

TEXTE

126/2022

Ultrafeine Partikel

Verursacher, Messung und Wirkungsbewertung

von:

Bryan Hellack, Wolfram Birmili, Michael Elsasser, Holger Gerwig, Kristina Juhrich, Marcel Langner, Christian Liesegang, Stephan Nordmann, Julian Rüdiger, Wolfgang Straff, Myriam Tobollik, Christiane Vitzthum v. Eckstädt, Marion Wichmann-Fiebig

Umweltbundesamt, Berlin, Dessau, Langen

Herausgeber:

Umweltbundesamt

TEXTE 126/2022

Ultrafeine Partikel

Verursacher, Messung und Wirkungsbewertung

von

Bryan Hellack, Wolfram Birmili, Michael Elsasser, Holger Gerwig, Kristina Juhrich, Marcel Langner, Christian Liesegang, Stephan Nordmann, Julian Rüdiger, Wolfgang Straß, Myriam Tobollik, Christiane Vitzthum v. Eckstädt, Marion Wichmann-Fiebig

Umweltbundesamt, Berlin, Dessau, Langen

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber

Umweltbundesamt
Wörlitzer Platz 1
06844 Dessau-Roßlau
Tel: +49 340-2103-0
Fax: +49 340-2103-2285
buergerservice@uba.de
Internet: www.umweltbundesamt.de

[f/umweltbundesamt.de](https://www.facebook.com/umweltbundesamt.de)
[t/umweltbundesamt](https://twitter.com/umweltbundesamt)

Abschlussdatum:

Oktober 2022

Redaktion:

Fachgebiet II 4.5 Luftmessnetz
Bryan Hellack

Publikationen als pdf:

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen>

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, November 2022

Kurzbeschreibung: Ultrafeine Partikel – Verursacher, Messung und Wirkungsbewertung

Dieser Text stellt den Stand und die Lücken des Wissens zu Ultrafeinen Partikeln aus regulatorischer Sicht dar. Obwohl bereits erste Schritte der Vereinheitlichung gemacht sind zeigt sich ein deutlicher Normungs-, Regelungs- und Untersuchungsbedarf.

Abstract: Ultrafine particles - polluters, measurement and impact assessment

This text presents the state and gaps of knowledge on ultrafine particles from a regulatory perspective. Although the first steps towards standardisation have already been taken, there is a clear need for further standardisation, regulation and investigation.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	7
Zusammenfassung.....	8
Summary	10
1 Einführung	12
2 Messtechnische Erfassung von Ultrafeinen Partikeln.....	13
2.1 Emissionsmessung	13
2.2 Immissionsmessung	14
3 Ultrafeine Partikel in der Außenluft	16
3.1 Quellenzuordnung	16
3.1.1 Rezeptormodellierung	16
3.1.2 Ausbreitungsrechnung.....	16
4 Ultrafeine Partikel im Innenraum.....	18
5 Verursacher und Minderungsmaßnahmen.....	19
5.1 UFP-Emissionen des Verkehrs.....	19
5.1.1 Straßenverkehr	19
5.1.2 Luftverkehr.....	20
5.1.3 Schiffsverkehr	21
5.1.4 Schienenverkehr	21
5.1.5 Mobile Maschinen	22
5.2 UFP-Emissionen aus Feuerungsanlagen	22
5.2.1 Großfeuerungsanlagen	22
5.2.2 Kleinfeuerungsanlagen	23
6 Wirkungsmechanismen und gesundheitliche Bewertung von Ultrafeinen Partikeln (UFP)	24
7 Fazit	26
8 Quellverzeichnis	28

Abkürzungsverzeichnis

BAM	Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung
CPC	Condensation Particle Counter; Kondensationspartikelzähler
CTM	Chemie-Transportmodell
eLNG	e-liquified Natural Gas; strombasiertes natürliches Flüssiggas
GAW	Global Atmosphere Watch
GerES V	Umweltstudie zur Gesundheit
GPF	Gasoline Particulate Filter; Gasphasen Partikelfilter
GUAN	German Ultrafine Network; Deutsches Ultrafeinstaub Netzwerk
GRBP	Working Party on Noise and Tyres/ Groupe Rapporteur Bruit et Pneumatiques
GRPE	Working Party on Pollution and Energy
ICAO-CAEP	International Civil Aviation Organization; Internationale Zivilluftfahrtorganisation
LDSA	Lung Deposited Surface Area; Lungendeponierbare Oberfläche
IWG PMP	Informal Working Group on the Particle Measurement Programme
MPSS	Mobility Particle Size Spectrometers; Mobilitäts-Partikelspektrometer
PM	Particulate Matter; Partikelmasse
PM 2,5	Particulate Matter mit einem aerodynamischen Durchmesser < 2,5 µm
PM 10	Particulate Matter mit einem aerodynamischen Durchmesser < 10 µm
PMF	Positive Matrix Faktorisierung
PN	Particle Number; Partikelanzahl
PNC	Particle Number Concentration; Partikelanzahlkonzentration
PNSD	Particle Number Distribution; Partikelanzahlgrößenverteilung
PTB	Physikalisch Technische Bundesanstalt
REM-EDX	Energy-dispersive X-ray spectroscopy; Energiedispersive Röntgenspektroskopie
UBA	Umweltbundesamt, Dessau
UFP	Ultrafeine Partikel
UNECE	United Nations Economic Commission for Europe
WCC-AP	World Calibration for Aerosol Physics)
WHO	World Health Organization; Weltgesundheitsorganisation
WMO	World Meteorological Organization; Weltorganisation für Meteorologie

Zusammenfassung

Ultrafeine Partikel (UFP) sind als luftgetragene Partikel mit einem Durchmesser kleiner als 100 nm (0,1 µm) definiert. Sie entstehen bei nahezu allen natürlichen und technischen Verbrennungsprozessen, werden hierbei entweder direkt als Partikel emittiert oder bilden sich durch Nukleation und Kondensation in den Abgasen der Prozesse. Des Weiteren bilden sich UFP in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen (biogen und anthropogen) insbesondere infolge photochemischer Prozesse. Besonders hohe Anzahlkonzentrationen von UFP treten an verkehrsbelasteten Standorten sowie in der Umgebung von Flughäfen auf, sind aber des Weiteren auch verursacht durch kleine, mittelgroße und große Feuerungsanlagen in der Industrie, in der Energiewirtschaft, sowie in Haushalten, Gewerbe und Landwirtschaft. Somit ergibt sich, charakteristisch für UFPs eine besonders hohe räumlich-zeitliche Variation, so dass unterschiedliche, kleinräumige Expositionsniveaus bestehen die charakterisiert und definiert werden müssen. Ultrafeine Partikel werden derzeit zumeist über die Gesamtpartikelanzahl und die Partikelanzahl-/Größenverteilung erfasst und beschrieben. Optische und gravimetrische Methoden, wie bei der Bestimmung des Feinstaubs sonst üblich, kommen bei UFP aufgrund der geringen Masse und Größe an ihre physikalisch-messtechnischen Grenzen. Um die Vergleichbarkeit und die Standardisierung der Daten zu verbessern, sollten dabei die obere und untere Partikeldurchmesser-Grenze der Emissions- und Immissionsmessung von UFP vereinheitlicht werden sowie die Rückführbarkeit auf Standards gewährleistet sein. Neben den standardisierten Messmethoden von UFP besteht zunehmend Interesse an miniaturisierten, kostengünstigen Messinstrumenten. Diese bieten eine vielversprechende Entwicklung mit Blick auf ein räumlich-zeitlich höher aufgelöstes Monitoring jedoch auch mit geringerer Genauigkeit. Eine Standardisierung, Qualitätssicherung und Normung dieser Methoden sind daher anzustreben.

Unabhängig von noch offenen Fragen und bestehendem Regelungsbedarf werden Ultrafeine Partikel bereits initiativ im deutschlandweiten Messnetz German Ultrafine Aerosol Network zur Bestimmung der UFP die Anzahl-Größenverteilungen von Partikeln im Bereich von 10-800 nm erfasst. Zusätzlich führen mehrere Ländermessnetze in Deutschland über die derzeit gesetzlich vorgegebenen Luftqualitätsmessungen hinausgehende UFP-Messungen an unterschiedlichen Standorten in Deutschland durch. Um aber eine bessere Einschätzung der Belastung durch UFP in den stärker besiedelten Regionen und deren gesundheitlichen Folgen zu erlangen, ist es notwendig weitere Stationen im städtischen Hintergrund und in Metropolregionen (> 1 Millionen Einwohner) sowie quellennahe Messungen zur Quantifizierung einzelner Verursacher zu etablieren. Denn die wesentlichen Emittenten sind grundsätzlich identifiziert, jedoch nur in Teilen quantifiziert. Zur Verbesserung der Zuordnung von Verursachern bedarf es der Weiterentwicklung der Ausbreitungsmodelle u.a. hinsichtlich der Beschreibung der Partikelbildung und der Einbindung nicht volatiler und volatiler Bestandteile sowie der Erstellung von Emissionsinventaren von UFP und ihren Vorläuferstoffen.

Wirkungsstudien weisen darauf hin, dass UFP in der Außenluft ein gesundheitliches Risiko darstellen. Dieses Risiko lässt sich aber bisher nicht eindeutig quantifizieren. Es ist jedoch, soweit bekannt, nicht mit der Belastung mit Feinstäuben allgemein (englisch, Particulate Matter, PM₁₀ oder PM_{2,5}) gleichzusetzen. UFP dringen tiefer als die größeren Partikel in die Lunge, das Gehirn (über den Riechnerv) und vermutlich sogar direkt über den inhalativen Aufnahmepfad bis in das Blutkreislaufsystem ein. Daraus resultiert eine mögliche Verteilung und Ablagerung von UFP in verschiedenen Organen. Zusammenfassend besteht ein Bedarf an epidemiologischen

Studien zu den unterschiedlichen Kurz- und insbesondere auch Langzeiteffekten von UFP, in denen vor allem eine dezidierte Adjustierung gegenüber Störvariablen möglich ist, die hohe räumlich-zeitliche Variabilität von UFP betrachtet wird und eine hohe Vergleichbarkeit der Messungen und Untersuchungen gegeben ist.

