Methode zur Bilanzierung von Luftverunreinigungen anhand von Vertikal- und Horizontalprofilmessungen

Von der Fakultät Energie-, Verfahrens- und Biotechnik
der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde
eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von

Ulrich Vogt

aus Aalen

Hauptberichter:	**Prof. Dr.-Ing. habil. G. Baumbach**
Mitberichter:	**Prof. Dr. J. Baumüller**
Tag der mündlichen Prüfung:	04.11.2010

Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik der Universität Stuttgart
Abteilung Reinhaltung der Luft
2010

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Abteilung Reinhaltung der Luft am Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK), ehemals Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen (IVD), der Universität Stuttgart.

Die wissenschaftliche Betreuung erfolgte durch meinen Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. Günter Baumbach, dem Leiter der Abteilung Reinhaltung am IFK. Ihm möchte ich für seine Unterstützung, die er mir stets zukommen ließ, besonders danken. Durch sein Engagement war es mir erst möglich, die meiner Dissertation zugrunde liegenden Projekte erfolgreich durchzuführen. Des Weiteren gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. Jürgen Baumüller für sein Interesse an meiner Arbeit und für die Übernahme des Mitberichts.

Die beiden Projekte EVA und BAB II waren Verbundprojekte. D. h. es waren viele weitere wissenschaftliche Institute und Organisationen an der Durchführung der Projekte beteiligt. Ich möchte den zahlreichen Kolleginnen und Kollegen danken, die durch ihre Mitarbeit an den Projekten zum Gelingen meiner Doktorarbeit beigetragen haben.

Bei allen Kolleginnen, Kollegen und Mitarbeitern des IFK/IVD möchte ich mich für die sehr gute Zusammenarbeit über all die Jahre, das hervorragende Arbeitsklima und die daraus entstandenen Freundschaften bedanken. Mein Dank gilt insbesondere Ing. Dieter Straub, Dr.-Ing. Konrad Glaser, Dr.-Ing. Anja Dreiseidler, Dr.-Ing. Markus Michel und Dipl.-Ing. Alexander Erban. Die Projekte waren sehr arbeitsintensiv. Somit konnten sie nur mit sehr viel helfenden Händen bewältigt werden. Ich möchte mich ausdrücklich bei allen studentischen Hilfskräften, Praktikanten, Studien- und Diplomarbeitern bedanken, die durch Ihren Einsatz einen ganz wesentlichen Anteil am Gelingen meiner Doktorarbeit hatten.

Ein ganz besonderer Dank gilt meiner Familie, die mich über die Jahre unterstützt hat: Meinen Eltern Gertrud und August Vogt, die mir durch ihre Unterstützung ein Studium ermöglicht haben. Meinen Schwestern Christine und Daniela und insbesondere meiner Nichte Melanie, die sich durch das Korrekturlesen der Dissertation und die Organisation der Doktorfeierlichkeiten ganz besonders engagiert hat.

Bei meinen Freunden möchte ich mich bedanken für ihre Geduld und ihr Verständnis, das sie mir entgegengebracht haben, wenn ich aufgrund von Arbeiten an meiner Dissertation Freizeittermine nicht wahrnehmen konnte.

„Der Berg beginnt im Tal."

Dieser Spruch lässt sich auch auf die Anfertigung einer Dissertation anwenden.

Der Berg ist erklommen!

Stuttgart, im November 2010 Ulrich Vogt

Inhaltsverzeichnis

Formelzeichen V
Abkürzungen VII
Kurzfasssung X
Abstract XI

1 Einleitung 1
1.1 Ausgangslage 1
1.2 Aufgabenstellung und Zielsetzung 3

2 Luftverunreinigungen in der Atmosphäre 6
2.1 Anthropogene Emissionen 7
2.2 Einflüsse auf Luftverunreinigungen von der Emission zur Immission 9

3 Methoden zur Bestimmung von Emissionen 11
3.1 Emissionsmessungen 11
3.2 Experimente in der Atmosphäre 14
3.3 Emissionsmodellierung zur Erstellung von Emissionskatastern 20
3.3.1 Unsicherheiten von Emissionskatastern 22

4 Bilanzierung von Luftverunreinigungsmassenströmen auf der Basis von Messungen im Luv und Lee von Emissionsquellen 24
4.1 Theoretische Grundlagen der Bilanzierung von Luftverunreinigungen 24
4.2 Getroffene Annahmen zur Vereinfachung der Bilanzierung von Luftverunreinigungen 27
4.3 Generelles Messkonzept 31
4.4 Eingesetzte Messsysteme 32
4.4.1 Fesselballonmesssystem 32
4.4.2 Luftschiffmesssystem 37
4.4.3 Messtürme 38

5 Anwendungsfall 1: Bilanzierung der gesamten Emissionen einer Stadt im Projekt EVA – Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze 42
5.1 Konzeption des Projekts EVA 42
5.1.1 Eingesetzte Messsysteme und beteiligte Gruppen 44
5.1.2 Qualitätssicherung im Rahmen von EVA 45
5.2 Eigene Bilanzmethode zur Auswertung der EVA-Messungen 45
5.2.1 Vertikal- und Horizontalprofile 46
5.2.2 Meteorologische Bedingungen während der Messkampagne 49
5.2.3 Ebenenbestimmung, Projektion der Messpunkte auf die Bilanzebene und Interpolation der Messdaten auf der Bilanzebene 53
5.2.4 Berechnung von NO_x-Konzentrationen aus NO_2-Daten des Luftschiffs 58
5.2.5 Anwendung der eigenen Bilanzmethode auf die NO_x-Daten 59
5.2.5.1 Angleichung der Luftmassenströme in der Luv- und Lee-Ebene – Herstellung von Divergenzfreiheit 60
5.2.5.2 Berechnung der NO_x-Massenströme durch die Luv- und Lee-Bilanzebenen 61
5.2.5.3 NO_x-Massenstrombilanzierung der gesamten Stadt mittels Plumeabschätzung 62

5.3 Vergleich der über Luftmassenbilanz bestimmten Emissionen mit berechneten Emissionen aus der Emissionsbilanzierung ... 64
5.3.1 Ergebnisse der Emissionsmodellierung ... 64
5.3.2 Mit anderen Methoden bestimmte NO_x-Emissionen ... 65
5.3.2.1 Flugzeugmessungen ... 65
5.3.2.2 Source-Tracer-Methode ... 68
5.3.3 Vergleich der Ergebnisse von verschiedenen Methoden zur Emissionsbestimmung im Projekt EVA ... 69

6 Anwendungsfall 2: Bilanzierung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf einer Autobahn im Projekt BAB II ... 72
6.1 Konzeption des Projekts BAB II ... 72
6.1.1 Eingesetzte Messsysteme und beteiligte Gruppen ... 73
6.1.2 Qualitätssicherung im Rahmen von BAB II ... 75
6.2 Anwendung der Bilanzmethode auf die BAB II-Daten ... 77
6.2.1 Beschreibung der Methode ... 77
6.2.2 Vertikalprofile und Isoplethendiagramme ... 79
6.2.3 Horizontalverteilung senkrecht zur Autobahn ... 86
6.2.4 Bestimmung der NO_x-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen ... 87
6.2.5 Vergleich von NO_x-Emissionsfaktoren ... 93
6.2.6 Bestimmung der CO-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen ... 98
6.2.7 Vergleich von CO-Emissionsfaktoren ... 98
6.2.8 CO_2-Vertikalprofilmessungen ... 100
6.2.9 Bestimmung der VOC-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen ... 101
6.2.10 Vergleich von Emissionsfaktoren für VOC (Flüchtige Organische Verbindungen) ... 106
6.2.11 Berechnung der Partikelemissionen aus Messungen ... 111
6.2.12 Vergleich von Emissionsfaktoren für Partikel ... 119
6.2.13 Bestimmung der Rußpartikelemissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen ... 124
6.2.14 Vergleich von Ruß-Emissionsfaktoren ... 128

7 Zusammenfassung, Schlussfolgerungen und Ausblick ... 131
7.1 Zusammenfassung ... 131
7.2 Schlussfolgerungen ... 133
7.3 Ausblick ... 134

8 Literatur ... 135

Anhang

Formelzeichen

Formelzeichen	Einheit	Bedeutung
a_0, a_1, a_2	-	Koeffizienten
A_F	m²	Frontfläche
B	Grad, Min., Sek.	Breitengrad des Messpunkts M
B_i	-	Regressionskoeffizienten
c	µg/m³	Massenkonzentration
c	ppbv	Volumenmischungsverhältnis – parts per billion (10^{-9})
c_{ref}	µg/m³	Referenzkonzentration
c_{AdvF+} , c_{AdvF-}	µg/m³	Massenkonzentration des advektiven Zu- und Abflusses durch die Bilanzfrontfläche
d	m	Ebenenkoordinate
E_{ci}	kg	Innerhalb des Untersuchungsgebiets freigesetzten Emissionen der betrachteten Luftverunreinigung i
EF_{LDV}	g/km	Emissionsfaktor für den Leichtverkehr
EF_{HDV}	g/km	Emissionsfaktor für den Schwerverkehr
EF_{Alle}	g/km	Emissionsfaktor für Fahrzeuge des Leicht- und Schwerverkehrs
g	-	Umrechnungsfaktor auf metrische Skalierung
K	-	Konstante
L	Grad, Min., Sek.	Längengrad des Messpunkts M
M		Summe der Einzelunsicherheiten m
m		Einzelunsicherheit
$\dot{m}_{AdvF+}$, $\dot{m}_{AdvF-}$	kg/h	Advektive Zu- und Abflüsse über die Frontflächen
$\dot{m}_{TurF+}$, $\dot{m}_{TurF-}$	kg/h	Turbulente Zu- und Abflüsse über die Frontflächen
$\dot{m}_{AdvS+}$, $\dot{m}_{AdvS-}$	kg/h	Advektive Zu- und Abflüsse über die Seitenflächen
$\dot{m}_{TurS+}$, $\dot{m}_{TurS-}$	kg/h	Turbulente Zu- und Abflüsse über die Seitenflächen
$\dot{m}_{KonD+}$, $\dot{m}_{KonD-}$	kg/h	Konvektive Zu- und Abflüsse über die Deckfläche
$\dot{m}_{Chem+}$, $\dot{m}_{Chem-}$	kg/h	Quellen und Senken durch chemische Umwandlung
$\dot{m}_{Dep-}$	kg/h	Senke durch trockene Deposition
$\dot{m}_{Em+}$:	kg/h	freigesetzte Emissionen
n	-	Anzahl
P_1	-	Bezugspunkt
Q	kg/(km*h)	Quellstärke
R	-	Korrelationskoeffizient

R^2	-	Bestimmtheitsmaß
s, σ_y		Standardabweichung der Messwerte
$u(y)$	%	relative Unsicherheit des Mittelwerte $\bar{y}$
$\dot{V}$	m³/s	Luftvolumenstrom
$v_\perp$	m/s	zur Bilanzfrontfläche senkrechte Komponente der Windgeschwindigkeit v
V_L	Grad, Min., Sek.	Längengrad des Punkts P_1
V_B	Grad, Min., Sek.	Breitengrad des Punkts P_1
$\vec{V}$	m/s	dreidimensionalen Windvektor an den Bilanzflächen
x_i		unabhängige Variablen
y		abhängige Variable
$\bar{y}$		Mittelwert der Messwerte
$[CO]_{Quelle}$	kg/h	CO-Emissionsrate
$[SF_6]_{Quelle}$	kg/h	Emissionsrate des Tracers SF_6
$[CO]_{Rezeptor}/[SF_6]_{Rezeptor}$	-	Konzentrationsverhältnis am Rezeptorstandort
Griechische Formelzeichen		
β	Grad	Winkel der Ebene zum Längengrad
$\frac{\partial m}{\partial t}$	kg/h	zeitliche Änderung der Masse innerhalb des Bilanzvolumens
δ	Grad	Neigungswinkel der Bilanzebene zum Rechtswert
ρ	kg/m³	Dichte der betrachteten Komponente

Abkürzungen

APS	Time-of-Flight-Partikelmessgerät -> Partikelanzahl
ASS	Abteilung Arbeitssicherheit und Strahlenschutz, Forschungszentrum Jülich
BAB	Bundesautobahn
BAB I BAB II	Projekt: Experimentelle Bestimmung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf Autobahnen und Vergleich mit berechneten Emissionen
BASF	BASF AG, Ludwigshafen
BC	Black Carbon: hochpolymere bis grafitische Form des Kohlenstoffs mit einem molaren Wasserstoff/Kohlenstoff-Verhältnis von höchstens 0,2
BERLIOZ	Berlin-Ozon-Experiment
BImSchG	Bundesimmissionsschutzgesetz
BImSchV	Verordnung zum Bundesimmissionsschutzgesetz
BMBF	Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie
BTX	Sammelbegriff für die flüchtigen organischen Verbindungen Benzol, Toluol, Xylole
BUGH	Bergische Universität Gesamthochschule Wuppertal
CSSR	Tschechoslowakische Sozialistische Republik (bis 1990)
CTM	Chemie-Transport-Modell
CVS	Constant Volume Sampler: Methode der Verdünnung von Autoabgasen zur Erzielung eines konstanten Abgasvolumenstroms bei Abgasrollenprüfstandsmessungen
DC	Diffusion Charger: Messgerät zur Bestimmung der aktiven Oberfläche von Partikeln in $\mu m^2/cm^3$
DDR	Deutsche Demokratische Republik (bis 1989)
DENOX	Entfernung von Stickstoffoxiden aus den Abgasen mit Hilfe von Katalysatoren
DOAS	Differenzielle optische Absorptionsspektroskopie
DQZ	Datenqualitätsziel
DWD	Deutscher Wetterdienst
EC	Elemental Carbon: elementarer Kohlenstoff mit einer Grafitgitterstruktur
ELPI	Electrical-Low-Pressure-Impactor -> Partikelanzahl
EVA	Verbundvorhaben EVA: Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt
FID	Flammenionisationsdetektor
FORD	Fordforschungszentrum Aachen
GC	Gaschromatograph
GPS	Global Positioning System: Satellitengestützte Bestimmung der Ortskoordinaten
HBEFA	Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs
HDV	Heavy duty vehicles: Schwerverkehr Fahrzeuge > 3,5 t
ICG2	Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 2: Chemie der Belasteten Atmosphäre, Forschungszentrum Jülich
IER	Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart

IFU	Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe
ISD	Institut für Statik und Dynamik der Luft- und Raumfahrtkonstruktionen, Universität Stuttgart
IVD / IFK	Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, Universität Stuttgart seit 19.10.2009 Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik
Kfz	Kraftfahrzeug
kt	Kilotonnen
KW	Kohlenwasserstoffe
KBA	Kraftfahrt-Bundesamt
LDV	Low duty vehicles: Leichtverkehr Fahrzeuge < 3,5 t
LIDAR	Light Detecting and Ranging
Lkw	Lastkraftwagen
LVS	Low volume spampler: Kleinfiltergerät
m ü.G.	Meter über Grund: Im Gegensatz zu m NN = Meter über Normalnull
MEZ	Mitteleuropäische Zeit
MESZ	Mitteleuropäische Sommerzeit
N10	Partikelanzahl in 1/cm³ für Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser < 10 µm
NEFZ / NEDC	Neuer Europäische Fahrzyklus / New European Driving Cycle: In Europa gültiger Fahrzyklus für Abgasrollenprüfstände. Er beinhaltet den ECE-City-Zyklus und den EUDC (außerstädtischen Fahrzyklus)
NIST	National Institute for Standards and Technology, Washington (USA)
NMHC / NMVOC	Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (Non Methane Hydrocarbons) / Flüchtige Organische Verbindungen ohne Methan (Non Methane Volatile Organic Compounds).
NWG	Nachweisgrenze
OC	Organic carbon: organischer Kohlenstoff (PAK, VOC etc.)
OLAK	Ozon-Lidar-Aerosol-Korrektur
OP	Operationsplan
OPC	Optical particle counter: Optischer Partikelzähler, hier: Streulichtfotometer
PAK / PAH	Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe / Polycyclic Aromatic Hydrocarbons
PAN	Peroxiacetylnitrat
PBL	Planetary Boundary Layer: Planetare Grenzschicht
Pkw	Personenkraftwagen
PM_{10}	Partikel (Particulate Matter – PM) mit einem aerodynamischen Durchmesser < 10 µm
$PM_{2,5}$	Partikel (Particulate Matter – PM) mit einem aerodynamischen Durchmesser < 2,5 µm
PSI	Paul-Scherrer-Institut, Villingen (Schweiz)
QS / QA	Qualitätssicherung / Quality Assurance
RADAR	Radio Detecting and Ranging
RASS	Radio Acoustic Sounding System
SODAR	Sound Detecting and Ranging
SMPS	Scanning Mobility-Particle-Sizer -> Partikelanzahl

SLOPE	Schauinsland Ozone Precursor Experiment
SOP	Special Observation Period
TC	Total carbon: totaler Kohlenstoff (als Summe aus EC, primärem OC und sekundärem OC)
TFS	Troposphärenforschungsschwerpunkt
TVOC/THC	Total volatile organic compounds / total hydrocarbons: Gesamtkohlenwasserstoffe
UBA	Umweltbundesamt
UNECE	United Nations Economic Commission for Europe
UNICOP	Institut für Chemie, Universität Kopenhagen
UTC	Universal Time Coordinate: Zeit am Nullmeridian, im vorliegenden Fall: UTC + 2 Stunden = Lokalzeit
V0.25, V0.64, V1	Volumen für Partikel kleiner 0,25, 0,64 bzw. 1,0 µm Durchmesser. In dieser Arbeit: Berechnung des Partikelvolumens (durch Annahme) von runden Partikeln.
VOC / HC	Flüchtige Organische Verbindungen (Volatile Organic Compounds / Hydrocarbons): Sammelbegriff für Hunderte von Kohlenwasserstoffverbindungen wie Alkane, Alkene, Aromaten, oxigenierte und halogenierte Kohlenwasserstoffe etc.
WG	Windgeschwindigkeit
WR	Windrichtung
ZUF	Zentrum für Umweltforschung, Universität Frankfurt

Kurzfassung

Ziel dieser Arbeit ist es, eine Methode zu beschreiben, mit deren Hilfe die in einem Untersuchungsgebiet freigesetzten Emissionen von Luftverunreinigungen durch Messungen in der Außenluft bestimmt werden können. Mit Hilfe von Vertikal- und Horizontalprofilmessungen konnten die Konzentrationsverteilungen im Luv und Lee von Emissionsquellen bestimmt werden. Die Messergebnisse wurden verwendet, um aus den Konzentrationsdifferenzen zusammen mit Messergebnissen von meteorologischen Parametern die Massenströme der betrachteten Luftverunreinigungen zu berechnen und eine Massenbilanz für ein Untersuchungsgebiet aufzustellen. Auf diese Weise konnten die in den Untersuchungsgebieten freigesetzten Emissionen messtechnisch bestimmt und gleichzeitig durchgeführte Emissionsmodellrechnungen validiert werden. Die Validierung ist wichtig, da Emissionsmodellierungen in der Luftreinhaltung immer häufiger eingesetzt werden. Einerseits gehen die modellierten Emissionen als Eingangsdaten in die immer häufiger verwendeten Ausbreitungsmodellierungen ein, andererseits werden sie auch für Emissionsminderungsszenarien verwendet. Aufgrund der sehr weitreichenden politischen und finanziellen Folgen der Verwendung dieser Emissionsdaten, ist eine Überprüfung der Richtigkeit der berechneten Emissionen unumgänglich.

In dieser Arbeit wurden die Ergebnisse von zwei Experimenten zur Beschreibung der Bilanzierungsmethode herangezogen. Im ersten Projekt wurde erstmals die Bilanzierung aller freigesetzten Luftverunreinigungen einer ganzen Stadt durchgeführt. Es wurden über mehrere Monate Konzentrationsmessungen in und um Augsburg vorgenommen. Die vertikale und horizontale Verteilung der Luftverunreinigungen und der meteorologischen Parameter wurden im Luv und Lee der Stadt mit Hilfe von drei Fesselballonmesssystemen, einem ferngesteuerten Luftschiff, zwei Messflugzeugen und weiterer Messtechnik bestimmt. Für den gleichen Zeitraum wurde ein zeitlich, räumlich und stofflich hochaufgelöstes Emissionskataster für die Stadt erstellt. Anschließend wurden die gemessenen und bilanzierten Emissionen mit den modellierten Emissionen verglichen und somit das Emissionsmodell validiert. Die Fesselballon- und Luftschiffmessungen wurden vom IFK bzw. mit Unterstützung des IFK durchgeführt. Die großen Vorteile von Fesselballon- und Luftschiffmessungen haben sich auch bei diesem Experiment bewährt. Allerdings hat sich im Projekt EVA auch herausgestellt, dass eine Stadt wie Augsburg mit ihren ca. 255.000 Einwohnern eine horizontal sehr ausgedehnte Abgasfahne besitzt, die es gilt messtechnisch möglichst komplett zu erfassen. Für eine Stadt dieser Größe reichten die Fesselballon- und Luftschiffmessungen alleine nicht aus, um die ca. 9 km breite Abgasfahne in ausreichender Messdichte zu erfassen. Die Kombination dieser beiden Messsysteme mit Flugzeugmessungen hat sich jedoch zur Erfassung der gesamten Abluftfahne sehr gut bewährt. Der Vergleich der messtechnisch bestimmten mit den modellierten NO_x-Emissionen ergab für die meisten Daten, die sich für eine Auswertung eigneten, eine Übereinstimmung, wenn auch die modellierten Emissionen stets über den auf Messungen beruhenden lagen. Allerdings waren die Unsicherheiten, die sowohl bei den Messungen als auch bei den Berechnungsmethoden und den Emissionsmodellierungen anzusetzen waren, teilweise hoch.

Im zweiten Projekt fanden intensive Messungen und Untersuchungen an einer Autobahn statt. Der Vergleich der über die Vertikalprofilmessungen bestimmten NO_x-Emissionsfaktoren mit

den NO_x-Emissionsfaktoren, die über das Emissionsmodell bestimmt wurden, ergab deutliche Abweichungen. Besonders für den Schwerverkehr (HDV) lagen die gemessenen Emissionsfaktoren zwischen 20 und fast 100 % über den modellierten Emissionsfaktoren, die auf dem Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA Version 1.2) basierten. Aufgrund dieser Erkenntnisse wurden die Emissionsfaktoren für den Schwerverkehr (HDV) angepasst und liegen nun in der aktuellen Version 2.1 entsprechend höher. Der Vergleich der VOC-Emissionsfaktoren ergab sehr gute Übereinstimmung für die Komponenten BTX – Benzol, Toluol, Xylole - da für diese Komponenten den Emissionsmodellen genügend Messdaten zugrunde liegen. Für weitere VOC-Komponenten traten teilweise sehr große Abweichungen zwischen den gemessenen und den modellierten Emissionsfaktoren auf, wobei die gemessenen Emissionsfaktoren grundsätzlich höher ausfielen als die modellierten. Die Abweichungen lagen für manche Komponenten im Bereich von Faktor sechs bis 20! Der Grund ist in der dünnen Datenlage für die für die Emissionsmodellierung zur Verfügung stehenden VOC-Emissionsfaktoren zu suchen. Alle Partikel-Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, lagen in der gleichen Größenordnung wie die zum Vergleich verfügbaren Literaturwerte. Für die aktive Partikeloberfläche lagen die im Projekt BAB II ermittelten Werte etwas über den Literaturwerten, für alle anderen berechneten und verglichenen Partikelparameter lagen die im Projekt BAB II ermittelten Emissionsfaktoren innerhalb der maximalen und minimalen Vergleichswerte.

Der Vergleich der Emissionsfaktoren von Rußpartikeln ergab eine sehr gute Übereinstimmung sowohl im direkten Vergleich der Messergebnisse mit den Ergebnissen der Emissionsmodellierung im Projekt BAB II als auch im Vergleich mit Literaturwerten.

Abstract

The purpose of my thesis is to describe a method which allows for the determination of pollutant emissions within a particular area under investigation through ambient air measurements. The concentration distributions of sources of emission on the windward and lee side were defined through vertical and horizontal profile measurements. On the basis of the concentration differences from these results and in combination with meteorological parameters, mass flows of the examined air pollutants were calculated and a mass balance was established. This is how the emissions within the area under investigation could be determined meteorologically and model calculations of the emissions, conducted simultaneously, were validated. This validation is important as emission models are used more and more frequently in the field of air pollution control. On the one hand, modelled emissions are included as input data into the more and more common dispersion models and on the other hand, they are needed for emission reduction scenarios. As the political and financial consequences of using these emission data are significant, it is inevitable to verify the accuracy of the calculated emissions.

This thesis uses the results of two experiments to describe the balancing method. In the first project, the balancing of all emitted air pollutants was conducted for the first time for a whole city. Concentration measurements had been carried out for several months in and around Augsburg. The vertical and horizontal distribution of air pollutants and of meteorological pa-

rameters was determined on the city's windward and lee side by means of three tethered balloon measurement systems, a remote controlled airship, two aircrafts and further measurement equipment. For the same time period, an emission inventory was established for the city in a high temporal, spatial and substantial resolution. The measured and balanced emissions were then compared with the modelled results, and thus validated the emission model. The tethered balloon and airship measurements were carried out or supported by the IFK. The big advantages of conducting measurements with a tethered balloon or an airship have shown themselves in this experiment as well. What the EVA project has also shown, however, is that a city like Augsburg with a population of about 255,000 has a horizontally very broad exhaust gas plume, which is to be measured as completely as possible. For such a big city, tethered balloon and airship measurements were not enough to gather sufficient measurements for the determination of an exhaust gas plume of 9 km. What has proven itself for the determination of the complete plume, however, is the combination of these two measurement systems with aircraft measurements. The comparison of measured NO_x emissions with modelled ones gave equal results for most data which were suitable for an analysis, although the modelled values were constantly higher than the measured ones. But the instabilities for both the measurements and the calculation methods and emission models have partially been significant.

In the second project, extensive measurements and analyses were carried out along a motorway. The comparison of the NO_x emission factors determined through vertical profile measurements with the NO_x emission factors determined through an emission model revealed significant deviations. The deviations for heavy traffic were particularly important, with the measured emission factors being 20 % to almost 100 % higher than the modelled emission factors based on the Manual for Emission Factors (*Handbuch für Emissionsfaktoren*, HBEFA, Version 1.2). Following these results, the emission factors for heavy traffic have been readjusted upwards in the current version (2.1). The comparison of the VOC emission factors gave a very high consistency for the BTX components - benzene, toluene and xylene - as sufficient measurement data have been available for the emission models there. Other VOC components partly showed significant deviations between the measured and the modelled emission factors, with the measured factors lying principally higher than the modelled ones. The deviations for some components were six to 20 times higher! The reason for this is the fact that the data for the VOC emission factors available for the emission models have not been sufficient. All particle emission factors, which were determined in the BAB II project, were about the same scale as the reference values. The values for the active particle surface, determined in the BAB II project, were slightly higher than the reference values. For all other calculated and compared particle parameters, the emission factors determined in the BAB II project stayed within the maximum and minimum reference values.

The comparison of the emission factors of soot particles gave a very high consistency both in the direct comparison of the measurements with the results from the emission models of the BAB II project and in their comparison with reference values.

1 Einleitung

1.1 Ausgangslage

Die Verminderung der Luftverunreinigungen in der Atmosphäre ist seit Jahrzehnten ein erklärtes Ziel der deutschen Bundesregierung und der Europäischen Kommission. Von beiden Institutionen wurden zahlreiche Gesetze, Richtlinien und Verordnungen erlassen, welche die Einhaltung von Grenzwerten sowohl bei der Freisetzung von Luftverunreinigungen in die Atmosphäre als auch beim Auftreten als Immissionen festschreiben. Außerdem werden Forschungsprogramme auf dem Gebiet der Luftreinhaltung ausgeschrieben und Forschungsprojekte in großem Umfang finanziell unterstützt. Eines dieser Arbeit zugrundeliegenden Projekte wurde ebenfalls von der deutschen Bundesregierung, vom Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF), finanziert [1].

Die in Deutschland relevanten Emissionsquellen für Luftverunreinigungen sind hauptsächlich Verkehr, Industrie, Hausbrand und Kleinverbraucher, wobei abhängig von der betrachteten luftverunreinigenden Komponente der Verkehr in weiten Teilen Deutschlands die Hauptemissionsquelle darstellt [2]. Für die Komponenten NO_2 und PM_{10} (Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser < 10 µm) können momentan in vielen innerstädtischen Gebieten die nationalen Grenzwerte der 22. BImSchV [26] nicht eingehalten werden. Auch der Grenzwert für Benzol, der durch die EU-Richtlinie 2000/69/EG [3] auf 10 µg/m³ festgelegt und zwischen 2005 und 2010 schrittweise auf 5 µg/m³ abgesenkt wurde, konnte in der Vergangenheit örtlich, besonders in Straßennähe, nicht eingehalten werden [4]. Durch die Einführung der Dreiwegekatalysatoren und der sukzessiven Steigerung ihrer Anteile an der Gesamtfahrzeugflotte wird dieses Luftreinhalteproblem in Zukunft nur noch sehr vereinzelt auftreten. Die häufigsten Grenzwertüberschreitungen treten jedoch in den Sommermonaten für die Komponente Ozon auf [5], wobei als wichtige Voraussetzung für die Entstehung von bodennahem, troposphärischem Ozon, neben der Existenz der Vorläufersubstanzen Stickstoffoxide und Flüchtige Organische Verbindungen (VOC), günstige meteorologische Randbedingungen angesehen werden müssen. Diese Voraussetzungen sind nicht in jedem Sommer in gleichem Maße gegeben, so dass die Grenzwertüberschreitungen für Ozon starken jährlichen Schwankungen unterworfen sind.

Neben Emissions- und Immissionsmessungen stehen seit vielen Jahren Emissions- und Ausbreitungsmodelle zur Verfügung, um die Qualität der Außenluft und die Auswirkungen von Emissionsminderungsmaßnahmen zu ermitteln. Nach der Feststellung der aktuellen Luftqualitätssituation, die oftmals auf Messungen basiert, können Emissionsminderungsszenarien und der Einsatz von Ausbreitungsmodellen helfen, die Auswirkung von Emissionsreduktionen auf die Luftqualität zu ermitteln. Im Zusammenhang mit der Modellierung der Entstehung und Ausbreitung von troposphärischem Ozon kommen Chemie-Transport-Modelle (CTM) zum Einsatz. Die Genauigkeit der Ausbreitungs- und Chemie-Transport-Modelle, und damit die Güte der Modellergebnisse, hängen wesentlich von der Genauigkeit der Eingabedaten ab. Die genaue Kenntnis der freigesetzten Emissionen und deren Lokalisierung gelten als äußerst

wichtig: zum einen für die Berechnung der Ausbreitung der Luftverunreinigungen, zum anderen zur Feststellung der Auswirkungen auf die Umgebung und zur Beurteilung der Effektivität von Emissionsminderungsmaßnahmen [6]. Die von unterschiedlichen Quellen für Luftverunreinigungen freigesetzten Emissionen werden üblicherweise in Emissionskatastern zusammengefasst. Für die betrachtete Komponente werden die Emissionen für eine horizontale Flächeneinheit (z. B. ein Raster von 50 x 50 km) aller dort vorhandenen Punkt-, Linien- und Flächenquellen erhoben. Ausgereifte Emissionsmodelle geben die Emissionen in räumlich, zeitlich und stofflich hochaufgelöster Darstellung aus. Die den Emissionsmodellen zugrundeliegenden Berechnungen gehen oftmals auf Messergebnisse zurück, allerdings können aufgrund der großen Anzahl von Einzelquellen (z. B. betrug 2005 der Kfz-Bestand in Deutschland 56,3 Mio. Fahrzeuge [7]) nicht alle Emissionen innerhalb eines größeren Gebiets einzeln gemessen werden. Grundsätzlich werden die Emissionen als Produkt aus Emissionsfaktor (z. B. 0,34 g NO_x/km) und Aktivität (z. B. 23.900 Fahrzeugkilometer) berechnet [8]. Die Berechnung der Emissionsfaktoren für den Straßenverkehr geht auf Emissionsmessungen auf Rollen- und Motorenprüfständen zurück, wobei die berechneten Emissionsfaktoren sehr stark von der Anwendung unterschiedlicher Fahrzyklen abhängen (z. B. ECE, US-Test-75 etc. [9]). Sowohl die Berechnung von mittleren Emissionsfaktoren für größere Fahrzeugschichten (z. B. Pkw Euro 3, Pkw-Ost 2-Takt etc.) als auch die Aufteilung der Fahrleistung auf die unterschiedlichen Straßenklassen (z. B. Autobahnen, Bundesstraßen, Landesstraßen außerorts etc.) und Fahrzeugkategorien (Pkw, leichte Nutzfahrzeuge, Lkw ohne Anhänger etc.) enthalten sehr viele statistische Daten und Annahmen. Hinzu kommen u. a. noch Annahmen über Verdunstungsemissionen während der Fahrt, Kaltstartzuschläge und Betankungsverluste [8].

In der Vergangenheit wurden die Emissionsmodelle immer detaillierter und aufwändiger in der Berechnung der Emissionen [10], [11], [12]. Aufgrund der sehr weitreichenden politischen und finanziellen Folgen von Emissionsminderungsszenarien, die auf die Anwendung von Emissionskatastern und Emissionsmodellierungen zurückgehen, ist eine Überprüfung der Richtigkeit der getroffenen Annahmen und der berechneten Emissionen unumgänglich. Eine praxisnahe Überprüfung der berechneten Emissionen lässt sich durch Konzentrationsmessungen in der Außenluft in unmittelbarer Nähe der Emissionsquelle realisieren, z. B. durch Messungen im Luv[1] und Lee[2] einer Emissionsquelle oder eines Gebiets mit mehreren Emissionsquellen und anschließender bilanzierender Berechnung der **gemessenen Emissionen**[3], die dann den **berechneten Emissionen**[4] gegenübergestellt werden. Für größere Emissionsgebiete sind aus der Literatur hauptsächlich Ergebnisse von Flugzeugmessungen bekannt [13], [14], [15].

1 Luv: dem Wind zugewandte Seite
2 Lee: dem Wind abgewandte Seite
3 Im Folgenden wird der Ausdruck ’gemessene Emissionen’ für die Emissionen verwendet, die auf Immissionsmessungen zurück gehen, wobei auch Berechnungen zur Anwendung kommen, bis das Endergebnis vorliegt.
4 Im Folgenden wird der Ausdruck ’berechnete Emissionen’ für die Emissionen verwendet, die auf die Berechnung mit Emissionsfaktoren und Aktivitäten zurückgeführt werden können, die meist in Emissionskatastern zusammengefasst und mit Hilfe von Emissionsmodellen berechnet werden.

Für die messtechnische Überprüfung der Emissionen des Straßenverkehrs bieten sich neben Experimenten in der Atmosphäre auch Tunnelmessungen an. In einer Reihe von Studien wurden Emissionsfaktoren für die gängigen Luftverunreinigungen, die durch den Pkw- und Lkw-Verkehr verursacht werden, bestimmt [16] bis [23], [24], [25], [27], [28], [29] bis [75].

1.2 Aufgabenstellung und Zielsetzung

Die beschriebene Notwendigkeit der Überprüfung von berechneten Emissionen durch Konzentrationsmessungen in der Außenluft wurde vom Autor dieser Arbeit in Zusammenarbeit mit Projektpartnern aufgegriffen. Im Rahmen der vorliegenden Dissertation sollte eine möglichst vereinfachte Methode entwickelt werden, die es ermöglicht, aus Ergebnissen von Konzentrationsmessungen in der Außenluft über Berechnungen und Bilanzierungen auf die in einem Untersuchungsgebiet freigesetzten Emissionen rückschließen zu können. Aus Bild 1.1 ist u. a. das **grundsätzliche Vorgehen** zur Entwicklung dieser Methode ersichtlich, das die Grundlage für die in den folgenden Kapiteln näher ausgeführten Berechnungen und Bilanzierungen sowie deren Ergebnisse darstellt.

Wie im roten Pfad in Bild 1.1 dargestellt, werden die Emissionen von ihren Quellen in die Atmosphäre freigesetzt; über die Transmission werden sie zu Immissionen. An den Bilanzgrenzen finden Konzentrationsmessungen statt, die als Basis für die Bilanzrechnungen dienen. Als Ergebnis stehen schließlich die indirekt gemessenen Emissionen zur Verfügung (rote Kästchen). Gleichzeitig ist das Vorgehen bei der Berechnung der Emissionen ausgehend von den Emissionsmessungen über Emissionsfaktoren, Emissionsmodellierung und Emissionskataster (blaue Kästchen) dargestellt. Auf diese Weise kann eine Validierung der berechneten Emissionen stattfinden, falls die indirekt gemessenen und die berechneten Emissionen im Rahmen der Messunsicherheiten nicht signifikant voneinander abweichen. Bei signifikanten Abweichungen der Ergebnisse voneinander müssen die möglichen Ursachen hierfür gefunden und die nötigen Verbesserungen in den Emissionsmodellen implementiert werden, vorausgesetzt die Abweichungen lassen sich nicht auf Unzulänglichkeiten auf Seiten der Konzentrationsmessungen und der daraus resultierenden Berechnungen zurückführen. In grauer Farbe sind Schritte dargestellt, die im Rahmen der Projekte nicht oder nur teilweise durchgeführt wurden, die aber nochmals die Notwendigkeit und Wichtigkeit der Verbesserung von Emissionsmodellen verdeutlichen sollen. U. a. dienen die über Emissionsmodelle berechneten und in Emissionskatastern zusammengefassten Emissionen entweder direkt oder indirekt über Ergebnisse von Ausbreitungsmodellierungen der Erstellung von Emissionsreduktionsszenarien. Die Modellierung von komplexen atmosphärischen Prozessen mit Hilfe von Computerprogrammen ist stets bestimmten Unsicherheiten unterworfen, doch sollten diese zum einen bekannt und zum anderen so weit wie möglich reduziert werden. Deshalb wird ständig an der Verbesserung der Simulationsmodelle gearbeitet. Den Eingabedaten kommt dabei eine zentrale Rolle zu. In verschiedenen Arbeiten wurde herausgefunden, dass die Emissionsdaten als wichtigste Eingabedaten für Ausbreitungsmodelle gelten, so dass deren Genauigkeit in hohem Maße die Genauigkeit der Ergebnisse der Ausbreitungsmodellierung beeinflussen [76] – [79]. Außerdem gibt es Hinweise aus verschiedenen Studien, dass Emissionsdaten teilweise um den

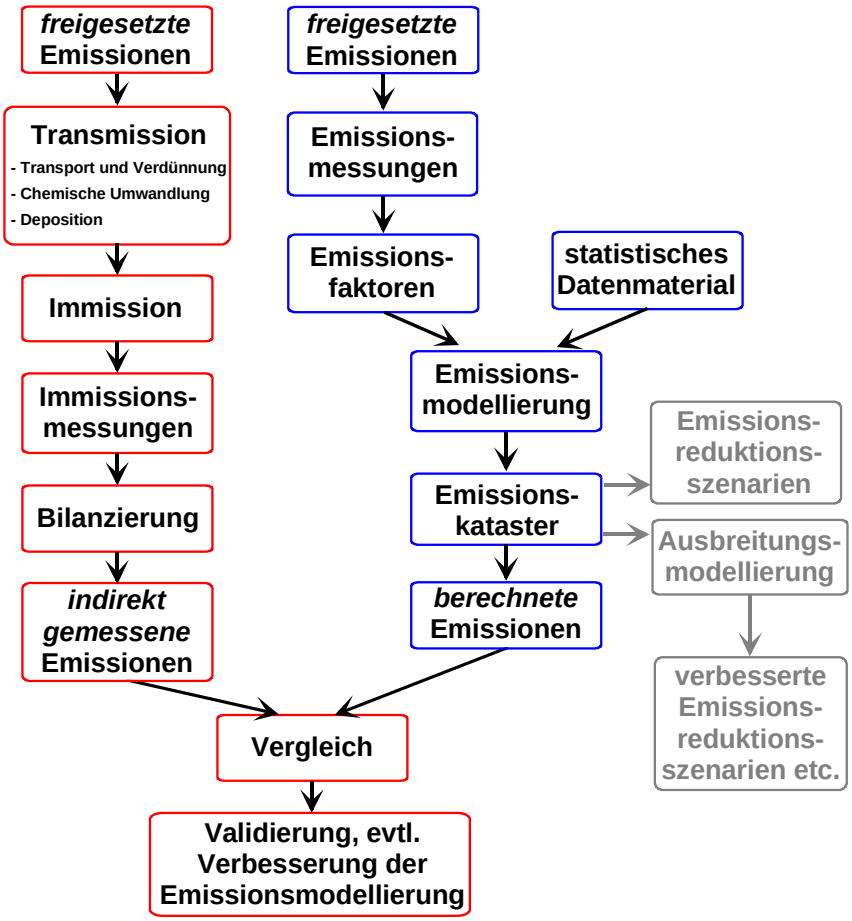


Bild 1.1: Vorgehen bei der Bilanzierung von Luftverunreinigungen und bei der Erstellung von Emissionskatastern. Anwendungsbeispiele für Emissionskataster.
Rote Kästchen: in dieser Arbeit verwirklicht. Blaue Kästchen: in beschriebenen Projekten durchgeführt, aber nicht Grundlage dieser Arbeit. Graue Kästchen: nicht Gegenstand dieser Arbeit, aber grundlegend für Emissionsbetrachtungen

Faktor 2 oder mehr falsch erhoben wurden [80], [81]. Diese Vermutungen veranlassten mehrere Gruppen, die sich mit der Erhebung von Emissionsdaten, mit Ausbreitungsmodellierung bzw. Konzentrationsmessungen in der Außenluft beschäftigen, sich in zwei Verbundprojekten zusammenzuschließen und gemeinsam entsprechend dem Vorgehen in Bild 1.1 die Emissionen einer Stadt (Projekt EVA) sowie die Emissionen einer Autobahn (Projekt BAB II) einerseits messtechnisch und andererseits über Emissionsmodellierung zu bestimmen und somit weitere Erkenntnisse zur Verbesserung der Emissionsmodellierung zu erlangen.

Im Jahre 1998 wurde erstmals die Bilanzierung aller freigesetzten Luftverunreinigungen einer ganzen Stadt, im Rahmen des Verbundvorhabens EVA (Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt), durchgeführt. Es wurden über mehrere Monate Immissionsmessungen an mehreren Messstationen in und um Augsburg durchgeführt. Die vertikale und horizontale Verteilung der Luftverunreinigungen und der meteorologischen Parameter wurden hauptsächlich im Luv und Lee der Stadt mit Hilfe von zwei Messflugzeugen, drei Fesselballonmesssystemen, einem ferngesteuerten Luftschiff und Radiosondenaufstiegen an mehreren Tagen während unterschiedlicher Intensivmessphasen bestimmt. Gleichzeitig wurde

ein zeitlich, räumlich und stofflich hochaufgelöstes Emissionskataster für die Stadt erstellt und im Anschluss die gemessenen mit den berechneten Emissionen verglichen. Die Fesselballonmessungen wurden vom IFK und die Luftschiffmessungen mit Unterstützung des IFK durchgeführt. Die Ergebnisse der Messungen, der anschließenden Berechnungen und Bilanzierungen bilden u. a. die Grundlage dieser Arbeit.

Im Jahr 2001 fand das Projekt BAB II (Experimentelle Bestimmung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf Autobahnen und Vergleich mit berechneten Emissionen; BAB = Bundesautobahn) statt. In diesem Projekt fanden intensive Messungen und Untersuchungen an einem Autobahnabschnitt der A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim statt. Das IFK war an diesem Projekt beteiligt und hat sich zusammen mit den anderen Projektteilnehmern zum Ziel gesetzt, die Emissionen des Straßenverkehrs an eben dieser Autobahn mit Hilfe von umfangreichen Konzentrationsmessungen zu bestimmen und mit den Ergebnissen von gleichzeitig durchgeführten Emissionsmodellierungen zu vergleichen. Gegebenenfalls sollten die Emissionsberechnungen auf diesem Wege verbessert werden. Nähere Ausführungen zu den Messungen, deren Ergebnisse und der Vergleich von gemessenen und berechneten Emissionen sowie deren Diskussion sind in Kapitel 6 zu finden.

In Kapitel 7 werden einerseits Empfehlungen unterbreitet, wie zukünftige Projekte mit verbesserten Messkonzepten und dadurch mit geringerem Aufwand erfolgreich durchgeführt werden können. Andererseits werden Vorschläge für mögliche Einsätze der Fesselballon- und Luftschiffmesstechnik gemacht.

2 Luftverunreinigungen in der Atmosphäre

In Bild 2.1 ist der Weg der Luftverunreinigungen von der Emission über die Transmission bis zur Immission anschaulich dargestellt. Der Übertritt der Luftverunreinigungen von der Quelle (z. B. Schornstein) in die Atmosphäre wird Emission genannt [82]. Die direkt in die Atmosphäre freigesetzten Luftverunreinigungen bezeichnet man als Primärkomponenten, wogegen die in der Atmosphäre durch chemische Reaktionen gebildeten Luftverunreinigungen sekundäre oder auch tertiäre Komponenten genannt werden. Außer chemischer Umwandlung können Luftverunreinigungen physikalische Verdünnung (advektive und konvektive Ausbreitung) und Deposition[1] (nasse und trockene Deposition) in der Atmosphäre erfahren, bevor sie von dort wieder entfernt werden. Alle genannten Prozesse, denen Luftverunreinigungen in der Atmosphäre ausgesetzt sein können, werden unter dem Oberbegriff Transmission zusammengefasst. Beim Übergang der Luftverunreinigungen von der Atmosphäre auf Menschen, Pflanzen, Tiere, Gebäude (allgemein auf schutzbedürftige Güter), spricht man von Immission. Als Immissionen können die Luftverunreinigungen dann ihre oft schädliche Wirkung entfalten.

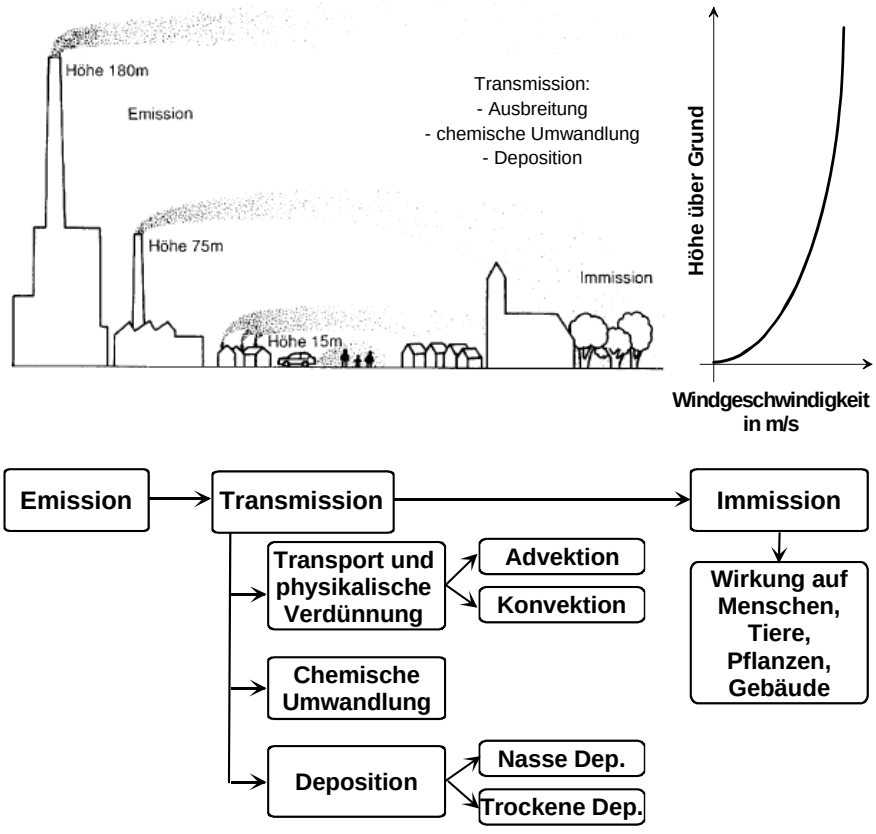


Bild 2.1: Weg der Luftverunreinigungen von der Emission über die Transmission (Ausbreitung, chemische Umwandlung, Deposition) zur Immission [83]

[1] *Deposition*: Ablagerung von Luftverunreinigungen sowohl durch Diffusion und Gravitation als auch durch physikalische Vorgänge und chemische Reaktionen an unterschiedlichsten Oberflächen

2.1 Anthropogene Emissionen

Die vom Menschen direkt oder indirekt freigesetzten Luftverunreinigungen lassen sich grob in die folgenden Emittentengruppen unterteilen: Verkehr, Industrie, Haushalte und Kleinverbraucher, Kraft- und Fernheizwerke, Lösemittelanwendung und Landwirtschaft.

In Tabelle 2.1 sind die Emissionen in der Bundesrepublik Deutschland für die Jahre 1990 und 2006 für die Komponenten NO_x, SO_2, CO, Gesamtstaub, PM_{10} und NMVOC dargestellt [4].

Tabelle 2.1: Relative Anteile der Emissionen in % in der Bundesrepublik Deutschland für die Jahre 1990 und 2006 für die Komponenten NO_x, SO_2, CO, Gesamtstaub, PM_{10} (1995 anstatt 1990) und NMVOC getrennt nach den Emissionsquellen: Industrie, Verkehr, Haushalte und Kleinverbraucher, Lösemittelanwendung und Landwirtschaft. Gesamtemissionen in kt [4].

		Industrie	**Verkehr**	**Haushalte und Kleinverbraucher**	**Kraft- und Fernheizwerke**	**Lösemittelanwendung**	**Landwirtschaft**	**gesamt**
Komponente	**Jahr**	in %	in %	in %	in %	in %	in %	**in kt**
NO_x	**1990**	13	52	10	21	-	4	**2.862**
	2006	12	50	11	20	-	6	**1.394**
SO_2	**1990**	19	2	17	62	-	-	**5.353**
	2006	32	-	14	54	-	-	**558**
CO	**1990**	12	54	31	2	-	-	**11.212**
	2006	30	38	28	4	-	-	**575**
Gesamtstaub	**1990**	29	3	12	56	-	-	**2.677**
	2006	61	20	14	5	-	-	**271**
PM_{10}	***1995***	42	27	10	14	-	8	**240**
	2006	47	22	6	15	-	11	**194**
NMVOC	**1990**	3	38	12	8	31	9	**3.768**
	2006	5	11	8	4	54	19	**1.349**

Stickstoffoxide (NO_x = NO + NO_2) entstehen nahezu ausschließlich bei Verbrennungsprozessen in Anlagen und Motoren durch Oxidation des im Brennstoff (Brennstoff-NO) und in der Verbrennungsluft (Thermisches NO) enthaltenen Stickstoffs mit dem Sauerstoff der Verbrennungsluft. Es wird überwiegend Stickstoffmonoxid (NO) emittiert, das dann in der Außenluft hauptsächlich durch Reaktion mit Ozon zu Stickstoffdioxid (NO_2) oxidiert. Die Quellgruppe

Verkehr stellt mit 50 % die mit Abstand größte Quelle dar. Von 1990 bis 2006 nahmen in Deutschland die NO_x-Emissionen aller Quellen kontinuierlich von 2.862 kt auf 1.394 kt ab, was einer Reduktion um 49 % entspricht.

Schwefeldioxid (SO_2) entsteht überwiegend bei Verbrennungsprozessen durch Oxidation des im Brennstoff enthaltenen Schwefels. Es treten aber auch bei verschiedenen industriellen Prozessen SO_2-Emissionen auf. Im Jahr 2006 stammten 54 % der SO_2-Emissionen aus Kraftwerken, die somit die Hauptquelle darstellen. SO_2 konnte in den Jahren 1990 bis 2006 sehr stark, um 90 %, reduziert werden.

Kohlenmonoxid (CO) entsteht überwiegend als Produkt unvollständiger Verbrennung in Motoren und kleineren Feuerungsanlagen, zu einem geringeren Anteil auch in industriellen Prozessen. Auch für die CO-Emissionen, wie schon bei den NO_x-Emissionen, stellt der Verkehrssektor (2006: 38 %) die Hauptemissionsquelle dar.

Partikelemissionen werden vom Umweltbundesamt [4] u. a. auch als **Gesamtstaub** angegeben, wobei es sich um alle emittierten festen Staubfraktionen handelt: Grobstaub (> 2,5 µm), Feinstaub (0,1 – 2,5 µm) und Ultrafeinstaub (< 0,1 µm). Staub wird einerseits bei Verbrennungsprozessen in Industrie, Haushalten und Verkehr, andererseits aber auch bei industriellen Produktionsprozessen, Umschlag von Schüttgütern, Staubaufwirbelung und Reifenabrieb der im Straßenverkehr freigesetzt wird. Die größten Gesamtstaubemissionen stammen aus dem Industriesektor (2006: 61 %).

Partikelemissionen werden vom Umweltbundesamt [4] nicht nur als Gesamtstaub angegeben, sondern seit 1995 auch als **PM_{10}**: Hierbei handelt es sich um Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser von < 10 µm. PM_{10} wird wie Gesamtstaub bei Produktionsprozessen, Umschlag von Schüttgütern, Staubaufwirbelung und Reifenabrieb der im Straßenverkehr freigesetzt wird, aber auch bei Verbrennungsprozessen entstehen. Die größten PM_{10}-Emissionen stammen aus dem Industriesektor (2006: 47 %).

Die **Flüchtigen Organischen Verbindungen** (VOC) werden oftmals ohne den Methananteil (NMVOC -> VOC ohne Methan) betrachtet. Ein sehr hoher Anteil der NMVOC-Emissionen stammt aus der Lösemittelanwendung (2006: 54 %).

Betrachtet man die teils beträchtlichen Emissionsminderungen, die in den Jahren 1990 bis 2006 in Deutschland erzielt wurden, könnte man sich zu der Annahme verleiten lassen, dass Emissionsminderungen von Luftverunreinigungen in Zukunft nicht mehr weiter vorangetrieben werden müssen. Dem widerspricht allerdings die Tatsache, dass zum einen in den kommenden Jahren die von der EU in verschiedenen Richtlinien vorgeschriebenen Grenzwerte von Immissionskonzentrationen weiter abgesenkt werden (siehe Kapitel 1), wobei in vielen deutschen Städten diese Grenzwerte nicht eingehalten werden können, wenn keine drastischen Gegenmaßnahmen ergriffen werden, die in Luftreinhalteplänen definiert und dann umgesetzt werden müssen. Zum anderen hat sich Deutschland im Rahmen des UN/ECE-Übereinkommens zu weiteren Emissionsminderungen in den kommenden Jahren verpflichtet [4]. Um die angestrebten Ziele zu erreichen und auch die großen Herausforderungen im Bereich der Bekämpfung des Treibhauseffekts zu bestehen, müssen in den kommenden Jahren

weiterhin alle Anstrengungen unternommen werden die Emissionen von Luftverunreinigungen in Deutschland und weltweit weiter abzusenken.

2.2 Einflüsse auf Luftverunreinigungen von der Emission zur Immission

Die emittierten Luftverunreinigungen vermischen sich in der Außenluft, werden dort mit Umgebungsluft verdünnt und über kleinere oder größere Distanzen verfrachtet. Die Transportdistanz, der Grad der Verdünnung und die Verweilzeit der Luftverunreinigungen in der Atmosphäre werden von folgenden Faktoren beeinflusst, wobei sich einige der Faktoren wiederum gegenseitig beeinflussen:

- Höhe der Emissionsquelle über Grund
- Windgeschwindigkeit: Advektion und Reibungsturbulenz (mechanische Turbulenz)
- Konvektion (Thermische Turbulenz)
- Stabilität der Atmosphäre
- Chemische Reaktionsfähigkeit / Wasserlöslichkeit
- Deposition: trockene / nasse Deposition

Wie aus Bild 2.1 ersichtlich, befinden sich nicht alle Emissionsquellen von Luftverunreinigungen in gleicher Höhe über Grund. Kraftwerksemissionen, mit ihren großen Emissionsmassenströmen, werden über hohe Schornsteine in Höhen von 150 bis 200 m über Grund emittiert, wogegen Emissionen aus dem Haushaltsbereich in 10 bis 20 m und die Verkehrsemissionen in nur ganz geringer Höhe über dem Erdboden freigesetzt werden. Es ist offensichtlich, dass die Kraftwerksemissionen, verglichen mit den Verkehrsemissionen, nach der Freisetzung einen sehr viel weiteren Weg zurücklegen und dabei mit unbelasteten Luftmassen verdünnt werden, bis sie dann als Immission am Erdboden auftreten und wirksam werden. Die Transportdistanz von der Emission zur Immission ist bei Verkehrsemissionen i. A. sehr gering und damit auch deren Verdünnung. Hohe Immissionskonzentrationen in Straßennähe sind die Folge.

Je höher die Windgeschwindigkeit, desto größer ist das Luftvolumen pro Emissionseinheit, das zur Verfügung steht, wenn die Emissionen in die Umgebungsluft freigesetzt werden. Niedrigere Konzentrationen der Luftverunreinigungen in der Außenluft sind die Folge. Außerdem werden die freigesetzten Emissionen bei hoher Windgeschwindigkeit schneller von A nach B abtransportiert. Im Allgemeinen besitzt die Windgeschwindigkeit ein logarithmisches Profil und nimmt mit der Höhe über Grund zu (Bild 2.1 rechts). Die positive Wirkung advektiver Luftströmungen, d. h. Winde mit horizontaler Strömungsrichtung, auf die Ausbreitung und den Abtransport von Luftverunreinigungen wird durch die Rauigkeit des Untergrunds in Bodennähe herabgesetzt. Je größer die Bodenrauigkeit, hervorgerufen durch hohe und dichte Bebauung in Städten oder durch natürliche Hindernisse wie Bäume oder topografisch stark gegliedertes Gelände, desto stärker wird die Windströmung in Bodennähe abgebremst. Die Bodenrauigkeit reduziert also einerseits die Windgeschwindigkeit in Bodennähe, andererseits erzeugt sie mechanische Turbulenz (Reibungsturbulenz). Die ursprünglich gleichmäßige Luftströmung geht über in eine ungerichtete Bewegung mit sich ständig ändernder Richtung.

Diese beiden Effekte haben gegensätzliche Auswirkungen auf die Ausbreitung von Luftverunreinigungen. Eine Herabsetzung der Windgeschwindigkeit in Bodennähe bewirkt eine Herabsetzung des Verdünnungseffekts und damit eine Erhöhung der Konzentrationen. Turbulenz wiederum hat einen positiven Effekt auf die rasche Ausbreitung von Luftverunreinigungen. Je turbulenter eine Strömung, desto stärker ist die Vermischung und Verdünnung von belasteten mit unbelasteten Luftmassen.

Neben der Reibungsturbulenz existiert die thermische Turbulenz. Sie entsteht dadurch, dass sich tagsüber der Erdboden bei starker Sonneneinstrahlung erhitzt, so dass sich die über den Boden hinwegstreichenden Luftmassen durch Wärmeleitung ebenfalls erwärmen. Warme Luftmassen können in labiler Temperaturschichtung bis in große Höhen aufsteigen. Aufgrund des Massenausgleichs werden aber auch Luftmassen aus größeren Höhen Richtung Erdboden transportiert. Diese ständigen Auf- und Abwärtsbewegungen in der Atmosphäre werden Konvektion genannt und führen, wie die Advektion, zum raschen Abtransport und der Verdünnung von freigesetzten Luftverunreinigungen [214].

Sowohl die Advektion als auch die Konvektion werden von den Stabilitätsverhältnissen der Atmosphäre stark beeinflusst. Bei stabilen meteorologischen Bedingungen - im Extremfall handelt es sich um eine Temperaturinversion mit vertikaler Temperaturzunahme - werden Advektion und Konvektion herabgesetzt oder gänzlich unterbunden. Schlechte Ausbreitungsbedingungen mit vermindertem Abtransport und Verdünnung der freigesetzten Luftverunreinigungen sowie erhöhte Außenluftkonzentrationen sind die Folge. Bei labiler (instabiler) meteorologischer Schichtung der Atmosphäre treten häufig sowohl advektive als auch konvektive Luftströmungen auf, die einen guten Abtransport und eine rasche Verdünnung der freigesetzten Emissionen bewirken, so dass kaum erhöhte Außenluftkonzentrationen auftreten können. Die Höhe über Grund, bis zu der die am Boden oder in Bodennähe freigesetzten Luftverunreinigungen maximal transportiert werden können, wird Mischungsschichthöhe genannt. Sie wird oftmals durch Sperrschichten begrenzt, die von Temperaturinversionen in unterschiedlichen Höhen der Atmosphäre erzeugt werden.

Die Transportdistanz der freigesetzten Luftverunreinigungen hängt einerseits von der Stabilität der Atmosphäre und von den Luftströmungen ab, andererseits aber auch von der chemischen Reaktionsfreudigkeit der einzelnen Komponenten. Chemisch stabile Verbindungen haben eine längere Verweilzeit in der Atmosphäre und können über größere Entfernungen (Ferntransport) transportiert werden als instabile. Das Spektrum der Verweilzeit ist sehr groß und reicht von einigen Sekunden (z. B. OH-Radikale) bis zu 100 Jahren (z. B. N_2O).

3 Methoden zur Bestimmung von Emissionen

Zur Bestimmung der Emissionen einer oder mehrerer Quellen kommen grundsätzlich verschiedene Methoden in Frage. Zum einen können die Emissionen, sofern es sich um gefasste und nicht um diffuse Quellen handelt, direkt an der Quelle gemessen werden. Diese Methode führt zu den genauesten Ergebnissen. Allerdings ergibt sich bei der Bestimmung der Emissionen aus einer großen Anzahl von Einzelquellen ein erheblicher Messaufwand, der oftmals nicht realisierbar ist. Es sei an dieser Stelle nur an die ca. 56,3 Mio. Fahrzeuge [7], und damit einzelnen Emissionsquellen, im deutschen Straßenverkehr erinnert, deren Emissionen unmöglich einzeln gemessen werden können. In Tabelle 3.1 sind die Anwendungsgebiete, die Messtechnik sowie die Vor- und Nachteile der verschiedenen Emissionsmessmethoden beschrieben. Eine weitere Möglichkeit, die Emissionen aus dem Straßenverkehr für eine große Anzahl von Fahrzeugen zu bestimmen, sind Tunnelmessungen. Hierfür werden an einer Stelle in einem ventilierten Straßentunnel mit einer definierten Strömung Konzentrationsmessungen in der Tunnelröhre durchgeführt und außerhalb des Tunnels die über die Tunnellüftung zugeführte Vorbelastung gemessen. Aus der auftretenden Differenz der Konzentrationen wird der Emissionsmassenstrom berechnet. Als Ergebnis dieser Messmethode erhält man mittlere Emissionsfaktoren für ein bestimmtes Fahrzeugkollektiv. Eine weitere Möglichkeit, aus Immissions- bzw. Außenluftmessungen auf die Emissionen zu schließen, sind Experimente in der Atmosphäre außerhalb von Tunnels. Über ein Untersuchungsgebiet, für das die Emissionen bestimmt werden sollen, wird eine gedachte Bilanzhülle gelegt und die über die Seitenflächen dieser Bilanzbox ein- und austretenden Massenströme messtechnisch bestimmt. Die Bilanzierung der Massenströme ermöglicht es, die im Untersuchungsgebiet freigesetzten Emissionen zu bestimmen. Auf diese Weise können Emissionen unterschiedlicher Quellen erfasst werden, z. B. die eines Industriekomplexes mit einer großen Anzahl von Einzelquellen, einer stark befahrenen Straße oder einer ganzen Stadt. Es lassen sich aber auch Emissionen aus diffusen Quellen bestimmen, z. B. Partikelemissionen aus einem Steinbruch oder Schüttgutumschlagplatz. Sollen die Emissionen von Luftverunreinigungen für ein größeres Untersuchungsgebiet bestimmt werden, z. B. für eine Stadt, ein Bundesland, einen ganzen Staat etc., werden die Emissionen oftmals in Emissionskatastern zusammengefasst. Emissionskataster ermöglichen eine räumliche Zuordnung der freigesetzten Emissionen zum Ort der Freisetzung und oft auch eine zeitliche Zuordnung, d. h. es kann nachvollzogen werden, wo und mit welcher tageszeitlichen Variabilität Emissionen freigesetzt werden. Emissionskataster basieren meist sowohl auf Emissionsmessungen als auch auf einer ganzen Anzahl von Annahmen und statistischem Datenmaterial, das mit Hilfe von Emissionsmodellen erhoben und ausgewertet wird.

3.1 Emissionsmessungen

Die Bestimmung und Lokalisierung von Verkehrsemissionen unterliegen besonderen Schwierigkeiten; sie stellen aber für viele Komponenten die Hauptquelle dar (Kapitel 2). Im Projekt

BAB II (Kapitel 6) sind die Emissionen aus dem Verkehr die einzigen die untersucht wurden und im Projekt EVA (Kapitel 5) stellten sie eine sehr wichtige Emissionsquelle dar.

Abgasrollen- und Motorenprüfstandsmessungen

Die Bestimmung der Emissionsfaktoren von Pkw findet im Allgemeinen auf Abgasrollenprüfständen statt. Die Emissionsfaktoren von Lkw dagegen werden aus messtechnischen Gründen auf Motorenprüfständen bestimmt. Auf Motorenprüfständen kann allerdings nur das Emissionsverhalten des Motors untersucht werden, wohingegen auf Abgasrollenprüfständen das Fahrverhalten des gesamten Fahrzeugs simuliert wird und somit auch das Emissionsverhalten des gesamten Fahrzeugs untersucht wird [83].

Beide Messverfahren kommen heutzutage bei der Typprüfung und Erteilung der Allgemeinen Betriebserlaubnis zum Einsatz, wobei mehrere Durchläufe des Fahrzyklus mit unterschiedlichen Lastzuständen des Motors vorgeschrieben sind.

Die Ergebnisse der Rollen- und Motorenprüfstandsmessungen finden auch Eingang ins Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA) [85]. Diesem Handbuch - mittlerweile handelt es sich um eine Software - wurden die Emissionsfaktoren für die Berechnung der Straßenverkehrsemissionen in beiden dieser Arbeit zugrundeliegenden Projekte EVA und BAB II entnommen, allerdings der damals gültigen Version 1.1A aus dem Jahre 1997. Viele der in Deutschland, Österreich und der Schweiz durchgeführten Ausbreitungssimulationen von Luftverunreinigungen für den Straßenverkehr stützen sich auf die Emissionsfaktoren des HBEFA, das somit eine wichtige Stellung in der Luftreinhaltung eingenommen hat.

On-Board-Messungen

Zur Ermittlung von Emissionen bzw. Emissionsfaktoren einzelner Fahrzeuge im möglichst realitätsnahen Fahrbetrieb eignen sich die sogenannten On-Board-Messungen. Die komplette Emissionsmesstechnik, nebst weiteren Messgeräten und der Messdatenerfassung, befindet sich im zu untersuchenden Fahrzeug. Die Abgase werden über eine Sonde, die sich im Auspuff des Fahrzeugs befindet, den Emissionsmessgeräten zugeführt. On-Board-Messungen sind mit einem erheblichen Aufwand verbunden. Somit eignen sie sich zwar zur realitätsnahen Ermittlung von Emissionen einzelner oder kleinerer Serien von Fahrzeugen, aber keineswegs zur Bestimmung der Emissionen eines großen Fahrzeugkollektivs. On-Board-Messungen an Lkw haben ergeben, dass die Motorbelastung und auch die Beladung der Lkw große Auswirkungen auf das Emissionsverhalten haben.

