

Feinstaubbelastung: Ursachen und Gesundheitsgefährdung

Detlev Möller

Lehrstuhl Luftchemie und Luftreinhaltung

Kurzfassung

Auf der Grundlage von Messungen der Inhaltstoffe von PM_{10} -Tagessproben an 8 Stationen über ein Jahr (2001/2002) in Berlin und Brandenburg wird eine Analyse der Herkunft von Stäuben und der Ursachen erhöhter Staubepisoden vorgestellt. Einleitend wird an Hand historischer Daten darauf aufmerksam gemacht, dass die gegenwärtige PM-Belastung sehr klein ist gegenüber der Belastung vor Jahrzehnten und dass die Rußbelastung vor 100 Jahren wahrscheinlich um 2 Größenordnungen über der heutigen lag. Es gibt keine eindeutigen Beweise für eine signifikante Gesundheitsgefährdung durch gegenwärtige PM-Konzentrationen; andere Faktoren spielen eine weit größere Rolle. Maßnahmen der Luftreinhaltung sind sehr begrenzt, um PM weiter zu senken.

Abstract

On the base of measurements of substances in daily PM_{10} samples from 8 stations over one year (2001/2002) in Berlin and Brandenburg an analysis is presented to show the origin of dust and the causes of exceeded dust periods. In an introduction it is shown based on some historic data that the present PM levels are very small comparing to that some decades before. The soot levels hundred years ago likely were two orders of magnitude larger. There is no evidence for significant human health effects through present PM levels; other factors may play a much more important role. Air pollution abatement to reduce PM further seems to be very limited.

1 Einleitung

Wenn man die Internet-Seiten des Umweltbundesamtes (UBA) und der Weltgesundheitsorganisation (WHO) besucht, so erfährt man, dass Feinstaub die Gesundheit gefährdet, krebserregend ist und die Lebenserwartung der Bevölkerung um viele Monate verringert (in Deutschland sollen es genau 10 sein). In vielen Städten Deutschlands wurden Umweltzonen eingeführt mit dem Ziel, durch eine Verringerung der Staubbelastung einen besseren Schutz der menschlichen Gesundheit zu gewährleisten. Es scheint, als ob Feinstaub das letzte der noch verbliebenen lokalen Luftschadstoffprobleme ist, an deren Lösung die Lokalpolitiker ihren Erfolg messen wollen.

Dabei ist die Belastung mit Feinstaub im Zeitraum 1990 bis 2000 um ein Vielfaches zurückgegangen; im Vergleich zu den Jahren vor 1970 sogar um mehr als eine Größenordnung (damals war „Wintersmog“ das Problem). Während in der ersten Hälfte der 1990er Jahre die Ozonbelastung („Sommersmog“) im Mittelpunkt der Umweltpolitik stand, ist Ozon heute kein Thema mehr für die Gesundheit – obwohl die Konzentrationsmittelwerte weiter ansteigen (allerdings konnten die Überschreitungen von Grenzwerten weitgehend abgebaut werden durch Emissionsreduzierungen flüchtiger organischer Verbindungen). Die Grenzwerte für Feinstaub wurden im Verlaufe der letzten 15 Jahre systematisch herabgesetzt (Jahresgrenzwerte in $\mu\text{g m}^{-3}$): 150 (22. BImSchV), 75 (VDI-Richtlinie 2310), 40 (EU-Richtlinie für PM_{10}). Der Rat der EU-Umweltminister hatte 2008 beschlossen, einen $PM_{2,5}$ -Zielwert von $25 \mu\text{g m}^{-3}$ ab 2010 als Jahresmittelwert einzuführen, der ab 2015 als Grenzwert gilt und ab 2020 sogar auf $20 \mu\text{g m}^{-3}$ verschärft werden könnte. Da etwa 70 Prozent des PM_{10} zum $PM_{2,5}$ zuzurechnen sind (PM – *particulate matter*; die Indexzahlen bedeuten den sog. aerodynamischen Durchmesser der Partikel in μm), bedeutet das de facto auch eine weitere Verringerung des PM_{10} -Grenzwertes; vor allem aber entsteht ein Zielkonflikt mit der Natur, da Überschreitungen des Tagesgrenzwertes ($50 \mu\text{g m}^{-3} PM_{10}$) fast ausnahmslos im kleineren Größenbereich $PM_{2,5}$ stattfinden.

Es entstehen daher folgende Fragen: Sind die Grenzwerte wissenschaftlich belastbar? Was ist Feinstaub? Was am Feinstaub ist gesundheitsgefährlich? Was sind die Ursachen der Feinstaubbelastung und welche Maßnahmen zur Verringerung sind möglich? In diesem kurzen Artikel kann darauf nur andeutungsweise eingegangen werden. Nach einer kurzen Erläuterung was PM ist und worin die Gesundheitsgefährdung zu sehen ist, soll anhand von Messdaten aus dem Berlin-Brandenburger Raum auf die Ursachen der Belastung und der Überschreitungen eingegangen werden.

2 Was ist Feinstaub und was ist daran gesundheitsgefährlich?

Staub (Feinstaub ist nach wissenschaftlicher Konvention eigentlich $PM_{2,5}$ – noch sinnvoller wäre eine Abgrenzung bei PM_1) stellt ein Substanzgemisch aus sehr vielen chemischen Verbindungen in den unterschiedlichsten Formen und Strukturen sowie mit den unterschiedlichsten physikalischen und chemischen Eigenschaften

über einen Partikelgrößenbereich von wenigen Nanometern (nm) bis zu vielen Mikrometern (μm) dar. Darüber hinaus hat er eine große Anzahl verschiedener primärer Quellen (überwiegend Partikel größer $1 \mu\text{m}$ wie Meeressalz, Bodestaub, Vulkanasche, Flugasche, Bioaerosol) als auch sekundärer luftchemischer Prozesse (Partikel kleiner $1 \mu\text{m}$ aus primär emittierten Gasen gebildet), die räumlich heterogen verteilt sind sowie jahreszeitlich unterschiedliche Quellstärken aufweisen (Landwirtschaft, Industrie, Verkehr).

Der Hamburger Justizrat *Johann Peter Willebrand* (1719-1786) schrieb 1775 in seinem Buch „Grundriß einer schönen Stadt, in Absicht ihrer Anlage und Einrichtung zur Bequemlichkeit, zum Vergnügen, zum Anwachs und zur Erhaltung ihrer Einwohner, nach bekannten Mustern entworfen“ (Hamburg und Leipzig, 1775):

Ein sandigter Boden hingegen wird durch seinen Staub bey jeder Windbewegung den Bewohnern einer Stadt unausstehlich. Jedermann weiß, daß der Staub, welcher sich auf den Landstraßen in den Vorstädten in trockenen Jahreszeiten erhebet, das Fahren, Reiten und Gehen unausstehlich macht, und beydes den Augen als auch der Lunge, und den Kleidern schädlich wird. Dahero sind die Anstalten sehr preiswürdig, die ich in den Wienerischen Vorstädten bemerkt habe, in welchen man etliche mal des Tages im Sommer mit Wasser angefüllte große Tonnen herumführet, und durch gewisse Guß-Maschinen, die daran bevestiget sind, die Hauptstraßen der Vorstädte besprützen läßt, damit der feuchte Sand nicht mehr in Staub aufsteigen kann.

In den vergangenen Jahren durchgeführte Versuche in verschiedenen Städten durch Besprengen die Staubaufwirbelung durch Autos zu vermindern haben allerdings keinen Erfolg gezeigt. Der Berliner Arzt *Ludwig Formey* (1766-1823) schrieb in seinem Buch „Versuch einer medicinischen Topographie von Berlin“ (Berlin, 1796):

Die Strassen in Berlin sind breit, gerade und geräumig, und gewähren nicht allein dem Auge einen schönen Anblick, sondern tragen zur Gesundheit der Einwohner viel bey, indem der Wind allerwärts streichen, die Luft erneuern und von den Ausdünstungen und Unreinigkeiten befreien kann.

Die Frage, die sich heute stellt – nachdem in den vergangenen 20 Jahren die anthropogenen Staubemissionen (*nicht* aber die Immission) fast um den Faktor 100 zurückgegangen sind – besteht darin, ob die verbliebene (Fein-) Staubbilastung tatsächlich noch zu senken ist oder ob wir uns bereits auf einem Konzentrationsniveau befinden, welches man als weiträumigen Hintergrund bezeichnen muss und welches zu einem großen Anteil durch natürliche Quellen gegeben wird. Die beiden historischen Zitate (und wir wissen, dass damals weder Ammoniak aus der Düngeranwendung in der Landwirtschaft noch Schwefeldioxid und Asche von Kraftwerken und auch keine Stickoxide von Kraftfahrzeugen emittiert wurden) zeigen zweierlei: einmal, dass Staub wohl zu allen Zeiten als lästig empfunden wurde, aber dass zweitens auch eine „Staubsituation“ mit einer spezifischen meteorologischen Bedingung, hier Trockenheit auf der einen Seite in Bezug auf Erhöhung der Staub-

belastung und auf der anderen Seite günstige Ausbreitungsbedingungen für eine Verringerung der lokalen Belastung zu beachten sind. Man wird wohl mit großer Wahrscheinlichkeit die Staubbilastung zur Zeit der oben angeführten Zitate überwiegend auf Bodestaub zurückführen können, den heutige Mediziner für nicht gesundheitsgefährdend halten (aber Herr *Willebrand* für schädlich). Wir kommen auf die Bedeutung von Behauptungen noch zurück: „*Es ist erwiesen, dass das Einatmen von Feinstaub negativ auf den Gesundheitszustand des Menschen wirkt*“ (UBA). Man kann ergänzen, dass sich *alle* Faktoren der Umwelt negativ auf den Gesundheitszustand des Menschen auswirken: das Ziel des Lebens ist der Tod. Was nützen also derart plakative „Erkenntnisse“? Nichts, im Gegenteil; sie sind dumm und sogar gefährlich, weil sie eine sachliche Diskussion nahezu verhindern (wer meint „Umweltzonen“ haben keinen nachweisbaren positiven Effekt, wird als Ignorant abgestempelt) und damit langfristig und strategisch angelegte Maßnahmen der Umweltentlastung behindern.