Auch die Weltgesundheitsorganisation sieht in ihrem neusten globalen Luftgüteleitlinien von 2021 UFP als Bestandteile von besonderem Interesse an, wenngleich die Datenlage noch keine Empfehlung von Grenzwerten erlaubt. Die Weltgesundheitsorganisation rät dazu, standardisierte Messverfahren weiter zu entwickeln und dauerhaft einzusetzen, die einen aussagekräftigen Vergleich zwischen den Ergebnissen verschiedener Studien ermöglicht.

Die EU Kommission ist dieser Empfehlung nachgekommen indem sie in ihrem am 26.10.2022 veröffentlichten Vorschlag zur Novellierung der Luftqualitätsrichtline 2008/50/EG eine Messverpflichtung für UFP im Rahmen von Supersites vorsieht.

Hierdurch wird es möglich sein die Exposition gegenüber UFP besser zu charakterisieren und in epidemiologischen Studien die Wirkung von UFP zu verifizieren.

Summary

Ultrafine particles (UFP) are defined as airborne particles having diameters of less than 100 nm (0,1 µm). They are formed in almost any kind of natural and technical combustion processes, and are emitted either as particles directly, or are formed through nucleation and condensation in the plume of these processes. Furthermore, UFP are formed in the atmosphere from gaseous precursors (biogenic and anthropogenic) as a result of photochemical processes. Particularly high concentrations of UFP occur at traffic-polluted sites and in the vicinity of airports, but are also caused by power plants, domestic furnaces and small and medium-sized combustion plants. Thus, characteristic for UFPs is a high spatial-temporal variation and consequently different, selectively exposure levels that have to be characterised and defined.

Ultrafine particles are currently mostly measured and described by the total number of particles and the number/size distribution. Optical and gravimetric methods, as usually applied for the determination of fine dust, are not applicable due to their optical-physical measurement limitations. In order to improve the comparability and standardisation of data, upper and lower limits of emission and immission measurements of UFP should be harmonised. In particular a traceability to standards is needed. In addition to standardised detection methods for UFP interest on miniaturised, low-cost measurement instruments is coming up. These low-cost instruments offer a promising development with regard to spatiotemporally higher-resolution monitoring, but also with lower accuracy. Standardisation, standardisation processes and quality assurance of these methods must therefore be promoted.

Regardless of still open questions and the existing need for regulation, ultrafine particles are already being recorded in the German Ultrafine Aerosol Network to determine the number-size distribution of particles in the range of 10-800 nm. However, in order to obtain an improved assessment of the exposure to UFP in the higher densely populated regions and its health consequences, it is necessary to establish further stations in the urban background and in metropolitan regions (>1 million inhabitants) as well as source-related measurements to quantify specific sources. This is because the main emitters have been already identified in principle but only partially quantified, and others such as shipping and small-scale combustion have so far only been insufficiently characterised and assessed. To improve the attribution of polluters, further development of dispersion models is needed, e.g. with regard to the description of particle formation and the incorporation of non-volatile and volatile components, as well as the compilation of emission inventories of UFP and their precursors.

Impact studies indicate that UFP in outdoor air are a health risk. However, this risk cannot be identified as evident. As far as is known, it cannot be equated with exposure to fine dusts in general (Particulate Matter, PM₁₀ or PM_{2,5}). UFP penetrate deeper than the larger particles into the lungs, the brain (via the olfactory nerve) and presumably even directly into the blood circulation system via the inhalation uptake pathway. This results in a possible distribution and deposition of UFP in various organs. In summary, there is a need for epidemiological studies on the different short- and especially long-term effects of UFP, in which above all a decided confounder adjustment is possible, the high spatio-temporal variability of UFP is considered and a high comparability of measurements and studies is given.

In its latest global air quality guidelines 2021, the World Health Organization also considers UFP to be a parameter of particular interest, even if the data situation does not yet permit a

recommendation on limit values. The World Health Organization advises the further development and permanent use of standardised measurement methods that enable a meaningful comparison to be made between the results of different studies. The EU Commission has followed this recommendation by introducing a measurement obligation for UFP in the context of supersites in its proposal for the revision of the Air Quality Directive 2008/50/EC published on 26 October 2022.

This will make it possible to better characterise exposure to UFP and to verify the effect of UFP in epidemiological studies.

1 Einführung

Ultrafeine Partikel sind als luftgetragene Partikel mit einem Durchmesser kleiner als 100 nm (0,1 µm) definiert. Sie entstehen bei nahezu allen natürlichen und technischen Verbrennungsprozessen, werden hierbei entweder direkt als Partikel emittiert oder bilden sich durch Nukleation und Kondensation in den Abgasen der Prozesse. Ein weiterer wichtiger Entstehungsprozess ist die Nukleation aus gasförmigen Vorläufersubstanzen (biogen und anthropogen) in der Atmosphäre, welche infolge intensiver Sonneneinstrahlung durch photochemische Prozesse angetrieben wird. Besonders hohe Anzahlkonzentrationen an UFP treten somit in der Nähe entsprechender Quellen auf. Dies sind verkehrsbelastete Standorte, die Umgebung von Flughäfen und Kraftwerken, aber auch Gebiete mit Hausfeuerungen sowie kleinen und mittelgroßen Feuerungsanlagen. Auch in Innenräumen entstehen hohe UFP-Konzentration z.B. durch Feuer- und Wärmequellen.

Die gesundheitliche Belastung durch das Einatmen von Feinstäuben stellt ein bereits seit Jahrzehnten bekanntes Umweltrisiko dar. Schon in den 80er- und 90er-Jahren ist es durch Abgasreinigungstechniken gelungen vor allem die größeren Partikel mit einem Durchmesser von mehr als 10 µm (Particulate Matter, PM10) bereits an der Quelle abzuscheiden. Auch in den darauffolgenden Jahrzehnten war es das Ziel, die Staubbemissionen von PM10 und PM2.5 zu reduzieren. Der jüngste wichtige Schritt war dabei die Einführung des Dieselrußpartikelfilters sowie erste Emissionsregelungen der Partikelanzahl von UFP bei Kraftfahrzeugen. Noch nicht gelöst ist die Freisetzung von Feinstaub durch ungeregelte bzw. unzureichend geregelte anthropogene Emissionsprozesse sowie die Bildung sekundärer Feinstaubpartikel durch anthropogene Vorläufersubstanzen.

Zur gesundheitlichen Beurteilung von Feinstaub werden bislang die Partikelmassenkonzentrationen wie PM2,5 und PM10 herangezogen. UFP sind jedoch so klein, dass ihre Masse trotz der hohen Anzahl verglichen mit den größeren Feinstaubpartikeln sehr gering ist. Entsprechend erweist sich die Partikelmassenkonzentration als nicht geeignet, um valide Aussagen über UFP treffen zu können. Zur Beurteilung der UFP hat sich deswegen als Bemessungsgröße die Partikelanzahlkonzentration (englisch, Particle Number Concentration, PNC) oder Partikelanzahlgrößenverteilung (englisch, Particle Number Size Distribution, PNSD) als sinnvoll erwiesen. In Bezug auf ihre gesundheitliche Wirkung sind UFP vor allem deshalb von Belang, weil sie tiefer als die größeren Partikel in die Lunge, das Gehirn (über den Riechnerv) und vermutlich sogar direkt über den inhalativen Aufnahmepfad bis in das Blutkreislaufsystem eindringen. Hieraus ergibt sich auch eine mögliche Verteilung und Ablagerung von UFP in verschiedenen Organen. Darüber hinaus haben UFP ein hohes Oberflächen-zu-Masseverhältnis und somit ein erhöhtes Interaktivitätspotential (z.B. Reaktion mit anderen Molekülen) mit ihrer Umgebung. Eine gesonderte Betrachtung der UFP gegenüber Feinstaub ist auch deshalb erforderlich, weil sich die Regionen mit erhöhter UFP-Belastung von denen hoher PM10/PM2.5-Werte unterscheiden und UFP im Vergleich eine deutlich höhere räumlich-zeitliche Varianz aufweisen (Sun et al., 2020, 2019).

Wirkungsstudien deuten darauf hin, dass UFP in der Außenluft ein gesundheitliches Risiko darstellen können. Dieses Risiko lässt sich aber bisher nicht quantifizieren. Es ist, soweit bekannt, nicht mit der Belastung mit Feinstäuben allgemein (PM10 oder PM2.5) gleichzusetzen.

2 Messtechnische Erfassung von Ultrafeinen Partikeln

Die qualitätsgesicherte messtechnische Erfassung von UFP stellt nach wie vor eine Herausforderung dar. Optische Messverfahren kommen aufgrund der geringen Größe der Partikel kaum infrage, da UFP bei sichtbaren Wellenlängen nur wenig Lichtstreuung erzeugen (Czitrovszky, 2013). Die übliche gravimetrische Bestimmung kommt technisch bei UFP ebenfalls an ihre Grenzen, da u.a. sehr lange Sammelzeiten benötigt werden (Kumar et al., 2021; van Pinxteren et al., 2016).

Zu den standardisierten, genormten UFP-Messungen gehören derzeit die Erfassung der Gesamtpartikelanzahl mit einem Kondensationspartikelzähler (englisch, Condensation Particle Counter, CPC) und die größenselektive Erfassung einer Anzahlgrößenverteilung mittels eines elektrischen Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometers (englisch, Mobility Particle Size Spectrometers, MPSS) (CEN/TS 16976, 2016; CEN/TS 17434, 2020). Aus der Anzahlgrößenverteilung lassen sich weitere Parameter wie die lungendeponierbare Partikeloberflächenkonzentration (englisch, Lung Deposited Surface Area, LDSA) berechnen, die zur Beschreibung einer aufgenommenen Dosis von UFP herangezogen werden kann.