Tabelle 3.1: Messungen an Emissionsquellen: Messtechnik, Anwendung, Vor- und Nachteile

Emissionsquellen	Messtechnik	Anwendung	Vorteile	Nachteile	Lit.
Emissionsmessungen an Feuerungsanlagen					
Kraftwerke, Industrieanlagen, Hausheizungen etc.	kontinuierliche und diskontinuierliche Emissionsmessungen bzw. diskontinuierliche Probenahme	Bestimmung von Emissionen bzw. Emissionsfaktoren von Einzelemittenten	-viele Normen und Richtlinien sind vorhanden -bei Berücksichtigung aller Einflussmöglichkeiten (siehe Nachteile), ist eine genaue Bestimmung der Emissionen einzelner Emittenten leicht möglich	- Bestimmung von EF für ein großes Kollektiv von Emittenten ist nicht möglich, nur Typprüfung möglich Fehlerquellen: -Undichtigkeiten im Ansaug- und Messsystem -unbeabsichtigte Kondensation (v.a. Kohlenwasserstoffe) -Querempfindlichkeiten der Messgeräte auf Störgrößen -parabelförmige Strömungsprofile erfordern Netzmessungen zur Bestimmung des Volumenstroms -schlechte Durchmischung der Abgase führt zum Auftreten von "Strähnen" mit erhöhten Konzentrationen, welche Netzmessungen erfordern - O_2- bzw. CO_2-Messung erforderlich, da Bezug auf Restsauerstoffgehalt notwendig	[83]
Abgasrollen- und Motorenprüfstandsmessungen für Kfz					
Automobilindustrie und Zulieferer: PKW -> Abgasrollenprüfstände; LKW -> Motorenprüfstände	diskontinuierliche Probenahme und anschließende Emissionsmessung mit Hilfe der CVS-Methode (Constant Volume Sampling)	-Typprüfung und allgemeine Betriebserlaubnis von Kfz -Bestimmung von EF für HBEFA	-gute Reproduzierbarkeit der Ergebnisse (10 bis 20 %)	-„Realitätsferne“ der Prüfstands- und insbesondere der Motorenprüfstandsmessungen im Vergleich zu realem Fahrverhalten (z. B. ist die max. Geschwindigkeit im NEFZ 120 km/h) -Mangelnde Repräsentativität: Es können nur Emissionen von Einzelfahrzeugen bestimmt werden, nicht von großen Fahrzeugkollektiven. -Üblicherweise werden nur Neuwagen für die Typprüfung untersucht. Ältere Fahrzeuge mit falsch eingestellten Motoren oder defekten Katalysatoren werden normalerweise nicht untersucht.	[9], [86], [87], [85], [51], [40], [88], [89]
On-Board-Messungen für Kfz					
Automobilindustrie und Zulieferer	kontinuierliche und diskontinuierliche Emissionsmessungen bzw. diskontinuierliche Probenahme	-Bestimmung von EF für HBEFA -Forschungsvorhaben	-realitätsnahe Bestimmung der Emissionen, da Messungen im Fahrbetrieb stattfinden	-schlechtere Reproduzierbarkeit als Prüfstandsmessungen, da sich alle Fahrten, zumindest geringfügig, voneinander unterscheiden -erheblicher messtechnischer Aufwand: Außer den Emissionen müssen folgende Parameter entlang der Fahrstrecke gemessen und registriert werden: Fahrgeschwindigkeit, Brems- und Beschleunigungsvorgänge, Leerlaufphasen, Fahrzeugstillstände, Schaltvorgänge, Streckenlänge, Längsneigung der Fahrbahn, Kurvigkeit, Anzahl der Fahrspuren, Geschwindigkeitsbegrenzungen	[86], [9], [90], [91]

3.2 Experimente in der Atmosphäre

In der Literatur existiert mittlerweile eine große Anzahl von Veröffentlichungen, die sich mit Experimenten zur Bestimmung von Emissionen bzw. Emissionsfaktoren in der Atmosphäre beschäftigt. U. a. hat Zhang [92] im Jahre 1995 mit einer Fernerkundungsmethode weltweit an 22 unterschiedlichen Standorten die relativen CO- und VOC-Emissionen von über 1 Million Fahrzeugen bestimmt. Als interessantes Ergebnis fand er u. a. heraus, dass in Hamburg 7 % und in Kathmandu 25 % der Fahrzeuge 50 % der CO-Emissionen des Straßenverkehrs verursachen. Alle in der Literatur beschriebenen Methoden besitzen verschiedene Vor- und Nachteile, die sich in der Güte der Ergebnisse niederschlagen können. Die Methode von Zhang z. B. hat den Nachteil, dass nur relative Emissionen bestimmt und die absoluten Emissionen, die zur Berechnung der Emissionsfaktoren notwendig sind, nur über den durchschnittlichen Treibstoffverbrauch berechnet werden können. Nur wenn dieser mit hinreichender Genauigkeit vorliegt, lassen sich die Emissionsfaktoren mit befriedigender Genauigkeit bestimmen.

Im Folgenden werden einige für diese Arbeit interessanten Ergebnisse aus früheren Experimenten beschrieben. Die Anwendungsgebiete, die Messtechnik sowie die Vor- und Nachteile der einzelnen Methoden sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst. Ein Nachteil, den alle Experimente in der Atmosphäre gegenüber den Rollen- und Motorenprüfstandsmessungen besitzen, sei an dieser Stelle schon erwähnt: die fehlende Reproduzierbarkeit der Ergebnisse. Ein Grund hiefür liegt in der Tatsache, dass sich die Versuchsbedingungen stets leicht ändern, z. B. die Zusammensetzung des Fahrzeugkollektivs. Und wie im vorhergehenden Absatz erwähnt, können die Emissionen eines gesamten Fahrzeugkollektivs ganz wesentlich von wenigen Einzelfahrzeugen mit hohen Emissionen beeinflusst werden.

Tunnelmessungen

Tunnelmessungen eignen sich ebenfalls sehr gut zur Ermittlung von Emissionsfaktoren im realen Fahrbetrieb. Im einfachsten Fall werden Konzentrationsmessungen jeweils am Tunneleingang, oder auch in der näheren Umgebung außerhalb des Tunnels, und am Tunnelausgang durchgeführt. Aufgrund der stark turbulenten Strömungsverhältnisse in Straßenverkehrstunnels kann über den gesamten Tunnelquerschnitt von homogenen Konzentrationen und Strömungsgeschwindigkeiten ausgegangen werden. Durch Bilanzierung der Luftverunreinigungsmassenströme lassen sich die mittleren Emissionen der jeweils betrachteten Komponente pro Fahrzeug aus den gemessenen Konzentrationen am Tunnelein- und -ausgang, dem Luft-Volumenstrom im Tunnel und der mittleren Verkehrsstärke bezogen auf die zurückgelegte Fahrstrecke berechnen. Die nachfolgend beschriebene Verdünnungsmethode wird teilweise auch bei Tunnelmessungen angewendet [291].

Verdünnungsmethode

Für meteorologische Situationen mit Queranströmung zur Straße können aus Lee-Luv-Differenzen der Immissionsmessungen auf beiden Straßenseiten die durch den lokalen Straßenverkehr verursachten Zusatzbelastungen bestimmt werden. Diese Differenzen dienen dann zusammen mit den Verkehrszahlen zur Berechnung der mittleren Emissionsfaktoren. Eine di-

rekte Berechnung von Emissionsfaktoren aus den gemessenen Konzentrationsdifferenzen ist nicht möglich, da diese auch für eine gegebene Verkehrsfrequenz je nach meteorologischen Verhältnissen starken Schwankungen unterworfen sein können. Es wird deshalb mit Hilfe der als bekannt vorausgesetzten Emissionsfaktoren, z.B. für Stickstoffoxide (NO_x), das bei der Messung herrschende Verdünnungsverhältnis (Emission/Immission) berechnet. Die NO_x-Emissionsfaktoren können der Literatur, z. B. dem schon erwähnten Handbuch für Emissionsfaktoren, entnommen werden [85]. Auf diese Weise können auch absolute Emissionsfaktoren für die zu betrachtenden und gemessenen Komponenten berechnet werden. Die Methode setzt also voraus, dass die heute bekannten Emissionsfaktoren für Stickstoffoxide korrekt sind. Wird den zum Vergleich notwendigen Emissionsfaktoren aus der Literatur nicht getraut oder sollen diese mit Hilfe von Messungen überprüft werden, muss mit großem Aufwand die Vertikal- und u. U. die Horizontalverteilung der Luftverunreinigungen und der meteorologischen Parameter zeitlich hochaufgelöst bestimmt werden. Diese Methode wird kurz in den folgenden Unterkapiteln erläutert und ausführlich in den Kapiteln 4 bis 6 beschrieben.

Ein sehr ähnliches Vorgehen wie bei der oben beschriebenen Verdünnungsmethode mit Hilfe des Vergleichs mit bekannten Emissionsfaktoren liegt Projekten zugrunde, die die sogenannte *Source-Tracer-Ratio-Methode* anwenden. Der Verdünnungsfaktor v wird bei dieser Methode über die Freisetzung einer inerten Substanz, z. B. SF_6, am Emissionsort und der Sammlung und Messung der Konzentration des Tracers am Immissionsort bestimmt [94], [95], [96]. Diese Methode kam im Projekt EVA zur Anwendung. Die Ergebnisse werden in Kapitel 5 beschrieben.

Flugzeugmessungen

Zur Messung von Luftverunreinigungen kommen verschiedentlich Flugzeuge zum Einsatz, auch zur Bilanzierung von Luftverunreinigungen über größeren Untersuchungsgebieten, z. B. einer Großstadt oder gar eines ganzen Landes.

Klemm und Schaller beschrieben die sogenannte Delphin-Methode, mit der sie die Grenzen der ostdeutschen Bundesländer abflogen und somit die Massenströme von SO_2, NO_y (NO, NO_2 und weitere Stickstoffoxidverbindungen), O_3 und H_2O_2 bestimmten und bilanzierten [13]. Bei der Delphin-Methode ändert das Flugzeug entlang der Flugroute stets die Flughöhe innerhalb der Mischungsschicht von minimal erlaubter Flughöhe bis über die abschließende Höheninversion hinaus in die freie Atmosphäre. Somit werden alle Flughöhen und Konzentrationsniveaus erfasst. Ist das Untersuchungsgebiet von kleinerer Ausdehnung, können die Flugzeugmessungen zur Bilanzierung von Luftverunreinigungen aber auch so angelegt sein, dass die Flugzeuge das Untersuchungsgebiet in einem bestimmten Höhenniveau umrunden und von einer Umrundung zur nächsten immer ein Höhenniveau höher steigen oder nach unten gleiten, bis die gesamte Mischungsschicht vermessen ist. Es muss sichergestellt werden, dass die Bilanzierung divergenzfrei vonstatten geht, d. h. der Betrag der in den Bilanzraum einströmenden Luftmassen muss dem Betrag der herausströmenden Luftmassen entsprechen. Die Emissionsfreisetzung sollte im Bilanzierungszeitraum konstant sein, d. h. keinen großen zeitlichen Schwankungen unterworfen sein, und auch das Bilanzvolumen sollte sich im Bilanzierungszeitraum nicht wesentlich ändern. D. h. Zeiträume, in denen die Mischungsschicht-

höhe starken Änderungen unterworfen ist, wie der Vormittag oder frühe Abend, sollten für Bilanzexperimente gemieden werden. Zudem können die in Kapitel 4 beschriebenen atmosphärischen Vorgänge, wie chemische Umwandlung, Deposition und Turbulenz, Einfluss auf die Ergebnisse der Bilanzierung haben.

Bilanzexperimente

Einen völlig anderen Ansatz wählten erstmals Leisen et al. [97], als sie im Jahre 1985 im Rahmen des Abgas-Großversuchs [98] an der Autobahn A 3 zwischen Köln und Frankfurt mit Hilfe von Vertikalprofilmessungen im Luv und Lee der Autobahn Emissionsbilanzierungen zur Ermittlung von Emissionsfaktoren des Fahrzeugkollektivs auf der Autobahn durchführten. Der Abgasgroßversuch sollte Aufschluss darüber geben, welche Auswirkungen eine Geschwindigkeitsbegrenzung von 100 bzw. 120 km/h auf deutschen Autobahnen auf das Emissionsverhalten von Pkw hat. U. a. wurden auf beiden Seiten der Autobahn A 3 zwei 19 m hohe Messtürme im Abstand von 8 bzw. 12 m von den Fahrbahnen installiert. In jeweils sechs Höhen (0,7 m, 2,2 m, 4 m, 7,5 m, 13 m und 19 m) wurde die Umgebungsluft angesaugt und den NO_x-, CO- und O_3-Messgeräten zugeführt. Zudem wurden in fünf Höhen verschiedene meteorologische Parameter gemessen. Auf diese Weise gelang es, Vertikalprofile der Luftverunreinigungen und der meteorologischen Parameter für beide Seiten der Autobahn zu erstellen. Sie dienten bei Erfüllen bestimmter Voraussetzungen und der Anwendung einer einfachen Bilanzierungsmethode dazu, die Emissionsfaktoren für die Fahrzeuge auf der Autobahn zu berechnen. Als Ergebnis dieser Messungen kann festgehalten werden, dass sich bei autobahnsenkrechter Anströmung im Mittel NO_x-Differenzen zwischen Luv und Lee der Autobahn von 200 ppb ergaben und Maximalwerte für die NO_x-Differenz von über 300 ppb. Mit zunehmender Höhe nahmen die Konzentrationsdifferenzen ab, und im Mittel wurde in 19 m an der obersten Messhöhe im Luv und Lee die gleiche Konzentration gemessen. Mit der beschriebenen Messtechnik ließ sich die Abgasfahne der Autobahn bei senkrechter Anströmung sehr gut erfassen. Aufgrund der langen Messperiode von über sechs Monaten und aufgrund der Tatsache, dass für einen Teil der Messperiode eine Geschwindigkeitsbegrenzung auf der sonst nicht geschwindigkeitsbeschränkten Strecke der Autobahn eingeführt wurde, konnten NO_x-Emissionsfaktoren in Abhängigkeit von der Fahrgeschwindigkeit berechnet werden. Eine multiple Regressionsanalyse der Daten erlaubte eine getrennte Angabe der Emissionsfaktoren für Pkw- und Lkw-Verkehr. Die Messungen an der Autobahn A 3 dienten den Projekten BAB I und BAB II als Vorbild.

Das Bilanzexperiment BAB I [99] wurde im Jahre 1997 vom Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK), sowie dem Institut für Technische Chemie initiiert und in Zusammenarbeit mit der Universität Stuttgart, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), durchgeführt. Es fand an der Autobahn A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim statt, an der im Jahre 2001 das Projekt BAB II folgte. Über einen Zeitraum von 20 Tagen wurden im Jahre 1997 in verschiedenen Abständen zur Autobahn A 656 im Luv und Lee Immissionsmessungen an Bodenmessstationen durchgeführt. Es wurden kontinuierlich die Komponenten NO/NO_x, CO, O_3 und meteorologische Parameter gemessen. An Intensivmesstagen wurden zusätzlich VOC gemessen und an zwei Fesselballonmesssystemen im Luv und Lee der Autobahn (in 50 bzw. 100 m Abstand) meteoro-

logische Parameter sowie O_3. Aus den Vertikalsondierungen wurde die Höhe der Abgasfahne bestimmt. Die Bestimmung der Höhe der Abgasfahne aus dem Vertikalverlauf der O_3-Konzentration und den meteorologischen Parametern stellte sich im Nachhinein als Schwachstelle des Messkonzepts heraus. O_3 wird vom emittierten NO in der Abgasfahne im Lee der Autobahn abgebaut, so dass geringere O_3-Konzentrationen im Lee als im Luv auf Ozonabbau durch NO hindeutet und somit den Bereich der Abgasfahne markiert. Allerdings differieren die Quellen für NO/NO_x und CO. NO/NO_x wird verstärkt von Dieselfahrzeugen und vom Schwerverkehr emittiert, CO hingegen hauptsächlich von ottomotorbetriebenen Pkw. Somit kann sich die Höhe der Abgasfahne für NO/NO_x und für CO unterscheiden. Grundsätzlich eignen sich Ballonmessungen für Vertikalsondierungen und zur Bestimmung der Abgasfahne einer Autobahn. Allerdings kann alleine die Anwesenheit von Fesselballonen in der Nähe der Autobahn dazu führen, dass die Fahrer ihr übliches Fahrverhalten ändern, da sie von den relativ auffälligen Fesselballonen abgelenkt werden. Starke Verzögerungen oder Beschleunigungen der Fahrzeuge im Bereich des Untersuchungsgebiets beeinflussen aber auch das Emissionsverhalten der Fahrzeuge, was sich wiederum negativ auf die Messergebnisse auswirken kann. Alleine aus diesem Grund sind für die beschriebenen Untersuchungen Fesselballone weniger gut geeignet.

Als Resultat von BAB I konnte festgestellt werden, dass sich die Ergebnisse der Emissionsmodellierung von CO um 15 % und von NO_x um 35 % verbessern lassen, indem man Verkehrszählungen und Geschwindigkeitsmessungen vor Ort durchführt und die Ergebnisse in die Emissionsberechnungen einfließen lässt. Ohne eigene Verkehrszählungen und Geschwindigkeitsmessungen würde man die Angaben mit den entsprechenden Spezifikationen für Autobahnen der Literatur entnehmen, z. B. dem Handbuch für Emissionsfaktoren HBEFA [85], mit den einhergehenden schlechteren Resultaten. Des Weiteren fand ein Vergleich der beiden Methoden zur Bestimmung der Emissionen statt. Zum einen wurden die Emissionen, die von den Fahrzeugen auf der Autobahn stammten, durch Bilanzierung der Immissionsmessergebnisse berechnet (Details zur Bilanzmethode in den Kapiteln 4 und 6). Zum anderen wurden sie über die schon erwähnte Emissionsmodellierung bestimmt. Der Vergleich der Ergebnisse ergab, dass die NO_x-Emissionen mit Abweichungen von max. 20 % innerhalb der Unsicherheiten der Mess- bzw. Berechnungsmethode gut übereinstimmen. Für die Komponente CO lagen jedoch die gemessenen Emissionen um den Faktor 2 höher als die berechneten. Die Ergebnisse von BAB I waren wissenschaftlich so interessant, dass vier Jahre später an der gleichen Stelle das Projekt BAB II mit noch sehr viel größerem messtechnischen Aufwand und verbesserter Messstrategie durchgeführt wurde (Details hierzu in Kapitel 6).

Tabelle 3.2: Experimente in der Atmosphäre zur Emissionsbestimmung: Emissionsquellen, Messtechnik, Vor- und Nachteile

Emissions-quellen	Messtechnik	Vorteile	Nachteile	Lit.
Tunnelmessungen				
Kfz-Verkehr	kontinuierliche und diskontinuierliche Immissionsmessungen bzw. diskontinuierliche Probenahme	-gute Erfassung der Emissionen aufgrund von definierten Strömungsverhältnissen im Tunnel -starke Aufkonzentrierung der Schadstoffe -> geringere Anforderung an die Messtechnik -Erfassung von Emissionen eines großen Fahrzeugkollektivs -im einfachsten Fall kann mit Immissionsmessungen außerhalb des Tunnels die Vorbelastung bestimmt werden -werden des LDV- und HDV-Fahrzeuge getrennt erfasst, lassen sich u. U. Emissionsfaktoren getrennt für LDV und HDV berechnen	-Minderbefunde möglich: Bei Partikeln durch Impaktionsvorgänge und bei gasförmigen Komponenten durch adsorptive oder katalytische Vorgänge an den Tunnelwänden. Zudem bei der Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration im Bereich des Nukleationsmodes (10 bis 30 nm), da Partikel im Rußmode (70 bis 100 nm) die Anzahl der Partikel im Nukleationsmode herabsetzen können. Dadurch lassen sich Ergebnisse verschiedener Tunnelstudien und Studien in der freien Atmosphäre nicht oder nur schwerlich miteinander vergleichen bzw. führt ein Vergleich zu Fehlinterpretationen. -Fahrgeschwindigkeit in Tunneln ist oftmals auf 60 oder 80 km/h begrenzt. Somit kommen Tunnelmessungen für die Bestimmung der Emissionen bei höheren Fahrgeschwindigkeiten nicht in Frage. -geändertes Fahrverhalten in einem Tunnel im Vergleich zum Fahrverhalten auf freier Strecke -geändertes Emissionsverhalten im Tunnel aufgrund geänderter Luftwiderstandswerte (c_w-Werte) der Fahrzeuge im Tunnel im Vergleich zur Fahrt im Freien, abhängig von Parametern wie der Querschnittsfläche und der Oberflächenbeschaffenheit der Fahrzeuge und des Tunnels sowie der Länge der Fahrzeuge -Kolbeneffekt *(piston effect)*, der sich vornehmlich in Tunneln mit Richtungsfahrbahnen einstellt und hauptsächlich von Lkw verursacht wird. Aufgrund des geringen Abstands zwischen Lkw-Gehäuse und Tunnelwand schieben die Lkw Luftpolster vor sich her, die zu Strömungsgeschwindigkeiten im Tunnel von bis zu 30 km/h führen können. Diese Luftströmung führt dann für die Pkw im Tunnel zu einem "Rückenwind" und verursacht geringere Antriebsleistungen und geringere Emissionen der Pkw.	[16] bis [25], [27] bis [75], [100] bis [105]
Verdünnungsmethode				
Kfz-Verkehr auf stark befahrenen Straßen, diffuse Großemittenten, Städte etc.	kontinuierliche und diskontinuierliche Immissionsmessungen bzw. diskontinuierliche Probenahme	geringer messtechnischer Aufwand: wenige Bodenmessstationen sind ausreichend (im Vergleich zu Bilanzexperimenten mit Vertikal- und evtl. Horizontalsondierungen)	-schwierige Standortfindung innerorts, aufgrund von einschränkenden Randbedingungen: u.a. hindernisfreie Anströmung, keine anderen größeren Emissionsquellen -EF für eine Komponente müssen hinreichend genau bekannt sein, ansonsten ist eine Anwendung dieser Methode nicht möglich	[25], [106] bis [109]

Emissions-quellen	Messtechnik	Vorteile	Nachteile	Lit.
Flugzeugmessungen				
Große Flächenquellen: ausgedehnte Industriekomplexe, große Städte etc.	kontinuierliche und diskontinuierliche Konzentrationsmessungen (Vertikal- und evtl. Horizontalsondierungen) bzw. diskontinuierliche Probenahme		-großer finanzieller Aufwand -minimale Flughöhe von 150 m über unbebautem und 300 m über bebautem Gebiet - meist Begrenzung auf Tagstunden -höhere Anforderungen an die Messtechnik: Die Messgeräte müssen für den Einsatz im Flugzeug geeignet sein, u. a. müssen sie sehr schnell auf Konzentrationsänderungen reagieren, damit eine möglichst genaue räumliche Zuordnung der Messwerte zu den geografischen Koordinaten möglich ist. Sie müssen außerdem erschütterungsunempfindlich sein und dürfen keine Druckabhängigkeit aufweisen.	[13], [14], [110] bis [114]
Bilanzexperimente in der Außenluft				
Kfz-Verkehr auf stark befahrenen Straßen, diffuse Großemittenten, Städte etc.	kontinuierliche und diskontinuierliche Konzentrationsmessungen (Vertikal- und evtl. Horiznotalsondierungen) bzw. diskontinuierliche Probenahme	-keine Abbaumechanismen durch Impaktion, Adsorption oder katalytische Prozesse -keine Beeinflussung der Lastzustände der Fahrzeuge durch geänderte Luftwiderstandsbeiwerte (c_w-Werte) oder durch den Kolbeneffekt - größere Variabilität der Fahrzustände, Fahrmuster, Flottenzusammensetzung und Längsneigung der Fahrbahn als bei Tunnelmessungen	-Großer Einfluss von meteorologischen Parametern auf die gemessenen Konzentrationen. Im Fall der Windgeschwindigkeit und der Windrichtung ist deren messtechnische Erfassung als Vertikalprofile von großer Bedeutung für die Güte der Bilanzergebnisse. -Beeinflussung durch Regen, Stabilität der Atmosphäre und Turbulenz (mechanische Turbulenz durch Hindernisse und fahrzeuginduzierte Turbulenz) -große Anforderungen an Messtechnik, da starke Verdünnung und geringe Aufkonzentrierung der Luftverunreinigungen -> geringe Luv-Lee-Differenz -u. U. negative Beeinflussung durch photochemische Prozesse durch Sonneneinstrahlung	[115]

3.3 Emissionsmodellierung zur Erstellung von Emissionskatastern

Die Zusammenfassung der Emissionsdaten für ein bestimmtes Gebiet wird als Emissionskataster bezeichnet. Es sollte alle in einem Gebiet vorhandenen und identifizierten Quellentypen, deren Koordinaten und weitere quelltypische Daten, wie Austrittshöhe der Abgase (Kaminhöhe bei industriellen Abgasen), Abgastemperatur, Quellüberhöhung, Luftvolumen und die darin vorhandenen Emissionen, enthalten. Wenn verfügbar, sollten auch Zusatzinformationen über die zur Emission führenden Prozesse angegeben werden, z. B. ob es sich um Verbrennungs- oder Verdampfungsemissionen handelt (relevant bei VOC) und die tages- bzw. jahreszeitliche Variation der Emissionen [112]. Idealerweise müssten alle Emissionen des Emissionskatasters über Emissionsmessungen bestimmt werden; aber, wie schon erwähnt, würde dies u. a. im Verkehrsbereich, bei einer Anzahl von 56,3 Mio. Fahrzeugen in Deutschland [7] eine nicht zu bewältigende Aufgabe darstellen. Deshalb kommen Emissionsmodelle zum Einsatz, die die Emissionen üblicherweise über Emissionsfaktoren bestimmen. Emissionsfaktoren werden beim Straßenverkehr als Masse der emittierten Komponente pro gefahrenen Kilometer angegeben. Ganz allgemein ergibt sich die Emission E aus der Multiplikation des Emissionsfaktors EF mit der Aktivität A. Für das Beispiel des Verkehrsbereichs wäre die Aktivität vornehmlich die gefahrene Strecke.

Emissionsmodelle stellen immer eine Vereinfachung der realen Verhältnisse dar, weshalb die errechneten Emissionen zwangsläufig mit Unsicherheiten behaftet sind. Als Eingangsdaten in Emissionsmodelle werden in der Regel Mittelwerte verwendet, die aus Stichprobenuntersuchungen abgeleitet worden sind und die den Mittelwerten der jeweiligen Grundgesamtheiten möglichst nahe kommen sollen. Die Aktivitätsparameter (z. B. Fahrleistungen, Anzahl der Starts etc.) werden durch geeignete Methoden auf die für die Emissionsmodellierung notwendigen Gesamtaktivitäten hochgerechnet. Zur Vereinheitlichung des Vorgehens verschiedener Modellansätze zur Berechnung der Emissionen, welche zu unterschiedlichen Ergebnissen führten, wurde im Jahre 2003 eine VDI-Richtlinie publiziert, die eine Methode zur Bestimmung der Kfz-Emissionen beschreibt [116].

Theoretisch stellen einzelne Fahrzeuge Punktquellen dar. Aufgrund der schon erwähnten großen Anzahl der Fahrzeuge können diese jedoch bei der Erstellung von Emissionskatastern nicht als einzelne Punktquellen betrachtet werden. Deshalb werden stark frequentierte Straßenabschnitte außerorts und innerorts als Linienquellen und der Verkehr in Wohngebieten und auf schwach frequentierten Nebenstraßen als Flächenquellen abgebildet. Als wesentliche Quellgruppen von Luftverunreinigungen aus dem Straßenverkehr werden unterschieden:

- **Abgasemissionen mit warmem Motor**: Schadstoffe, die beim Verbrennungsprozess im Motor bei Betriebstemperatur entstehen
- **Kaltstartzuschläge**: Verbrennungsemissionen, die zusätzlich entstehen, da der Motor und/oder die Abgasminderungssysteme ihre Betriebstemperatur noch nicht erreicht haben
- **Verdampfungsemissionen**: VOC-Emissionen, die durch Verdampfung und Diffusion von Kraftstoff aus dem Tank oder aus undichten Stellen im Kraftstoffsystem des Fahrzeugs in die Umgebung austreten

- **Abriebs- und Aufwirbelungsemissionen**: treten nur bei Partikeln auf, können aber bei massenbezogenen Betrachtungen von PM_{10} mindestens die gleiche Größenordnung oder sogar ein Vielfaches der Abgasemissionen betragen

In Bild 3.1 ist das Grundprinzip der Modellierung von Verkehrsemissionen von Kraftfahrzeugen mit betriebswarmem Motor für großflächige Gebiete dargestellt, wie es u. a. am IER[1] angewendet wird [117]. Auf der rechten Seite des Bildes sind die Emissionsfaktoren, differenziert nach Fahrzeugschichten, Fahrmuster und Längsneigungsklassen der Fahrbahnen der Straßen, dargestellt. Bei der Bestimmung der Emissionsfaktoren spielen die schon beschriebenen Abgasrollen- bzw. Motorenprüfstandsmessungen eine wichtige Rolle. Für Deutschland, Österreich und die Schweiz existiert eine Datenbank - das schon erwähnte Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA) - mit insgesamt ca. 50.000 Emissionsfaktoren für zwölf Einzelkomponenten, zwei Schadstoffklassen (VOC, NMVOC) und den Kraftstoffverbrauch [85].

Die auf der linken Seite von Bild 3.1 dargestellte Gesamtfahrleistung (Aktivität A) muss, damit sie mit den Emissionsfaktoren verknüpft werden kann, den gleichen Grad der Differenzierung aufweisen. Dazu muss die Gesamtfahrleistung für das betreffende Gebiet aufgeschlüsselt und für den betrachteten Zeitraum dargestellt werden, aufgeteilt nach Straßenkategorien (u. a. Autobahnen, Innerortsstraßen), Fahrzeugkategorien (u. a. Pkw, Lkw, Motorräder), Fahrzeugschichten (Fahrzeugkategorien mit vergleichbarem Emissionsverhalten), Längsneigungsklassen der Fahrbahnen und Fahrmustern (Fahrverhalten von Fahrzeuglenkern in bestimmten Situationen, z. B. Anzahl der Stops an Ampeln oder Beschleunigungsverhalten) bzw. die Verkehrssituation. Als Verkehrssituation werden mehrere Fahrmuster zusammengefasst, z. B.

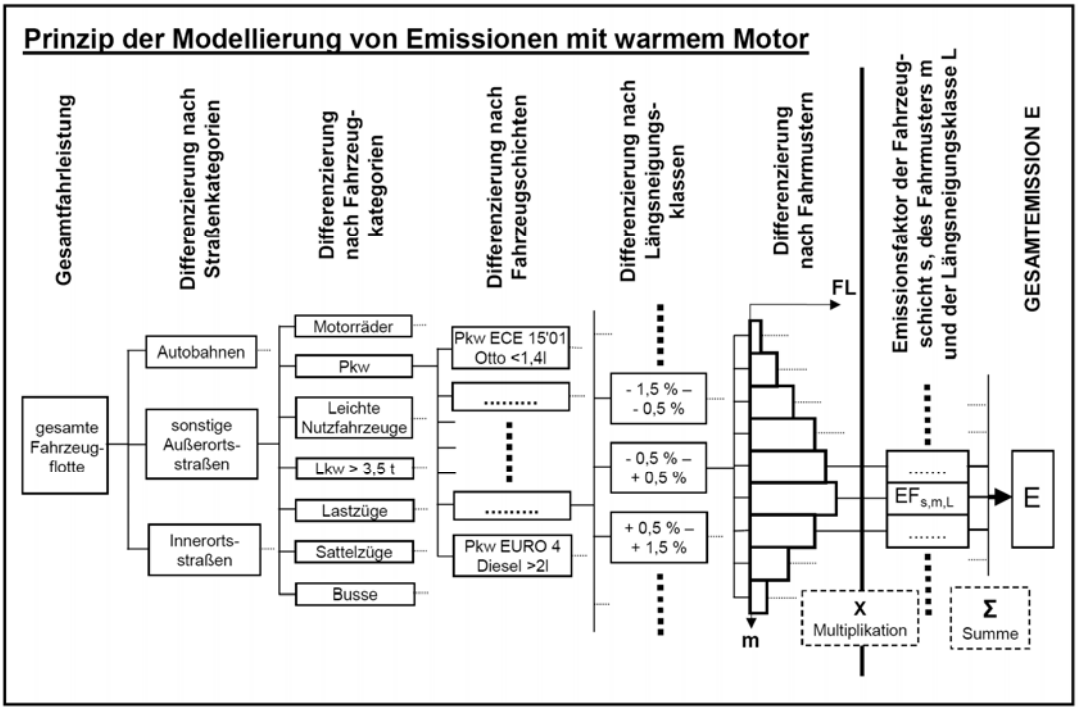


Bild 3.1: Grundprinzip eines Modells zur Berechnung von Verkehrsemissionen von Kraftfahrzeugen mit betriebswarmem Motor [117]

[1] IER - Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart

Verkehrssituation AB_120 für PKW: Jeweils 28 % der Fahrzeuge fahren mit 115 bzw. 125 km/h und jeweils 22 % der Fahrzeuge fahren mit 105 bzw. 135 km/h, wobei keine Verzögerungs- oder Beschleunigungsvorgänge auftreten [85]. Um diesen hohen Grad der Differenzierung der Gesamtfahrleistung zu erhalten, ist die Auf- und Einarbeitung umfangreichen Datenmaterials und von Statistiken über die verkehrstechnischen Parameter notwendig. Es war erklärtes Ziel in den Projekten EVA und BAB II (Kapitel 5 und Kapitel 6), die Emissionen in Form von räumlich und zeitlich hochaufgelösten Katastern zu ermitteln. Deshalb mussten die Fahrleistungen zusätzlich über Straßennetze und abschnittsbezogene Verkehrsstärkedaten sowie über typische Jahres-, Wochen- und Tagesgänge differenziert werden.

3.3.1 Unsicherheiten von Emissionskatastern

In Bild 3.2 ist beispielhaft die Bandbreite der Unsicherheiten für die modellierten Emissionen der Autobahnen in Baden-Württemberg für das Jahr 1994 dargestellt. Die Ergebnisse beziehen sich auf Straßenabschnitte mit folgenden Voraussetzungen:

- Längsneigungsklasse: 0 - 1 %
- vollständiger Zählumfang bei den Bundesverkehrszählungen 1990 und 1995 (jeweils 8 Zähltage bzw. 36 Zählstunden, Kreisstraßen: 6 Zähltage)
- unbekannte Streckensituation (Geschwindigkeitsbegrenzung, Kurvigkeit u.ä.)
- unbekannte abschnittsbezogene Verkehrsdaten für Fahrmuster-Mix und Flottenzusammensetzung

Die ermittelten statistischen Fehler (Variationskoeffizienten) der berechneten Jahresemissionen liegen für NMHC zwischen 21 und 26 % und für NO_x zwischen 16 und 22 %. Aufgrund

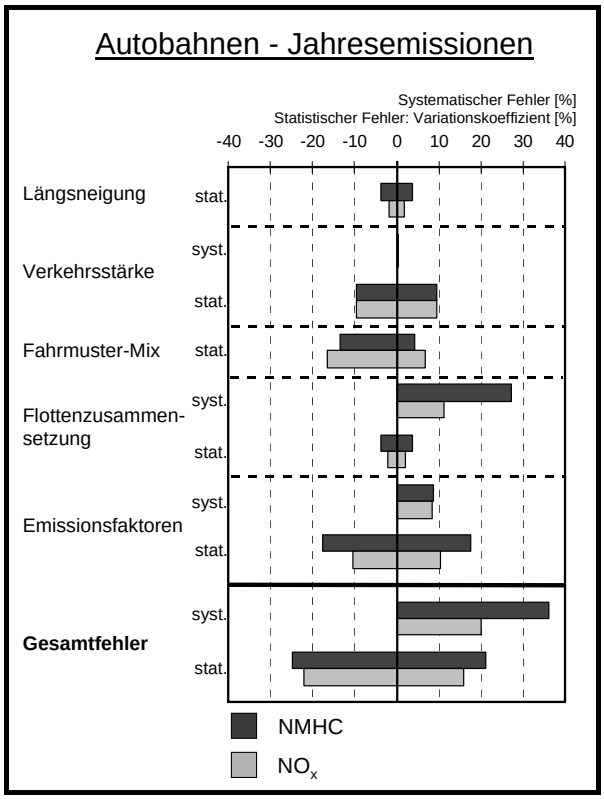


Bild 3.2: Bandbreite der Unsicherheiten der NMHC- und NO_x-Jahresemissionen auf Autobahnen in Baden-Württemberg im Jahre 1994 [117]

der asymmetrischen Auswirkung der Unsicherheit beim Fahrmuster-Mix entsteht eine negative Unsicherheit (Emissionen sind zu hoch berechnet), die mit einer größeren Wahrscheinlichkeit verbunden ist als eine positive Unsicherheit.

Die Emissionsfaktoren stellen die größte Fehlerquelle dar, insbesondere bei NMHC und Partikeln. Als weitere bedeutende Fehlerquelle müssen die nach Fahrzeugkategorien differenzierten Verkehrsstärkedaten aus den Bundesverkehrszählungen angesehen werden. Hier ist zu unterscheiden zwischen Zählfehlern (ca. 8 %), Hochrechnungsfehlern (ca. 4 bis 6 %) und Interpolationsfehlern bei der Ermittlung der Jahresverkehrsstärken 1994 (ca. 3 bis 4 %).

Im dargestellten Beispiel sind die systematischen Fehler, die bei den Eingangsgrößen Flottenzusammensetzung und Emissionsfaktoren angegeben sind, sehr hoch, wodurch sich eine systematische Abweichung auf den Autobahnabschnitten von insgesamt + 36 % bei NMHC bzw. ca. + 20 % bei NO_x ergibt, d. h. es kommt zu einer systematischen Unterschätzung der Emissionen bei Verwendung der gebräuchlichen Eingangsdatensätze.

Fazit

Die Emissionsmodelle wurden in der Vergangenheit stets verbessert und neuesten wissenschaftlichen Erkenntnissen angepasst [10], [8], [117]. Allerdings gab und gibt es stets Verbesserungsbedarf bei den Emissionsmodellen, u. a. verursacht durch Änderungen der Schwerpunkte der Luftreinhaltung aufgrund von geänderten gesetzlichen Rahmenbedingungen. Als Beispiel kann die Verschärfung der Immissionsgrenzwerte für PM_{10} und NO_2 [118] in den letzten Jahren genannt werden. Momentan gibt es noch große Wissenslücken im Bereich der Partikel- und insbesondere der Rußemissionen im Abgas, aber auch bei Abriebvorgängen von Partikeln (Reifen, Straße, Bremsen) und deren Wiederaufwirbelung [119]. Es gab auch im Bereich der NO_x-Emissionen verschiedentlich Hinweise, dass die bisher verwendeten Emissionsfaktoren, und hier insbesondere die Emissionsfaktoren für den Schwerverkehr, eventuell nicht den wirklich freigesetzten Emissionen entsprachen [19], [33], [34]. Diese Hinweise und die Tatsache, dass den Emissionsmodellen und Emissionskatastern sehr viele Abschätzungen und Hochrechnungen zugrunde liegen und damit stets Unsicherheiten bei der Emissionsberechnung bleiben, erfordern von Zeit zu Zeit eine Überprüfung der Ergebnisse von Emissionsmodellen.

In den folgenden Kapiteln wird eine Methode entwickelt und beschrieben, mit deren Hilfe die in einem Untersuchungsgebiet freigesetzten Emissionen von Luftverunreinigungen durch Messungen in der Außenluft bestimmt werden können. Mit Hilfe von Vertikal- und Horizontalprofilmessungen können die Konzentrationen von Luftverunreinigungen im Luv und Lee von Emissionsquellen bestimmt werden, um daraus die in den Untersuchungsgebieten freigesetzten Emissionen messtechnisch zu bestimmen. Gleichzeitig werden die Emissionen über ein Emissionsmodell rechnerisch bestimmt und mit den messtechnisch ermittelten Emissionen verglichen. Im Rahmen des Verbundvorhabens EVA (Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt) wurde erstmals die Bilanzierung aller freigesetzten Luftverunreinigungen einer ganzen Stadt durchgeführt. Im Projekt BAB II hingegen wurden die Emissionen eines Autobahnabschnitts experimentell und rechnerisch bestimmt.

4 Bilanzierung von Luftverunreinigungsmassenströmen auf der Basis von Messungen im Luv und Lee von Emissionsquellen

4.1 Theoretische Grundlagen der Bilanzierung von Luftverunreinigungen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen erarbeitet, die zur Herleitung der in der vorliegenden Dissertation verwendeten Massenbilanzierung benötigt werden. Ein messtechnisches Verfahren zur Bestimmung von Emissionen z. B. eines Gebietes ist die Massenbilanzmethode. Ergebnisse von Konzentrationsmessungen in der Außenluft dienen der Berechnung der Massenflüsse der zu untersuchenden Komponente, die über die gedachten Randflächen des Volumens über dem Untersuchungsgebiet (Boxmodell) fließen. Bild 4.1 zeigt in einer zweidimensionalen Darstellung schematisch ein Boxmodell. Die Pfeile stellen alle Zufluss- bzw. Produktionsterme (+) und alle Abfluss- bzw. Verlustterme (-) für Luftverunreinigungen dar, die berücksichtigt werden müssen. Es handelt sich sowohl um Massenflüsse, die über die Bilanzflächen des Bilanzvolumens ein- und austreten, als auch um Quellen und Senken innerhalb des Untersuchungsgebiets. Der Übersichtlichkeit halber wurde das Bilanzvolumen in Bild 4.1 auf eine Fläche projiziert; in Wirklichkeit handelt es sich um einen dreidimensionalen Raum, der die Berücksichtigung der advektiven und turbulenten Zu- und Abflüsse über die Seitenflächen notwendig macht. Die Bilanzierung aller Massenflüsse, auch derer über die Seitenflächen, und die Einbeziehung aller Quellen und Senken ergeben unter Einhaltung der Massenerhaltung die Gleichung 4.1:

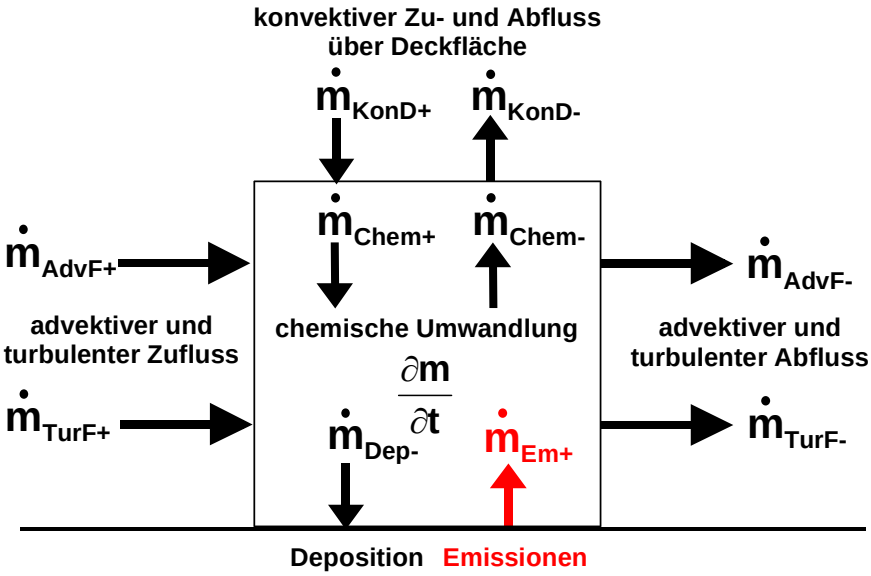


Bild 4.1: Schematische 2-D-Darstellung der Bilanzierung von Luftverunreinigungen in einem Bilanzvolumen:
Adv... Advektion, **Tur**... Turbulenz, **Kon**... Konvektion, **Chem**... Chemie, **Dep**... Deposition, **Em**... Emission, **F**... Frontfläche, **S**... Seitenfläche, **D**... Deckfläche, +... Zufluss / Quelle, -... Abfluss / Senke

$$\frac{\partial m}{\partial t} = (\dot{m}_{AdvF+} + \dot{m}_{TurF+} + \dot{m}_{AdvS+} + \dot{m}_{TurS+} + \dot{m}_{KonD+} + \dot{m}_{Chem+} + \dot{m}_{Em+}) - (\dot{m}_{AdvF-} + \dot{m}_{TurF-} + \dot{m}_{AdvS-} + \dot{m}_{TurS-} + \dot{m}_{KonD-} + \dot{m}_{Chem-} + \dot{m}_{Dep-}) \quad \textbf{(4.1)}$$

Die Terme lauten im Einzelnen:

$\frac{\partial m}{\partial t}$: zeitliche Änderung der Masse innerhalb des Bilanzvolumens

$\dot{m}_{AdvF+}, \dot{m}_{AdvF-}$: Advektive Zu- und Abflüsse über die Frontflächen

$\dot{m}_{TurF+}, \dot{m}_{TurF-}$: Turbulente Zu- und Abflüsse über die Frontflächen

$\dot{m}_{AdvS+}, \dot{m}_{AdvS-}$: Advektive Zu- und Abflüsse über die Seitenflächen

$\dot{m}_{TurS+}, \dot{m}_{TurS-}$: Turbulente Zu- und Abflüsse über die Seitenflächen

$\dot{m}_{KonD+}, \dot{m}_{KonD-}$: Konvektive Zu- und Abflüsse über die Deckfläche

$\dot{m}_{Chem+}, \dot{m}_{Chem-}$: Quellen und Senken durch chemische Umwandlung

$\dot{m}_{Dep-}$: Senke durch trockene Deposition

$\dot{m}_{Em+}$: freigesetzte Emissionen

Eine **zeitliche Änderung der Masse m ($\frac{\partial m}{\partial t}$)** im betrachteten Volumen könnte dadurch auftreten, dass die ein- und ausströmenden Flüsse einer zeitlichen Änderung unterworfen sind oder dass sich das Volumen des Bilanzraums z. B. durch Anhebung der Mischungsschichthöhe im betrachteten Zeitraum ändert.

Die **advektiven Zu- und Abflüsse** über die **Front- und Seitenflächen** werden durch die horizontale Komponente des Winds verursacht, der die freigesetzten Luftverunreinigungen horizontal verfrachtet und über die Grenzflächen ins Bilanzvolumen ein- bzw. aus dem Bilanzvolumen austrägt.

Die im Folgenden beschriebenen Terme, welche die Massenbilanz beeinflussen können, wurden ausführlich in Kapitel 2 beschrieben. **Turbulente Zu- und Abflüsse** über die **Front- und Seitenflächen** können durch Reibungsturbulenz, durch thermisch induzierte Turbulenz oder durch fahrzeuginduzierte Turbulenz (eine Form der Reibungsturbulenz) entstehen. Reibungsturbulenz wird durch erhöhte Bodenrauigkeit hervorgerufen, die wiederum durch Hindernisse wie Gebäude, Bäume oder durch eine stark gegliederte Topografie verursacht wird. Thermisch induzierte Turbulenz wird durch Erhitzung der Erdoberfläche durch Sonnenstrahlung initiiert, die dann ihrerseits durch Wärmeleitung die darüber hinwegströmenden Luftmassen erhitzt. Die erhitzten Luftmassen dehnen sich aus und steigen aufgrund ihrer geringeren Dichte in größere Höhen auf und erhöhen somit den turbulenten Anteil der Luftströmung. Bei Messungen an Straßen und bei der Durchführung von Bilanzierungsberechnungen spielen Turbulenzen eine besonders wichtige Rolle [120], [121]. Zum einen verursachen fahrende Fahrzeuge selbst sehr starke Turbulenzen, fahrzeuginduzierte Turbulenz genannt. Zum anderen befinden sich Straßen und besonders Autobahnen oftmals auf einem Damm, der für senk-

recht auftreffende Luftströmungen ein Hindernis darstellt und somit im Lee der Straße Reibungsturbulenz erzeugt. Zudem absorbiert Asphalt verstärkt Sonnenstrahlung, erhitzt sich infolgedessen und erzeugt durch Wärmeabgabe an die angrenzende Umgebungsluft thermische Turbulenzen. Turbulente Strömungen besitzen die Eigenschaft, freigesetzte Luftverunreinigungen zusätzlich zu den advektiven Strömungen zu verdünnen. Da es sich bei Turbulenzen um sehr kurzfristige Änderungen der Strömungsrichtung und -geschwindigkeit handelt, müssen Messgeräte, die turbulente Flüsse erfassen möchten, eine sehr hochfrequente zeitliche Auflösung ermöglichen. Wenzel [122] stellte für das in Kapitel 3 beschriebene Bilanzexperiment an der Autobahn A 3 fest, dass bei dem relativ geringen Abstand von 8 bzw. 12 m zwischen der Autobahn und den Messtürmen die turbulenten Flüsse eine Größenordnung von 20 % der gesamten Flüsse betragen können, so dass sie nicht mehr vernachlässigt werden können.

Die **konvektiven Zu- und Abflüsse** über die **Deckflächen** des betrachteten Volumens können durch aufsteigende oder absinkende Luftmassen in labiler meteorologischer Schichtung als Folge der zuvor beschriebenen Erhitzung der Erdoberfläche durch Sonnenstrahlung verursacht werden.

Chemische Reaktionen können bei reaktiven Komponenten eine Zu- oder Abnahme der Konzentrationen bzw. der Masse im Bilanzvolumen verursachen. Betrachtet man das photostationäre Gleichgewicht zwischen NO und O_3 einerseits und NO_2 andererseits, dann nimmt nach Freisetzung der NO-Emissionen und bei gleichzeitigem Vorhandensein von O_3 in der Atmosphäre die NO-Konzentration durch Reaktion mit O_3 in unmittelbarer Nähe der Emissionsquelle rasch ab, während die NO_2-Konzentration rasch zunimmt. Das chemisch relativ inerte CO hingegen wird sich in unmittelbarer Nähe der Emissionsquelle kaum durch chemische Reaktionen verändern, vielmehr dominiert der physikalische Verdünnungseffekt bei entsprechenden meteorologischen Ausbreitungsbedingungen.

Trockene Deposition kann zu einer Verminderung der Masse einer reaktiven Komponente im Bilanzvolumen führen, indem die Komponente durch turbulente Flüsse zu verschiedenen Oberflächen (Boden, Pflanzen, Gebäude etc.) transportiert wird, an denen sie ab- oder adsorbiert wird oder chemisch weiter reagiert. O_3 ist eine typische reaktive Komponente, die durch trockene Deposition aus der Atmosphäre in größerem Umfang entfernt wird.

Emissionen können aus unterschiedlichen Quellen in die Atmosphäre freigesetzt werden und rufen eine Massen- bzw. Konzentrationszunahme im Bilanzvolumen hervor.

Gleichung 4.1 bezieht sich auf die Bilanzierung der Massenströme der Luftverunreinigungskomponenten. In dieser Gleichung werden die Gesamtluftmassenströme nicht berücksichtigt, d. h. die Massenströme aller in der Umgebungsluft enthaltenen Moleküle (hauptsächlich N_2 und O_2). Bei der Bilanzierung ist darauf zu achten, dass die Kontinuitätsgleichung eingehalten wird, d. h. die in das Bilanzvolumen eintretenden Luftmassenströme müssen im Gleichge-

wicht mit den austretenden Luftmassenströme stehen, so dass keine Divergenz[1] im Bilanzvolumen auftritt.

Im Folgenden wird Gleichung 4.1 daraufhin untersucht ob einzelne Terme aufgrund ihres geringen Beitrags zur Bilanz, vernachlässigt werden können und somit die Gleichung vereinfacht und der messtechnische Aufwand reduziert werden kann.

4.2 Getroffene Annahmen zur Vereinfachung der Bilanzierung von Luftverunreinigungen

Eine zeitliche Änderung der Masse m $\left(\frac{\partial m}{\partial t}\right)$ im betrachteten Volumen wird dadurch ausgeschlossen, dass stationäre meteorologische Bedingungen und stationäre Bedingungen bei der Freisetzung der Emissionen für die Durchführung der Bilanzierung als Voraussetzung angenommen werden [123], [124]. Wird die Bilanzierung über einen längeren Zeitraum durchgeführt, wodurch die advektiven Zu- und Abflüsse die Bilanz dominieren und das gesamte Bilanzvolumen im Bilanzzeitraum mehrmals vollständig ausgetauscht wird, so wird der Term der zeitlichen Änderung der Masse im Bilanzvolumen vernachlässigbar klein.

Die **advektiven Zu- und Abflüsse** über die **Frontflächen** werden über Konzentrationsmessungen im Luv und Lee des Untersuchungsgebiets bestimmt. Deren genaue Berechnung wird im folgenden Unterkapitel erläutert.

Die **advektiven Zu- und Abflüsse** über die **Seitenflächen** können vernachlässigt werden, wenn sichergestellt wird, dass die Bilanzflächen senkrecht zur Windrichtung gelegt werden oder bei der Bilanzierung nur die zur Bilanzfläche senkrechte Windgeschwindigkeitskomponente bei der Berechnung der Massenflüsse berücksichtigt wird.

Die **turbulenten Flüsse** sind so hochfrequent, dass übliche Windmessgeräte und Messgeräte zur Bestimmung der Konzentrationen diese hohe zeitliche Auflösung nicht erreichen können, so dass bei der Konzeption von Experimenten darauf zu achten ist, dass die turbulenten Flüsse im Vergleich zu den advektiven Flüssen vernachlässigbar gering sind. Die **turbulenten Zu- und Abflüsse** über die **Front- und Seitenflächen** können vernachlässigt werden, wenn Folgendes beachtet wird: Die Bilanzflächen müssen so gelegt werden, dass die Messergebnisse nicht durch Reibungsturbulenz beeinflusst werden. Das bedeutet, dass die Messungen in relativ ebenem Gelände, möglichst ohne oder mit nur niedriger Bebauung oder Bewuchs stattfinden sollten. Thermisch induzierte Turbulenz kann vernachlässigt werden, wenn die Experimente nicht an Hochsommertagen mit starker Sonneneinstrahlung, bei Hochdruckwetterlage und labiler meteorologischer Schichtung der Atmosphäre durchgeführt werden. Bei Messungen an Straßen ist besonders darauf zu achten, dass die Messstellen im Lee der Straße in genügend großem Abstand von den Fahrbahnen eingerichtet werden, da die dort erzeugten Tur-

[1] Divergenz: Auseinanderstreben von Luftmassen

bulenzen mit zunehmendem Abstand zur Straße wieder abnehmen. Gibt es zwingende Gründe, in der Nähe der Fahrbahn zu messen, dann muss der größere Aufwand zur Messung der turbulenten Flüsse in Kauf genommen werden, was an den hohen Kosten für solche Geräte scheitern kann, sofern sie überhaupt zur Verfügung stehen. Eine weitere Möglichkeit der Berücksichtigung der turbulenten Flüsse kann eine Abschätzung des Beitrags der turbulenten zu den gesamten Flüssen über die Bilanzgrenzen hinweg sein, die mit Hilfe einer Computersimulation vorgenommen werden kann [125]. Im Projekt BAB II wurden umfangreiche Turbulenzmessungen in unterschiedlichen Abständen zu den Fahrbahnen der Autobahn vorgenommen. Im Lee der Autobahn wurden stark erhöhte Turbulenzen festgestellt, die allerdings im Abstand von 50 m von der Autobahn soweit abgeklungen waren, dass sie vernachlässigt werden konnten [115].

Die **konvektiven Zu- und Abflüsse** über die **Deckflächen** des betrachteten Bilanzvolumens können dann vernachlässigt werden, wenn die Höhe des Bilanzvolumens ausreichend ist, d. h. die Konzentrationen der Luftverunreinigungsmassenströme beim Verlassen des Bilanzvolumens über die leeseitige Frontfläche in großen Höhen den Konzentrationen beim Eintritt über die luvseitige Frontfläche entspricht; in anderen Worten: wenn die Abgasfahne des Untersuchungsgebietes in ihrer gesamten vertikalen Ausdehnung messtechnisch erfasst wird. Kann dies nicht sicher gestellt werden, dann entweicht ein nicht quantifizierbarer Teil der Luftverunreinigungen über die Deckflächen. Temperaturinversionen sind sehr stabile Schichten innerhalb der Atmosphäre und wirken fast immer als Sperrschicht für die unterhalb der Inversion freigesetzten Luftverunreinigungen. Befinden sich in einem Bilanzvolumen Temperaturinversionen, so können auch in diesem Fall die konvektiven Zu- und Abflüsse über die Deckflächen vernachlässigt werden. In Bild 4.2 ist der Sachverhalt der Wirkung einer Temperaturinversion als Sperrschicht anschaulich am Beispiel einer abgehobenen Bodeninversion dargestellt. Die dargestellten Vertikalprofile wurden am Morgen des 24.8.1999 in Berlin mit Hilfe des Fesselballonmesssystems des IFK aufgenommen. Betrachtet man die Vertikalprofile der Temperatur, so nimmt die Temperatur mit zunehmender Höhe bis ca. 200 m ab. Dann nimmt

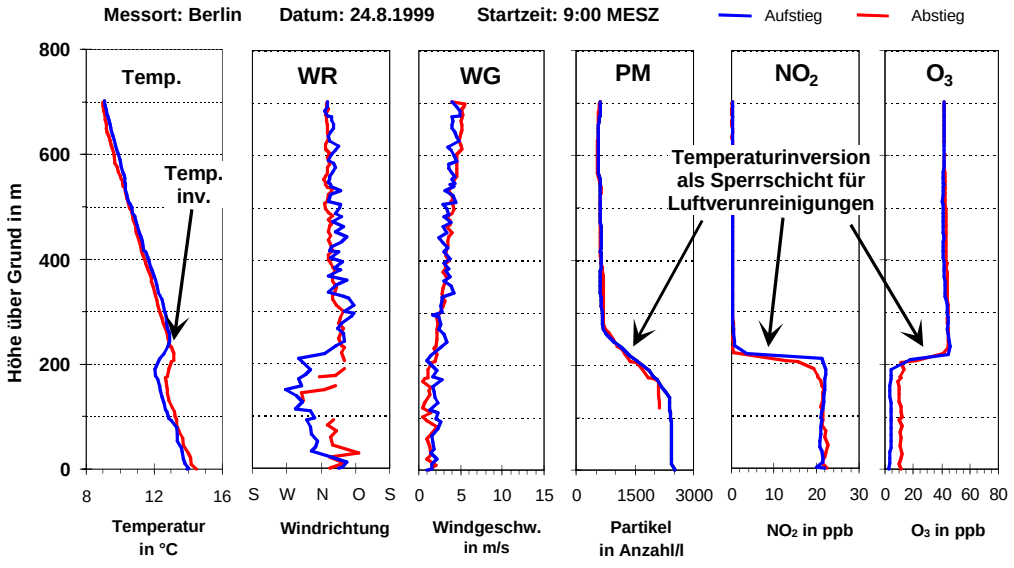


Bild 4.2: Beispiel von Vertikalprofilen von Fesselballonmessungen zur Verdeutlichung der vertikalen Sperrwirkung einer abgehobenen Bodeninversion [126]

sie innerhalb weniger Meter um ca. zwei Grad Celsius zu und darüber nimmt sie mit zunehmender Höhe wieder ab. Diesen vertikalen Temperaturverlauf bezeichnet man als abgehobene Bodeninversion, welche wie ein Deckel für die darunter freigesetzten Luftverunreinigungen wirkt, was sich sehr deutlich an den Vertikalprofilen von PM, NO_2 und O_3 erkennen lässt. PM und NO_2 nehmen bodennah bis zur Höhe der Temperaturinversion relativ hohe, aber auch konstante Werte von 2500 Partikel/l bzw. 20 ppb an; oberhalb der Temperaturinversion sinken die Werte schlagartig auf ca. 600 Partikel/l bzw. <1 ppb. O_3 verhält sich aufgrund des nächtlichen Ozonabbaus entsprechend invers zu NO_2. Die bodennah freigesetzten Luftverunreinigungen können sich in diesem Beispiel vertikal bis maximal 200 m ausbreiten. Diese Schicht wird auch Mischungsschicht genannt und sie wird von der Sperrschicht vertikal begrenzt. Für Bilanzexperimente ist die Existenz von Temperaturinversionen immer von Vorteil, da dadurch die vertikale Ausbreitung der Luftverunreinigungen nach oben hin begrenzt wird. In diesem Fall sollte die minimale Messhöhe mindestens bis zur Temperaturinversion reichen, welche die Mischungsschicht begrenzt.

Im Projekt EVA wurden Flugzeugmessungen bis über die die Mischungsschicht zur freien Troposphäre hin begrenzende Absinkinversion hinaus durchgeführt, so dass konvektive Abflüsse über die Deckflächen ausgeschlossen werden konnten. Im Projekt BAB verhielt es sich etwas anders: Aufgrund des geringen Abstands der Emissionsquelle Autobahn zu den Standorten der Vertikalprofilmessungen im Lee der Autobahn von 60 bzw. 84 m war in diesem Fall eine die vertikale Ausbreitung begrenzende Temperaturinversion nicht notwendig. Es musste nur sichergestellt sein, dass die Abgasfahne der Autobahn stets komplett erfasst wurde. Im Laufe des Experiments stellte sich jedoch heraus, dass die Abgasfahnenhöhe der Autobahn stets geringer war als die maximale Messhöhe. Der Term der konvektiven Zu- und Abflüsse über die Deckflächen kann somit für die Bilanzierung in beiden Experimenten vernachlässigt werden.

Chemische Reaktionen können dann vernachlässigt werden, wenn chemisch inerte Komponenten betrachtet werden. Die Verweilzeiten der Komponenten in der Atmosphäre, die in den Kapiteln 5 und 6 der Bilanzierung unterzogen werden, sind um ein Vielfaches höher als die Zeit, die die Luftverunreinigungen für den Transport von der Emissionsquelle bis zur Messung an der Bilanzgrenze benötigen. Chemische Reaktionen werden maßgeblich durch intensive Sonneneinstrahlung und hohe Temperaturen beschleunigt. U. a. aus diesem Grunde wurden die Messzeiträume für die Experimente EVA und BAB II auf Frühjahr bzw. Herbst gelegt, da zu diesen Jahreszeiten weder hohe Temperaturen noch starke Sonneneinstrahlung zu erwarten sind. Im Projekt EVA wurden begleitende Ausbreitungs- und Bilanzsimulationen mit dem Simulationsprogramm KAMM/DRAIS mit integriertem Chemie-Transport-Modul (CTM) durchgeführt und es konnte nachgewiesen werden, dass für das relativ inerte CO im Bilanzvolumen keine chemischen Reaktionen als Verlust- oder Quellterm in Frage kommen. Für NO_x ergaben sich Werte von 5 bis 12 % [127]. Allerdings wurden die chemischen Reaktionen für NO_x großteils für nächtliche Stunden prognostiziert, wenn NO_2 in nennenswertem Umfang mit O_3 zu NO_3 und N_2O_5 reagiert [128]. Somit können auch für NO_x chemische Reaktionen als Quell- oder Verlustterme in der Bilanz vernachlässigt werden, da die Bilanzierungen ausschließlich für Zeiträume tagsüber durchgeführt wurden. Ausführliche Untersu-

chungen zum chemischen Abbau einer großen Anzahl von Komponenten, hauptsächlich VOCs, wurden im Projekt EVA von Mannschreck unternommen [129]. In Anhang 1 sind die Ergebnisse dieser Untersuchungen zusammengefasst, die einerseits den chemischen Abbau mit den sehr reaktiven OH-Radikalen und andererseits Abbaureaktionen mit dem ebenfalls reaktiven Ozon berücksichtigen. Den Berechnungen für Augsburg wurden realistische Annahmen zugrunde gelegt. Abgesehen von einigen Kohlenwasserstoffen (wie z. B. Isopren oder 1,3,5-Trimethylbenzol) lagen für die meisten der dort gemessenen Kohlenwasserstoffkomponenten die Anteile, die durch chemische Reaktion abgebaut werden, im einstelligen Prozentbereich oder darunter. Werden Bilanzierungen für die reaktiven VOCs durchgeführt, muss u. U. ein Korrekturfaktor für die chemische Umwandlung eingeführt werden.

Im Projekt BAB II waren die Distanzen zwischen Emissionsquelle und Bilanzgrenze mit 60 bzw. 80 m so gering, dass chemische Umwandlung als nennenswerter Quell- oder Verlustterm in der Bilanzierung für die betrachteten Komponenten ausgeschlossen werden konnte.

Die Bedingungen für **Deposition** ähneln denen für chemische Umwandlung. Neben der Neigung der einzelnen Stoffe zu Deposition (Depositionsgeschwindigkeit) ist auch die Größe des Bilanzvolumens und somit die Dauer des Transports von der Emissionsquelle bis zur Bilanzgrenze entscheidend, da ein langer Transportweg und eine lange Verweilzeit im Bilanzvolumen die Wahrscheinlichkeit erhöhen, dass Moleküle Oberflächen berühren und dort deponieren. Für die Komponenten CO und NO_x wurden im Projekt EVA von Nester et al. ebenfalls die Depositionsraten bestimmt. Bei einer Depositionsgeschwindigkeit von 0,03 cm/s ergaben sich Beiträge der Deposition zur Gesamtbilanz von 2,5 % für CO und < 5 % für NO_x [127]. Im Projekt BAB II spielte die Deposition aufgrund des geringen Abstands von der Emissionsquelle zur Bilanzgrenze eine noch wesentlich geringere Rolle.

Für die in den Kapiteln 5 und 6 betrachteten Projekte EVA und BAB II wurden all jene Regeln beachtet, die in diesem Unterkapitel beschrieben wurden, so dass sämtliche genannten Terme in der Bilanz vernachlässigt werden können.. Von allen Termen in Gleichung 4.1 bleiben nur noch der advektive Zu- und Abfluss über die Frontfläche und die freigesetzten Emissionen übrig, wodurch sich Gleichung 4.1 zu Gleichung 4.2 vereinfacht. Bild 4.3 verdeutlicht dies ebenfalls Die messtechnische Bestimmung der Emissionen wird dadurch wesentlich vereinfacht.

$$\dot{m}_{Em+} = \dot{m}_{AdvF-} - \dot{m}_{AdvF+} \qquad \textbf{(4.2)}$$

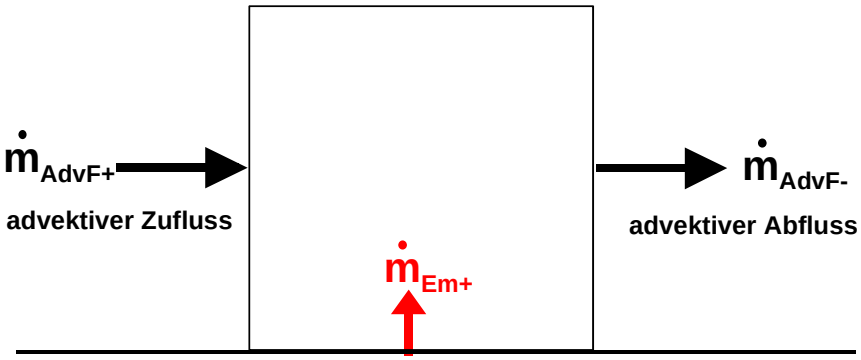


Bild 4.3: Vereinfachte schematische 2-D-Darstellung des Boxmodells zur Bilanzierung von Luftverunreinigungen:
Adv... Advektion, **Em**... Emission, **F**... Frontfläche, +... Zufluss / Quelle, -... Abfluss / Senke

4.3 Generelles Messkonzept

Der Massenstrom aus Gleichung 4.2 berechnet sich als Produkt aus Massenkonzentration c (in µg/m³) und Luftvolumenstrom $\dot{V}$ (in m³/s) entsprechend der Gleichung 4.3, wobei sich der Volumenstrom seinerseits wiederum aus dem Produkt der Frontfläche A_F (in m²) und der Windgeschwindigkeit $v_\perp$ (in m/s) zusammensetzt. $v_\perp$ bedeutet die zur Bilanzfrontfläche senkrechte Komponente der Windgeschwindigkeit v.

$$\dot{m}_{Em+} = (c_{AdvF-} - c_{AdvF+}) * \dot{V} = (c_{AdvF-} - c_{AdvF+}) * A_F * v_\perp \qquad \textbf{(4.3)}$$

Da aber sowohl die Windgeschwindigkeit als auch die Konzentration vertikal (z-Richtung) wie horizontal (y-Richtung -> entlang der Frontfläche) veränderlich sind, muss Gleichung 4.3 in integraler Form aufgestellt werden.

$$\dot{m}_{Em+} = \int_0^L \int_0^H v_{\perp F-}(y,z) * c_{AdvF-}(y,z) \, dy\, dz - \int_0^L \int_0^H v_{\perp F+}(y,z) * c_{AdvF+}(y,z) \, dy\, dz \qquad \textbf{(4.4)}$$

Somit ergibt sich Gleichung 4.4, welche eine Massenbilanzgleichung darstellt, die für ein Emissionsgebiet unter den in Kapitel 4.2 getroffenen Annahmen allgemeine Gültigkeit besitzt. Wie sich aus der Gleichung ergibt, müssen sowohl die Vertikal- als auch die Horizontalverteilungen der Windgeschwindigkeit, der Windrichtung und der Konzentrationen der zu untersuchenden luftverunreinigenden Komponente in möglichst hoher räumlicher Auflösung sowohl vertikal als auch horizontal gemessen werden. Bild 4.4 soll diese Notwendigkeit noch verdeutlichen. Da aber dem messtechnischen und finanziellen Aufwand für solche Untersuchungen Grenzen gesetzt sind und auch nur dort in hoher räumlicher Auflösung gemessen werden muss, wo starke Gradienten der Messgrößen zu erwarten sind, können teilweise weitere Vereinfachungen der allgemeinen Massenbilanzgleichung (Gleichung 4.4) durchgeführt werden. Diese werden in den Kapiteln 5 und 6 behandelt, in denen die konkreten Anwendungsfälle beschrieben werden.

