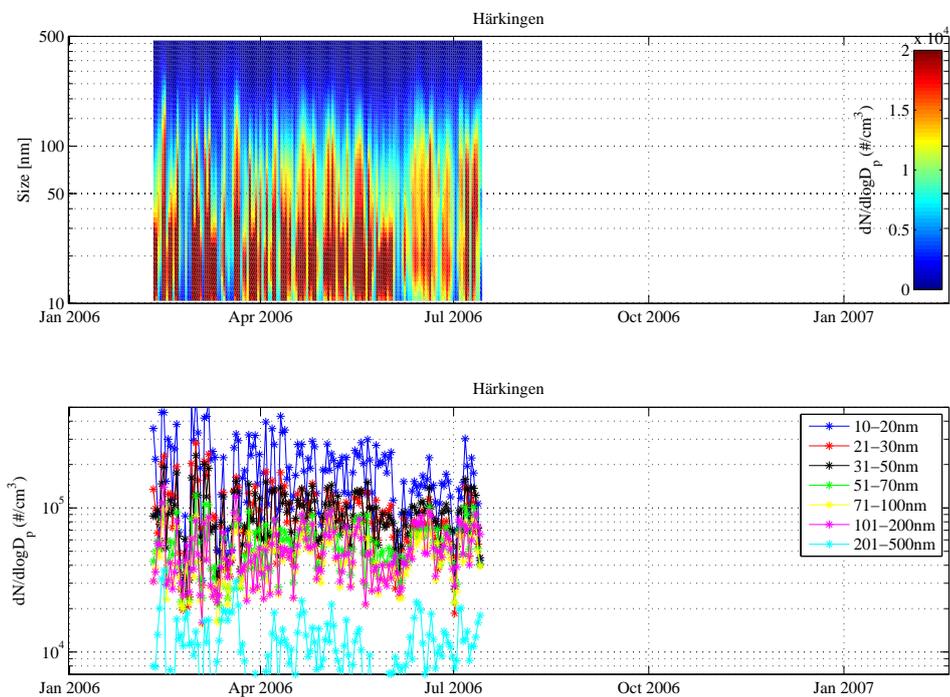


Abbildung 29: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen für das Jahr 2006.

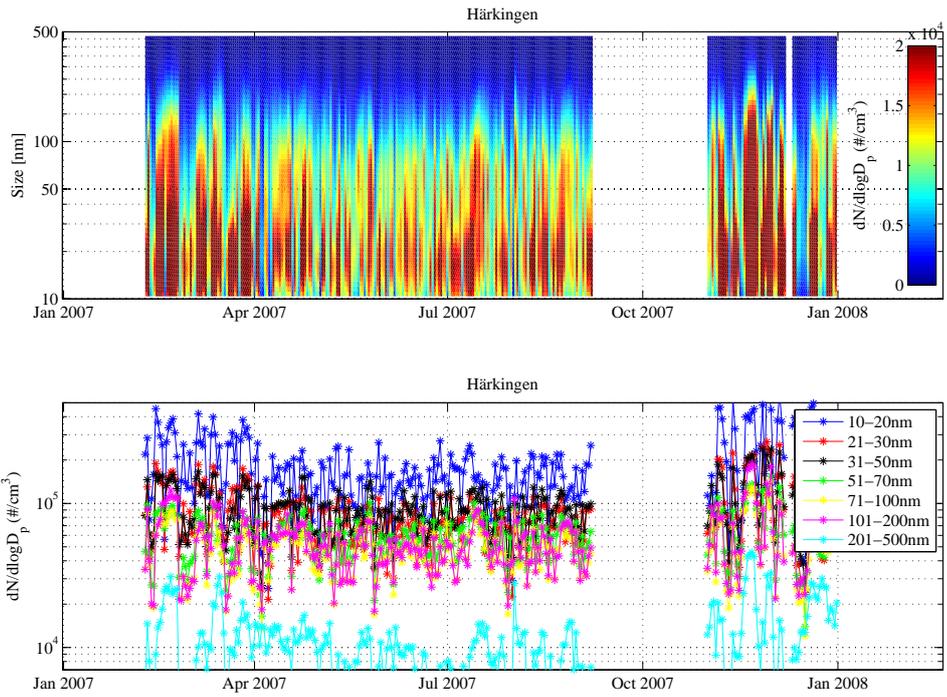


Abbildung 30: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Hårkingen für das Jahr 2007.

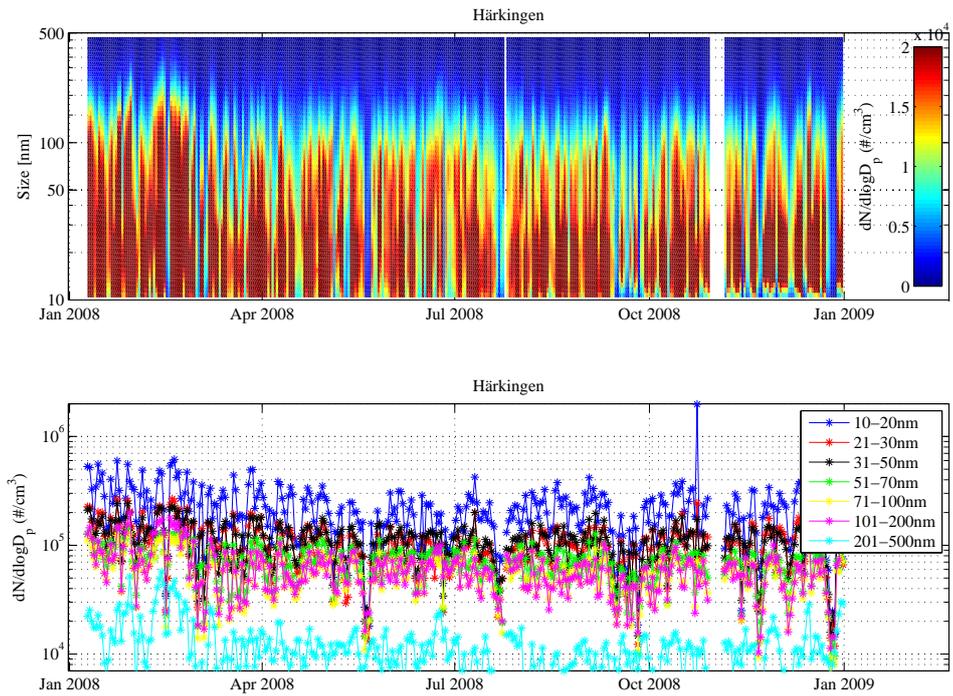


Abbildung 31: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Hårkingen für das Jahr 2008.