Weitgehend übereinstimmend wird heute der Ruß (*soot*) als die gesundheitsschädigende Komponente angesehen. Ruß, im Deutschen Sprachgebrauch EC (*elemental carbon*) und im Englischen zumeist (zutreffender) als BC (*black carbon*) bezeichnet, ist ein äußerst kompliziertes Gemisch aus unverbrannten Produkten fossiler Rohstoffe (Kohle, Öl, Diesel). Mit Sicherheit sind polyaromatische und heterozyklische organische Verbindungen teilweise als mutagen und kanzerogen eingestuft worden; sie befinden sich in wechselnder Konzentration und Zusammensetzung am „eigentlichen“ Ruß (GELENCSE, 2004). Historische Daten über die Veränderung der „Rußzusammensetzung“ in Abhängigkeit von den Quellen und Verbrennungstechnologien sind kaum vorhanden. Allerdings dürfte die städtische Rußbelastung als Folge des Hausbrandes und der Manufakturen früher wesentlich größer gewesen sein als heute.

Der bekannte Berliner Chemiker *Andreas Sigismund Marggraf* hatte zwischen 1749 und 1751 Regenwasser in Berlin gesammelt und darin (Kalium-)Nitrat, Natrium und Chlorid, Kalzium(-karbonat) sowie organische Substanz (OC – *organic carbon*) identifiziert (MARGGRAF, 1786), so dass angenommen werden kann, dass neben Meeressalz auch im atmosphärischen Aerosol bereits Nitrat, Bodestaub (als Ca) und OC bedeutend waren. Mit Sicherheit wird Nitrat überwiegend natürlichen Ursprungs gewesen sein. Da *Marggraf* OC als „klebrige und öhlige Theilchen“ bezeichnete, die er damit kommentierte, dass „*unser Dunstkreis in jeder Jahreszeit mit vielen Dünsten und Dämpfen angefüllt ist, wie man an den Frühlings- und Sommerregen schon durch Geruch merken kann*“, wird OC auch überwiegend biogenen Ursprungs gewesen sein, aber mit Sicherheit auch ein Verbrennungsprodukt in der kalten Jahreszeit.

Gut 100 Jahre später war in allen Städten Europas die Rede von der „Rauchplage“, nachdem Kohle zur Hauptquelle aller Energie wurde. In Manchester wurden 1892 im Sommer $0,4\text{--}0,8$ und im Winter $2,0\text{--}3,5 \text{ mg SO}_2 \text{ m}^{-3}$ gemessen, eine um den Faktor 100-700 höhere Konzentration als heute in Cottbus vorzufinden ist. Als Staubbilastung wurden $700\text{--}800 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (in Leeds „nur“ $314 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) gemessen; wobei in Leeds etwa 15 Prozent davon „*nasty, sticky*

oil“ (COHEN, 1895) waren. *Cohen* schreibt: „Were the soot pure carbon it would be comparatively harmless. Unfortunately, this is not the case.“ *Cohen* hat auch mit einem Aitken-Kernzähler die Anzahl der sog. Nanopartikel gemessen und fand in Leeds zwischen 40 000 und 260 000 cm^{-3} ; in Dresden werden seit 1999 im Jahresmittel ca. 6 000 cm^{-3} gemessen (Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie). Aus Dresden gibt es interessante Messungen vor nunmehr über 100 Jahren (FRIESE, 1909) zur Staubbelastung (Gesamtstaub), die im Winter (gerundet) 1300 (100-2700) mg m^{-3} und im Sommer 700 (100-1600) mg m^{-3} betrug und damit im Mittel um den Faktor ca. 50 höher war als heute. Im Regenwasser wurde in Dresden (FRIESE, 1909) eine Gesamtmasse von 60 (20-124) mg L^{-1} gefunden; davon 16 mg L^{-1} suspendiert und 34 mg L^{-1} gelöst. Zum Vergleich gelöste Substanz (in mg L^{-1}): Peking 1981 ca. 42, Dresden 1965 ca. 30, Seehausen 1983-1989 ca. 16, Seehausen 2000/2001 ca. 8 und Berlin 2000/2001 ca. 17 im Sommer und 20 im Winter (MÖLLER, 2003). Im Berliner Regenwasser wurden neben den gelösten Ionen auch DOC (*dissolved organic carbon*) in etwa vergleichbarer Konzentration gefunden (in mg L^{-1}): 17 (So) und 6 (Wi). Was lernen wir daraus?

Die „Regenwasserverschmutzung“ war um 1900 nicht sehr verschieden vom Zeitraum vor 1980 (abgesehen von suspendierter Substanz, s. u.), ist aber nach 1990 um den Faktor zwei zurückgegangen (ohne es hier näher ausführen zu können: wegen der Luftreinhaltmaßnahmen im Energiesektor sind vor allem die Sulfat- und Kalziumkonzentrationen erheblich gesunken; beides übrigens Komponenten im PM). Bemerkenswert ist jedoch der hohe Gehalt an suspendierter Substanz (die heute nicht mehr gefunden wird) und die vermutlich Ruß darstellte (zu Beginn der 1990er Jahre haben wir an unserer Brocken-Messstation manchmal „schwarzes Wolkenwasser“ gesammelt, also mit Ruß belastet). Aus den oben zitierten Angaben von *Cohen* kann für Ruß (*nasty, sticky oil*) als Deposition 40-50 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ abgeleitet werden. Der gegenwärtige Grenzwert für die Staubdeposition (nach der *Bergerhoff*-Methode) beträgt 350 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$. In Deutschland wurden im Jahre 2003 in ländlichen Gebieten (Jahresmittel) 40-100 und in Städten 200-400 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ gemessen. Deutschlandweit beträgt die PM_{10} -Konzentration (sie entspricht ca. 80 Prozent der Gesamtstaubkonzentration, die auch als TSP bezeichnet wird; der Anteil von $\text{PM}_{2,5}$ hingegen beträgt etwa 70 Prozent am PM_{10}) in ländlichen Gebieten 18-20, in Städten 20-24 und an Straßenrändern 35-40 $\mu\text{g m}^{-3}$.

Zum Vergleich: in Deutschland betrug die mittlere Staubbelastung (TSP) 1986 ca. 60 $\mu\text{g m}^{-3}$, war also mehr als dreimal höher als heute (in Städten ist der Unterschied wesentlich größer wegen des damaligen Hausbrandes). Es ist nicht möglich, aus den historischen Werten konkrete Angaben über die Ruß-Konzentration zu damaliger Zeit zu ziehen. Gegenwärtig beträgt sie in ländlichen Gebieten Deutschlands (in $\mu\text{g m}^{-3}$) 1-2, in Städten 2-3 und an Straßenrändern 4-6. Während die Staubdeposition vor über 100 Jahren „nur“ um einen Faktor 2-3 höher war in Städten als heute, war die Staubkonzentration wohl um das bis zu Hundertfache höher. Wegen der Korngrößenabhängigkeit besteht keine einfache Beziehung zwischen Ablagerung (trockene Deposition und Sedimentation) und Konzentration. Die extremen damaligen städtischen

SO_2 -Werte sind nicht unmittelbar auch in eine hohe Sulfatbelastung zu übertragen (die SO_2 -Emission betrug in Deutschland um 1900 ca. 3 Mio t S; zum Vergleich: 1960-1985 in Deutschland ca. 8 und seit 2000 ca. 1 Mio t; MÖLLER, 2003).

Nehmen wir an, dass die PM-Belastung aus natürlichen Quellen (Bodenstaub, Vegetation, Meeressalz) sich zwischen 1900 und 2000 nicht wesentlich geändert hat und nehmen wir weiter an dass die Industrie- und Landwirtschaftsquellen (Dünger, Tierhaltung) insgesamt denen der Jahre 1960-1980 in Deutschland entsprachen (also bevor aktive Maßnahmen der Luftreinhaltung außer Filtern einsetzten), so sollte größenordnungsmäßig die Hintergrund-Staubbelastung (außer der lokalen Kohleverbrennung) auch um 1900 nicht mehr als 100 $\mu\text{g m}^{-3}$ betragen haben. Was aber stellte dann die Differenz in der Größenordnung von 600-1 200 $\mu\text{g m}^{-3}$ dar? Kann es „Ruß“ (*nasty, sticky oil*) gewesen sein? Eine „Ruß-Deposition“ (s. o.) von 40-50 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ wie sie in Leeds Anfang der 1890er Jahre gefunden wurde ist aus heutiger Sicht unvorstellbar. (Diesel-)Ruß befindet sich in der kleinsten Partikelfraktion und hat sehr kleine sog. Depositionsgeschwindigkeiten. Nehmen wir den in der TA Luft empfohlenen Wert für die Fraktion $< 2,5 \mu\text{m}$ von 0,001 cm s^{-1} , so ergibt sich bei einer Rußkonzentration von 10 $\mu\text{g m}^{-3}$ (ein Extremwert an stark befahrenen Straßen) eine Deposition von nur ca. 0,009 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$. Eine um den Faktor 5 000 größere Ruß-Deposition ist kaum vorstellbar. Allerdings hatte es sich damals *nicht* um Dieseluß gehandelt, sondern um Ruß aus der Kohleverbrennung, also durchaus wesentlich größere Partikel (Aschepartikel). So kann aus der „Ruß-Deposition“ von 40-50 $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ unter Annahme einer höheren Ablagerungsgeschwindigkeit von 0,01-0,09 cm s^{-1} eine „Ruß-Konzentration“ von 600-4 000 $\mu\text{g m}^{-3}$ rückgerechnet werden. Es ist also nicht unwahrscheinlich, dass die „Ruß“-Konzentration vor 100 Jahren um das Hundertfache höher gewesen war als heute.