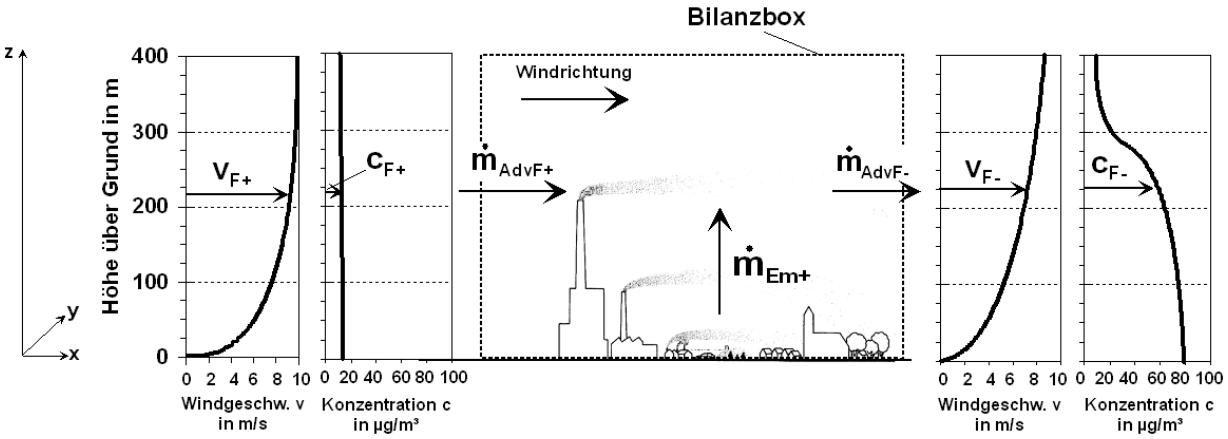


Bild 4.4: Anwendung der Bilanzmethode auf ein Emissionsgebiet. Vertikalprofile der Windgeschwindigkeit v und der Konzentrationen c an den Bilanzflächen

4.4 Eingesetzte Messsysteme

4.4.1 Fesselballonmesssystem

Fesselballone sind geeignete Messsysteme, um die vertikale Verteilung und die zeitliche Variation von Luftverunreinigungen innerhalb der Mischungsschicht bis in ca. 1000 m über Grund in hoher vertikaler Auflösung zu bestimmen [130]. Gegenüber Messflugzeugen haben sie den großen Vorteil, dass sie keine Mindestflughöhe einhalten müssen und die Vertikalprofile deshalb direkt über dem Erdboden beginnen. Dies stellt sich bei vielen Untersuchungen als sehr vorteilhaft heraus, da in Bodennähe meist die größten Variationen der Konzentrationen auftreten, weil ein Großteil der Luftverunreinigungen in Bodennähe freigesetzt wird. Ein weiterer großer Vorteil von Fesselballonen gegenüber Flugzeugen (und auch Luftschiffen) ist die Tatsache, dass sie sowohl tagsüber als auch nachts eingesetzt werden können. Zudem können Messungen kontinuierlich über einen Zeitraum von bis zu einer Woche durchgeführt werden, nur unterbrochen von kurzen, 30- bis 45-minütigen Pausen zur Wartung und Kalibrierung der Geräte und dem Wechsel der Akkumulatoren. Ein großer Nachteil von Fesselballonmesssystemen gegenüber Messflugzeugen ist jedoch, dass mit ihnen keine Horizontalprofile aufgenommen werden können. Ein weiterer Nachteil verglichen mit Messflugzeugen oder auch Fernerkundungssystemen ist die Empfindlichkeit gegenüber hohen Windgeschwindigkeiten und böigem Wind. Bei Windgeschwindigkeiten größer 10 m/s sollte der Fesselballon eingeholt und fest am Erdboden verankert werden. Allerdings sind für viele Fragestellungen in Projekten, bei denen Fesselballone zum Einsatz kommen, niedrige Windgeschwindigkeiten Voraussetzung, so dass dieser Nachteil oftmals nicht zum Tragen kommt. Außerdem ist die maximal mögliche Zuladung für die Messgeräte mit 20 kg relativ gering im Vergleich zu Flugzeugen. Dieser Nachteil kann durch den Einsatz von Leichtgewichtmessgeräten und Messsonden mit geringem Stromverbrauch größtenteils wettgemacht werden, allerdings muss ein größerer Aufwand für Wartung und Kalibrierung gegenüber den üblicherweise in der Luftreinhaltung eingesetzten Messgeräten in Kauf genommen werden, da Leichtgewichtmessgeräte im Allgemeinen nicht so langzeitstabil arbeiten.

Fesselballonmessungen werden von zahlreichen Institutionen weltweit durchgeführt und die Ergebnisse in der Literatur dokumentiert [131] – [136]. Allerdings wird mit keinem in der Literatur beschriebenen Fesselballonmesssystem neben den meteorologischen Parametern eine solche Vielzahl von unterschiedlichen Luftverunreinigungen am Fesselballon gemessen wie mit dem System des IFK (Bild 4.5).

Das erste Fesselballonmesssystem wurde am IFK 1988 in Betrieb genommen. Eine umfassende Beschreibung des ursprünglichen Systems und der Messeinsätze bis 1992 sind nachzulesen in [137]. Weitere Beschreibungen des Systems sind in [138] und [139] dokumentiert. Zwischenzeitlich wurde und wird das System laufend erweitert und verbessert.

Die Fesselballonmesssysteme des IFK waren zwischen 1994 und 2007 für die Untersuchungen verschiedener atmosphärischer Prozesse im Einsatz (Details und Literaturangaben dazu in Anhang 2).

Wie in Bild 4.5 dargestellt, besteht das Fesselballonmesssystem aus den folgenden Hauptkomponenten:

- **Fesselballon** (Fa. AIR Inc. und Fa. GEFA-Flug)
- **Seil** (Polyethylen, Handelsname: Dyneema)
- **Elektrische Seilwinde** (Firma Pützer-Defries)
- **Messgeräte** und **Sonden** (meteorologische Parameter und Luftverunreinigungen), Stromversorgung am Ballon (12 V-Akkumulatoren)
- **Bodenstation** (Datenempfangseinheit, Kalibriersysteme etc.)

In Bild 4.5 (Mitte) sind die technischen Daten des Fesselballonmesssystems aufgelistet. Die Ballone sind zeppelinförmig gebaut und besitzen Heckflossen zur Ausrichtung im Wind (Bestimmung der Windrichtung über einen eingebauten Kompass). Es stehen vier **Ballone** mit Volumina zwischen 7 und 85 m³ zur Verfügung. Die Messaufgabe bestimmt die Art und Anzahl der Messgeräte und damit die notwendige Nutzlast. Der 7 m³-Ballon kann problemlos bis max. 5 kg und der 85 m³-Ballon bis max. 20 kg Nutzlast (Messgeräte und Akkumulatoren) zusätzlich zum Gewicht der Ballonhülle und des ausgefahrenen Seils transportieren. Fesselballonmessungen sind kostspielig und arbeitsaufwändig. Je größer der Ballon und je mehr Messgeräte im Einsatz sind, desto teurer und arbeitsintensiver werden die Vorbereitungen, Durchführung und Auswertung der Messungen. Deshalb sollte der notwendige Umfang der Messungen und die Anzahl der Messparameter im Planungsstadium genau festgelegt und limitiert werden.

Die Aufstiegsgeschwindigkeit des Ballons wird über die Ab- und Aufrollgeschwindigkeit des Seils an der elektrischen Seilwinde reguliert und hängt von der Messstrategie und der Anzeigeverzögerung der eingesetzten Messgeräte ab. Sie kann zwischen 0 und > 60 m/min stufenlos variiert werden, wobei die Maximalgeschwindigkeit nur im Notfall genutzt werden sollte, da hierbei aufgrund der Anzeigeverzögerung der Messgeräte auf jeden Fall Hystereseeffekte zwischen den Aufstiegs- und den Abstiegsprofilen auftreten würden. Dies muss natürlich vermieden werden, um eine eindeutige Zuordnung der Messwerte zur Messhöhe zu erhalten. Ei-

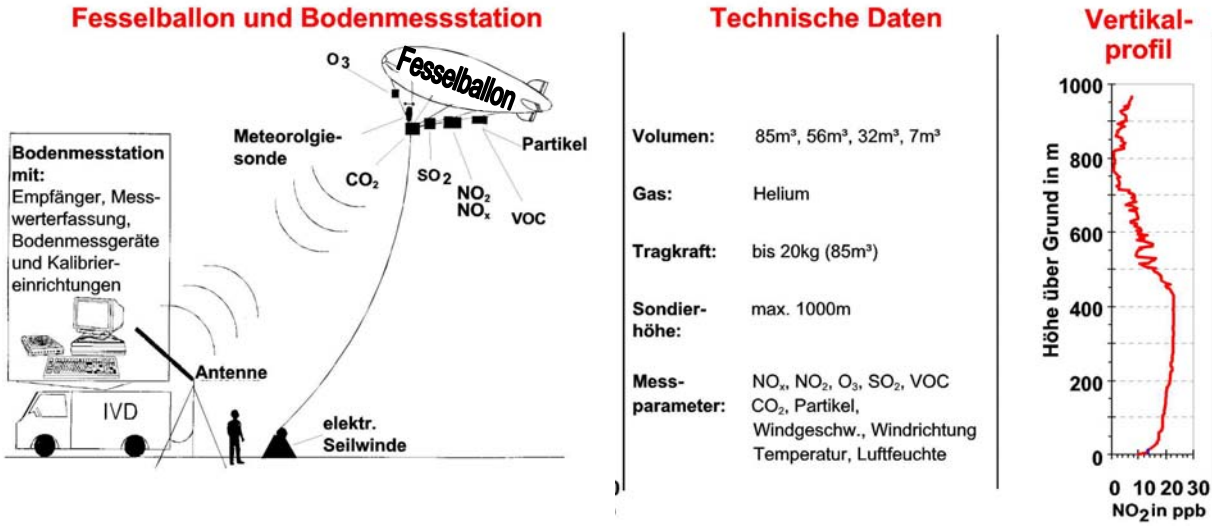


Bild 4.5: Fesselballonmesssystem des IFK: schematische Darstellung des Fesselballonmesssystems (links), der technischen Daten (Mitte) und eines beispielhaften Vertikalprofils (rechts)

ne Sondierung, bestehend aus Auf- und Abstieg, dauert zwischen 30 Minuten und 1,5 Stunden, abhängig von der maximalen Aufstiegshöhe und der Aufstiegsgeschwindigkeit. Es können kontinuierliche Vertikalsondierungen, z. B. jede Stunde eine Sondierung, über einen Zeitraum von mehreren Tagen bis zu einer Woche durchgeführt werden.

Für den Betrieb eines Fesselballons muss im Vorfeld für jeden Messzeitraum eine behördliche Aufstiegsgenehmigung bei der zuständigen Behörde (in Baden-Württemberg die Regierungspräsidien) beantragt werden. Darin werden aus Sicherheitsgründen verschiedene Auflagen genannt, deren Einhaltung unbedingt gewährt sein muss. U. a. muss tagsüber das Halteseil durch ca. 4 m lange Windsäcke, die im Abstand von ca. 50 m am Seil angebracht werden, sichtbar gemacht werden. Nachts müssen im gleichen Abstand Blitzlampen am Seil angebracht werden, die bis in ca. 8 km Entfernung noch gut sichtbar sind. Des Weiteren müssen die Abstimmung mit der regionalen Flugsicherung, die rechtzeitige Bekanntgabe der Aufstiege, die Einhaltung der maximalen Flughöhe sowie der Abbruch der Messungen bei Überschreiten der maximal zulässigen Windgeschwindigkeiten und der minimalen Sichtweite als Auflagen eingehalten werden.

Die Messgeräte und Sonden sind unterhalb des Ballons in der Takelage befestigt (Bild 4.6). Das Kernstück der Messtechnik an den Fesselballonen ist die Meteorologiesonde, mit deren Hilfe nicht nur die meteorologischen Parameter (Windrichtung (Kompass), Windgeschwindigkeit (Schalenkreuzanemometer), Luftdruck (Aneroidbarometer zur Höhenbestimmung), trockene und feuchte Temperatur (Tyristor)) bestimmt werden, sondern die auch als Datenübertragungseinheit für alle am Ballon gemessenen Parameter dient. Während den in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Messungen kam die Meteorologiesonde und die Datenübertragungseinheit ADAS (Atmospheric Data Acquisition System) der Firma AIR Inc. zum Einsatz [140]. Eingehende Untersuchungen zu dieser Meteorologiesonde werden in der Arbeit von Steisslinger beschrieben [137]. Mittlerweile wurde dieses System durch ein leistungsfähigeres der Firma Kroneis ersetzt. Die Messungen der meteorologischen Größen (siehe oben) und aller Luftverunreinigungsparameter (NO, NO_2, O_3, CO_2, SO_2, Partikel) finden kontinuierlich statt, abgesehen von den flüchtigen organischen Verbindungen (VOCs), deren Probennahme methodebedingt diskontinuierlich stattfinden muss.

Die Messsignale werden kontinuierlich alle 3 - 10 Sekunden über die Telemetrieeinheit zur Bodenmessstation übertragen. Dort werden die Daten zu Überwachungszwecken am Bildschirm sichtbar gemacht und auf Datenträger gespeichert. Bei einer üblichen Aufstiegsgeschwindigkeit von 0,5 m/s und einer Datenübertragungsrate von 10 Sekunden liegen die Messergebnisse in Höhenschritten von 5 m Abstand vor. In Bild 4.5 (rechte Seite) ist beispielhaft ein NO_2-Vertikalprofil dargestellt, das sich als Ergebnis eines Auf- bzw. Abstiegs einer Vertikalsondierung ergibt. Die an Fesselballon und Luftschiff eingesetzten Messgeräte und Sonden zur Erfassung der Luftverunreinigungen sind in Anhang 3 und 4 beschrieben. Diese Tabellen enthalten sowohl Messprinzipien und technische Daten als auch Verfahrenskenngrößen wie Wiederholpräzision, Messunsicherheit und Nachweisgrenze. Die Datengrundlage für die Ermittlung der Verfahrenskenngrößen wurde im Rahmen der in Anhang 2 aufgelisteten Projekte u. a. vom Autor dieser Arbeit geschaffen und im Rahmen der Dissertation von Glaser [141] am IFK ermittelt. In vielen Fällen bestehen Einflüsse des Umgebungs-

drucks und der -temperatur, die von Seiten der Geräte nicht oder nicht vollständig kompensiert werden. Diese Einflüsse müssen speziell beim Messen in verschiedenen Höhen, wie an einem Fesselballon oder Luftschiff, vernachlässigbar klein oder genau bekannt sein, so dass eine rechnerische Korrektur möglich ist. Auch Querempfindlichkeiten gegenüber anderen chemischen Substanzen sind teilweise bekannt. Die Angaben in Anhang 3 und 4 über Druck- und Temperatureinflüsse sowie über Querempfindlichkeiten stammen teilweise aus der Literatur und teilweise aus eigenen Untersuchungen.

Alle Geräte, die am Fesselballon und Luftschiff zum Einsatz kommen, sollten folgende Eigenschaften besitzen:

- **geringes Gewicht** (Gewicht -> Ballonvolumen -> Kosten und Arbeitsaufwand)
- **geringe elektrische Leistung** (hohe elektrische Leistung -> Gewicht der Akkumulatoren -> Ballonvolumen -> Kosten und Arbeitsaufwand)
- **kurze Einstellzeit** (große Einstellzeit -> entweder geringe Auf- und Abstiegsgeschwindigkeit oder falsche Zuordnung von Messwert und Messhöhe -> Hystereseeffekt)

Der Tabelle in Anhang 3 ist zu entnehmen, dass nicht alle Messgeräte diese Bedingungen in gewünschtem Umfang erfüllen. Das NO_2/NO_x-Messgerät (LMA 4) ist mit 11 kg relativ schwer und verbraucht mit 50 W relativ viel elektrische Leistung. Das SO_2-Messgerät (Eigenbau) hat mit 5,6 kg ebenfalls ein relativ hohes Gewicht und mit sechs Minuten eine unverhältnismäßig hohe Einstellzeit.

Die VOC-Messungen bilden dahingehend eine Ausnahme, dass sie nicht kontinuierlich durchgeführt werden können, da es sich um ein Probesammelverfahren handelt. Die Probenluft wird von einer Pumpe angesaugt und über Aktivkohle (Typ NIOSH, Fa. Dräger) geleitet. Die in der Probenluft enthaltenen VOCs werden auf der Aktivkohle adsorbiert, nach der Beprobung im Labor mit CS_2 extrahiert und mit Hilfe eines GC-FID (Gaschromatograph mit Flammenionisationsdetektor) analysiert. Das Verfahren ist prinzipiell geeignet zur Messung unpolarer VOCs mit einer Anzahl an C-Atomen von C_6 bis C_9. Das Verfahren ist in DIN EN ISO 13649 [142] für Emissionsmessungen beschrieben. Für Konzentrationsmessungen in der Außenluft und den Einsatz an Ballon und Luftschiff kann das Verfahren in nur leicht modifizierter Form angewendet werden. Aufgrund der diskontinuierlichen Probennahme kommen grundsätzlich zwei verschiedene Methoden der VOC-Messung am Ballon in Frage:

- **Integralwert** über die Sondierhöhe einer oder mehrerer Sondierungen
- **Konstantsondierungen** auf einer oder mehreren Höhen über eine definierte Probennahmezeit

Bei der **Integralmethode** findet die VOC-Probennahme am Ballon statt und wird zu Beginn einer Sondierung gestartet. Der Ballon wird bis zur Maximalhöhe aufgelassen und wieder eingeholt. Abhängig von der Dauer einer Sondierung und von den zu erwartenden VOC-Konzentrationen in der Außenluft kann eine VOC-Messung auch über zwei oder drei Sondierungen andauern. Insgesamt sollte bei hohen VOC-Konzentrationen eine Sammelzeit von einer Stunde, bei niedrigen VOC-Konzentrationen von bis zu drei Stunden bei einem Volumenstrom von 1 l/min angestrebt werden, damit die adsorbierte und anschließend extrahierte

Menge an VOCs groß genug ist, um sicher analysiert werden zu können. Als Ergebnis erhält man einen Integralwert über die Sondierhöhe und den Mittelungszeitraum. Bei **Konstantsondierungen** wird eine Probennahmeeinrichtung am Ballon fixiert; eventuell noch weitere in größeren Abständen am Seil. Der Ballon wird dann auf seine Sondierhöhe aufgelassen. Nach Erreichen dieser Höhe werden die VOC-Probennahmepumpen über Zeitschaltuhren gemeinsam gestartet, und bis zum Beenden der Probennahme bleibt der Ballon in konstanter Höhe. Die Dauer der Beprobung beträgt wie bei der Integralmethode ein bis drei Stunden, abhängig vom erwarteten VOC-Konzentrationsniveau. Über Zeitschaltuhren werden die Pumpen gemeinsam gestoppt, der Ballon eingeholt, die Aktivkohleröhrchen gewechselt und die Pumpen für eine neue Beprobung vorbereitet. Als Ergebnis der Konstantsondierungen erhält man einen Mittelwert über die Beprobungsdauer von ein bis drei Stunden in unterschiedlichen Höhen. Da bei der Anwendung dieser Methode in einem Zeitraum von bis zu drei Stunden nur zwei Vertikalprofile (ein Aufstiegs- bzw. Abstiegsprofil) der übrigen Messgrößen entstehen würden und somit der Abstand zwischen den einzelnen kontinuierlichen Profilen relativ groß wäre, wurde bei einigen der in Anhang 2 genannten Projekte, trotz des erheblich größeren Aufwands, ein Ballon für die kontinuierliche Messung von Vertikalprofilen und ein zusätzlicher Ballon für die VOC-Konstantsondierungen eingesetzt.

In der Bodenstation ist neben dem Empfänger und der Datenerfassung auch die Infrastruktur zum Betrieb der Messgeräte und Sonden untergebracht. Während des Einsatzes ist eine intensive Betreuung der Messtechnik erforderlich, welche Wartungsarbeiten (Betriebsmittel, Stromversorgung, Funktionskontrollen etc.), regelmäßige Zweipunktkalibrierungen und deren Dokumentation sowie eine Plausibilitätskontrolle der Messergebnisse zur frühzeitigen Erkennung von Fehlfunktionen umfasst. Für die kontinuierlich gemessenen chemischen Parameter (O_3, NO_2, NO_x, SO_2, CO_2) ist erforderlich, dass die Kalibrierungen während der Messeinsätze

Bild 4.6: a) Verfahrensprinzip des Fesselballonmesssystems
b) Fesselballonmesssystem des IFK (56 m³-Ballon) mit Messgeräten und Takelage

mit geeigneten gasförmigen Transferstandards erfolgen. Die bei der Kalibrierung verwendeten Transferstandards müssen ihrerseits in der Vorbereitungsphase eines Projekts und nach erfolgten Messungen ebenfalls geprüft werden. Finden die Messungen im Rahmen eines Verbundprojekts statt (z. B. EVA und BAB II), so sollten die Transferstandards durch Messvergleiche vor und nach der Messphase verglichen und abgeglichen werden (siehe Kapitel 5.1.2 und 6.1.2). Die Kalibrierung der Messgeräte und Sonden erfolgt grundsätzlich über das Gesamtmesssystem, d. h. die Stromversorgung läuft über das Bordnetz, die Gasansaugungen gehen über dieselben Leitungen und Filter wie auch beim Messeinsatz, und die Datenerfassung erfolgt über die Telemetriestrecke. Dagegen findet bei der Messung von Kohlenwasserstoffen während des Messeinsatzes lediglich die Probennahme statt, während Analyse und Auswertung im Labor durchgeführt werden. Kalibrierungen werden so häufig wie nötig durchgeführt, in Abhängigkeit davon, wie stabil die Geräte unter den gegebenen Einsatzbedingungen am Ballon arbeiten.

4.4.2 Luftschiffmesssystem

Dieser Arbeit liegt der Gedanke zugrunde, mit Hilfe von luftgestützten Sondierungen Bilanzierungen von Luftverunreinigungen in Untersuchungsgebieten durchzuführen. 1994 wurden erstmals Vertikalsondierungen herangezogen, die im Rahmen des Ozonversuchs in Heilbronn/Neckarsulm durchgeführt wurden, um abschätzende Bilanzierungen für eine Stadt durchzuführen (Anhang 2). Schnell wurde klar, dass Vertikalmessungen mit Hilfe von Fesselballonen alleine nicht ausreichen, da Informationen über die Horizontalverteilung von Luftverunreinigungen vor allem im Lee eines Untersuchungsgebiets notwendig sind, um genaue Bilanzierungen - und nicht nur Abschätzungen - von freigesetzten Emissionen durch Konzentrationsmessungen in der Außenluft durchführen zu können. Ausgehend von diesem Gedanken wurden 1994 die Fesselballon-Vertikalsondierungen erstmals durch Luftschiff-Horizontalsondierungen ergänzt. Bei dem ferngesteuerten Luftschiff LOTTE handelt es sich um ein vom Institut für Statik und Dynamik der Luft- und Raumfahrtkonstruktionen (ISD) der

Bild 4.7: Ferngesteuertes Luftschiff LOTTE, vom ISD betrieben, vom IFK mit Messtechnik ausgerüstet und betreut

Universität Stuttgart zu Forschungszwecken entwickeltes, unbemanntes Luftschiff, das vom Boden aus ferngesteuert wird [143], [144]. Bild 4.7 zeigt ein Foto des Luftschiffs LOTTE. Der große Vorteil eines Luftschiffs gegenüber Messflugzeugen liegt auch hier in der Tatsache, dass das Luftschiff, abhängig von der Fluggenehmigung, normalerweise keine Mindestflughöhe einhalten muss und somit die meist in Bodennähe am stärksten ausgeprägten Konzentrationsgradienten im Lee eines Untersuchungsgebiets erfassen kann.

Das Luftschiff ist 16 m lang und besitzt ein Füllvolumen von 109 m³ Helium. Es ist mit einem emissionsfreien Elektroantrieb ausgestattet, der wahlweise von Solarzellen oder von Akkumulatoren gespeist wird. Der Einsatz von Solarzellen erhöht die mögliche Flugdauer, reduziert jedoch die Nutzlast. Bei Messungen von Luftverunreinigungen kann eine Flugdauer von 30 bis 45 Minuten realisiert werden. Der Aktionsradius beträgt bei Einsatz mehrerer Piloten ausgehend vom Startpunkt ca. drei Kilometer in jede Richtung, bei einer Fluggeschwindigkeit von 30 bis 35 km/h. Als maximale Flughöhe können etwa 800 m über Grund erreicht werden. Die Nutzlast beträgt zwischen 5 und 10 kg, abhängig von der Flugdauer und dem Einsatz von Akkumulatoren oder Solarzellen. Für die Messung von Luftverunreinigungen kommen dieselben Messgeräte zum Einsatz wie beim Fesselballon (Anhang 3 und 4; NO_2: NO_2-Sonde, O_3: GFAS OS-2-B, VOCs: METEK 2500B). Die Messgeräte sind in das Bordnetz und das Datenerfassungssystem des Luftschiffs eingebunden und werden über eine Funkstrecke zum Boden gesandt, so dass auch eine direkte Überwachung und Lenkung der Messung möglich ist. An Bord des Luftschiffs sind die Messsonden in einer speziellen Gondel untergebracht, die am Boden des Luftschiffs angehängt wird. Die Umgebungsluft wird von den Messgeräten über Teflonschläuche angesaugt, deren Enden sich in ausreichender Entfernung zum Luftschiff befinden. Des Weiteren werden die Windgeschwindigkeit, die Windrichtung und mit Hilfe eines GPS-Systems (*Global Positioning System)* die aktuelle Position aufgezeichnet und daraus die Luftschiffgeschwindigkeit bestimmt. Die GPS-Daten werden nicht nur zur Koordinatenbestimmung benötigt, sondern dienen auch zur Berechnung der Windgeschwindigkeit und -richtung, da bei der am Luftschiff gemessenen Windgeschwindigkeit und Windrichtung die Eigengeschwindigkeit des Luftschiffs berücksichtigt werden muss. Das Luftschiff wird von geschultem Personal des ISD betrieben. Die Betreuung, Wartung und Kalibrierung der Messgeräte sowie die Auswertung der Messergebnisse wird vom Personal des IFK durchgeführt.

4.4.3 Messtürme

Im Projekt BAB I [99], das im Jahre 1997 an derselben Stelle stattfand wie im Jahr 2001 das Projekt BAB II, kamen Fesselballone zur Ermittlung von Vertikalprofilen der Messgrößen zum Einsatz. Allerdings stellte sich damals heraus, dass zwar die Vertikalverteilung der meteorologischen Parameter und der Luftverunreinigungen unbedingt bestimmt werden muss, Fesselballone jedoch nicht die geeigneten Messsysteme dafür sind. Gründe dafür sind:

- verändertes Fahrverhalten der Autofahrer auf der Autobahn durch Anwesenheit von Fesselballonen in Autobahnnähe
- nur geringe Messhöhe von 50 m erforderlich

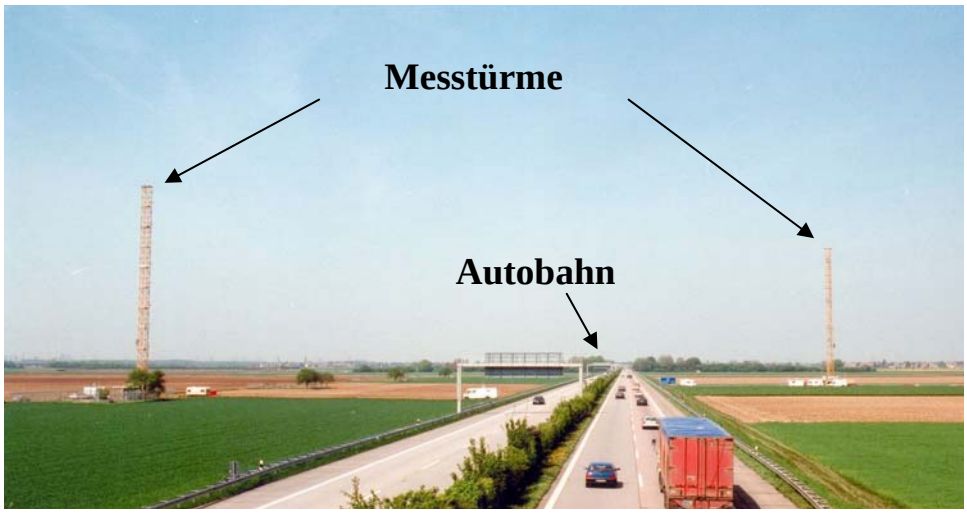


Bild 4.8: Messtürme im Projekt BAB II an der Autobahn A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim

Messtürme, die über einen längeren Zeitraum aufgebaut sind, erregen allenfalls anfangs das Interesse der Autofahrer und dies auch nicht in dem Maße, wie das bei Fesselballonen der Fall ist. Der große Vorteil von Messtürmen gegenüber Fesselballonen war, dass über einen Zeitraum von Wochen und Monaten Vertikalprofile aufgenommen werden konnten, jedoch ohne den enormen personellen Aufwand wie bei Fesselballonmessungen. Deshalb und aufgrund der Tatsache, dass eine Messhöhe von 50 m für dieses Projekt ausreichend war, fiel die Entscheidung im Projekt BAB II zu Gunsten zweier Messtürme aus. Die in Bild 4.8 dargestellten Türme besaßen eine Höhe von 52 m und wurden auf beiden Seiten der Fahrbahn im Abstand von 60 bzw. 84 m senkrecht zur Autobahn A 656, die zwischen Heidelberg und Mannheim verläuft, aufgebaut. Sie waren das Kernstück des Messaufbaus und mit einer ausgeklügelten Messtechnik ausgerüstet. In zehn unterschiedlichen Höhen (Bild 4.9, linke Seite), beginnend in 8 m über Grund (13, 18, ..., 51 m), wurde die Messluft kontinuierlich über eine leistungsstarke Bypass-Pumpe angesaugt und über Teflonleitungen zur Bodenmessstation geleitet. Dort wurde für jeweils drei Minuten Luft aus einer Messhöhe einem Satz von Konzentrationsmessgeräten zugeführt. Nach drei Minuten wurde dem Gerätesatz über eine Messgasumschaltung Luft von der nächsten Ansaughöhe zugeführt. Auf diese Weise wurden in einem Zeitraum von 30 Minuten vertikale Konzentrationsprofile für die Komponenten NO/NO_x, CO und CO_2 auf beiden Seiten der Autobahn erstellt. Nach 30 Minuten wiederholte sich der Vorgang und das nächste Vertikalprofil wurde aufgenommen. So wurden über den gesamten Messzeitraum von vier Wochen ständig und automatisch Vertikalprofile der genannten Komponenten erstellt. Die Messphasen wurden nur durch regelmäßig durchgeführte Kalibrierungen unterbrochen. Für die Durchführung der Bilanzierung von durch die Autobahn freigesetzten Luftverunreinigungen wurden außer Vertikalprofile der Luftverunreinigungen noch zusätzlich Vertikalprofile der Windrichtung und -geschwindigkeit benötigt. Diese wurden dadurch bestimmt, dass Windmessgeräte in sechs unterschiedliche Höhen, beginnend mit 4 m über Grund bis 52 m über Grund, angebracht waren. Aus den Messergebnissen in den einzelnen Höhen konnten kontinuierliche Vertikalprofile erstellt werden. Außer der Windgeschwin-

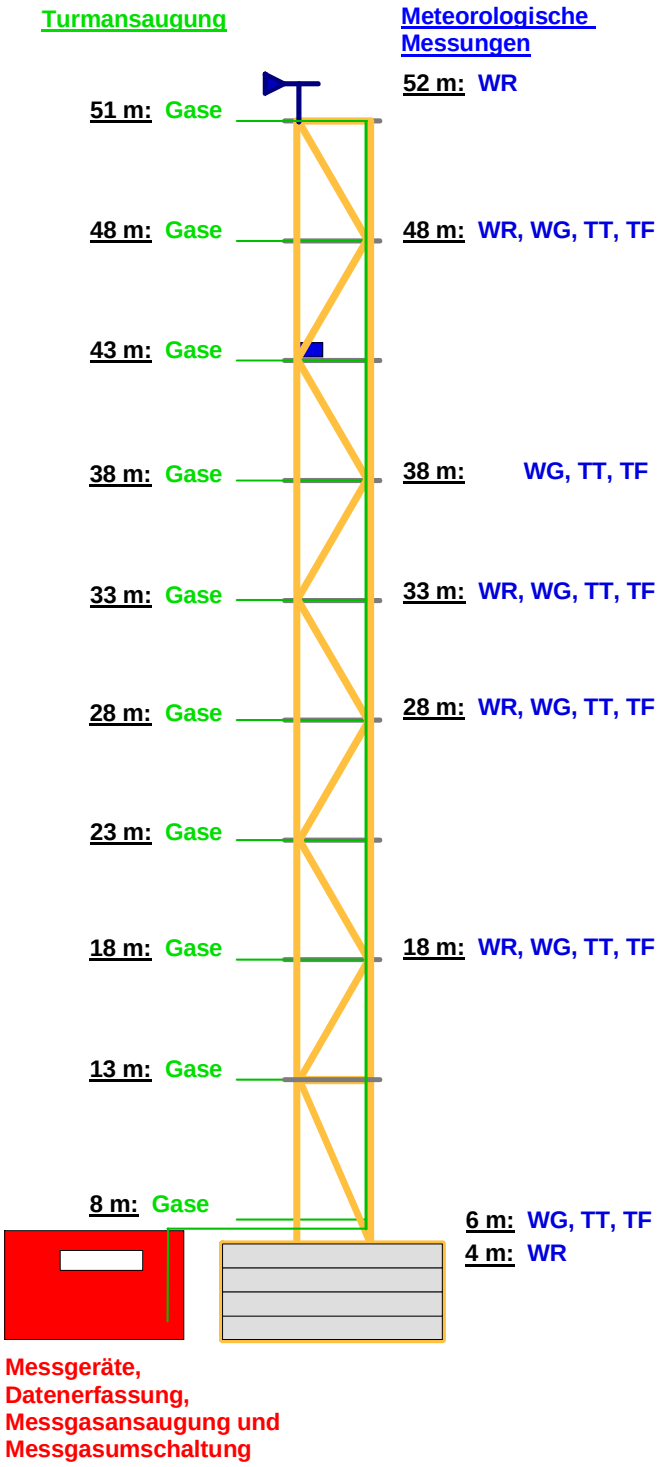


Bild 4.9: Messturm: Ansaughöhen der Turmansaugung (links), Messhöhen der meteorologischen Messgeräte (rechts). WR: Windrichtung, WG: Windgeschwindigkeit, TT: Trockene Temperatur, TF: Feuchttemperatur

digkeit und -richtung wurden auch die trockene und feuchte Temperatur gemessen (Bild 4.9, rechte Seite). VOC-, O_3- und Partikelmessgeräte (Grimm-Partikelzähler und SMPS) befanden sich für den gesamten Messzeitraum, oder teilweise auch nur für die Intensivmesstage, auf Plattformen auf den beiden Türmen, um die Konzentrationen in unterschiedlichen Höhen messen zu können.

Die Dauermessungen mit der Turmansaugung und die meteorologischen Messungen wurden vom Forschungszentrum Karlsruhe (IMK) durchgeführt.

An Tagen, an denen für das Experiment günstige meteorologische Bedingungen erwartet wurden, wurden **Intensivmessphasen** ausgerufen und alle beteiligten Messteams mobilisiert. An diesen insgesamt acht Tagen wurde zusätzliche, für Dauermessungen nicht geeignete Messtechnik zum Einsatz gebracht. U. a. wurden **Aufzugmessungen** durchgeführt. Dazu waren an beiden Türmen Aufzüge mit Seilwinden vorhanden (Bild 4.10). Daran wurde jeweils ein Korb befestigt, der mit weiteren kontinuierlich arbeitenden Messgeräten und einer Messwerterfassung ausgerüstet war. In den Fahrkörben befanden sich NO/NO_x-, NO_2-, O_3-, CO_2-, Partikel- und Druckmessgeräte (Höhenbestimmung). Es waren drei verschiedene Partikelmessgeräte im Einsatz (Anhang 5). Die Stromversorgung (240 und 380 V) für die Messgeräte im Fahrkorb wurde über ein Verlängerungskabel realisiert, das vom Fahrkorb bis zum Boden reichte und jeweils mit hochgezogen wurde. Der Fahrkorb mit den Messgeräten wurde mit Hilfe der Seilwinde von der Turmbasis in 5 m über

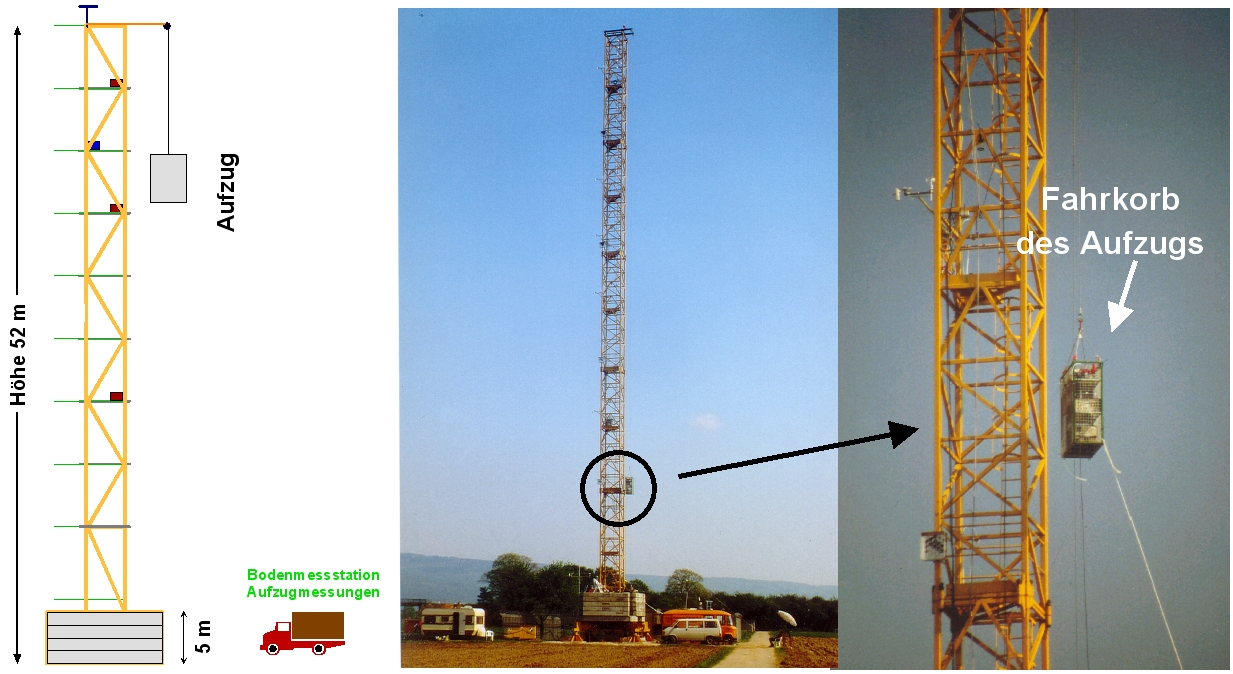


Bild 4.10: Messturm (52 m Höhe) mit Aufzug und Bodenmessstation (links); Bild eines Messturms (Mitte); Ausschnitt: Messturm und Fahrkorb des Aufzugs (rechts)

Grund bis auf ca. 50 m über Grund gebracht und gleich im Anschluss wieder abgelassen. Diese Art der Vertikalsondierungen wurde an beiden Türmen synchron durchgeführt. Eine Sondierung mit Auf- und Abstieg dauerte zehn Minuten, was in jeder Stunde zwölf Vertikalprofile auf jeder Seite der Autobahn ergab. Die Sondierungen wurden alle drei bis sechs Stunden unterbrochen, um die Geräte einer Kalibrierung zu unterziehen. Die Aufzugsmessungen wurden unter der Regie des IFK durchgeführt.

Tabelle 4.1 ist zusammenfassend zu entnehmen, an welchen Einsatzorten im Projekt BAB II welche Messgrößen ermittelt wurden. Details zu den einzelnen Messgeräten sind in Anhang 5 zu finden. Alle Messgeräte wurden umfangreichen Qualitätssicherungsmaßnahmen unterzogen [145].

Tabelle 4.1: Messgrößen und Einsatzorte der Messgeräte

Einsatzort	**Messgrößen**
Messtürme - Turmansaugung	NO/NO_x, CO, CO_2
Messtürme - Aufzüge	NO/NO_x, NO_2, CO_2, O_3, Partikel (Anzahlkonzentrationen, spez. Oberfläche)
Messtürme - unterschiedliche Höhen	VOCs, O_3, Partikel (Anzahlkonzentrationen, Massenkonzentrationen), Temperatur, Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Luftfeuchtigkeit, Turbulenz
Bodenmessstationen	NO/NO_x, O_3, SO_2, VOCs, Partikel (Anzahlkonzentrationen, Massenkonzentrationen), Ruß (BC – black carbon), Temperatur, Luftfeuchtigkeit, Turbulenz

5 Anwendungsfall 1: Bilanzierung der gesamten Emissionen einer Stadt im Projekt EVA – Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze

5.1 Konzeption des Projekts EVA

Ziel des Verbundprojekts EVA (Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt) war die Überprüfung der berechneten Emissionen einer gesamten Stadt, die mit Hilfe eines zeitlich und räumlich hochauflösenden Emissionsmodells [123] berechnet wurden. Die Messungen zu EVA fanden im Jahre 1998 in Augsburg statt und waren Teil des BMBF-Förderschwerpunkts (Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie) Troposphärenforschungsschwerpunkt (TFS) [1].

Die Stadt Augsburg wurde aus den folgenden Gründen als Untersuchungsgebiet ausgewählt: Augsburg ist mit etwa 255.000 Einwohnern eine mittelgroße deutsche Stadt. Dadurch ist sie nicht zu groß und kann messtechnisch noch gut erfasst werden, hat aber andererseits genügend Emissionsquellen, die eine messbare Differenz der Konzentrationen zwischen Luv und Lee der Stadt erzeugen. Außerdem liegt die Stadt relativ isoliert in ländlicher Gegend, was sich vorteilhaft auswirkt, da die Vorbelastung der antransportierten Luftmassen mit Luftverunreinigungen gering ist. Somit war sowohl horizontal als auch vertikal mit einer relativ gleichmäßigen Verteilung der Luftverunreinigungen im Luv der Stadt zu rechnen. Zudem lassen sich die gemessenen Emissionen eindeutig dem Untersuchungsgebiet zuordnen und eine Verfälschung der Bilanzierung durch externe Quellen, d. h. durch Quellen außerhalb des Untersuchungsgebiets, nahezu ausschließen. Die Stadt liegt in relativ flachem Terrain und kann somit frei angeströmt werden, wodurch sich keine lokalen Strömungen bilden, die eine Bilanzierung erschweren würden. Einzige Ausnahme ist das Lechtal, das Augsburg von Süd nach Nord mit Höhenunterschieden vom Talgrund bis zu den Anhöhen von 50 bis 75 m durchzieht.

Die meteorologischen und klimatologischen Verhältnisse in Augsburg wurden in den Jahren 1951 bis 1969 sehr detailliert untersucht [146]. Aus diesen Untersuchungen ergab sich, dass die Windrichtungen West-Südwest und Ost-Nordost im langjährigen Mittel in der Gegend von Augsburg dominierten, wobei West-Südwest (WSW) die häufigste Windrichtung war. Allerdings wurde bei Wetterlagen mit schwachen Druckgradienten und niedrigen Windgeschwindigkeiten eine Kanalisierung der Strömungen entlang des Lechtals beobachtet. Somit sollten windschwache Wetterlagen für die Durchführung der Experimente vermieden werden. Schwachwindsituationen hätten jedoch den Vorteil, dass die Konzentrationsdifferenzen zwischen Luv und Lee anwachsen würden. Zwischen diesen beiden konträren Voraussetzungen musste bei der Auswahl geeigneter Wetterlagen für die Durchführung des Experiments eine Kompromisslösung gefunden werden.

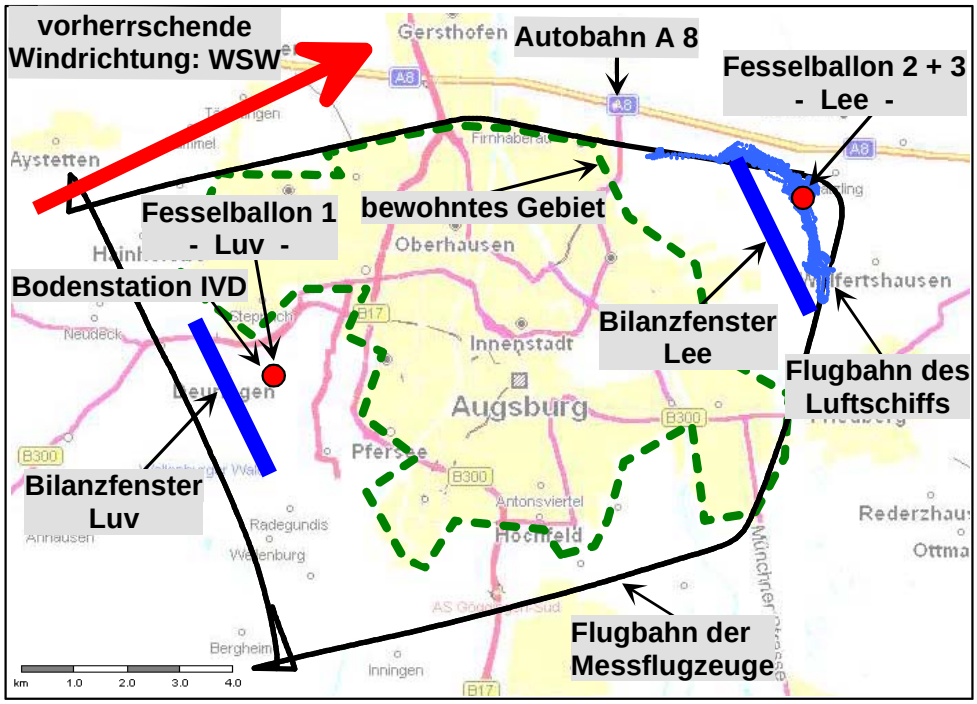


Bild 5.1: Untersuchungsgebiet Augsburg: bewohntes Gebiet, Fesselballonstandorte, Flugbahn des Luftschiffs, Flugbahn der Messflugzeuge, Hauptwindrichtung, Bilanzfenster Luv und Lee

Entsprechend der zu erwartenden Hauptwindrichtung (WSW) wurde die Messanordnung analog zu Bild 5.1 gewählt: Das grün eingefasste Gebiet mit gelbem Hintergrund stellt die bebaute Fläche Augsburgs innerhalb des Untersuchungsgebiets dar. Luv und Lee wurden im Vorfeld schon so festgelegt, dass die nahe Autobahn A 8, die Augsburg im Norden umfährt, nicht mit in die Bilanzierung einbezogen wurde, sondern außerhalb des Untersuchungsgebiets lag. Die Einbeziehung der Autobahn hätte eine Bilanzierung unnötig erschwert. Somit befand sich Luv im Südwesten von Augsburg und Lee im Nordosten.

Die Messzeiträume wurden so gewählt, dass die in Kapitel 4.2 beschriebenen Vereinfachungen bei der Bilanzierung bestmöglich erfüllt wurden. Chemische Reaktionen auf dem Weg von der Emissionsquelle zur Bilanzgrenze, die, wie in Kapitel 2.2 beschrieben, von der Temperatur, der Sonneneinstrahlung und der Windgeschwindigkeit abhängen, sind im Frühjahr und Herbst weniger ausgeprägt als im Sommer. Deshalb wurde die Messkampagne auf zwei Zeiträume vom 2.3. bis 31.3.1998 und vom 29.9. bis 5.11.1998 festgelegt. Zudem sind zu diesen Jahreszeiten keine stark konvektiven Wetterlagen zu erwarten, so dass der konvektive Verluststrom über die Deckflächen vernachlässigbar gering ausfallen sollte. Eine geringe Konvektion bewirkt außerdem, dass sich die zu erwartende Höheninversion in nur einigen hundert Metern Höhe befindet und die Mischungsschicht somit nicht sehr mächtig ausfallen wird. Eine geringe Mischungsschichthöhe führt wiederum, wie gewünscht, zu größeren Konzentrationsdifferenzen zwischen Luv und Lee. Je größer die Konzentrationsdifferenzen, desto geringer ist das Gewicht der unvermeidlichen Messunsicherheiten auf das Ergebnis der Bilanzierung.

5.1.1 Eingesetzte Messsysteme und beteiligte Gruppen

Im Verbundprojekt EVA hatten sich sieben Institutionen (siehe Anhang 6) zusammengeschlossen, die eine sehr große Anzahl an Messsystemen und -geräten zur Bestimmung der meteorologischen Parameter und der Luftverunreinigungen in und um Augsburg zusammengezogen und betrieben hatten. Die Tabellen in Anhang 7 und 8 enthalten sämtliche Messkomponenten, deren Betreiber, Einsatzort, Messhöhe und weitere Parameter [114]. Die meisten der neun Bodenmessstationen waren während der gesamten, oben genannten beiden Messzeiträume im Einsatz (Langzeitmessungen). Deren Auswertung ist nicht Gegenstand dieser Arbeit, es wird deshalb auf die Dissertation von Mannschreck verwiesen [129]. Über den Messzeitraum verteilt wurden insgesamt sechs Intensivmessphasen ausgerufen und zwar immer dann, wenn besonders günstige meteorologische Bedingungen für die Durchführung der Bilanzexperimente zu erwarten waren. Diese Bedingungen waren: mittelstarker Wind aus westsüdwestlicher Richtung über einen Zeitraum von mehreren Stunden und kein Regen. In den Intensivmessphasen kamen dann zusätzliche Messsysteme, hauptsächlich Systeme zur Ermittlung der Vertikal- und Horizontalverteilung meteorologischer Parameter und der Luftverunreinigungen, zum Einsatz. Der Einsatz dieser Geräte ist so aufwändig, dass ein Dauereinsatz über mehrere Wochen zu kostspielig und daher undenkbar gewesen wäre. Für die Auswertungen in den folgenden Kapiteln wurden hauptsächlich Ergebnisse der folgenden Messsysteme herangezogen:

- 3 Fesselballone (IFK[1])
- 1 Luftschiff (ISD[2], IFK)
- 2 Messflugzeuge (IMK[3], IFU[4])
- 1 Radiosondiersystem (IMK)
- SF_6-Tracerfreisetzungs- und Sammeleinrichtungen (ASS[5])
- vereinzelte Messwerte von Bodenmessstationen (IFK, ICG2[6])

Bild 5.1 zeigt die Standorte bzw. Flugwege. Die Fesselballonstandorte (rote Punkte) wurden somit im Südwesten bei Leitershofen (Fesselballon 1 – Luv) und im Nordosten nahe Stätzling (Fesselballon 2 + 3 – Lee) in genügend großer Entfernung von bebautem Gebiet und externen Emissionsquellen festgelegt. Am Luv-Standort wurde vom IFK zusätzlich eine Bodenmessstation betrieben. Am Lee-Standort in Stätzling war das Luftschiff stationiert, dessen horizontaler Flugweg mit blauen Punkten markiert ist. Die beiden Messflugzeuge umrundeten das Untersuchungsgebiet auf ihren Flugbahnen (1 Umrundung = ca. 40 km) in unterschiedlichen Höhen (schwarze durchgezogene Linie in Bild 5.1) und umflogen somit eine Fläche von ca. 130 km².

[1] IFK - Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (ehemals IVD), Universität Stuttgart
[2] ISD - Institut für Statik und Dynamik der Luft- und Raumfahrttechnik, Universität Stuttgart
[3] IMK - Institut für Meteorologie und Klimatologie, Forschungszentrum Karlsruhe
[4] IfU - Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe
[5] ASS - Abteilung Arbeitssicherheit und Strahlenschutz, Forschungszentrum Jülich
[6] ICG2 - Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 2: Chemie der Belasteten Atmosphäre, Forschungszentrum Jülich

5.1.2 Qualitätssicherung im Rahmen von EVA

Im Rahmen von Verbundprojekten spielt die Qualitätssicherung eine entscheidende Rolle. Die Messergebnisse von Projektpartnern, die teilweise Geräte mit unterschiedlichen Messprinzipien zum Einsatz bringen, deren Ergebnisse auf die unterschiedlichsten Kalibrierstandards zurückzuführen sind und deren Betreiber unterschiedliche Kalibrierphilosophien verfolgen, müssen aber letztendlich miteinander vergleichbar sein. Konzentrationsdifferenzen, die im Luv und Lee eines Untersuchungsgebiets auftreten, müssen großteils auf die wirklich vorhandenen Konzentrationsdifferenzen und nicht auf Abweichungen der Messergebnisse bei gleichen Konzentrationen zurückzuführen sein, da sonst die Bilanzierungsergebnisse einer zu großen Unsicherheit unterliegen würden. Aus diesem Grunde wurde im Projekt EVA größter Wert auf die Qualitätssicherung gelegt, die vom Projektpartner IfU organisiert und durchgeführt wurde. Es kam ein dreistufiges Qualitätssicherungskonzept zur Anwendung:

- **Stufe I:** Analyse der Kalibrierstandards der Betreiber durch das Qualitätssicherungsteam
- **Stufe II:** Ringversuche der Projektteilnehmer mit vorgegebenen Kalibrierstandards des Qualitätssicherungsteams
- **Stufe III:** Außenluftvergleichsmessungen

Vor bzw. nach den Messkampagnen wurden alle Messstationen und -systeme an einem Ort zusammengezogen und die Geräte über einen Zeitraum von mehreren Tagen wie im realen Messeinsatz betrieben, d. h. mit derselben Gasansaugung und Datenerfassung und denselben Kalibrierprozeduren wie im regelmäßigen Einsatz während der Messkampagnen. Dabei kamen nacheinander die drei Stufen des Qualitätssicherungsprogramms zur Anwendung. Eine detailliertere Beschreibung der Durchführung und der wichtigsten Ergebnisse der Qualitätssicherung im Projekt EVA ist in Anhang 9, in [45] und [42] zu finden.

5.2 Eigene Bilanzmethode zur Auswertung der EVA-Messungen

Die für eine Bilanzierung notwendigen Messsysteme zur Ermittlung der Vertikal- und Horizontalverteilung von meteorologischen Parametern und Luftverunreinigungen sind in einer schematischen 3-D-Darstellung in Bild 5.2 zusammengefasst. Mit Hilfe zweier Fesselballone wurden im Luv und Lee von Augsburg kontinuierliche Vertikalprofile aufgenommen. Die Sondierhöhe wurde von der Flugsicherung auf 600 m über Grund limitiert. Im Laufe des Experiments stellte sich heraus, dass die maximale Aufstiegshöhe ausreichend war, da sich in diesem Höhenbereich an den Intensivmesstagen eine Absinkinversion ausbildete, welche die Mischungsschicht nach oben hin begrenzte. Der dritte, im Lee stationierte Fesselballon wurde für die VOC-Messungen eingesetzt, die in drei unterschiedlichen Höhen (Boden, 200 m über Grund, 400 m über Grund) über einen Zeitraum von ein bis zwei Stunden durchgeführt wurden. Diese Art der stationären Probenahme in drei Höhen ließ sich nicht mit den kontinuierlich gemessenen Vertikalprofilen der anderen Messgrößen an einem Ballon kombinieren, weshalb der dritte Fesselballon zum Einsatz kam. Im Lee wurden die Vertikalprofilmessungen durch mit einem Luftschiff durchgeführte Horizontalprofilmessungen ergänzt. Das Luft-

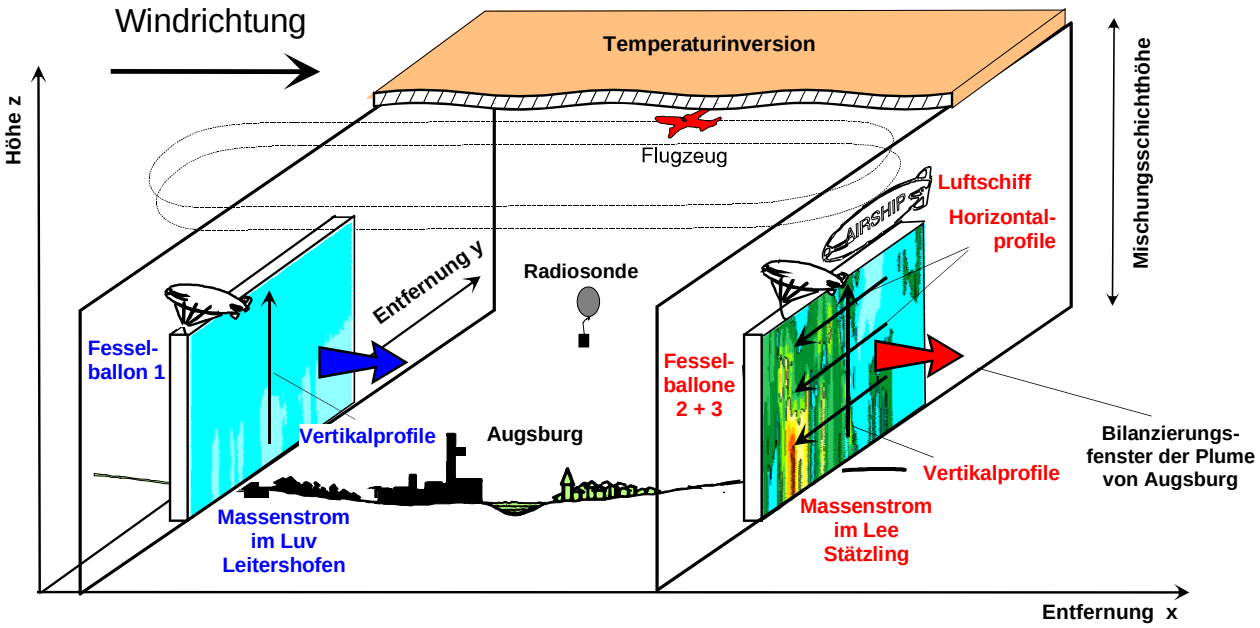


Bild 5.2: Prinzip der Massenstrombilanzierung der Luftverunreinigungen innerhalb des Projekts EVA in Augsburg und die eingesetzten Messsysteme: Fesselballone, Luftschiff, Messflugzeuge, Radiosonden

schiff operierte in geringen Höhen vom Erdboden bis in 300 m über Grund. Es wurde ergänzend zu den Flugzeugen eingesetzt, die aus flugrechtlichen Gründen eine minimale Flughöhe von 150 m nicht unterschreiten durften. Da aber die größten Konzentrationsänderungen im Lee und dort in den bodennahen Luftschichten zu erwarten waren, wurde dieser Bereich auf einer Breite von ca. 4 km durch das Luftschiff abgedeckt. Details zur Technik und Messtechnik der Fesselballone und des Luftschiffs sind in Kapitel 4.4.2 zu finden. Die Messflugzeuge umrundeten das Messgebiet in Höhen von 150 bis 700 m über Grund und lieferten somit Horizontalprofile in größeren Höhen.

Bild 5.2 deutet die eigene Bilanzmethode an. Im Luv und Lee der Stadt befindet sich je eine virtuelle Ebene, durch die die advektiv antransportierten Luftmassen strömen. Die ankommenden Luftmassen strömen noch relativ unbelastet von Luftverunreinigungen durch die Luv-Bilanzebene, werden von in der Stadt freigesetzten Emissionen beladen und verlassen das Untersuchungsgebiet durch die Lee-Bilanzebene wieder. Die notwendigen Annahmen und Voraussetzungen für eine solch vereinfachte Bilanz wurden in Kapitel 4.2 ausführlich erläutert.

5.2.1 Vertikal- und Horizontalprofile

In Bild 5.3 (linke Seite) sind Vertikalprofile der im Lee von Augsburg (Stätzling) gemessenen Parameter dargestellt, wobei die Profile des Aufstiegs rot und die des Abstiegs blau gezeichnet sind. Die Dauer einer Sondierung mit Auf- und Abstieg betrug im Mittel ca. 45 Minuten.

Die Sondierung in Bild 5.3a startete um 8:16 UTC[1]. Anhand des Vertikalverlaufs der trockenen Temperatur ist die Existenz einer abgehobenen Bodeninversion zu erkennen. Die trockene Temperatur nahm vom Boden aus gesehen in den ersten Höhenmetern ab, bevor sie in einen Bereich mit konstanter Temperatur kam und dann im Bereich von 300 bis 350 m über Grund mit der Höhe zunahm (Temperaturinversion). Beim Abstieg (blaue Kurven) ist die Existenz der Temperaturinversion noch deutlicher zu erkennen. Als der Ballon am Ende der Sondierung wieder am Erdboden ankam, hatte sich die Luft dort durch die einsetzende Son-

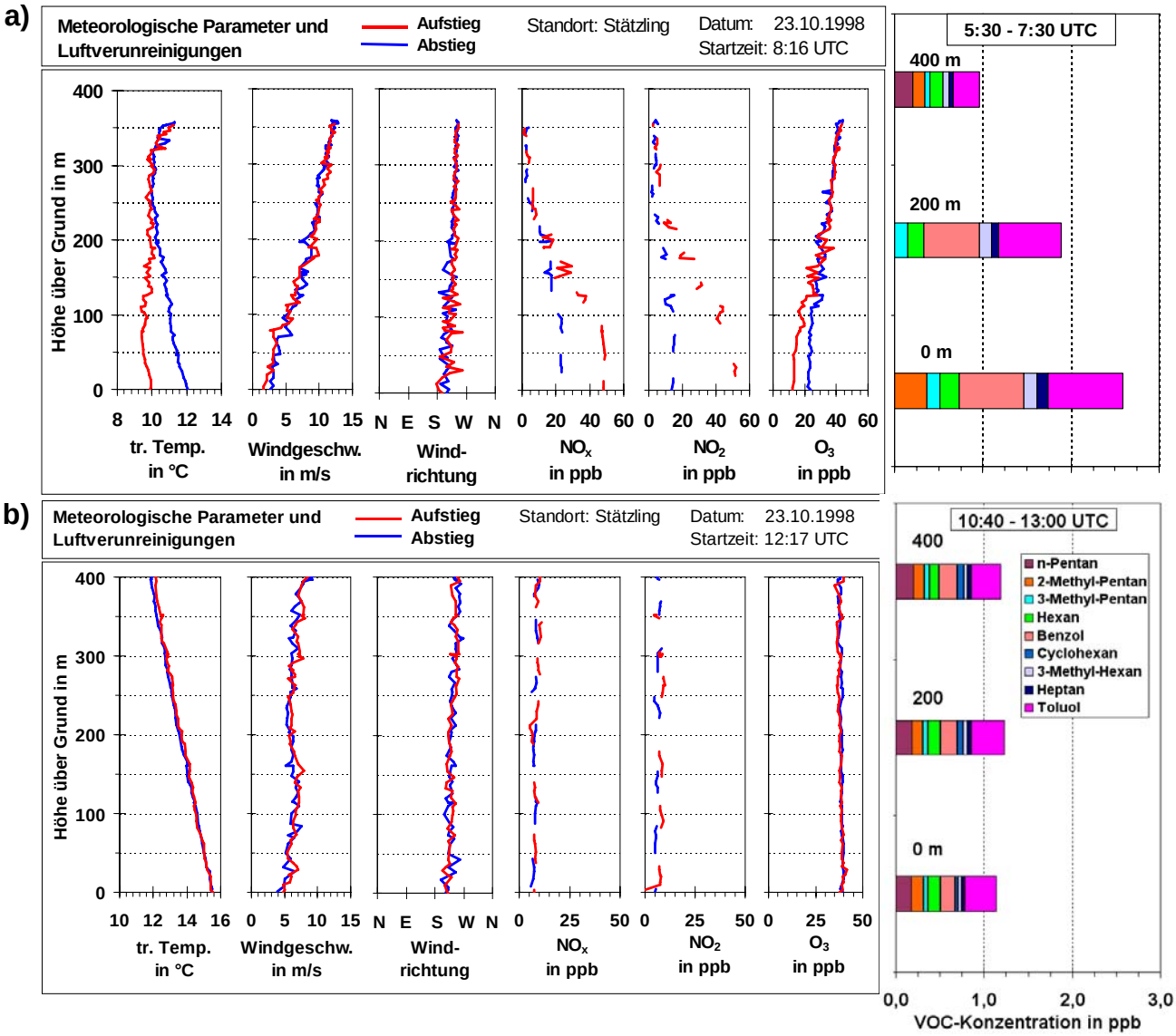


Bild 5.3: Vertikalprofile der meteorologischen Parameter und Luftverunreinigungen am 23.10.1998 am Lee-Standort Stätzling
a) Startzeit: 8:16 UTC (VOC: 5:30 – 7:30 UTC)
b) Startzeit: 12:17 UTC (VOC: 10:40 – 13:00 UTC)

[1] Universal Time Coordinated, Zeit am Nullmeridian, hier: UTC = Lokalzeit MESZ - 2 Stunden und UTC = Lokalzeit MEZ - 1 Stunde

neneinstrahlung und den konvektiven Wärmeübergang vom Erdboden schon um 2 °C (von 10 auf 12 °C) gegenüber der Temperatur am Anfang der Sondierung erwärmt. Die Windgeschwindigkeit hat einen starken vertikalen Gradienten aufgewiesen und stieg bei einer Windrichtung aus Südwest mit der Höhe von etwa 2 m/s am Erdboden bis 12 m/s in 350 m Höhe an. In den NO_x-, NO_2-, und O_3-Vertikalprofilen sind drei Zonen zu erkennen. Verursacht durch die Temperaturinversion und die Emissionen der Stadt Augsburg wurden stark erhöhte NO_x- und NO_2-Konzentrationen im bodennahen Bereich von 0 bis 100 m gemessen. Im Bereich von 100 bis 250 m nahmen die Konzentrationen ab und oberhalb von 250 m wurden kaum mehr Stickstoffoxide gemessen. Der Verlauf von Ozon ist dem von NO_2 entgegengesetzt; der Grund hierfür ist im photostationären Gleichgewicht bzw. im Ozonabbau zu suchen.

Die Kohlenwasserstoffe, die in Bild 5.3 auf der rechten Seite dargestellt sind, verhielten sich entsprechend den NO_x- und NO_2-Konzentrationen. Die höchsten VOC-Konzentrationen im Zeitraum von 5:30 bis 7:30 UTC wurden am Boden gemessen. In 200 m Höhe wurden etwas geringere Konzentrationen als am Boden gemessen, wogegen zwischen 200 und 400 m eine stärkere vertikale Abnahme der Konzentrationen zu beobachten war. Die Toluol-Konzentrationen nahmen z. B. von 0,84 ppb am Boden über 0,71 ppb in 200 m auf 0,29 ppb in 400 m Höhe ab.