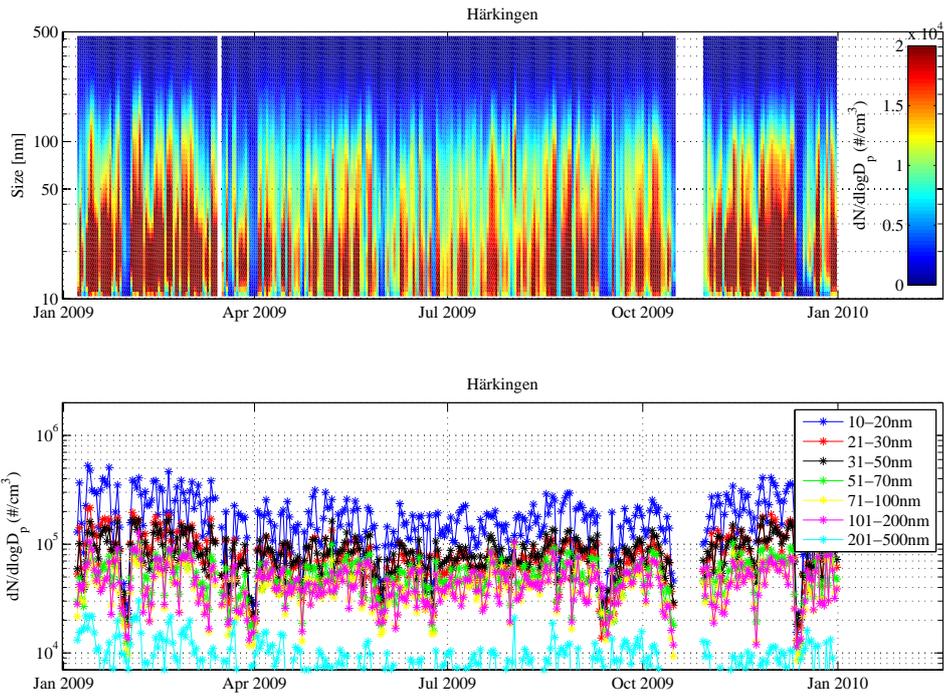


Abbildung 32: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen für das Jahr 2009.

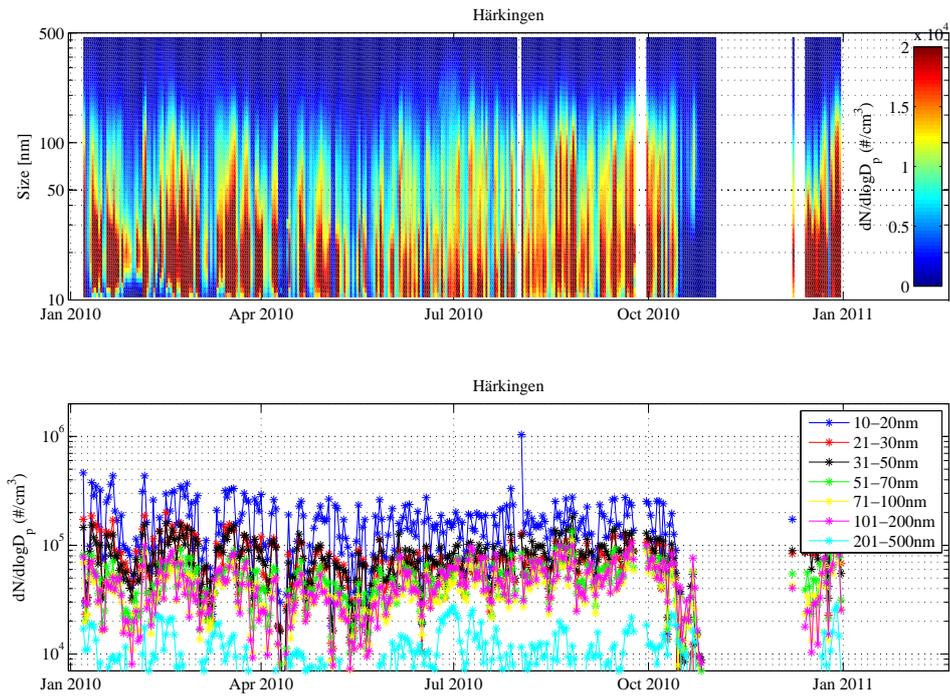


Abbildung 33: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen für das Jahr 2010.

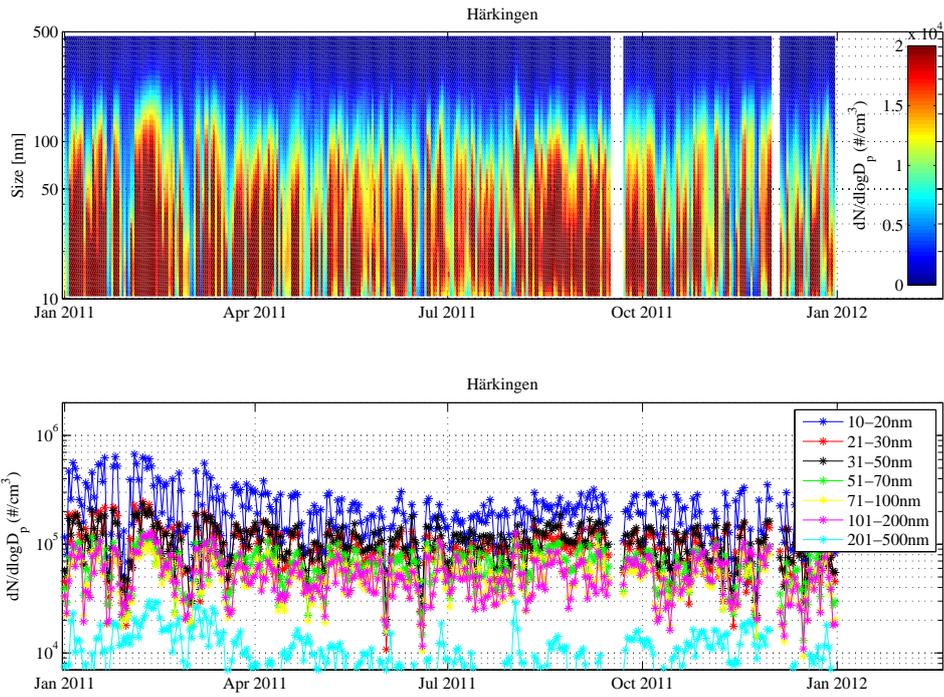


Abbildung 34: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen für das Jahr 2011.