Beim Vergleich gemessener Gesamtpartikelanzahlkonzentrationen für UFP ist dabei zwingend der Partikelgrößenbereich anzugeben und zu berücksichtigen. Von zentraler Bedeutung ist die Angabe einer unteren technischen Erfassungsgrenze, weil dieser Durchmesser bei UFP häufig durch die zu erfassenden Partikelmoden verläuft. Häufig verwendete Untergrenzen von Messbereichen sind z.B. 23 nm bei Fahrzeugemissionsmessungen, sowie 7 nm oder auch 10 nm bei atmosphärischen Aerosolmessungen. Die Grenze der technisch machbaren UFP-Anzahlmessung liegt bei ~ 1 nm, erfordert aber eine aufwendige Messtechnik, bei der kleinste Partikel erst in einer Kondensationskammer vergrößert werden (Vanhanen et al., 2011). Messergebnisse, die unterschiedliche Ober- und Untergrenzen der Gesamtpartikelanzahlkonzentration betrachten, können nur eingeschränkt untereinander verglichen werden.

2.1 Emissionsmessung

Insgesamt liegen derzeit nur wenige vergleichbare Daten zu Emissionen ultrafeiner Partikel aus anthropogenen Aktivitäten (Verkehr, Industrie, Kraftwerke, Haushalte) vor, mit Ausnahme des Kraftfahrzeugverkehrs. Ein Grund dafür ist der erhebliche messtechnische Aufwand, welcher u.a. bei der Probenahme und Aufbereitung von Abgasen entsteht. Zudem werden bei Emissionsmessungen zumeist nur nichtflüchtige Partikel berücksichtigt, flüchtige Partikel und gasförmige Vorläufersubstanzen, sogenannte Kondensate, dagegen nicht. Diese liegen am Messort im Abgas aufgrund der hohen Temperaturen zunächst noch als Gase vor; sobald sich das Abgas jedoch abkühlt, kondensieren diese Gase zu Partikeln.. Eine Nichtberücksichtigung der Kondensate kann dazu führen, dass die Relevanz von Emissionsquellen für die Konzentrationen ultrafeiner Partikel in der Umgebungsluft deutlich unterschätzt wird. Derzeit findet eine intensive Diskussion zur Berücksichtigung von Kondensaten in der Emissionsmessung von Partikeln statt, die sich aber meist auf die emittierte Partikelmasse bezieht. Der Anteil von Kondensaten im Bereich der ultrafeinen Partikel steht dabei nicht im Fokus und deswegen sind bisher wenig quantitative Angaben zu diesem Anteil bekannt. Auf vorhandene Messungen wird jeweils in den Unterkapiteln eingegangen.

2.2 Immissionsmessung

Auf dem Gebiet der Immissionsmessungen wurde im Jahr 2009 bereits ein deutschlandweites Messnetz (German Ultrafine Aerosol Network, GUAN) etabliert, welches Anzahl-Größenverteilungen im Bereich von 10-800 nm (Birmili et al., 2016, 2015) erfasst. Der UFP-Bereich ist hierbei mit 10-100 nm enthalten. Unterhalb von 10 nm treten bei den verwendeten MPSS-Instrumenten erhebliche Unsicherheiten bezüglich der gemessenen Anzahlkonzentration auf (Wiedensohler et al., 2012). Zur präzisen Erfassung der Konzentration von Partikeln < 10 nm wären zusätzliche Messungen und Geräte notwendig, die speziell auf diesen Messbereich ausgerichtet sind. Dieses Messnetz soll die Qualität und die Vergleichbarkeit von UFP Messungen in Deutschland sicherstellen. Um eben eine solche gute Vergleichbarkeit sicherzustellen, ist der Einsatz standardisierter Messmethoden erfolgt und perspektivisch weiterhin erforderlich. So ist die einheitliche Anwendung der CEN/TS 17434, 16976 für partikelzählende Verfahren und zur Größenklassifizierung anhand der elektrischen Mobilität vorzusehen (CEN/TS 16976, 2016; CEN/TS 17434, 2020).

Das Monitoring mit den beiden genannten Verfahren im Rahmen der Luftüberwachung erfordert eine regelmäßige Wartung, Kalibrierung und Qualitätssicherung unter Einsatz geschulten Personals. Bei beiden Messverfahren sind regelmäßige Vergleichsmessungen in einem Zentrallabor notwendig, um die jeweiligen Messungen auf einen definierten Standard rückführen zu können (Wiedensohler et al., 2018, 2012). Nur so können Ergebnisse kontinuierlich und mit guter Qualität sichergestellt werden. Eine zentrale Qualitätssicherung wird derzeit am WCC-AP (World CalibrationCenter for Aerosol Physics) im Rahmen des globalen Netzwerkes GAW (englisch, Global Atmosphere Watch) der Weltmeteorologischen Organisation (englisch, World Meteorological Organization, WMO) in Leipzig angeboten, mit einer Rückführung auf Normale der PTB (Physikalisch Technische Bundesanstalt). Perspektivisch wäre es zusätzlich erforderlich, die PTB als behördliches Institut mit der Wahrung der Standards zu beauftragen, wie dies auch für andere Luftschadstoffe der Fall ist.

Jenseits der genannten Echtzeit-Messinstrumente ist es prinzipiell möglich, wenn auch mit hohem technischen Aufwand verbunden, UFP auf ihre Morphologie und Inhaltsstoffe hin zu untersuchen. Die übliche hoch standardisierte Elementanalytik (nasschemisch) setzt im Bereich der UFP jedoch eine Probensammlung über mehrere Stunden bis zu Tagen durch Abscheidung der festen Inhaltsstoffe voraus, um die erforderliche Menge von Partikeln zu erhalten (van Pinxteren et al., 2016a). Darüber hinaus ist eine Analytik mittels Sammlung (elektrostatische Abscheidung) und beispielsweise REM-EDX (energiedispersive Röntgenspektroskopie mittels Rasterelektronenmikroskopie) möglich. Diese Methoden sind jedoch zurzeit nicht ausreichend standardisiert, zu arbeits- und kostenintensiv und somit noch unzureichend für ein qualitätsgesichertes Monitoring.

Für orientierende Daten werden zunehmend miniaturisierte (und technisch vereinfachte) Messinstrumente eingesetzt, auch in Form mobiler Messungen in Ergänzung zu stationären Messungen. Mobile Messungen ermöglichen eine flächendeckendere und vor allem auch personenbezogene Erfassung der Exposition. Während für Feinstaub und Spurengase für orientierende Messungen inzwischen geeignete, kostengünstige Sensoren (< 1.000 €) verfügbar sind, ist dies bei UFP noch nicht der Fall. Auf dem Markt verfügbare UFP-zählende Messinstrumente mit hinreichender Genauigkeit sind in ihrer Anschaffung noch eher kostspielig (~ 10 tsd. €), daher besteht hier auch noch technischer Entwicklungsbedarf. Generell zeigen miniaturisierte Messgeräte eine sehr vielversprechende Entwicklung mit Blickpunkt auf ein raumzeitlich höher aufgelöstes Monitoring. Jedoch muss zwingend eine Vergleichbarkeit zu Referenzmethoden gegeben und nachweisbar sein, um belastbare Daten mit entsprechender Qualität zu bekommen. Dies umfasst vor allem auch Kriterien wie Präzision, Richtigkeit,

Genauigkeit, Rückführbarkeit, Messgrößenbereich, Querempfindlichkeiten und Standards. Eine Eignungs- bzw. Äquivalenzprüfung ggf. mit erweiterten Unsicherheiten ist anzustreben.

Bedarf an UFP-Daten besteht nicht nur für die Außenluft, sondern auch für Innenräume, wo die Bevölkerung (West- und Mitteleuropas) bei weitem ihre meiste Zeit verbringt (> 90 %). Der Innenraum weist im Vergleich zur Außenluft viele mögliche zusätzliche, andersartige und zum Teil sehr kurzzeitig aktive UFP-Quellen auf (offene Flammen, Kochen, Druckergeräte, etc.), die es in Kombination mit der hohen Aufenthaltszeit und der teilweise eingeschränkten Belüftung im Innenraum zu untersuchen gilt. Die derzeit verfügbaren Präzisions-Messinstrumente eignen sich jedoch weitestgehend nicht für einen Dauerbetrieb im Wohn- oder Bürobereich, teils aus Gründen ihres Platzbedarfes, teils wegen ihrer auf Dauer nicht akzeptablen Geräusch- und Abgasentwicklung. Orientierend lassen sich UFP jedoch mit miniaturisierten und vereinfachten Geräten bereits gut bestimmen. Aber hier sind die Methoden bislang noch nicht ausreichend standardisiert und auf Normale rückgeführt, so dass auch hier Entwicklungsbedarf besteht

3 Ultrafeine Partikel in der Außenluft

Vergleichbare Daten zur UFP-Belastung in Deutschland liegen vor allem aus dem German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) vor, an dem insgesamt 17 Messstationen beteiligt sind (Birmili et al., 2016; Sun et al., 2020, 2019). Qualitätskontrollierte Daten liegen seit 2009 vor und wurden bereits im zehnjährigen Trend untersucht. Es ist eine deutliche und konsistente Abnahme der Partikelanzahlkonzentration von verkehrsnahen über städtische bis zu ländlichen Messstationen festzustellen. Der Langzeitmittelwert der UFP-Anzahlkonzentration (10 – 100 nm) reicht von Hintergrundwerten um 1.000 Partikel pro Kubikzentimeter an Bergstationen bis in den Bereich von 10.000 Partikeln pro Kubikzentimeter an verkehrsnahen Messstellen. Zeitliche Trendanalysen zeigen eine Abnahme der Anzahlkonzentration der UFP in deutschen Städten (Löschau et al., 2017), aber auch an allen GUAN-Messstellen insgesamt (Sun et al., 2020). Die Abnahme wird als Ergebnis der generellen Erneuerung der Fahrzeugflotte sowie zusätzlicher emissionsmindernder Maßnahmen wie z. B. den vermehrten Einsatz von Dieselpartikelfiltern gedeutet.