Bild 5.3b zeigt Vertikalprofile desselben Tages, ebenfalls am Lee-Standort Stätzling, allerdings am Nachmittag aufgenommen. Die Bodeninversion und die abgehobene Bodeninversion hatten sich schon aufgelöst, und eine gut durchmischte Mischungsschicht hatte sich ausgebildet. Dies ist am negativen vertikalen Temperaturgradienten und an den gleichmäßigen Vertikalprofilen der Windgeschwindigkeit und der Konzentrationen zu erkennen. Die freigesetzten Stickstoffoxide wurden umgehend vertikal und horizontal verteilt, verdünnt und abtransportiert. Somit wurden am Lee-Standort nur noch relativ geringe und vertikal gleichmäßig verteilte NO_x- und NO_2-Konzentrationen gemessen. Die VOC-Konzentrationen verhielten sich analog. In allen drei Höhen wurden im Messzeitraum von 10:40 bis 13:00 UTC annähernd die gleichen VOC-Konzentrationen gemessen. Toluol z. B. variierte nur gering zwischen Werten von 0,37 ppb am Erdboden, 0,38 ppb in 200 m Höhe und 0,34 ppb in 400 m Höhe (im Rahmen der Messunsicherheit waren die Werte gleich). Insgesamt lagen die VOC-Konzentrationen in diesem Zeitraum in allen drei Höhen nur etwas höher als die VOC-Konzentrationen in 400 m Höhe im ersten Zeitraum zwischen 5:30 und 7:30 UTC.

Auf die Darstellung von Vertikalprofilen vom Luv-Standort Leitershofen wurde verzichtet, da die Profile stets eine geringe NO_2-Vorbelastung und eine sehr gleichmäßige Vertikalverteilung der gemessenen Konzentrationen luftverunreinigender Komponente aufwiesen.

In Bild 5.4 sind die mit dem Luftschiff gemessenen Horizontalprofile der O_3- und NO_2-Konzentrationen sowie die Windrichtung (WR) und Windgeschwindigkeit (WG) über der Entfernung vom Startpunkt des Luftschiffs dargestellt. Die Flugbahn des Luftschiffs kann Bild 5.1 entnommen werden. Die Flughöhe betrug 150 m Höhe über Grund. Diese Horizontalsondierung fand ebenfalls am 23.10.1998 statt und wurde zwischen 11:44 und 12:07 UTC durchgeführt. Im oberen der beiden Diagramme ist an den Konzentrationsverläufen von O_3 und NO_2 ebenfalls die Gegenläufigkeit der beiden Komponenten zu beobachten. Eine höhere

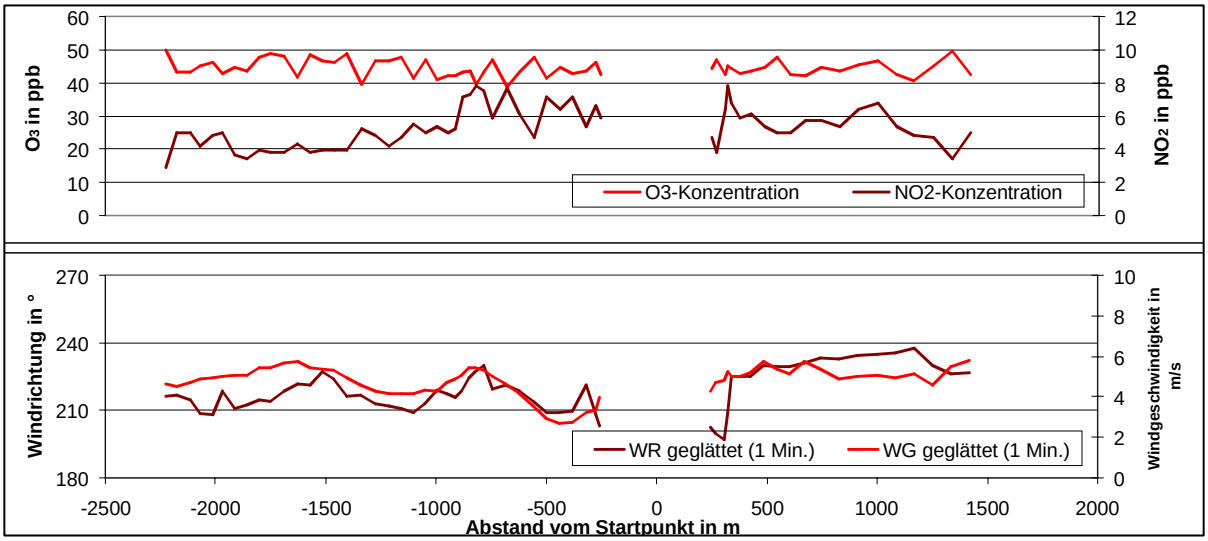


Bild 5.4: Horizontalprofile aus Luftschiffmessungen von meteorologischen Parametern und Konzentrationen in 150 m über Grund am 23.10.1998 von 11:44 bis 12:07 UTC, in Abhängigkeit von der Entfernung vom Startpunkt

NO_2-Konzentration bewirkt eine niedrigere O_3-Konzentration und umgekehrt. Die Konzentrationen sind, trotz einiger Variationen, relativ gleichmäßig horizontal verteilt. Der Wind wehte mit Geschwindigkeiten von 3 bis 6 m/s aus west-südwestlicher Richtung (210 bis 240 Grad), wodurch die Bedingungen für ein Bilanzexperiment an diesem Tag gegeben waren.

5.2.2 Meteorologische Bedingungen während der Messkampagne

Während der Intensivmesstage vom 21. bis 23. Oktober 1998 konnten gut messbare Konzentrationsdifferenzen zwischen den Luv- und Lee-Standorten festgestellt werden. Auch die meteorologischen Verhältnisse waren überwiegend günstig, so dass die geplante Massenstrombilanzierung durchgeführt werden konnte.

Die Standortwahl, mit dem Luv-Standort im Südwesten und dem Lee-Standort im Nordosten der Stadt, erwies sich an den betrachteten drei Tagen als sehr günstig, da die vorherrschende Windrichtung Südwest war. Die Luftmassen, die im Luv analysiert wurden, passierten den Lee-Standort bei einer mittleren Luftgeschwindigkeit von 6 m/s ca. 30 Minuten später. Nur am 22.10.1998 drehte der Wind während der Intensivmessung von Südwest nach West, was sich ungünstig auf die Bilanzergebnisse auswirkte.

Die meteorologischen Bedingungen am 23.10.1998 in der Gegend um Augsburg sind in den Diagrammen in Bild 5.5 dargestellt. Die beiden Diagramme bestehen jeweils aus einer Kombination aus Isoplethendarstellung und Windpfeildiagramm. Die Messwerte entstammen den Fesselballonsondierungen. In Bild 5.5a ist neben der Windrichtung und -geschwindigkeit auch die potenzielle Temperatur dargestellt, in Bild 5.5b die NO_x-Konzentration. Diese Art der Isoplethendarstellung zeigt die zeitliche Veränderung der vertikalen Verteilung einer gemessenen Größe an einem Messort (hier: Lee-Standort Stätzling). Isoplethen stellen Linien konstanter Werte dar. Die Bereiche innerhalb der Isolinien sind mit den gleichen Farben ausgefüllt und heben sich somit zusätzlich ab. An allen Stellen, an denen Windpfeile aufgetragen

sind, liegen auch Messwerte vor, alle anderen Bereiche der Isoplethendiagramme entstanden durch Interpolation, d. h. durch Anwendung der Kriging-Methode. Die nähere Beschreibung der Methode erfolgt in Kapitel 5.2.3. Windgeschwindigkeit und -richtung sind vektoriell dargestellt. Die Pfeile zeigen die jeweilige Windrichtung an, die Größe der Pfeile repräsentiert die Windgeschwindigkeit.

Im betrachteten Zeitraum von 6:00 bis 14:00 UTC wurden acht Vertikalsondierungen durchgeführt. Um 6:00 UTC herrschte eine Bodeninversion mit einer niedrigen Temperatur von 5 °C in Bodennähe und einer relativ hohen Temperatur von 13 °C in 200 m Höhe. Durch die-

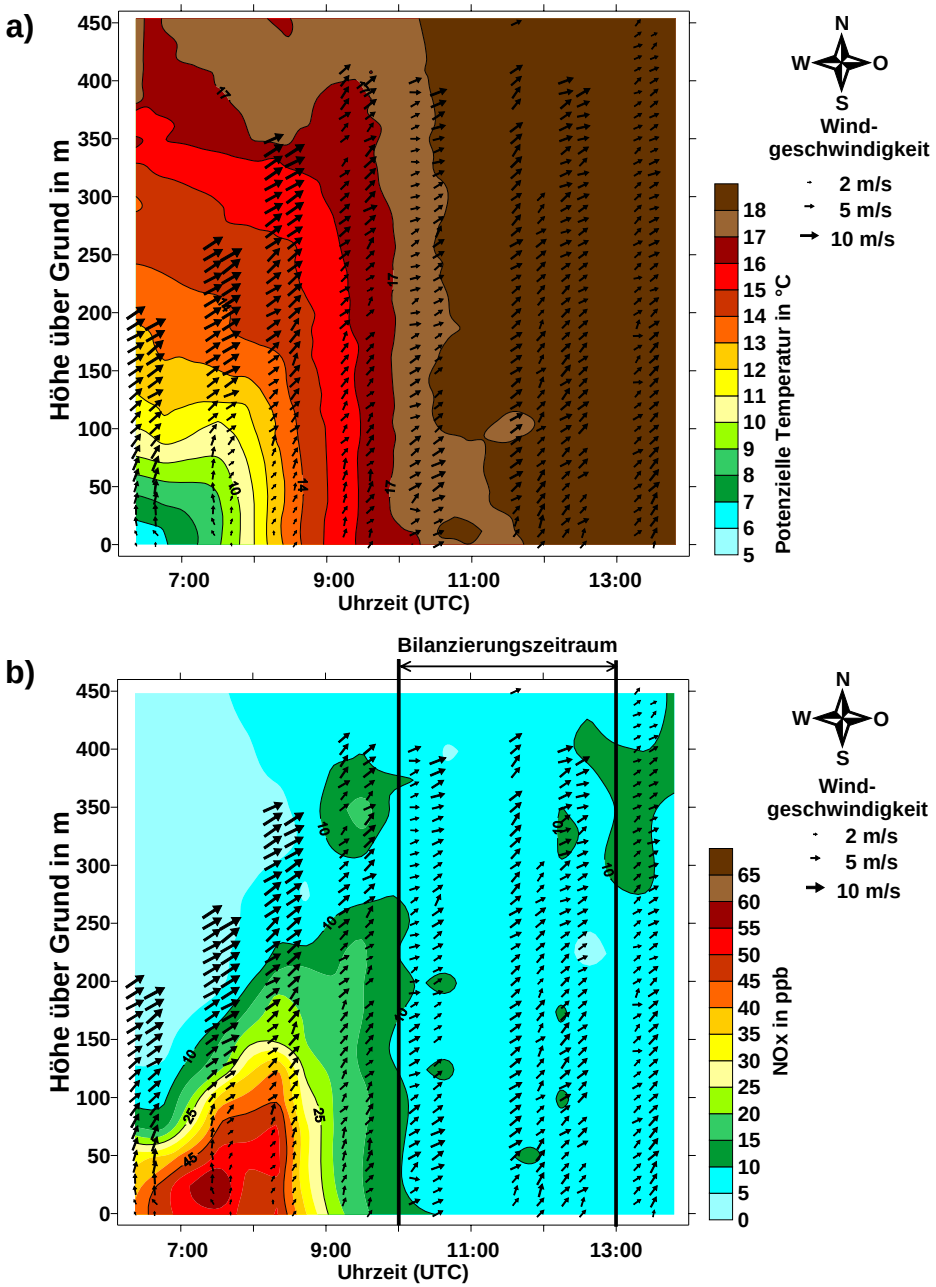


Bild 5.5: Kombination aus Windpfeil- und Isoplethendiagramm vom 23.10.1998, 6:00 bis 14:00 UTC am Lee-Standort Stätzling
a) Potenzielle Temperatur
b) NO_x-Konzentration

se Bodeninversion wurde die Windgeschwindigkeit in Bodennähe abgeschwächt, wodurch die Windrichtung von der Topografie beeinflusst wurde und ein Kanalisierungseffekt entlang des Lechtals (Nord-Süd-Orientierung) auftrat. Im Höhenbereich von 0 bis 70 m über Grund wehte der Wind von 6:00 bis 9:00 UTC aus südlicher Richtung. Die überörtliche Windrichtung war an diesem Tag im betrachteten Zeitraum konstant Südwest. Zwischen 7:00 und 10:00 UTC hob sich die Bodeninversion ab und löste sich anschließend auf. Ab 10:00 UTC wurde eine konstante potenzielle Temperatur über die gesamte Sondierhöhe gemessen, was auf eine gut durchmischte Luftschicht hinweist. Es traten auch keine Windablenkungen in Bodennähe mehr auf.

Bild 5.5b zeigt die zeitliche Veränderung der Vertikalverteilung der folgenden Messgrößen von 6:00 - 14:00 UTC vom Erdboden bis zu einer Höhe von 450 m über Grund auf: Windgeschwindigkeit, Windrichtung und NO_x-Konzentration. Die NO_x-Konzentration war zwischen 6:00 und 9:00 UTC in Bodennähe mit Werten von bis zu 60 ppb sehr hoch, was mit der niedrigen Mischungsschichthöhe von 100 bis 200 m zusammenhängt, die wiederum durch die Existenz der Bodeninversion in den Morgenstunden zu erklären ist. Als sich ab 9:00 UTC die vertikale Ausdehnung der Mischungsschicht erhöhte und sich die Bodeninversion ab 10:00 UTC gänzlich auflöste, war kein vertikaler Gradient bei der NO_x-Konzentration mehr zu erkennen. Der Bilanzierungszeitraum wurde im Vorfeld auf die Zeit zwischen 10:00 und 13:00 UTC festgelegt. In Bild 5.5b ist deutlich erkennbar, dass der Beginn des Bilanzierungszeitraums exakt richtig gewählt wurde. Die Auflösung der nächtlichen Bodeninversion sollte noch abgewartet werden, da die Konzentrationen danach keinen starken Schwankungen mehr unterworfen sind, was die Bilanzierung erleichtert. Die Windrichtung aus Südwest war über die gesamte Messhöhe nahezu konstant, und die Windgeschwindigkeit bewegte sich im Bilanzierungszeitraum zwischen 2 und 10 m/s.

In Bild 5.6 ist der vertikale Verlauf der trockenen Temperatur von 9:00 bis 13:00 UTC dargestellt, aufgenommen mit Hilfe von Radiosondierungen in stündlicher Auflösung an einem

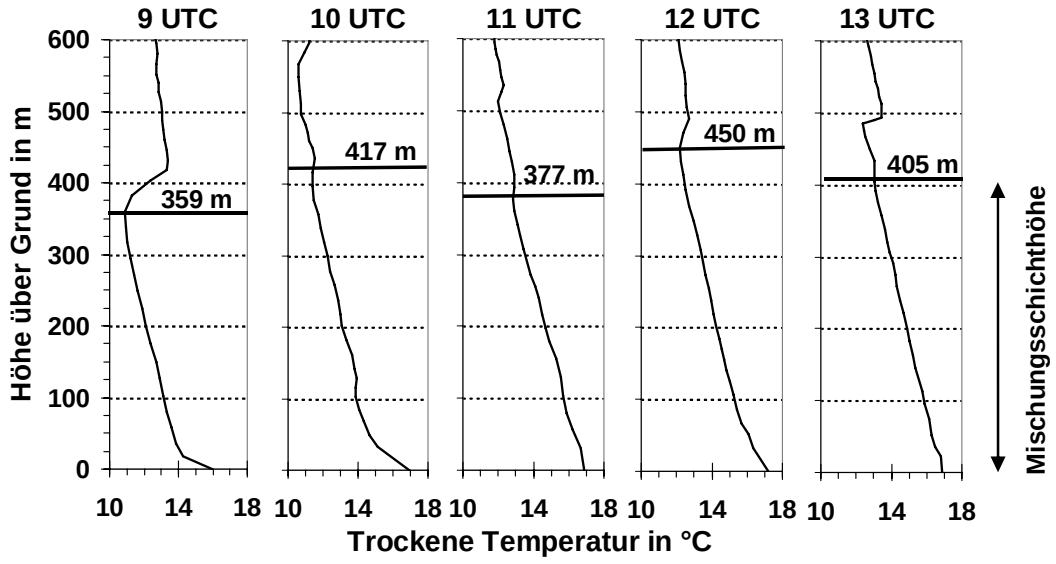


Bild 5.6: Vertikaler Temperaturverlauf und Höhe der Mischungsschicht am 23.10.1998 von 9:00 bis 13:00 UTC, aufgenommen mit Radiosonden (IMK)

Standort innerhalb des Untersuchungsgebiets. Bis zu einer Höhe von ca. 400 m über Grund ist eine Temperaturabnahme mit zunehmender Höhe zu erkennen. Dies weist auf eine gut durchmischte Schicht hin (Mischungsschichthöhe), die je nach Uhrzeit in verschiedenen Höhen von einer Temperaturinversion nach oben begrenzt wurde. Diese Temperaturinversion wies eine geringe vertikale Ausdehnung von nur ca. 20 m auf und bewegte sich im betrachteten Zeitraum in einer Höhe von 359 bis 450 m.

Die Diagramme in Bild 5.7 spiegeln die meteorologischen Bedingungen am 22.10.1998 sowie deren Auswirkungen auf die Vertikalverteilung der Luftverunreinigungen und auf die Bilanzierung in anschaulicher Weise wider. In Bild 5.7a sind Vertikalprofile dargestellt, die am 22.10.1998 am Lee-Standort Stätzling während des Bilanzzeitraums aufgenommen wurden. Die Sondierung wurde um 13:03 UTC gestartet, einer Tageszeit, zu welcher gute Ausbrei-

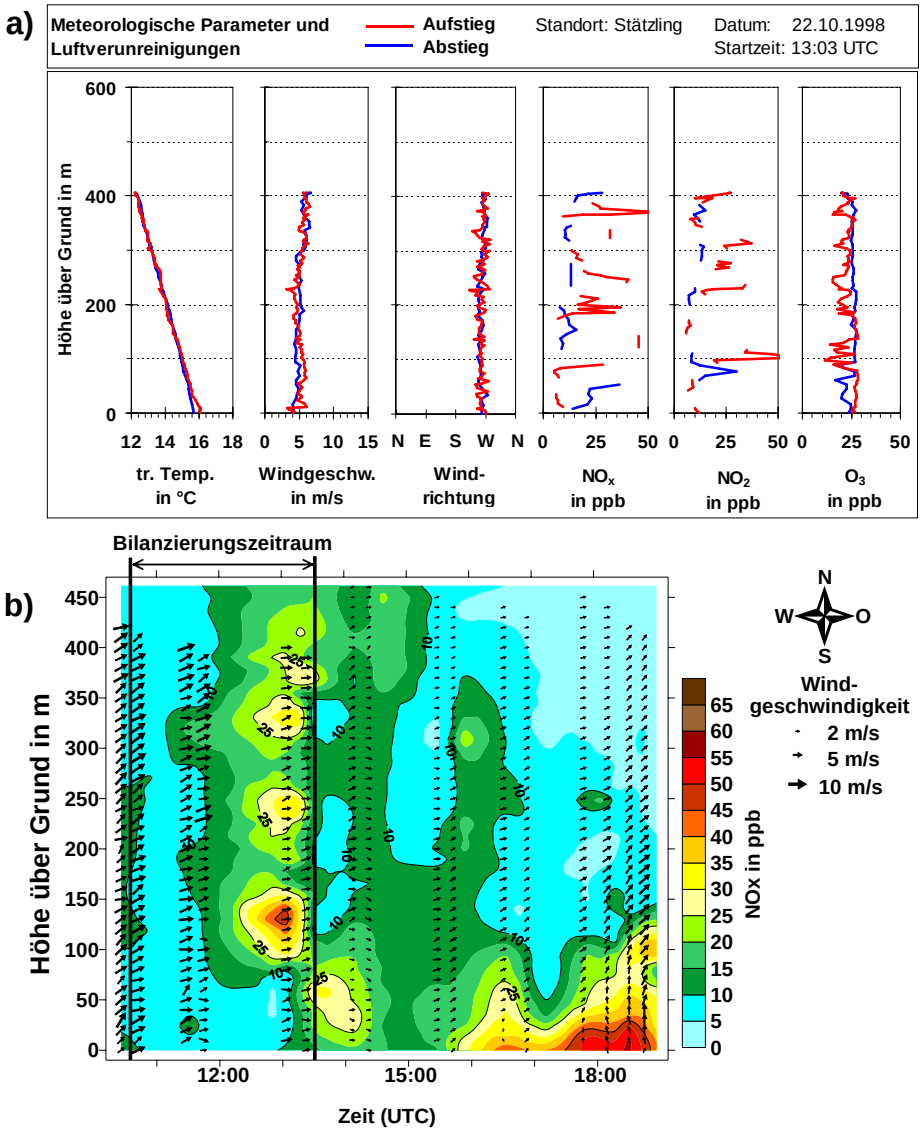


Bild 5.7: a) Vertikalprofile der meteorologischen Parameter und Luftverunreinigungen am 22.10.1998 am Lee-Standort Stätzling, Startzeit: 13:03 UTC
b) Kombinierte Darstellung von Windgeschwindigkeit und Windrichtung und der Isoplethendiagramms der NO_x-Konzentration am 22.10.1998 von 10:00 bis 19:00 UTC am Lee-Standort Stätzling

tungsbedingungen mit niedrigen, gleichmäßig verteilten Konzentrationen von Luftverunreinigungen im Lee der Stadt erwartet werden konnten. Der Vertikalverlauf der trockenen Temperatur weist keine Inversionen auf. Eine fehlende Temperaturinversion und eine konstante Windgeschwindigkeit von 5 m/s über die gesamte Sondierhöhe stellten Voraussetzungen für eine gute vertikale und horizontale Ausbreitung der Luftverunreinigungen dar. Allerdings ergeben die Vertikalprofile der Stickstoffoxide und des Ozons ein anderes Bild: In unterschiedlichen Höhen wechselten sich sowohl beim Auf- als auch beim Abstieg Zonen mit sehr hohen Konzentrationen von bis zu 50 ppb und Zonen mit sehr niedrigen Konzentrationen ab. Dieser Verlauf mit Konzentrationsspitzen war sehr untypisch für eine Sondierung zu dieser Tageszeit an diesem Standort. Bild 5.7b stellt in einer Kombination aus Windpfeildiagramm und Isoplethendiagramm, analog zu Bild 5.6b, für die Komponente NO_x am 22.10.1998 von 10:00 bis 19:00 UTC die zeitliche Änderung der Vertikalverteilung von NO_x am Lee-Standort Stätzling dar. Auch in dieser Darstellung ist nochmals deutlich zu erkennen, dass im Bilanzierungszeitraum eine sehr inhomogene Vertikalverteilung von NO_x am Lee-Standort gemessen wurde. Außerdem drehte der anfänglich aus südwestlichen Richtungen wehende Wind im Laufe des Bilanzierungszeitraums auf westliche Richtungen. Beide Tatsachen, sowohl die inhomogene räumliche Verteilung der Luftverunreinigungen in der Lee-Bilanzebene als auch die Winddrehung während der Bilanzierung, können zu Ungenauigkeiten bei der Bilanzierung führen. Zudem änderte sich die Mischungsschichthöhe im betrachteten Bilanzierungszeitraum an diesem Tag ungewöhnlich stark von 500 auf 800 m über Grund.

5.2.3 Ebenenbestimmung, Projektion der Messpunkte auf die Bilanzebene und Interpolation der Messdaten auf der Bilanzebene

Die Luv- und Lee-Bilanzebenen aus Bild 5.1 werden in ein Gitter aus kleineren Flächen aufgeteilt und die Einzelmassenströme durch diese Flächen berechnet, wie in Bild 5.8 dargestellt. Die Summe der Einzelmassenströme ergibt den Gesamtmassenstrom durch die Bilanzebene. Die Differenz der Gesamtmassenströme der Luv- und Lee-Bilanzebenen ergibt die Emissionen der Spurenstoffe im Gebiet zwischen den beiden Ebenen.

Dazu wurden bei der beschriebenen Methode die Ebenen in ein Gitternetz mit 25 m Gitterweite aufgeteilt und für jede Gitterfläche, für die keine Werte vorlagen, durch Interpolation Werte berechnet. Die Massenstromberechnung wurde für zwei gleich große Bilanzebenen im Luv und Lee durchgeführt. In die Berechnung des Massenstroms durch die 25x25-m-Flächen ging entsprechend Gleichung 5.1, die sich aus der allgemeinen Massenbilanzgleichung (Gleichung 4.4) ergibt, die mittlere Konzentration in dieser Fläche (c_i), die Dichte der betrachteten Komponente (ρ) und der Mittelwert der flächennormalen Windgeschwindigkeit ($v_{\perp,i}$) ein. Diese Massenströme ergeben aufsummiert den Gesamtfluss durch die Frontflächen ($\dot{m}_{AdvF}$).

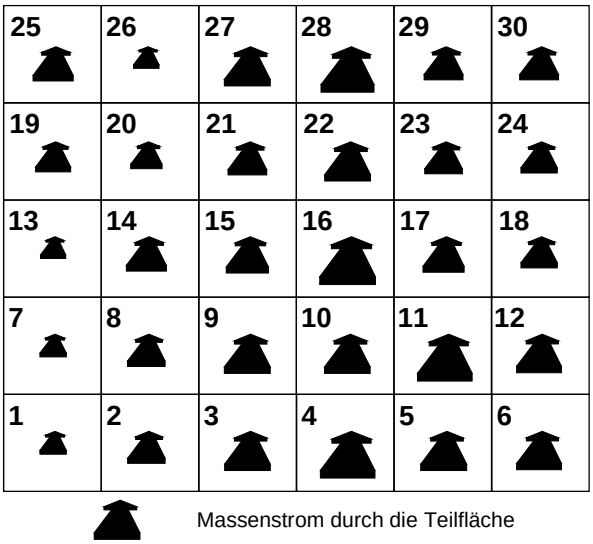


Bild 5.8: Exemplarische Darstellung einer Ebene (im Luv bzw. Lee) zur Berechnung des Massenstroms, aufgeteilt in ein Gitter mit Einzelmassenströmen

$$\dot{m}_{AdvF} = \sum_{i=1}^{n} c_{i(Luftverunreinigung)} * \rho_{Luftverunreinigung} * (v_{\perp,i}) * A_{Gitter} \qquad \textbf{(5.1)}$$

$\dot{m}_{AdvF}$:	Massenstrom der Luftverunreinigung durch die Bilanzfrontfläche in kg/h
$c_{i(Luftverunreinigung)}$:	Konzentration der Luftverunreinigung in ppb (* 10^{-9})
$\rho_{Luftverunreinigung}$:	Dichte der Luftverunreinigung in kg/m³
$v_{\perp,i}$:	Windgeschwindigkeit senkrecht zur Ebene in m/s (* 3600 s/h)
A_{Gitter} :	Fläche eines Gitterrasters in m²
n:	Anzahl der einzelnen Gitterrasterflächen in einer Bilanzebene

Im Folgenden wird beschrieben, wie die Ebenen ausgewählt und die vorhandenen Messdaten auf diese Ebenen projiziert wurden. Die Berechnungsschritte und die erforderlichen Interpolationen zur Berechnung der Massenströme der Spurenstoffe durch die Gitterflächen werden im Einzelnen dargestellt.

Als Koordinatensystem für die Ebenen wurde das Längen- und Breitengradsystem der Erde gewählt. Die Ebenen sind durch zwei Punkte in diesem Koordinatensystem eindeutig bestimmt. Jeder verfügbare Messwert des Luftschiffs und der Flugzeuge ist einer Höhe und einem Koordinatenpunkt zugeordnet. Die Koordinatenpunkte wurden mit Hilfe von GPS-Empfängern erzeugt, die die Werte der Längen- und Breitengrade aufzeichneten. Die Höhe wurde über Druckmessungen berechnet.

In Bild 5.1 ist die Flugbahn des Luftschiffs eingezeichnet; die Position der einzelnen Punkte ist in einem x-y-Koordinatensystem genau festgelegt. Man erkennt, dass die Flugbahn des Luftschiffs nicht exakt auf einer Geraden (bzw. Ebene) lag. Die Projektion der Messpunkte auf die Bilanzierungsebene ist aber eine unumgängliche Voraussetzung für die Durchführung

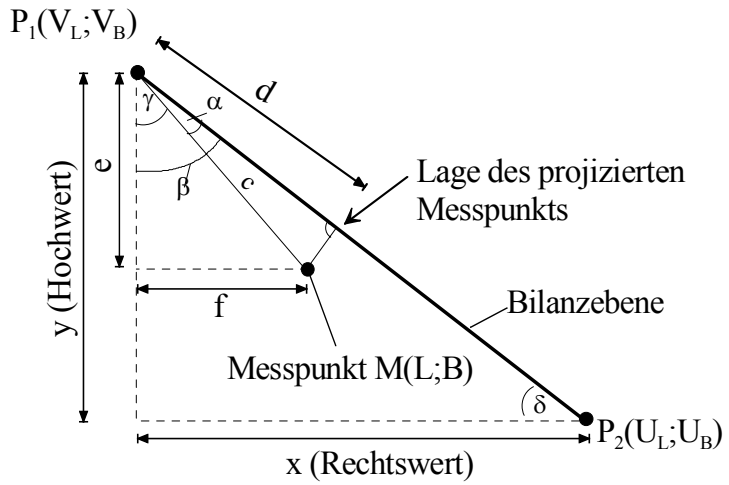


Bild 5.9: Bestimmung der Ebenenkoordinate aus den GPS-Daten der Messpunkte

von Massenstrombilanzen. In Bild 5.9 und den dazugehörigen Gleichungen ist dargelegt, wie die Projektion der Messergebnisse auf die Bilanzierungsebene durchgeführt wurde.

Da nicht alle Messpunkte auf der Bilanzierungsebene liegen, wird jeder Messwert senkrecht auf die Ebene projiziert und somit einem Abstand d zu einem Punkt zugeordnet. Die Gleichung 5.2 wird aus geometrischen Beziehungen gebildet, welche in Bild 5.9 dargestellt sind. Der Abstand d ist der x-Wert der Ebene, die Höhe der y-Wert und die Konzentration des zu berechnenden Stoffes der z-Wert. Die Längen- und Breitengrade sind in Grad, Minuten und Sekunden angegeben. Um eine metrische Skalierung zu erhalten, müssen die auf die Ebene projizierten Messpunkte umgerechnet werden. Dazu wird der Ebenenpunkt d durch einen Faktor g dividiert, der abhängig vom Neigungswinkel δ zwischen 1,22 und 1,852 variiert (siehe Gleichung 5.3). Bei den Breitengraden entsprechen 0,001 Minuten ca. 1,852 m, bei den Längengraden ca. 1,220 m [149].

Mit dieser Methode wird ein Messpunkt M unabhängig von der Windrichtung immer dem gleichen Ebenenpunkt orthogonal zur Ebene zugeordnet.

$$d = \frac{\sqrt{(V_B - B)^2 + (L - V_L)^2} \cdot \cos(\beta - \arctan(\frac{L - V_L}{V_B - B}))}{g} \qquad \textbf{(5.2)}$$

- d: Ebenenkoordinate
- V_L: Längengrad des Punkts P_1
- V_B: Breitengrad des Punkts P_1
- L: Längengrad des Messpunkts M
- B: Breitengrad des Messpunkts M
- β: Winkel der Ebene zum Längengrad
- g: Umrechnungsfaktor auf metrische Skalierung
- δ: Neigungswinkel der Bilanzebene zum Rechtswert

Herleitung des Umrechnungsfaktors g:

$0° \triangleq 1{,}852\,\text{m}$

$90° \triangleq 1{,}22\,\text{m}$

$\Delta 90° \triangleq 1{,}852 - 1{,}22 = 0{,}632$

$0{,}001' \triangleq 0{,}632 \cdot \frac{\delta}{90} + 1{,}22$

$$g = \frac{0{,}001'}{(0{,}632 \cdot \frac{\delta}{90} + 1{,}22) \cdot 60} \qquad \textbf{(5.3)}$$

Um den Massenstrom einer Luftverunreinigung zu berechnen, der durch eine vordefinierte Ebene strömt, werden die Konzentration und die flächennormale Windgeschwindigkeit an möglichst allen Punkten in dieser Ebene benötigt. Da es zwischen den verfügbaren Messpunkten oftmals größere Bereiche gibt, an denen nicht gemessen wurde und somit weder Konzentration noch flächennormale Windgeschwindigkeit bekannt ist, wurden diese mit dem Interpolationsverfahren Kriging berechnet. Diese Interpolationen, wie auch die notwendigen Interpolationen zur Erstellung der Isoplethendarstellungen in Bild 5.5 und 5.7, wurden mit der Software SURFER berechnet und dargestellt. Ein Programmteil ermöglicht die Berechnung von Rasterdaten aus unregelmäßig verteilten Einzeldaten mit diversen Interpolationsmethoden. Ausschneiden, Verdichten oder Verdünnen der Rasterdaten ist möglich, ebenso die Verrechnung zweier Rasterdatensätze miteinander.

Die Kriging-Methode wurde einer linearen Interpolationsmethode vorgezogen, da sie den Vorteil hat, bis zum Rand der Ebene zu extrapolieren und mit größeren Datenlücken zurechtzukommen. Für das Interpolationsgitter wurde eine Gitterweite von 25 m gewählt.

Es soll nun z. B. für eine Rasterfläche eine Konzentration durch Interpolation errechnet werden. In der näheren und weiteren Entfernung der Rasterfläche befinden sich mehrere Messwerte der Konzentration. Zur Bestimmung der Konzentration der Rasterfläche, geht man mit Hilfe des Kriging-Verfahrens folgendermaßen vor:

Will man aus den Stellen $\{x_i\}$ die Werte z(x) abschätzen, haben die näheren Punkte größeren Einfluss als die weiter entfernten Punkte (siehe Bild 5.10a). In Bild 5.10b teilt sich das Gewicht bei gleichem Abstand zu je 1/3 auf. Bei einer Anhäufung x_3 bis x_n, wie in Bild 5.10c dargestellt, bekommen diese Werte trotzdem nur ein Gewicht von 1/3, die restlichen 2/3 wer-

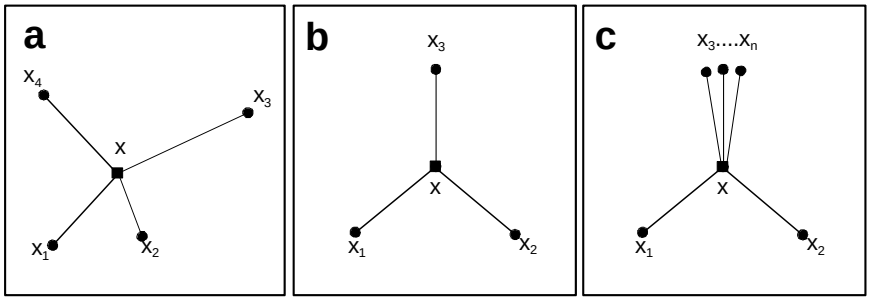


Bild 5.10: Rechenmethode im Interpolationsverfahren Kriging

den auf x_1 und x_2 gleichmäßig verteilt. Dies zeigt, dass diese Methode unabhängig von der Dimension und der Stützstellenverteilung ist [150].

Die Funktionsweise der Kriging-Methode eignete sich hervorragend für die Auswertung der vorliegenden Datensätze, weil die Messdaten sehr unregelmäßig verteilt vorlagen. Im Bereich der Vertikalsondierungen lagen die Messdaten gehäuft vor. Die Kriging-Methode vermeidet eine Überbewertung solcher Datenhäufungen.

Im Gegensatz zu den Isoplethendarstellungen in Bild 5.5 und 5.7, in denen die zeitliche Änderung der Vertikalverteilung der Messgrößen an einem Messort dargestellt wurde, ist in den Isoplethendarstellungen in Bild 5.11 die horizontale und vertikale Verteilung der Messgröße

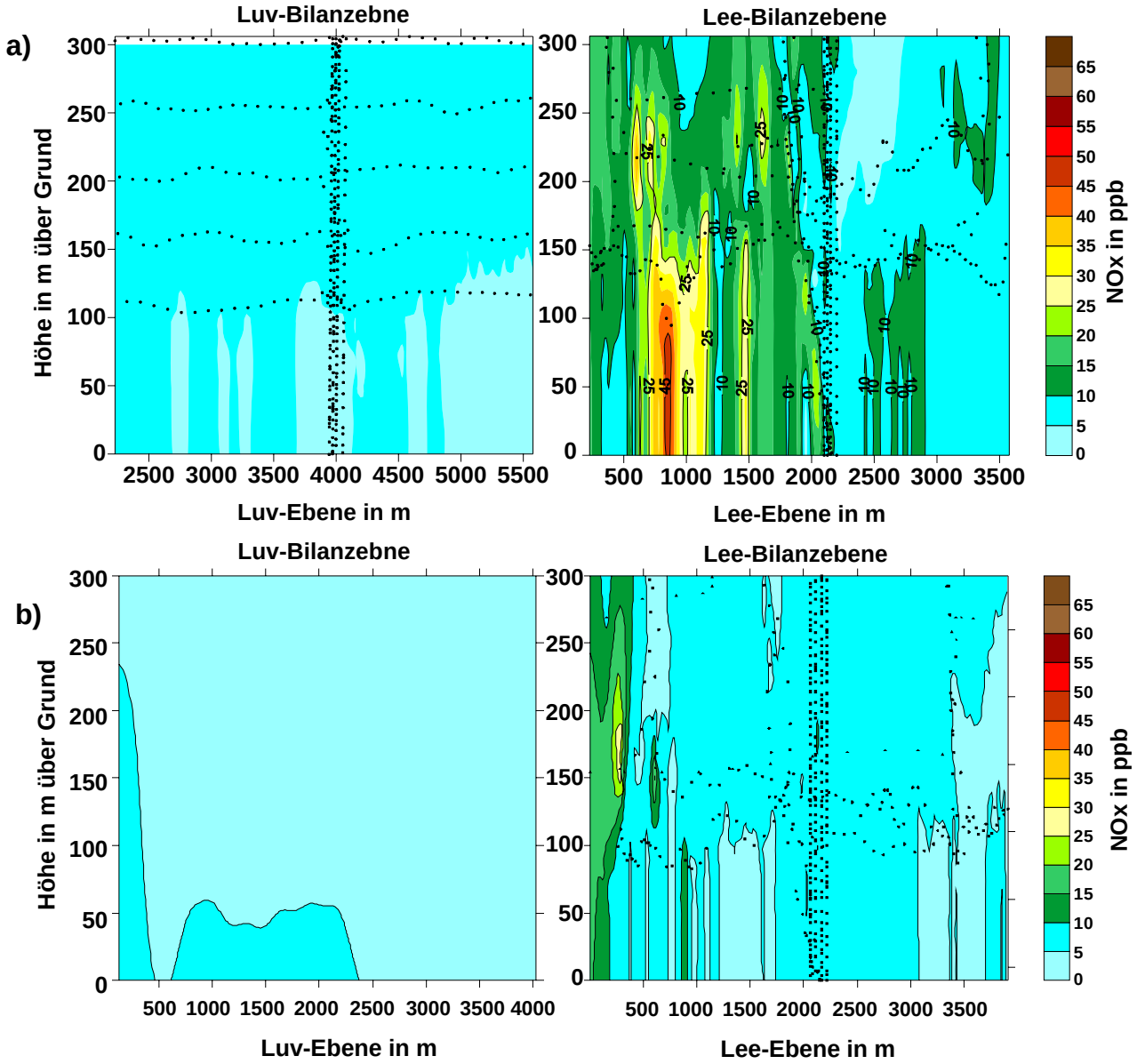


Bild 5.11: NO_x-Konzentrationen in der Luv- (links) und Lee-Bilanzebene (rechts). Die schwarzen Punkte zeigen an, wo Messpunkte vorhanden waren, mit denen die Interpolationen durchgeführt wurden.
a) 22.10.1998 von 10:00 bis 12:00 UTC
b) 23.10.1998 von 11:40 bis .13:00 UTC

als Mittelwert über den Betrachtungszeitraum dargestellt. Bild 5.11a zeigt Isoplethendarstellungen der Luv- und Lee-Bilanzebenen am 22.10.1998 von 10:00 bis 12:00 UTC, die ebenfalls mit Hilfe der Interpolationsmethode Kriging erstellt wurden. In Bild 5.11b sind die Messdaten für den 23.10.1998 von 11:40 bis 13:00 UTC dargestellt. Die horizontale Ausdehnung beträgt ca. 3000 m; vertikal werden Luftschichten vom Erdboden bis in ca. 300 m über Grund erfasst, also der Bereich, der von den Fesselballonen und dem Luftschiff im Wesentlichen abgedeckt wurde. Die Punkte in den Darstellungen repräsentieren die Orte der Datenpunkte (aus Fesselballon-, Luftschiff-, aber auch Flugzeug- und Bodenmessungen), aus denen die Isoplethendarstellung durch Kriging-Interpolation berechnet wurde. Wie in Bild 5.11 zu sehen ist, waren die Konzentrationsunterschiede an beiden Tagen in der Luv-Bilanzebene sehr gering, d. h. die Luft war homogen gut vermischt. Am 23.10.1998 waren die Konzentrationen auch in der Lee-Bilanzebene relativ gut durchmischt, was an der gleichmäßigen Konzentrationsverteilung, abgesehen von einem kleinen Gebiet am linken Rand der Lee-Bilanzebene, deutlich zu erkennen ist. Im Gegensatz dazu traten am 22.10.1998 in der Lee-Bilanzebene strähnenförmige Konzentrationserhöhungen auf, die auf nicht gut vermischte Emissionen zurückzuführen sind. Gerade an diesem Tag traten diese Strähnen sehr ausgeprägt auf. Die Emissionen der nahegelegenen Emissionsquellen haben sich am 23.10.1998 entweder besser vermischt, waren nicht so hoch konzentriert oder überhaupt nicht vorhanden. Der Lee-Standort hätte demnach etwas weiter von der Stadt entfernt gewählt werden müssen, was aber wegen der nahegelegenen Autobahn nicht möglich war.

5.2.4 Berechnung von NO_x-Konzentrationen aus NO_2-Daten des Luftschiffs

Am Luftschiff wurde aufgrund des geringeren Ladegewichts die leichtere NO_2-Sonde und nicht das wesentlich schwerere NO_x/NO_2-Messgerät (LMA4) eingesetzt, das am Fesselballon zum Einsatz kam. Deshalb wurde am Luftschiff nur NO_2 und kein NO_x gemessen. Für die Anwendung der NO_x-Bilanzierung wurden allerdings NO_x- und nicht nur NO_2-Daten benötigt. Somit wurden die NO_2- in NO_x-Daten umgerechnet, indem für Messstationen oder Messsysteme, die im näheren Umfeld des Luftschiffs im Einsatz waren, die NO_x/NO_2-Verhältnisse für die betrachteten Zeiträume gebildet wurden. Im Anschluss wurde dieses Verhältnis auf die NO_2-Luftschiffdaten angewendet und somit NO_x-Daten generiert. In Tabelle 5.1 sind die NO_x/NO_2-Verhältnisse und die Standardabweichungen der zugrundeliegenden Einzelwerte verschiedener Stationen und Systeme enthalten. Allerdings wurden die Flugzeugwerte und die Werte der Bodenstation BIfA[1] nicht berücksichtigt, da sie zu starken Streuungen unterworfen waren. Außerdem wurden zwei bzw. drei Zeiträume pro Messtag gebildet, da sich das NO_x/NO_2-Verhältnis im Laufe des Tages aufgrund der sich ändernden Ausbreitungsbedingungen und Sonneneinstrahlung veränderte. Für kürzere Zeiträume in größeren Entfernungen zu Emissionsquellen kann das NO_x/NO_2-Verhältnis jedoch als nahezu konstant angenommen werden.

[1] Bayerisches Institut für Abfallforschung

Die Mittelwerte der NO_x/NO_2-Verhältnisse der Bodenstation Stätzling und der Bodenstation am Ballonstandort Stätzling (Wasserwerk) betrugen am 22.10.1998 im ersten Vergleichszeitraum von 10:30 bis 12:00 UTC 1,3 und im zweiten Vergleichszeitraum von 12:00 bis 13:30 UTC 1,2. Am 23.10.1998 betrug das NO_x/NO_2-Verhältnis in den frühen Morgenstunden 1,48, ab 11:00 UTC 1,25 und im dritten Vergleichszeitraum von 11:40 bis 13:00 UTC 1,21. Die auffallend höheren Werte von 8:00 bis 10:00 UTC lassen sich durch die Tatsache erklären, dass in den frühen Morgenstunden NO nicht vollständig zu NO_2 aufoxidiert werden konnte, verursacht durch die stabile Schichtung der Atmosphäre und dem damit verbundenen Fehlen von O_3.

Tabelle 5.1: NO_x/NO_2-Verhältnisse an verschiedenen Messstationen und Messsystemen (nur fett gedruckte Werte wurden berücksichtigt) und STABW-Standardabweichung

22.10.1998				
Ort / Uhrzeit (UTC) [1)]	**10:30-12:00**		**12:00-13:30**	
	NO_x/NO_2	**STABW**	**NO_x/NO_2**	**STABW**
Boden Stätzling	**1,35**	**0,06**	**1,25**	**0,06**
Boden BIfA	1,68	0,12	1,68	0,10
Flugzeug bis 750 ü. NN	2,00	0,42	1,98	0,47
Boden IVD (Stätzling)	**1,26**	**0,09**	**1,18**	**0,10**
Mittelwert der Verhältnisse	**1,30**		**1,22**	

23.10.1998						
Ort / Uhrzeit (UTC) [1)]	**08:00-10:00**		**11:00-11:40**		**11:40-13:00**	
	NO_x/NO_2	**STABW**	**NO_x/NO_2**	**STABW**	**NO_x/NO_2**	**STABW**
Boden Stätzling	**1,39**	**0,06**	**1,26**	**0,04**	**1,19**	**0,03**
Boden BIfA	2,28	0,70	1,94	0,12	1,65	0,12
Boden IVD (Stätzling)	**1,57**	**0,23**	**1,24**	**0,06**	**1,24**	**0,09**
Mittelwert der Verhältnisse	**1,48**		**1,25**		**1,21**	

[1)] Universal Time Coordinated, Zeit am Nullmeridian, hier: UTC = Lokalzeit MESZ - 2 Stunden und UTC = MEZ - 1 Stunde

5.2.5 Anwendung der eigenen Bilanzmethode auf die NO_x-Daten

Die angestrebte südwestliche Windrichtung war am 23.10.1998 innerhalb des Bilanzierungszeitraums von 10:00 bis 13:00 UTC gegeben, so dass sich die Ballonmessstandorte exakt im Luv und Lee von Augsburg waren. Am 22.10.1998 waren die Bedingungen nicht ganz optimal. Am Ende des Bilanzierungszeitraums drehte der Wind von anfänglich südwestlicher auf westliche Richtung. In Bild 5.1 sind die Standorte der Fesselballone sowie die Flugwege des Luftschiffs und der Flugzeuge eingezeichnet. Das Luftschiff flog horizontal in Höhen von 100 und 150 m über Grund, an den Wendepunkten im Norden und Süden sowie in der Mitte der Flugkurve Vertikalprofile von 150 bis ca. 300 m über Grund. Die beiden Messflugzeuge flogen horizontale Kreisbahnen ab einer Höhe von 150 m über Grund im vertikalen Abstand von 100 m bis zu einer Höhe von 700 m über Grund. Die Fesselballonaufstiege, Luftschiffsondierungen und Messflüge waren zeitlich aufeinander abgestimmt. Die IFK-Bilanzmethode basiert hauptsächlich auf den Fesselballon- und Luftschiffmessungen. Zu einem geringen Anteil

gingen auch Messdaten von Bodenmessstationen ein, und am 23.10.1998 wurden im Bilanzierungszeitraum von 11:40 bis 13:00 UTC die Daten der Lee-Bilanzebene in Höhen zwischen 150 und 250 m über Grund durch Flugzeugdaten ergänzt, da in diesem Höhenbereich und Zeitraum nur wenige Horizontalprofildaten des Luftschiffs vorhanden waren.

5.2.5.1 Angleichung der Luftmassenströme in der Luv- und Lee-Ebene – Herstellung von Divergenzfreiheit

In Kapitel 4.1 wurde schon bei der Formulierung der Bilanzgleichung darauf hingewiesen, dass nicht nur die Luftverunreinigungsmassenströme der Kontinuitätsgleichung unterliegen, sondern auch die gesamten Luftmassenströme. D. h. durch Berechnung muss sichergestellt werden, dass der in das Bilanzvolumen eintretende Luftmassenstrom dem das Bilanzvolumen verlassenden Luftmassenstrom entspricht (Divergenzfreiheit). Divergenzen können durch Luftmassenumlenkungen, -beschleunigungen oder -abbremsungen an Gebäuden entstehen oder durch topografische Gegebenheiten verursacht werden. Ist Divergenz vorhanden, muss eine Divergenzfreiheit hergestellt werden. Eine Möglichkeit hierzu besteht in der Veränderung der Größe eines der Bilanzfenster, bis der durch die Luv-Ebene eintretende Luftmassenstrom dem durch die Lee-Ebene austretenden entspricht. Bei Nichtkorrektur der Divergenz wird die Bilanz der Luftverunreinigungen entsprechend verfälscht. Zur Berechnung der Luftmassenströme kam Gleichung 5.4 zur Anwendung:

$$\dot{m}_{Luft} = \frac{\sum_{1}^{i} \rho_{Luft} * v_{\perp} * A_{Gitter}}{A_{Ebene}} \qquad \textbf{(5.4)}$$

- $\dot{m}_{Luft}$: Luftmassenstrom durch die Ebene in k/(m*s)
- ρ_{Luft} : Dichte der Luft bei 13 °C in kg/m³
- $v_{\perp,i}$: Windgeschwindigkeit senkrecht zur Ebene in m/s * 3600 s/h
- A_{Gitter} : Fläche eines Gitterrasters in m²
- A_{Ebene} : Fläche der Berechnungsebene in m²

Bild 5.12 zeigt die Luftmassenströme in kg/(m²*s) der Luv- und Lee-Ebene am 22. und 23.10.1998 während der Bilanzzeiträume. Die Luftmassenströme durch die Luv-Bilanzebene waren stets höher als diejenigen durch die Lee-Bilanzebene. Dies lag an den höheren Windgeschwindigkeiten durch die Luv-Bilanzebene aufgrund der etwas exponierteren Lage. Die Höhendifferenz zwischen den unteren Begrenzungen der Luv- und Lee-Bilanzebenen betrug ca. 50 m. Die untere Begrenzung der Luv-Bilanzebene stellte ein leichter Höhenzug entlang des Lechtals dar, die der Lee-Bilanzebene der Grund des Lechtals. Somit wies die Lee-Ebene bei Südwestanströmung i. A. niedrigere Windgeschwindigkeiten auf als die Luv-Ebene.

Die Anpassung der Luftmassenströme wurde erreicht, indem die Fläche der Luv-Bilanzebene so lange vergrößert wurde, bis die Luftmassenströme durch beide Bilanzebenen gleich groß waren. Mit den neu definierten Bilanzebenen wurden die weiteren, nunmehr divergenzfreien Berechnungen durchgeführt.

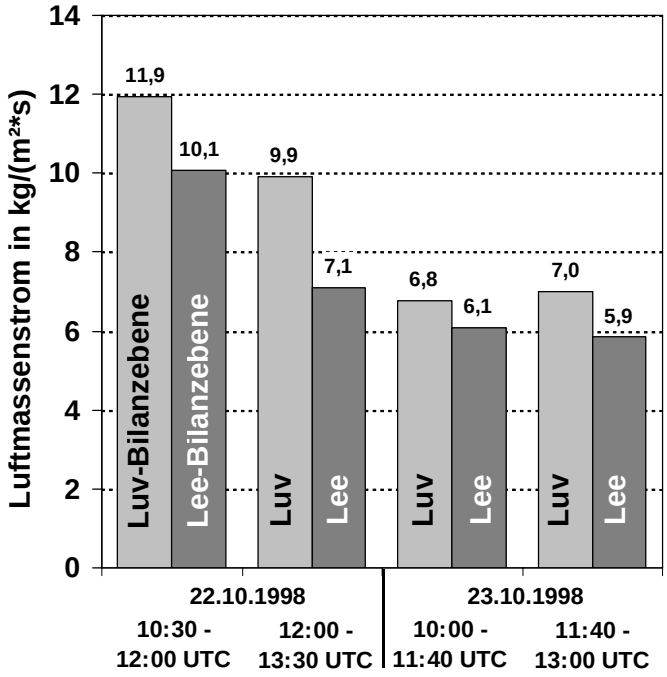


Bild 5.12: Luftmassenströme in kg/(m²*s) am 22. und 23.10.1998 durch die Luv- und Lee-Bilanzebenen

5.2.5.2 Berechnung der NO_x-Massenströme durch die Luv- und Lee-Bilanzebenen

Die Bilanzierungen wurden, wie in Bild 5.5 und 5.7 dargestellt, am 22.10.1998 von 10:30 bis 13:30 UTC und am 23.10.1998 von 10:00 bis 13:00 UTC durchgeführt. Der dreistündige Bilanzierungszeitraum wurde nochmals in zwei Perioden unterteilt, um auf die geringfügigen Änderungen der Windrichtung und der Mischungsschichthöhe einzugehen, die trotz der stationären Bedingungen vorhanden waren.

Die Lee-Bilanzebene wurde durch den Flugweg des Luftschiffs begrenzt. Sie hatte eine horizontale Ausdehnung von 3.400 m am 22.10.1998 und von 3.950 m am 23.10.1998 sowie eine vertikale Ausdehnung von 312,5 m und deckte somit eine Fläche von 1,06 bzw. 1,23 km² ab. In diesem Bereich lagen genügend Daten zur Durchführung einer Bilanzierung vor. Die Größe der Luv-Ebene wurde entsprechend den Berechnungen der Divergenzfreiheit im vorherigen Kapitel angepasst.

In Anhang 10 sind beispielhaft für den 22.10.1998 von 10:30 bis 12:00 UTC die einzelnen Terme, die in Gleichung 5.1 bei der Berechnung des NO_x-Massenstroms durch die Lee-Bilanzebene eine Rolle spielen, grafisch dargestellt. Bild a veranschaulicht die vertikale und horizontale Verteilung der NO_x-Konzentrationen in der Lee-Bilanzebene und Bild b die räumliche Verteilung der Windgeschwindigkeit. Durch Anwendung von Gleichung 5.1 wird zuerst der NO_x-Massenstrom durch die Einzelflächen der Bilanzebene (25 x 25 m) berechnet. Anschließend erhält man durch Summation über die gesamte Bilanzebene den gesamten NO_x-Massenstrom durch diese Ebene. Die räumliche Verteilung dieses NO_x-Massenstroms innerhalb der Lee-Bilanzebene ist in Bild c dargestellt. Ganz deutlich zu erkennen ist die inhomo-

gene räumliche Verteilung der NO_x-Konzentrationen, aber auch der Windgeschwindigkeit. Diese Inhomogenitäten setzen sich in der räumlichen Verteilung des NO_x-Massenstroms in Bild c durch die Bilanzflächen fort, da dieser sich aus den NO_x-Konzentrationen und den flächennormalen Windgeschwindigkeiten berechnet.

Die Ergebnisse der Berechnung der NO_x-Massenströme durch die Luv- und Lee-Bilanzebenen und ihre Differenzen sind in Tabelle 5.2a aufgeführt. Für den 22.10.1998 wurde zwischen 10:30 und 13:30 UTC ein NO_x-Massenstrom von 256,6 kg/h durch die Luv-Bilanzebene und von 496,7 kg/h durch die Lee-Bilanzebene berechnet. Folglich ergab sich eine Differenz von 240,1 kg/h der beiden Massenströme die aus der Stadt stammten. Am 23.10.1998 ergab sich im Bilanzzeitraum von 10:00 bis 13:00 UTC für die Luv-Bilanzebene ein NO_x-Wert von 215,4 kg/m³ und von 338,8 kg/m³für die Lee-Bilanzebene. Die Differenz aus beiden Werten ergab einen NO_x-Massenstrom von 123,4 kg/m³.

5.2.5.3 NO_x-Massenstrombilanzierung der gesamten Stadt mittels Plumeabschätzung

Um eine sichere Aussage über die NO_x-Emissionen der Stadt Augsburg machen zu können, müssten nach der Luv- und Lee-Methode über die ganze Breite der Stadt und bis zur Mischungsschichthöhe ein Netz von Messpunkten aufgenommen werden. Geht man aber davon aus, dass die Emissionen am Messstandort im Lee ausreichend durchmischt sind, ist die Projektion der gemessenen Emissionen durch die kleineren Bilanzebenen auf die gesamte Plume (Abgasfahne) von Augsburg möglich.

In Bild 5.13 sind das Stadtgebiet und die Standorte der Luv- und Lee-Messungen markiert. Die horizontale Ausdehnung der Plume senkrecht zur vorherrschenden Windrichtung beträgt ca. 9 km. Am 22.10.1998 ergab sich für den Bilanzierungszeitraum mit einer mittleren Mi-

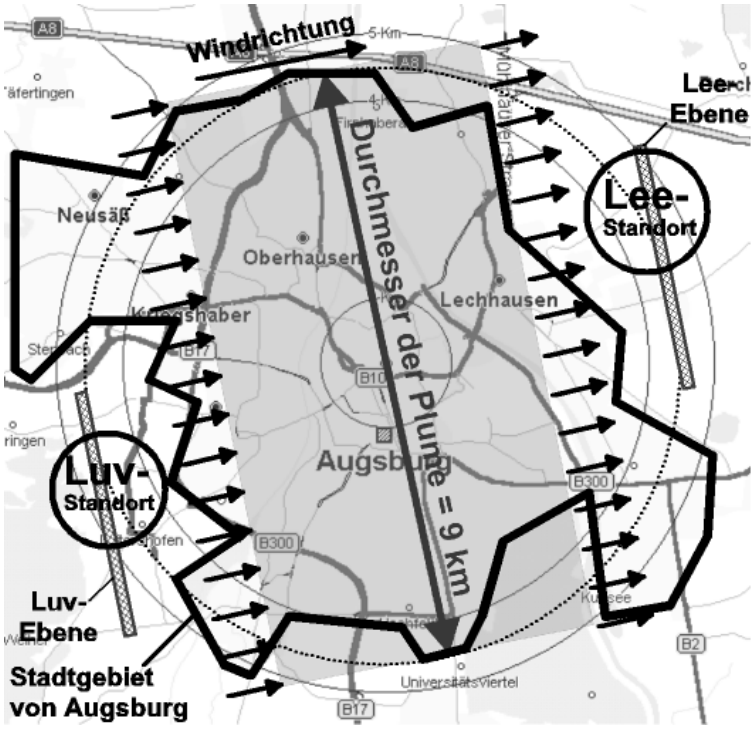


Bild 5.13: Abschätzung der horizontalen Ausdehnung der Plume (Abgasfahne) von Augsburg

schungsschichthöhe von 650 m eine Fläche von 5,85 km². Am 23.10.1998 ergab sich für den Bilanzierungszeitraum mit einer mittleren Mischungsschichthöhe von 500 m eine Fläche der Abgasfahne von 4,5 km². Die Lee-Bilanzierungsebene ergab am 22.10.1998 aufgrund des Flugmusters des Luftschiffs eine Fläche von 1,06 km² und am 23.10.1998 von 1,23 km². Bezogen auf die Gesamtfläche der Abgasfahne von 4,5 km² errechnet sich zwischen der Lee-Bilanzebene und der vermuteten Fläche der Abgasfahne von Augsburg ein Faktor von 5,51 für den 22.10.1998 bzw. von 3,65 für den 23.10.1998. Werden die NO_x-Massenströme der Bilanzierungsebene mit diesen Faktoren multipliziert, erhält man unter der Annahme einer gleichmäßigen vertikalen und horizontalen Verteilung der Luftverunreinigungen die Gesamtbilanz für Augsburg. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.2b dargestellt. Die NO_x-Massenstrombilanzierung ergibt durch Multiplikation der errechneten Differenzen der NO_x-Massenströme durch die Luv- und Lee-Bilanzebenen mit den zuvor genannten Faktoren von 5,51 bzw. 3,65 Gesamtmassenströme für NO_x von 1321,9 kg/h am 22.10.1998 bzw. 449,9 kg/h am 23.10.1998. Unter Anwendung der vereinfachenden Annahmen von Gleichung 4.2 entsprechen diese NO_x-Massenströme den von der Stadt Augsburg freigesetzten Emissionen in den betrachteten Bilanzzeiträumen. Die berechneten NO_x-Emissionen am 22.10.1998 waren somit fast dreimal so hoch wie die Emissionen am 23.10.1998. Auf die Unterschiede der Massenströme an den beiden Tagen wird in Kapitel 5.3 näher eingegangen.

Die Bestimmung der Unsicherheiten der Bilanzierungsmethode wird in Anhang 11 dargelegt. Die Unsicherheiten der berechneten NO_x-Massenströme in den Ebenen bewegten sich zwi-

Tabelle 5.2: NO_x-Massenströme in kg/h:
a) durch das Luv- und Lee-Bilanzfenster
b) für die Stadt Augsburg

	Datum	Startzeit - Endzeit	Luv-Ebene	Lee-Ebene	Differenz Lee - Luv
a)			**NO_x-Massen in kg/h für Bilanzfenster**		
	22.10.	10:30 - 12:00 UTC	240,5	500,0	259,5
		12:00 - 13:30 UTC	272,7	493,4	220,7
		10:30 - 13:30 UTC	**256,6**	**496,7**	**240,1**
	23.10.	10:00 - 11:40 UTC	219,5	360,9	141,4
		11:40 - 13:00 UTC	210,2	311,1	100,9
		10:00 - 13:00 UTC	**215,4**	**338,8**	**123,4**
b)			**NO_x-Massen in kg/h für Augsburg -> Plumeabschätzung**		
	22.10.	10:30 - 12:00 UTC	1324,3	2752,8	1428,6
		12:00 - 13:30 UTC	1501,5	2716,8	1215,3
		10:30 - 13:30 UTC	**1412,9**	**2734,8**	**1321,9**
	23.10.	10:00 - 11:40 UTC	800,3	1315,8	515,5
		11:40 - 13:00 UTC	766,4	1134,3	367,9
		10:00 - 13:00 UTC	**785,2**	**1235,1**	**449,9**

schen 47,9 und 64,4 %. Dies ist das Ergebnis der Anwendung des Unsicherheitsfortpflanzungsgesetzes unter Berücksichtigung der Unsicherheiten der Messgeräte für die Größen NO_x, Windgeschwindigkeit (WG) und Windrichtung (WR), aber auch der Inhomogenitäten der Konzentrationen in der Lee-Ebene, welche den größten Beitrag verursachten.

5.3 Vergleich der über Luftmassenbilanz bestimmten Emissionen mit berechneten Emissionen aus der Emissionsbilanzierung

Im Projekt EVA wurden die Emissionen durch das Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart (IER) mit Hilfe eines Emissionsmodells berechnet. In diesem Unterkapitel sollen die wichtigsten Ergebnisse der Emissionsmodellierung zum Vergleich mit den Ergebnissen aus den Luftmassenbilanzierungen dargestellt werden. Die Detailergebnisse sind in folgenden Veröffentlichungen zu finden: [123], [151] und [152].

5.3.1 Ergebnisse der Emissionsmodellierung

Es wurden die Emissionen der Komponenten CO, NO_x und einer größeren Anzahl von Kohlenwasserstoffen berechnet. Als Emissionsquellgruppen wurden der Straßenverkehr, industrielle Punktquellen, Haushalte und Gewerbe sowie für Kohlenwasserstoffe die Anwendung

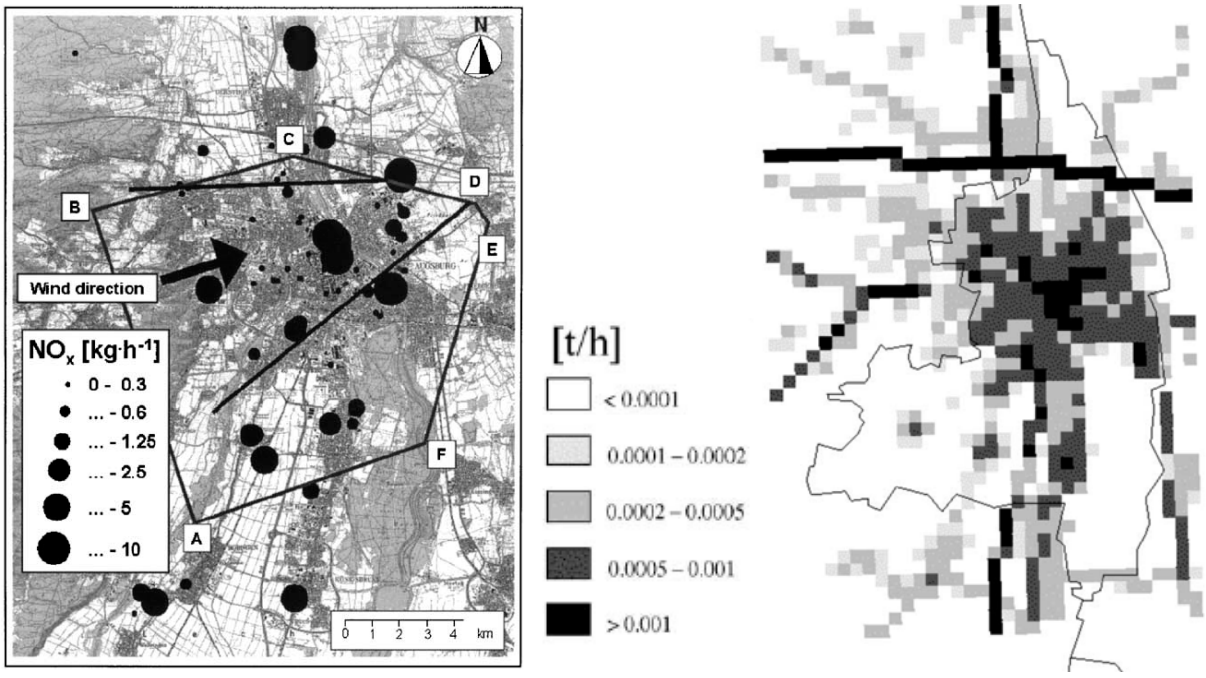


Bild 5.14: Modellierte NO_x-Emissionen (in kg/h) industrieller Punktquellen (links) für den Betrachtungszeitraum von 10:00 bis 12:00 UTC am 22.10.1998 (links) [151]. Emissionskataster in einem Raster von 500 x 500 m aller betrachteten NO_x-Emissionsquellen für den 10.10.1998 in der Zeit von 11:00 bis 12:00 UTC [123]. Schwarze Linie: Flugroute für die Flugzeugmessungen mit den Eckpunkten A, B, C, D, E und F, welche dem Untersuchungsgebiet entspricht.

Lösungsmitteln identifiziert. In die Emissionsmodellierung wurden ortsspezifische Daten eingearbeitet, die entweder vorhanden waren oder im Projekt erhoben wurden. Auf diese Weise lagen die Emissionsdaten in hoher stofflicher (z. B. Einzel-VOC), aber auch zeitlicher (1-Stundenmittelwerte) und räumlicher Auflösung im Raster von 500 x 500 m für das Untersuchungsgebiet Augsburg vor.

Die räumliche Zuordnung der Emissionen geschah über die geografischen Koordinaten der Emissionsquellen, soweit diese bekannt waren und über ein Landnutzungskataster, das in einem Raster von 250 x 250 m vorlag.