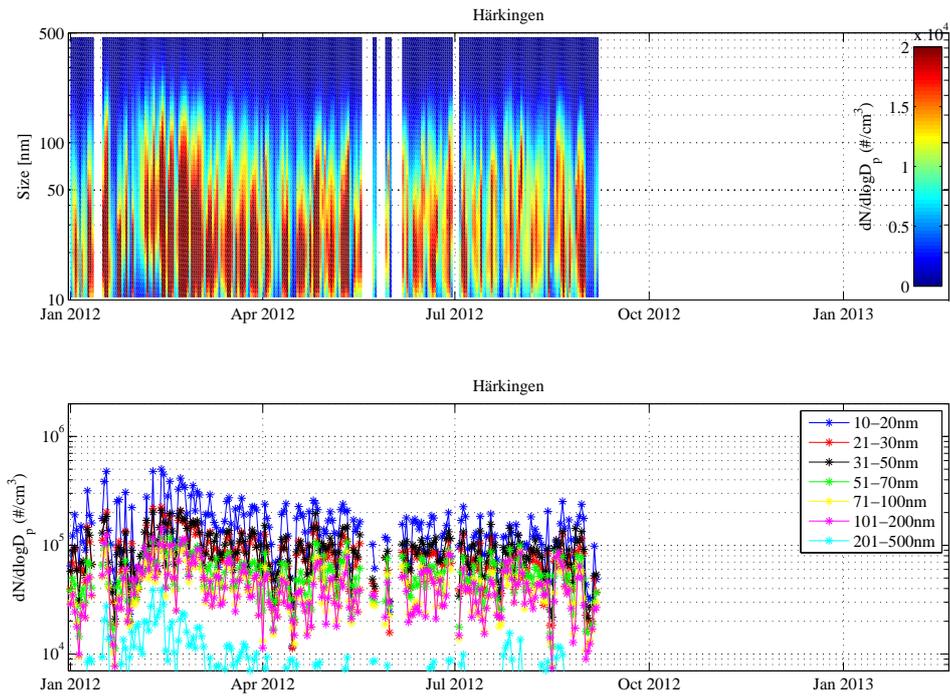


Abbildung 35: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Härkingen für das Jahr 2012.

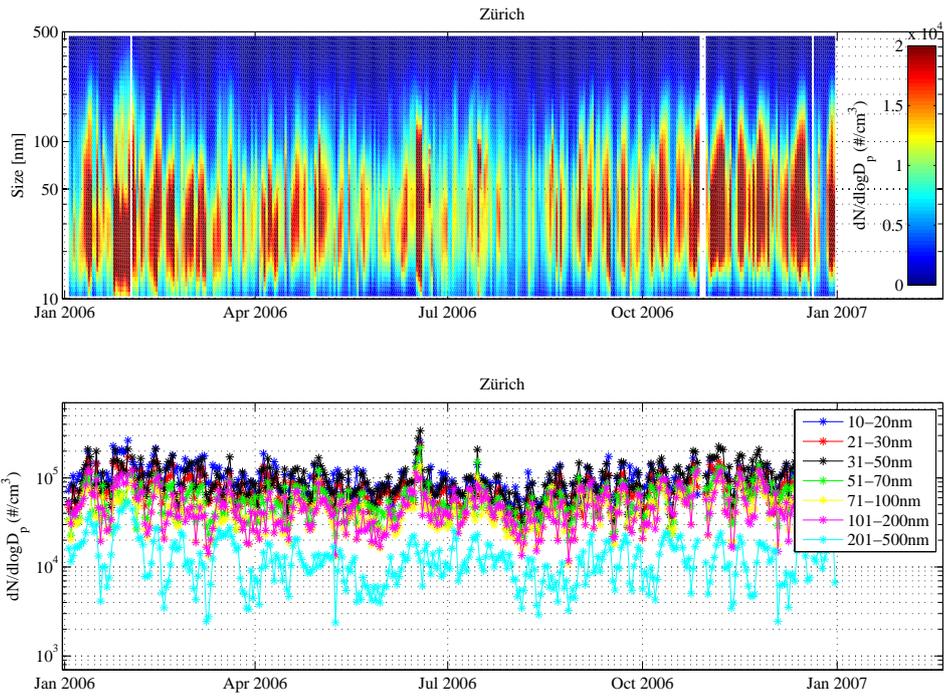


Abbildung 36: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2006.

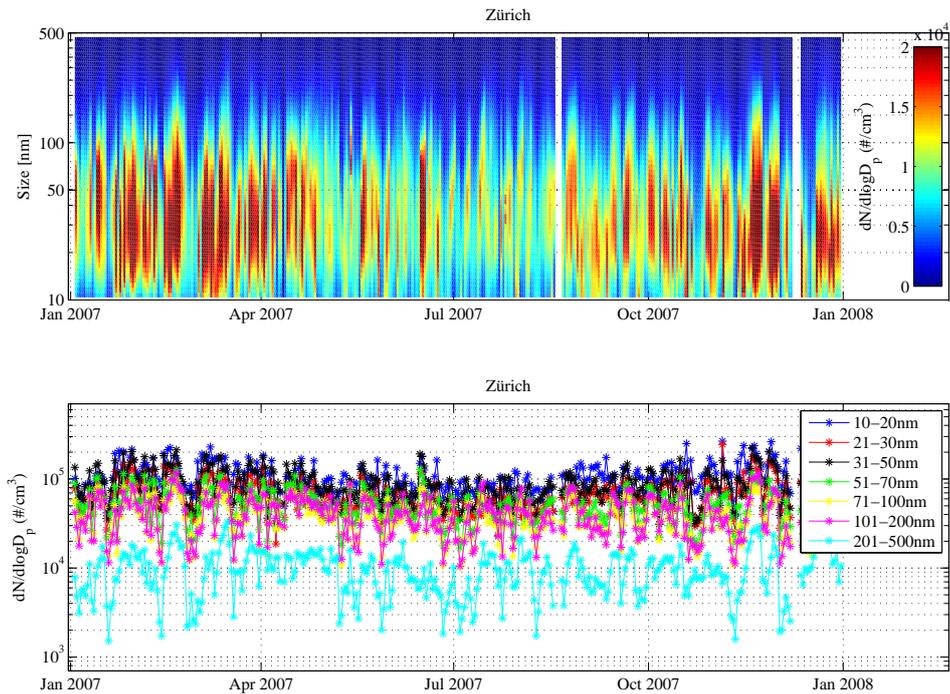


Abbildung 37: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2007.