Zur besseren Einschätzung der Belastung durch UFP auch in den stärker besiedelten Gebieten wäre die Ausweitung des GUAN Netzwerkes von hauptsächlich im ländlichen Hintergrund befindlichen Messungen zu mehr Stationen im städtischen Hintergrund notwendig. Dazu wären Messungen in Städten oder Agglomerationen von mehr als 1 Mio. Einwohnern zu ergänzen. Für Deutschland sind dies Berlin, Hamburg, Köln, München, Rhein-Main-Gebiet und das Ruhrgebiet. Darüber hinaus könnten Messungen in Quellnähe zur Quantifizierung der einzelnen Beiträge an der UFP-Belastung beitragen: Straßen (Autobahnen, hochfrequentierte Straßen), Flughäfen, Häfen, Bahnhöfe, Gas-, Öl-, und Kohleraftwerke, Industrieanlagen, private und gewerbliche Fest- und Flüssiggrennstoffheizungen (inkl. Biomasseverbrennung) und landwirtschaftliche Betriebe mit Ammoniakemissionen.

3.1 Quellenzuordnung

Auf Basis aufwendiger Inhaltsstoffanalyse von Feinstaub, seltener von Ultrafeinstaub kann eine standortspezifische Zuordnung der Verursacher erfolgen, die eine qualitative und halbquantitative Zuordnung zu Quellgruppen erlaubt.

3.1.1 Rezeptormodellierung

Für eine Rezeptormodellierung werden neben der klassischen Massenbilanz statistische Verfahren angewendet wie z. B. Hauptkomponentenanalyse, Anreicherungsfaktoren, Positive Matrix Faktorisierung (PMF). Folgende Hauptquellgruppen können dabei unterschieden werden: Sekundäres anorganisches und organisches Aerosol, Verkehr, fossile Brennstoffe, Wiederaufwirbelung, Biomasseverbrennung, Industriequellen und See- bzw. Straßensalz (Belis et al., 2013). Erste Arbeiten benutzten Rezeptormodellierung auch mit Partikelgrößenverteilungen (Vu et al., 2015). Eine PMF in europäischen Städten zeigte, dass Flughäfen signifikante Verursacher für neugebildete Partikel von 13 - 37 nm sind (Rivas et al., 2020). Die Anteile aus Verbrennungsprozessen und aus der photochemischen Neubildung an der UFP Belastung in der Stadt lassen sich aufgrund ihres unterschiedlichen Zeitverlaufs und Partikelgrößenverteilung zuordnen (Ma and Birmili, 2015).

3.1.2 Ausbreitungsrechnung

UFP werden von unterschiedlichsten Quellen (v.a. Verbrennung) emittiert oder aus Vorläuferstoffen in der Atmosphäre gebildet und werden infolge von Temperatur und Luftfeuchte verändert. Sowohl die Quellen als auch die zur Bildung von UFP führenden Prozesse

sowie die für die Ausbreitung wichtigen räumlichen Strukturen sind dabei nur teilweise bekannt und können dadurch auch nicht vollständig in einem Modell abgebildet werden. Mit diesen Einschränkungen konnte beispielsweise in einem Fallbeispiel eine Übereinstimmung zwischen Modell und Messungen von bis zu 25 % erreicht werden (Kukkonen et al., 2016), die im Winter noch höher liegt.

Bei Emissionsfaktoren variiert die Basis des unteren Partikeldurchmessers mit 3 – 30 nm, was eine Vergleichbarkeit einzelner Quellen untereinander als Input für das Modell stark einschränkt. Die Emissionen von UFP werden häufig in den Emissionsinventaren nicht mit berichtet. Deshalb werden zumindest die nicht flüchtigen UFP üblicherweise aus Feinstaubemissionen abgeleitet (Lorentz et al., 2019; Schneider et al., 2016). Für den Stadtbereich sind oft die Emissionen von Kleinfeuerungsanlagen, aus Freizeitaktivitäten (z.B. Grillen, Feuerschalen, Feuerwerk) sowie von Schiffen nicht genau bekannt. Für den Flugbetrieb fehlen Emissionsfaktoren für flüchtige Komponenten. Auch der für die UFP-Bildung wichtige Schwefelanteil in Treibstoffen ist nicht immer bekannt. Der Prozess der Neubildung von Partikeln von 1 – 30 nm wird nicht vollständig berücksichtigt. Partikelvorläufer wie biogene volatile organische Komponenten (engl. VOC – Volatile Organic Compounds) und kondensierbare Gase aus Verbrennungsprozessen sowie Ammoniak werden ebenfalls bislang oft in Modellen nicht beachtet.

Chemie-Transportmodelle (CTM) bieten damit derzeit nur begrenzt die Möglichkeit die Ausbreitung von UFP auf Basis aktueller Erkenntnisse zu den ablaufenden physikalisch-chemischen Prozessen auf regionaler Skala und auf städtischer Hintergrundskala (bis hinunter auf ca. $0,5 \times 0,5 \text{ km}^2$) zu untersuchen. Um noch kleinräumigere Ausbreitung von UFP entlang von Straßen oder im Umfeld von Flughäfen zu untersuchen, werden mikroskalige Modelle benutzt (Lorentz et al., 2019). Hier werden anstelle der chemischen Umwandlungen und physikalischen Prozesse charakteristische Größenverteilungen für unterschiedliche Quellgruppen herangezogen, was mit stark erhöhten Unsicherheiten verbunden ist.

4 Ultrafeine Partikel im Innenraum

Menschen in West- und Mitteleuropa und somit auch in Deutschland verbringen einen Großteil ihrer Zeit in privaten wie auch (halb-)öffentlichen Innenräumen. Zur Bewertung der Exposition gegenüber UFP sind daher auch die Konzentrationen in Innenräumen von Bedeutung. Die meisten Innenräume gehören zur Privatsphäre und unterliegen somit keiner gesetzlichen Kontrolle in Form von Grenzwerten. Eine Quantifizierung der Beiträge von Innenraumquellen ist dennoch wichtig für eine bessere Schätzung der personengebundenen UFP-Exposition z.B. bei epidemiologischen Studien. Eine weitere Bedeutung von UFP-Messungen liegt bei der Entwicklung von Handlungsempfehlungen, inwieweit die Innenraumluftqualität verbessert und vermeidbare Belastungen durch einfache Maßnahmen reduziert werden können.

Die UFP-Konzentrationen im Innenraum zeigen infolge vielfältiger Nutzeraktivitäten und der physikalischen Dynamik ultrafeiner Partikel eine beträchtliche Schwankungsbreite. UFP im Innenraum stammen entweder aus Innenraumquellen oder aus der Außenluft, wobei der Lüftungszustand des Gebäudes den Eintrag aus der Außenluft entscheidend mitbestimmt. Ein Messprogramm in 40 Wohnungen in Leipzig und Berlin (Zhao et al., 2021) hat gezeigt, dass die UFP-Anzahlkonzentration durch Kerzenabbrand sowie Koch- und Backaktivitäten kurzzeitig bis zu 100.000 pro cm³ ansteigen kann. Intensives Lüften lässt hohe Partikelanzahlkonzentrationen jedoch in der Regel wieder rasch abklingen. Bei über 500 Messstagen ergab sich ein Gesamt-Median der UFP-Anzahlkonzentration von 3.400 pro cm⁻³ im Innenraum und 4.900 pro cm⁻³ in der Außenluft. Eine Koppelung der Messdaten mit einem numerischen Simulationsmodell für den Innenraum ermöglicht die Ableitung typischer Emissionsfaktoren von Innenraumaktivitäten für UFP (Zhao et al., 2021). Bei der Deutschen Umweltstudie zur Gesundheit (GerES V) wurden darüber hinaus 2014-2017 in 2.172 Wohnungen stichprobenartige Messungen der Gesamtpartikelanzahlkonzentration mit Kondensationspartikelzählern durchgeführt. Hier lag der Median der Partikelanzahlkonzentration bei 5.470 pro cm⁻³, wovon ca. 90 % als Anteil der UFP geschätzt werden (Birmili et al., 2020). Diese Konzentration liegt zwischen den mittleren Niveaus ländlicher und städtischer Hintergrundmessstationen für die Außenluft.

Additive Fertigungsverfahren wie 3D-Drucker gehören zu den neuen Quellen an UFP im Innenraum. Derzeit ermittelt die Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) im Auftrag des Umweltbundesamtes die Freisetzung von UFP durch haushaltsübliche 3D-Drucker. Die Kommission Innenraumlufthygiene hat Handlungsempfehlungen verabschiedet, wie Bürger*innen ihren 3D-Drucker gesundheitsschonend betreiben können (Umweltbundesamt, 2020).

Im Innenraumbereich sind messtechnische Besonderheiten zur Gewinnung repräsentativer Daten zu berücksichtigen: Werden Räume etwa in Privathaushalten oder Büros normal genutzt, dann müssen die Messinstrumente gefahrlos und nahezu geräuschlos betrieben werden können und dennoch auf Normale rückführbar sein.

5 Verursacher und Minderungsmaßnahmen

Ganz grundsätzlich entstehen Partikel bei allen unvollständigen Verbrennungsprozessen von kohlenstoffhaltigen Materialien, also unter Sauerstoffmangel und bei zu niedrigen Temperaturen. Ultrafeine Partikel können dabei entweder direkt aus den Verbrennungsprozessen, so genannte Primärpartikel, oder durch Nukleation kondensierbarer Gase, als Sekundärpartikel, entstehen. Erhöhte UFP-Konzentrationen in der Außenluft gehen zumeist zurück auf Emissionen aus dem Verkehrssektor (Kfz-, Flug-, Schiffs- und Eisenbahnverkehr), dem Energiesektor und aus Industrieanlagen. Auch private Fest- und Flüssigbrennstoffheizungen, Biomasseverbrennung (Kleinfeuerungsanlagen), Holzkohle- und Gasgrills sowie Feuerwerk erzeugen UFP. Zudem können UFP auch durch biogene und anthropogene Vorläufersubstanzen über Kondensation und Nukleation gebildet werden, beispielsweise über biogene Volatile Organische Verbindungen (VOC). In der Atmosphäre selbst werden UFP durch die Nukleation von Gasmolekülen unter dem Einfluss intensiver Sonneneinstrahlung gebildet, die sich im Tagesverlauf und in der Partikelgrößenverteilung von den direkt emittierten anthropogenen UFP unterscheiden (Ma and Birmili, 2015).