In Bild 5.14 sind Beispiele der modellierten Emissionsdaten für Augsburg dargestellt. Im linken Diagramm sind die NO_x-Emissionen der industriellen Punktquellen als unterschiedlich große schwarze Punkte auf einer Karte von Augsburg verzeichnet und dies für den Zeitraum von 10:00 bis 12:00 UTC am 22.10.1998, einem Zeitraum, der für die Bilanzmessungen herangezogen wurde. In dieser Darstellung wird deutlich, dass sich eine größere Anzahl von Punktquellen im Untersuchungsgebiet befindet. Außerdem wurde festgestellt, dass 24,9 % der NO_x-Emissionen in Augsburg aus diesen Punktquellen stammen. Das rechte Diagramm von Bild 5.14 zeigt die NO_x-Emissionen als Kataster von 500 x 500 m für den Zeitraum von 11:00 bis 12:00 UTC am 10.10.1998. Die Hauptverkehrsstraßen sind in dieser Darstellung als dunkle Bänder mit hohen NO_x-Emissionen zu erkennen. Auch in der Innenstadt von Augsburg werden größere Mengen an NO_x-Emissionen freigesetzt. Durch Aufsummierung der Emissionen der einzelnen Rasterflächen können die Emissionen für die gesamte Stadt errechnet werden. In Tabelle 5.3 findet der Vergleich der im Projekt EVA modellierten Emissionen mit den über die Bilanzierungen berechneten und weiteren Methoden, welche zur Anwendung kamen, statt.

5.3.2 Mit anderen Methoden bestimmte NO_x-Emissionen

5.3.2.1 Flugzeugmessungen

Wie erwähnt, kamen im Projekt EVA zwei Messflugzeuge zum Einsatz, die vom IMK[1] und IfU[2] betrieben wurden und neben meteorologischen Messgeräten auch verschiedene Geräte zur Messung und Sammlung von Luftverunreinigungen an Bord hatten (Details hierzu in Anhang 7 und 8). Die Messflugzeuge kamen an mehreren Tagen mit geeigneten Bedingungen für eine Massenbilanzierung zum Einsatz [153]. Die Fluggeschwindigkeit betrug im Mittel 60 m/s. Der Flugpfad wurde so gewählt, dass bei Anströmung aus südwestlicher Richtung die Autobahn A 8 außerhalb des Untersuchungsgebiets lag. Eine einmalige Umrundung des Untersuchungsgebiets betrug ca. 40 km (Bild 5.15a links). Auf diese Weise wurde das Untersuchungsgebiet innerhalb einer Stunde fünf Mal in verschiedenen Höhen umrundet. Der Abstand der einzelnen Flugniveaus betrug ca. 75 m. So wurde die gesamte Mischungsschicht durchflogen, beginnend mit der minimalen Flughöhe von 150 m über Grund bis zur die Mi-

[1] IMK - Institut für Meteorologie und Klimatologie, Forschungszentrum Karlsruhe
[2] IfU - Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe

schungsschicht begrenzenden Höheninversion (Absinkinversion). Die einzelnen Flugbahnen wurden auf eine Referenzflugbahn projiziert (Bild 5.15a rechts, rote Linie). Die in den vorangegangenen Kapiteln beschriebene Massenbilanzmethode, welche auf dem Massenerhaltungssatz beruht, wurde auch auf die Ergebnisse der Flugzeugmessungen angewandt:

$$E_{c_i} = \oiint_A c_i * \vec{V} * d\vec{A} \qquad \textbf{(5.5)}$$

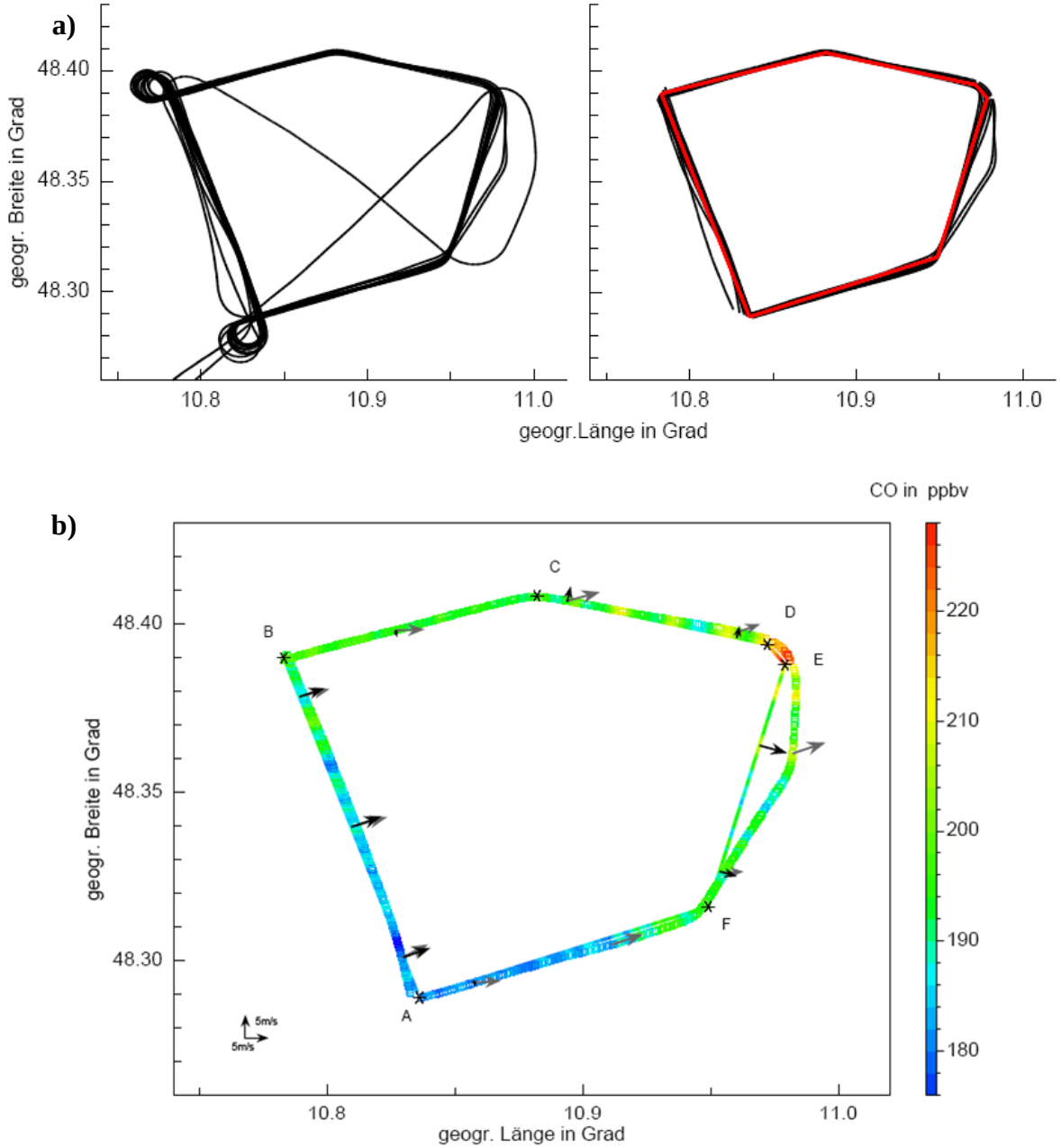


Bild 5.15: a) Horizontale Projektion der Flugbahnen des Messflugzeugs Dornier 128 (IMK) am 22. Oktober 1998 die in verschiedenen Flughöhen aufgenommen wurden (links). Projektion der Flugbahnen auf eine Referenzflugbahn – rote Linie – (rechts) [153].
b) Ergebnisse eines Messflugs am 22. Oktober 1998 zwischen 11:03 und 11:15 UTC in 796 m ü. NN. CO-Konzentration in ppb auf der Referenz-Flugbahn.

E_{ci} steh für die innerhalb des Untersuchungsgebiets freigesetzten Emissionen der betrachteten Luftverunreinigungen, c_i die an den Bilanzflächen $\vec{A}$ (Mantel- und Deckfläche) gemessenen Konzentrationen und $\vec{V}$ für den dreidimensionalen Windvektor an den Bilanzflächen. $c_i * \vec{V}$ bezeichnet den Massenstrom der Komponente i, welcher die Bilanzflächen überströmt. Es kamen zwei etwas unterschiedliche Bilanzmethoden zum Einsatz. Die Ergebnisse der Messflüge des IMK wurden dahingehend ausgewertet, dass die Messergebnisse auf der Mantelfläche, die den Bilanzraum umgibt, in einem Raster von 25 x 25 m interpoliert wurden. Mit Hilfe der interpolierten Daten wurden die Massenströme der Luftverunreinigungen mit Hilfe von Gleichung 5.5 berechnet, die in den Bilanzraum strömten oder ihn verließen. Bei der zweiten Auswertungsmethode wurde davon ausgegangen, dass die Messwerte in einem Band von der Breite des halben Abstands zweier Flugrouten unterhalb und oberhalb der Flugroute konstant waren. Für diese Bänder wurden dann die Massenströme mit Hilfe von Gleichung 5.5 bestimmt. Die Höhe zwischen dem Erdboden und dem untersten Flugniveau in 150 m über Grund wurde mit Hilfe von Boden-, Fesselballon- und Luftschiffmessungen abgedeckt.

In Bild 5.16 ist das Ergebnis eines Messflugs dargestellt, der am 22. Oktober 1998 in der Zeit zwischen 10:21 und 11:56 UTC in Höhen zwischen 650 und 1125 m ü. NN durchgeführt wurde. Die die vertikale Ausbreitung der freigesetzten Luftverunreinigungen begrenzende Absinkinversion befand sich an diesem Tag in einer Höhe von 1050 m ü. NN. Dargestellt ist die auf Interpolation im Raster von 25 x 25 m beruhende NO_x-Konzentration auf der Mantelfläche, die den Bilanzraum umgibt. Auf der Abszisse sind zur besseren Orientierung die Eckpunkte der Flugroute (vgl. mit Bild 5.15b) mit den Buchstaben A, B, C, D, E und F markiert. Zudem sind die Flugrouten in den einzelnen Höhen mit weißen Linien markiert. Die niedrigsten NO_x-Konzentrationen von 5 bis 8 ppb traten im Luv von Augsburg auf (Bereich zwischen A und B sowie rechts von F). Im Lee des Untersuchungsgebiets (Bereich zwischen B und F)

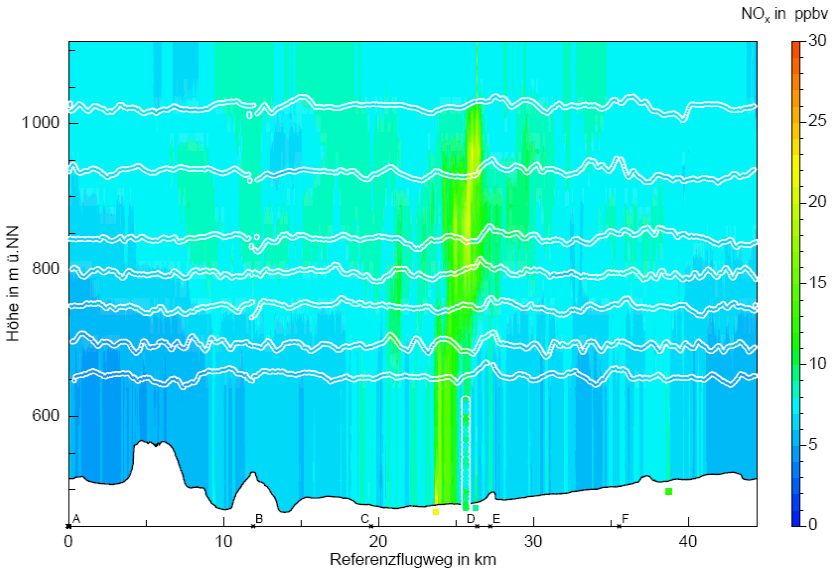


Bild 5.16: Interpolierte NO_x-Konzentrationen auf der Mantelfläche des Bilanzraums um das Untersuchungsgebiet. Ergebnisse von Messflügen am 22. Oktober 1998 zwischen 10:21 und 11:56 UTC. Die einzelnen Flugrouten sind markiert [153].

traten höhere NO_x-Konzentrationen auf, insbesondere in der unmittelbaren Umgebung des Lee-Fesselballonstandorts in Stätzling (bei Markierung D) traten die höchsten Konzentrationen von 15 bis 23 ppb auf. Dieser Bereich der höchsten Konzentrationen hatte eine geringe horizontale, jedoch eine sehr große vertikale Ausdehnung vom Erdboden bis in große Höhen und wurde vermutlich von einer oder einzelnen starken NO_x-Punktquellen verursacht. Dieses strähnenhafte Auftreten der Luftverunreinigungen an der Bilanzgrenze führt zu Unsicherheiten bei der Bestimmung der Emissionen.

Die Ergebnisse der auf der Basis der Flugzeugmessungen (und auch Boden-, Fesselballon- und Luftschiffmessungen) durchgeführten Massenbilanzierungen und Berechnungen der in Augsburg freigesetzten Emissionen sind in Kapitel 5.3.3 enthalten. Weitere Details zu den Flugzeugmessungen und deren Ergebnissen sind in [153] zu finden.

5.3.2.2 Source-Tracer-Methode

Eine weitere Methode zur Bestimmung der NO_x-, CO- und VOC-Emissionen ist die sogenannte *Source-Tracer*-Methode. Die *Tracer*-Messungen wurden vom Forschungszentrum Jülich, Abteilung Sicherheit und Strahlenschutz (ASS), durchgeführt. Details zur Durchführung der Messungen und zu den Ergebnissen sind in [154] zu finden. Diese Methode beruht auf der Markierung von Emissionen mit einer inerten Substanz und der Messung dieses *Tracers* zusammen mit den Emissionen im Lee einer Emissionsquelle. In Augsburg wurden während der Intensivmessphasen über das Stadtgebiet verteilt an neun Stellen bekannte Mengen SF_6 als inerter *Tracer* freigesetzt. Im Lee der Stadt wurden die Mischungsverhältnisse von CO und SF_6 bestimmt, indem entlang einer Messlinie an 19 Stationen orthogonal zur vermuteten Ausbreitungsrichtung kontinuierlich Luftproben in dafür geeigneten, teflonbeschichteten Probebeuteln gesammelt wurden. Die *Tracer*-Emissions- und -Sammelstandorte in Augsburg sind in Bild 5.17 eingezeichnet. Die Luftproben wurden im Labor auf SF_6 und CO untersucht. Unter der Annahme, dass das von Emissionsquellen freigesetzte CO und das in ihrer Umgebung freigesetzte SF_6 in der Atmosphäre denselben atmosphärischen Prozessen unterworfen sind,

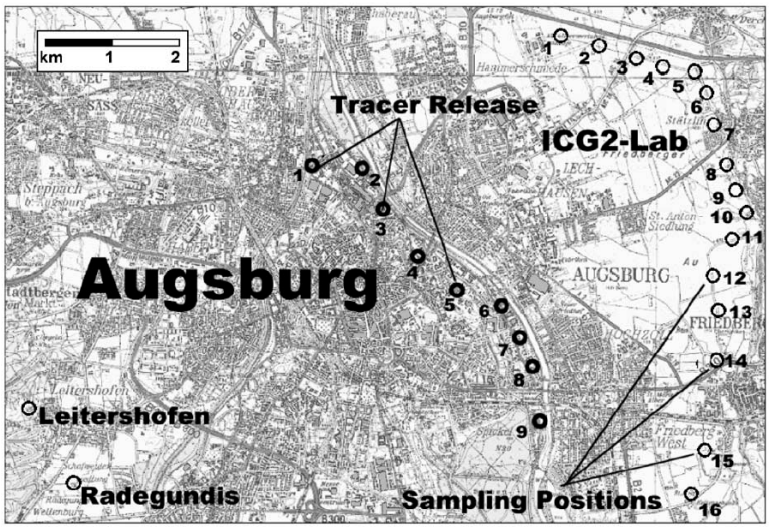


Bild 5.17: *Tracer*(SF_6)-Emissionsstandorte und *Tracer*-Sammelstandorte im Luv (Leitershofen und Radegundis) und Lee von Augsburg [154]

können bei guter Durchmischung und konstanten meteorologischen Bedingungen unter Abzug der Hintergrundbelastungen die absoluten CO-Emissionsraten ($[CO]_{Quelle}$) bestimmt werden:

$$[CO]_{Quelle} = \frac{[SF_6]_{Quelle} * [CO]_{Re zeptor}}{[SF_6]_{Re zeptor}} \quad \textbf{(5.6)}$$

$[SF_6]_{Quelle}$ ist die bekannte Emissionsrate des *Tracers* SF_6. Das Verhältnis $[CO]_{Rezeptor}/[SF_6]_{Rezeptor}$ lässt sich an den Messstellen mit Hilfe der Analyseergebnisse der Sammelproben bestimmen. Für inerte Substanzen kann davon ausgegangen werden, dass sie sich im selben Verhältnis verdünnen wie das SF_6. CO wurde als Bezugsgröße verwendet, da es sich aufgrund seines inerten Charakters in den Sammelbeuteln in der Zeit bis zur Analyse nicht verändert. Für NO_x und Kohlenwasserstoffe ist dies nicht gegeben. Für diese Komponenten wurde ein anderer Weg gewählt. Aus den ebenfalls im Projekt EVA durchgeführten Langzeitmessungen von CO, NO_x und Kohlenwasserstoffen wurden charakteristische Verhältnisse von NO_x/CO und VOC_i/CO gebildet. Durch Multiplikation dieser Verhältnisse mit den CO-Emissionen lassen sich die NO_x-Emissionen und die Emissionen der Einzelkohlenwasserstoffe berechnen.

5.3.3 Vergleich der Ergebnisse von verschiedenen Methoden zur Emissionsbestimmung im Projekt EVA

In Tabelle 5.3 sind die mit den unterschiedlichen Methoden bestimmten NO_x-Emissionsmassenströme dargestellt, die im Untersuchungsgebiet freigesetzt wurden. Insgesamt konnten die gemessenen Emissionen von vier Tagen miteinander und mit den berechneten Emissionen verglichen werden. Es liegen Werte für den 27.03., 10.10., 22.10. und 23.10.1998 vor. Am 27.03.1998 liegen lediglich Messwerte der *Source-Tracer*-Methode vor. Mit dieser Methode wurde für diesen Tag ein NO_x-Emissionsmassenstrom von 350 ± 120 kg/h berechnet. Der über die Emissionsmodellierung bestimmte NO_x-Emissionsmassenstrom betrug am betrachteten Tag 420 ± 150 kg/h. Im Rahmen der genannten Unsicherheiten der Messungen bzw. Modellierungen kann für diesen Tag von einer guten Übereinstimmung der gemessenen mit den berechneten NO_x-Emissionen gesprochen werden.

Der 10.10.1998 stellt einen weiteren Vergleichstag dar. An diesem Tag herrschten sehr hohe Windgeschwindigkeiten, so dass weder das Luftschiff, noch der Fesselballon für Messungen eingesetzt werden konnten. Die Messflugzeuge waren jedoch im Einsatz. Mit Hilfe der Emissionsmodellierung wurde ein NO_x-Emissionsmassenstrom von 300 ± 100 kg/h berechnet. Aus der *Source-Tracer*-Methode ergab sich ein Wert von 250 ± 60 kg/h. Das IMK berechnete aus den Flugzeugmessungen 110 ± 50 kg/h, und das IfU berechnete einen Wert von 160 ± 50 kg/h. Zwischen modellierten NO_x-Emissionen und den Ergebnissen kann man von einer guten Übereinstimmung an diesem Tag sprechen, da die Abweichungen nur gering sind. Zwischen den modellierten Werten und den Ergebnissen der Flugzeugmessungen bestehen allerdings relativ große Abweichungen. Die Unsicherheitsbereiche überlappen sich beim Vergleich der modellierten Werte mit den Ergebnissen der Flugzeugmessungen des IfU gerade

Tabelle 5.3: Gemessene und emissionsmodellierte NO_x-Emissionsmassenströme in kg/h für die Stadt Augsburg – Vergleich verschiedener Methoden für den 27.03., 10.10., 22.10. und 23.10.1998

	modelliert	**gemessen**			
	IER[1]	**ASS[2]**	**IMK[3]**	**IFU[4]**	**IFK[5]**
Zeitraum	Emissions-modellierung	*Source-Tracer*-Methode	Flugzeugmessungen		**Fesselballon/Luftschiff**
27.03.1998 (10:00-13:00 UTC)	420±150	350±120	-	-	-
10.10.1998 (10:00-13:00 UTC)	300±100	250±60	110±50	160±50	-
22.10.1998 (10:30-12:00 UTC)	450±150	240±70	300±120	380±130	**1.429****
22.10.1998 (12:00-13:30 UTC)			230±100	240±110	**1.215****
23.10.1998 (10:00-13:00 UTC)	570±160	220±50	290*	420±170	**450±230**

* NO_x-Massenbilanz wurde mit einem aus Radiosonden generierten Windfeld berechnet worden.
** Berechnung der NO_x-Massenbilanz trotz Winddrehung von Südwest nach Westsüdwest in diesem Zeitraum: Diese Werte müssen verworfen werden!

noch. Verglichen mit den Ergebnissen der Flugzeugmessungen des IMK ergab sich an diesem Tag keine Übereinstimmung mit den modellierten NO_x-Emissionen: Die Abweichungen waren zu groß, die Unsicherheitsbereiche überlappten sich an diesem Tag nicht.

Am 22.10.1998 waren alle verfügbaren Messsysteme im Einsatz. Über die Emissionsmodellierung ergab sich ein NO_x-Emissionsmassenstrom von 450 $\pm$ 150 kg/h. Der über die *Source-Tracer*-Methode bestimmte NO_x-Emissionsmassenstrom betrug 240 $\pm$ 70 kg/h, also nur etwa die Hälfte des über die Emissionsmodellierung berechneten. Die Unsicherheitsbereiche überlappten sich jedoch, so dass auch in diesem Fall von einer Übereinstimmung der Ergebnisse gesprochen werden kann. Die mit Hilfe der Flugzeugmessungen bestimmten NO_x-Emissionen wiesen nur geringe Abweichungen auf. Aufgrund der sich stark ändernden Windrichtung an diesem Tag wurden die beiden Messflüge getrennt voneinander betrachtet. Die modellierten NO_x-Emissionen und die anhand der Flugzeugmessungen bestimmten NO_x-Emissionen wiesen an diesem Tag eine Übereinstimmung auf. Die hauptsächlich auf den Luftschiff- und Fesselballonmessungen beruhenden Berechnungsergebnisse der NO_x-Emissionen zeigten mit 1.429 bzw. 1.215 kg/h ungewöhnlich hohe Werte. Der Grund lag zum Teil in der schon erwähnten Winddrehung an diesem Tag, die sich ungünstig auf die Ergebnisse auswirkte. Der Hauptgrund für die hohen Werte lag jedoch an dem im Zusammenhang mit der Beschreibung von Bild 5.16 erwähnten strähnenhaften Auftreten der NO_x-Konzentrationen in der Lee-

[1] IER - Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart
[2] ASS - Abteilung Arbeitssicherheit und Strahlenschutz, Forschungszentrum Jülich
[3] IMK - Institut für Meteorologie und Klimatologie, Forschungszentrum Karlsruhe
[4] IfU - Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe
[5] IFK - Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik, Universität Stuttgart

Bilanzfläche. Da mit den Fesselballonen und dem Luftschiff nicht die gesamte Fläche erfasst werden konnte, sondern nur ein Ausschnitt, kommt es bei verstärktem Auftreten solcher hohen Konzentrationen in der Bilanzfläche zu einer Überbewertung dieser Konzentrationen und somit zu den hohen, für den 22.10.1998 mit dieser Methode berechneten Werten. Aus diesem Grund mussten die vom IFK für diesen Tag berechneten NO_x-Emissionen verworfen werden.

Für den 23.10.1998 liegen wiederum von allen Messsystemen Ergebnisse vor. Das IMK hat für diesen Tag ebenfalls eine NO_x-Emissionsbilanzierung mit Hilfe der Flugzeugdaten durchgeführt, allerdings waren aufgrund von messtechnischen Problemen die Informationen über die Windrichtung und -geschwindigkeit so lückenhaft, dass daraus kein Windfeld berechnet werden konnte. Somit musste anhand von Radiosonden- und Fesselballondaten ein Windfeld generiert werden, das eine viel größere Unsicherheit aufweist, als ein auf Windinformationen basierendes würde, die am selben Ort und zur selben Zeit wie die Spurenstoffe gemessen wurden. Der vom IER modellierte NO_x-Emissionsmassenstrom war mit 570 ± 160 kg/h der höchste in den betrachteten Vergleichstagen. Im Vergleich dazu lagen die Ergebnisse der *Source-Tracer*-Methode mit 220 ± 50 kg/h sehr viel niedriger, so dass sich keine Übereinstimmung der Unsicherheitsbereiche ergab. Auch der vom IMK für diesen Tag berechnete NO_x-Emissionsmassenstrom lag mit 290 kg/h deutlich niedriger als der vom IER über die Emissionsmodellierung bestimmte, allerdings mit der zuvor genannten Einschränkung des hilfsweise bestimmten Windfeldes. Hingegen wurden vom IfU mit den Flugzeugmessungen und vom IFK mit Hilfe der Luftschiff- und Fesselballonmessungen mit Werten von 420 ± 170 kg/h bzw. 450 ± 230 kg/h fast identische NO_x-Emissionsmassenströme berechnet. Der Vergleich mit den modellierten Werten ergibt eine gute Übereinstimmung. Das strähnenhafte Auftreten hoher Konzentrationen im Lee, die sehr wahrscheinlich von einzelnen oder wenigen starken Punktquellen verursacht wurden, ist hauptsächlich für die Güte der IFK-Bilanzmethode verantwortlich. Im Vergleich dazu ist der Einfluss auf die Flugzeugmessungen nicht so groß, da die gesamte Breite der Abgasfahne der Stadt berücksichtigt wurde und somit einzelne Strähnen im Gesamtergebnis nicht so stark gewichtet wurden.

Generell lagen die modellierten NO_x-Emissionen höher als die auf Bilanz-Messungen beruhenden. Zudem kann festgehalten werden, dass es aufgrund der großen Unsicherheiten bei der Bestimmung der Emissionen trotz großer Abweichungen beim Vergleich zu einer Übereinstimmung der Ergebnisse kam. Die Unsicherheiten wurden sowohl für die gemessenen Emissionen als auch für die modellierten Emissionen [117] bestimmt. Die Unsicherheitsbandbreite ist sowohl für die Modellierung als auch für die unterschiedlichen Messungen relativ groß.

Ein entsprechender Vergleich der berechneten Emissionen mit den über Messungen bestimmte Emissionen für die Komponente CO wurde ebenfalls durchgeführt. Allerdings werden die Ergebnisse im Rahmen dieser Arbeit nicht diskutiert, da diese Komponente am Fesselballon und Luftschiff nicht gemessen wurde. Die Endergebnisse sind in folgender Literatur detailliert beschrieben: [151] bis [154]. In [129], [152], [154], [155] und [156] wird detailliert die Bestimmung der berechneten und gemessenen VOC-Emissionen von Augsburg und deren Vergleich behandelt.

6 Anwendungsfall 2: Bilanzierung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf einer Autobahn im Projekt BAB II

6.1 Konzeption des Projekts BAB II

Im Gegensatz zum Projekt EVA, in dem die Emissionen einer ganzen Stadt mit ihren unterschiedlichen Emissionsquellen untersucht wurden, konzentrierte man sich im Projekt BAB II auf die Bestimmung der Emissionen nur einer Emissionsquelle, der Quelle Verkehr. Bei EVA waren die Emissionsquellen (Punktquellen, Linienquellen, Flächenquellen) über ein großes Untersuchungsgebiet von ca. 130 km² verteilt, im Gegensatz dazu wurden in BAB II die Emissionen nur einer Linienquelle, nämlich die einer vierspurigen Autobahn mit einer horizontalen Ausdehnung von ca. 30 m von einem zum anderen Fahrbahnrand, bestimmt. Grundsätzlich war das Vorgehen bei der Bestimmung der Emissionen in EVA und BAB II allerdings vergleichbar, wie in Kapitel 1, Bild 1.1 beschrieben. Einerseits wurden die Emissionen messtechnisch erfasst (indirekt gemessene Emissionen), indem im Luv und Lee der Autobahn umfangreiche Messungen der Luftverunreinigungskonzentrationen und der meteorologischen Parameter durchgeführt wurden. Andererseits wurden Verkehrszählungen, Geschwindigkeitsmessungen und Kennzeichenerfassungen durchgeführt und aus den so bestimmten Aktivitäten und Emissionsfaktoren die Emissionen berechnet [124]. Die über Emissionsbilanzierungen bestimmten Emissionen wurden dann analog zum Projekt EVA mit den modellierten Emissionen verglichen.

Die Messungen im Projekt BAB II fanden vom 1. bis 25. Mai 2001 an der Autobahn A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim statt, ungefähr 1,5 km vom Autobahnkreuz Heidelberg entfernt (Bild 6.1). Entsprechend der nordöstlich-südwestlichen Orientierung des Oberrheingrabens in diesem Bereich und der daraus resultierenden Kanalisierung der Windströmungen, herrschen im Bereich des Messfeldes (Bild 6.1, roter Kasten) in den Luftschichten bis einige hundert Meter über Grund nordöstliche bzw. südwestliche Windrichtungen vor. Die Autobahn A 656 verläuft in diesem Bereich mit nordwestlich-südöstlicher Orientierung (135° <-> 315°). Somit ist in der Umgebung des Messfelds verstärkt mit Windrichtungen senkrecht zur Autobahn zu rechnen. Eine autobahnsenkrechte Anströmung ist eine der Hauptvoraussetzungen für die Durchführung eines Bilanzexperiments. Die Autobahn verläuft in diesem Bereich in absolut ebenem Gelände auf einem ca. 1 m erhöhten, grasbewachsenen Fahrdamm. Die Luftströmungen werden im nahen Umfeld weder durch Bewuchs noch durch Bebauung oder Änderungen in der Topografie beeinflusst oder kanalisiert. In der näheren und weiteren Umgebung befinden sich ausschließlich landwirtschaftlich genutzte Flächen, wie Wiesen und Weizenfelder. Südlich und westlich des Messfelds befinden sich Felder, die anfänglich brach lagen und im Laufe der Messphase bewirtschaftet wurden. Die einzigen größeren Hindernisse in der weiteren Umgebung des Messfelds mit möglichen Auswirkungen auf die Luftströmungen stellen die beiden Autobahnbrücken (Bild 6.2) in ca. 400 bzw. 700 m Abstand zu den Messstationen sowie die sechs, in ca. 500 m Entfernung befindlichen, maximal zweigeschossigen Wohnhäuser und Stallungen eines Aussiedlerhofs dar.

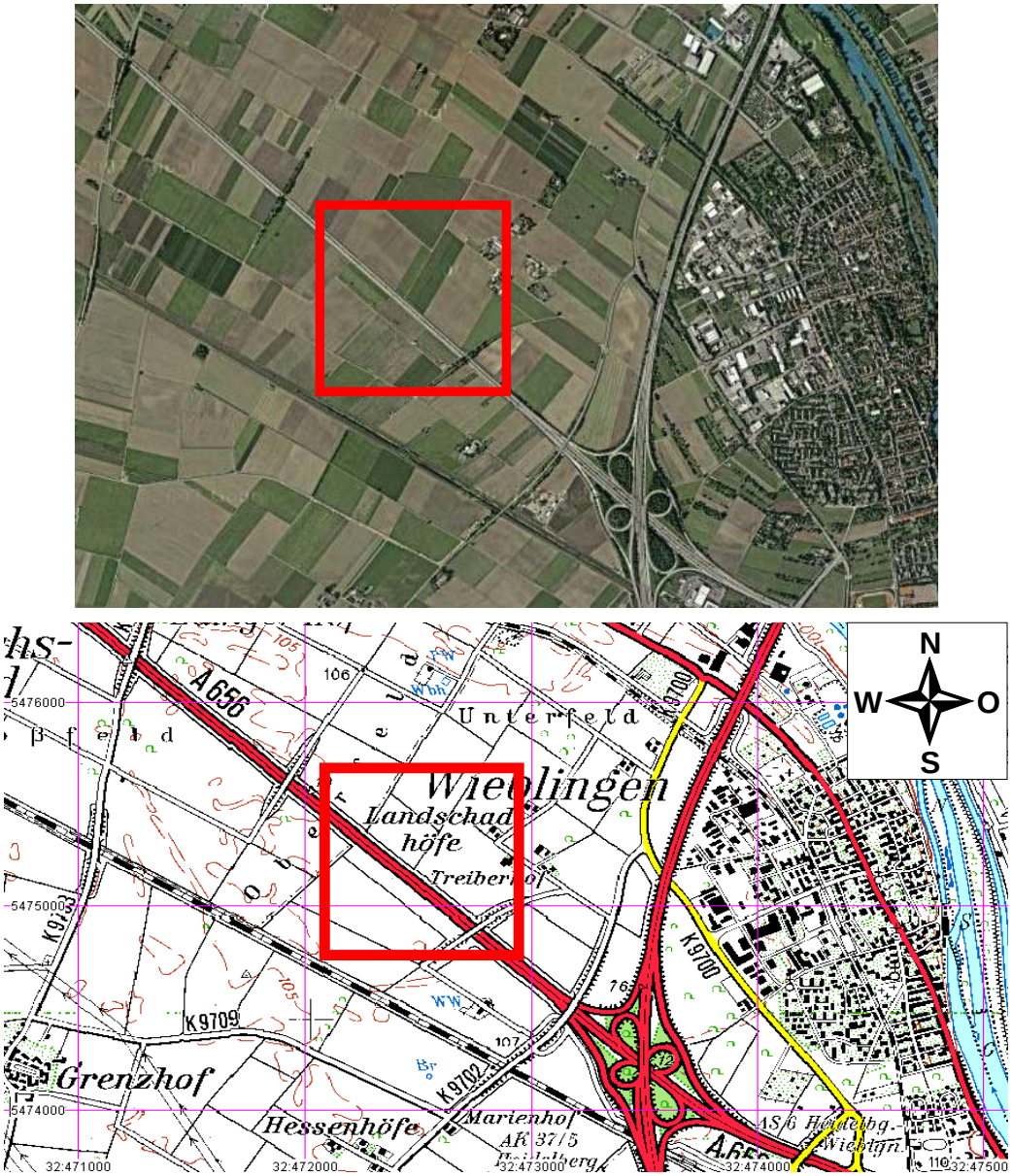


Bild 6.1: Lage des Messfelds (roter Rahmen) an der Autobahn A 656 unweit des Autobahnkreuzes Heidelberg (A 6 / A 656)

6.1.1 Eingesetzte Messsysteme und beteiligte Gruppen

Die horizontale Anordnung der Messeinrichtungen ist in Bild 6.2 dargestellt. Die einzelnen Messpunkte sind in einer Linie senkrecht zur Autobahn in unterschiedlichen Abständen angeordnet, wobei der nördliche und der südliche Teil der Messlinie aus organisatorischen Gründen um ca. 140 m verschoben werden musste. Das Kernstück der Messanordnung stellen die beiden 52 m hohen Messtürme (blaue Kästchen) dar, an denen die Vertikalverteilungen der Luftverunreinigungen nördlich und südlich der Autobahn kontinuierlich über den gesamten Messzeitraum mit Hilfe von Messgasansaugungen gemessen wurden. Zusätzlich wurden während der Intensivmessphasen Vertikalprofile mit Hilfe von Aufzugmessungen aufgenommen

(Details dazu in Kapitel 4.4.3). Außerdem wurden an den Messtürmen in sieben unterschiedlichen Höhen kontinuierlich meteorologische Parameter (M1 - M7, M8 - M14) gemessen. Während der Intensivmessphasen wurden VOCs in fünf unterschiedlichen Höhen im Lee und in drei Höhen im Luv gemessen. Die Bodenmessstationen (rote Kästchen), die in Abständen von 3 bis 84 m zu den Fahrbahnen der Autobahn stationiert wurden, erfassten kontinuierlich die zeitliche Änderung der Luftverunreinigungskonzentrationen. An den mit einem T markierten Stellen in Bild 6.2 wurden Turbulenzmessungen kontinuierlich durchgeführt, u. a. in drei Höhen (T5 – T7) am Nordturm. Sodarmessungen (M15) lieferten kontinuierliche Werte (15-Minutenmittelwerte) der Windrichtung und Windgeschwindigkeit im Höhenbereich von 40 bis 400 m in 212 m Entfernung von der Autobahn. Details zu den Messgeräten sind in der Tabelle im Anhang 5 zu finden sowie Details zu ihren Einsatzorten in Anhang 12a bis 12d. Der Einsatz von so viel Messtechnik, die von zehn Messteams unterschiedlicher Forschungseinrichtungen betrieben wurde, ermöglichte es, die zeitliche Änderung der Vertikalverteilung der Messgrößen auf beiden Seiten der Autobahn bis in eine Höhe von 52 m über Grund zu bestimmen. Zudem wurde auch die zeitliche Änderung der Horizontalverteilung der Messgrößen im Luv und Lee senkrecht zur Autobahn an den Bodenmessstationen gemessen. Die Verkehrszählungen, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsmessungen der Fahrzeuge auf der Autobahn, welche zur Berechnung der Emissionen der Autobahn benötigt wurden, wurden von den beiden Autobahnbrücken (Brücke 1 und 2) nördlich und südlich des Messfelds aus durchgeführt.

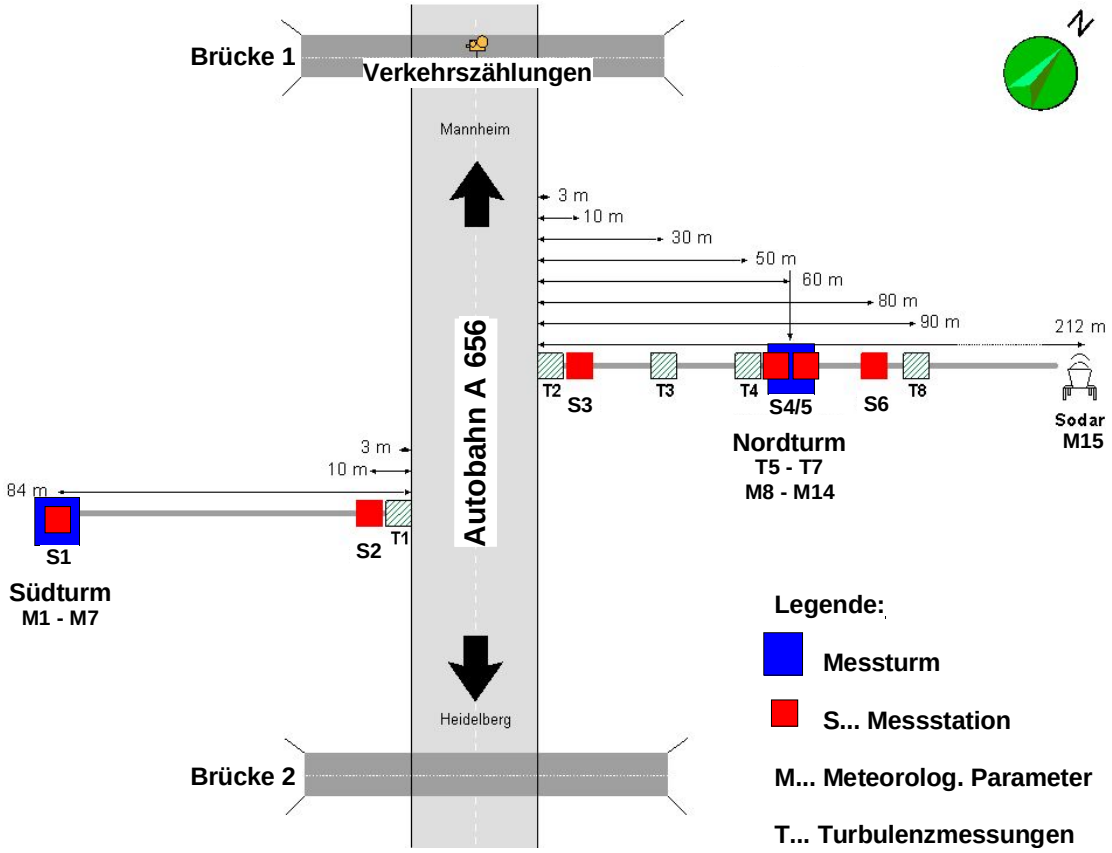


Bild 6.2: Skizze der horizontalen Verteilung der Messsysteme im BAB II-Messfeld zwischen zwei Autobahnbrücken (ca. 1.100 m Distanz) an der Autobahn A 656 in ca. 1.500 m Entfernung zum Autobahnkreuz Heidelberg (A 6)

6.1.2 Qualitätssicherung im Rahmen von BAB II

Die gesamte Durchführung und Auswertung der umfangreichen Qualitätssicherungsmaßnahmen im Projekt BAB II lagen in der Hand des IFK. In diesem Kapitel soll nur kurz auf die wichtigsten Schritte und Ergebnisse der Qualitätssicherung eingegangen werden, eine ausführliche Beschreibung der Maßnahmen ist in Anhang 13 und in [145] zu finden.

Im Gegensatz zum Qualitätssicherungsprogramm des Projekts EVA, das in drei Stufen ablief, wurde das Programm im Projekt BAB II auf zwei Stufen angelegt:

- **Stufe I:** Ringversuche mit Kalibrierstandards des Qualitätssicherungsteams
- **Stufe II:** Außenluftvergleichsmessungen

Alle Messstationen bzw. -steme wurden mehrmals an einen Ort zusammengezogen und die Geräte über einen Zeitraum von mehreren Tagen wie im realen Messeinsatz betrieben, d. h. mit derselben Gasansaugung und Datenerfassung und denselben Kalibrierprozeduren wie im regelmäßigen Einsatz während der Messkampagnen. Anschließend kamen die zwei Stufen des Qualitätssicherungsprogramms zur Anwendung:

In Stufe I kalibrierten die Betreiber ihre Geräte entsprechend ihren üblichen Kalibrierprozeduren und mussten dann Kalibrierstandards für ihnen unbekannte Konzentrationen analysieren, die vom Qualitätssicherungsteam zur Verfügung gestellt wurden. Diese Maßnahme diente der Ermittlung und Eliminierung systematischer Abweichungen der Messergebnisse, die dadurch entstanden, dass die Gerätebetreiber die Konzentrationen der Prüfgase, die sie zur regelmäßigen Kalibrierung der Messgeräte verwendeten, nicht exakt kannten. Aus diesen und weiteren Prüfgasaufgaben wurde über eine Korrelationsrechnung für jedes eingesetzte Messgerät eine Korrekturgleichung (Korrekturgleichung I) erstellt. Teilweise konnten systematische Abweichungen durch die Anwendung dieser Korrekturgleichungen reduziert oder gar eliminiert werden. Allerdings blieben für die meisten Geräte systematische Abweichungen erhalten. Diese mussten durch die Anwendung der Stufe II des Qualitätssicherungsprogramms, dem Außenluftvergleich, minimiert werden.

Dazu wurden über einen Zeitraum von einem bis mehrere Tage Immissionsmessungen aller Messgeräte durchgeführt, die an einem Ort zusammengezogen wurden. Aus den Ergebnissen der Außenluftvergleichsmessungen wurden wiederum Korrekturgleichungen berechnet, die den Gerätebetreibern mitgeteilt und auf alle im Projekt BAB II gewonnenen Messergebnisse angewendet wurden. Auf diese Weise konnten die systematischen Abweichungen gänzlich eliminiert werden, erhalten blieben jedoch zufällige Schwankungen, also Abweichungen der Messgeräte vom "richtigen Wert". Diese Schwankungen sind ursächlich für die Messunsicherheit. Die Kenntnis von der Messunsicherheit ist für die Massenbilanzierung sehr wichtig, da die im Luv und Lee des Bilanzraums gemessenen Konzentrationsdifferenzen sehr viel größer sein müssen als die Messunsicherheit. Für die Berechnung der Messunsicherheit für alle Komponenten kam die Richtlinie DIN ISO 13752 zur Anwendung [157]. Detailergebnisse sind in Anhang 13 zu finden.

In Bild 6.3 sind beispielhaft für den NO_x-Kanal der NO/NO_x-Messgeräte erneut die Ergebnisse der Außenluftvergleichsmessungen dargestellt, vor und nachdem die wichtigsten Einzel-

schritte des Qualitätssicherungsprogramms auf die Daten angewendet wurden. Es handelt sich um x-y-Diagramme, wobei die Messwerte (1-Stundenmittelwerte) der einzelnen Messgeräte auf der Abszisse in Abhängigkeit von den Referenzwerten (Mittelwert aus allen Messgeräten) aufgetragen sind. In Bild 6.3a sind die Rohdaten dargestellt, wobei die Kalibrierungen der Gerätebetreiber schon eingearbeitet sind. Die unterschiedlichen Steigungen der eingezeichneten Kalibriergeraden zeigen an, dass systematische Abweichungen der einzelnen Geräte unterein-

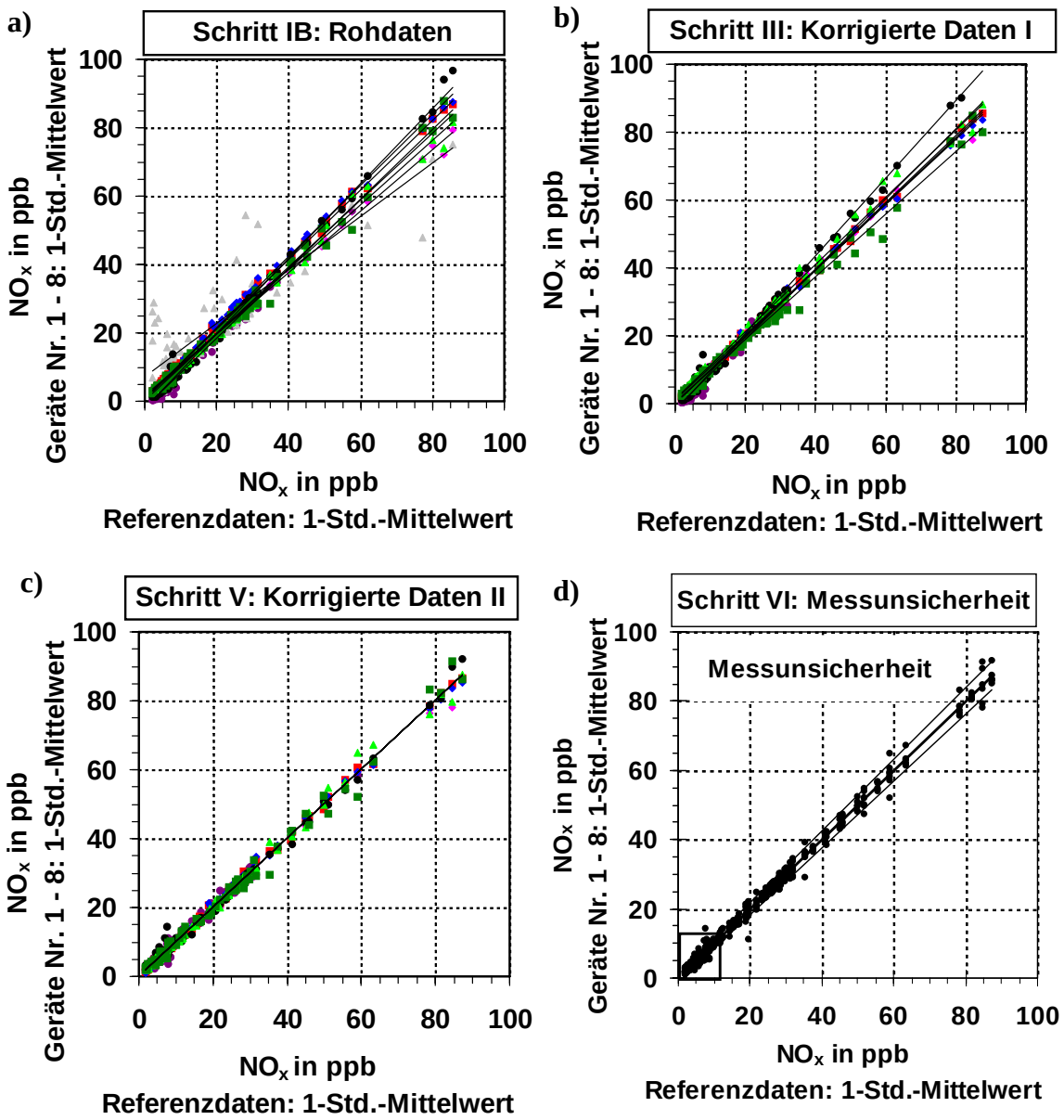


Bild 6.3: Außenluftvergleich aller NO/NO_x-Messgeräte – 1-Stundenmittelwerte vom 25. bis 29.5.2001 an der Autobahn A 656 bei Heidelberg

a) Rohdaten
b) Korrigierte Daten I – Nach Anwendung der Korrekturgleichung I aus Prüfgasaufgaben
c) Korrigierte Daten II – Nach Anwendung der Korrekturgleichung II aus Außenluftvergleichen
d) Verbleibende Messunsicherheit

ander in größerem Maße vorhanden waren. Die Daten in Bild 6.3b wurden durch Anwendung der zuvor beschriebenen Korrekturgleichungen I auf die Rohdaten von Bild 6.3a gewonnen. Die Abweichungen der korrigierten Werte der einzelnen Messeräte von den Referenzdaten konnten somit schon deutlich reduziert werden. Die Steigungen der Kalibriergeraden haben sich im Vergleich zu Bild 6.3a einander angenähert. Das Ergebnis der Anwendung der Korrekturgleichungen II auf die Datensätze ist Bild 6.3c. Die systematischen Abweichungen der Messwerte der Einzelgeräte konnten vollständig beseitigt werden. Dies ist deutlich anhand der identischen Kalibriergeraden für alle Messgeräte zu erkennen. Trotzdem blieb eine zufällige Messunsicherheit vorhanden, die rechnerisch bestimmt und in Bild 6.3 bildlich dargestellt wurde. Die Messunsicherheit nimmt mit zunehmenden Konzentrationen ebenfalls zu.
Für Gase und Partikel (Massenkonzentration), außer für VOCs, lagen die berechneten Messunsicherheiten auch für höhere Konzentrationen im Bereich von 3 bis 10 % und damit weit niedriger als die gemessenen Differenzen zwischen Luv und Lee. Die VOCs wiesen höhere Unsicherheiten von 10 bis maximal 45 % auf. Bei einigen VOC-Komponenten lag die Messunsicherheit im Bereich der gemessenen Differenzen zwischen Luv und Lee, was zu sehr unsicheren Bilanzierungsergebnissen führte. Einige Partikelmessungen (Anzahlkonzentration) wiesen noch größere Messunsicherheiten auf, wobei die während der Messkampagne aufgetretenen Konzentrationen im Lee der Autobahn oftmals um den Faktor 2 bis 3 höher lagen als die Luv-Konzentrationen, wodurch die hohen Messunsicherheiten auch in diesem Fall nicht so sehr ins Gewicht fielen [158], [159].

6.2 Anwendung der Bilanzmethode auf die BAB II-Daten

6.2.1 Beschreibung der Methode

Die Vertikalverteilung der Windgeschwindigkeit, der Windrichtung und der betrachteten Luftverunreinigungskomponenten bilden die Eingangsgrößen für eine Bilanzierung der Emissionen. In Bild 6.4 sind schematisch die Vertikalprofilmessungen dargestellt, die schließlich in der Bilanzierung der vom Verkehr auf der Autobahn freigesetzten Emissionen münden. Kernstück des Messaufbaus sind die beiden 52 m hohen Messtürme, die im Abstand von 60 bzw. 84 m vom Fahrbahnrand aufgebaut wurden. In Kapitel 4 wurden die Messtechnik und die Vorgehensweise bei der Aufnahme der Vertikalprofile detailliert beschrieben.

Bild 6.4 zeigt ein typisches Windgeschwindigkeitsprofil und je ein typisches NO_x-Vertikalprofil (1-Stundenmittelwert) im Luv und Lee der Autobahn. Die ankommenden Luftmassen wurden am Südturm (Luv) vertikal vermessen. Im dargestellten Beispiel wurden sie senkrecht zur Autobahn von links mit einer Windgeschwindigkeit zwischen 0 und 4 m/s antransportiert und besaßen eine über die Höhe annähernd konstante NO_x-Konzentration von 20 ppb. Dann zogen die Luftmassen über die Autobahn hinweg, nahmen dabei die vom Autobahnverkehr freigesetzten Emissionen auf und wurden am Nordturm (Lee) abermals vertikal vermessen. Die NO_x-Konzentration in Bodennähe stieg durch die aufgenommenen Emissionen der Autobahn auf ca. 40 ppb an, nahm mit zunehmender Höhe ab und erreichte in 40 m Höhe wieder die Hintergrundkonzentration von ca. 20 ppb, die auch im Luv gemessen wurde.

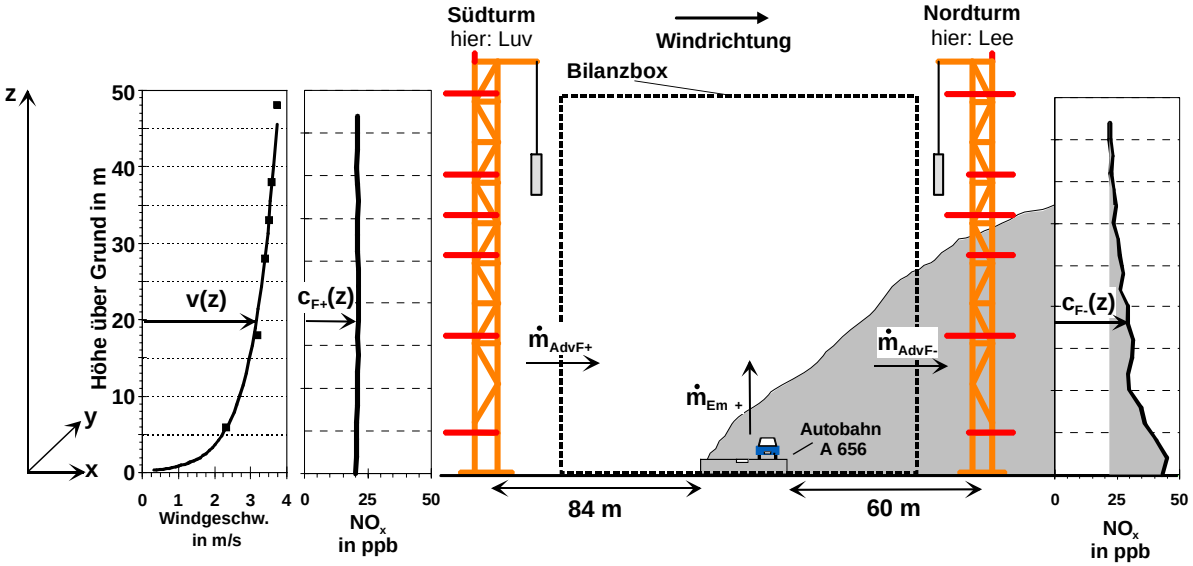


Bild 6.4: Schematische Darstellung der Vertikalprofilmessungen im Projekt BAB II an der Autobahn A 656, zwei Messtürme im Abstand von 60 bzw. 84 m vom Fahrbahnrand; NO_x-Vertikalprofile im Luv und Lee; Vertikalprofil der Windgeschwindigkeit

Zur Verdeutlichung wurde im Lee-Profil der Anteil der von den Autobahnemissionen herrührenden NO_x-Konzentrationen grau eingefärbt.

Wie aus Bild 6.4 ersichtlich, wurde über die Autobahnfahrbahnen bis zu den Messtürmen eine Bilanzbox gelegt und die relevanten Massenströme eingezeichnet, welche die Bilanzgrenzen durchschritten. Für das dargestellte Beispiel bedeutet $\dot{m}_{AdvF+}$ den im Luv antransportierten NO_x-Massenstrom, $\dot{m}_{AdvF-}$ den im Lee die Bilanzbox verlassenden NO_x-Massenstrom und $\dot{m}_{Em+}$ die von der Autobahn freigesetzten NO_x-Emissionen.

In Kapitel 4.3 wurde die allgemeine Massenbilanzgleichung (Gleichung 4.4) aufgestellt. Allerdings können für das Projekt BAB II noch Vereinfachungen vorgenommen werden. Der in Gleichung 4.4 angenommene dreidimensionale Fall lässt sich aus folgenden Gründen auf einen zweidimensionalen Fall reduzieren: Wie oben erwähnt, verläuft die Autobahn in völlig ebenem Gelände (Straßenneigung < 0,1 %), es befinden sich keine Autobahnanschlussstellen oder Autobahnkreuze in unmittelbarer Nähe und zudem ist die Geschwindigkeit auf diesem Autobahnabschnitt auf 120 km/h begrenzt, d. h. es wird zu keinen nennenswerten Verzögerungs- und Beschleunigungsvorgängen der Fahrzeuge und somit zu keinen Gradienten der Fahrzeugemissionen entlang der Autobahn kommen. Dadurch kann die Autobahn als eine "unendliche" Linienquelle mit konstanten Emissionen betrachtet werden, wodurch das Integral in y-Richtung in Gleichung 4.4 entfallen kann. Die relativ konstanten Fahrgeschwindigkeiten auf diesem Streckenabschnitt wurden übrigens mit Hilfe von Verzögerungs- bzw. Beschleunigungsmessungen im Rahmen von BAB II verifiziert [124]. Aufgrund des fast ebenen Geländes im Umfeld des Messfelds und des Fehlens von größeren Hindernissen, die das Strömungsfeld auf dem Messfeld beeinflussen könnten, können die Vertikalprofile der Windge-

schwindigkeit und der -richtung an der Luv- bzw. Lee-Bilanzfläche als gleich angenommen werden. So vereinfacht sich Gleichung 4.4 zu Gleichung 6.1.

$$\dot{m}_{Em+} = L * \int_0^H v_{\perp(z)} * (c_{AdvF-}(z) - c_{AdvF+}(z)) * dz \qquad (6.1)$$

Üblicherweise werden Verkehrsemissionen nicht als Emissionsmassenstrom, sondern als Quellstärke angegeben. Die Quellstärke Q stellt den Emissionsmassenstrom $\dot{m}_{Em+}$ pro 1 km Autobahnlänge dar und wird in der Einheit kg/(km*h) angegeben. Somit gilt unter den oben und in Kapitel 4.2 getroffenen Annahmen die vereinfachte Gleichung 6.2 für die Berechnungen der Quellstärke der Autobahn für alle betrachteten Komponenten:

$$Q = \frac{\dot{m}_{Em+}}{L} = \int_0^H v_{\perp(z)} * (c_{AdvF-}(z) - c_{AdvF+}(z)) * dz \qquad (6.2)$$

Unter der Voraussetzung der Erfüllung der folgenden, für eine Bilanzierung der Emissionen des Autobahnverkehrs günstigen Bedingungen wurden Messdaten für eine Bilanzierung verwendet:

- Wind aus den beiden Sektoren 0° - 90° oder 180° - 270°, d. h. in einem Winkel von $\pm$ 45° senkrecht zur Autobahn
- CO-Konzentrationsdifferenzen Lee-Luv > 20 ppb
- NO_x-Konzentrationsdifferenzen Lee-Luv > 5 ppb
- Verkehrsdichte > 1000 Fahrzeuge/Stunde
- Mindestintervalllänge: mindestens drei zusammenhängende Stunden mit geeigneten Bedingungen
- keine Nachtstunden, nur Perioden zwischen 6:00 und 20:00 MESZ, da dann einerseits die Verkehrsstärke gering ist und andererseits oftmals geringe Windgeschwindigkeiten mit ungünstigen Luv-Lee-Bedingungen herrschen

6.2.2 Vertikalprofile und Isoplethendiagramme

Über den gesamten Messzeitraum vom 1. bis 25.5.2001 wurden kontinuierlich CO- und NO_x-Vertikalprofile mit Hilfe einer ausgeklügelten Messgasansaugung und -umschaltung gemessen. Wurden aufgrund der Wettervorhersage optimale Bedingungen für die Durchführung einer Bilanzierung erwartet, so wurden Intensivmessungen durchgeführt, sogenannte SOPs (*Special Observation Periods*), an denen zusätzliche Messtechnik zum Einsatz kam, die für einen Dauereinsatz nicht geeignet oder zu aufwändig gewesen wäre. Im Laufe der gesamten Messperiode wurden insgesamt 7 SOPs durchgeführt. Eine Liste der SOPs ist in Anhang 14 enthalten. In Anhang 15 sind die Perioden verzeichnet, die sich nach Auswertung der Daten als geeignet für Bilanzbetrachtungen herausstellten. Anhand der beiden Listen ist zu erkennen, dass sich im Nachhinein mehr Perioden mit günstigen Bedingungen für eine Bilanzierung ergeben hätten, als SOPs aufgerufen wurden. U. a. wurden an den SOPs zusätzliche Vertikalprofile verschiedener Gase und Partikel gemessen, deren Messgeräte in Aufzugkörben

untergebracht waren, die über Seilwinden an den Messtürmen hochgezogen und abgelassen wurden. Meteorologische Parameter und VOCs wurden an den Messtürmen gleichzeitig in verschiedenen Höhen gemessen. Details zur Funktionsweise der beiden Messeinrichtungen zur Vertikalprofilmessung (Aufzugmessungen und Messgasumschaltung) finden sich in Kapitel 4.4.3.

In Bild 6.5 sind typische Vertikalprofile aufgetragen, die bei autobahnsenkrechter Anströmung während der gesamten Messphase auftraten. Es handelt sich um Ergebnisse der Aufzugmessungen vom 14.5.2001, einem Intensivmesstag mit günstigen Bedingungen für eine Bilanzierung, an dem die gesamte verfügbare Messtechnik im Einsatz war. Die Diagramme in Bild 6.5a stammen von einer einzigen Aufzugfahrt (nur Aufstieg), die um 8:07 MESZ gestartet wurde und 5 Minuten später, um 8:12 MESZ abgeschlossen war. Auf der Abszisse ist die Höhe aufgetragen, die von 5 m (Startpunkt des Aufzugs auf dem Sockel des Messturms) bis 50 m über Grund reicht (Maximalhöhe). Dargestellt sind die Vertikalprofile für NO, NO_2, O_3, CO_2 und die aktive Partikeloberfläche (gemessen mit einem *Diffusion Charger* – DC genannt – in $\mu m^2/cm^3$). Die im Luv am Südturm (graue Linien) analysierten Luftmassen strömten über die Autobahn hinweg, beluden sich dort mit den Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs, verdünnten sich horizontal und vertikal mehr oder weniger, abhängig von Sonneneinstrahlung, induzierter Turbulenz und Reibungsturbulenz, und wurden am Lee-Standort am Nordturm (schwarze Linien) abermals analysiert. Die im Luv ankommenden Luftmassen wiesen über die gesamte Messhöhe konstante Konzentrationen auf, im Gegensatz zu den Werten im Lee, die vertikale Gradienten aufwiesen und grundsätzlich höher lagen als die Konzentrationen im Luv. In den NO_2-, CO_2- und Partikelprofilen ist sehr deutlich die Abluftfahne der Autobahn zu erkennen. Sie war in diesem Fall zweigeteilt, d. h. die Konzentrationen erreichten in 7 m über Grund ein erstes Maximum, gingen dann etwas zurück und erreichten in 25 m ein zweites, etwas kleineres Maximum, gingen dann wieder zurück, um in 35 m Höhe die Luv- bzw. Hintergrundkonzentrationen zu erreichen. Die vertikale Ausdehnung der Abgasfahne der Autobahn reichte in diesem Fall vom Boden bis in 35 m Höhe. Die NO- und O_3-Profile zeigen einen etwas anderen Verlauf. Zum einen sind die Maxima (bzw. Minima für Ozon -> Ozonabbau durch NO-Titration) der Konzentrationen im Vergleich zu den zuvor beschriebenen Profilen vertikal versetzt, zum anderen weisen die Profile dieser Komponenten einen etwas "eckigen" Verlauf auf. Anhand dieser Profile wird schon eine Voraussetzung für den Einsatz von Messgeräten im Nahbereich einer Autobahn deutlich. Im Gegensatz zu den sehr schnell reagierenden Messgeräten für NO_2 (Messprinzip: Flüssigchemilumineszenz mit Luminol), CO_2 (NDIR-Fotometrie) und Partikel (Auf- und Entladung der Partikel), standen für die Messung von NO (Chemilumineszenz mit O_3) und O_3 (UV-Fotometer) nur Geräte zur Verfügung, die die Messwerte mit Verzögerung anzeigten. Allerdings konnten die NO-Messwerte sehr gut durch Korrelationsrechnungen mit NO_2 korrigiert werden, indem eine Höhenkorrektur durchgeführt und die Profile vertikal angepasst wurden. Es ergab sich eine Anzeigeverzögerung der NO- zu den NO_2-Werten von 27 Sekunden. In dieser Zeit bewegte sich der Aufzug um 8 m. Durch eine Verschiebung der NO-Profile um 8 m erhielt das NO-Profil dieselbe Vertikalstruktur wie das verzögerungsfrei angezeigte NO_2-Profil. Aus den so korrigierten NO-Profilen wurden durch Addition mit den NO_2-Profilen die für die weitere Auswertung

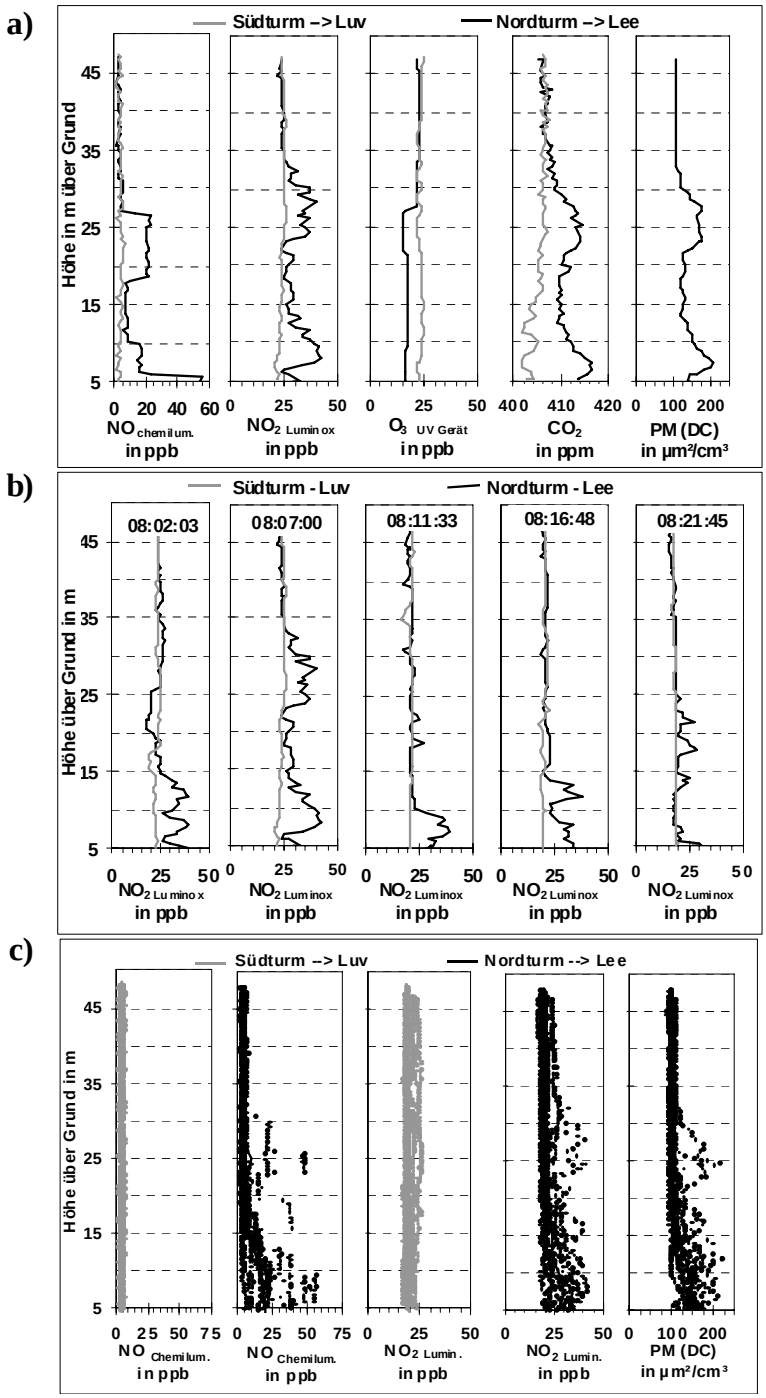


Bild 6.5: a) Vertikalprofile für NO, NO_2, O_3, CO_2 und die aktive Partikeloberfläche PM (DC - *Diffusion Charger*) einer Einzelsondierung an den Aufzügen; Luv-Werte: graue Linien, Lee-Werte: schwarze Linien; Messdauer: von 8:07 bis 8:12 MESZ am 14.5.2001

b) Fünf aufeinanderfolgende NO_2-Vertikalprofile von 08:02 bis 08:21 MESZ am 14.5.2001; Südturm -> Luv (graue Linien), Nordturm -> Lee (schwarze Linien)

c) 1-Stundenmittelwert (8:00 bis 9:00 MESZ am 14.5.2001) bestehend aus 12 Vertikalprofilen in Folge für NO, NO_2 und die aktive Partikeloberfläche PM (DC); Luv-Werte: graue Linien (Mittelwerte) und Punkte (Einzelwerte), Lee-Werte: schwarze Linien (Mittelwerte) und Punkte (Einzelwerte)

notwendigen NO_x-Profile generiert. Die NO-Höhenkorrektur war allerdings nur für die Lee-Konzentrationsprofile notwendig, da die Profile im Luv stets ohne vertikalen Gradienten vorlagen und meist nur sehr geringe NO-Konzentrationen enthielten, was darauf hindeutet, dass NO-Emissionsquellen nur in sehr großer Entfernung vorhanden waren.