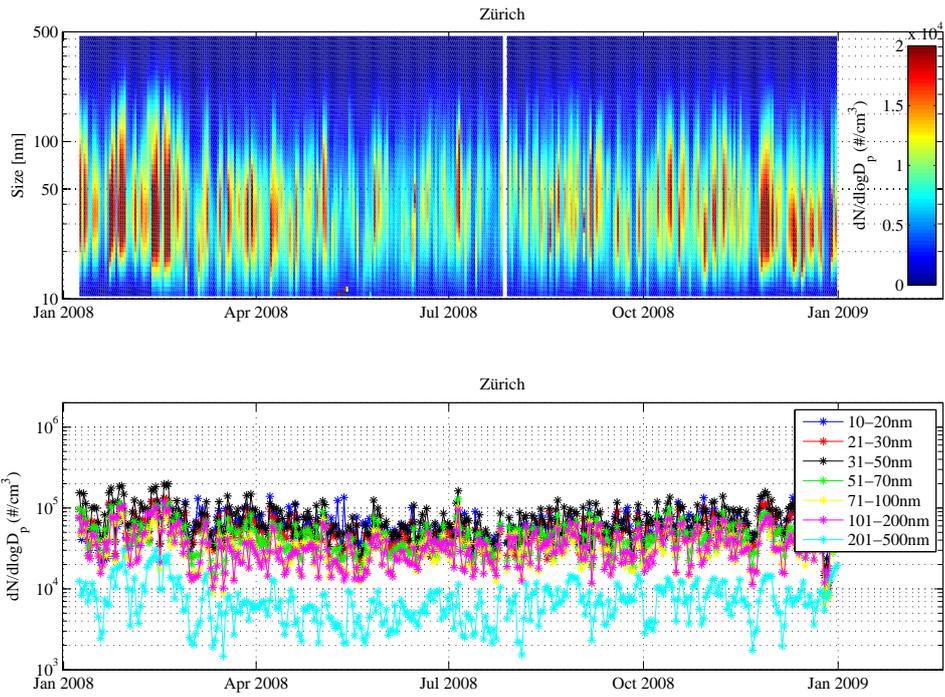


Abbildung 38: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2008.

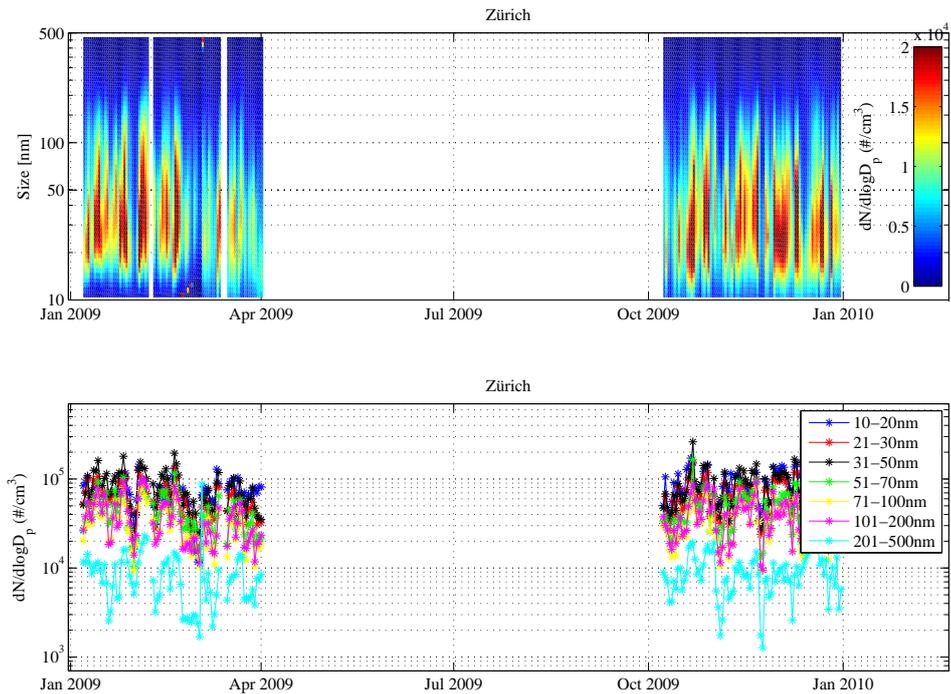


Abbildung 39: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2009.

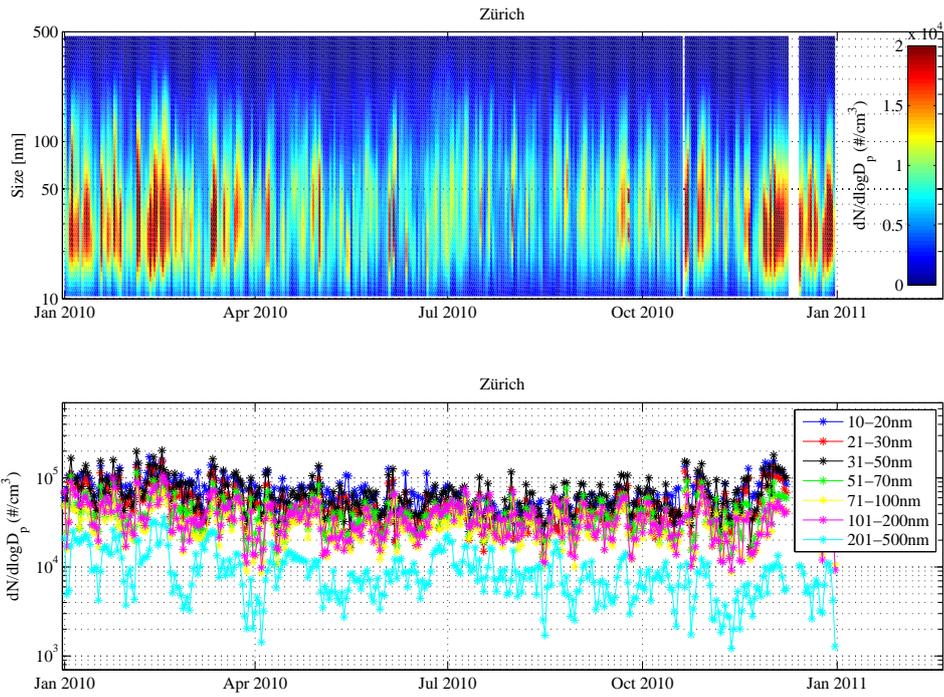


Abbildung 40: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2010.