Derzeit liegen insgesamt nur wenige Messdaten zu Emissionen ultrafeiner Partikel aus anthropogenen Aktivitäten, insbesondere zur Bildung von UFP durch Sekundäremissionen, vor.

5.1 UFP-Emissionen des Verkehrs

Der Verkehr setzt sich aus verschiedenen Teilbereichen zusammen: (i) straßengebundener Verkehr, (ii) Luftverkehr, (iii) Schiffsverkehr, (iv) schienengebundener Verkehr und auch (v) mobile Maschinen und Geräte (non road). Für alle Bereiche gilt, dass die Freisetzung von UFP nicht nur von Art und Funktionsweise des Motors (Verbrennungsprozess mit Sauerstoffanteil und Verbrennungstemperatur), sondern auch von der Zusammensetzung des Brennstoffes (Kraftstoffart, Schmiermittel mit z. B. Schwefel- und Metallverbindungen) abhängt (Kontses et al., 2019). Nutzungsbedingungen (Kaltstarts, Beschleunigungen etc.) und das verwendete Abgasnachbehandlungssystem spielen dabei, vor allem im Straßenverkehr, eine wichtige Rolle. Dabei ist die Dynamik der am Endrohr emittierten Gase, wie auch der filtrierbaren UFP sehr komplex (Kwon et al., 2020). Damit ist erkennbar, dass der Verkehr auch zur Entstehung von UFP als Sekundärpartikel beiträgt, denn durch Abkühlung des heißen Abgases nach dem Verlassen des Endrohrs in der kälteren Umgebungsluft kondensieren emittierte leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe an Tröpfchen und bilden sehr kleine Partikel in der Luft.

5.1.1 Straßenverkehr

UFP als Partikelanzahlmessungen in Endrohremissionen bei straßengebundenem Verkehr als Direktemission ist ein gut untersuchter und regulierter Bereich (Giechaskiel et al., 2018). Durch existierende Emissionsgrenzwerte für die Partikelmasse und die Anzahl der Partikel > 23 nm, die den Einsatz von Rußpartikelfiltern zur Abgasreinigung erfordern, wurden die Emissionen ultrafeiner Partikel deutlich gemindert. Mit der technologischen Einführung der Direkteinspritzung bei Ottomotoren und der Zunahme von solchen Fahrzeugen im Kfz-Bestand wurde die Problematik der Partikelemissionen, insbesondere die der UFP, auch im Bereich der Otto-Kfz relevant und deren Emissionen sind deshalb seit 2015 bei Pkw Neufahrzeugen und seit 2013 bei LKW und Bussen mit einem Grenzwert für die Partikelanzahl (> 23 nm) beschränkt, um dieser Problematik Rechnung zu tragen. Die Verwendung eines Partikelfilters (GPF – Gasoline Particulate Filter) bei Fahrzeugen mit Ottomotoren mit Direkteinspritzung führt auch hier zu einer Verringerung der Partikelemissionen, ohne signifikante Auswirkungen auf Kraftstoffverbrauch oder andere technische Aspekte, wodurch ein entsprechender Grenzwert

auch bei Benzinfahrzeugen eingehalten werden kann. Da die Erfassung der Partikelanzahl bisher ab einer Größe von 23 nm erfolgt, ist sie nicht unmittelbar vergleichbar mit Zahlen z.B. aus der Immissionsmessung. Allerdings wird bereits für die nächste Novellierung der Abgasgesetzgebung von leichten und schweren Fahrzeugen (European Commission, 2022), für die jedoch noch kein Einführungszeitplan feststeht, eine Untergrenze von 10 nm Partikeldurchmesser diskutiert.

Die Zusammensetzung der UFP-Fraktion im Abgas von Dieselfahrzeugen mit und ohne Partikelfilter und von Fahrzeugen mit Ottomotoren ist allerdings sehr unterschiedlich. Diesel-Primärpartikel im Abgas von Fahrzeugen ohne Partikelfilter befinden sich eher im größeren Spektrum der UFP. Studien konnten allerdings zeigen, dass generell ein höherer Anteil an großen Partikeln die Anzahl der UFP verringert, da sich UFP vorrangig an die größeren Partikel anlagern (Guo et al., 2020; Kulmala et al., 2004; Kwon et al., 2020). Größere Partikel zur Anlagerung sind beim Ottomotor aber im Vergleich zum Diesel gewöhnlich in einer geringeren Anzahl im Abgas vorhanden (Überall et al., 2015).

Da die Begrenzung von UFP im Abgasstrom von Fahrzeugen im Straßenverkehr mit der Einführung von Grenzwerten zur Partikelanzahl bereits Realität ist und auch der Anteil an Verbrennungsmotoren in der Flotte zukünftig abnehmen wird, nimmt die relative Bedeutung von Bremsen- und Reifenabriebemissionen zu. Der Nachweis von UFP-Emissionen durch Reifen- und Bremsabrieb wurde bereits durch mehrere Studien belegt und teilweise auch quantifiziert (Kwak et al., 2013; Nosko and Olofsson, 2017). Messtechnische Hürden, insbesondere im Fall von Reifenabrieb, erschweren derzeit noch die Quantifizierung. Während für den Bremsenabrieb zumindest schon eine geeignete Messmethode für Partikelanzahl und Partikelmasse (PM_{2,5} und PM₁₀) existiert und es im Rahmen der Erörterung zur Ausgestaltung der zukünftigen Abgasnorm Euro 7/VII erste Diskussionen in der Kommissionsexpertengruppe „Advisory Group on Vehicle Emission Standards“ (AGVES) im Rahmen von Euro 7 um die Regulierung durch einen entsprechenden Grenzwert für PM/PN gibt, berät man auf UNECE-Ebene in der „Task Force Tire Abrasion“ (TFTA) und im Rahmen anderen Gremien (UNECE, PMP IWG, GRPE, GRBP) im Bereich Reifenabrieb zunächst über entsprechende Messmethoden zur Bestimmung der Abriebrate.

5.1.2 Luftverkehr

UFP Gesamtemissionen beispielsweise am Flughafen Frankfurt a.M. stammen mit mehr als 90 % hauptsächlich aus dem Betrieb von Haupttriebwerken von Flugzeugen am Boden und in Bodennähe bis 900 m Höhe, insbesondere bei Rollvorgängen (Lorentz et al., 2019). In Zürich wurde in 5 km Umkreis um den Flughafen eine knappe Verdoppelung der Partikelanzahl modelliert und ermittelt (Fleuti et al., 2015; Zhang et al., 2020). Zur Minderung der Partikel-Emissionen des Luftverkehrs kann aus Umweltsicht die Verbesserung der Kraftstoffqualität, z. B. durch die Reduktion des Kohlenstoff-Gehaltes im Kerosin (z. B. weniger Aromaten) sowie die Entschwefelung des eingesetzten Kerosins einen wichtigen Beitrag leisten. Der zulässige Schwefelgrenzwert liegt beim Kerosin mit 3.000 ppm noch deutlich höher als im Straßenverkehr (10 ppm). Der tatsächliche Schwefelgehalt des Kraftstoffes liegt häufig aber schon deutlich unter diesem Grenzwert. Auch der Einsatz von synthetischen Kraftstoffen im Luftverkehr bietet langfristig ein gewisses Potential, wird aber erst dann relevant, wenn größere Anteile zum konventionellen Kraftstoff beigemischt werden; bis zum Jahr 2030 ist hier nur ein Anteil von 2 % gesetzlich vorgeschrieben. Auch die Triebwerkstechnologie (z. B. Art der Brennkammer) und der Lastzustand des Triebwerks (z. B. Rollen oder Start) haben einen Einfluss auf die Anzahl der erzeugten UFP. Für Flugzeugtriebwerke ist im Rahmen der Zulassung eine einheitliche und verpflichtende Erfassung der spezifischen UFP Emissionen gemäß ICAO-CAEP ab 2023

verpflichtend (International Civil Aviation Organization, 2016). An diesen Zulassungswerten anknüpfende emissionsabhängige Landeentgelte könnten wichtige Anreize, z.B. für die Triebwerksentwicklung setzen, die Emissionen zu reduzieren. Meteorologische Bedingungen (z. B. Lufttemperatur) spielen zwar auch eine Rolle bei der Bildung von UFP, können aber i. d. R. nicht beeinflusst werden. Im Flughafenbetrieb können im Bodenverkehr darüber hinaus die UFP-Emissionen weiter reduziert werden z. B. durch die Verwendung von elektrisch betriebenen Schleppern und damit gänzlichen Verzicht auf den Einsatz der Flugzeugtriebwerke auf dem Rollfeld.

5.1.3 Schiffsverkehr

Im Schiffsverkehr sind es sowohl Seeschiffe im Küstengebiet als auch Binnenschiffe, die eine UFP Quelle im nationalen Raum darstellen können. Jedoch sind zumindest für die Binnenschiffe die PM und PN-Emissionen grundlegend über die EU-Verordnung 2016/1628 bereits geregelt (EU 2016/1628, 2016). Insbesondere die Bestandsfлотen bzw. die Erneuerung dieser stellen bei der Schifffahrt eine große Herausforderung dar, um eine rasche Minderung von UFP aus dieser Quelle zu erreichen. Die Minderungen von Partikeln direkt im Abgasstrom vor allem von großen Seeschiffen stößt vor allem auf technische Probleme, da die vorgeschriebene Kraftstoffqualität (Schwefel- und Aschegehalt) und der aktuelle Stand der Motorentechnik immer noch zu einer starken Rußentwicklung führt, die den Einsatz von Partikelfiltern erschweren bzw. nicht möglich machen. Wie schon im Kapitel 5.1.1 kurz erwähnt, lagern sich UFP an größeren Partikeln an, wenn diese im Abgasstrom vorhanden sind. Dies könnte bedeuten, dass UFP im Seeverkehr derzeit noch keine große Rolle spielen, was sich aber ohne Messungen nicht belegen lässt. Bislang sind als Abgasreinigungsanlagen Scrubber (EGCS – Exhaust Gas Cleaning Systems; Wäscher zur Schwefelreduktion) und SCR-Anlagen (Stickoxidminderung) auf einigen Seeschiffen, insbesondere solchen, die in Emissionssondergebieten (ECA – Emission Control Areas, dazu gehören Nord- und Ostsee) fahren, installiert, deren Minderungswirkung auf die Ruß-/ Partikelreduktion (PM-Minderung durch EGCS 2 % - 90 %) unsicher ist (Hasselöv et al., 2019). Die Auswertung kommt zudem zu dem Schluss, dass insbesondere „kleine Partikel“ nicht durch EGCS aus dem Abgasstrom entfernt werden (ebd.). Inwieweit die Einführung strombasierter Kraftstoffe (in der Diskussion sind z.B. Methanol, Ammoniak, eLNG, Wasserstoff) die UFP-Emissionen beeinflusst, ist abzuwarten. Andere EU-Klimaschutzmaßnahmen, wie z. B. die Landstromversorgung der Schiffe im Hafen haben in jedem Fall positive Auswirkungen auf die UFP-Konzentrationen, da diese Maßnahme ein Abstellen der (Hilfs-)Motoren während der Liegezeit ermöglicht und damit jedwede Partikelemission im Abgas vermeidet. Bei Seehäfen wird eine Initiative zur EU-weiten Einführung einer Landstrompflicht gestartet (FEUM). Der Ausbau der landseitigen Infrastruktur für Landstrom soll ebenfalls EU-weit entlang der großen See- und Binnenhäfen aufgebaut werden (European Commission, 2021) mit dem Ziel einer Null-Emission in allen europäischen Häfen ab 2030. Bei Binnenhäfen wird darüber hinaus eine nationale Regelung geprüft.