Die dargestellten Lee-Profile waren dahingehend typisch, dass die vertikale Ausdehnung der Abgasfahne durch die 52 m hohen Messtürme immer erfasst wurde. Es lagen oftmals Profile mit mehreren Maxima vor. Am oberen Ende der Lee-Profile lagen allerdings immer Luv-Konzentrationen vor. Oftmals erreichte die Abgasfahne jedoch nur sehr geringe Höhen von < 15 - 20 m, was Probleme bei der Bilanzierung verursachte, besonders bei der Bilanzierung der VOCs, worauf später eingegangen wird.

In Bild 6.5b sind fünf aufeinanderfolgende NO_2-Vertikalprofile dargestellt, die am 14.5.2001 von 8:02 bis 8:21 MESZ an den beiden Messtürmen aufgenommen wurden. Luv-Konzentrationen sind in grauer, Lee-Konzentrationen in schwarzer Farbe dargestellt. Diese Diagramme sollen verdeutlichen, welch starker Variabilität die Vertikalprofile im Lee unterworfen waren. Die Abgasfahne der Autobahn war sehr inhomogen, wogegen die Luv-Profile im betrachteten Zeitraum nur sehr geringe vertikale Gradienten aufwiesen und kaum zeitlichen Variabilitäten unterworfen waren. Obwohl die Vertikalsondierungen an den beiden Türmen immer gleichzeitig gestartet wurden, wurde aufgrund der festgestellten inhomogenen Vertikalverteilung der Lee-Konzentrationen von einer weiteren Auswertung einzelner Profile abgesehen.

In den Diagrammen in Bild 6.5c sind jeweils 12 Einzelprofile von je 5 Minuten Dauer und die daraus berechneten mittleren stündlichen Vertikalprofile dargestellt. Die Diagramme wurden für die Komponenten NO und NO_2 sowohl im Luv (graue Punkte und Linien) als auch im Lee (schwarze Punkte und Linien) und für die aktive Partikeloberfläche nur im Lee erstellt. Die Einzelprofile wurden als graue und schwarze Punkte dargestellt, die gemittelten stündlichen Vertikalprofile als graue und schwarze Linien. Der Mittelungszeitraum beträgt eine Stunde, von 8:00 bis 9:00 MESZ am 14.5.2001.

Wie schon bei den zuvor beschriebenen Profilen zu sehen war, schwankten die NO-Werte im Luv nur sehr geringfügig um niedrige Konzentrationen. Im Lee dagegen traten bodennah (5 - 10 m über Grund) starke Schwankungen zwischen 5 und 55 ppb auf. Bis in Höhen von 30 m traten erhöhte Konzentrationen auf. In noch größeren Höhen wurden die Luv-Konzentrationen gemessen. Die NO_2-Konzentrationen im Luv waren vertikal ebenfalls relativ gleichmäßig verteilt, wobei sich das Konzentrationsniveau im Laufe der dargestellten Stunde von 18 auf 23 ppb erhöht hatte. Die NO_2- und Partikelprofile im Lee glichen dem NO-Profil in ihrer Struktur, die höchsten Konzentrationen und die größten Schwankungsbreiten traten bodennah auf. Mit der Höhe nahmen die mittleren Konzentrationen ab, und ab 30 m über Grund wurden Luv-Konzentrationen gemessen.

In Bild 6.6 sind Messergebnisse vom 14.5.2001 als 1-Stundenmittelwerte dargestellt, die an den beiden Messtürmen in der Zeit von 7:00 bis 8:00 MESZ durch Boden- und Aufzugmessungen entstanden. Die Vertikalprofile basieren auf jeweils 12 Einzelprofilen. Die Vertikalprofile der Aufzugfahrten am Südturm (Luv) sind in Grau dargestellt, die am Nordturm (Lee)

aufgenommenen Profile in Schwarz. Die Profile der Turmmessungen, die durch die Messgasansaugung in unterschiedlichen Höhen entstanden sind, bestehen aus jeweils zwei Einzelprofilen und sind in blauer (Südturm: Luv) bzw. roter Farbe (Nordturm: Lee) dargestellt. Die Messergebnisse der Bodenmessstationen, ebenfalls 1-Stundenmittelwerte, sind als verschie-

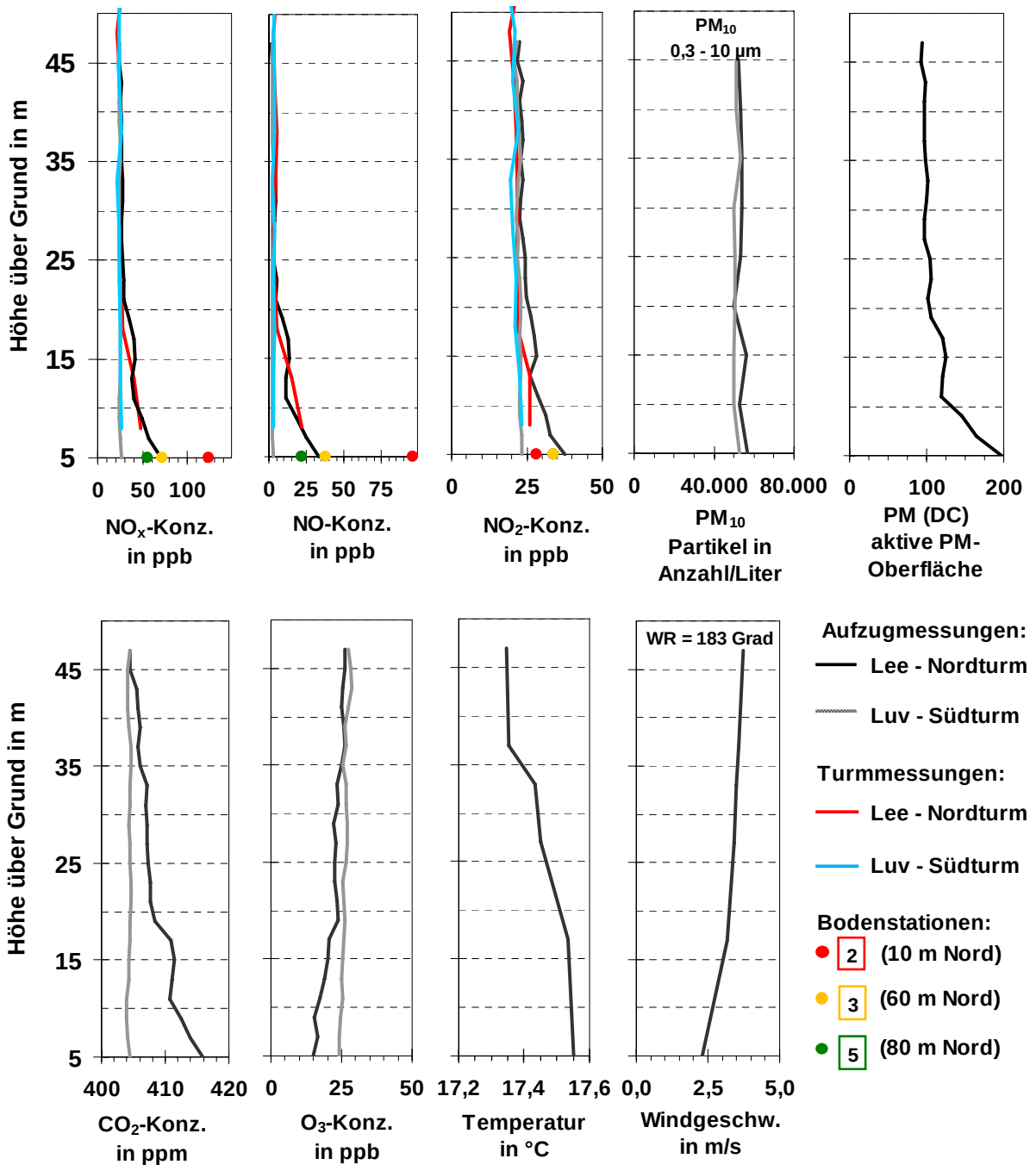


Bild 6.6: Vertikalprofile der Aufzugmessungen (schwarze und graue Linien) und Turmmessungen (rote und blaue Linien), dargestellt als 1-Stundenmittelwerte am 14.5.2001 von 7:00 bis 8:00 MESZ für die Komponenten NO_x, NO, NO_2, PM_{10}-Anzahlkonzentration, PM (DC – aktive Partikeloberfläche), CO_2, O_3, Temperatur und Windgeschwindigkeit; Konzentrationen an den Bodenmessstationen nördlich der Autobahn in 10 m (rote Punkte), 60 m (orange Punkte) und 80 m (grüne Punkte) Entfernung von der Fahrbahn

denfarbige Punkte in den Vertikalprofilen wiedergegeben. Die Abgasfahne der Autobahn ist in allen Profilen deutlich zu erkennen. Eine Ausnahme bilden die als Anzahlkonzentration (Anzahl von Partikel/Liter) gemessenen PM_{10}-Konzentrationen. Die Lee-Konzentrationen sind zwar auch höher als die Luv-Konzentrationen, jedoch ist die Differenz äußerst gering. Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, dass die eingesetzten Streulichtfotometer als minimalen Partikelgrößenbereich 0,3 µm erfassen können. Es werden aber viele kleine Rußpartikel emittiert, hauptsächlich von den Dieselfahrzeugen des Autobahnverkehrs, die ein Größenspektrum von 0,05 bis 0,3 µm aufweisen und mit den eingesetzten Streulichtfotometern nur zu einem sehr geringen Teil erfasst, also nicht gemessen werden können. Die Auswertung der Messergebnisse von ebenfalls im Luv und Lee der Autobahn eingesetzten ß-Staubmetern mit vorgeschalteten PM_{10}- bzw. PM_1-Vorabscheidern ergab ein ähnliches unvollständiges Resultat. Deshalb wurden keine weiteren Auswertungen bzw. PM_{10}-Bilanzierungen basierend auf Streulichtfotometer- bzw. ß-Staubmetermessungen vorgenommen [158]. Im Gegensatz dazu ist die Abgasfahne anhand der PM-Messungen, die mit dem *Diffusion Charger* (DC) durchgeführt wurden, eindeutig erkennbar.

Der Vergleich der gleichzeitig durchgeführten Aufzugmessungen und der Turmansaugung ergibt für NO und NO_x fast identische Profile. Die Lee-Konzentrationen sind bis in eine Höhe von 20 m erhöht, darüber entsprechen Luv- und Lee-Konzentrationen einander. Die Ergebnisse der Bodenmessstationen passen sich ebenfalls sehr gut ein. Die höchsten NO_x- und NO-Konzentrationen wurden im Lee direkt am Autobahnrand (roter Punkt: 10 m) gemessen. An der nächsten Bodenmessstation im Lee (oranger Punkt: 60 m), direkt am Fuße des Nordturms, wurden genau die gleichen Konzentrationen gemessen wie in der untersten Höhe mit dem Aufzug am Nordturm. Die niedrigsten Lee-Konzentrationen wurden in 80 m Entfernung (grüner Punkt) von der Autobahn gemessen.

In Bild 6.7a bis 6.7c sind zusammenfassende NO_x-Isoplethendiagramme für den Intensivmesstag 14.5.2001 dargestellt. Weitere Isoplethendiagramme für die übrigen Messgrößen sind in Anhang 16a bis 16g zu finden. Die weißen Flächen (10:00 bis 11:00 MESZ und 16:30 bis 17:15 MESZ) decken die Zeiten der Kalibrierung der Messgeräte ab, in denen keine Vertikalsondierungen stattfanden. In Bild 6.7a sind die NO_x-Konzentrationen am Südturm (Luv) als 3-Sekundenwerte und die Vertikalverteilung der Windrichtung und -geschwindigkeit als Windpfeildiagramme dargestellt. Bild 6.7b liegen die NO_x–Konzentrationen am Nordturm (Lee) als 3-Sekundenwerte zugrunde. In Bild 6.7c sind die 1-Stundenmittelwerte für NO_x am Nordturm (Lee) dargestellt. Die kleinen schwarzen Punkte in Bild 6.7b zeigen an, zu welcher Uhrzeit und in welcher Höhe ein einzelner 3-Sekundenmesswert vorlag. Im gesamten Messzeitraum von 7:00 bis 18:00 MESZ wurden an jedem Messturm 109 Vertikalprofile aufgenommen. Anhand des Windpfeildiagramms in Bild 6.7b ist zu erkennen, dass am 14.5.2001 annähernd über den gesamten Messzeitraum von 7:00 bis 18:00 MESZ Wind aus süd- bis südwestlicher Richtung wehte. Von 11:00 bis 13:00 MESZ wehte nur ein schwacher Wind mit Geschwindigkeiten von ca. 2 bis max. 4 m/s. Ab 13:00 MESZ frischte der Wind auf und erreichte um 14:00 MESZ Maximalwerte von 6 m/s. Die NO_x-Konzentrationen am Südturm (Luv) (Bild 6.7a) lagen ab 8:00 MESZ relativ gut vertikal verteilt vor, wobei die Werte von > 35 ppb um 7:00 MESZ auf < 5 ppb am Nachmittag abnahmen. Die NO_x-Vertikalverteilung

am Nordturm (Lee) (Bild 6.7b) wies eine ganz andere Struktur auf. Die Konzentrationen lagen viel höher als am Südturm mit Werten von > 70 ppb. Die schon zuvor erwähnte Inhomogenität der Abgasfahne wird anhand dieser Darstellung sehr deutlich. Die Konzentrationen änderten sich ständig über den gesamten betrachteten Zeitraum und die gesamte Messhöhe. Die höchsten Konzentrationen lagen zwar bodennah vor, aber immer wieder konnte in ver-

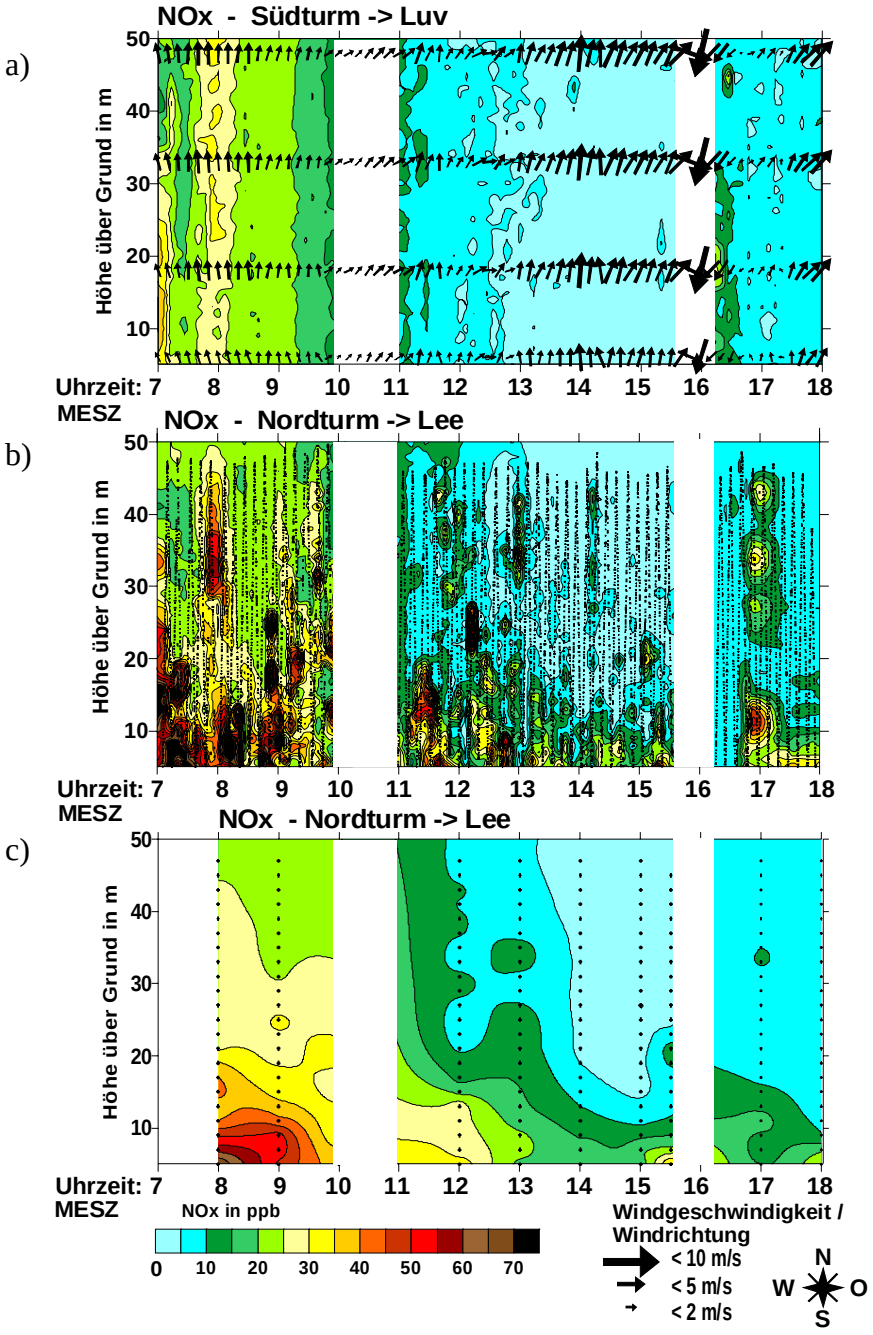


Bild 6.7: Isoplethendiagramme für NO_x am 14.5.2001 von 7:00 bzw. 8:00 bis 18:00 MESZ; weiße Flächen -> keine Messwerte vorhanden

a) 3-Sekundenmittelwerte in Kombination mit einem Windpfeildiagramm am Südturm (Luv)

b) 3-Sekundenmittelwerte am Nordturm (Lee)

c) 1-Stundenmittelwerte am Nordturm (Lee)

schiedenen Höhen bis 45 m über Grund Bereiche mit stark erhöhten Konzentrationen ausgemacht werden. Sehr schön ist in Bild 6.7a die kurzzeitige Umkehr von Luv und Lee zu erkennen. Zwischen 16:00 und 16:30 MESZ drehte der ansonsten sehr konstant aus südlicher Richtung wehende Wind auf nördliche bzw. nördöstliche Richtung und frischte aufgrund einer durchziehenden Gewitterfront stark auf. Luv und Lee kehrten sich um, am Nordturm wurden niedrige Luv-Konzentrationen gemessen, und die erhöhten Konzentrationen traten im Lee am Südturm auf.

Bild 6.7c liegt dieselbe Datenbasis zugrunde wie Bild 6.7b, wobei vor der Darstellung im Isoplethendiagramm aus den ursprünglich vorhandenen 3-Sekundenwerten 1-Stundenmittelwerte gebildet wurden. In dieser Darstellung ist die Gegenläufigkeit der NO_x-Konzentrationen und der Höhe der Abgasfahne zur Windgeschwindigkeit sehr gut zu erkennen. Am Nachmittag ab ca. 13 Uhr nahm die Windgeschwindigkeit zu, und im Gegenzug dazu nahmen die Höhe der Abgasfahne und die NO_x-Konzentrationen im Lee ab.

6.2.3 Horizontalverteilung senkrecht zur Autobahn

Die in Bild 6.8 dargestellten Messergebnisse stammen vom 14.5.2001 und zeigen die horizontale Verteilung der NO- und NO_2-Konzentrationen im Luv und Lee der Autobahn an den fünf betrachteten Messstandorten. Die am Südturm (Luv) ankommenden Luftmassen wurden dort erstmals analysiert (Messpunkt Nr. 1). Die Luftmassen strömten weiter Richtung Autobahn, wurden dort mit den Emissionen der Autobahn beladen und anschließend auf ihrem weiteren Weg zuerst am nördlichen Fahrbahnrand (Bodenmessstation Nr. 2) und dann an den Stationen Nr. 3, 4 und 5 gemessen, die in Abständen von 60 bzw. 80 m vom Fahrbahnrand folgten.

In Bild 6.8b ist die Horizontalverteilung der NO- und NO_2-Konzentrationen als 1-Stundenmittelwert in der Zeit von 7:00 bis 8:00 MESZ dargestellt. Am Luv-Standort Nr. 1 traten mit ca. 25 ppb die niedrigsten NO_x-Konzentrationen auf, wobei der Großteil davon (etwa 90 %) aus NO_2 bestand und nur 10 % aus NO. Die höchsten NO_x-Werte (NO + NO_2) wurden am Messpunkt Nr. 2 gemessen, im Lee direkt an der Fahrbahn. Die NO_2-Konzentration hatte im Vergleich zum Luv-Standort kaum zugenommen, die NO-Konzentration dagegen sehr stark. 80 % des NO_x an diesem Standort bestand aus NO und nur 20 % aus NO_2. Diese Werte beweisen, dass vom Straßenverkehr hauptsächlich NO emittiert wird und NO_2 nur in geringen Mengen. Mit zunehmendem Abstand von der Fahrbahn nahm die NO_x-Konzentration über Messpunkt Nr. 3 bzw. 4 (60 m Abstand) bis zu Messpunkt Nr. 5 ab, wo in 80 m Entfernung von der Fahrbahn die niedrigsten Lee-Werte auftraten. An den Standorten Nr. 3 und 4 war durch die Oxidation des NO zu NO_2 der NO_2-Anteil am NO_x schon auf 50 % und an Standort Nr. 5 auf 60 % angewachsen. Mit zunehmender Entfernung von der Emissionsquelle stieg dieser Wert weiter an, um in quellfernen Gebieten dann Wert 1 zu erreichen - vorausgesetzt, dass keine weiteren NO-Quellen vorhanden sind.

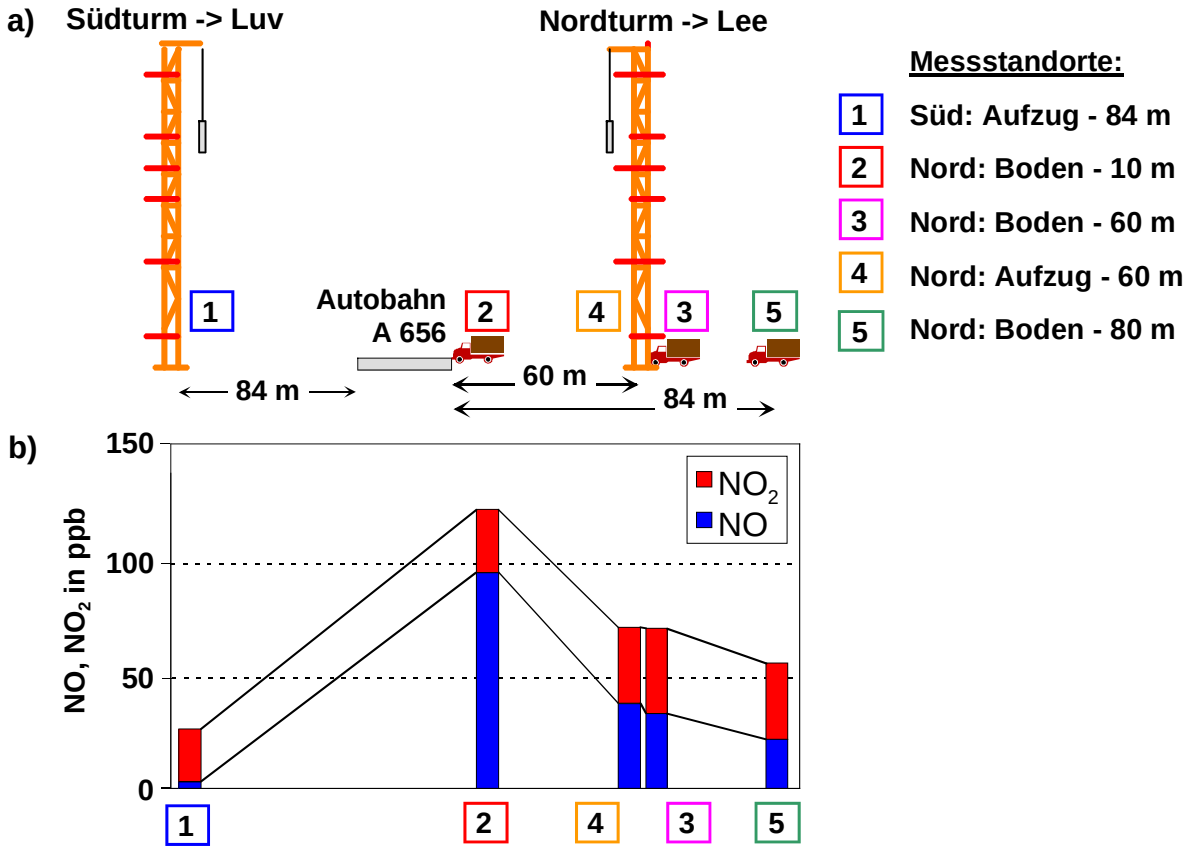


Bild 6.8: NO_x-, NO-, NO_2-Horizontalverteilung senkrecht zur Autobahn am 14.5.2001
a) Darstellung der Messstandorte Nr. 1 bis 5
b) Horizontalverteilung senkrecht zur Autobahn; 1-Stundenmittelwerte von 7:00 bis 8:00 MESZ

6.2.4 Bestimmung der NO_x-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen

Unter den in Kapitel 6.2.1 festgelegten Bedingungen für die Durchführung der Bilanzierung wird mit Hilfe von Gleichung 6.2 die NO_x-Quellstärke der Autobahn wie folgt berechnet: Den Berechnungen liegen die Ergebnisse der Vertikalprofilmessungen zugrunde (1-Stundenmittelwerte), die mit Hilfe der Aufzüge während der Intensivmessphasen ermittelt wurden. Außerdem gehen die Windrichtungs- und Windgeschwindigkeitsmessungen in die Bilanzierung mit ein, die an den beiden Türmen über den gesamten Messzeitraum kontinuierlich in sechs Höhen durchgeführt wurden. Aus den Windmessungen in sechs Höhen wurden kontinuierliche Profile generiert, indem ein logarithmischer Vertikalverlauf der Windgeschwindigkeit angenommen wurde. Die gesamte Messhöhe der beiden Türme wurde in 2 m hohe Schichten unterteilt, für die konstante Werte angenommen wurden. Für diese 2-m-Schichten wurde mit Hilfe von Gleichung 6.1 der horizontale NO_x-Massenstrom durch diese Schicht berechnet. Hierfür wurde die NO_x-Konzentration (als NO_2 mit der Dichte von 1,88 kg/m³ bei 20°C und 1013 hPa) in µg/m³ mit der horizontalen Windgeschwindigkeit in m/s multipliziert, wobei nur der autobahnsenkrechte Anteil der Windgeschwindigkeitskomponente in die Berechnung ein-

ging. Daraus ergab sich der NO_x-Massenstrom für die jeweilige 2 m dicke Schicht. Durch Summation über die gesamte Messhöhe und durch Differenzbildung (Lee-Luv) wurde die Quellstärke der NO_x-Emissionen der Autobahn in g/(km*h) berechnet. In Bild 6.9 sind die einzelnen Terme, die in Gleichung 6.4 eingehen, als Vertikalprofile der 2 m starken Schichten dargestellt. Die NO_x-Konzentrationen in µg/m³, die am Südturm (Luv) gemessen wurden, sind blau dargestellt und die durch die Emissionen der Autobahn erhöhten Konzentrationen am Nordturm (Lee) rot. Für die drei bodennächsten Höhenschichten (0-6 m über Grund) wurden konstante Konzentrationen angenommen. Diese Annahme musste getroffen werden, da die Vertikalprofilmessungen aus technischen Gründen erst in 5 m über Grund beginnen konnten und somit für die untersten Höhenschichten von 0 bis 5 m keine Messwerte vorhanden waren. Der NO_x-Massenstrom, der von den Emissionen des Autobahnverkehrs verursacht wurde, stellt die Differenz zwischen den Massenströmen im Lee abzüglich der Massenströme im Luv dar und ist in Bild 6.9 als roter Balken dargestellt. Die höchsten Beiträge der Autobahnemissionen wurden in diesem Beispiel im Bereich vom Erdboden bis 20 m über Grund bestimmt. In Höhen von > 20 m stammten nur noch geringe Beiträge vom Autobahnverkehr, und in Höhen zwischen 0 und 4 m über Grund nahmen die NO_x-Massenströme aufgrund des logarithmischen Windprofils ebenfalls ab.

Die Aufzugmessungen wurden nur während der Intensivmessphasen durchgeführt, da sie mit einem hohen personellen Aufwand verbunden waren (Messzeiten in Anhang 14). Die sieben Intensivmessphasen mit 168 möglichen Messstunden reduzierten sich aufgrund folgender Ursachen auf 25 auswertbare Messstunden: Zwei der Intensivmesstage waren Feiertage, die kein repräsentatives Emissionsverhalten widerspiegelten. Zudem stellte sich an einigen Tagen heraus, dass die vorhergesagten guten Messbedingungen mit autobahnsenkrechter Anströmung etc. so nicht eintrafen. Somit eigneten sich die gewonnenen Messwerte nicht für eine Bilanzierung. Nachtstunden mit geringem Verkehrsaufkommen und Perioden mit Regen wurden

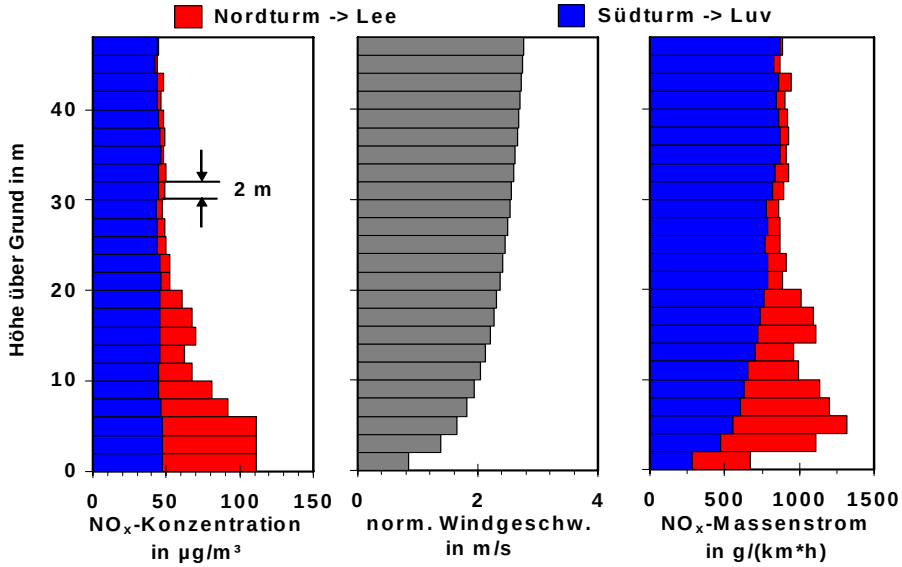


Bild 6.9: Vertikalverteilung der einzelnen Terme als 2-m-Schichten, zur Berechnung der NO_x-Massenströme am Nordturm (Luv - blau) und Südturm (Lee - rot) der Autobahn. NO_x-Konzentration in µg/m³, autobahnsenkrechte Windgeschwindigkeit in m/s und dessen Produkt, der NO_x-Massenstrom in g/(km*h). Datum: 14.5.2001, 7:00 – 8:00 MESZ

ebenfalls nicht ausgewertet. Einige Messstunden gingen verloren, da die Messgeräte alle vier bis sechs Stunden einer umfangreichen Kalibrierung unterzogen wurden. Die verbliebenen Messstunden verteilten sich folgendermaßen auf die vier Intensivmessphasen (SOPs):

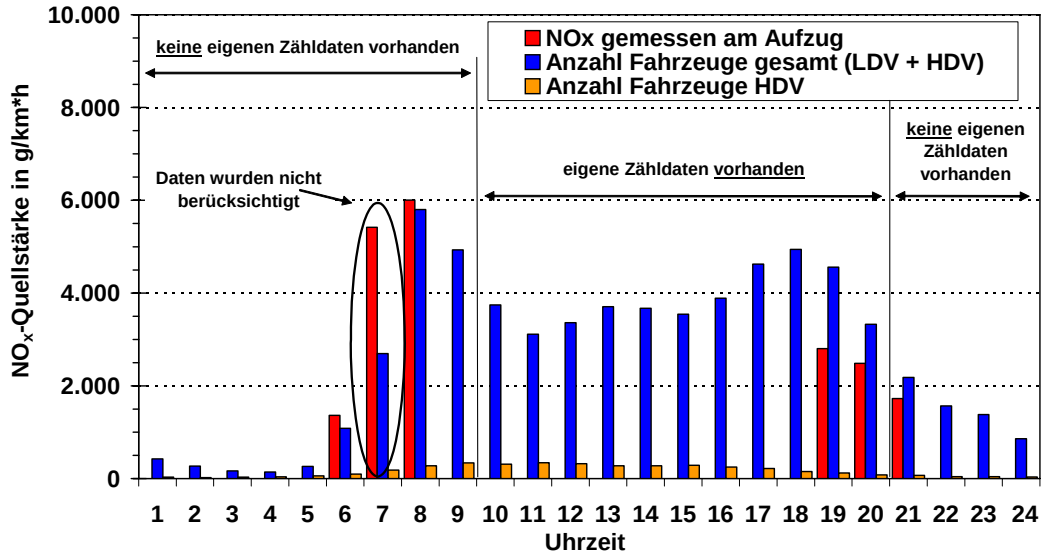
- SOP 3 – 08.05.2001: 5:00 bis 8:00 MESZ, 19:00 bis 21:00 MESZ
- SOP 4 – 14.05.2001: 7:00 bis 18:00 MESZ (mit Pausen)
- SOP 5 – 17.05.2001: 13:00 bis14:00 MESZ, 16:00 bis 18:00 MESZ
- SOP 6 – 18.05.2001: 7:00 bis 12:00 MESZ, 18:00 bis 20:00 MESZ

Für die verbliebenen 25 Messstunden wurde die NO_x-Quellstärke nach Gleichung 6.2 berechnet. Die Berechnungsergebnisse der Massenbilanzierung auf Grundlage der Vertikalprofilmessungen sind in den Abbildungen 6.10a und 6.10b als rote Balken dargestellt, zusammen mit den gleichzeitig bestimmten Fahrzeugzahlen (LDV + HDV – blaue Balken, HDV – orange Balken). Außerdem ist in den Diagrammen in Bild 6.10 verzeichnet, für welche Stunden Verkehrszahlen vorliegen, welche auf vor Ort durchgeführten Zählungen beruhen und für welche Stunden nur hilfsweise vorhandene Verkehrszahlen vorhanden waren, die an einer weiter entfernten, automatischen Zählstelle erhoben wurden. Es mussten noch vier weitere Messstunden für die folgende Auswertung eliminiert werden, welche in Bild 6.10 jeweils mit einem Kreis markiert sind. In Bild 6.10a wurde der Wert für 7:00 MESZ für die noch folgende Auswertung nicht berücksichtigt. Die Verkehrszahlen zwischen 5:00 und 8:00 MESZ zeigen, dass der morgendliche Berufsverkehr mit einem sehr starken Anstieg der Fahrzeugzahlen einsetzte. An diesem Tag lagen aber erst ab 10:00 MESZ eigene Zähldaten vor, so dass für den Zeitraum vor 10:00 MESZ auf die hilfsweise erhobenen Zahlen einer automatischen Zählstation zurückgegriffen werden musste. Bei einem solch starken Anstieg der Fahrzeugzahlen innerhalb sehr kurzer Zeit können aber beträchtliche Fehler auftreten, wenn nur Verkehrszahlen einer weiter entfernt stattfindenden Zählung zur Verfügung stehen, weshalb die berechnete Quellstärke von 7:00 MESZ nicht verwendet wurde. Vier weitere Werte wurden nicht berücksichtigt, die am 14.5.2001 während SOP 4 (Bild 6.10b) aufgenommen wurden. Um 10:00 MESZ und zwischen 16:00 und 19:00 MESZ war der Verkehr auf der Autobahn massiv durch Staus gestört. Die Fahrzeuge bewegten sich jeweils in einer Fahrtrichtung nur im Schritttempo. Die Emissionsfaktoren für Stausituationen unterscheiden sich sehr stark von denen für flüssigen Verkehr (bis zu einem Faktor von 4! [85]). Für die nun folgenden Berechnungen von mittleren Emissionsfaktoren konnten somit diese Werte nicht verwendet werden. Ein weiterer Wert von SOP 4 wurde nicht verwertet, nämlich der Wert für 16:00 MESZ, da für diese Stunde nur sechs Vertikalprofile im Vergleich zu 12 Profilen für die übrigen Messstunden aufgenommen wurden und somit die Datengrundlage nicht ausreichend war.

Die verbliebenen 20 Stundenwerte der NO_x-Quellstärken schwankten zwischen ca. 1.400 g/(km*h) am frühen Morgen oder späten Abend und > 6.600 g/(km*h) tagsüber (siehe auch Anhang 17). Der Schwerverkehr machte auf diesem Autobahnabschnitt einen Anteil von 5,9 % aus und schwankte in den betrachteten Zeiträumen in absoluten Zahlen zwischen 68 und 390 Fahrzeugen pro Stunde. Der Leichtverkehr, mit einem Anteil von 94,1 %, schwankte zwischen 989 und 5.537 Fahrzeuge pro Stunde. Im Mittel wurden 3.918 g/(km*h) NO_x emittiert, wobei durchschnittlich 3.837 Fahrzeuge die Autobahn passierten. Auf dem betrachteten Autobahnabschnitt sind werktags durchschnittlich 55.000 Fahrzeuge unterwegs, mit einem

Schwerverkehrsanteil von 6 %. Dieser relativ geringe Anteil rührt von der Tatsache, dass der betrachtete Autobahnabschnitt hauptsächlich die beiden Städte Heidelberg und Mannheim miteinander verbindet und somit eher vom lokalen Verkehr als vom Transitverkehr benutzt wird, der in nordsüdlicher Richtung entlang der beiden parallel verlaufenden Autobahnen A 5 und A 6 fließt. Die mittlere Fahrgeschwindigkeit des Leichtverkehrs betrug über die gesamte

a)



b)

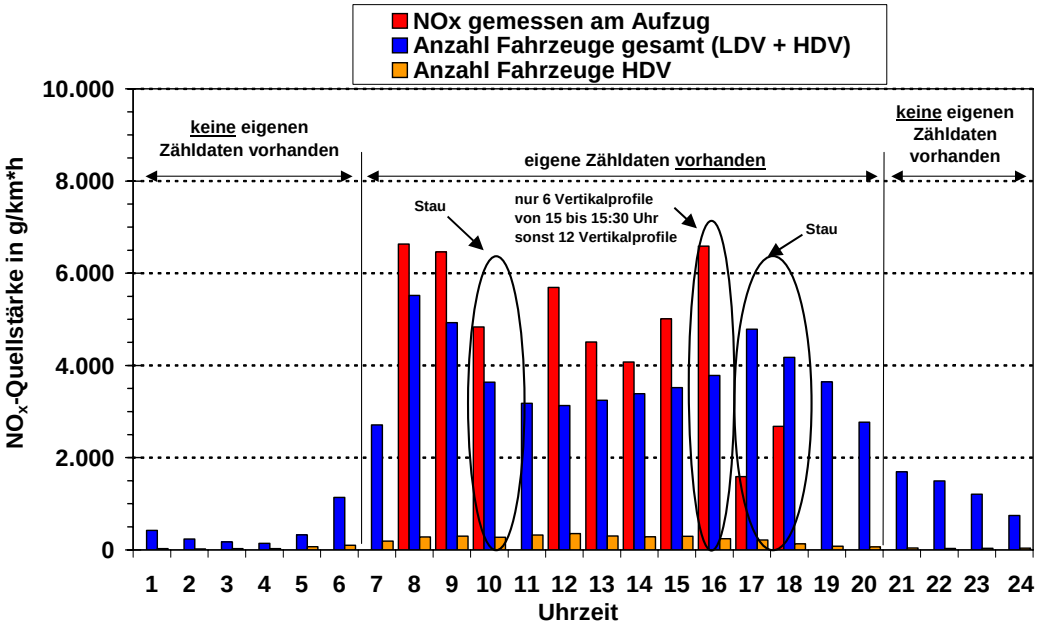


Bild 6.10: NO_x-Quellstärke in g/(km*h) -> rote Balken, Fahrzeugzahlen (LDV und HDV -> blaue Balken und HDV -> orange Balken); Bereiche mit eigenen Verkehrszahlen und Bereiche ohne eigene Verkehrszahlen, d. h. mit hilfsweise vorhandenen Verkehrszahlen abgeleitet von Daten einer weiter entfernten automatischen Zählstelle

a) SOP 3 – 8.5.2001

b) SOP 4 – 14.5.2001

Versuchsperiode 113 km/h, die des Schwerverkehrs 86 km/h. Dieselfahrzeuge besaßen einen Anteil von 20 % an der gesamten Flotte des Leichtverkehrs [124].

Nun wurde eine Multiple Regressionsanalyse aufgetrennt für Fahrzeuge des Leichtverkehrs (LDV) und des Schwerverkehrs (HDV) angewendet. Das Ergebnis der Regressionsanalysen, die mit Hilfe des Excel-Tools "Analyse-Funktion Regression" durchgeführt wurden, waren die Emissionsfaktoren.

Die allgemeine Gleichung für die Analysefunktion einer Multiplen Regression lautet [160]:

$$y = \sum_{i=1}^{n} B_i * x_i + K \tag{6.3}$$

y stellt die abhängige Variable, B_i die Regressionskoeffizienten der unabhängigen Variablen, x_i die unabhängigen Variablen und K eine Konstante dar. Auf den vorliegenden Fall angewendet ergeben sich die Gleichungen 6.5 und 6.6:

$$y = B_1 * x_1 + B_2 * x_2 \tag{6.4}$$

$$Q = EF_{Alle} * (Anzahl_{LDV} + Anzahl_{HDV}) = EF_{LDV} * Anzahl_{LDV} + EF_{HDV} * Anzahl_{HDV} \tag{6.5}$$

$$EF_{Alle} = EF_{LDV} * \frac{Anzahl_{LDV}}{Anzahl_{Alle}} + EF_{HDV} * \frac{Anzahl_{HDV}}{Anzahl_{Alle}} = EF_{LDV} * Anteil_{LDV} + EF_{HDV} * Anteil_{HDV} \tag{6.6}$$

Q stellt die gesamte Quellstärke dar, EF die Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr (EF_{LDV}), Schwerverkehr (EF_{HDV}) und alle Fahrzeuge (EF_{Alle}) als Mittelwert aus LDV und HDV. $Anzahl_{LDV}$ und $Anzahl_{HDV}$ sind die Anzahl der Fahrzeuge des Leichtverkehrs und Schwerverkehrs. Aus der Multiplen Regressionsanalyse ergaben sich die in Tabelle 6.1 aufgelisteten Emissionsfaktoren. Die statistischen Kenngrößen der Linearen Multiplen Regressionsanalyse, wie Standardfehler, Korrelationskoeffizient (R) und Bestimmtheitsmaß (R^2) sind in Anhang 18 zu finden.

Tabelle 6.1: NO_x-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle}, berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Aufzugmessungen**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV	0,44 $\pm$ 0,10 g/km
Schwerverkehr - HDV	11,41 $\pm$ 1,46 g/km
Alle Fahrzeuge	1,14 $\pm$ 0,18 g/km

Ein erstes Gütemaß für die Qualität der erzielten Ergebnisse liefert das Bestimmtheitsmaß R^2. Es trifft eine Aussage darüber, wie gut sich die Regressionsfunktion an die empirische Punkteverteilung anpasst. Das Bestimmtheitsmaß R^2 ist das Verhältnis von erklärter Streuung zur Gesamtstreuung. Es ist umso größer, je höher der Anteil der Streuung an der Gesamtstreuung ist, der sich durch die Regressionsfunktion erklären lässt. Es nimmt damit Werte zwischen $R^2 = 0$ (0 % lassen sich erklären) und $R^2 = 1$ (100 % lassen sich erklären) an. Im Fall der Multiplen Regression wird die geschätzte abhängige Variable durch lineare Verknüpfung von mehreren unabhängigen Variablen gebildet. Deshalb wird R auch als Multipler Regressionskoeffizient bezeichnet [161]. Im dargestellten Fall sind die unabhängigen Variablen die Anzahl der Fahrzeuge des Leichtverkehrs und des Schwerverkehrs. Mit $R^2 = 0{,}82$ für die Ergebnisse der Multiplen Regressionsanalyse wurde ein sehr guter Zusammenhang zwischen den unabhängigen und den abhängigen Variablen festgestellt. Es konnten somit 82 % der Streuung der Einzelwerte um den berechneten Mittelwert mit der gefundenen Regressionsfunktion erklärt werden, lediglich 18 % blieben unerklärt.

Die Statistik bietet noch weitere Tests an, um die Qualität der Ergebnisse einer Regressionsanalyse zu beurteilen. Mehr dazu in Anhang 18. Für die Berechnung der gemessenen NO_x-Emissionen lagen von der zuvor schon erwähnten Turmansaugung (siehe auch Kapitel 4.4.3) noch weitere Messdaten vor. Die Messungen und Datenauswertung wurden federführend von Mitarbeitern des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt [162]. Die Auswertungen und Berechnungen der Emissionsfaktoren liefen analog zur oben beschriebenen Methode der Aufzugmessungen ab. Im Gegensatz zu den Aufzugmessungen war die Datenbasis bei der Turmansaugung sehr viel größer. Die Turmansaugung arbeitete weitestgehend automatisch und wurde über den gesamten Messzeitraum von Anfang bis Ende Mai 2001 betrieben. Für die Auswertung wurden ebenfalls nur NO_x-Vertikalprofile herangezogen, welche die in Kapitel 6.2.1 beschriebenen Voraussetzungen erfüllten. So verringerte sich die ursprünglich vorhandene Anzahl von ca. 600 1-Stundenvertikalprofilen auf 122 Profile, die dann einer Multiplen Regressionsanalyse unterzogen wurden. Es ergaben sich die folgenden Ergebnisse:

Tabelle 6.2: NO_x-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und für alle Fahrzeuge EF_{Alle}, berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Turmansaugung**

	Emissionsfaktor in g/km
Leichtverkehr - LDV	0,68 $\pm$ 0,12 g/km
Schwerverkehr - HDV	6,86 $\pm$ 1,57 g/km
Alle Fahrzeuge	1,08 $\pm$ 0,21 g/km

Die Emissionsfaktoren dieser Methode unterscheiden sich von den mit Hilfe der Aufzugmessungen berechneten Emissionsfaktoren teilweise beträchtlich. Ein Vergleich der Ergebnisse, auch mit Literaturwerten, erfolgt im nächsten Kapitel.

6.2.5 Vergleich von NO_x-Emissionsfaktoren

Die Emissionsmodellierung im Projekt BAB II wurde von Mitarbeitern des Instituts für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart (IER) durchgeführt. Es kam ein sehr aufwändiges und verfeinertes Emissionsmodell zur Anwendung [124], [117]. Um die in Kapitel 3.3.1 dargestellten Unsicherheiten der berechneten Emissionen auf ein Minimum zu reduzieren, wurden umfangreiche Messungen und Erhebungen des Verkehrs vorgenommen, die sich auf Verkehrsstärke, Fahrmuster bzw. Verkehrssituation, Flottenzusammensetzung und Längsneigung der Fahrbahn bezogen. Auf diese Weise blieb als einzige Quelle für Unsicherheiten der berechneten Emissionen die Bestimmung der Emissionsfaktoren übrig, welche letztendlich mit den gemessenen Emissionen überprüft werden sollten. Alle anderen genannten Quellen für Unsicherheiten konnten durch ihre Bestimmung eliminiert werden. Das Vorgehen ist in Anhang 27 detailliert beschrieben und dargestellt.

Um die berechneten Emissionsdaten mit den indirekt gemessenen Emissionsdaten vergleichen zu können, wurden beiden Methoden die gleichen Zeiträume zugrunde gelegt. Somit wurden die Emissionsdaten zum einen für die Zeiträume der Aufzugmessungen, zum anderen für die Zeiträume der Turmansaugung berechnet. Analog zum Vorgehen im vorangegangenen Kapitel wurde eine Multiple Regressionsanalyse auf die berechneten Emissionsdaten angewandt, so dass Emissionsfaktoren (EF) getrennt für den Leichtverkehr (LDV), den Schwerverkehr (HDV) und die gesamte Flotte (alle Fahrzeuge) berechnet werden konnten. Für die 20 Stunden der zur Auswertung verwendeten Aufzugmessungen ergaben sich für die berechneten Emissionen (Emissionsmodellierung) die folgenden Ergebnisse:

Tabelle 6.3: NO_x-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle}, berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Aufzugmessungen**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV	0,55 $\pm$ 0,02 g/km
Schwerverkehr - HDV	5,63 $\pm$ 0,33 g/km
Alle Fahrzeuge	0,84 $\pm$ 0,03 g/km

Der Multiple Korrelationskoeffizient R und das Bestimmtheitsmaß R^2 liegen mit Werten von 0,97 und 0,99 sehr hoch. Für die Berechnung der NO_x-Emissionsfaktoren aus der Turmansaugung wurden 122 Stunden herangezogen. Die Anwendung der Multiplen Regressionsanalyse

auf die entsprechenden berechneten Emissionsdaten ergab die folgenden mittleren Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr, den Schwerverkehr und die gesamte Flotte:

Tabelle 6.4: NO_x-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle} berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Turmansaugung**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV	0,59 $\pm$ 0,02 g/km
Schwerverkehr - HDV	5,61 $\pm$ 0,31 g/km
Alle Fahrzeuge	0,92 $\pm$ 0,02 g/km

Der mittlere Emissionsfaktor für den Schwerverkehr EF_{HDV} liegt mit 5,61 g/km fast gleich hoch wie der zuvor berechnete Wert von 5,63 g/km für den wesentlich kürzeren Zeitraum von nur 20 Stunden. Die beiden anderen mittleren Emissionsfaktoren EF_{LDV} und EF_{Alle} liegen innerhalb des Berechnungszeitraums für die Turmansaugung ca. 10 % höher als innerhalb des Zeitraums für die Aufzugmessungen.

In Tabelle 6.5 findet einerseits ein Vergleich der mit verschiedenen Methoden gewonnenen NO_x-Emissionsfaktoren des Projekts BAB II statt, andererseits werden diese Ergebnisse mit Literaturwerten verglichen. Es ergaben sich teilweise beträchtliche Unterschiede zwischen den Emissionsfaktoren, die mit den beiden genannten, auf Messungen beruhenden Methoden (einerseits die Aufzugmessungen und andererseits die Turmansaugung) bestimmt wurden. Der NO_x-Emissionsfaktor für den Leichtverkehr (LDV) liegt bei der Turmansaugung mit 0,68 g/km um ca. 60 % höher als es die Auswertung der Aufzugmessungen mit einem Emissionsfaktor von 0,44 g/km ergab. Dagegen liegt der NO_x-Emissionsfaktor der Turmansaugung für den Schwerverkehr mit 6,86 g/km nur bei ca. 60% des Wertes, der mit 11,41 kg/km aus den Ergebnissen der Aufzugmessungen berechnet wurde. Allerdings stimmen die Emissionsfaktoren für alle Fahrzeuge mit 1,14 g/km für die Aufzugmessungen und 1,08 g/km aus den Messungen der Turmansaugung sehr gut überein. Was bei der Betrachtung der Detailergebnisse in Kapitel 6.2.4 auffällt, ist das relativ hohe Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,82$, das sich bei der Multiplen Regressionsanalyse für die Ergebnisse der Aufzugmessungen ergab, im Vergleich zum relativ niedrigen Bestimmtheitsmaß von $R^2= 0,18$ bei der Turmansaugung – dies, obwohl der Turmansaugung mit 122 Stundenwerten ca. sechs Mal mehr Daten zugrunde lagen als den Aufzugmessungen mit 20 Stundenwerten.

Tabelle 6.5: Vergleich von NO_x-Emissionsfaktoren für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt für alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden

Studie / Projekt		**Emissionsfaktoren EF in g/km**			**Geschw. km/h**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**	**LDV/ HDV**	
A	**BAB II – Aufzugmessungen, 2001**	**0,44 ± 0,10**	**11,41 ± 1,46**	**1,14 ± 0,18**	**113/86**	**diese Diss.**
M	**BAB II – Emissionsmodellierung während Aufzugmessungen, 2001**	**0,55 ± 0,02**	**5,63 ± 0,33**	**0,84 ± 0,03**	**113/86**	**diese Diss.**
A	**BAB II – Turmansaugung, 2001**	**0,68 ± 0,12**	**6,86 ± 1,57**	**1,08 ± 0,21**	**113/86**	**[163]**
M	**BAB II – Emissionsmodellierung während Turmansaugung, 2001**	**0,59 ± 0,02**	**5,61 ± 0,31**	**0,92 ± 0,02**	**113/86**	**[163]**
T	Gubrist-Tunnel, 2005	0,25 - 0,45	8 - 15	0,97	103/86	[164]
A	Härkingen, 2004	-	-	1,63	116/86	[107]
T	Kingsway-Tunnel, 2003	0,54 ± 0,06	10,7 ± 0,8	1,52 ± 0,3	65	[31]
T	Gubrist-Tunnel, 2002	0,2 - 0,45	8 - 15	1,21	103/86	[164]
M	Zürich-Weststraße, 2002	0,35	12,3	-	0 - 50	[165]
M	Birrhard, 2001	0,59	8,7	-	120/85	[165]
M	Humlikon, 2001	0,37	8,2	-	85/75	[165]
T	Plabutsch-Tunnel, 2001	0,22 ± 0,08	12,6 ± 0,4	3,26 ± 0,15	80 - 120	[31]
T	Gubrist-Tunnel, 2000	0,3 - 1,0	10 - 14	0,94	103/86	[164]
T	Taipei-Tunnel, 2000	-	-	0,9 ± 0,18	67/65	[21]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1998 / 1999	1,07 ± 0,03	8,0 ± 0,8	1,36 ± 0,03	75	[27]
A	BAB I – gemessen, 1997	-	-	1,11 ± 0,17	109,6	[117]
M	BAB I – Emissionsmodellierung, 1997	-	-	1,44 ± 0,08	109,6	[117]
T	Gubrist-Tunnel, 1997	0,6 – 1,8	10 - 18	1,99	103/86	[164]
T	Kiesberg-Tunnel, 1997	0,76 ± 0,18	-	-	60	[166]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1995 / 1996	-	-	1,5 ± 0,1	75	[27]
T	Heslacher Tunnel - gemessen, 1994	-	-	1,25	58,4	[86]
M	Heslacher Tunnel - Emissionsmodellierung, 1994	-	-	1,12	58,4	[86]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1994	-	-	1,1 ± 0,1	75	[27]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1993	-	-	1,3 ± 0,1	75	[27]
T	Gubrist-Tunnel, 1993	1,05 ± 0,09	15,56 ± 0,79	2,45 ± 1,59	103/86	[17]
A	Härkingen, 1992	-	-	2,92	116/86	[107]
T	Fort-McHenry-Tunnel, 1992	0,5 ± 0,06	8,97 ± 0,28	2,06 ± 0,48	80	[55]
T	Tuscarora-Tunnel, 1992	0,24 ± 0,16	12,1 ± 0,5	3,79	96/87	[55]

A… Experiment in der Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

Der Vergleich der indirekt gemessenen NO_x-Emissionsfaktoren aus den Aufzugmessungen und der Turmansaugung mit den berechneten NO_x-Emissionsfaktoren, die über die Emissionsmodellierung bestimmt wurden, ergab ebenfalls Unterschiede. Für den Leichtverkehr (LDV) lagen die berechneten Emissionsfaktoren aus der Emissionsmodellierung mit 0,55 bzw. 0,59 g/km ungefähr zwischen den Werten, die sich mit 0,44 g/km aus den Aufzugmessungen und mit 0,68 g/km aus der Turmansaugung ergaben. Betrachtet man die gesamte Flotte, so lagen die gemessenen NO_x-Emissionsfaktoren der Aufzugmessungen mit 1,14 g/km um 26 % bzw. mit einem Wert von 1,08 g/km aus der Turmansaugung um 15 % über dem berechneten Emissionsfaktor von 0,84 bzw. 0,92 g/km. Bei Betrachtung der NO_x-Emissionsfaktoren für den Schwerverkehr (HDV) lagen die gemessenen Emissionsfaktoren ebenfalls über den emissionsmodellierten. Für die Aufzugmessungen ergab sich mit 11,41 g/km im Vergleich zum emissionsmodellierten Emissionsfaktor von 5,63 g/km ein um 100 % höherer Wert. Für die Turmansaugung ergab sich mit 6,86 g/km ein Emissionsfaktor, der 22 % über dem emissionsmodellierten Faktor von 5,61 g/km lag.

Der Vergleich der NO_x-Emissionsfaktoren, die in BAB II bestimmt wurden, mit Emissionsfaktoren aus Tunnelmessungen und einem Außenluftexperiment (Härkingen) bzw. Emissionsmodellierungen ist ebenfalls in Tabelle 6.5 dargestellt. Die NO_x-Emissionsfaktoren für den LDV, die in BAB II bestimmt wurden, liegen in der Spannbreite der Ergebnisse aus anderen Untersuchungen. Die niedrigsten NO_x-Emissionsfaktoren wurden im Jahre 2002 im Gubrist-Tunnel mit 0,2 - 0,45 g/km bzw. im Plabutsch-Tunnel im Jahre 2001 mit 0,22 g/km bestimmt. Die höchsten NO_x-Emissionsfaktoren für den LDV wurden im 1998 /1999 mit 1,07 g/km im Söderleds-Tunnel bei Stockholm bestimmt. Die NO_x-Emissionsfaktoren der Gesamtflotte, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, lagen im Vergleich zu den Ergebnissen anderer Untersuchungen am unteren Rand der Spannbreite, die von 0,9 g/km (Taipei-Tunnel, 2000) bis 3,79 g/km (Tuscarora-Tunnel, 1992) reicht. Der Vergleich der NO_x-Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs (HDV) ergab wiederum starke Abweichungen. Die NO_x-Emissionsfaktoren anderer Untersuchungen lagen zwischen 8 und 18 g/km (Gubrist-Tunnel, 1997 und 2005). Die NO_x-Emissionsfaktoren des HDV, die in BAB II mit Hilfe von Aufzugmessungen und Emissionsmodellierung bestimmt wurden, lagen mit Werten zwischen 5,61 und 6,86 g/km weit unterhalb denen der anderen Untersuchungen. Einzig der NO_x-Emissionsfaktor aus den BAB II-Aufzugmessungen lag mit 11,41 g/km innerhalb der Spannbreite der Literaturwerte.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die größten Abweichungen der NO_x-Emissionsfaktoren innerhalb der verschiedenen Untersuchungsmethoden von BAB II und auch im Vergleich mit anderen Untersuchungen für den Schwerverkehr zu verzeichnen waren. Wie schon erwähnt, lagen die in BAB II modellierten Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs um 100 bzw. 22 % unterhalb der gemessenen Emissionsfaktoren. Dies deutet auf eine starke Unterschätzung der Emissionen des Schwerverkehrs hin. Diese Tatsache wurde im Projekt BAB II, aber auch in anderen Untersuchungen, die in diesen Jahren durchgeführt wurden, sehr deutlich. U. a. konnte dies Sturm [34] bei Untersuchungen im Plabutsch-Tunnel in den Jahren 1998 und 1999 während einer insgesamt 10-wöchigen Messkampagne feststellen, indem er die gemessenen Immissionskonzentrationen im Tunnel den über die Emissionsmodellierung berechneten Konzentrationen gegenüberstellte. Er stellte diesen Vergleich für Werk-

tage mit hohem HDV-Anteil (35 %) her und verglich die Ergebnisse mit Wochenendtagen mit einem sehr geringen HDV-Anteil (< 1 %, Lkw-Durchfahrtsverbot). Beim Vergleich der Messdaten mit den Daten aus der Emissionsmodellierung für die Wochentag-Situation ergab sich ein Faktor von 0,5537., d.h. die Emissionsmodellierung, basierend auf dem Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA 1.1A), unterschätzte die reale Situation beträchtlich. An Wochenenden mit aufgrund des Lkw-Fahrverbots sehr geringem Lkw-Anteil (<1 %) stimmte die Rechnung mit der Messung sehr gut überein. Der Faktor zwischen Messergebnissen und Emissionsmodellergebnissen betrug in diesem Fall 0,9672. Fazit: Die NO_x-Emissionsfaktoren für den LDV stimmen sehr gut mit den realen Emissionfaktoren überein, bei den HDV-Emissionsfaktoren besteht eine beträchtliche Unterschätzung.

Im Jahre 2004 wurde eine neue Version des Handbuchs für Emissionsfaktoren (HBEFA 2.1) veröffentlicht, die die Version HBEFA 1.2 ersetzt, mit der die Emissionsmodellierung der Ergebnisse von BAB II durchgeführt wurde. Darin sind nun die Emissionsfaktoren den neuesten wissenschaftlichen Erkenntnissen angepasst, und besonders die NO_x-Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs, auch diejenigen älterer Abgaskonzepte, wurden grundlegend überarbeitet.

In Bild 6.11 ist beispielhaft der Vergleich der NO_x-Emissionsfaktoren für Lkw für verschiedene Fahrmuster zwischen der Version 2.1 des Handbuchs für Emissionsfaktoren zur Version 1.2 dargestellt. Die grundlegenden Änderungen lassen sich deutlich erkennen. Die Anpassungen ergaben Zunahmen der NO_x-Emissionsfaktoren für Lkw für das Jahr 2003 von 20 bis 40 %. Für die Jahre 2010 und 2015 wurden die Emissionsfaktoren um bis zu 90 % angehoben. Auch die Pkw-Emissionsfaktoren wurden in Version 2.1 im Vergleich zu Version 1.2 angehoben, allerdings nicht so stark wie die der Lkw (hier nicht dargestellt). Der Grund für die starke Unterschätzung der HDV-Emissionen wird in Hausberger et. al. beschrieben [104]. Die Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs werden durch Messung der Emissionen auf sogenann-

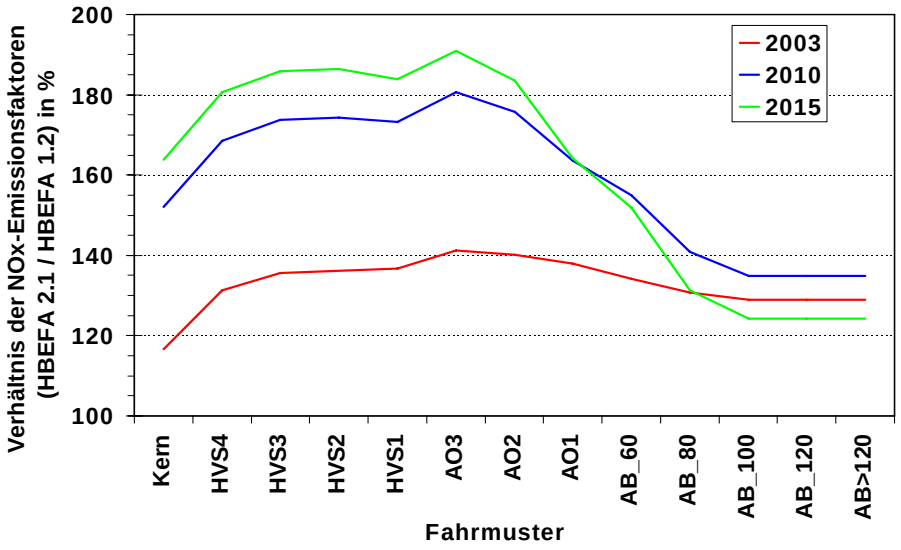


Bild 6.11: Verhältnis der NO_x-Emissionsfaktoren für Lkw im Handbuch für Emissionsfaktoren HBEFA (Vergleich Version 2.1 mit Version 1.2) für unterschiedliche Fahrmuster [167], [85]

ten Motorenprüfständen ermittelt. Bei Zulassungsuntersuchungen, deren Ergebnisse im Handbuch für Emissionsfaktoren verwendet werden, werden oftmals die Motoren so eingestellt, dass sie möglichst geringe Emissionen aufweisen. Im realen Fahrbetrieb werden die Motoren jedoch so betrieben, dass die Fahrzeuge möglichst verbrauchsarm unterwegs sind. Der verbrauchsarme Betrieb ist jedoch mit höheren NO_x-Emissionen verbunden.

6.2.6 Bestimmung der CO-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen

In den Aufzügen waren keine CO-Messgeräte installiert, dagegen konnten für die Berechnung der CO-Emissionen wiederum die Ergebnisse der Turmansaugung herangezogen werden. Das Vorgehen bei der Berechnung der Emissionsfaktoren war analog zu dem im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Vorgehen. Die Anwendung der Multiplen Regressionsanalyse ergab folgende Ergebnisse:

Tabelle 6.6: CO-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle} berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Turmansaugung**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV[1]	*3,13 ± 0,30 g/km*
Schwerverkehr - HDV	*5,80 ± 3,98 g/km*
Alle Fahrzeuge	2,62 ± 0,13 g/km

Eine Auftrennung in Schwer- und Leichtverkehr war nicht möglich, da der t-Test (siehe Anhang 19) keinen linearen Zusammenhang der Regressionsgeraden erkennen ließ. Das Bestimmtheitsmaß R^2 ist mit 0,1 wiederum sehr gering.

6.2.7 Vergleich von CO-Emissionsfaktoren

In Tabelle 6.7 findet ein Vergleich der CO-Emissionsfaktoren des Projekts BAB II mit Ergebnissen aus der Literatur statt. Die CO-Emissionsfaktoren wurden, wie im vorhergehenden Kapitel beschrieben, mit Hilfe der Turmansaugungsmethode bestimmt. Der mittels der Turmansaugung gemessene CO-Emissionsfaktor lag mit 2,62 g/km ca. 20 % höher als der über die Emissionsmodellierung bestimmte CO-Emissionsfaktor von 2,14 g/km.

[1] EF_{LDV} und EF_{HDV} unterscheiden sich nicht stark genug, als dass eine Aufteilung möglich wäre. Die Überprüfung mit dem t-Test ergab einen zu geringen t-Wert. Deshalb müssen EF_{LDV} und EF_{HDV} verworfen werden, und es kann lediglich EF_{Alle} angegeben werden.