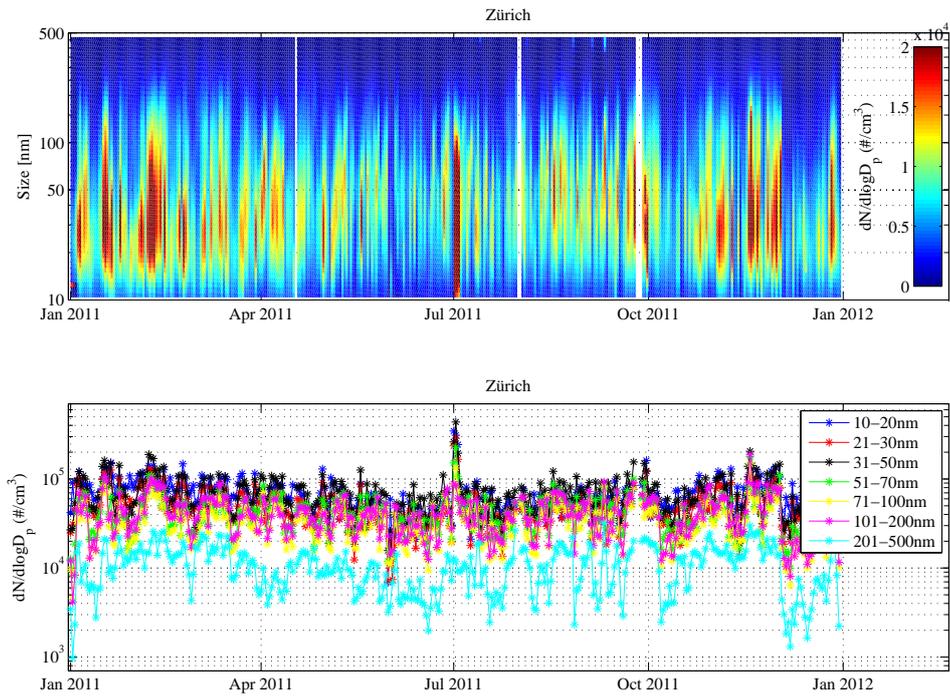


Abbildung 41: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2011.

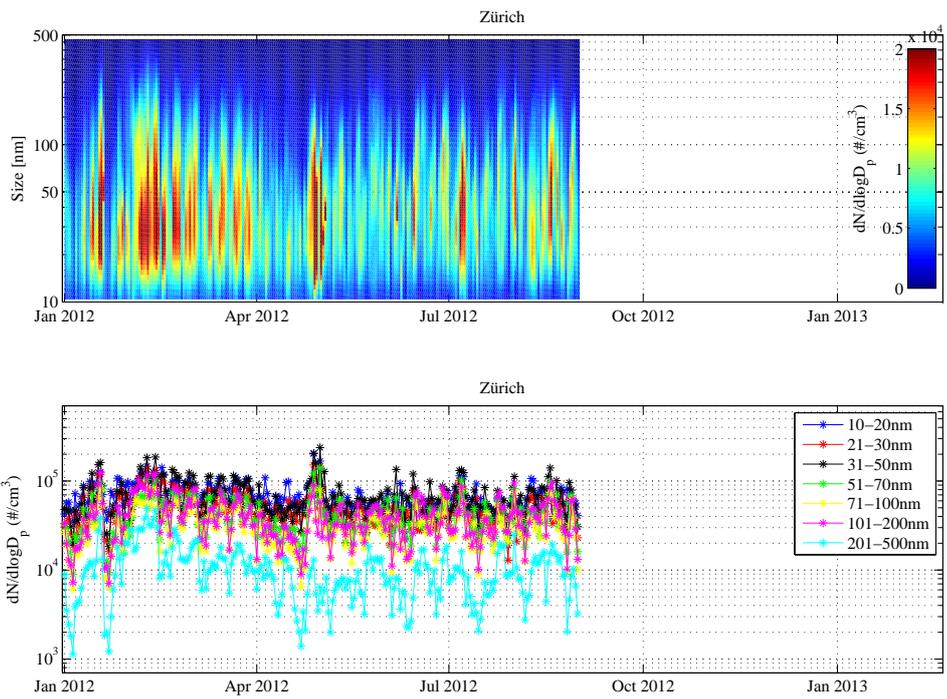


Abbildung 42: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration in verschiedenen Grössenklassen an der NABEL-Messtation Zürich-Kaserne für das Jahr 2012.