5.1.4 Schienenverkehr

Im Schienenverkehr werden Partikelemissionen zum einen durch Lokomotiven und Triebwagen mit Dieselmotor verursacht. Der Dieselbetrieb hat aktuell (2020) noch einen Anteil von rund 6 % an der Verkehrsleistung des Schienenverkehrs (TREMOD-Version 6.23) und stellt trotz fallender Tendenz gegenwärtig noch eine relevante Partikelquelle dar. Neben den abgasbedingten Dieselemissionen entstehen Emissionen durch den Abrieb an Bremse, Rad, Schiene und Fahrdräht. An den verkehrsbedingten Gesamtemissionen an PM2.5 hatte der

Schienenverkehr bisher einen Anteil von rund 20 %, wovon mittlerweile rund 95 % durch Abriebprozesse verursacht werden (UBA, Datenbank „Zentrales System Emissionen“). Durchgeführte oder in Planung befindliche Untersuchungen zu darin enthaltenen UFP-Fraktionen sind nicht bekannt.

5.1.5 Mobile Maschinen

Bei den mobilen Maschinen und Geräten wurden mit der Einführung der Abgasstufe V Partikelgrenzwerte (je nach Leistungsklasse zwischen 0,015 – 0,40 g/kWh eingeführt und der Anwendungsbereich auf alle Leistungsklassen ausgeweitet. Mobile Maschinen und Geräte im Leistungsbereich bis 560 kW müssen seit 2018/2019 einen Grenzwert für PN > 23 nm einhalten (EU 2016/1628, 2016) und erfahren generell auch eine Zunahme der Elektrifizierung. Die Einhaltung der Partikelgrenzwerte wird, ähnlich wie bei Diesel-Pkw, mittels Partikelfilter realisiert. Darüber hinaus steht im Fokus der ergänzenden EU Verordnungen (EU 2017/655, 2016; EU 2018/989, 2018) die Überwachung der Emissionen während des realen Betriebs der Maschine (ISM - In Service Monitoring).

Die Kapitel 5.1.1 bis 5.1.5 verdeutlichen, dass der Verkehrssektors zumindest mit Grenzwerten für die Partikelanzahl > 23 nm bereits weitestgehend grundlegend reglementiert werden. Abschätzungen oder Messungen der Emissionsmengen einzelner Verkehrssektoren stehen aber noch aus. Wie für alle Schadstoffemissionen gilt auch für die UFP, dass neben einer wirksamen Emissionsregulierung die effektivste Minderungsoption die Vermeidung von motorisiertem Verkehr ist. Weniger Individualverkehr mit Fahrzeugen mit Verbrennungsmotoren und die Verlagerung von unvermeidbaren Fahrten auf umweltverträgliche, schadstoffarme Verkehrsmittel sind ebenfalls sehr wichtige Minderungsoptionen.

5.2 UFP-Emissionen aus Feuerungsanlagen

In den letzten Jahrzehnten wurden die Partikelmasseemissionen (Gesamtstaub, PM10 und PM2.5) von Feuerungsanlagen erfolgreich reduziert. Dies erfolgte weitestgehend durch primäre Emissionsminderungstechniken, indem Staubemissionen durch eine möglichst vollständige Verbrennung erst gar nicht entstanden. Darüber hinaus wurden gerade im Bereich der Feuerungsanlagen mit einer Feuerungswärmeleistung ab 1 MW nachgeschaltete Emissionsminderungstechniken wie Zyklone, elektrostatische Abscheider oder Gewebefilter eingesetzt und eine weitere Verringerung der Staubemissionen erreicht. Neben einer Reduzierung der Gesamtstaubemissionen wurden durch diese nachgeschalteten Emissionsminderungstechniken auch die Emission von UFP deutlich verringert (Fulsang et al., 2009; Jones and Harrison, 2016; Yi et al., 2006; Yinon, 2010). Für UFP aus Feuerungsanlagen jedoch gibt es in Deutschland bisher kein standardisiertes Messverfahren und Monitoringprogramm.

5.2.1 Großfeuerungsanlagen

Es ist davon auszugehen, dass im Zuge der Bemühungen zur PM-Emissionsreduzierung im Industrie- und Kraftwerkssektor schon eine sehr deutliche Minderung von Ultrafeinstaub erzielt wurde. Das gilt sowohl für die Primärpartikel als auch für sekundär gebildete Aerosole aus gasförmigen Bestandteilen. Z.B. wurden die SO_x Emissionen deutlich gemindert. Durch die Optimierung der Verbrennungsprozesse entstehen zudem kaum noch messbare organische Bestandteile, die kondensieren oder durch sonstige „gas-to-particle-conversion“ zur UFP-Bildung beitragen könnten. Für eine hinreichend genaue Berechnung der gesamten

Ultrafeinstaubfrachten aus Kraftwerken (und auch hier nicht weiter betrachteten Industrieanlagen) liegen nicht ausreichend Messungen vor. Grundsätzlich ist jedoch zu erwarten, dass es im Zuge der geplanten Dekarbonisierung zu einer weiteren Reduktion der Staubemissionen und entsprechend auch der Feinstaub- und Ultrafeinstaubemissionen kommen wird, da z.B. Kohle als Brennstoff perspektivisch nicht mehr eingesetzt wird (Deutscher Bundestag, 2022). Somit wird die Emissionen von UFP durch Großfeuerungs- und Großindustrieanlagen als ein weniger relevantes Thema eingeschätzt.

5.2.2 Kleinfeuerungsanlagen

Im städtischen Hintergrund stellt der Hausbrand, durch die Verbrennung von fossilen Brennstoffen und Biomasse eine wesentliche Quelle der UFP dar (Sun et al., 2020, 2019). Hierbei ist die emittierte Partikelanzahl hauptsächlich abhängig vom Brennstoff. So entstehen bei der Verbrennung von Erdgas deutlich geringere Partikelanzahlkonzentrationen als bei der Verbrennung fester Brennstoffe wie z.B. Holz in Festbrennstoffkesseln oder Einzelraumfeuerungsanlagen. Einzelne Hersteller im Bereich der Festbrennstoffkessel bieten Systemlösungen an, die elektrostatische Staubabscheider zur Emissionsminderung beinhalten (Zech et al., 2019). Im Bereich der Einzelraumfeuerungsanlagen sind nachgeschaltete Staubabscheider eine Ausnahme. Erste Ergebnisse deuten darauf hin, dass sich durch den Einsatz elektrostatischer Staubabscheider die Partikelanzahl von Festbrennstofffeuerungen wie Kaminöfen um über 90 % reduzieren lässt (Blauer Engel, 2022). So dürfen Kaminöfen für Holz ab dem 01.01.2022 einen Wert von 5.000.000 Partikeln pro Kubikzentimeter im Abgas nicht überschreiten, um einen Blauen Engel zu erhalten (Tebert et al., 2020). Da der Blaue Engel jedoch ein freiwilliges Gütesiegel darstellt müssen verbindliche Vorgaben für die Reduzierung der Emissionen aus neuen Heizanlagen und Öfen letztlich auf europäischer Ebene im Rahmen der Emissionsvorgaben der Ökodesign-Richtlinie erfolgen.

6 Wirkungsmechanismen und gesundheitliche Bewertung von Ultrafeinen Partikeln (UFP)

UFP können sehr weit in die Atemwege eindringen und erreichen dort den Bereich der terminalen Bronchien und Alveolen (Lungenbläschen). In diesem Bereich findet aufgrund der mikroanatomischen Nähe luft- und blutführender Bereiche der Lunge der Gasaustausch statt. Es wird angenommen, dass UFP in diesen Bereichen der Lunge abgelagert werden oder in den Blutkreislauf oder den interstitiellen Raum überreten können. Was genau mit den Partikeln passiert oder was sie bewirken hängt von verschiedenen Faktoren ab, wie z.B. deren Größe, Agglomerationszustand, Form oder Oberflächeneigenschaften wie Ladung, „Beschichtung“ mit Proteinen, Lipiden etc.

Die gesundheitlichen Wirkungen von UFP können anhand verschiedener wissenschaftlicher Ansätze untersucht, aber nur in der Gesamtheit aller Ansätze vollständig erfasst und bewertet werden. Zu den unterschiedlichen Studien zählen toxikologische Studien, (epi-)genetische Studien, kontrollierte Expositionsstudien, klinische Prüfungen und epidemiologische Beobachtungsstudien, welche Kohorten- und Fall-Kontroll-Studien umfassen.