Der Zweck dieser „historischen“ Betrachtung (bei aller Skepsis gegenüber den Messmethoden) soll hier lediglich darin bestehen, sich bewusst zu machen, dass (neben sicherlich um das Mehrfache höheren Schwefelsäurekonzentrationen) die Ruß/EC/BC-Konzentration um *Größenordnungen* höher war als heute. Diese Aussage ist wichtig, wenn man die Glaubwürdigkeit der heutigen Aussagen zur Mortalität von PM bewerten will.

Seit dieser Zeit bleibt als erste Frage bei der Bewertung der atmosphärischen Staubbelastung die nach dem Verhältnis zwischen natürlichen und anthropogenen Quellen sowie die nach der räumlichen Entfernung der Quelle in Bezug auf den Immissionsstandort. Es gibt kein luftchemisches und lufthygienisches Problem, das auch nur annähernd so komplex und kompliziert ist wie (Fein-)Staub, siehe z. B. DEMERJIAN und MOHNEN (2008). Es ist daher wissenschaftlich völlig unverständlich, weshalb Staub in der administrativen Luftreinhaltung als „ein Schadstoff“ bezeichnet wird und man sich mit der Erfassung einer Gesamtmasse pro Luftvolumen begnügt (das ist, als würde man im Regenwasser nur den Gesamtsalzgehalt bestimmen) und lediglich einen massenbezogenen Grenzwert festgelegt hat, dessen Quantifizierung sich jeder wissenschaftlichen Nachvollziehbarkeit entzieht.

Partikel kleiner 2,5 µm Durchmesser (daher diese Größenbereichsfestlegung) gelangen durch Atmung bis in die Lunge. Den sog. Nanopartikeln (i. a. < 0,1 µm) wird eine besondere Gefährlichkeit zugeschrieben – wegen ihrer großen Anzahl. Das ist wissenschaftlich unseriös, da entscheidend für eine Wirkung die *Dosis* (Menge pro Zeit) ist *und* die Rückhaltung, d. h. die Menge, die nicht mit der Atemluft wieder abgegeben wird. Ein Partikel mit einem Durchmesser von 1 µm entspricht dem Volumen von 10^6 Partikeln von 10 nm Durchmesser. Nehmen wir Schwefelsäure (H_2SO_4) für beide Partikel an (was realistisch ist, da diese aus SO_2 durch *pas-particle-conversion* entsteht und derart hohe Partikeldichten gemessen wurden) so würde die Wahrscheinlichkeit, dass das 1 µm große Partikel in der Lunge absorbiert wird (gelöst und in der Blutbahn transportiert) gleich 1 sein, hingegen die Wahrscheinlichkeit, dass alle 10^6 Nanopartikel absorbiert werden kleiner 1, da ein Teil wieder ausgeatmet wird. Aber auch wenn alle absorbiert würden, so werden sie ebenso gelöst und ergeben dieselbe Blutkonzentration an H_2SO_4 wie das eine große Partikel. Dieses nahezu triviale aber überzeugende Beispiel zeigt, dass nicht a priori die Anzahl sehr kleiner Partikel „gefährlich“ sein kann, sondern – wie es seit über 100 Jahren vertreten wird – die Toxizität, Wasserlöslichkeit und ggf. weitere Eigenschaften des Partikels und daraus abgeleitet die Toxizität der gesamten aufgenommenen Masse (*Dosis*)¹. Beispielsweise durchaus als sehr gefährlich erkannte Partikelstruktureigenschaften, wie Fasern und Kristallite, sind aber nur bei größeren primären Partikeln bekannt.

Ein Raucher in Deutschland konsumiert täglich im Mittel 15 Zigaretten. Bei einem Teergehalt von 11 mg pro Zigarette (eine Zigarette liefert etwa 2 L Rauch, was zu einer theoretischen Teerkonzentration von ca. $5\,000\ \mu\text{g m}^{-3}$ führt) werden im Verlaufe von 10 Jahren ca. 6 kg Teer umgesetzt. Nehmen wir an, dass nur 1 Prozent des Tabakrauches inhaliert wird (sicherlich eine sehr konservative Annahme), so ergibt sich eine Dosis von 60 g. Würde ein Nichtraucher 10 Jahre an der Frankfurter Alle in Berlin (nicht im Haus, sondern am Straßenrand!) leben, würde er „nur“ 0,2 g Ruß insgesamt einatmen, also 300 mal weniger. Ob Dieselruß gefährlicher oder ungefährlicher ist im Vergleich zu Zigarettenruß ist unbekannt. Bekannt ist, dass Raucher eine um 40 Prozent höhere Wahrscheinlichkeit haben Lungenkrebs zu bekommen. In Dresden um 1900 hätte also ein Nichtraucher in etwa soviel (Kohlen-)Ruß eingeatmet wie ein Raucher im gleichen Zeitraum.

Die Umweltmediziner haben sich aber darauf „geeignet“ überhaupt nicht mehr von einem PM-Grenzwert zu sprechen, sondern die im Verlaufe eines Lebens akkumulierte Menge PM zu betrachten. Diese Betrachtung hat Sinn bei allen primär nicht toxischen, aber akkumulierbaren Substanzen wie Fasern (Asbest), Kristallen (Silikate) und Ruß, die schrittweise zu einer Verringerung der Luftaustauschfläche in den Lungen führen aber auch zu Entzündungen führen können. Alle wasserlöslichen nicht-toxischen Substanzen (Ammonium, Sulfat, Nitrat, Natrium usw. stellen bis zu 1/2

¹ Industriell hergestellte Nanopartikel (z. B. TiO_2) werden auf ihre Gesundheitsgefährdung untersucht (gesicherte Ergebnisse liegen noch nicht vor); diese sind aber nicht in der atmosphärischen Luft anzutreffen. In der Atmosphäre sind „Nanopartikel“ entweder anorganische Salze (im Wesentlichen NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-}) und SOA (*secondary organic aerosol*), gebildet aus biogenen und anthropogenen gasförmigen organischen Verbindungen (NMVOC – *non-methane volatile organic carbon*).

der PM-Belastung dar) werden als weitgehend ungefährlich eingestuft (sie werden über den Blutkreislauf ausgeschieden). Bodestaub (bis zu 1/3 Anteil) gelangt nicht einmal bis in die Bronchien. Zweifellos stellt Ruß eine potenzielle Gefahr dar. Die Frage ist aber, in welcher Konzentration. Auch eine lebenslange Exposition (und daher Akkumulation) ergibt sich integral aus kleinen Dosen.

In letzter Zeit wird häufig darauf verwiesen, dass Studien (vor allem aus den USA) einen Zusammenhang zwischen Lebenserwartung und PM-Konzentration zeigen, z. B. in POPE et al. (2009). Dort wird die Lebenserwartung im Zeitraum 1979-1983 (73,3 Jahre) mit der im Zeitraum 1999-2000 (77,0 Jahre) mit der $PM_{2,5}$ -Konzentration (20,6 im ersten und 14,1 im zweiten Zeitraum verglichen). Es werden zahlreiche statistische Modelle unter Berücksichtigung sozioökonomischer und demographischer Faktoren angewandt. Im Ergebnis wird festgestellt, dass eine $PM_{2,5}$ -Verringerung um $10\ \mu\text{g m}^{-3}$ eine Verlängerung des Lebens um 0,6 Jahre bewirkt. Wenden wir diese Zahl auf die oben abgeleiteten historischen Staubwerte an (ohne hier zwischen TSP, PM_{10} und $PM_{2,5}$ trennen zu können, was aber bei einem Vergleich um Größenordnungen sicherlich nicht ins Gewicht fällt). Wenn sich danach die PM-Belastung in den 100 Jahren um vielleicht $500\ \mu\text{g m}^{-3}$ in Städten verringert hat, so entspräche das einer Erhöhung der Lebenserwartung um 30 Jahre – es muss nicht weiter kommentiert werden, dass es sich hierbei um eine unsinnige Aussage handelt.

Es würde hier zu weit führen, in die Einzelheiten zu gehen und eine solide Kritik dieser Arbeit auszuführen. Daher nur zwei Argumente – die nicht berücksichtigt wurden in den Studien – und die Aussagen mehr als fragwürdig machen: a) die Ernährung und medizinische Betreuung haben sich in den 20 Jahren verändert – man kann wohl übereinstimmend feststellen, zum Besseren hin, und b) die PM-Belastung ist nur ein Kriterium für die Luftqualität, die sich erheblich geändert hat (es ist nicht unwahrscheinlich, dass die Verbesserung der *gesamten* Luftbelastung einen signifikanten Anteil hatte an der Erhöhung der Lebenserwartung). Die Autoren geben natürlich den multifaktoriellen Aspekt zu in Bezug auf die Lebenserwartung und betonen auch die schwache Signifikanz. Es ist aber wenig wissenschaftlich, eine lineare Beziehung zwischen PM und Lebenserwartung abzuleiten; jedem sollte klar sein wie komplex die Faktoren bezüglich der Lebenserwartung sind.