Tabelle 6.7: Vergleich von CO-Emissionsfaktoren für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt für alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden; die mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge

Studie / Projekt		**Emissionsfaktoren EF in g/km**			**Geschw. km/h LDV/ HDV**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**		
A	**BAB II – Turmansaugung, 2001**	-	-	**2,62 ± 0,13**	**113/86**	**[163]**
M	**BAB II – Emissionsmodellierung aus Turmansaugung, 2001**	-	-	**2.14 ± 0,03**	**113/86**	**[163]**
T	Gubrist-Tunnel , 2005	0,6 – 1,9	0,3 - 1.5	1,11	103/86	[164]
T	Gubrist-Tunnel , 2002	0,8 – 2.0	0,5 – 1,5	1,35	103/86	[164]
T	Gubrist-Tunnel , 2000	1,6 – 4.0	< 3,7	2,72	103/86	[164]
T	Taipei-Tunnel, 2000	-	-	3,64 ± 0,26	67/65	[21]
T	Söderleds-Tunnel, 1998 / 1999	-	-	5,27 ± 0,1	75	[27]
A	BAB I – gemessen, 1997	-	-	6,44 ± 1,24	109,6	[117]
M	BAB I – Emissionsmodellierung, 1997	-	-	3,27 ± 0,28	109,6	[117]
T	Gubrist-Tunnel , 1997	1,9 – 4,4	1,9 – 7,5	3,41	103/86	[164]
T	Söderleds-Tunnel, 1995 / 1996	-	-	5,3 ± 0,1	75	[27]
T	Heslacher Tunnel - gemessen, 1994	-	-	10,2	58,4	[86]
M	Heslacher Tunnel - Emissionsmodellierung, 1994	-	-	2,86	58,4	[86]
T	Söderleds-Tunnel, 1994	-	-	6,3 ± 0,1	75	[27]
T	Söderleds-Tunnel, 1993	-	-	6,2 ± 0,2	75	[27]
T	Gubrist-Tunnel, 1993	4,18 ± 0,38	1,18 ± 2,33	3,89 ± 0,64	103/86	[17]
T	Fort-McHenry-Tunnel, 1992	3,94 ± 0,30	6,09 ± 1,74	4,60	80	[55]
T	Tuscarora-Tunnel, 1992	3,04 ± 0,34	3,73 ± 1,00	3,60	96/87	[55]

A… Experiment in der Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

Der Vergleich dieser im Projekt BAB II bestimmten CO-Emissionsfaktoren mit den neueren Literaturwerten, die ab dem Jahre 2000 bestimmt wurden, zeigt, dass sich die in BAB II erzielten Ergebnisse gut in die Literaturwerte einpassen.

Im Allgemeinen ist ein abnehmender Trend der Emissionsfaktoren mit den Jahren zu beobachten; die neuesten aus dem Jahre 2005 stellen die niedrigsten dar. Colberg et al. stellten einen Vergleich der Messungen im Gubrist-Tunnel mit den zugehörigen Emissionen aus dem Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA) für die Jahre 1990 bis 2002 an [102]. Dieser Vergleich ergab, wie auch bei den BAB II-Ergebnissen, um ca. 20 % höhere Werte der berechneten Emissionen aus dem Handbuch für Emissionsfakten im Vergleich zu den gemessenen Emissionen. Daraus kann geschlossen werden, dass die Emissionsfaktoren im Handbuch für Emissionsfaktoren etwas zu hoch gewählt sind.

6.2.8 CO_2-Vertikalprofilmessungen

Den CO_2-Messungen wurde zu Projektbeginn große Bedeutung zugemessen. CO_2 lässt sich einerseits mit entsprechenden Messgeräten einfach und sehr genau messen. Andererseits lässt es sich auch sehr genau berechnen. Anders als bei der Komponente NO_x, bei der sowohl das im Brennstoff enthaltene als auch das aus Luftsauerstoff und -stickstoff gebildete, sogenannte thermische NO zu den NO_x-Emissionen beiträgt, stammen CO_2-Emissionen ausschließlich aus den Verbrennungsprodukten des Brennstoffs [83]. Der Brennstoffverbrauch der Fahrzeuge lässt sich sehr genau bestimmen, wodurch die daraus resultierenden CO_2-Emissionen mit großer Genauigkeit berechnet werden können. Die Komponente CO_2 eignet sich daher hervorragend zur Validierung einer Bilanzierungsmethode.

Im Projekt BAB II waren zwei CO_2-Messgeräte zur Aufnahme von Vertikalprofilen im Einsatz, basierend auf der nicht dispersiven Infrarotfotometrie (siehe auch Anhang 5). Während der Intensivmessphasen wurden sie in den Aufzügen und zwischen diesen Phasen zusammen mit den NO_x- und CO-Geräten bei der Turmansaugung betrieben. Wie in Bild 6.6 dargestellt, konnte anhand der Messergebnisse die CO_2-Abgasfahne sehr gut erfasst werden. Im Laufe der Auswertungen stellte sich jedoch heraus, dass eines der beiden CO_2-Messgeräte über weite Strecken unplausible Messwerte lieferte, weshalb ein Großteil der Messwerte verworfen werden musste. Es handelte sich um das Messgerät am Südaufzug, der großteils im Luv der Autobahn lag. Der Versuch, die Luv-Werte aus den Lee-Werten in größeren Höhen oberhalb der Abgasfahne der Autobahn zu gewinnen, führte nicht zum gewünschten Erfolg. Im Gegensatz zu gemessenen NO_2-, VOC- und Partikeloberflächen-Profilen, wiesen die CO_2-Vertikalprofile im Luv der Autobahn einen vertikalen Gradienten auf. Ein Beispiel hierfür ist in Bild 6.12 dargestellt. Es handelt sich um gemittelte 1-Stundenprofile, die am 13.05.2001 zwischen 23:00 und 24:00 MESZ aufgenommen wurden. Zu dieser Zeit lag der Nordturm im Luv der Autobahn. Die maximale CO_2-Konzentration wurde in 5 m Höhe mit 373 ppm gemessen. Sie nahm kontinuierlich auf 368 ppm in 45 m Höhe ab. Die gleichzeitig gemessenen PM- und NO_2-Profile wiesen nur einen geringen vertikalen Gradienten auf. Der Grund für dieses unterschiedliche Verhalten der betrachteten Komponenten ist vermutlich in biogenen CO_2-Emissionen der umliegenden Wiesen und Felder zu suchen. Im Mai ist die Biosphäre sehr aktiv. Durch Fotosynthese wird tagsüber CO_2 aus der Atmosphäre entnommen und nachts kehrt sich dieser Vorgang um. Die erhöhten bodennahen CO_2-Konzentrationen stammen vermutlich aus der Pflanzenatmung. Dieses Beispiel verdeutlicht, dass ohne gleichzeitige Vertikalprofilmessungen im Luv und Lee der Autobahn eine Bilanzierung des CO_2 nicht möglich ist. Selbst

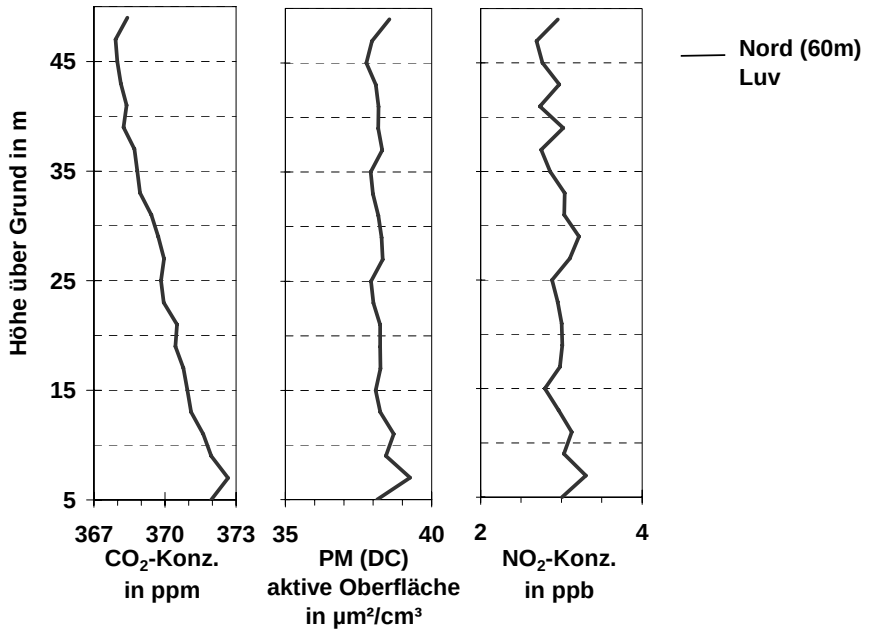


Bild 6.12: Vertikalprofile der Aufzugmessungen als 1-Stundenmittelwerte am 13.5.2001 von 23:00 bis 24:00 MESZ für die Komponenten CO_2, PM (DC – aktive Partikeloberfläche) und NO_2

bei Vorhandensein von Luv- und Lee-Profilen ist Vorsicht geboten. Es muss eine Abschätzung getroffen werden, inwieweit sich die CO_2-Konzentrationen auf dem Weg vom Luv- zum Lee-Messort durch biogene Einflüsse verändern. Aufgrund der fehlenden CO_2-Profile im Luv wurden keine weiteren Auswertungen der CO_2-Messungen bzw. Bilanzierungen vorgenommen.

6.2.9 Bestimmung der VOC-Emissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen

In Bild 6.13 ist der schematische Aufbau der VOC-Probennahmesysteme in unterschiedlichen Höhen an beiden Messtürmen in 60 bzw. 84 m Abstand zu den Fahrbahnen im Luv und Lee der Autobahn A 656 dargestellt. Im Gegensatz zu den vorher beschriebenen NO_x-Messungen, welche kontinuierlich durchgeführt wurden, konnten die VOC-Messungen nur quasi-kontinuierlich bzw. diskontinuierlich durchgeführt werden. In Bodennähe auf beiden Seiten der Autobahn (VOC 1 und VOC 5) waren zwei quasi *On-line GCs* (Gaschromatographen) im Einsatz. Details zu den Messgeräten sind in Petrea 2007 zu finden [93]. Die Vertikalverteilung der VOCs wurde diskontinuierlich bestimmt, indem an den Messtürmen in verschiedenen Höhen über einen Zeitraum von zwei bis drei Stunden Aktivkohleröhrchen beprobt wurden, die anschließend im Labor analysiert wurden. Die diskontinuierliche VOC-Probennahme ist ausführlich in Glaser, 2001 [141] beschrieben. Im Luv wurde in drei verschiedenen Höhen (5, 27 und 47 m), im Lee in fünf Höhen (5, 17, 27, 37 und 47 m) gemessen. Aufgrund der Arbeits- und Zeitintensivität der VOC-Messungen und -Analysen und ihren Auswertungen fanden diese Messungen ausschließlich während der erwähnten SOPs – *Special Observation Periods* - mit Wind aus Südwest oder Nordost statt. Details dazu finden sich in Anhang 14 und

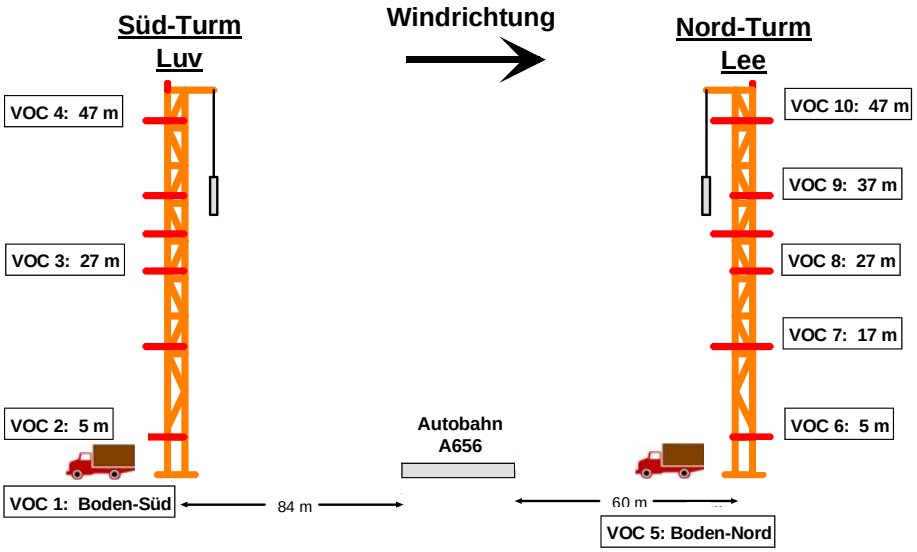


Bild 6.13: Schematische Darstellung der Verteilung der VOC-Probennahmesysteme während BAB II am Boden und in unterschiedlichen Höhen an beiden Messtürmen im Luv und Lee der Autobahn A 656

15. An einigen der SOP-Tagen waren die meteorologischen Bedingungen unzulänglich, so dass sich schließlich Daten von den folgenden vier Messtagen zur Auswertung eigneten: 8., 14., 17. und 18. Mai 2001. Die VOC-Analysen wurden entsprechend DIN EN ISO 13649 [142] durchgeführt. Insgesamt konnten mehr als 50 VOC-Komponenten analysiert werden, wobei 26 Komponenten quantifizierbar waren. Bilanzierungen erfolgten für 21 Komponenten, der endgültige Vergleich (siehe Kapitel 6.2.10) zwischen indirekt gemessenen und berechneten Emissionen konnte für 18 Komponenten durchgeführt werden. In Anhang 20 sind die Konzentrationen der verschiedenen VOC-Komponenten in den einzelnen Messhöhen im Luv und Lee der Autobahn beispielhaft für zwei Messzeiträume am 17. Mai 2001 aufgeführt. Unter den Alkanen und Alkenen wies i-Pentan die höchsten Konzentrationen auf, unter den Aromaten Toluol. Die gemessenen VOC-Konzentrationsverhältnisse waren vergleichbar mit den Ergebnissen anderer, in der Literatur beschriebenen Untersuchungen [168].

In Bild 6.14 sind beispielhaft Toluol-Vertikalprofile im Luv (graue Kästchen) und im Lee (schwarze Kästchen) dargestellt, die am 14. Mai 2001 in den Zeiträumen von 8:00 bis 10:00, von 10:15 bis 12:15, von 12:30 bis 14:30 und von 14:45 bis 16:45 MESZ aufgenommen wurden. In den ersten drei Zeiträumen war die Luv-Konzentration in allen drei Messhöhen nahezu gleich hoch. Die Konzentrationen im Lee wiesen dagegen Gradienten auf, mit den höchsten Konzentrationen in 5 m Höhe. Mit zunehmender Höhe nahm die Konzentrationen ab, um dann in einer bestimmten Höhe wieder die Luv-Werte zu erreichen. D. h. die Abgasfahne der Autobahn konnte auch in den VOC-Vertikalprofilen für die meisten Komponenten wieder gefunden werden. Einige der VOC-Profile wiesen keinen Gradienten auf, d. h. diese Komponenten wurden nicht oder kaum vom Verkehr auf der Autobahn emittiert und daher in den weiteren Auswertungen nicht berücksichtigt. Im ersten Zeitraum von 8:00 bis 10:00 MESZ war die Differenz zwischen Lee (2,5 µg/m³) und Luv (1,5 µg/m³) in 5 m Höhe mit 1 µg/m³ am höchsten. Schon in 17 m Höhe nahm die Toluol-Konzentration im Lee auf die Luv-Werte ab. Im

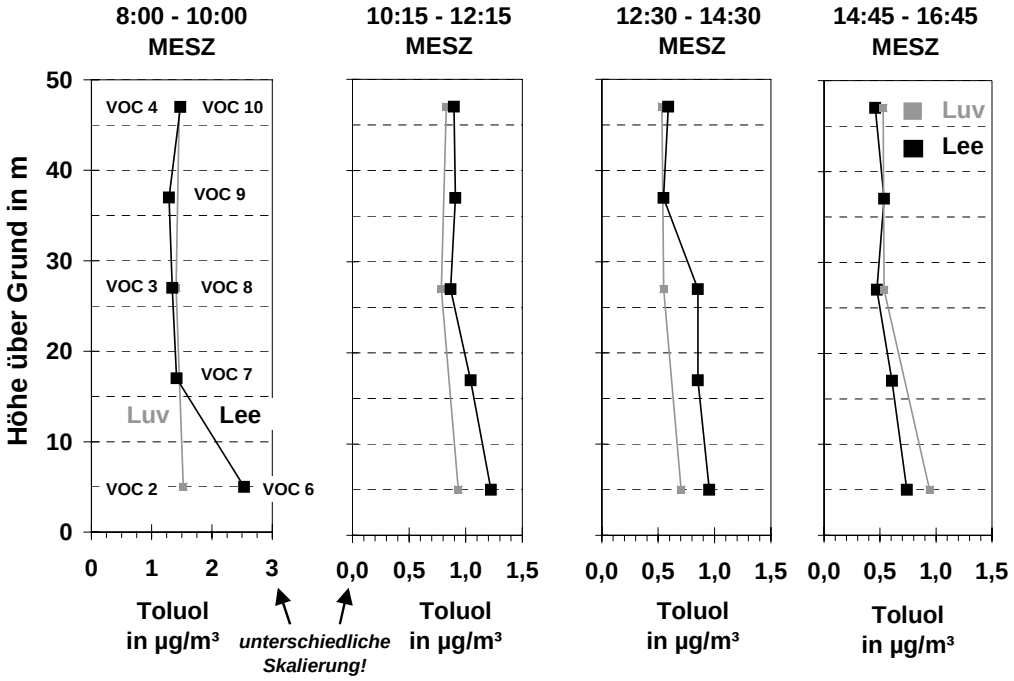


Bild 6.14: Beispielhafte Darstellung der Vertikalprofile der VOC-Komponente Toluol in drei Höhen im Luv (VOC 2, VOC 3, VOC 4) und in fünf Höhen im Lee (VOC 6, VOC 7, VOC 8, VOC 9, VOC 10) der Autobahn A 656 an beiden Messtürmen am 14. Mai 2001 in den Zeiträumen von 8:00 bis 10:00, von 10:15 bis 12:15, von 12:30 bis 14:30 und von 14:45 bis 16:45 MESZ

Zeitintervall vom 10:15 bis 12:15 MESZ wurde immerhin erst in 27 m Höhe das Luv-Niveau der Toluol-Konzentration erreicht und im dritten Zeitraum von 12:30 bis 14:30 MESZ erst in 37 m Höhe. Im vierten Zeitraum von 14:45 bis 16:45 MESZ drehten sich die Verhältnisse sogar um, und es wurden im Luv höhere Konzentrationen gemessen als im Lee. Allerdings stimmte während dieses Messzeitraums die Luv-Lee-Zuordnung nicht mehr, da sich aufgrund des Durchzugs einer Gewitterfront die Windrichtung teilweise umkehrte, weshalb der vierte Messzeitraum an diesem Tag nicht weiter ausgewertet wurde.

Für die Komponenten C_2 bis C_6, die lediglich an den Bodenmessstationen auf beiden Seiten der Autobahn (VOC 1 und VOC 5) mit Hilfe der quasi *On-line GCs* gemessen wurden, musste eine Methode zur Gewinnung der Vertikalverteilung gefunden werden. Es wurde die Referenzkomponente Toluol ausgewählt, da es eindeutig vom Verkehr emittiert wird, in relativ hohen Konzentrationen vorkam und außerdem von beiden Messsystemen, von den quasi *On-line GCs* als auch von den diskontinuierlichen Probennahmesystemen, sehr gut erfasst und gemessen werden konnte. Es wurde für die Komponenten C_2 bis C_6 jeweils das Verhältnis der Komponente zu Toluol am Boden (VOC 1 und VOC 5) gemessen. Die Konzentration der Komponenten in größeren Höhen wurde bestimmt, indem die am Boden gemessenen Verhältnisse zu Toluol mit den in größeren Höhen gemessenen Toluol-Konzentrationen multipliziert wurden. So erhielt man die Konzentrationen der Komponenten C_2 bis C_6 in den übrigen Messhöhen und dadurch Vertikalprofile, die in Wirklichkeit lediglich an den beiden Bodenmessstationen gemessen wurden.

Die VOC-Vertikalprofile mussten einer weiteren Anpassung dieser Art unterzogen werden. Wie anhand von Bild 6.15 (18.5.2001, 18:00 – 20:00 MESZ) ersichtlich ist, konnte zwar die leeseitige Abgasfahne der Autobahn in 5 m Höhe sehr deutlich bestimmt werden, aber schon in 17 m Höhe wurden Luv-Werte gemessen. D. h. die vertikale Ausdehnung der Abgasfahne konnte anhand der VOC-Profile nur sehr ungenau bestimmt werden. Sie lag in diesem Beispiel irgendwo zwischen 5 und 17 m Höhe. Grund für die ungenaue Bestimmung der Abgasfahnenhöhe ist die geringe vertikale Auflösung der VOC-Messungen. Würde mit diesen noch unsicheren Messwerten eine Bilanzierung durchgeführt werden, wären auch die Bilanzergebnisse mit einer sehr großen Unsicherheit behaftet. Aus diesem Grund wurden kontinuierliche VOC-Vertikalprofile aus den diskontinuierlichen VOC-Vertikalprofilen und aus den kontinuierlichen NO_x-Vertikalprofilen berechnet. Es wurde dabei ähnlich wie bei der Bestimmung der C_2-C_6-Vertikalprofile vorgegangen: Für jede VOC-Komponente wurde das Konzentrati-

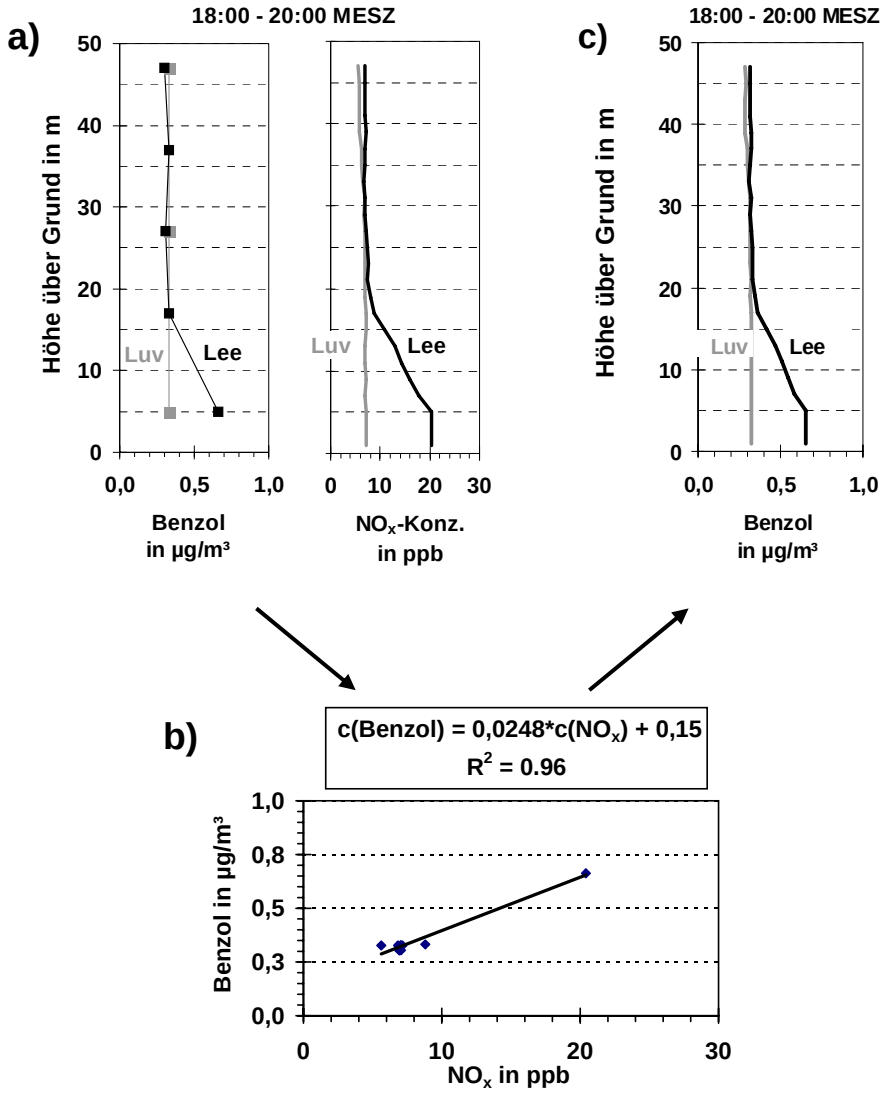


Bild 6.15: Vertikalprofile vom 18.5.2001, 18:00 bis 20:00 MESZ
a) Diskontinuierliches Benzol-Vertikalprofil, kontinuierliches NO_x-Vertikalprofil
b) Korrelationsdiagramm und -gleichung von Benzol über NO_x
c) "Kontinuierliches" Benzol-Vertikalprofil

onsverhältnis der Komponente zu NO_x für die Höhen bestimmt, in denen VOC-Konzentrationen vorlagen. Diese NO_x/VOC-Wertepaare wurden in einem x-y-Diagramm dargestellt und einer Korrelationsanalyse unterzogen. In Bild 6.15b ist dies beispielhaft für Benzol dargestellt. Meist ergab sich eine gute Korrelation, wie im dargestellten Fall mit $R^2 = 0{,}96$ zwischen Benzol und NO_x. Die so erhaltene Korrelationsgerade wurde verwendet, um aus den kontinuierlichen NO_x-Vertikalprofilen kontinuierliche VOC-Vertikalprofile zu berechnen. Bild 6.15c zeigt das Beispiel eines auf diese Weise bestimmten Benzolvertikalprofils.

Analog zum Vorgehen bei NO_x und CO wurde durch Anwendung der Gleichung 6.2 auf die nun kontinuierlichen VOC-Vertikalprofile die Quellstärke des Verkehrs auf der Autobahn für die einzelnen VOC-Komponenten berechnet. In die Berechnung gingen ein: die autobahnsenkrechte Komponente der horizontalen Windgeschwindigkeit und die Konzentration der betrachteten VOC-Komponente. Bild 6.16 zeigt die Ergebnisse dieser Quellstärken-Berechnungen für vier Messzeiträume am 8.5.2001 (4:45 – 7:45, 8:00 – 10:00, 17:00 – 19:00 und 20:00 – 22:00 MESZ) für die Komponenten Benzol, Toluol und i-Pentan. Des Weiteren wurde in diese Abbildung die Anzahl der Fahrzeuge des Leichtverkehrs (LDV) und Schwerverkehrs (HDV) eingetragen, welche in den dargestellten Zeiträumen die Messstellen passierten. Es ist zu erkennen, dass mit zunehmender Anzahl an Fahrzeugen auf der Autobahn auch die gemessenen VOC-Quellstärken zunahmen. Die Benzol-Quellstärke nahm z. B. Werte von 26,86 ± 8,06 g/(km*h) in der Zeit von 4:45 bis 7:45 MESZ, 34,17 ± 10,25 g/(km*h) in der Zeit von 17:00 bis 19:00 MESZ und 26,69 ± 8,01 g/(km*h) in der Zeit von 20:00 bis 22:00 MESZ an. Die Anzahl der Fahrzeuge verhielt sich entsprechend, mit den höchsten Fahrzeugzahlen im Zeitraum von 17:00 bis 19:00 und den niedrigsten Werten von 20:00 bis 22:00 MESZ. Auch die Toluol- und i-Pentan-Quellstärken verhielten sich entsprechend. Lediglich der Zeitraum von 8:00 bis 10:00 MESZ fiel aus der Reihe. Gemessen wurden hier die nied-

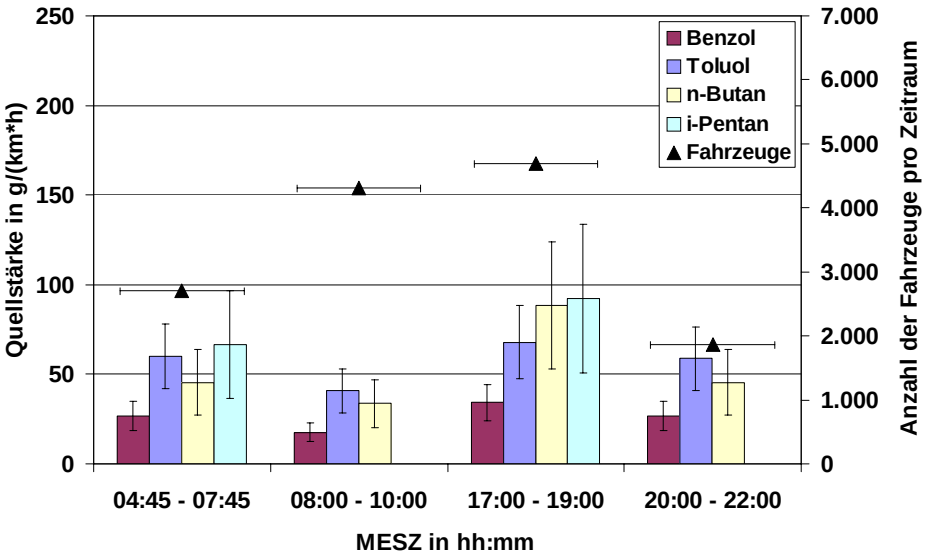


Bild 6.16: Quellstärke (in g/(km*h)) für Benzol, Toluol und i-Pentan am 8.5.2001, 4:45 – 7:45, 8:00 – 10:00, 17:00 – 19:00 und 20:00 – 22:00 MESZ; Verkehrsstärke (in Anzahl der Fahrzeuge pro Zeitraum) des Leichtverkehrs (LDV) und Schwerverkehrs (HDV)

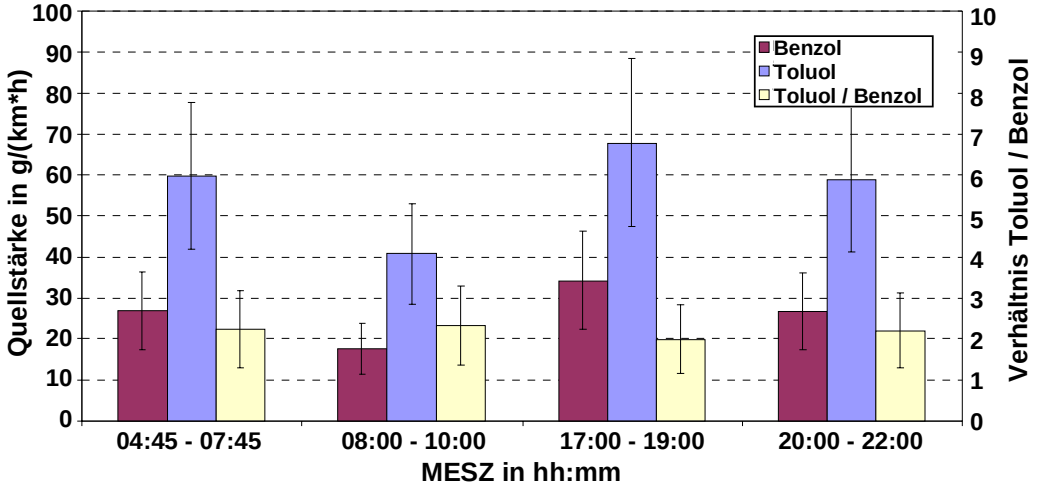


Bild 6.17: Quellstärke (in g/(km*h)) für Benzol und Toluol und das Verhältnis Toluol/ Benzol*10 am 8.5.2001, 4:45 – 7:45, 8:00 – 10:00, 17:00 – 19:00 und 20:00 – 22:00 MESZ

rigsten Quellstärken bei den höchsten Fahrzeugzahlen. Diese Diskrepanz konnte keinem besonderen Ereignis auf der Autobahn, wie z. B. einer Stausituation, zugeordnet werden, weshalb dieser Messzeitraum bei den weiteren Berechnungen nicht mehr berücksichtigt wurde. Die Daten wurden als Ausreißer behandelt. In Anhang 21a und 21b sind die berechneten Emissionsquellstärken für alle auswertbaren Zeiträume und VOC-Komponenten zusammengefasst.

In Bild 6.17 sind erneut die berechneten Quellstärken für Benzol und Toluol für die vier Messzeiträume am 18.5.2001 aufgetragen. Zusätzlich wurden aus den Quellstärken das Verhältnis Toluol/Benzol gebildet und in das Diagramm integriert. Das Massenverhältnis Toluol/Benzol ist ein charakteristischer Wert für Abgase aus dem Straßenverkehr. Trotz der sich ändernden Toluol- und Benzol-Quellstärken am betrachteten Tag blieb das Verhältnis mit einem Wert von 2,5 ± 1,1 annähernd konstant. Die Ergebnisse stimmen auch sehr gut mit den Literaturwerten überein [169], [93], [170].

Aus den Quellstärken der einzelnen Komponenten lassen sich durch Division mit der im betrachteten Messzeitraum auf der Autobahn gezählten Anzahl der Fahrzeuge die Emissionsfaktoren in mg pro Fahrzeug und pro km berechnen. In Tabelle 6.8 sind die VOC-Emissionsfaktoren für diejenigen Komponenten enthalten, die letztendlich im Projekt BAB II ausgewertet werden konnten.

6.2.10 Vergleich von Emissionsfaktoren für VOC (Flüchtige Organische Verbindungen)

Bild 6.18 zeigt beispielhaft für die Komponente Benzol die Quellstärke in g/(km*h) für 12 Messintervalle im Zeitraum vom 8. bis 18. Mai 2001 mit einer Dauer von zwei bis vier Stunden, die im Projekt BAB II gemessen bzw. über die Emissionsmodellierung bestimmt wurde. Im direkten Vergleich der gemessenen und modellierten Quellstärken kann man erkennen,

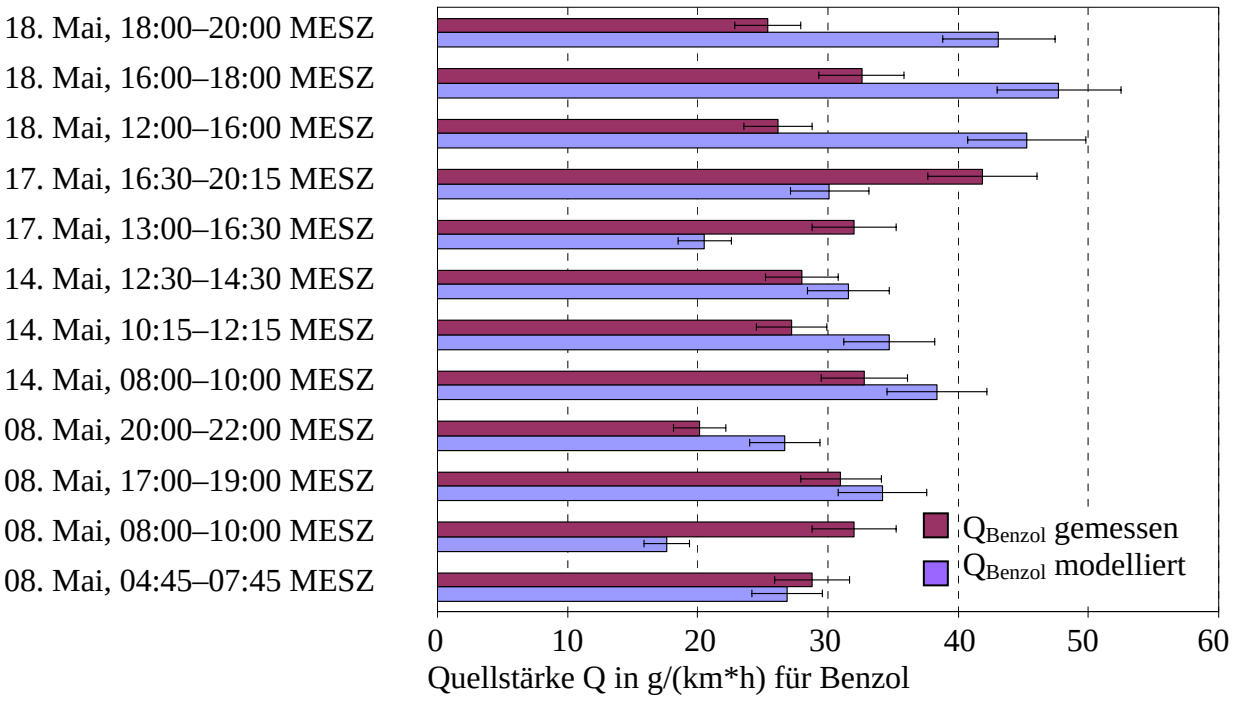


Bild 6.18: Vergleich der gemessenen Quellstärke von Benzol in g/(km*h) mit der modellierten für 12 Messzeiträume vom 8. bis 18. Mai 2001. Zusätzlich sind die Bandbreiten der Unsicherheiten für die Messungen und Berechnungen dargestellt.

dass die Einzelwerte starken Schwankungen unterworfen sind, d.h. die gemessenen Werte liegen teilweise weit über den modellierten, teilweise weit darunter. Über alle zwölf Zeiträume gemittelt liegen die gemessenen Werte um 18 % über den modellierten. Somit ergab sich für Benzol eine sowohl im Rahmen der Messunsicherheit als auch im Rahmen der Unsicherheit der Bestimmungsmethode, eine gute Übereinstimmung der beiden angewandten Methoden. In Bild 6.19 ist für weitere Flüchtige Organische Verbindungen (VOC) das Verhältnis von gemessener Quellstärke zu modellierter Quellstärke als Mittelwert über alle betrachteten zwölf Messintervalle dargestellt. Das Verhältnis von 1,0, das eine vollständige Übereinstimmung von gemessenen und modellierten Werten darstellt, ist als rote Linie in die Diagramme eingezeichnet. In Bild 6.19a ist deutlich zu erkennen, dass nur bei Benzol das Verhältnis nahe bei 1 liegt und somit kann man von einer Übereinstimmung der gemessenen und der modellierten Werte ausgehen.

Für die Komponenten Toluol, o- und m-/p-Xylol, Ethylbenzol und 1,2,4-Trimethylbenzol / Dekan wurden Abweichungen zwischen gemessenen und modellierten Quellstärken zwischen 50 und 100 % festgestellt (das entspricht einem Verhältnis von 1,5 bis 2). Auch unter Einbeziehung der Bandbreite der Unsicherheiten muss man von einem signifikanten Unterschied zwischen gemessenen und modellierten Werten ausgehen, da die Unsicherheitsbandbreiten den roten Balken, der eine Übereinstimmung markiert, nicht berühren. Für alle anderen Komponenten wurden sehr starke Abweichungen (von mehr als 100 %) festgestellt, wobei für die meisten Komponenten die gemessenen Werte zwischen 100 und 600 % (entspricht Faktor 2 bis 7) höher lagen als die modellierten. Für drei Komponenten (i-Butan,

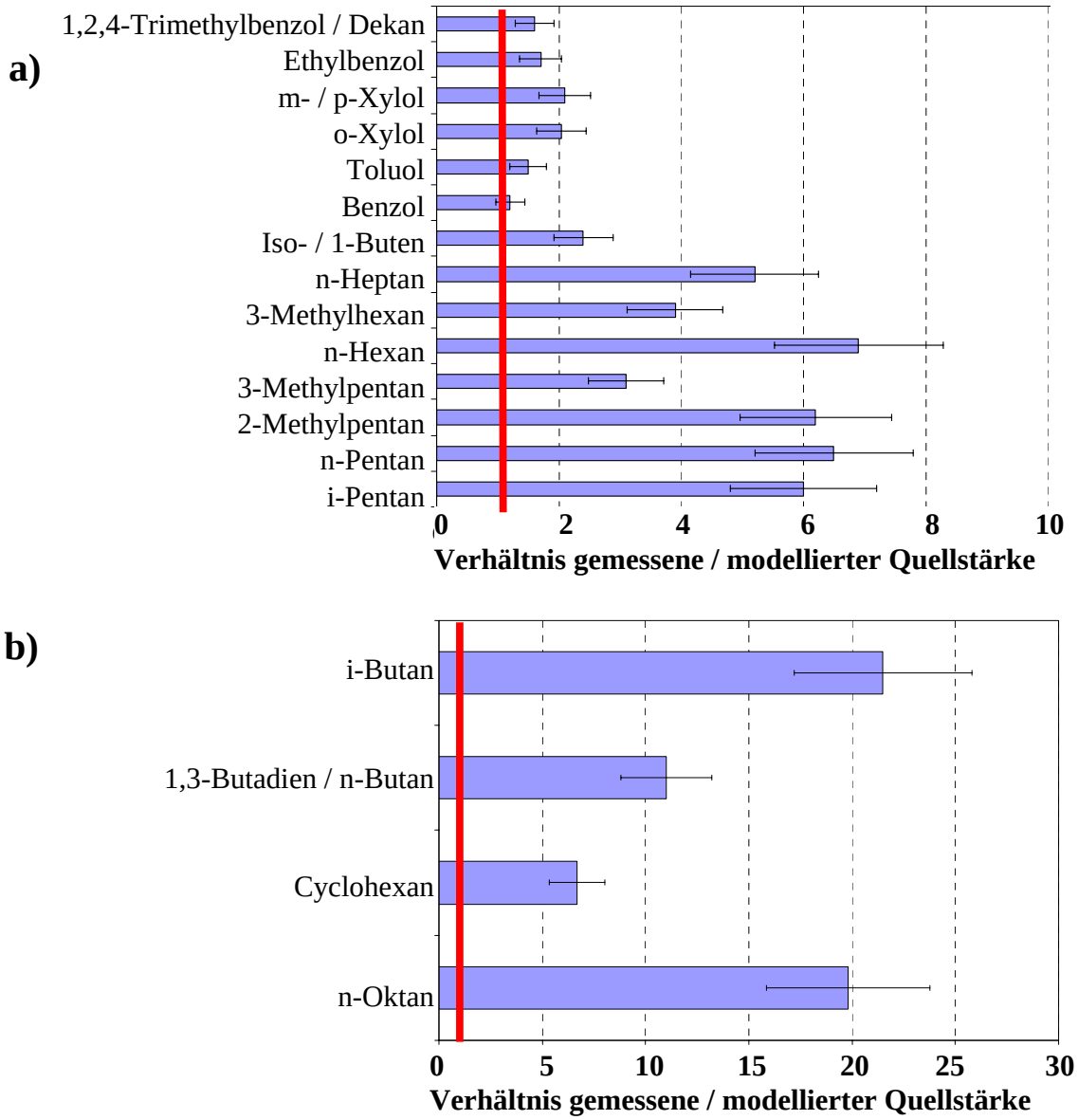


Bild 6.19: Verhältnis der gemessenen zur modellierten Quellstärke verschiedener flüchtiger organischer Verbindungen VOC für die Messzeiträume vom 8. bis 18. Mai 2001. Zusätzlich sind die Bandbreiten der Unsicherheiten für die Messungen und Berechnungen dargestellt.

1,3-Butadien /n-Butan, n-Oktan) lagen die gemessenen Quellstärken sogar bis zu 21 Mal höher als die modellierten. Diese Ergebnisse verdeutlichen eindrucksvoll, dass für viele VOC-Komponenten keine zufriedenstellende Emissionsfaktoren-Datenbasis existiert. Eine solche existiert nur für die BTX-Komponenten (Benzol, Toluol und Xylole). Dies spiegelt sich in der Tatsache wider, dass diese Komponenten im Handbuch für Emissionsfaktoren aufgenommen wurden und entsprechende Emissionsfaktoren hinterlegt sind. Für alle anderen VOC-Komponenten existieren in der Literatur nur ganz vereinzelt Daten, die als Eingabedaten für das Emissionsmodell des IER dienten. Dementsprechend groß sind die Unsicherheiten bei der Modellierung der Emissionen. So wurden im Projekt BAB II, abgesehen von den BTX-

Komponenten, die Emissionsfaktoren vom IER folgendermaßen berechnet: Die gesamten VOC-Emissionen (TVOC) wurden über das Handbuch für Emissionsfaktoren bestimmt [167], der VOC-Split, d.h. die Aufteilung in die einzelnen VOC-Komponenten, wurde der Literatur entnommen [171].

Ein anderer Grund für die enormen Abweichungen zwischen gemessenen und modellierten Emissionsfaktoren ist die Messunsicherheit. Einige der betrachteten Komponenten besitzen aufgrund der geringen Konzentrationen in der Außenluft, die sich teilweise in der Nähe der Nachweisgrenze bewegten, sehr hohe Messunsicherheiten. Dies wurde bei der Qualitätssicherung im Projekt BAB II vom Autor dieser Arbeit festgestellt und in [145] quantitativ dargelegt. Bei einigen VOC-Komponenten lag die Messunsicherheit im Bereich der gemessenen Differenzen zwischen Luv und Lee, was zu sehr unsicheren Bilanzierungsergebnissen führte und sich in größeren Unsicherheitsbandbreiten in Bild 6.19 widerspiegelt. Außerdem wurde bei früheren Untersuchungen festgestellt, dass die Zusammensetzung und Konzentrationen der emittierten VOC-Komponenten sehr stark vom Fahrverhalten, dem Alter der Fahrzeuge sowie dem Vorhandensein und Funktionieren des Katalysators abhängt [88].

In Tabelle 6.8 wurden die Emissionsfaktoren für verschiedene VOC-Komponenten, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, mit Emissionsfaktoren und weiteren Parametern, wie dem Anteil an Katalysatorfahrzeugen, sowie mit Werten aus der Literatur verglichen. Die Vergleichswerte stammen alle aus unterschiedlichen Tunnel-Studien aus den Jahren 1988 bis 2002. Die höchsten Emissionsfaktoren für alle Komponenten wurden im Jahre 1988 im Tauern-Tunnel bestimmt. Allerdings lag damals der Anteil der Katalysatorfahrzeuge bei 0, wodurch die hohen Werte der älteren Emissionsfaktoren erklärt werden. Im Laufe der Jahre nahm der Anteil der Katalysatoren bei Pkw mit Ottomotoren zu und folglich die Emissionsfaktoren ab. Im Gubrist-Tunnel wurde der Anteil der Katalysatorfahrzeuge an den Pkws mit Ottomotoren im Jahre 2002 zwischen 93,8 und 97,3 % bestimmt. Hingegen lag der Anteil im Projekt BAB II im Jahre 2001 bei ca. 85 %. Dies könnte u. a. ein Grund für die durchgehend höheren Werte der Emissionsfaktoren im Projekt BAB II im Vergleich zu den Messungen im Gubrist-Tunnel sein. Die gemessenen VOC-Emissionsfaktoren aus dem Projekt BAB II sind gut mit den Emissionsfaktoren vergleichbar, die 1997 im Tauern-Tunnel bestimmt wurden. Die gemessenen VOC-Emissionsfaktoren aus dem Söderleds-Tunnel bei Stockholm aus den Jahren 1998/1999 lagen hingegen sehr viel höher als die im Projekt BAB II gemessenen bzw. modellierten und auch sehr viel höher(um ca. Faktor 10) als die 2002 im Gubrist-Tunnel gemessenen Werte. Trotz der teils großen Abweichung zwischen den gemessenen und den modellierten VOC-Emissionsfaktoren im Projekt BAB II passen sich die Ergebnisse in die Literaturwerte ein.

Tabelle 6.8: Vergleich von Emissionsfaktoren in mg/km gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte) für ausgewählte VOC-Komponenten, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, mit Emissionsfaktoren, welche in Tunnel-Projekten ermittelt wurden. Weitere Daten: Literatur; die mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge; Anteil Katalysatoren (Pkw); HDV-Anteil; Steigung der Straße.

	Komponente	BAB II gemessen 2001	BAB II modelliert 2001	Gubrist-Tunnel (Zürich) 2002	Söderleds-Tunnel (Stockholm) 1998/1999	Tauern-Tunnel (Salzburg) 1997	Thiasis-Tunnel (Paris) 1996	Söderleds-Tunnel (Stockholm) 1995/1996	Tingstad-Tunnel (Göteborg) 1994	Gubrist-Tunnel (Zürich) 1993	Tauern-Tunnel (Salzburg) 1988
	Literatur	diese Diss. und [172]	diese Diss.	[169]	[27]	[22]	[173]	[27]	[174]	[18]	[22]
Emissionsfaktoren der VOC-Komponenten in mg/km	Benzol	9,1 ± 3,3	7,2	2,7 ± 0,3	17,3 ± 0,3	7,9 ± 2,0		20,6 ± 1,7	52	13,69	101 ± 10
	Toluol	19,3 ± 5,5	13,3	6,4 ± 0,8	67,3 ± 1,0	16,9 ± 4,8		76,5 ± 5,9	120	26,27	173 ± 17
	m- / p-Xylole	11,2 ± 4,1	5,3	4,0 ± 0,5	48,6 ± 0,8	12,1 ± 3,6			65	15,49	88 ± 6,6
	o-Xylol	4,1 ± 1,5	2,0	1,8 ± 0,2	19,6 ± 0,4	5,7 ± 1,5			24	7,76	33 ± 1,7
	Isobutan	5,3 ± 2,0	0,3	0,9 ± 0,1			15 ± 7				
	Isopentan	21,6 ± 3,8	3,6	6,2 ± 0,7			95 ± 43				
	n-Hexan	3,4 ± 1,3	0,5	0,6 ± 0,1		3,6 ± 1,0	3 ± 2			2,94	5,3 ± 1,8
	3-Methylpentan	1,6 ± 0,7	0,5	0,7 ± 0,1			5,7 ± 4			3,78	
	Ethylbenzol	4,2 ± 1,5	2,4	1,4 ± 0,2		3,6 ± 1,0			22	4,29	26,4 ± 1,6
	Toluol/Benzol	2,1	1,8	2,4	3,9	2,1		3,7	2,3	1,9	1,7
	Mittlere Fahrgeschw. in km/h	LDV: 113 ± 16 HDV: 86 ± 7,4		90 ± 7	75 ± 8	74 ± 5	~ 60	75 ± 8	~ 70	92	63 ± 14
	Anteil Kat.fahrzeuge (Pkw) in %	~ 85[a]		93,8 – 97,3[b]	60	67[b]	~ 5[b]		~ 60[b]	63 - 77[b]	~ 0[b]
	HDV-Anteil in %	4,5		7	5	17,6	6	5	~ 10	9	9
	Steigung der Straße in %	0,12		1,3	0,1/1,0/2,6	1,5	~ 0	0,1/1,0/2,6	-4 bis +4	1,3	1,5

[a] dem Zentralen Fahrzeugregister des Kraftfahrtbundesamts entnommen nach Kennzeichenerfassung während des Projekts BAB II

[b] geschätzt oder aus statistischen Erhebungen

6.2.11 Berechnung der Partikelemissionen aus Messungen

Bis dato gab es keine Untersuchung, in der Partikelemissionen einer Autobahn mit Hilfe von Vertikalprofilen untersucht wurden. Im Projekt BAB II kamen viele unterschiedliche Partikelmessgeräte mit unterschiedlichen Messprinzipien zum Einsatz, so dass die Partikelzusammensetzung in einem sehr großen Korngrößenbereich von Grobstäuben über Feinstäube bis hin zu Ultrafeinstäuben untersucht werden konnte. In Anhang 5 ist die umfangreiche Messtechnik aufgelistet, die verwendet wurde.

Bild 6.20 zeigt die Einsatzorte aller Messgeräte, die sich in unterschiedlichen Abständen zur Autobahn befanden. Am Boden existierten drei Standorte: am Fuße der beiden Messtürme und in 10 m Abstand zur Autobahn auf der Südseite. Zusätzlich wurden mehrere SMPSs *(Scanning Mobility Particle Sizers)* und OPCs *(Opticle Particle Counters* / Optische Partikelzähler*)* in unterschiedlichen Höhen an beiden Türmen eingesetzt. Die meisten dieser Geräte waren kontinuierlich über den gesamten Messzeitraum von Anfang bis Ende Mai 2001 im Einsatz. Während der SOPs *(Special Operation Periods)* wurden zusätzlich ein zwölfstufiger ELPI *(Electrical Low Pressure Impactor* / elektrischer Niederdruckimpaktor*)*, ein DC *(Diffusion Charging Particle Sensor)* und ein OPC im Aufzug an einem der beiden Messtürme eingesetzt, so dass an diesen Tagen Vertikalprofile von Partikeln aufgenommen werden konnten. Die Partikelmessgeräte wurden immer an dem Turm betrieben, der sich abhängig von der Windrichtung gerade im Lee der Autobahn befand, da Lee-Profile für die Bilanzierung von

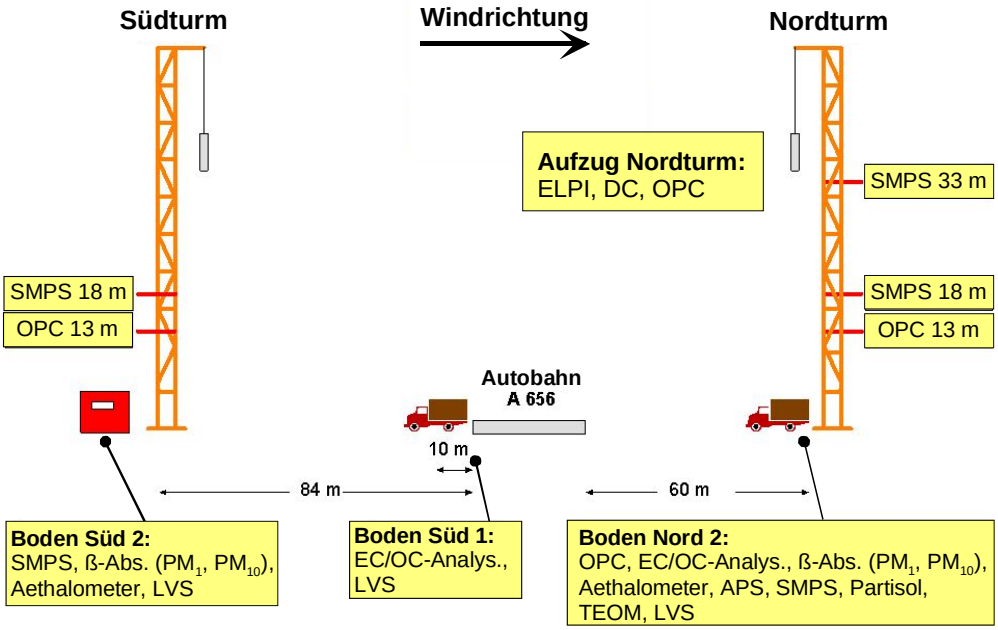


Bild 6.20: Schematische Darstellung der Verteilung der Partikel-Probennahmesysteme und Partikelmessgeräte während BAB II am Boden und in unterschiedlichen Höhen an beiden Messtürmen im Luv und Lee der Autobahn A 656; Messgeräte / Probennahmesysteme: SMPS - Scanning Mobility Particle Sizer, OPC - Optical Particle Counter, LVS - Low Volume Sampler, APS - Relaxation Time Spectrometer, ELPI - Electric Low Pressure Impactor, DC - Diffusion Charging Particle Sensor

Luftverunreinigungen von größerem Interesse waren als Luv-Profile, die meist keine großen vertikalen Gradienten aufwiesen. Mit Hilfe des ELPIs konnten Vertikalprofile über einen sehr großen Korngrößenbereich von 0,03 bis 10 µm aufgenommen werden [175], [176]. Der Diffusion Charging Particle Sensor (DC) lieferte Ergebnisse der aktiven Partikeloberfläche der untersuchten Partikel [176]. Beide Geräte sprechen mit einer Zeitkonstante von 1 Sekunde sehr schnell auf Konzentrationsänderungen an, was Voraussetzung für den Einsatz bei Vertikalprofilmessungen ist.

Die nachfolgenden Ergebnisse stammen alle aus der 4. SOP *(Special Operation Period)*, welche von 20:00 MESZ am 13. Mai bis 18:00 MESZ am 14. Mai stattfand (Zeitplan der SOPs in Anhang 14). In Bild 6.21a und 6.21b wurden Mittelwerte aus insgesamt 42 einzelnen Partikel-Vertikalprofilen für die folgenden drei Zeiträume gebildet: 13.05.2001 23:00 bis 24:00 MESZ, 14.05.2001 7:00 bis 10:00 MESZ und 11:00 bis 14:30 MESZ. Eine Zusammenfassung der meteorologischen Bedingungen und der Anzahl der Fahrzeuge auf dem betrachteten Autobahnabschnitt während der genannten Perioden ist in Anhang 25 zu finden. In Bild 6.21a sind Vertikalprofile der aktiven Partikeloberfläche (*Diffusion Charger* – DC) für die drei Zeiträume aufgezeigt. Am späten Abend des 13.05.2001 herrschten von 23:00 bis 24:00 MESZ östliche Winde mit Geschwindigkeiten von 2 m/s in Bodennähe und 6 m/s in 50 m Höhe vor. Somit befand sich der Nordturm, an dem die betrachteten Profile aufgenommen wurden, zu dieser Zeit im Luv der Autobahn. Das Vertikalprofil der aktiven Partikeloberfläche (DC) weist keinen vertikalen Gradienten auf. Die Werte liegen deutlich unter 50 µm²/cm³ und sind somit auf einem niedrigen Niveau. Im Laufe der Nacht drehte der Wind auf südliche Richtung, und während des folgenden Tages (14.05.2001) wurden fast ausnahmslos südliche bis südwestliche Richtungen gemessen, so dass sich der Nordturm, an dem die Partikelprofile aufgenommen wurden, in den beiden Zeiträumen von 7:00 bis 10:00 und von 11:00 bis 14:30 MESZ eindeutig im Lee der Autobahn befand. Beide Profile weisen erhöhte Werte in Bodennähe auf, verursacht durch die Emissionen der Autobahn. In ca. 20 bis 25 m Höhe wurden jedoch schon Luv-Werte gemessen, da kein vertikaler Gradient mehr vorhanden ist. Des Weiteren fällt auf, dass auch das Luv-Niveau, also Messwerte oberhalb der bodennahen Abgasfahne, tagsüber mit Werten zwischen 80 und 100 µm²/cm³ wesentlich höher liegt als in der Nacht (erstes Vertikalprofil).

In Bild 6.21b sind die Messergebnisse des elektrischen Niederdruckimpaktors (ELPI) dargestellt. Mit dessen Hilfe konnten räumlich hochaufgelöste Vertikalprofile für einen sehr großen Korngrößenbereich der Partikel von 0,03 bis 8 µm von ultrafeinen bis zu groben Partikeln aufgenommen werden. Auf der Abszisse sind die Partikeldurchmesser in logarithmischem Maßstab dargestellt, die Höhe auf der Ordinate. Die Konzentrationen sind als Flächen gleicher Anzahlkonzentration (1/cm³) in unterschiedlichen Farbabstufungen dargestellt. In allen drei Diagrammen ist sehr deutlich zu erkennen, dass die Anzahlkonzentration mit abnehmendem Partikeldurchmesser stark zunimmt. Wurden im Bereich von 8 µm Konzentrationen von 0,2 bis 2 1/cm³ gemessen, so sind dies bei 0,03 µm Werte zwischen 5.000 und 30.000 1/cm³. Im ersten betrachteten Zeitraum (23:00 bis 24:00 MESZ) sind auch in dieser Darstellung keine vertikalen Gradienten im Konzentrationsverlauf ersichtlich, wie auch schon bei den DC-Profilen. In den beiden folgenden Zeiträumen (7:00 bis 10:00 und 11:00 bis 14:30 MESZ)

a)

b)

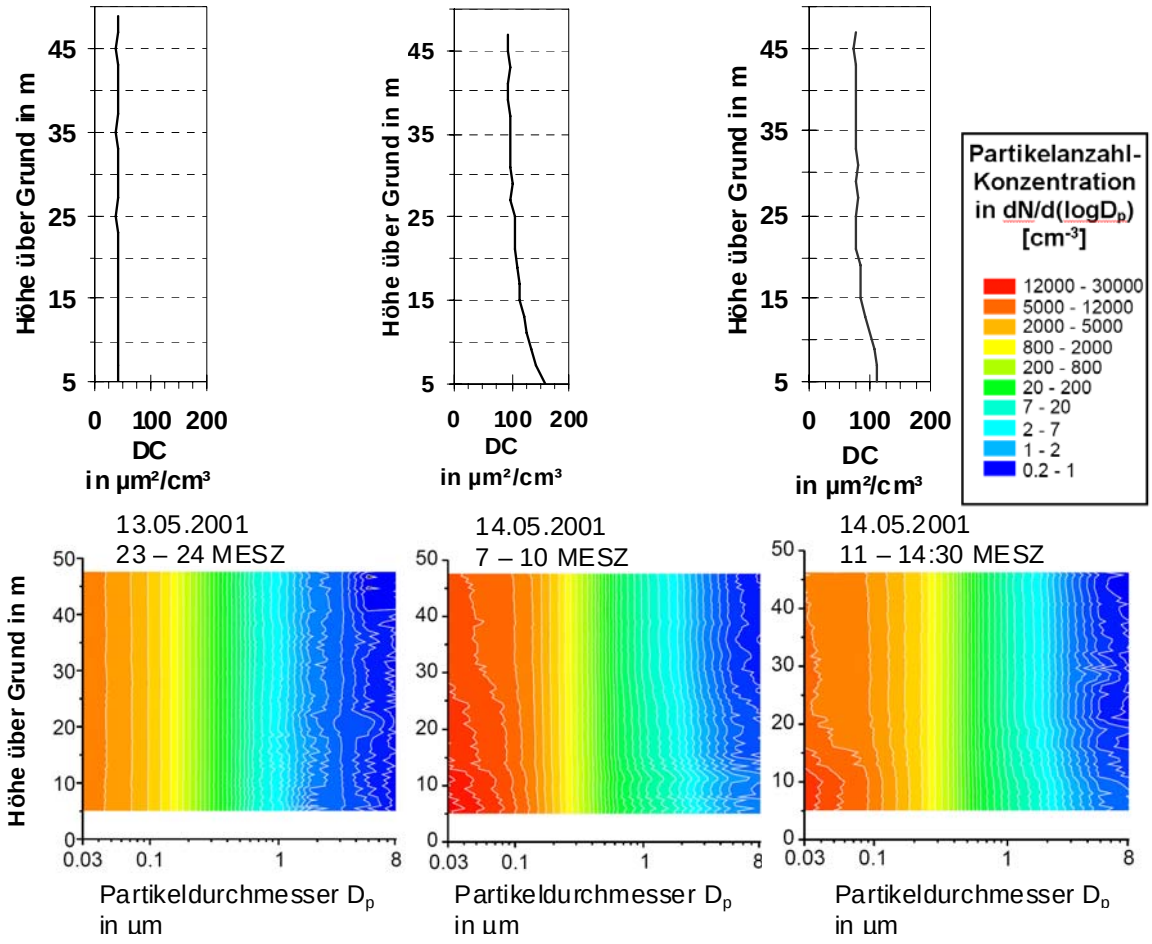


Bild 6.21: Partikel-Vertikalprofile aufgenommen am Nordturm für drei Mittelungszeiträume: 13.05.2001, 23:00 bis 24:00 MESZ; 14.05.2007, 7:00 bis 10:00 MESZ und 11:00 bis 14:30 MESZ
a) Aktive Partikeloberfläche der Partikel in µm²/cm³ gemessen mit einem *Diffusion Charger*
b) Partikelanzahlkonzentrationen aufgetragen in logarithmischem Maßstab dN/d(logD) in $1/cm^3$ für ultrafeine (> 0,03 µm) bis gröbere (< 8 µm) Partikeln, gemessen mit einem elektrischen Niederdruckimpaktor (ELPI)

sind dagegen sehr wohl vertikale Gradienten der Konzentrationen mit einem ähnlichen Verlauf wie die entsprechenden DC-Profile erkennbar, und zwar im Partikelgrößenbereich von 0,03 bis 0,2 µm sowie im Bereich von > 0,7 µm. Dazwischen ist im Bereich von 0,2 bis 0,7 µm kein vertikaler Konzentrationsgradient feststellbar. Der Grund dieser Zweiteilung der Abgasfahne der Autobahn liegt in der Tatsache, dass die gemessenen Partikel aus zweierlei Quellen stammen. Die erste Quelle stellen die Abgase der Fahrzeuge dar, hauptsächlich der Dieselfahrzeuge. Diese Partikel sind sehr klein und ursächlich für die erhöhten bodennahen Werte im Bereich von 0,03 bis 0,2 µm. Die zweite Quelle für Partikel sind der Abrieb (Straße, Reifen, Bremse, Kupplung) und die Wiederaufwirbelung der Partikel durch die fahrzeuginduzierte Turbulenz. Diese Partikel sind gröber als die der Abgase und verursachen ebenfalls erhöhte bodennahe Konzentrationen, jedoch im Bereich von > 0,7 µm. Im Bereich zwischen 0,2

bis 0,7 µm werden vom Verkehr nur wenige Partikel freigesetzt, deshalb konnte kein vertikaler Gradient festgestellt werden.

In Bild 6.22 sind die Ergebnisse der Vertikalsondierungen u. a. als Isoplethendiagramme dargestellt, welche am 14.05.2001 über den ganzen Tag (von 7:00 bis 18:00 MESZ) am Nordturm durchgeführt wurden. Die dargestellte Messkomponente ist die aktive Oberfläche von Partikeln in µm²/cm³, die mit einem Diffusion Charger (DC) gemessen wurde. Des Weiteren sind zwei Vertikalprofile (Einzelsondierung -> 5 Minuten) der aktiven Oberfläche dargestellt, die am Anfang (7:04 MESZ) und am Ende (17:38 MESZ) der betrachteten Periode aufgenommen wurden. Die Windpfeile zeigen an, dass während dieser Messperiode fast ausschließlich Winde aus südlicher Richtung wehten, wodurch sich der Nordturm im Lee der Autobahn befand. Ausgenommen ist der kurze Zeitraum von ca. 16:00 bis 16:30 MESZ, in dem der Wind auf Nord drehte und sich somit der Nordturm im Luv der Autobahn befand. Das linke Vertikalprofil weist relativ hohe Werte in Bodennähe von 200 µm²/cm³ auf. Mit zunehmender Höhe variieren die Werte und nehmen in ca. 38 m Luv-Niveau (ca. 90 µm²/cm³) an. Im Isoplethendiagramm in Bild 6.22a sind die 3-Sekundenmittelwerte dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die von den Fahrzeugemissionen der Autobahn unbeeinflussten Luv-Werte (Messwerte in größeren Höhen > 40 m) im Laufe des Tages auf 60 bis 80 µm²/cm³ abnahmen. Auch die Vertikalverteilung der Partikel ist sehr inhomogen, wie es schon zuvor für NO_x festgestellt wurde. Es wurden auch immer wieder in größeren Höhen höhere Werte gemessen, d. h. einzelne Luftpakete, die mit Emissionen der Autobahn beladen waren, gelangten in größere Höhen und verursachten dort die erhöhten Messwerte. Das Partikel-Vertikalprofil, das um 17:38 MESZ aufgenommen wurde (Bild 6.22a rechts), zeigt viel geringere Werte als das morgendliche Profil (Bild 6.22a links). Bodennah lagen die Werte knapp über 100 µm²/cm³, und schon in 8 m über Grund wurden Luv-Werte von 70 bis 80 µm²/cm³ gemessen. Die Abgasfahne der Autobahn konnte also auch mit dem *Diffusion Charger* sehr deutlich erfasst werden. Die Differenz zwischen den Lee-Werten in Bodennähe und den unbeeinflussten Werten in größeren Höhen ist eindeutig auf das Vorhandensein der Abgasfahne der Autobahn zurückzuführen. Die Höhe der Abgasfahne variiert ständig und ist abhängig von der Stabilität der Atmosphäre, den aktuellen Windbedingungen und nicht zuletzt von den stoßweise freigesetzten Emissionen der Fahrzeuge auf der Autobahn, welche das Untersuchungsgebiet meist in Pulks passierten. Der Darstellung in Bild 6.22b liegen die 1-Stundenmittelwerte zu Grunde. Es ist deutlich zu erkennen, dass die bodennah gemessenen Werte von anfänglich 200 µm²/cm³ um 8:00 MESZ im Laufe des Tages (ab 13:30 MESZ) auf < 100 µm²/cm³ abfielen. In größeren Höhen wurden, wie bei den 3-Minutenwerten, geringere Werte gemessen als in Bodennähe. In Bild 6.22c ist die Abgasfahne des Autobahnverkehrs nochmals deutlich hervorgehoben (farbige Flächen), indem die Differenzen zwischen den Lee- und Luv-Werten gebildet wurden. In Ermangelung echter Luv-Messwerte wurden diese aus den Lee-Werten in größeren Höhen (> 35 m) bezogen und konstant für die gesamte Messhöhe im Luv angenommen.