Die Wirkungsmechanismen von UFP sind sehr vielfältig (Traboulsi et al., 2017) und aktuell Gegenstand umfassender toxikologischer Untersuchungen. Einige Beispiele molekularer Wirkmechanismen von UFP sind die Folgenden: Ultrafeine Partikel können eine Entzündungsreaktion auslösen (Leikauf et al., 2020; Xia et al., 2018). Sie können zu vermehrtem oxidativem Stress in der Zelle und damit verbunden auch zum Zelltod führen (Kim et al., 2020; Li et al., 2020). Auch werden epigenetische Wirkungen, also Veränderungen, die nicht die Gene selber, sondern die Genregulation betreffen, beschrieben (Bhargava et al., 2019). Die daraus resultierenden Gesundheitseffekte betreffen verschiedene Organe und Systeme und sind sehr verschieden (Allen et al., 2017; Schraufnagel, 2020). So werden durch UFP im Organismus Organschädigungen und chronische Erkrankungen wie zum Beispiel Lungenerkrankungen, Herz-Kreislauferkrankungen oder auch neurologische Erkrankungen begünstigt bzw. mitverursacht. Auch mit Stoffwechselerkrankungen, wie Diabetes, und einer Beeinträchtigung des Immunsystems werden die Wirkungen von UFP in Verbindung gebracht.

Zweifellos können UFP die menschliche Gesundheit schädigen, aber die genaue Rolle bei der Auslösung vieler Krankheiten bleibt meist noch ungeklärt sowie viele weitere Fragen offen, u.a.: Welche Konzentration von UFP über welchen Zeitraum ist schädlich für die menschliche Gesundheit? Welche Bevölkerungsgruppen sind besonders sensibel? Welche indirekten Wirkungen auf die menschliche Gesundheit haben UFP und welche Rolle spielen weitere Aufnahmepfade wie z.B. Haut oder Magen-Darm?

Einige Probleme erschweren die Beantwortung der Fragen: So sind UFP nicht einheitlich. Sie variieren zum Teil stark in ihrer Zusammensetzung, Beladung, Größe. Zudem hängt ihre Konzentration stark von lokalen Einflussgrößen ab und UFP sind sowohl räumlich als auch zeitlich sehr variabel (Li et al. 2019). Außerdem kommen sie oft gemeinsam mit anderen Luftschadstoffen, wie z.B. Stickoxiden oder größeren Feinstaubpartikeln vor. Auch die aufwändige messtechnische Erfassung, und in der Konsequenz in Ihrer Summe noch fehlenden validen Datensätze, beeinträchtigen noch die Möglichkeit einer präzisen gesundheitlichen Bewertung.

Eine Möglichkeit, Zusammenhänge zwischen der Exposition gegenüber UFP und gesundheitlichen Effekten zu untersuchen, sind epidemiologische Bevölkerungsstudien. Bis jetzt gibt es allerdings nur eine geringe Anzahl an epidemiologischen Kurz- und Langzeitstudien zu UFP. In den meisten dieser Studien wurden Kurzzeiteffekte, wie Biomarker im Blut oder

Lungenfunktionsbeeinträchtigungen, untersucht (Morawska et al., 2019; Rückerl et al., 2011). Trotz der stetig wachsenden Anzahl an Studien, die auf ein gesundheitliches Risiko von UFP hinweisen, fehlen noch Langzeitstudien. Darüber hinaus bedarf es epidemiologischer Studien zu Kurzzeiteffekten für unterschiedliche gesundheitliche Endpunkte wie solche des Nerven- und des Herz-Kreislaufsystems. Auch die Studienlage zu Langzeiteffekten wie zum Beispiel Krebs- oder Herz-Kreislauferkrankungen erlaubt noch keine konsistente Aussage über gesundheitliche Effekte von UFP (Ohlwein et al., 2019). Ursächlich hierfür sind nicht hinreichend einheitlich und standardisiert verwendete Messmethoden sowie fehlende Adjustierungen für andere Luftsabststoffe wie Stickstoffdioxid (NO_2) oder größere Feinstaubpartikel (PM10, PM2.5).

Somit besteht ein Bedarf an epidemiologischen Studien zu den unterschiedlichen Kurz- und insbesondere auch Langzeiteffekten von UFP, in denen

- ▶ die hohe räumliche und zeitliche Variabilität der UFP berücksichtigt wird
- ▶ für weitere Luftsabststoffe wie Stickstoffdioxid (NO_2) oder größere Feinstaubpartikel (PM10, PM2.5) adjustiert wird
- ▶ die derzeit bestehenden Fragen hinsichtlich der unterschiedlichen Größenbereiche der UFP-Messung (z.B. einheitliche untere Messgrenze) und der verwendeten Metriken adressiert werden
- ▶ einheitliche Messverfahren und Endpunkte verwendet werden, damit sie auch mit Meta-analytischen Verfahren vereint werden können
- ▶ für weitere Confounder, wie unter anderem Alter, Geschlecht, Rauchen, adjustiert wird.

Das UBA plant im Rahmen eines Forschungsprojekts zur Ermittlung gesundheitlicher Effekte eine epidemiologische Studie zu konzipieren und teilweise zu erproben. Dabei soll insbesondere die zeitliche und räumliche Variabilität von UFP berücksichtigt werden sowie die Möglichkeiten und Grenzen von Modellierungen. Die Ergebnisse dieser Studie können dazu beitragen, die Machbarkeit einer Bewertung der UFP-spezifischen Wirkung abhängig von einer konkret erfassbaren Exposition einzuordnen. Für den Schutz der Bevölkerung vor UFP-Belastungen ist die Anforderung an eine im Vergleich mit anderen Luftqualitätsuntersuchungen sehr fein auflösenden Expositionserfassung ein großes Hindernis. Ein erster Schritt könnte darin liegen, zunächst die Exposition in besonders UFP-belasteten Gebieten zu charakterisieren und dort attributable Gesundheitseffekte zu untersuchen.

7 Fazit

Anhand der vorangehenden Ausführungen lässt sich folgender Kenntnisstand hinsichtlich der Messung, Minderung und Wirkung von UFP festhalten:

- ▶ Bisher durchgeführte Messungen sind hinreichend vergleichbar, um unterschiedliche Belastungsräume zu identifizieren. Die Daten zeigen erhöhte UFP-Anzahlkonzentrationen u.a. im innerstädtischen Raum, Verkehrsnähe, Innenräumen und in der Umgebung von Flughäfen.
- ▶ Die wesentlichen Emittenten sind somit grundsätzlich durch die Kenntnis der Partikelemissionen bekannt, müssen aber noch auf ihr Potenzial der UFP Emissionen mittels Partikelanzahlmessung im entsprechenden Größenbereich hin überprüft werden.
- ▶ Vorliegende Wirkungsstudien belegen, dass UFP in der Außenluft ein gesundheitliches Risiko darstellen können, das sich aber bisher nicht quantifizieren lässt und nicht mit dem gesundheitlichen Risiko verursacht durch Feinstaub vergleichbar ist.

Daraus lassen sich folgende Empfehlungen ableiten:

- ▶ Die erhöhten UFP-Konzentrationen im städtischen Bereich und höher belasteten Räumen wie Verkehrsnähe oder Flughäfen sollten mit dem Ziel einer Verbesserung des Gesundheitsschutzes verringert werden.
- ▶ Anhand der Messdaten aus verschiedenen Belastungsregimen ließe sich eine Empfehlung für einen Zielwert der UFP-Anzahl ableiten, die sich an den typischen Verhältnissen im ländlichen oder auch städtischen Hintergrund orientiert.
- ▶ Ober- und Untergrenzen der Emissions- und Immissionsmessung von UFP sollten vereinheitlicht werden, um die Vergleichbarkeit der Daten zu verbessern.
- ▶ Hinsichtlich der Reduzierung der Belastung an Flughäfen sind umfangreiche Konzepte vorhanden, die zur Anwendung gebracht werden sollten. In Bezug auf den Straßenverkehr wurde mit Einführung von Emissionsgrenzwerten für die Partikelanzahl ($> 23 \text{ nm}$) bei Fahrzeugen mit Direkteinspritzung eine Reduzierung der UFP Emissionen im entsprechenden Größenbereich bereits erzielt. Die Untergrenze der Partikelgröße sollte dabei stetig den messtechnischen Möglichkeiten angepasst werden.

Für eine Quantifizierung des Risikos und eine fokussierte Maßnahmenplanung sind weitere Untersuchungen in folgender Hinsicht erforderlich:

- ▶ Unter Verwendung qualitätsgesicherter und vergleichbarer Messungen sind standardisierte epidemiologische Studien durchzuführen, um den Exposition-Wirkungszusammenhang zu quantifizieren. Neben der Außenluft sollte in solchen Studien auch die Belastung gegenüber UFP in Wohnungen, Bildungseinrichtungen und an Arbeitsplätzen berücksichtigt werden, weil Menschen in West- und Mitteleuropa sich $> 90\%$ ihrer Zeit im Innenraum aufhalten. Anhand der Erhebungen sollte die Ableitung einer geeigneten Metrik und eines Grenzwertes möglich sein, der aus wissenschaftlicher und gesundheitlicher Sicht vertretbar ist.
- ▶ Um die Zahl und räumliche Verteilung der UFP-Messstationen zu optimieren, sollte ein Messkonzept entwickelt werden, das auch den Beitrag weiterer Emittenten erfasst, aber

auch repräsentative Hintergrundwerte liefert. Eine verbindliche Vereinbarung zwischen den auf langfristige Beobachtung ausgelegten Messstationen mit dem Ziel, die Qualität und Vergleichbarkeit der Daten zu erhöhen, wäre wünschenswert.

- ▶ Als Voraussetzung für die Beurteilung des Beitrags einzelner Quellen müssen standardisierte Emissionsmessungen für alle relevanten Quellen repräsentativ durchgeführt werden. Die Zusammenhänge verschiedener Brennstoffe, Verbrennungstechniken, -bedingungen und Anlagengrößen sowie Minderungstechniken sind zu ermitteln. Partikelanzahlmessungen sind im Bereich sämtlicher Feuerungs- und Industrieanlagen durchzuführen. Im Verkehr betrifft dies die Direktemissionen im Schienen- und Seeverkehr und die Abriebemissionen aus dem Straßenverkehr. Die erfassten Daten müssen in Emissionskatastern zusammengeführt werden.
- ▶ Um die Zusammenhänge zwischen Emissions- und Immissionspartikelanzahl herzustellen können Ausbreitungsmodelle eingesetzt werden, die jedoch noch der Weiterentwicklung v.a. hinsichtlich der Beschreibung der Partikelbildung bedürfen. Separate Messungen von nicht volatilen und volatilen Bestandteilen sind zur Validierung der vorhandenen Modelle notwendig. Emissionsinventare müssen auch hinsichtlich der Vorläuferstoffe weiterentwickelt werden.