Derartige epidemiologische und sog. Kohorten-Studien haben sicherlich den großen Wert, Unterschiede festzustellen zwischen Personengruppen, Zeiträumen und Regionen. Sie sind wichtig, um zielgerichtete toxikologische Studien oder im allgemeinen Sinne Ursache-Wirkungs-Studien zu initiieren. Sie sind aber sehr wenig geeignet, zu kausalen Beziehungen beizutragen.

Eine Studie von GREIM et al. (2003) bewertet unter anderem auch die verschiedensten durchgeführten epidemiologischen Studien mit einer ausgesprochen seriösen Objektivität und Nachvollziehbarkeit (gerade letzteres mangelt vielen Studien und Publikationen). Auch neuere Veröffentlichungen (POPE et al., 2009) basieren alle auf *alten* Daten (wie in POPE et al., 1995, 2002). Das Umweltbundesamt bezieht seine Meinung beispielsweise aus der Studie von

WICHMANN (2003) und *Wichmann* bezieht seine Daten von *Pope*. GREIM et al. (2003) zeigen überzeugend, dass die *Wichmann*-Studie starke methodische Schwächen hat, auf einer unsicheren Datenbasis beruht und wegen unhaltbarer Annahmen sowie zweifelhafter Rechenoperationen im Ergebnis fragwürdig ist. Auch die Studien von POPE et al. zeigen nach GREIM et al. (2003) schwach ausgeprägte Tendenzen und bedürfen einer kritischen Prüfung auf ihre Tragfähigkeit. Es wird auch darauf hingewiesen, dass U.S. EPA (die amerikanische Umweltschutzbehörde) aus den Daten von *Pope* kein signifikantes Risiko für Lungenkrebs abgeleitet hat, allerdings Hinweise auf eine Mortalitätszunahme aufgrund kardiopulmonaler Erkrankungen anerkannten. Selbst wenn das zutrifft, ist damit noch keine kausale Beziehung zum PM hergestellt (allerdings auch nicht negiert). GREIM et al. (2003) erheben Zweifel, ob bei Blick auf die publizierten Zahlen zum Relativen Risiko überhaupt diese differenzierte Aussagen möglich sind; die Einschränkungen und Fehlerquellen bringen es mit sich, dass Versuche einer quantitativen Abschätzung dieser Art (Mortalität und Krankheit in Relation zum PM) zwangsläufig zum Scheitern verurteilt sind.

Das Nichtvorhandensein toxikologischer Daten und Zusammenhänge am Menschen beruht auf den strengen ethischen Regeln betreffend Experimente am Menschen. Obwohl der Zusammenhang zwischen Rußbelastung und Gesundheit (z. B. als Lungenkrebs) schon frühzeitig erkannt wurde, bestehen bis heute kontroverse Meinungen. Ergebnisse wurden vor allem an Tierversuchen gewonnen, insbesondere an Ratten. Aber einmal handelt es sich dabei um exorbitant hohe Konzentrationen ($> 1\,000\ \mu\text{g m}^{-3}$ lebenslang – hingegen wurden bei Rußbelastungen $< 600\ \mu\text{g m}^{-3}$ keine Krebsbildung festgestellt; VALBERG und CROUCH 1999), die um mehr als das Hundertfache oberhalb der Umweltkonzentrationen liegen und zweitens ist unklar ob a) eine Interpolation zu geringeren Konzentration erlaubt ist und b) eine Übertragung auf den Menschen. Andere Tiere (Hamster und Mäuse) zeigten keine Effekte. Es wird darauf hingewiesen, dass die Veränderungen an adsorbierten gesundheitsschädlichen Stoffen (PAHs – *polycyclic aromatic hydrocarbons*) stark variiert und sich in den letzten Jahrzehnten sehr reduzierte, so dass alleine die Rußkonzentration kein belastbarer Parameter für Kanzerogenität ist (es müsste also ein Inhaltsstoff als Leitsubstanz gemessen werden, z. B. Benz-a-pyren, BaP)².

Was lehren uns diese Untersuchungen an Ratten? Sie bestätigen lediglich, dass eine lebenslange Rußexpositionen unter 100-fach höheren Konzentrationen als in der Umwelt zum Lungenkrebs führt – bei Raten, aber nicht bei Mäusen und Hamstern (warum das so ist, weiß man nicht). Sie lehren weiter, dass eine „nur“ 50-fache Rußkonzentration *nicht* zum Lungenkrebs führt (bei Ratten). Jede Übertragung dieser Ergebnisse auf den Menschen wäre unzulässig. Nun jedoch die umgekehrte Schlussfolgerung zu ziehen, dass Ruß in kleinen

Konzentrationen (oder Dosen) *nicht* gesundheitsschädigend ist, ist auch unzulässig, genauso aber wie die Aussage, dass Ruß in kleinen Konzentrationen gesundheitsschädigend ist (wir wissen es nicht).

HESTERBERG et al. (2006) kommen zu der Schlussfolgerung, dass nach Jahrzehnten zahlreicher epidemiologischer Studien und Laboruntersuchungen an Tieren eine kausale Beziehung zwischen Dieselruß und Lungenkrebs nicht eindeutig gezeigt werden konnte. Epidemiologische Studien an Risikogruppen (Truckfahrer und Eisenbahner, s. a. SOLL-JOHANNING et al. 1998) zeigen einen weiten Bereich von der Annahme, dass es hinreichend Belege für einen Zusammenhang mit Lungenkrebs gibt bis hin zum Gegenteil. Zumeist wird auf andere Faktoren geschlossen. GARSHICK et al. (2008) haben gefunden, dass Truckfahrer mit regulärer Exposition zu Dieselabgasen ein erhöhtes Risiko für Lungenkrebs zeigen, das mit der Anzahl der Jahre unter Exposition ansteigt. Das wird auch von RIS (2007) bestätigt, dabei aber darauf verweisen, dass alle Studien sich auf Kfz beziehen, die vor Mitte der 1990er Jahre gebaut wurden. Weitere Studien müssen daher unter Bezug auf neue Fahrzeuge mit völlig verändertem Emissionsverhalten durchgeführt werden.

Die Gefährlichkeit von verschiedenen polyaromatischen und anderen organischen Verbindungen ist weitgehend erwiesen. Es ist auch unbestreitbar, dass diese am Dieselruß angelagert sind. Alle Erkenntnisse deuten darauf hin (so wie es erwiesen ist für Anthrakose, Asbestose und Silikose), dass eine lebenslange Exposition – und mit Sicherheit unter bestimmten Mindestkonzentrationen oder in anderen Worten kumulativen Mindestmenge – notwendig ist, um im Alter zum Ausbruch der Krankheit zu führen und daher die Lebenserwartung zu verkürzen. Mit großer Sicherheit ist die statistische Lebenserwartung von Rauchern auch kürzer als die von Nichtraucher, wahrscheinlich der beste Hinweis auf die Wirkung von Ruß. Die Hinweise, dass auch Kettenraucher über 90 Jahre alt werden, ist kein Gegenbeweis für die Nichtwirkung von Zigarettenrauch, sondern dafür, dass weitere Faktoren die Lebenserwartung bestimmen.

Mit großer Sicherheit hat die Verbesserung der Luftqualität zu mehr Gesundheit und möglicherweise auch zu einer erhöhten Lebenserwartung geführt. Die möglichen weiteren Veränderungen (Verringerung) der Luftbelastung werden sich jedoch in sehr engen Grenzen halten wegen der bereits fortgeschrittensten *end-of-pipe* Technologien. Es ist daher nicht zu erwarten, dass weitere signifikante Effekte im positiven Sinne zur menschlichen Gesundheit eintreten. Andere Faktoren haben (und das kann an dieser Stelle wohl ohne Zitate behauptet werden) erheblich größere Einflüsse und vor allem ein noch großes Potenzial in der Verbesserung der Lebensqualität und menschlichen Gesundheit (es ist dabei an Ernährung, Bewegung, Wohlbefinden etc. gedacht). Es sei an dieser Stelle die Definition der WHO für Gesundheit zitiert (und damit die Politik aufgefördert ihre Schwerpunkte *richtig* zu setzen): Gesundheit ist der anhaltende Zustand „*vollständigen physischen, seelisch-geistigen und sozialen Wohlbefindens bei Abwesenheit von Krankheit und Schwäche*“³. Sie ist also wesentlich mehr als Nicht-Krankheit.