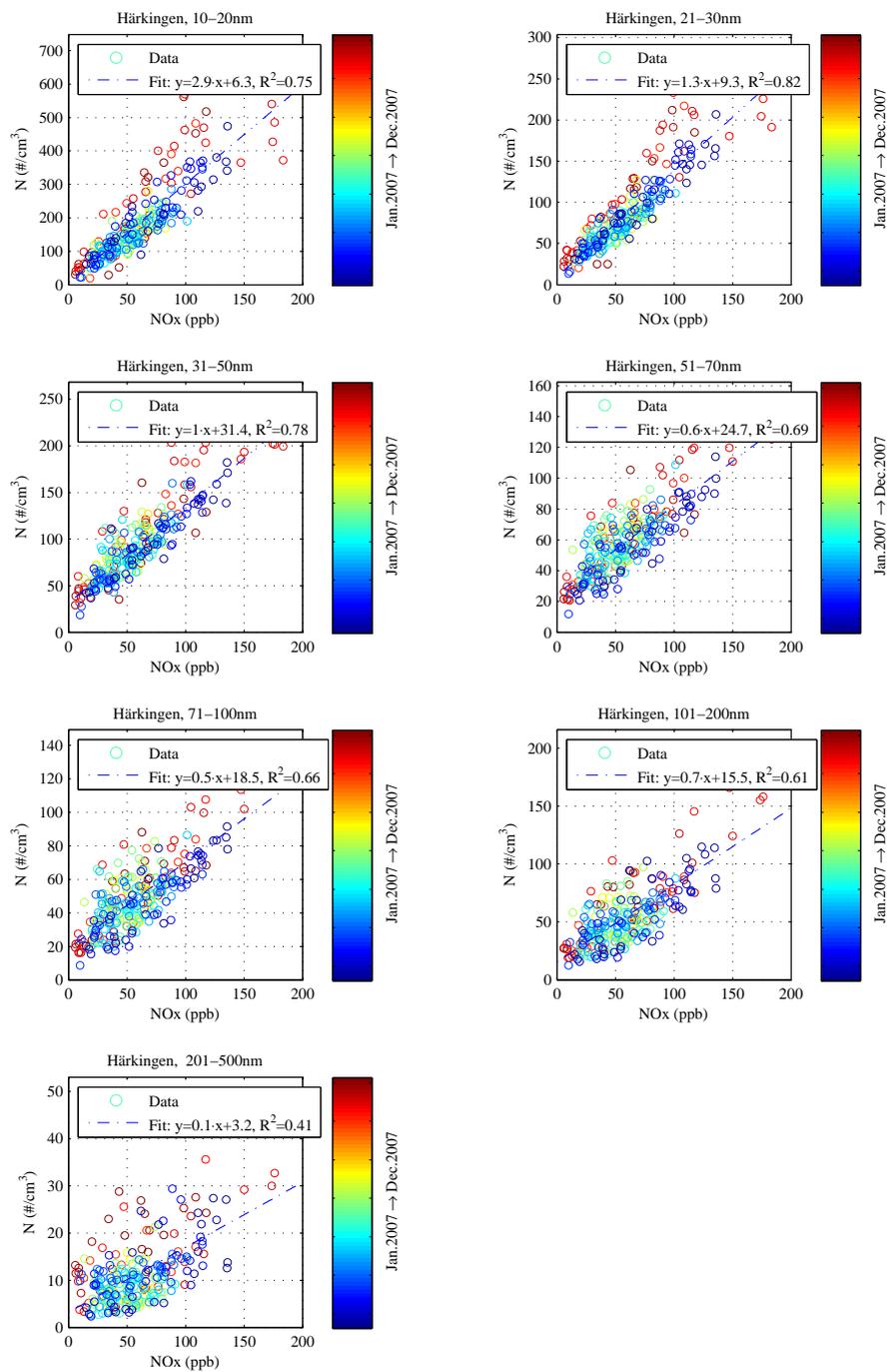


Abbildung 43: Streudiagramme der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen gegen NOx in Härkingen nur an Werktagen des Jahres 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

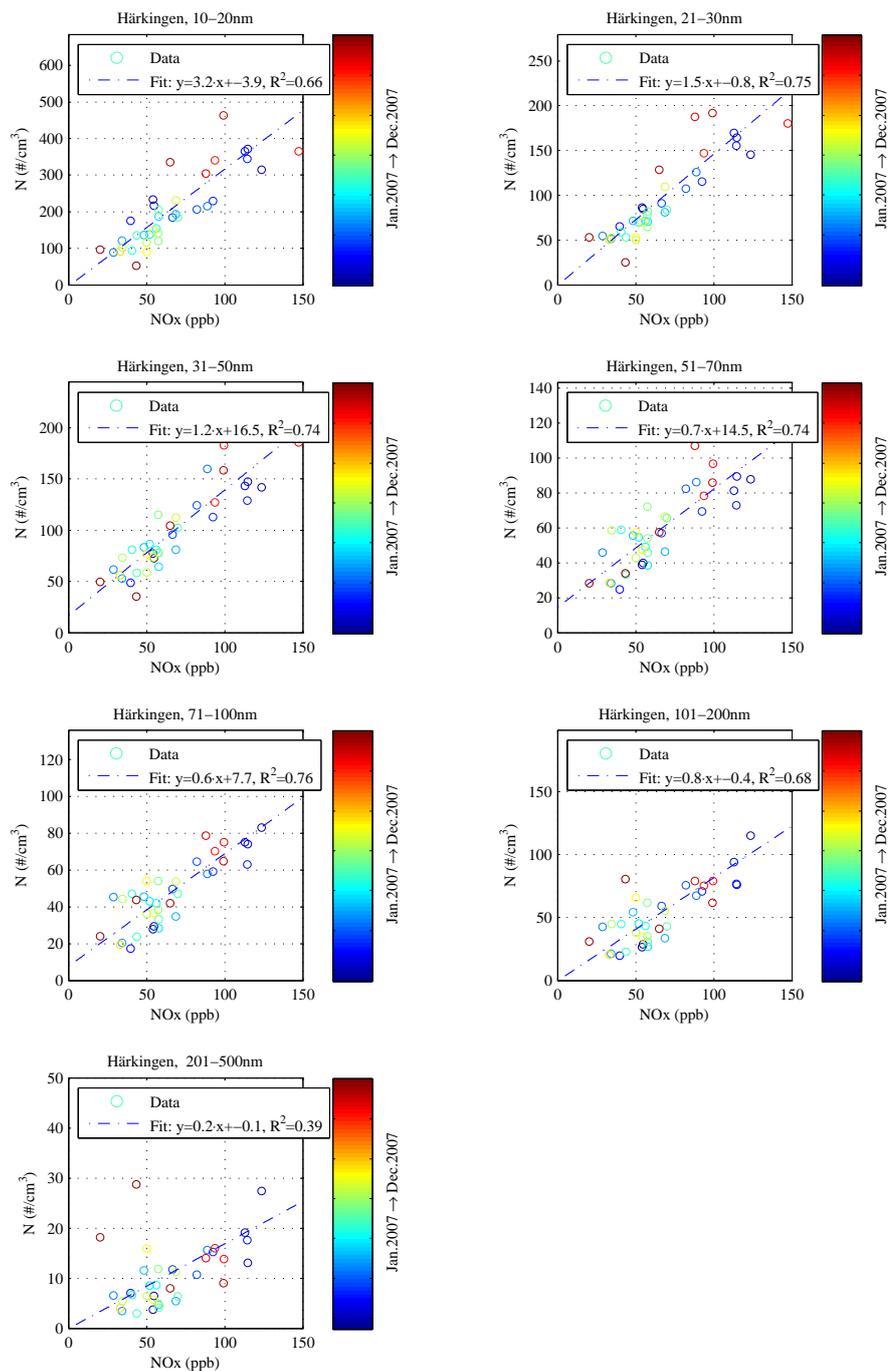


Abbildung 44: Streudiagramme der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen gegen NOx in Härkingen nur an Wochenenden des Jahres 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