8 Quellverzeichnis

- Belis, C.A., Karagulian, F., Larsen, B.R., Hopke, P.K., 2013. Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe. *Atmospheric Environment* 69, 94–108. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.11.009>
- Blauer Engel, 2022. Staubabscheider für Scheitholz-Einzelraumfeuerung.
- CEN/TS 16976, 2016. Ambient air - Determination of the particle number concentration of atmospheric aerosol.
- CEN/TS 17434, 2020. Ambient air - Determination of the particle number size distribution of atmospheric aerosol using a Mobility Particle Size Spectrometer (MPSS).
- Czitrovszky, A., 2013. Environmental applications of solid-state lasers, in: *Handbook of Solid-State Lasers: Materials, Systems and Applications*. pp. 616–646. <https://doi.org/10.1533/9780857097507.2.616>
- Deutscher Bundestag, 2022. Gesetz zur Reduzierung und zur Beendigung der Kohleverstromung.
- EU 2016/1628, 2016. Verordnung (EU) 2016/1628 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 14. September 2016 über die Anforderungen in Bezug auf die Emissionsgrenzwerte für gasförmige Schadstoffe und luftverunreinigende Partikel und die Typgenehmigung für Verbrennungsmotoren für nicht für den Straßenverkehr bestimmte mobile Maschinen und Geräte, zur Änderung der Verordnungen (EU) Nr. 1024/2012 und (EU) Nr. 167/2013 und zur Änderung und Aufhebung der Richtlinie 97/68/EG (Text von Bedeutung für den EWR), Amtsblatt der Europäischen Union.
- EU 2017/655, 2016. VERORDNUNG (EU) 2017/655 DER KOMMISSION zur Ergänzung der Verordnung (EU) 2016/1628 des Europäischen Parlaments und des Rates im Hinblick auf die Überwachung der Emissionen gasförmiger Schadstoffe von in Betrieb befindlichen Verbrennungsmotoren in nicht für den Straßenverkehr bestimmten mobilen Maschinen und Geräten.
- EU 2018/989, 2018. VERORDNUNG (EU) 2018/989 DER KOMMISSION vom 18. Mai 2018 zur Änderung und Berichtigung der Delegierten Verordnung (EU) 2017/654 zur Ergänzung der Verordnung (EU) 2016/1628 des Europäischen Parlaments und des Rates hinsichtlich technischer und allgemeiner Anforderungen in Bezug auf die Emissionsgrenzwerte und die Typgenehmigung von Verbrennungsmotoren für nicht für den Straßenverkehr bestimmte mobile Maschinen und Geräte.
- European Commission, 2022. Proposal for European vehicle emissions standards – Euro 7 for cars, vans, lorries and buses.
- European Commission, 2021. REGULATION OF THE EUROPEAN PARLIAMENT AND OF THE COUNCIL on the deployment of alternative fuels infrastructure, and repealing Directive 2014/94/EU of the European Parliament and of the Council.
- Fulsang, K., Markussen, J.B., Frederiksen, T.G., Hummer, K.B., 2009. Measruement and characterization of fine and ultrafine particles in emissions from CHP plants in Denmark., in: Proceedings of the 9th International Conference and Exhibition of Continuous Emission Modelling. Presented at the International Conference and Exhibition of Continuous Emission Modelling.
- Giugliano, M., Cernuschi, S., Lonati, G., Ozgen, S., Sghirlanzoni, G.A., Tardivo, R., Mascherpa, A., Migliavacca, G., 2008. Chemical Engineering Transactions.
- Hasselöv, I.-M., LUNDE HERMANSSON, A., YTREBERG, E., 2019. Current knowledge on impact on the marine environment of large-scale use of Exhaust Gas Cleaning Systems (scrubbers) in Swedish waters (Technical Report), MEPC 74 INF.10. Baltic Marine Environment Protection Commission.

International Civil Aviation Organization, 2016. Environmental Technical Manual Volume II Procedures for the Emissions Certification of Aircraft Engines.

Jones, A.M., Harrison, R.M., 2016. Emission of ultrafine particles from the incineration of municipal solid waste: A review. *Atmospheric Environment* 140, 519–528. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.06.005>

Kukkonen, J., Karl, M., Keuken, M.P., Denier van der Gon, H.A.C., Denby, B.R., Singh, V., Douros, J., Manders, A., Samaras, Z., Moussiopoulos, N., Jonkers, S., Aarnio, M., Karppinen, A., Kangas, L., Lützenkirchen, S., Petäjä, T., Voutsis, I., Sokhi, R.S., 2016. Modelling the dispersion of particle numbers in five European cities. *Geoscientific Model Development* 9, 451–478. <https://doi.org/10.5194/gmd-9-451-2016>

Kumar, P., Kalaiarasan, G., Porter, A.E., Pinna, A., Kłosowski, M.M., Demokritou, P., Chung, K.F., Pain, C., Arvind, D.K., Arcucci, R., Adcock, I.M., Dilliway, C., 2021. An overview of methods of fine and ultrafine particle collection for physicochemical characterisation and toxicity assessments. *Science of The Total Environment* 756, 143553. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.143553>

Lorentz, H., Janicke, U., Jakobs, H., et al., 2019. Modellierung von Ultrafeinpartikeln am und um den Flughafen Frankfurt/Main Bericht aus dem UBA Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 3716 52 200. VDI Berichte.

Ma, N., Birmili, W., 2015. Estimating the contribution of photochemical particle formation to ultrafine particle number averages in an urban atmosphere. *Science of The Total Environment* 512–513, 154–166. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.01.009>

Rivas, I., Beddows, D.C.S., Amato, F., Green, D.C., Järvi, L., Hueglin, C., Reche, C., Timonen, H., Fuller, G.W., Niemi, J.V., Pérez, N., Aurela, M., Hopke, P.K., Alastuey, A., Kulmala, M., Harrison, R.M., Querol, X., Kelly, F.J., 2020. Source apportionment of particle number size distribution in urban background and traffic stations in four European cities. *Environment International* 135, 105345. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.105345>

Schneider et al., 2016. ArcGIS basierte Lösung zur detaillierten, deutschlandweiten Verteilung (Gridding) nationaler Emissionsjahreswerte auf Basis des Inventars zur Emissionsberichterstattung.

Sun, J., Birmili, W., Hermann, M., Tuch, T., Weinhold, K., Merkel, M., Rasch, F., Müller, T., Schladitz, A., Bastian, S., Löschau, G., Cyrys, J., Gu, J., Flentje, H., Briel, B., Asbach, C., Kaminski, H., Ries, L., Sohmer, R., Gerwig, H., Wirtz, K., Meinhardt, F., Schwerin, A., Bath, O., Ma, N., Wiedensohler, A., 2020. Decreasing trends of particle number and black carbon mass concentrations at 16 observational sites in Germany from 2009 to 2018. *Atmos. Chem. Phys.* 20, 7049–7068. <https://doi.org/10.5194/acp-20-7049-2020>

Sun, J., Birmili, W., Hermann, M., Tuch, T., Weinhold, K., Spindler, G., Schladitz, A., Bastian, S., Löschau, G., Cyrys, J., Gu, J., Flentje, H., Briel, B., Asbach, C., Kaminski, H., Ries, L., Sohmer, R., Gerwig, H., Wirtz, K., Meinhardt, F., Schwerin, A., Bath, O., Ma, N., Wiedensohler, A., 2019. Variability of black carbon mass concentrations, sub-micrometer particle number concentrations and size distributions: results of the German Ultrafine Aerosol Network ranging from city street to High Alpine locations. *Atmospheric Environment* 202, 256–268. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.12.029>

Tebert, Ch., Röding, L., Hartmann, I., Ulbricht, T., Lenz, V., 2020. Umweltzeichen Blauer Engel: Entwicklung von Vergabekriterien für Kaminöfen für Holz (No. 152/2020), Texte. Umweltbundesamt, Dessau.

van Pinxteren, D., Spindler, G., Fomba, K.W., Linuma, Y., 2016. Aerosole zur Indikation der Luftqualität im Raum Leipzig. Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie 7, 206.

Vanhainen, J., Mikkilä, J., Lehtipalo, K., Sipilä, M., Manninen, H.E., Siivola, E., Petäjä, T., Kulmala, M., 2011. Particle Size Magnifier for Nano-CN Detection. null 45, 533–542. <https://doi.org/10.1080/02786826.2010.547889>

Vu, T.V., Delgado-Saborit, J.M., Harrison, R.M., 2015. Review: Particle number size distributions from seven major sources and implications for source apportionment studies. *Atmospheric Environment* 122, 114–132. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.09.027>

Yi, H., Guo, X., Hao, J., Duan, L., Li, X., 2006. Characteristics of Inhalable Particulate Matter Concentration and Size Distribution from Power Plants in China. null 56, 1243–1251.

<https://doi.org/10.1080/10473289.2006.10464590>

Yinon, L., 2010. Ultrafine particle emissions: Comparison of waste-to-energy with coal- and biomass-fired power plants. Columbia.

Zech, D., Ulrich, S., Wülbbeck, H.-F., Stuible, A., Wapler, J., Valenbreder, P., Meyer, R., Miara, M., Hartmann, H., Reisinger, K., Werner, F., Orozaliev, J., Vajen, K., Schuhmann, R., Erler, R., Heinrich, P., Schröder, G., 2019. Evaluation des Marktanreizprogramms zur Förderung von Maßnahmen zur Nutzung erneuerbarer Energien im Wäremarkt im Förderzeitraum 2015 bis 2018 (No. 5258S02/FICHT-21624078-v1). Bundesministerium für Wirtschaft und Energie.