² Ein Grenzwert von $1\ \text{ng m}^{-3}$ für BaP ist vorgeschlagen worden. In Berlin (TU-Gelände) wurden 2000 $0,83\ (0,08-2,4)\ \text{ng BaP m}^{-3}$ gemessen (KIM, 2005). Im Feinstaub $16,6\ (1,7-32,3)\ \text{ng mg}^{-1}$ und als Deposition $84-187\ \text{ng m}^{-2}\ \text{d}^{-1}$ (verschiedene Sammler). Eine tägliche Aufnahme durch Atmung in der Außenluft von ca. $10-15\ \text{ng}$ folgt. Vom Länderausschuß für Immissionsschutz (LAI) wurden 1992 tägliche Aufnahmeraten angegeben für BaP (in ng d^{-1}): 200-500 durch die Nahrung, 400 Innenluft im Raucherhaushalt, 10-50 Innenluft Stadt. PAH-Gemische aus Verbrennungsprozessen haben ein kanzerogenes Potential um den Faktor 10-25 höher als BaP allein. EPA hat 16 PAHs festgelegt zur Kontrolle; im Dieselruß sind hunderte PAHs enthalten; mit Abgasrückführung (AGR) wesentlich höhere Konzentrationen ($0,04-0,09\%$) als ohne AGR ($0,005-0,007\%$ bezogen auf Gesamtdieselruß), KIM (2005).

³ Exakte Definition: *Health is a state of complete physical, mental, and social well-being and not merely the absence of disease or infirmity.*

3 Entwicklung der Staubbelastung

Vor 1990 spielte Flugasche (wahrscheinlich im wesentlichen Oxide und Karbonate des Kalziums und anderer Metalle) aus Kohlekraftwerken und dem Hausbrand eine große Rolle. Alleine aus dem Hausbrand sank die Staubemission in Berlin von 1250 auf 150 t a⁻¹ von 1994 bis 1999; in Brandenburg sank die Staubemission von 550 auf 7 kt a⁻¹ zwischen 1989 und 2000; alleine von 1989 bis 1992 fiel die Emission um über 75 Prozent. In Berlin nahm die Staubbelastung (als TSP – Gesamtschwebstaub) um 50 Prozent ab (auf ca. 50 µg m⁻³) von 1989 bis 1996; ab 1998 wurden die Messungen auf PM₁₀ umgestellt und ein Wert von 22-28 µg m⁻³ wird seitdem innerstädtisch ohne weitere Konzentrationsabnahme registriert.

Leider existieren keinerlei Inhaltsanalysen, die Auskunft geben können über die zeitliche Änderung der relativen Staubzusammensetzung. Einzig in Melpitz bei Leipzig besteht eine vom Institut für Troposphärenforschung (IFT) betriebene Messstation, an der seit 1992 Feinstaub gesammelt und analysiert wird (auf Sulfat, Nitrat, Natrium und Chlorid). Folgende Mittelwerte charakterisieren die Änderungen:

Periode	PM ₁₀	Sulfat	Nitrat
1992-1997	33,4	5,93	3,65
1998-2007	22,0	3,09	3,43

Bemerkenswert ist, dass die Sulfataerosolkonzentration weniger (nur um 50 Prozent) abgenommen hat als die Regenwassersulfatkonzentration (75 Prozent), wobei die SO₂-Emission zwischen 1990 und 2000 um 94 Prozent abnahm. Aus Regenwasseranalysen kann abgeleitet werden, dass zwischen 1989 und 2000 die Konzentration von Sulfat, Kalzium, Magnesium, Kalium und Chlorid um ca. 75 Prozent abnahm (MÖLLER, 2003), die des Ammoniums um 50 Prozent, wohingegen Nitrat konstant blieb. Die SO₂-Konzentration in Brandenburg nahm zwischen 1991 und 2002 von rund 50 auf 5 µg m⁻³ ab, also um 90 Prozent (Landesumweltamt Brandenburg). Die Abnahme der Konzentrationen ist überwiegend auf die verringerten Kapazitäten und Emissionen aus Kohlekraftwerken zurückzuführen.

Die gegenwärtige PM-Belastung kann etwa seit dem Jahr 1998 als konstant angesehen werden; die Jahr-zu-Jahr-Variationen sind meteorologisch bedingt. Aus einer großen Anzahl an Staubmessstationen (UBA-Daten) ergibt sich als Jahresmittelwerte für den Zeitraum 2001-2006 für ländliche Gebiete ein Wert von 19±3 und städtische Bereiche von 27±2 µg m⁻³. Das zeigt, dass erstens eine weiträumige homogene Verteilung der Feinstaubkonzentration besteht und zweitens kein Trend mehr aufgetreten ist. Dieses wiederum bedeutet, dass die (egal wo – natürlich nicht unter direktem Quelleinfluss) gemessene PM-Konzentration offenbar ein Ergebnis von weiträumig gleichverteilten Quellen ist. Unmittelbar schließt sich die wichtige Frage nach dem Potenzial lokaler Maßnahmen bezüglich einer weiteren PM-Absenkung an sowie die Grundfrage, welche PM-Belastung (in Bezug auf welche Inhaltsstoffe) eigentlich aus Gesundheitsaspekten toleriert werden kann.

4 Ergebnisse der Berlin-Brandenburger Messungen 2001/2002

Im Auftrag der Berliner Senatsverwaltung und in Kooperation mit der TU Berlin und dem IUTA (Institut für Energie und Umwelttechnik Duisburg) wurden an 6 Stationen in Berlin und 2 in Brandenburg über ein Jahr Tagesproben an PM₁₀ gesammelt und chemisch analysiert (JOHN und KUHNBUSCH, 2004). Vom Lehrstuhl Luftchemie und Luftreinhaltung der BTU wurde die Probenahme und die chemische Analytik (Ionen und Schwermetalle) übernommen (EC und OC wurde an der TU analysiert). Die Anzahl und Verteilung der Messstationen ermöglicht es, charakteristische Gebietsmittel zu erstellen, die wir in ländlichen Hintergrund (LH), städtischen Hintergrund (SH) und verkehrsreiche Straße (V) unterteilen wollen; die Höhenstation Frohnauer Turm (FT) soll separat im Sinne eines großräumigen Hintergrunds angeführt werden. Tab. 1 zeigt zunächst für alle Stationen die Jahresmittelwerte.

Tabelle 1:

Mittlere Zusammensetzung des PM₁₀-Staubes, Jahresmittel bezogen auf den gesamten Messzeitraum (in µg m⁻³): PA – Paulinenaue, HH – Hasenholz, 27 – Marienfelde, 42 – Nansenstraße, 77 – Buch, 174 – Frankfurter Alle, BS – Beuselstraße. ^a bezogen auf PM, bzgl. der Inhaltstoffe unterschiedlich; deshalb muss PM nicht die Summe der angegebenen Inhaltstoffe darstellen, ^b OC₁ wurde erst ab Mai 2002 erfasst, ist also nicht repräsentativ für den Gesamtmeßzeitraum

Gebietsmittel	n ^a	PM ^a	OC ₁ ^b	OC ₂	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	lös. Rest ^a	unlös. Rest	
FT	331	15,5	1,2	1,0	0,9	1,7	3,3	1,4	0,7	5,1	
LH	PA	242	20,1	1,4	1,5	1,3	3,0	3,6	1,8	0,7	6,9
	HH	199	20,4	1,2	1,4	1,4	1,9	4,0	1,5	0,7	8,3
SH	27	359	21,9	1,7	1,7	1,8	2,0	4,2	1,8	0,7	8,0
	42	417	24,4	1,7	1,7	2,1	3,0	3,6	1,8	1,0	9,5
	77	366	22,6	1,6	1,4	1,8	3,2	3,6	1,8	0,9	8,1
V	174	355	34,5	2,1	2,2	4,3	3,6	4,2	2,0	1,5	14,3
	BS	115	31,3	2,7	2,6	4,6	2,0	3,7	1,6	1,1	13,0

Wegen unterschiedlicher Datenverfügbarkeit werden wir für die weitere Auswertung die Stationen 174, 27 und PA als repräsentativ für die Gebietscharakteristika V, SH bzw. LH verwenden. Es ist ein üblicher Ansatz, aus der Differenz der Gebietsmittelwerte (angefangen vom Hintergrund) auf den jeweils additiven Staubbeitrag der jeweils höher belasteten Zone zu schließen. Bei einer Analyse und Bewertung von Staubinhaltsstoffen muss man berücksichtigen, dass der Messwert (hier Tagesmittel als unterste Zeitauflösung) sich aus Quellen in unterschiedlicher Distanz (von punkt-lokal bis fern in Hunderten Kilometern Entfernung) zusammensetzt, wobei sich die analysierten Stoffe wegen spezifischer Bildungs-(gas-to-particle-conversion betreffend Ammoniumsulfatnitrat und z. T. OC) und Entfernungsraten (trockene und nasse Deposition, sowie teilweise Sedimentation im Partikelbereich 5-10 µm) in einer komplexen Beziehung zur Quelle befinden. Daneben müssen Artefakte bei den Probenahmen berücksichtigt werden. Aus Tab. 1 ersieht man, dass es einen vertikalen Gradienten (bezogen auf 324 m Höhe) im Hintergrundstaub von etwa 5 µg m⁻³ und einen hori-

zontalen Gradienten (Differenz zwischen ländlichem und städtischem Hintergrund) von lediglich ca. $2 \mu\text{g m}^{-3}$ gibt sowie eine weitere Erhöhung des PM_{10} vom städtischen Hintergrund zur verkehrsreichen Straße um ca. $10 \mu\text{g m}^{-3}$ beobachtet wird. Ammonium, Nitrat und Sulfat (sog. Ammoniumsulfatnitrat) tragen zu 40 Prozent an der PM -Gesamtbelastung im Hintergrund bei und zeigen keine signifikante räumliche Differenzierung im Untersuchungsgebiet, ein Zeichen für deren Herkunft außerhalb des betrachteten Gebiets. Tab. 2 zeigt die mittleren Differenzen zwischen den repräsentativen Gebieten bezogen auf Inhaltsstoffe.