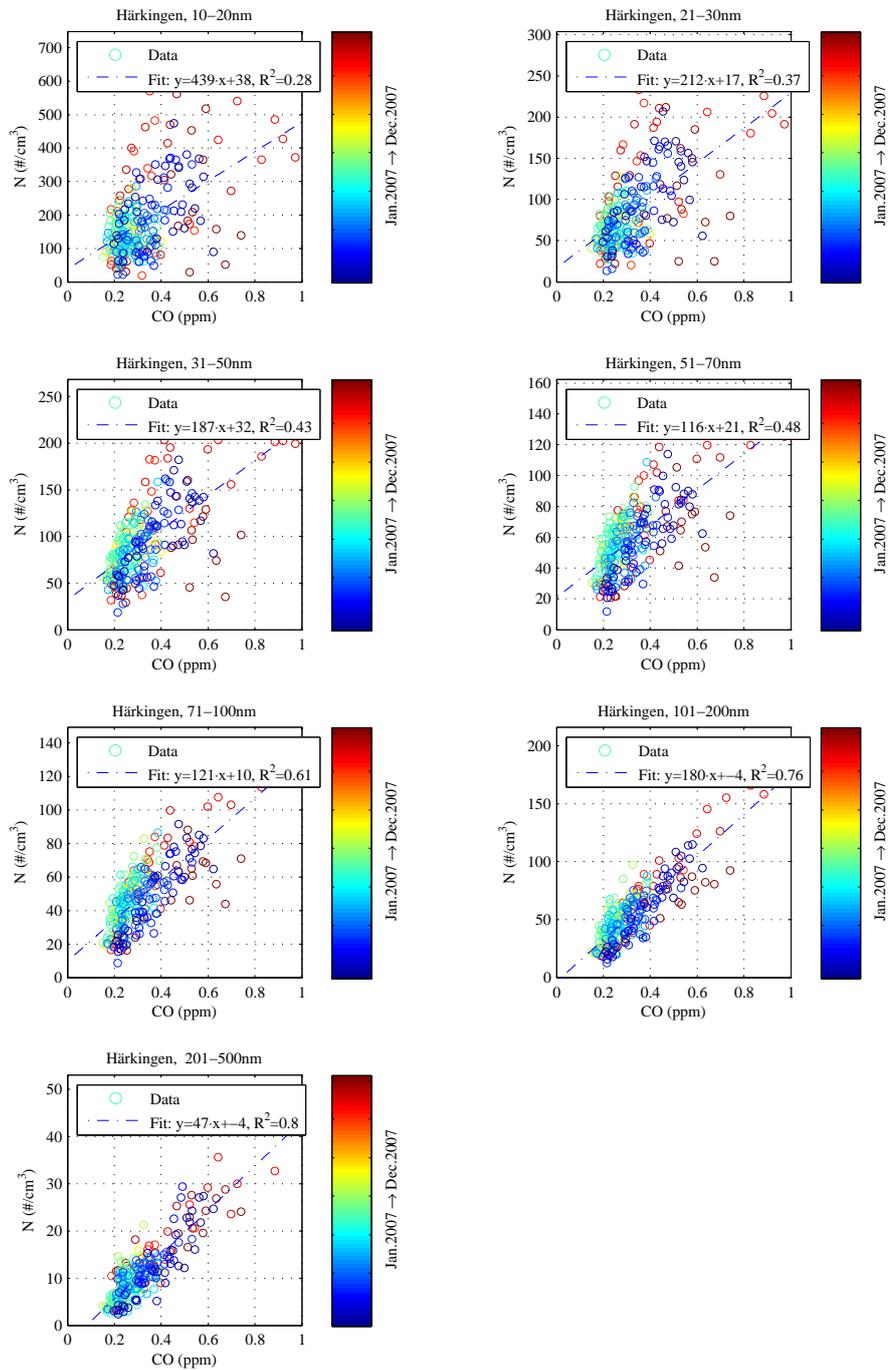


Abbildung 45: Streudiagramme der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen gegen CO in Härkingen nur an Werktagen des Jahres 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