Tabelle 2:

Gebietsdifferenz (gerundet) an PM_{10} -Inhaltsstoffen (in $\mu\text{g m}^{-3}$), ^a ausschließlich SO_4^{2-} , NO_3^- und NH_4^+

Gebietsdifferenz	OC	EC	lösli. Komponenten	unlöslicher Rest
SH-LH (Stadt zu Land)	+ 0,2	+ 0,5	+ 0 ^a	+ 1
V-SH (Straße zu Stadt)	+ 1,0	+ 2,5	+ 1 ^a	+ 5

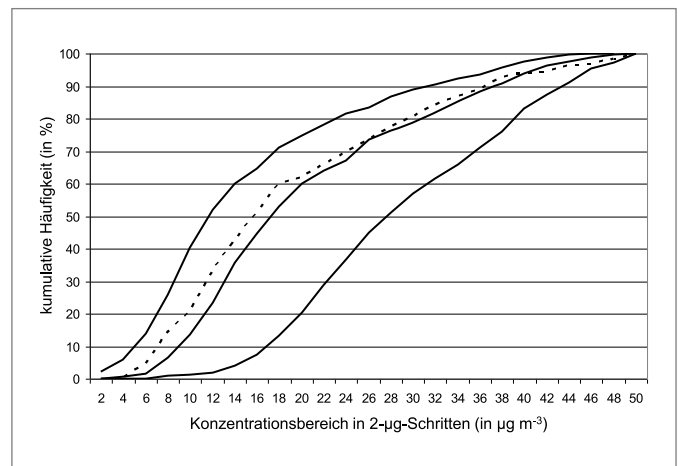
Keine signifikanten Unterschiede werden für Nitrat, Sulfat und Ammonium gefunden, was bereits auf deren großräumige Herkunft hindeutet. Die in Tab. 2 dargestellten PM -Differenzen können zweifellos lokalen Quellen zugeordnet werden. Im Vergleich zum ländlichen Umland ist die mittlere städtische PM -Belastung nur wenig erhöht (10 Prozent). Die Erhöhung betrifft ausschließlich OC, EC und den unlöslichen Rest, also mit größter Wahrscheinlichkeit verkehrsrelevante PM -Quellen. Die signifikante Erhöhung an Straßen ist verkehrsbedingt und deutet auf zwei Quellen hin, erstens die *Resuspension* (Bodenstaubaufwirbelung), welche alle Komponenten betrifft, aber ganz besonders mineralischen unlöslichen Bodenstaub und zweitens direkte Auspuffemissionen, die ausschließlich auf Ruß (EC) beschränkt werden können. Der leichte Anstieg löslicher Komponenten (Salze) ist durch Resuspension trocken abgelagerter und akkumulierter (Boden-)Staubpartikel bedingt; ähnlich dürfte ein Teil der OC- und EC-Erhöhung zu erklären sein. Zweifellos aber wird die Rußdifferenz dominant der lokalen Auspuffemission und ein Teil des OC wahrscheinlich dem Reifenabrieb zuzuordnen sein.

Die kumulative Häufigkeitsverteilung (Abb. 1) zeigt klar die horizontale Verschiebung zwischen den Gebietscharakteristika, die signifikant nur zwischen der Höhen- und Bodenstation sowie zwischen Straßen- und übrigen Stationen zu erkennen ist. Man erkennt auch, dass im unteren Konzentrationsbereich eine Normalverteilung besteht (deutlich zu erkennen in Abb. 2) und bei höheren Konzentrationen eine Schiefverteilung auftritt. Die Konzentrationsdifferenzen zwischen den Stationen nehmen mit höheren Konzentrationen (größer $30 \mu\text{g}$ im städtischen Hintergrund) deutlich ab; für Konzentrationen größer $45 \mu\text{g m}^{-3}$ gehen sie gegen Null – ein Zeichen für großräumige Ursachen der hohen PM -Belastung (sog. Überschreitungen). Abb. 2 zeigt deutlich, dass die PM -Verteilung offenbar einer *Poisson*-Verteilung entspricht, d. h. relativ seltene Ereignisse (hohe PM -Konzentrationen) finden statt in einer großen Anzahl von Ereignissen mit einer Standardnormalverteilung (*Gauß*-Kurve). Aus den „Normalverteilungsanteilen“ lassen sich „Mittelwerte“ für die normale Grundbelastung und die Zusatzbelastung ableiten (in $\mu\text{g m}^{-3}$), Tab. 3.

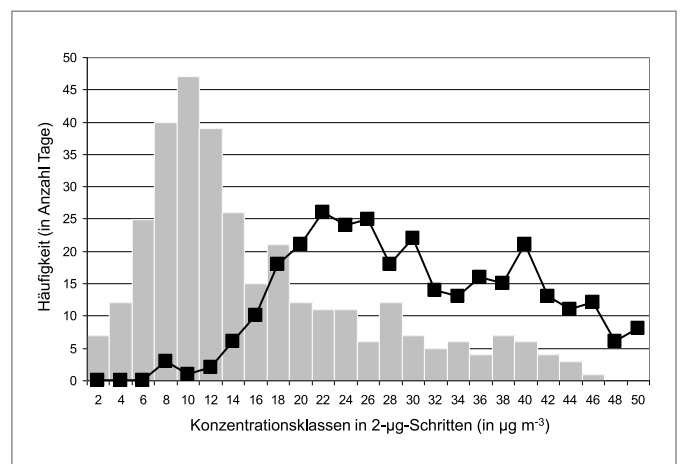
Tabelle 3:

Statistik der PM Häufigkeitsverteilung (in $\mu\text{g m}^{-3}$)

Gebiet	Mittel der Normalverteilung („Grundbelastung“)	Mittel der Zusatzbelastung (Verschmutzungsepisode“)
Frohnauer Turm	10 ± 4	6 ± 7
Land	12 ± 6	8 ± 7
Stadt	14 ± 5	8 ± 7
Straße	24 ± 7	10 ± 10

**Abbildung 1:**

Kumulative Häufigkeitsverteilung von PM_{10} an den Stationen (von links nach rechts) Frohnauer Turm, Paulinenau (gestrichelt), Marienfelde und Frankfurter Allee

**Abbildung 2:**

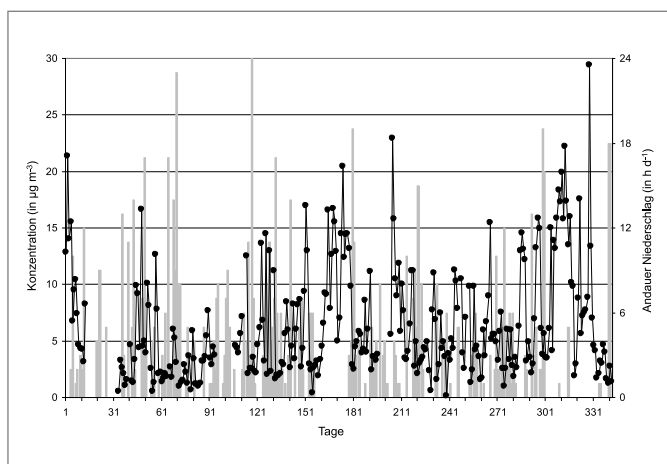
Häufigkeitsverteilung von PM_{10} an den Stationen Frohnauer Turm (Balken) und Frankfurter Allee (Linie/Quadrate)

Die Zusatzbelastung (PM -„Verschmutzungsepisoden“) zeigt wiederum eine geringe (statistisch nicht signifikante) räumliche Variabilität als ein Zeichen der großräumigen Ursache für die Zusatzbelastung. Die Schwankungen zwischen Minimum und Maximum sind beträchtlich und liegen zwischen dem Faktor 3 und 15; in Tab. 4 sind die repräsentativen Werte für den Frohnauer Turm dargestellt.

Tabelle 4:PM₁₀ am Frohnauer Turm (in µg m⁻³), ^a OC₁ bzw. OC₂

Komponente	min	max	Mittel	n
PM	1,3	64,3	15,5	331
OC	1,3	8,3	2,2	139/300 ^a
EC	0,07	4,9	0,9	299
Na+Cl	0,004	8,1	0,5	319
NO ₃ ⁻	0,01	27,0	1,7	319
SO ₄ ²⁻	0,15	16,3	3,3	319
NH ₄ ⁺	0,05	8,7	1,4	319
K+Mg+Ca	0,01	4,5	0,2	317
unlös. Rest	0,1	29,4	5,1	294

PM (und die Inhaltsstoffe) zeigen im Jahresgang große zeitliche Variationen (Abb. 3). Einen periodischen Jahresgang kann man nur für OC₂ (OC₁ wurde in den Winterperiode nicht erfasst), Nitrat, Ammonium und Meeressalz (NaCl) feststellen (Tab. 5). Andere Differenzen sind nicht signifikant. Für OC₂ scheint auch nur im Hintergrund ein Winter-Sommer-Unterschied zu bestehen, der mit großer Wahrscheinlichkeit durch sommerliche biogene Emissionen verursacht ist. Mögliche Ursachen können saisonale Abhängigkeiten von Quellstärken der Vorläuferkomponenten und auch der luftchemischen Prozesse sein. Dazu kommen saisonale Abhängigkeiten der Luftmassenstatistik, die zu unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen und -Konzentrationen führen können. Bemerkenswert ist, dass kein Sommer-Winter-Unterschied im EC gefunden wird, ein Zeichen, dass Hausbrand offenbar vernachlässigbar im Beitrag zum Ruß ist und der Verkehr als „konstante“ Quelle die großräumige Rußbelastung bestimmt. Bemerkenswert ist auch, dass es keinen signifikanten Jahresgang im Bodenstaub („unlöslicher Rest“) gibt.

**Abbildung 3:**

Jahresverlauf von Regen und unlöslichem Rest am Frohnauer Turm; graue Balken: tägliche Niederschlagsandauer, schwarze Linie mit Punkten: unlöslicher Rest („Bodenstaub“)

Tabelle 5:

Mittlere Zusammensetzung des PM₁₀-Staubs, Winter- (Wi) und Sommermittel (So) bezogen auf den gesamten Messzeitraum für den Frohnauer Turm (FT), städtischen Hintergrund (SH) und eine verkehrsreiche Straße (V), in µg m⁻³; Zeitraum 18.10.02-15.9.02; Winter: 18.10.01-30.04.04 und Sommer: 01.05.02-15.09.02

Gebietsmittel	n	PM	OC ₂	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Na+Cl	lös. Rest	unlös. Rest
FT-Wi	192	14,4	0,8	0,9	2,6	2,8	1,4	0,7	0,2	5,8
FT-So	130	17,8	1,4	1,1	0,6	4,1	1,4	0,3	0,3	7,4
V-Wi	218	36,6	2,1	4,4	5,0	4,0	2,3	1,2	0,8	16,9
V-So	138	31,2	2,3	4,0	1,3	4,5	1,6	0,3	0,6	14,6
SH-Wi	88	21,5	1,3	1,9	3,7	4,0	2,2	0,5	0,2	8,8
SH-So	124	22,5	1,9	1,7	0,7	4,4	1,5	0,3	0,3	11,1

Aus den im Verlaufe des Jahres (vgl. Abb. 3) ersichtlichen „Überschreitungen“ eines Basiswertes an PM (und Inhaltsstoffen) können sog. „Verschmutzungsperioden“ (Tab. 6) erhöhter PM-Belastung definiert werden (vgl. Tab. 3). Es ist nicht trivial, eine PM-Konzentration zu definieren, die als „erhöht“ im Vergleich zu einem „normalen“ Mittel („Grundbelastung“) gelten soll. Wie diskutiert, wollen wir darunter die mehr als 1σ positive Abweichung für die jeweilige „Normalverteilung“ der Stationen bzw. Gebietsmittel verstehen. In der „Normalverteilung“ sind neben lokalen PM-Beiträgen auch PM-Quellen aus der näheren und fernerer Umgebung enthalten; die PM-Verteilung der Grundbelastung wird aber eher durch gleichverteilte meteorologische Parameter bestimmt. Die Daten der Tab. 6 zeigen deutlich, dass eine „Verschmutzungsperiode“ sich auf alle Stationen (Gebiete) Berlin-Brandenburgs gleich auswirkt (wobei die lokalen Unterschiede erhalten bleiben), die Ursachen der erhöhten PM-Belastung also im Transport von außerhalb der Region zu sehen sind. An Straßen (V) wird wieder die verkehrsbedingte lokale zusätzliche Erhöhung durch OC, EC (beide Komponenten machen 2-3 µg m⁻³ bzw. 5 Prozent an der PM₁₀-Belastung aus) und Resuspension (7-8 µg m⁻³ bzw. 15 Prozent der PM₁₀-Belastung) registriert. Mit anderen Worten, lokale Stationsunterschiede (Stadt-Land) werden während Perioden erhöhter PM-Belastung weitgehend ausgeglichen (weil sie lokal nicht signifikant sind), nur die verkehrsbedingten PM-Beiträge an Straßen führen wegen des additiven Effektes während „Verschmutzungsperioden“ sogar zur Überschreitung des Grenzwertes (50 µg m⁻³).

Die „Verschmutzungsperioden“ zeigen (außer wieder für OC₂, NO₃⁻ und NH₄⁺) keine Abhängigkeit von der Jahreszeit wie die Mittelwerte für den Frohnauer Turm (in µg m⁻³) zeigen:

	PM	OC ₂	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Rest
Winter	35,1	1,5	2,2	6,7	7,2	4,1	12,8
Sommer	31,6	2,4	2,1	0,8	6,9	2,4	13,7

Tabelle 6:

Mittlere Zusammensetzung des PM_{10} -Staubes, sowie der Differenz zwischen Gebieten und Episoden, unterteilt in „Nichtverschmutzungsperiode“ (N) und „Verschmutzungsperiode“ (V), bezogen auf den Zeitraum 18.10.01-11.09.02 (in $\mu\text{g m}^{-3}$). Angaben für Nitrat wurden weggelassen wegen des hohen Sommer-Winter-Unterschiedes, eines teilweisen Datenausfalls und der damit nicht repräsentativen Mittelwert- und Differenzenbildung. ^a Na, Cl, K, Mg, Ca; ^b Differenz vernachlässigbar oder sogar negativ

Gebietsmittel	n	PM	OC ₂	EC	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	lös. Rest ^a	unlös. Rest
FT-N	265	11,9	0,7	0,6	2,4	0,9	0,8	4,3
FT-V	64	33,6	2,0	2,1	7,0	3,1	0,6	13,2
LH-N	183	15,7	1,5	1,0	3,2	1,3	0,8	4,8
LH-V	61	33,9	2,4	2,5	7,0	3,1	0,7	13,0
SH-N	267	18,9	1,4	1,5	3,1	1,5	1,0	6,8
SH-V	65	40,7	2,5	3,1	7,5	2,8	0,7	16,6
V-N	261	29,4	1,9	4,0	3,5	1,6	1,6	12,7
V-V	64	52,4	3,0	6,3	7,6	3,6	0,6	22,1
Δ LH-FT (N)		3,8	0,8	0,4	0,8	0,4	0	0,5
Δ SH-LH (N)		3,2	0 ^b	0,5	0	0,2	0,2	2,0
Δ V-SH (N)		10,5	0,5	2,5	0,4	0,1	0,6	5,9
Δ LH-FT (V)		0,3	0,4	0,4	0	0	0,1	0
Δ SH-LH (V)		4,9	0,1	0,7	0,2	0,2	0,1	3,6
Δ V-SH (V)		11,7	0,5	3,2	0,1	0,8	0	5,5

Im Messzeitraum (18.10.01-15.09.02) traten am Frohnauer Turm Verschmutzungsepisoden mit einer Andauer von 1 Tag (9 Ereignisse), 2-4 Tagen (9 Ereignisse) und 7-13 Tagen (3 Episoden) auf. Weder die Anzahl der Ereignisse noch die Anzahl der Tage zeigt Winter-Sommer-Unterschiede (Episoden: 11 bzw. 10 und Tage: 30 bzw. 34 für Winter bzw. Sommer).

Für eine Bewertung des großräumigen Einflusses auf die Berliner PM-Belastung führen wir einen Vergleich mit PM_{10} -Messungen vom gleichen Zeitraum an der Station Melpitz, die ca. 25 km östlich von Leipzig im ländlichen Raum liegt (SPINDLER et al., 2004) durch. Von den bereits charakterisierten Verschmutzungsepisoden am Frohnauer Turm (Ereignisse > 25 $\mu\text{g m}^{-3}$) stimmen 80 Prozent mit gleichen Tagen in Melpitz (> 30 $\mu\text{g m}^{-3}$) überein. Umgekehrt stimmen nur 43 Prozent der Tage am Frohnauer Turm (> 25 $\mu\text{g m}^{-3}$) mit entsprechenden Überschreitungen in Melpitz überein, ein Zeichen für lokale Besonderheiten in Melpitz, die sich durch den Bodenstaub aus dem umgebenden landwirtschaftlich genutzten Gebiet erklären lassen. So wurden 2002 in Melpitz drei längere Staubepisoden registriert (10.-18. Januar, 04.-20. Juni und 11.-13. Juli), die lokale Ursachen haben (hohe PM-Werte aber keine erhöhten Sulfatwerte). Die Korrelation zwischen Melpitz und Frohnauer Turm zeigt für PM, Nitrat und Sulfat während der oben definierten Verschmutzungsepisoden akzeptable r^2 -Werte (0,40 bis 0,46). Umgekehrt jedoch werden aber in Melpitz auch an 20 Prozent der Tage mit Überschreitungen am Frohnauer Turm (> 25 $\mu\text{g m}^{-3}$) keine PM-Erhöhungen festgestellt, ein Zeichen für die räumliche Begrenztheit der Luftmassen, die mit ho-

hen PM-Belastungen versehen sind. Dieser großräumige Zusammenhang unterstützt die These, dass Episoden erhöhter PM- und Sulfatwerte (die in Berlin grundsätzlich mit erhöhten Sulfatkonzentrationen verbunden sind) durch Ferntransporte verursacht werden.

5 Schlussfolgerungen

Eine detaillierte Interpretation von atmosphärischem Aerosol (Feinstaub) ist nur bei Kenntnis der chemischen Zusammensetzung möglich und wegen der hohen zeitlichen Variabilität ist eine längere Messreihe (wenigstens ein Jahr) erforderlich. Es zeigte sich, dass lokale (außer in direkter Quellnähe wie verkehrsreichen Straßen) Unterschiede (auch Stadt – Land) gering sind und mit nicht mehr als 10 Prozent innerhalb der analytischen Genauigkeit liegen. Der Autoverkehr trägt an Hauptstraßen im Mittel zu 1/3 bei (in $\mu\text{g m}^{-3}$: 2-3 Ruß, 0,5 OC und 7-8 Resuspension als Bodenstaubaufwirbelung, wobei davon 90 Prozent wasserunlösliche Bestandteile sind); dieser absolute verkehrsbedingte Beitrag zeigt keine jahreszeitlichen Variationen, jedoch einen nachweisbaren Wochengang mit geringeren EC- und Fe-Konzentrationen (nicht Resuspension) am Wochenende, was auf die Korrelation zum Verkehrsaufkommen hindeutet.