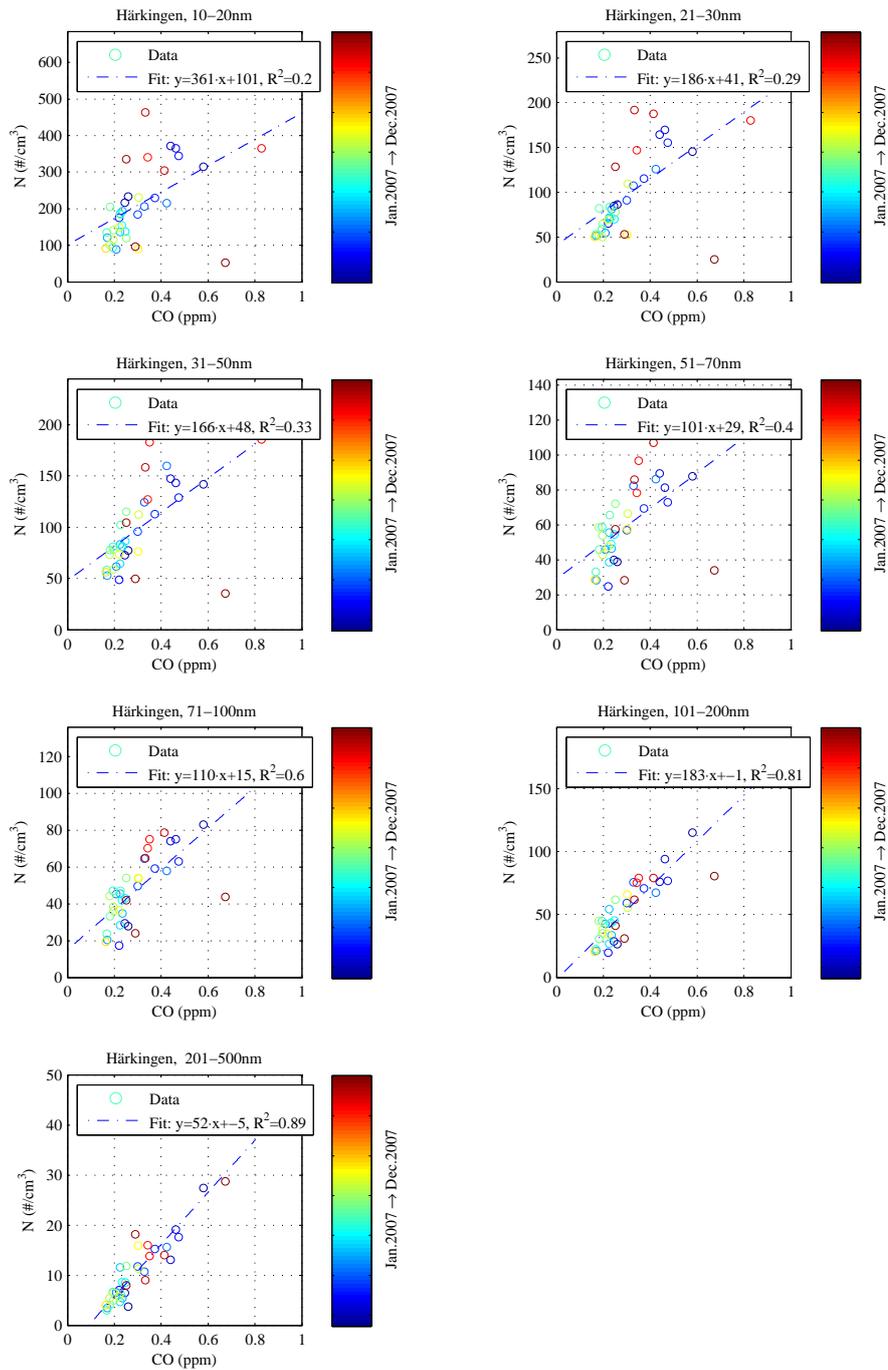


Abbildung 46: Streudiagramme der Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen gegen CO in Härkingen nur an Wochenenden des Jahres 2007. Jeder Messwert entspricht einem Tagesmittelwert, die Farbkodierung kennzeichnet den Messmonat.

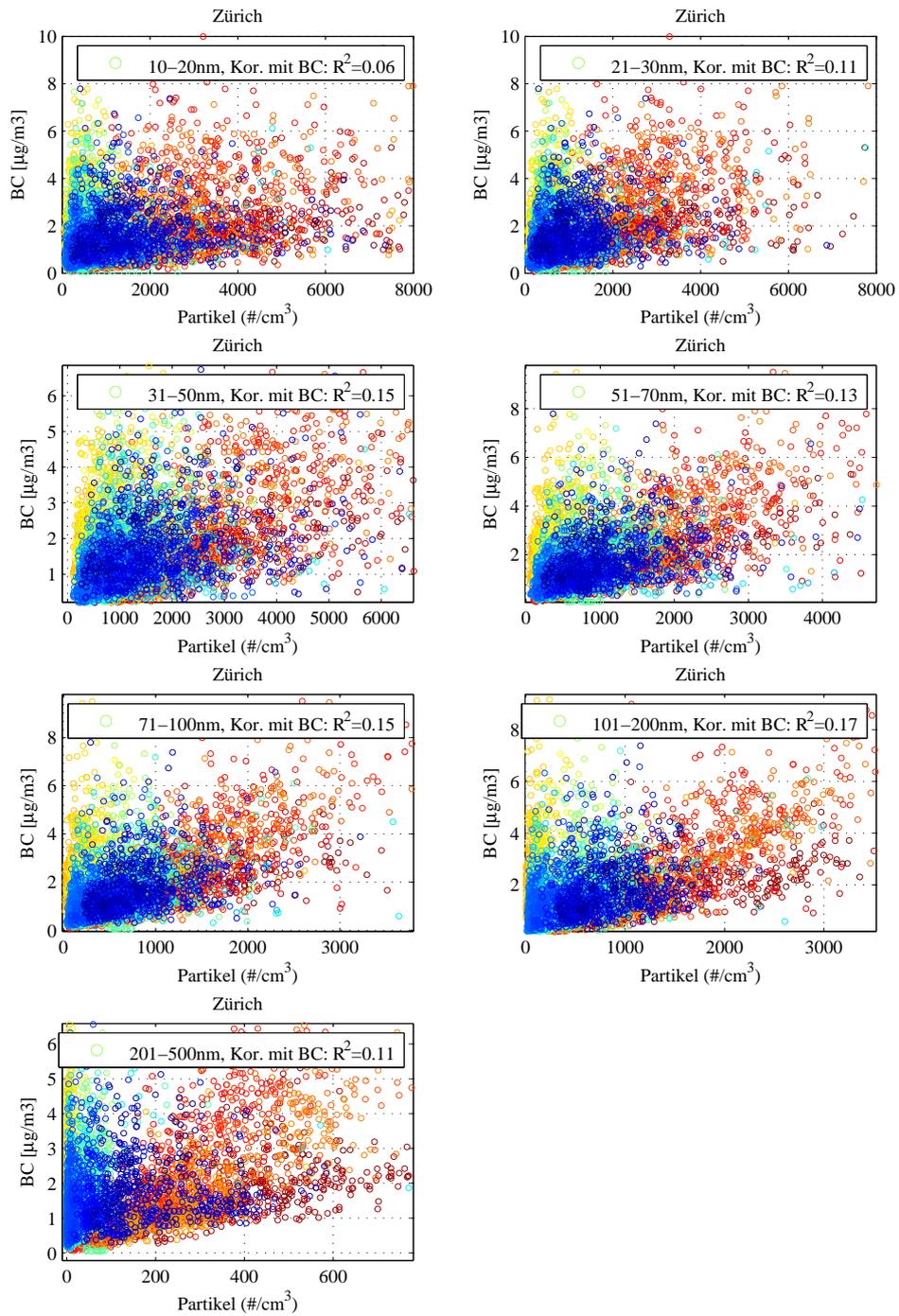


Abbildung 47: Streudiagramme von BC gegen die Partikelanzahlkonzentration in den verschiedenen Grössenklassen in Zürich für die Jahre 2009 und 2010. Jeder Messwert entspricht einem Stundenmittelwert.