Niederschläge (Regen) führen nicht zu einer nachweisbaren Verringerung der PM_{10} -Konzentration, jedoch führen Trockenperioden zu einer Erhöhung, insbesondere an unlöslichem Rest (Bodenstaub).

Die relative chemische Zusammensetzung ist bis auf wenige Ausnahmen kaum variabel, ein Zeichen für die raum-zeitlich weitgehend homogene Quellenverteilung. Grob kann eine 1/3-Aufteilung in unlösliche anorganische Bestandteile (Bodenstaub), wasserlösliche anorganisch-ionische Bestandteile sowie organischen und elementaren Kohlenstoff (OC+EC) gemacht werden. Von definierten Einzelstoffen dominiert Ammoniumsulfat $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ mit 25-30 Prozent.

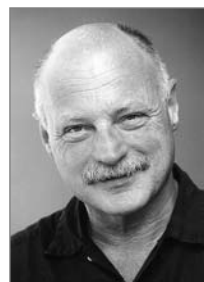
Meeressalzkomponenten (Na, Mg und Cl) dominieren deutlich in Proben mit insgesamt sehr geringer PM_{10} -Konzentration und sind eindeutig nordwestlichen Luftmassen zuzuordnen. In diesen Luftmassen ist EC relativ geringer enthalten als in kontinentalen Luftmassen aus südöstlichen Richtungen. Letztere Luftmassen stellen ausnahmslos alle Episoden erhöhter PM_{10} -Belastung dar. An Tagen mit höchster PM_{10} -Konzentration ist der relative Gehalt an Nitrat auch höher. PM_{10} lässt sich in eine Grundbelastung (als Normalverteilung) und eine Zusatzbelastung (als positive Schiefverteilung) aufteilen, wobei letztere einen zeitlichen Anteil von etwa 20 Prozent hat. Die Grundbelastung im ländlichen und städtischen Hintergrund beträgt $17 \pm 6 \mu\text{g m}^{-3}$. In den Episoden erhöhter PM-Belastung (60-70 Tage im Messzeitraum über ein Jahr) kommen im Mittel weitere $21 \pm 3 \mu\text{g m}^{-3}$ hinzu. Damit liegt das PM_{10} -Mittel während „Staubepisoden“ bei $38 \pm 5 \mu\text{g m}^{-3}$ wobei nur an verkehrsreichen Straßen wegen der lokalen Zusatzbelastung

(10-12 $\mu\text{g m}^{-3}$) der Grenzwert (50 $\mu\text{g m}^{-3}$) erreicht wird. Grenzwertüberschreitungen sind daher zufallsbedingt im oberen Drittel der Häufigkeitsverteilung von „Staubepisoden“ anzutreffen. Wegen dieser um den 50- μg -Wert schwankenden Verteilung von „Staubepisoden“ kann eine mögliche Senkung der lokalen Belastung um 2 $\mu\text{g m}^{-3}$ tatsächlich zu einer statistisch signifikanten Abnahme der Anzahl der Tage mit Überschreitungen des Grenzwertes führen. Daraus aber einen Beitrag zum Schutz der menschlichen Gesundheit abzuleiten ist wissenschaftlich unseriös. Die PM-Belastung muss im Einzelnen hinsichtlich der wirksamen Inhaltsstoffe jedoch detailliert untersucht werden.

Erhöhte PM_{10} -Belastungen („Staubepisoden“) sind grundsätzlich mit Transporten kontinentaler Luftmassen aus südöstlichen Richtungen verbunden und stellen ein Ergebnis der Akkumulation partikelförmiger Stoffe als Folge eines längeren homogenen Transportes mit entsprechendem luftchemischen Partikelbildungspotenzial dar. Mit anderen Worten, sie sind in keiner Weise durch Maßnahmen der Luftreinhaltung beeinflussbar.

Literatur

- COHEN, J. B.; 1895:** The air of towns. In: Annual Report of the Smithsonian Institution, Washington D.C. Gov. Printing Office, 349-387.
- DEMERJIAN, K. L. UND MOHNEN, V. M.; 2003:** Synopsis of the temporal variation of particulate matter composition and size. J. Air & Waste Manage. Assoc. 58, 216-233.
- FRIESE, W.; 1909:** Beiträge zur Kenntnis des Staubs in der Stadtluft. Dissertation. Kgl. Sächs. TH Dresden, 53 pp.
- GARSHICK, E.; LADEN, F.; HART, J. E.; ROSNER, B.; DAVIS, M. E.; EISEN, E. A. UND SMITH, T. J.; 2008:** Lung cancer and vehicle exhaust in trucking industry workers. Environ. Health Perspect. 116, 1327-1332.
- GELENCŠÉR, A.; 2004:** Carbonaceous aerosol. Springer, Berlin, 350 pp.
- GREIM, H.; HILLESHEIM, W.; ESCH, H.; HÖKE, H. UND ZWIRNER BAIER, I.; 2003:** Vergleich der Wirkungseigenschaften und der Wirkungsstärke von Dieselmotorabgasen der 1960er Jahre und heute. Forschungsbericht im Auftrag des Bayerischen Staatsministeriums für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz, TU München, Inst. für Toxikologie und Umwelthygiene, 229 pp.
- HESTERBERG, T. W.; BUNN, W. B.; CHASE, G. R.; VALBER, P. A.; SLAVIN, T. J.; LAPIN, C. A. UND HART, G. A.; 2006:** A critical assessment of studies on the carcinogenic potential of diesel exhaust. Crit. Rev. Toxicol. 36, 727-767.
- JOHN, A. UND KUHNBUSCH, T.; 2004:** Ursachenanalyse von Feinstaub(PM_{10})-Immisionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht. IUTA-Bericht Nr. LP 09/2004, 102 pp.
- KIM, S.; 2005:** Immissions-, Depositions- und Dieselmotorenemissionsmessungen von PAK, Nitro-PAK und 3-Nitrobenzanthron. Dissertation, TU Berlin, Fakultät III (Prozesswissenschaften).
- MARGGRAF, A. S.; 1786:** 4. Abhandlung: Marggraf chemische Untersuchung des gemeinen Wassers“. In: Physikalische und medicinische Abhandlungen der Königlichen Academie der Wissenschaften zu Berlin. Vierter Band, Ettinger, Gotha, 69-95.
- MÖLLER, D.; 2003:** Luft. DeGruyter, Berlin, 750 pp.
- POPE, C. A.; THUN, M. J.; NAMBOODIRI, M. M. ET AL.; 1995:** Particulate air pollution as predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults. Am. J. Respir. Crit. Care Med. 151, 669-674.
- POPE, C. A.; BURNETT, R. T.; THUN, M. J. ET AL.; 2002:** Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. JAMA 287, 1132-1142.
- POPE, C. A.; EZZATI M. UND DOCKERY, D. W.; 2009:** Fine-particulate air pollution and life expectancy in the United States. N. Eng. J. Med. 360, 376-385.
- RIS, C.; 2007:** U.S. EPA health assessment for diesel engine exhaust: a review. Inhal. Toxicol. 19, Suppl. 1, 229-239.
- SOLL-JOHANNING, H.; BACH, E.; OLSEN, J. H. UND TÜCHSEN, E.; 1998:** Cancer incidence in urban bus drivers and tramway employees: a retrospective cohort study. Occup. Environ. Med. 55, 594-598.
- SPINDLER, G.; MÜLLER, K.; BRÜGGEMANN, E.; GNAUCK, T. UND HERRMANN, H.; 2004:** Long-term size-segregated characterization of PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$ and PM_1 at the IFT research station Melpitz downwind of Leipzig (Germany). Atmos. Environ. 38, 5333-5347.
- VALBERG, P. A. UND CROUCH, E. A. C.; 1999:** Meta-analysis of rat lung tumors from lifetime inhalation of diesel exhaust. . 107, 693-699.
- WICHMANN, E.; 2003:** Abschätzung positiver gesundheitlicher Auswirkungen durch den Einsatz von Partikelfiltern bei Dieselfahrzeugen in Deutschland. Gutachten im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin, Inst. für Epidemiologie, Neuherberg, 45 pp.



Univ.-Prof. Dr. habil. Detlev Möller, 1947 in Berlin geboren, Chemiestudium an der Humboldt-Universität zu Berlin 1965-1970 mit Promotion 1972 in Physikalischer Chemie, anschließend Assistent in der Analytischen Chemie; 1974-1992 an verschiedenen Instituten der AdW der DDR in der Umweltforschung, speziell Atmosphärenchemie; Habilitation (Dr. sc. nat.) 1982, Umhabilitation und Privatdozent 1992 an der FUB, Vorlesungen zur Atmosphärenchemie seit 1988 an der HUB and seit 1990 an der FUB, 1992-1994 Leiter einer Fraunhofer-Einrichtung in Berlin, 1994 Professur an der BTU, längere Gastaufenthalte in Ungarn, der Sowjetunion, China, Frankreich und Japan; Mitglied zweier wiss. Akademien.