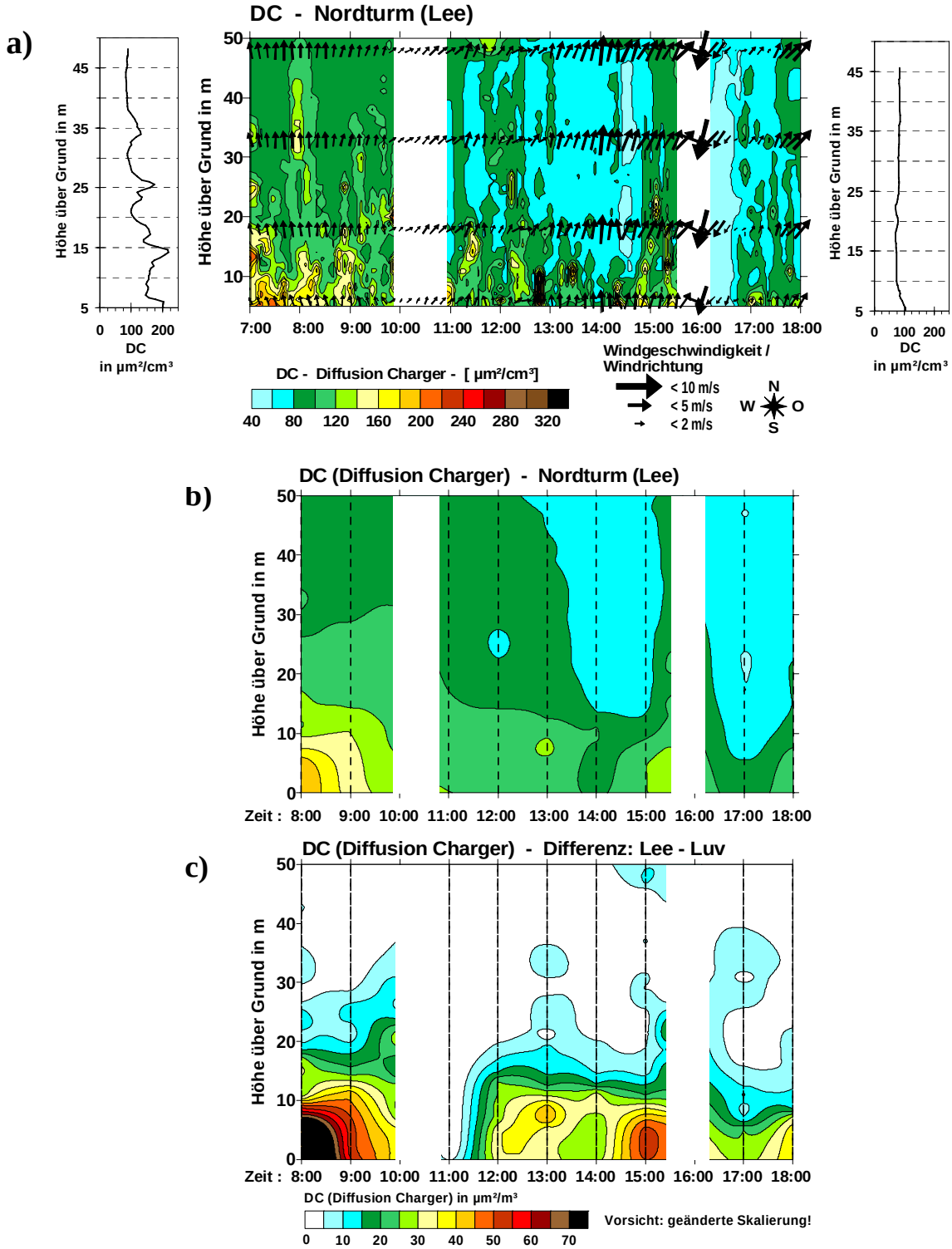


Bild 6.22: Partikel-Isoplethendiagramme der aktiven Oberfläche von Partikeln, gemessen mit einem Diffusion Charger (DC) und Windpfeildiagramm; Messzeitraum: 7:00 bzw. 8:00 bis 18:00 MESZ am 14.05.2001 am Nordturm

a) Partikel-Isoplethendiagramm (Mitte - zeitliche Auflösung: 3 Sekunden); Partikel-Vertikalprofile (aktive Oberfläche) um 7:04 MESZ (links) und um 17:38 MESZ (rechts)

b) Partikel-Isoplethendiagramm (zeitliche Auflösung: 1 Stunde)

c) Partikel-Isoplethendiagramm (zeitliche Auflösung: 1 Stunde) als Differenz zwischen Luv- und Lee-Werten -> Darstellung der Abgasfahne der Autobahn

Analog zu der in Kapitel 6.2.1 beschriebenen Vorgehensweise und der Berechnung der NO_x-Emissionen in Kapitel 6.2.4 wurden, wie nachfolgend dargestellt, die Emissionen aus den Partikelvertikalprofilen für verschiedene Partikelfraktionen und –kenngrößen berechnet. Zur Bilanzierung der Partikel eigneten sich insgesamt 18 bzw. 12 Stunden, in denen geeignete Messbedingungen herrschten oder Vertikalprofilmessungen mit den Aufzügen durchgeführt wurden. In Bild 6.23a wurden aus den Vertikalprofilen dieser 18 Stunden mittlere Vertikalprofile für Luv und Lee erstellt. Aus den Messungen mit dem *Diffusion Charger (DC)* konnte

- die aktive Oberfläche der emittierten Partikel bestimmt werden,

aus den Messungen mit Hilfe des elektrischen Niederdruckimpaktors (ELPI) konnten Emissionsfaktoren

- sowohl für die Partikelanzahl (N_{10}) pro cm³ (0,029 µm < D10 < 10 µm)
- als auch für Partikelvolumina ($V_{0.25}$, $V_{0.64}$ und V_1), welche Volumina für Partikel kleiner 0,25, 0,64 bzw. 1,0 µm Durchmesser darstellen. Im ELPI werden die Partikel größenabhängig gezählt. Durch die Annahme, dass es sich um runde Partikel handelt, konnte mit Hilfe einer Einheitsdichte auf das Partikelvolumen umgerechnet werden.

Die Abgasfahne des Verkehrs auf der Autobahn ist auch hier wieder deutlich zu erkennen. Die Lee-Werte der aktiven Partikeloberfläche (DC) beispielsweise waren bodennah mit 115 µm²/cm³ ca. doppelt so hoch wie im Luv, wo 60 µm²/cm³ gemessen wurden. Mit zunehmender Höhe nahmen, wie schon zuvor erläutert, die Lee-Konzentrationen ab,. Über Regressionsberechnungen, in die die Einzelergebnisse der Massenbilanzierungen über die zur Verfügung stehenden 18 bzw. 12 Stunden und die Anzahl der Fahrzeuge eingingen, konnten die Emissionsfaktoren pro Fahrzeug berechnet werden. Durch Anwendung von Multiplen Regressionsberechnungen wurde für einige Komponenten zusätzlich eine Zuordnung der Emissionsfaktoren zum Leichtverkehr (LDV) bzw. Schwerverkehr (HDV) ermöglicht. Liegen die Emissionsfaktoren für LDV und HDV in einer ähnlichen Größenordnung, lassen sie sich rein statistisch nicht voneinander unterscheiden. Die Regressionsberechnung liefert zwar trotzdem einen Zusammenhang zwischen LDV- und HDV-Emissionsfaktoren, ein anschließend durchgeführter t-Test gibt allerdings Aufschluss darüber, ob der Zusammenhang auch statistisch signifikant oder nur rein zufällig ist. Ergab der t-Test einen zufälligen Zusammenhang, so wurde nur ein Emissionsfaktor für alle Fahrzeuge EF_{Alle} angegeben (siehe Anhang 22). Bild 6.23b verdeutlicht die Abhängigkeit der Emissionsfaktoren (aktive Oberfläche) vom Anteil des Schwerverkehrs. Mit zunehmendem Anteil des Schwerverkehrs am Fahrzeugkollektiv nimmt auch der Emissionsfaktor pro Fahrzeug zu. Der Zusammenhang ist eindeutig gegeben, wobei größere Streuungen der Einzelwerte zu größeren Standardabweichungen der Ergebnisse führen. Berechnet wurden die folgenden Partikel-Emissionsfaktoren:

Tabelle 6.9: Partikel-Emissionsfaktoren pro Fahrzeug und Standardabweichung für die aktive Partikeloberfläche (aus DC-Messungen), die Partikelanzahl (N_{10}) und die Partikelvolumina ($V_{0,25}$, $V_{0,64}$ und V_1) getrennt nach Leichtverkehr (LDV), Schwerverkehr (HDV) und alle Fahrzeuge insgesamt; statistische Kenngrößen F_{krit}, F-Wert, t_{min} und t-Wert; n - Anzahl der Stundenmittelwerte, die der Berechnung zugrunde lagen. *Kursiv: Werte mussten verworfen werden.*

Partikeloberfläche	**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in cm²/km**
Leichtverkehr - LDV	$EF_{LDV} = 8.100 \pm 1.700$
Schwerverkehr - HDV	$EF_{HDV} = 69.000 \pm 23.700$
alle Fahrzeuge	$EF_{Alle} = 12.500 \pm 3.300$
Partikelanzahl N_{10}	**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in Partikel/km**
Leichtverkehr - LDV	$EF_{LDV} = 1{,}22 * 10^{14} \pm 0{,}49 * 10^{14}$
Schwerverkehr - HDV	$EF_{HDV} = 7{,}79 * 10^{14} \pm 6{,}32 * 10^{14}$
alle Fahrzeuge	$EF_{Alle} = 1{,}80 * 10^{14} \pm 0{,}42 * 10^{14}$
Partikelvolumen $V_{0,25}$	**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in cm³/km**
Leichtverkehr - LDV	$EF_{LDV} = 0{,}03 \pm 0{,}02$
Schwerverkehr - HDV	$EF_{HDV} = 0{,}41 \pm 0{,}26$
alle Fahrzeuge	$EF_{Alle} = 0{,}06 \pm 0{,}04$
Partikelvolumen $V_{0,64}$	**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in cm³/km**
Leichtverkehr - LDV[1]	*$EF_{LDV} = 0{,}03 \pm 0{,}02$*
Schwerverkehr – HDV[1]	*$EF_{HDV} = 0{,}41 \pm 0{,}26$*
alle Fahrzeuge	$EF_{Alle} = 0{,}07 \pm 0{,}02$
Partikelvolumen V_1	**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in cm³/km**
Leichtverkehr – LDV[1]	*$EF_{LDV} = 0{,}09 \pm 0{,}02$*
Schwerverkehr – HDV[1]	*$EF_{HDV} = 0{,}15 \pm 0{,}28$*
alle Fahrzeuge	$EF_{Alle} = 0{,}09 \pm 0{,}02$

Die berechneten Emissionsfaktoren als Ergebnis der Massenbilanzierung und der Regressionsanalyse für Partikel sind in Tabelle 6.9 zusammengefasst. Des Weiteren ist die Standard-

[1] EF_{LDV} und EF_{HDV} unterscheiden sich nicht stark genug, als dass eine Aufteilung möglich wäre. Die Überprüfung mit dem t-Test ergab einen zu geringen t-Wert -> EF_{LDV} und EF_{HDV} müssen verworfen werden, nur die Angabe von EF_{Alle} ist möglich.

abweichung angegeben. Diese wurde durch die Streuung der Einzelwerte, aber auch durch die relativ geringe Anzahl von 18 bzw. 12 Datensätzen verursacht, die für die Auswertung zur Verfügung standen. Allen berechneten Emissionsfaktoren ist gemein, dass der Schwerverkehr (HDV) ein Vielfaches des Leichtverkehrs (LDV) emittiert. Dies rührt einerseits von der Tatsache her, dass die Motoren des Schwerverkehrs eine größere Leistung besitzen und somit mehr Abgase emittieren als PKW und leichte Nutzfahrzeuge. Andererseits handelt es sich bei den Motoren des Schwerverkehrs fast ausschließlich um Dieselmotoren, wogegen Dieselmotoren beim Leichtverkehr nur einen Anteil von ca. 20 % ausmachen [124]. Partikel werden aber hauptsächlich von Dieselmotoren emittiert und nur zu einem geringen Anteil von Ottomotoren.

Außer den zuvor beschriebenen Messgeräten zur Bestimmung der aktiven Partikeloberfläche

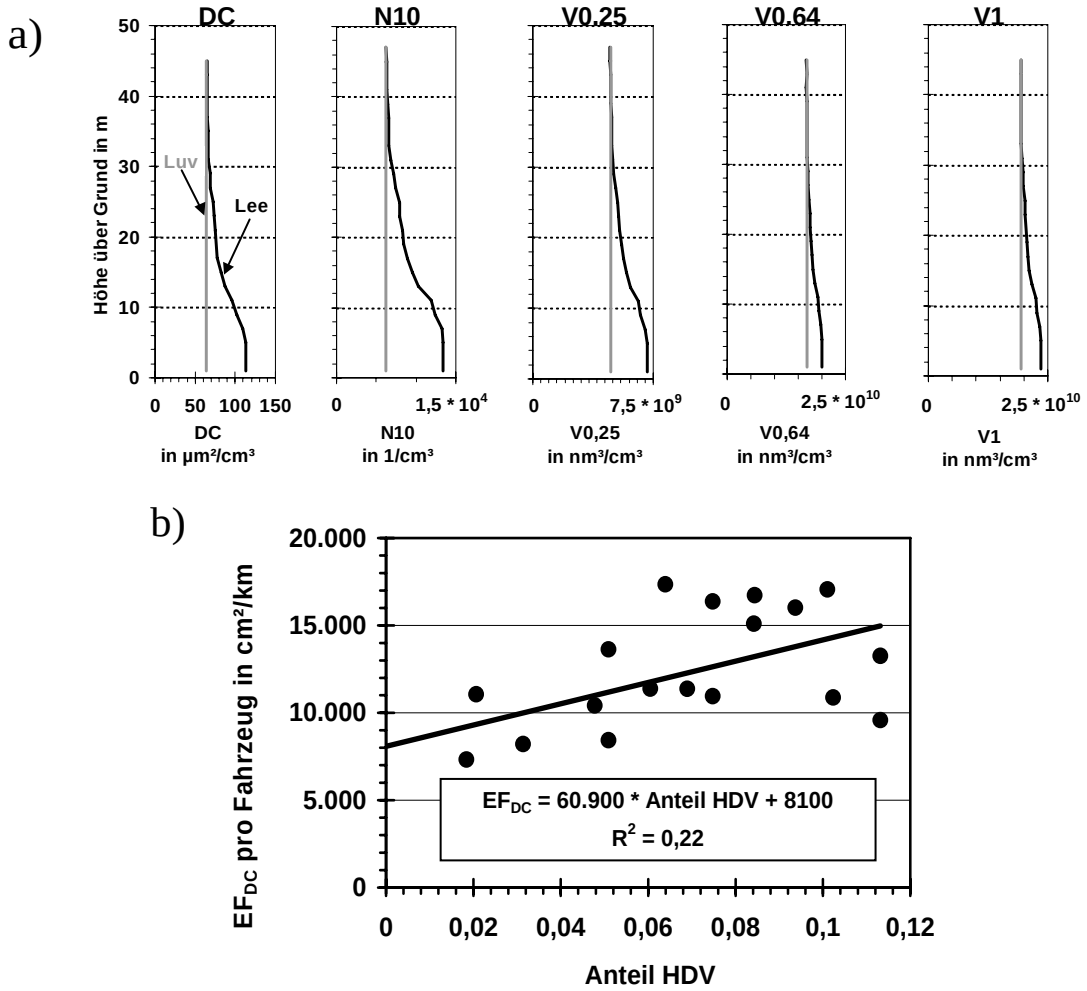


Bild 6.23: a) Vertikalverteilung der aktiven Oberfläche von Partikeln gemessen mit einem Diffusion Charger (DC) als Mittelwert über den Bilanzierungszeitraum von 18 Stunden; weitere Parameter als Mittelwert von 12 Messstunden: N_{10} – Partikelanzahl, $V_{0,25}$ – Partikelvolumina pro cm³ (0,029 < D < 0,25 µm), $V_{0,64}$ – Partikelvolumina pro cm³ (0,029 < D < 0,64 µm), V_1 – Partikelvolumina pro cm³ (0,029 < D < 1 µm)

b) Darstellung der Emissionsfaktoren pro Fahrzeug der aktiven Oberfläche (EF_{DC}) in Abhängigkeit vom Schwerverkehrsanteil (HDV)

und den Partikelzählern, waren auch Beta-Staubmeter und PM_{10}- und $PM_{2,5}$-Partikelsammler (24-Stundenproben) im Einsatz, mit deren Hilfe die PM_{10}-, $PM_{2,5}$- und PM_1-Konzentrationen im Luv und Lee der Autobahn gemessen wurden. Bei der Auswertung dieser Messergebnisse musste jedoch festgestellt werden, dass die Differenzen zwischen Luv und Lee der Autobahn auch bei eindeutigen Luv-Lee-Windsituationen sehr gering waren und zudem offensichtlich andere Partikelemissionsquellen in unmittelbarer Umgebung eine Rolle spielten, so dass eine differenzierte Bestimmung der massenbezogenen Partikelemissionsfaktoren für PM_{10}, $PM_{2,5}$ und PM_1 zu keinen sinnvollen Ergebnissen geführt hätte.

6.2.12 Vergleich von Emissionsfaktoren für Partikel

Die Ergebnisse der im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Bestimmung der Partikel-Emissionsfaktoren pro Fahrzeug für die aktive Oberfläche, die Partikelanzahl und verschiedene Partikelvolumina sind in Tabelle 6.10 dargestellt und Literaturwerten gegenübergestellt. Ein Vergleich mit modellierten Emissionsfaktoren im Projekt BAB II konnte nicht durchgeführt werden, da über das Emissionsmodell lediglich PM_{10}-Emissionsfaktoren bestimmt werden konnten. Ein Vergleich der partikelanzahlbezogenen Emissionsfaktoren mit Literaturwerten ist aus folgenden Gründen mit Vorsicht zu bewerten: Je kleiner die Fraktionen der betrachteten Partikel, desto stärker nimmt die Anzahl der Partikel in der jeweiligen Fraktion zu. Das Maximum der Partikelanzahl ist im Bereich von 20 nm zu erwarten [158]. Partikelzähler besitzen jedoch einen *Cut-off* genannten minimalen Messbereichsendwert, unterhalb dessen Partikel nicht mehr erfasst werden. Werden nun die Ergebnisse von Geräten mit unterschiedlichem *Cut-off* verglichen, so können bei gleichen Anzahlkonzentrationen sehr unterschiedliche Ergebnisse erzielt werden. Zudem haben die Erfahrungen bei der Qualitätssicherung im Projekt BAB II gezeigt, dass besonders bei Partikelmessgeräten der Abgleich der Messgeräte, der bei identischen Konzentrationen auch für identische Ergebnisse sorgt, nur mit sehr großem Aufwand zu erzielen ist. Beim Vergleich der Ergebnisse unterschiedlicher Projekte wird normalerweise kein Abgleich durchgeführt, weshalb mit größeren Abweichungen der Ergebnisse zu rechnen ist.

Allen unterschiedlichen Partikelparametern, deren Emissionsfaktoren in den Tabellen 6.10 bis 6.13 dargestellt sind, ist gemein, dass der Schwerverkehr (HDV) ein Vielfaches des Leichtverkehrs (LDV) emittiert. In Tabelle 6.10 sind die Ergebnisse der Messungen, die mit dem *Diffusion Charger* durchgeführt wurden, und die daraus berechneten Emissionsfaktoren der aktiven Partikeloberfläche in cm²/km dargestellt. Diese Ergebnisse aus dem Projekt BAB II sind Literaturwerten gegenübergestellt. Es fand sich zum Vergleich nur eine Literaturstelle, die Emissionsfaktoren für die aktive Oberfläche von Partikeln beinhaltet [165]. Diese Messungen wurden in den Jahren 2001 und 2002 in der Schweiz durchgeführt und sind somit sehr gut mit den Ergebnissen des Projekts BAB II vergleichbar, da aufgrund der zeitlichen Übereinstimmung der Projekte und der räumlichen Nähe der Messorte keine allzu großen Unterschiede in den Fahrzeugkollektiven anzunehmen sind. Zudem lagen zwei der Messstandorte (Birrhard und Humlikon) an Außerortsstraßen mit ähnlich hohen Fahrgeschwindigkeiten (120 / 85 km/h bzw. 85 / 75 km/h) wie im Projekt BAB II (120 / 85 km/h). Im Projekt BAB II emittierten die Fahrzeuge des Schwerverkehrs (HDV) mit 69.000 cm²/km das 8,5-fache des

Tabelle 6.10: Vergleich von Partikel-Emissionsfaktoren (**aktive Partikeloberfläche**) für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden; mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge; Literaturangaben

Studie / Projekt		**Emissionsfaktoren EF pro Fahrzeug**			**Geschw. km/h LDV/ HDV**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**		
Partikeloberfläche in cm²/km						
A	**BAB II – Aufzugmessungen, 2001**	**8.100 + 1.700**	**69.000 + 23.700**	**12.500 + 3.300**	**113/86**	**[159]**
A	Birrhard, 2001	1.000 + 900	40.000 + 11.500	4.100 + 1.300	120/85	[165]
A	Humlikon, 2001	-	-	2.000 + 1.600	85/75	[165]
A	Zürich-Weststraße, 2002	300 + 100	19.500 + 1.800	1.500 + 200	0-50	[165]

A… Experiment in der freien Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

Leichtverkehrs (LDV), die wiederum im Durchschnitt Partikel mit einer aktiven Oberfläche von 8.100 cm²/km emittierten. Die höchsten Emissionsfaktoren wurden im Projekt BAB II bestimmt, wobei die Emissionsfaktoren der drei Messungen, die in der Schweiz durchgeführt wurden, in der gleichen Größenordnung lagen. Die niedrigsten Werte für alle Fahrzeugkategorien wurden in Zürich in der Weststraße gemessen. Allerdings handelte es sich bei diesem Messpunkt um einen innerörtlichen Standort, weshalb die Fahrgeschwindigkeiten mit 0 bis 50 km/h auf vergleichsweise niedrigem Niveau lagen. Partikelemissionen nehmen üblicherweise mit zunehmender Geschwindigkeit zu (siehe auch Tabelle 6.11). Dort sind auch die Emissionsfaktoren der Partikelanzahl in Partikel/km getrennt für den Leichtverkehr (LDV), den Schwerverkehr (HDV) und die gesamte Flotte dargestellt. Wie schon erwähnt, ist besonders bei der Partikelanzahl die Kenntnis des *Cut-offs* der Partikelmessgeräte von besonderer Bedeutung, da hiervon die Ergebnisse stark beeinflusst werden. Wie in Tabelle 6.11 ersichtlich ist, hatten nicht alle Messgeräte, deren Ergebnisse in dieser Tabelle verglichen werden, einen identischen *Cut-off*. Das Messgerät, das im Projekt BAB II im Einsatz war, hatte den *Cut-off* bei 29 nm. Die Messgeräte in den vier folgenden Messorten in Härkingen, Birrhard, Humlikon und Zürich-Weststraße hatten einen *Cut-off* von 7 nm. Die Messgeräte, die im Söderleds-Tunnel in Stockholm im Einsatz waren, hatten einen *Cut-off* von 3 bzw. 10 nm, ebenso wie das Messgerät im Caldecott-Tunnel (10 nm). Die Messgeräte im Kingsway- und Plabutsch-Tunnel besaßen einen *Cut-off* von 16 nm.

Beim Vergleich der Emissionsfaktoren lässt sich wiederum feststellen, dass die Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs (HDV) um ein Vielfaches über denen des Leichtverkehrs (LDV) lagen. Beim Projekt BAB II ergab sich ein Verhältnis der Emissionsfaktoren LDV/HDV von

Tabelle 6.11: Vergleich von Partikel-Emissionsfaktoren (**Partikelanzahl*10^{14}/km**) für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden; mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge; Literaturangaben

Studie / Projekt und *Cut-off* der Messgeräte		**Emissionsfaktoren EF pro Fahrzeug**			**Geschw. km/h LDV/ HDV**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**		
Partikelanzahl in Partikel*10^{14}/km						
A	**BAB II – Aufzugmessungen, 2001 $N_{29nm-10\mu m}$**	**1,22 ± 0,49**	**7,79 ± 6,32**	**1,80 ± 0,42**	**113/86**	**[159]**
A	Härkingen, 2004 $N_{7nm-3\mu m}$	-	-	7,9	116/86	[107]
A	Birrhard, 2001 $N_{>7nm}$	6,9 ± 0,4	73 ± 3	13,5 ± 0,9	120/85	[165]
A	Humlikon, 2001 $N_{>7nm}$	3,2 ± 0,3	69 ± 2	11,7 ± 0,6	85/75	[165]
A	Zürich-Weststraße, 2002 $N_{>7nm}$	0,8 ± 0,09	55 ± 1	3,86 ± 0,18	0-50	[165]
A	Kopenhagen, 2002 $N_{10-700nm}$	-	-	2,8 ± 0,5	30-40	[177]
A	Brisbane, 2002 $N_{15-700nm}$	-	-	1,8 – 2,8	100	[178] [179]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1998/1999 $N_{>3nm}$	-	-	2,7 ± 1,1	70	[27]
		-	-	3,3 ± 1,4	75	
		-	-	5,4 ± 3,4	80	
		-	-	11 ± 5,7	85	
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1998/1999 $N_{>10nm}$	1,1 – 5,9	59	-	48 und 85	[180]
T	Caldecott-Tunnel (California), 1997 $N_{>10nm}$	0,41	25	-	60-90/65	[181] [182]
T	Kingsway-Tunnel, 2003 $N_{16-730nm}$	0,59 ± 0,11	6,84 ± 1,24	1,26 ± 0,10	65	[31]
T	Plabutsch-Tunnel, 2001 $N_{16-730nm}$	0,59 ± 0,09	3,94 ± 0,31	1,50 ± 0,08	80-120	[31]

A… Experiment in der freien Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

ca. 6. Im Vergleich dazu lagen die Verhältnisse bei den meisten der Vergleichsmessungen aus der Literatur höher, bis zu einem Faktor von 60 im Caldecott-Tunnel. Die meisten der in der Literatur genannten Emissionsfaktoren für HDV und die gesamte Flotte lagen höher als die im Projekt BAB II gemessenen. Dies könnte sich allerdings mit dem relativ hohen *Cut-off* des Messgeräts, das in BAB II verwendet wurde, erklären lassen. Mit diesem Messgerät wurden die emittierten Partikel u. U. nicht vollständig erfasst. Die Messungen, die im Kingsway-Tunnel im Jahre 2003 und im Plabutsch-Tunnel im Jahre 2001 durchgeführt wurden, stimmen allerdings sehr gut mit den im Projekt BAB II bestimmen Emissionsfaktoren überein. Der *Cut-off* lag bei diesen Messgeräten bei 16 nm und somit ebenfalls höher als bei den Messgeräten der anderen Vergleichsprojekte. Anhand der Messungen, die im Söderleds-Tunnel in Stockholm durchgeführt wurden, lässt sich deutlich die Zunahme der Partikel-Emissionsfaktoren mit zunehmender Geschwindigkeit erkennen. Bei einer mittleren Geschwindigkeit von 70 km/h wurden gemittelt über die gesamte Fahrzeugflotte $2{,}7*10^{14}$ Partikel pro Fahrzeug und Kilometer emittiert. Bei 85 km/h stieg der Emissionsfaktor auf einen Wert von $11*10^{14}$ Partikel pro Fahrzeug und Kilometer an, den vierfachen Wert. Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass sich trotz der erwähnten Schwierigkeiten beim Vergleich der Messergebnisse unterschiedlicher Projekte die im Projekt BAB II bestimmten Emissionsfaktoren der Partikelanzahl sehr gut mit Literaturwerten vergleichen lassen.

In den Tabellen 6.12 und 6.13 ist ein Vergleich der Partikel-Emissionsfaktoren auf Volumenbasis – $V_{0,3}$ bzw. $V_{0,25}$ und $V_{0,64}$ bzw. $V_{0,7}$ – dargestellt, d.h. es wurden die Emissionsfaktoren der Partikelvolumina in cm³/km berechnet. Die Angaben 0,3; 0,25; 0,61 und 0,7 beziehen sich auf die obere Grenze der betrachteten Partikeldurchmesser. Im Falle des Partikelmessgerätes, das sich im Projekt BAB II im Einsatz befand, wurden für die Fraktion $V_{0,3}$ Partikel mit einem Durchmesser zwischen 0,029 und 0,3 µm betrachtet. Bei den Partikelvolumina spielt der *Cut-off* keine so entscheidende Rolle wie bei der Betrachtung der Partikelanzahl, da größere Partikel ein viel größeres Volumen besitzen als kleinere und die geringere Anzahl der größeren Partikel überkompensiert wird. Der HDV-Emissionsfaktor, der im Projekt BAB II für die Fraktion $V_{0,25}$ mit 0,41 cm³/km bestimmt wurde, ist um den Faktor 14 größer als der LDV-Emissionsfaktor mit 0,030 cm³/km. Teilweise lagen die Verhältnisse niedriger, z. B. emittierte in Humlikon der HDV nur ca. vier Mal mehr als der LDV. In Zürich an der Weststraße, auf der nur geringe Fahrgeschwindigkeiten herrschen und ständig Abbrems- und Anfahrvorgänge stattfinden, wurde ein ca. 35 Mal höherer Emissionsfaktor für den HDV berechnet als für den LDV. Die Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, befinden sich zwischen den Extremwerten der Vergleichsprojekte.

Tabelle 6.12: Vergleich von Partikel-Emissionsfaktoren (**Partikelvolumina – $V_{0,25}$** bzw. $V_{0,3}$ für Partikel kleiner 0,25 bzw. 0,3 µm Durchmesser) für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden; die mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge; Literaturangaben

Studie / Projekt und Partikelvolumina		**Emissionsfaktoren EF pro Fahrzeug**			**Geschw. km/h LDV/ HDV**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**		
Partikelvolumen $V_{0,25}$ bzw. $V_{0,3}$ in cm³/km						
A	**BAB II – Aufzugmessungen, 2001 – $V_{0,25}$**	**0,030 ± 0,020**	**0,410 ± 0,260**	**0,060 ± 0,040**	**113/86**	**[159]**
A	Birrhard, 2001 – $V_{0,25}$	0,013 ± 0,004	0,239 ± 0,052	0,027 ± 0,005	120/85	[165]
A	Humlikon, 2001 – $V_{0,25}$	0,048 ± 0,006	0,186 ± 0,028	0,048 ± 0,006	85/75	[165]
A	Zürich-Weststraße, 2002 – $V_{0,25}$	0,027 ± 0,002	0,934 ± 0,028	0,068 ± 0,006	0-50	[165]
T	Kingsway-Tunnel, 2003 – $V_{0,3}$	0,014 ± 0,002	0,127 ± 0,024	0,025 ± 0,003	65	[31]
T	Plabutsch-Tunnel, 2001 – $V_{0,3}$	0,058 ± 0,006	0,285 ± 0,021	0,116 ± 0,003	80-120	[31]

A… Experiment in der freien Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

Tabelle 6.13: Vergleich von Partikel-Emissionsfaktoren (**Partikelvolumina –$V_{0,64}$** bzw. $V_{0,7}$ für Partikel kleiner 0,64 bzw. 0,7 µm Durchmesser) für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden; die mittlere Fahrgeschwindigkeit der Fahrzeuge; Literaturangaben

Studie / Projekt und Partikelvolumina		**Emissionsfaktoren EF pro Fahrzeug**			**Geschw. km/h LDV/ HDV**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**		
Partikelvolumen $V_{0,25}$ bzw. $V_{0,3}$ in cm³/km						
A	**BAB II – Aufzugmessungen, 2001 – $V_{0,64}$**	**-**	**-**	**0,070 ± 0,020**	**113/86**	**[159]**
T	Kingsway-Tunnel, 2003 – $V_{0,7}$	0,019 ± 0,003	0,200 ± 0,038	0,036 ± 0,004	65	[31]
T	Plabutsch-Tunnel, 2001 – $V_{0,7}$	0,072 ± 0,013	0,612 ± 0,048	0,209 ± 0,008	80-120	[31]

A… Experiment in der freien Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen

6.2.13 Bestimmung der Rußpartikelemissionen der Autobahn aus den Vertikalprofilmessungen

Mit Inkrafttreten der 33. BImSchV [183] im Juli 2004 wurde die 23. BImSchV [184] außer Kraft gesetzt. In der 23. BImSchV war noch ein Prüfwert für Ruß festgelegt, was in der 33. BImSchV nicht mehr der Fall ist. Somit existiert in Deutschland momentan kein Beurteilungs- oder Grenzwert für Ruß, der eingehalten werden muss. Jedoch weisen primäre Rußpartikel aus Verbrennungsprozessen typischerweise Partikeldurchmesser von ungefähr 50 bis 300 nm auf und können somit sehr weit in die Alveolen der Lunge eindringen. Untersuchungen haben gezeigt, dass ultrafeine Partikel und insbesondere Rußaerosole krebserregend wirken können [185]. Im Klimasystem der Erde spielen Rußpartikel auch auf globaler Ebene eine wichtige Rolle. Sie weisen mit ihrer dunklen Oberfläche eine kleine Albedo auf, d. h. der reflektierte Anteil der einfallenden kurzwelligen Strahlung ist sehr gering, weshalb sie einen positiven Strahlungsantrieb verursachen [186]. Ruß zählt an verkehrsbelasteten Standorten mit Anteilen zwischen 10 und 30 % an der gesamten Aerosolmasse zu den Hauptkomponenten im Feinstaub [187], [188], [189].

Ruß umfasst alle primären, kohlenstoffhaltigen Partikel eines unvollständigen Verbrennungsprozesses. Er besteht v. a. aus elementarem Kohlenstoff (*elemental carbon* - EC) und organischen Verbindungen, die als organischer Kohlenstoff (*organic carbon* - OC) gemessen werden. Der elementare Kohlenstoff besitzt eine Grafitgitterstruktur, wohingegen der organische Kohlenstoff großteils aus VOCs und PAKs (Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe) besteht und am elementaren Kohlenstoff adsorbiert ist. Betrachtet man außer den primär emittierten Rußpartikeln auch noch den sekundär in der Atmosphäre gebildeten, organischen Kohlenstoff, so spricht man vom totalen partikelförmigen Kohlenstoff (*total carbon* - TC). Immissionsseitig wird oft der elementare Kohlenstoff alleine als Ruß bezeichnet [190]. Des Weiteren existiert der Begriff schwarzer Kohlenstoff *(black carbon* – BC) für eine hochpolymere bis grafitische Form des Kohlenstoffs mit einem molaren Wasserstoff/Kohlenstoff-Verhältnis von höchstens 0,2. EC und BC bezeichnen im Idealfall dieselbe Fraktion des partikelgebundenen Kohlenstoffs. Die beiden Begriffe werden häufig synonym verwendet. Inzwischen hat sich die Sprachregelung durchgesetzt, mit thermischen Methoden gemessene Werte als EC und optisch bestimmte Werte als BC zu bezeichnen [191].

Wie in Bild 6.20 ersichtlich, wurden im Projekt BAB II zwei Aethalometer eingesetzt (jeweils ein Gerät an den Basen der Messtürme), so dass die BC-Konzentrationen im Luv und Lee der Autobahn während des gesamten Messzeitraums kontinuierlich bestimmt werden konnten. Zusätzlich war an der Basis des Nordturms ein NO_x-Analysator während der gesamten Messperiode vom 2. bis 25. Mai 2001 im Einsatz. Bild 6.24 (links) zeigt den zeitlichen Verlauf der 1-Stundenmittelwerte der BC-Konzentration (blaue Kurve) und der NO_x-Konzentration (rote Kurve) über 24 Stunden am 2. Mai 2001. Es ist deutlich zu erkennen, dass die beiden Kurven einen sehr ähnlichen zeitlichen Verlauf haben. Zwischen 7:00 und 8:00 MESZ wird das Maximum der Konzentrationen mit 8.500 ng/m³ BC und 275 µg/m³ NO_x erreicht. In den Abend- und Nachtstunden bewegten sich die Konzentrationen um 1.500 ng/m³ BC und 25 µg/m³ NO_x. In Bild 6.24 (rechts) ist das Ergebnis einer Korrelationsberechnung zwischen der BC- und der

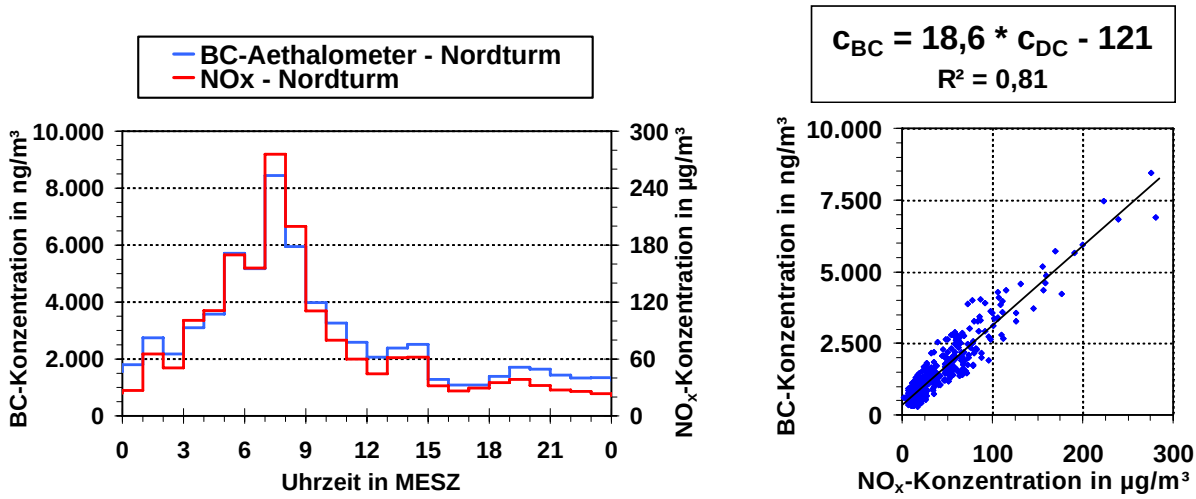


Bild 6.24: NO_x- und BC-Parallelmessungen am 2. Mai 2001 an der Basis des Nordturms (links); Korrelation zwischen BC-Aethalometer und NO_x an der Basis des Nordturms während der gesamten Messperiode vom 2. bis 25. Mai 2001 (rechts)

NO_x-Konzentration am Nordturm für die gesamte Messperiode vom 2. bis 25. Mai 2001 aufgetragen. Das Bestimmtheitsmaß R^2 liegt bei 0,81, somit korrelieren BC und NO_x sehr gut miteinander. Diese gute Korrelation war Voraussetzung für die weitere Berechnung von BC-Vertikalprofilen. Hierfür wurden die NO_x-Vertikalprofile aus den Messungen mit der Turmansaugung herangezogen. Alle geeigneten Profile, welche auch in die NO_x-Massenbilanzierung eingingen, wurden für die Berechnung verwendet. Insgesamt wurden 103 Vertikalprofile (1-Stundenmittelwerte) ausgewählt. Die jeweiligen NO_x-Messwerte der untersten Messhöhe (8 m) der Turmansaugung im Luv und Lee der Autobahn wurden mit den BC-Messwerten der beiden Aethalometer korreliert, welche in unmittelbarer Nähe der Messtürme installiert waren. Die Ergebnisse der Korrelationsrechnung und die sich daraus ergebende Korrelationsgleichung sind in Bild 6.25 (links) dargestellt.

Diese Gleichung wurde verwendet, um aus den NO_x-Vertikalprofilen (Bild 6.25 Mitte) BC-Vertikalprofile (Bild 6.25 rechts) zu berechnen, indem durch Anwendung der Gleichung auf die NO_x-Konzentrationen BC-Konzentrationen berechnet wurden. Eine Auswahl der gemessenen NO_x-Vertikalprofile und der berechneten BC-Vertikalprofile sind in Anhang 26a und 26b grafisch dargestellt. Aus den BC-Vertikalprofilen wurden analog zu dem Vorgehen in Kapitel 6.2.4 durch Anwendung der Gleichung 6.1 die BC-Massenströme berechnet, welche vom Verkehr auf der Autobahn emittiert wurden. Die Anwendung der Gleichung 6.5 und deren Lösung über eine Lineare Multiple Regressionsanalyse ergab die folgenden BC-Emissionsfaktoren:

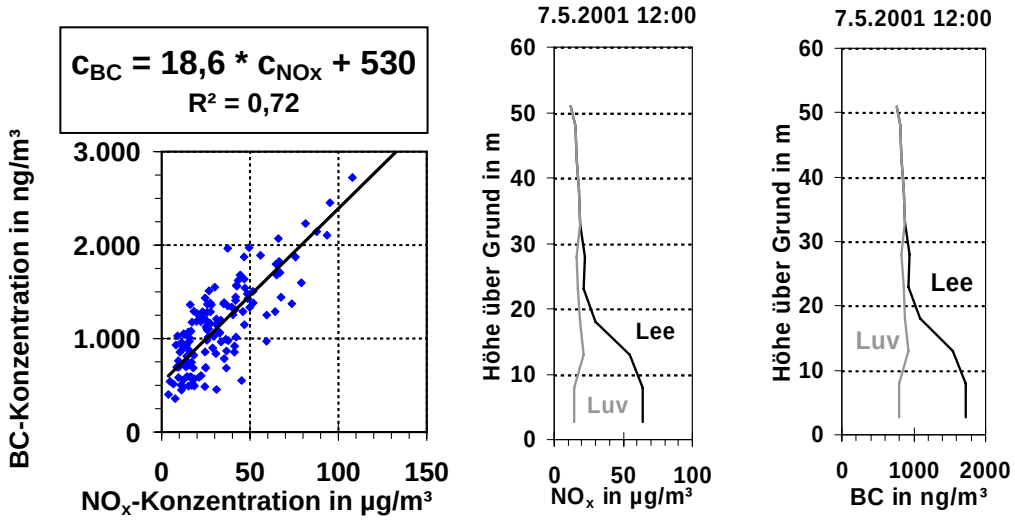


Bild 6.25: Korrelation zwischen BC-Aethalometer (an den Basen des Nord- und Südturms) und NO_x (gemessen an der untersten Messhöhe in 8 m) für geeignete Situationen während der gesamten Messperiode vom 2. bis 25. Mai 2001 (links); Beispiel eines gemessenen NO_x-Vertikalprofils (Mitte) und eines berechneten BC-Vertikalprofils (rechts) am 7.5.2001; als Mittelwert für den Zeitraum zwischen 11:00 und 12:00 MESZ

Tabelle 6.14: Ruß-Emissionsfaktoren pro Fahrzeug für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle}, berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Turmansaugung**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV	13 ± 2 mg/km
Schwerverkehr - HDV	149 ± 30 mg/km
Alle Fahrzeuge	21 ± 4 mg/km

Die Anwendung derselben Methode auf die CO- anstatt auf die NO_x-Vertikalprofile ergab eine schlechtere Korrelation zwischen BC und CO als zwischen BC und NO_x. Sehr wahrscheinlich spielt hierbei die Tatsache eine Rolle, dass sowohl NO_x als auch BC hauptsächlich von Dieselfahrzeugen und CO verstärkt von Benzinfahrzeugen emittiert wird. Somit kann sich kein so guter Zusammenhang zwischen CO und BC ergeben wie für BC und NO_x.

BC besitzt nicht nur gegenüber NO_x eine gute Korrelation, sondern auch gegenüber der aktiven Partikeloberfläche. Wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, wurde die Partikeloberfläche in BAB II während der SOPs (*Special Operation Periods*) mit einem *Diffusion Charger* (DC) gemessen. In Bild 6.26 (links) ist die Korrelationsrechnung nebst Gleichung des linearen Zusammenhangs zwischen der aktiven Partikeloberfläche (DC) und der BC-

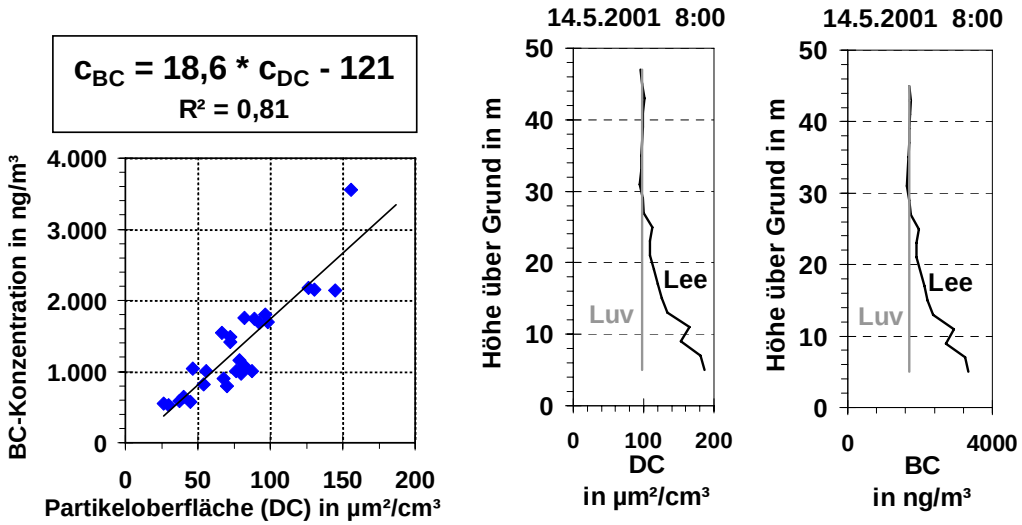


Bild 6.26: Korrelation zwischen BC-Aethalometer (an den Basen des Nord- und Südturms) und der aktiven Partikeloberfläche (gemessen mit einem Diffusion Charger (DC) an der untersten Messhöhe in 5 m) für geeignete Situationen während der SOPs - *Special Operation Periods* - (links); Beispiel eines gemessenen DC-Vertikalprofils (Mitte) und eines berechneten BC-Vertikalprofils (rechts) am 14.5.2001; als Mittelwert für den Zeitraum zwischen 7:00 und 8:00 MESZ

Konzentration dargestellt. Es wurden die BC-Aethalometerdaten der kontinuierlichen Messungen an den Basen der beiden Messtürme den DC-Daten aus den Aufzugmessungen gegenübergestellt, wobei jeweils nur die DC-Daten der untersten Messhöhe von 5 m verwendet wurden. Der Zusammenhang ist mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0{,}82$ sehr gut. 18 Vertikalprofile (1-Stundenmittelwert) eigneten sich zur weiteren Auswertung. Die Geradengleichung aus Bild 6.26 (links) wurde auf die Daten der aktiven Oberfläche (DC) angewendet (Bild 6.26 Mitte) und somit BC-Vertikalprofile berechnet (Bild 6.26 rechts). Diese wurden zur Berechnung von BC-Massenströmen verwendet. Über eine Lineare Multiple Regressionsrechnung konnten die BC-Emissionsfaktoren über diese zweite, unabhängige Methode berechnet werden. Es ergaben sich folgende Werte:

Tabelle 6.15: Ruß-Emissionsfaktoren pro Fahrzeug für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle}, berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse, **Datenbasis: Aufzugmessungen**

	Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km
Leichtverkehr - LDV	15 $\pm$ 3 mg/km
Schwerverkehr - HDV	136 $\pm$ 46 mg/km
Alle Fahrzeuge	23 $\pm$ 6 mg/km

Beide Methoden lieferten sehr ähnliche Emissionsfaktoren für BC, obwohl die BC-Vertikalprofile nicht direkt gemessen werden konnten, sondern aus Korrelationsrechnungen zwischen NO_x bzw. der aktiven Partikeloberfläche und den BC-Konzentrationen berechnet wurden. Korrelationsrechnungen bewirken natürlich größere Unsicherheiten bei den Ergebnissen. Bei der ersten Methode flossen 103 Vertikalprofile in die Berechnung ein, bei der zweiten Methode nur 18. Dies zeigt, dass auch mit einer geringeren Anzahl von Profilen schon sehr gute Ergebnisse für die Berechnung von Emissionsfaktoren erzielt werden können.

Das Bestimmtheitsmaß zeigt die Streuung der Einzelergebnisse an. Sie wird u. a. von der Tatsache hervorgerufen, dass alle Fahrzeuge betrachtet werden und keine Unterscheidung zwischen Dieselfahrzeugen und mit Ottomotoren betriebenen Fahrzeugen vorgenommen wird. Ruß wird aber hauptsächlich von Dieselfahrzeugen emittiert. Eine entsprechende Betrachtung würde eine Verbesserung des Bestimmtheitsmaßes nach sich ziehen.

6.2.14 Vergleich von Ruß-Emissionsfaktoren

Im oberen Teil der Tabelle 6.16 werden die verschiedenen Ruß-Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II gewonnen wurden, miteinander verglichen. Der Vergleich erfolgt einerseits zwischen den gemessenen Emissionsfaktoren, die im vorhergehenden Kapitel beschrieben wurden, und den mit dem Emissionsmodell bestimmten Emissionsfaktoren [192], andererseits mit Literaturwerten. Die Abweichungen zwischen den im Projekt BAB II bestimmten Emissionsfaktoren sind sehr gering. Die Ruß-Emissionsfaktoren für den Schwerverkehr lagen zwischen 122 mg/km (Modellierung während den Aufzugmessungen) und 149 mg/km (Messungen mit Turmansaugung). Für den Leichtverkehr (LDV) variierten die Ruß-Emissionsfaktoren lediglich zwischen 13 mg/km (Messungen mit Turmansaugung) und 15 mg/km (Messungen bzw. Modellierungen während der Aufzugmessungen). Die Unterschiede für die gesamte Flotte waren ähnlich gering wie für den Leichtverkehr und lagen zwischen 21 mg/km (Messungen mit Turmansaugung) und 23 mg/km (Messungen mit Aufzugmessungen). Keine der im Projekt BAB II betrachteten Komponenten besaß eine bessere Übereinstimmung zwischen den über Messungen bestimmten Emissionsfaktoren und den Emissionsfaktoren aus der Emissionsmodellierung. Betrachtet man die Ergebnisse zusammen mit den jeweils bestimmten Messunsicherheiten bzw. den Unsicherheiten, die über die Emissionsmodellierung bestimmt wurden, so kann eine sehr gute Übereinstimmung festgestellt werden.

Beim Vergleich mit Literaturwerten ist Vorsicht geboten, da sich manche der Ergebnisse auf elementaren Kohlenstoff *(EC)*, manche auf die organischen Kohlenstoffanteile *(OC)* und manche auf die Kombination aus elementaren und organischen Kohlenstoffbestandteilen *(TC)* beziehen. Des Weiteren sind häufig Emissionsfaktoren für BC (*black carbon*) zu finden. Im Projekt BAB II erfolgten Messungen des *black carbon*. Allerdings konnte im vorhergehenden Kapitel nachgewiesen werden, dass die gemessenen BC-Konzentrationen den Konzentrationen von Ruß (also TC) entsprechen. Die Ruß-Emissionsfaktoren, die in Birrhard gemessen wurden, lagen geringfügig unter den Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II bestimmt wurden. Die Ruß-Emissionsfaktoren für HDV und für die gesamte Flotte, die in Zürich an der

Tabelle 6.16: Vergleich von Ruß-Emissionsfaktoren (bzw. *EC, OC, BC, TC*) in mg/km für LDV (Leichtverkehr), HDV (Schwerverkehr) und gemittelt über alle Fahrzeugkategorien (gesamte Flotte), welche in verschiedenen Projekten ermittelt wurden

Studie / Projekt		**Emissionsfaktoren EF pro Fahrzeug in mg/km**			**Geschw. km/h**	**Lit.**
		LDV	**HDV**	**gesamte Flotte**	**LDV/ HDV**	
A	**BAB II - mit Aufzugmessungen, 2001 - BC**	**15 ± 3**	**136 ± 46**	**23 ± 6**	**113/86**	**diese Diss.**
M	**BAB II - Emissionsmodellierung während Aufzugmessungen, 2001 - Rußemissionen**	**15 ± 3**	**122 ± 42**	**22 ± 1**	**113/86**	**[192]**
A	**BAB II - mit Turmansaugung, 2001 - BC**	**13 ± 2**	**149 ± 30**	**21 ± 4**	**113/86**	**diese Diss.**
M	**BAB II - Emissionsmodellierung während Turmansaugung, 2001 - Rußemissionen**	**14 ± 1**	**137 ± 10**	**22 ± 1**	**113/86**	**[192]**
M	Birrhard, 2001 BC	9,2 ± 1,3	114 ± 11	18 ± 2	120/85	[165]
M	Zürich-Weststraße, 2002 BC	10 ± 1	427 ± 15	35 ± 3	0 - 50	[165]
T	Söderleds-Tunnel (Stockholm), 1994 EC	-	-	5,5	45-70	[27]
		-	-	5,2	70-75	
		-	-	8,5	75-90	
T	Gubrist-Tunnel, 1993 BC	1,60 ± 0,21	122,7 ± 5,7	-	100 T-Limit	[193]
A	Härkingen, 2004 EC	-	-	21	116/86	[107]
T	Kaisermühlen-Tunnel, 2005 EC	-	-	21,3 ± 3,4	60/80 T-Limit	[103]
T	Kaisermühlen-Tunnel, 2005 OC	-	-	18,8 ± 3,5	60/80 T-Limit	[103]
T	Tegeler Tunnel, 1994 EC (in PM_{10})	10,8 ± 0,5	235 ± 9	-	80	[194]
T	Tegeler Tunnel, 1994 OC (in PM_{10})	9,6 ± 0,7	136 ± 12	-	80	[194]
T	Tegeler Tunnel, 1995/1996 EC (in PM_{10})	10,6 ± 1,8	293 ± 31	-	80	[195]
T	Tegeler Tunnel, 1995/1996 OC (in PM_{10})	10,2	201	-	80	[195]
T	Heslacher Tunnel - gemessen, 1994 TC	-	-	30	46,2 und 58,4	[86]

A… Experiment in der freien Außenluft, M... Emissionsmodellierung, T... Tunnelmessungen
EC...elemental carbon, BC...black carbon, TC...total carbon

Weststraße bestimmt wurden, lagen teilweise deutlich über den Emissionsfaktoren aus dem Projekt BAB II. Der Grund liegt vermutlich an den häufigen Abbrems- und Anfahrvorgängen auf der vielbefahrenen Innerortsstraße in Zürich im Vergleich zu der kontinuierlichen Fahrweise auf der Autobahn A 656 im Projekt BAB II. Der Ruß-Emissionsfaktor für den Schwerverkehr, der im Gubrist-Tunnel mit 122,7 mg/km bestimmt wurde, stimmt wiederum sehr gut mit den Ruß-Emissionsfaktoren überein, die im Projekt BAB II für den Schwerverkehr bestimmt wurden. Allerdings liegt der Ruß-Emissionsfaktor für den Leichtverkehr, der im Gubrist-Tunnel bestimmt wurde, mit 1,6 mg/km ungefähr um den Faktor 10 niedriger als die Ruß-Emissionfaktoren aus dem Projekt BAB II. Der Ruß-Emissionsfaktor für die gesamte Flotte in Härkingen (allerdings EC), der bei ähnlichen Fahrgeschwindigkeiten wie im Projekt BAB II bestimmt wurde, stimmt ebenfalls sehr gut mit den Ruß-Emissionsfaktoren aus dem Projekt BAB II überein. Die Ergebnisse der Untersuchungen im Kaisermühlen-Tunnel, im Tegeler Tunnel und im Heslacher Tunnel (zum Vergleich müssen die Emissionsfaktoren für *EC* und *OC* addiert werden) lagen alle um einen Faktor von 1,5 bis 3 über den Ruß-Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II bestimmt wurden. Allerdings waren bei diesen Tunnelmessungen die Fahrgeschwindigkeiten geringer als im Projekt BAB II; zudem wurden diese Tunnelmessungen (ausgenommen die Messungen im Kaisermühlen-Tunnel) einige Jahre vor den Messungen im Projekt BAB II vorgenommen, als bei den Fahrzeugen tatsächlich noch höhere Rußemissionen auftraten.

Außer der Fahrgeschwindigkeit und stark wechselnden Lastzuständen, wie z. B. Abbrems- und Anfahrvorgängen, spielt bei der Betrachtung der Ruß-Emissionsfaktoren die Verteilung der Antriebe auf Diesel- und Ottomotoren eine große Rolle und dies insbesondere beim Leichtverkehr (LDV). Die Rußemission von Fahrzeugen mit Ottomotoren ist im Allgemeinen vernachlässigbar gering im Vergleich zu Fahrzeugen mit Dieselmotoren. Der Anteil von Dieselfahrzeugen beim Leichtverkehr (LDV) unterscheidet sich von Land zu Land sehr stark und kann auch großen zeitlichen Schwankungen unterworfen sein. In Deutschland stieg z. B. der Dieselanteil beim Leichtverkehr aufgrund der staatlichen Förderung des Dieselkraftstoffs in den letzten Jahren stark an. Bei der Betrachtung der Ruß-Emissionsfaktoren des Schwerverkehrs besteht dieses Problem nicht, da fast die gesamte Flotte des Schwerverkehrs mit Dieselmotoren ausgerüstet ist. Zudem hat der Schwefelgehalt im Diesel einen großen Einfluss auf die Rußemissionen. Es lagen weder der Dieselanteil der Fahrzeugflotte noch der Dieselgehalt im Kraftstoff vor, so dass diese Einflussfaktoren nicht weiter in Betracht gezogen werden konnten.

Trotz dieser Schwierigkeiten beim Vergleich von Ruß-Emissionsfaktoren aus der Literatur, die in unterschiedlichen Ländern und in verschiedenen Jahren ermittelt wurden, ergab der Vergleich der Ruß-Emissionsfaktoren aus dem Projekt BAB II mit Literaturwerten eine sehr zufriedenstellende Übereinstimmung.

7 Zusammenfassung, Schlussfolgerungen und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, eine Methode zu beschreiben, mit deren Hilfe die in einem Untersuchungsgebiet freigesetzten Emissionen von Luftverunreinigungen durch Messungen in der Außenluft bestimmt werden können. Mit Hilfe von Vertikalprofil- und Horizontalprofilmessungen konnten die Konzentrationsverteilungen im Luv und Lee von Emissionsquellen bestimmt werden. Die Messergebnisse wurden verwendet, um aus den Konzentrationsdifferenzen zusammen mit Messergebnissen von meteorologischen Parametern die Massenströme der betrachteten Luftverunreinigungen zu berechnen und eine Massenbilanz für ein Untersuchungsgebiet aufzustellen. Auf diese Weise konnten die in den Untersuchungsgebieten freigesetzten Emissionen messtechnisch bestimmt und gleichzeitig durchgeführte Emissionsmodellrechnungen validiert werden. Eine Validierung ist wichtig, da Emissionsmodellierungen in der Luftreinhaltung immer häufiger eingesetzt werden. Einerseits gehen modellierte Emissionen als Eingangsdaten in die immer häufiger verwendeten Ausbreitungsmodellierungen ein, andererseits werden sie auch für Emissionsminderungsszenarien verwendet. Aufgrund der sehr weitreichenden politischen und finanziellen Folgen der Verwendung dieser Emissionsdaten ist eine Überprüfung der Richtigkeit der berechneten Emissionen unumgänglich.

In dieser Arbeit wurden die Ergebnisse von zwei Experimenten zur Beschreibung der Bilanzierungsmethode herangezogen. Im ersten Projekt wurde erstmals die Bilanzierung aller freigesetzten Luftverunreinigungen einer ganzen Stadt durchgeführt und zwar im Rahmen des Verbundvorhabens EVA (Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel der Stadt Augsburg). Es wurden über mehrere Monate Konzentrationsmessungen in und um Augsburg vorgenommen. Die vertikale und horizontale Verteilung der Luftverunreinigungen und der meteorologischen Parameter wurden im Luv und Lee der Stadt mit Hilfe von drei Fesselballonmesssystemen, einem ferngesteuerten Luftschiff, zwei Messflugzeugen und weiterer Messtechnik bestimmt. Für den gleichen Zeitraum wurde vom IER (Institut für Energiesysteme und Rationelle Energieanwendung) ein zeitlich, räumlich und stofflich hochaufgelöstes Emissionskataster für die Stadt erstellt. Anschließend wurden die gemessenen und bilanzierten Emissionen mit den modellierten Emissionen verglichen und somit das Emissionsmodell validiert. Die Fesselballon- und Luftschiffmessungen wurden vom IFK bzw. mit Unterstützung des IFK durchgeführt. Die großen Vorteile von Fesselballon- und Luftschiffmessungen haben sich auch bei diesem Experiment bewährt: Sie können vom Erdboden aus gestartet bzw. zur Untersuchung der bodennahen Luftschichten in geringen Höhen zum Einsatz gebracht werden. Messflugzeuge müssen grundsätzlich eine Mindestflughöhe - meist von 150 m - einhalten. Die größten Konzentrationsunterschiede der Luftverunreinigungen sind aber oftmals in den bodennahen Luftschichten von 0 bis 300 m über Grund im Lee von Emissionsquellen vorhanden, welche bei Bilanzexperimenten miterfasst werden müssen. Allerdings hat sich im Projekt EVA auch herausgestellt, dass eine Stadt wie Augsburg mit ihren ca. 255.000 Einwohnern eine horizontal sehr ausgedehnte Abgasfahne besitzt, die es gilt messtechnisch möglichst komplett zu erfassen. Für eine Stadt dieser Größe reichten die Fesselballon- und Luft-

schiffmessungen alleine nicht aus, um die ca. 9 km breite Abgasfahne in ausreichender Messdichte zu erfassen. Die Kombination dieser beiden Messsysteme mit Flugzeugmessungen hat sich jedoch zur Erfassung der gesamten Abluftfahne sehr gut bewährt. Der Vergleich der messtechnisch bestimmten mit den modellierten NO_x-Emissionen ergab für die meisten Daten, die sich für eine Auswertung eigneten, eine Übereinstimmung, wenn auch die modellierten Emissionen stets über den auf Messungen beruhenden lagen. Allerdings waren die Unsicherheiten, die sowohl bei den Messungen als auch bei den Berechnungsmethoden und den Emissionsmodellierungen anzusetzen waren, teilweise hoch.

Beim zweiten Projekt, das dieser Arbeit zugrunde liegt, handelt es sich um das Projekt BAB II (Bundesautobahn - Experimentelle Bestimmung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf Autobahnen und Vergleich mit berechneten Emissionen). In diesem Projekt fanden intensive Messungen und Untersuchungen an einem Autobahnabschnitt der A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim statt. Die Erfassung der Abgasemissionen der Autobahn war einfacher als die Bestimmung der Emissionen einer ganzen Stadt, da es sich um eine einzige Emissionsquelle handelte und zudem um eine Linienquelle, im Vergleich zu einer Flächenemissionsquelle im Projekt EVA. Bei der Untersuchung einer konstant emittierenden Linienquelle reicht es aus, die Vertikalverteilung der Luftverunreinigungen und meteorologischen Parameter im Luv und Lee der Emissionsquelle zu bestimmen. Horizontalprofilmessungen können entfallen.

Der Vergleich der über die Vertikalprofilmessungen bestimmten NO_x-Emissionsfaktoren mit den über das Emissionsmodell bestimmen, ergab deutliche Abweichungen. Besonders für den Schwerverkehr (HDV) lagen die gemessenen Emissionsfaktoren zwischen 20 und fast 100 % über den modellierten, die auf dem Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA Version 1.2) basierten. Aufgrund der Ergebnisse dieses und auch anderer Projekte, die zu ähnlichen Erkenntnissen führten, wurden die Emissionsfaktoren für den Schwerverkehr (HDV) an die neuen Erkenntnisse angepasst und liegen nun in der aktuellen Version 2.1 entsprechend höher. Der Vergleich der VOC-Emissionsfaktoren ergab sehr gute Übereinstimmungen für die Komponenten BTX - Benzol, Toluol, Xylole - da den Emissionsmodellen für diese Komponenten genügend Messdaten zugrunde liegen. Für weitere VOC-Komponenten traten teilweise sehr große Abweichungen zwischen den gemessenen und den modellierten Emissionsfaktoren auf, wobei die gemessenen Emissionsfaktoren grundsätzlich höher ausfielen als die modellierten. Die Abweichungen lagen für manche Komponenten, wie z. B. n-Hexan, n-Heptan, i-Butan oder n-Oktan, im Bereich von Faktor 6 bis 20! Der Grund ist in der dünnen Datenlage für die für die Emissionsmodellierung zur Verfügung stehenden VOC-Emissionsfaktoren zu suchen. Die genaue Kenntnis der VOC-Emissionen spielt insbesondere bei der Modellierung von Luftverunreinigungen mit Chemie-Transport-Modellen eine große Rolle, z. B. bei der Modellierung des troposphärischen Ozons.

Bei der Auswertung der Partikelmessungen im Projekt BAB II hat sich ergeben, dass die massenbezogenen Partikelmessungen der PM_{10}- und $PM_{2,5}$-Konzentrationen so stark von anderen Emissionsquellen in der näheren Umgebung beeinflusst wurden bzw. die Differenzen zwischen Luv und Lee so gering waren, dass eine Bilanzierung nicht möglich war. Allerdings ließen sich weitere Partikelparameter sehr gut berechnen und bilanzieren: die aktive

Partikeloberfläche in cm²/km, die Partikelanzahl sowie Partikelvolumina - $V_{0,25}$ und $V_{0,64}$ - mit der Einheit cm³/km. Alle Partikel-Emissionsfaktoren, die im Projekt BAB II bestimmt wurden, lagen in der gleichen Größenordnung wie die zum Vergleich verfügbaren Literaturwerte. Für die aktive Partikeloberfläche lagen die im Projekt BAB II ermittelten Werte etwas über den Literaturwerten. Für alle anderen berechneten und verglichenen Partikelparameter lagen sie innerhalb der maximalen und minimalen Vergleichswerte.

Der Vergleich der Emissionsfaktoren von Rußpartikeln ergab eine sehr gute Übereinstimmung sowohl im direkten Vergleich der Messergebnisse mit den Ergebnissen der Emissionsmodellierung im Projekt BAB II als auch im Vergleich mit Literaturwerten.

7.2 Schlussfolgerungen

Aus den Erkenntnissen dieser beiden Projekte lässt sich folgern, dass die Massenstrombilanzierung mit Hilfe von Vertikal- und Horizontalprofilmessungen im Luv und Lee einer Emissionsquelle zu sinnvollen Ergebnissen führen kann, sofern folgende Voraussetzungen erfüllt sind:

- Fesselballonmessungen sind gut geeignet, wenn an einer oder wenigen Stellen die Vertikalverteilung bis in größere Höhen bestimmt werden muss, z. B. für die Bilanzierung von Emissionsquellen, deren Abgasfahnen bis in mehrere hundert Meter Höhe reichen. Bei einer geringeren Abgasfahnenhöhe können Messtürme die bessere Alternative darstellen, besonders wenn die Messungen über einen Zeitraum von mehreren Wochen bzw. Monaten durchgeführt werden sollen.
- Es sollte während der Messungen ein konstanter Wind wehen, der seine Richtung nicht oder nur gering ändert.
- Die Messungen im Lee-Bereich müssen genügend weit von der Emissionsquelle entfernt sein, damit eine gute Durchmischung der Spurenstoffe gewährleistet ist. Dadurch erhält man eine gleichmäßige Verteilung der Konzentrationen im Lee des Untersuchungsgebiets und das Auftreten von sich stark ändernden Konzentrationen, die u. U. messtechnisch nicht vollständig erfasst werden können, wird vermieden. Somit lässt sich die Unsicherheit der Ergebnisse reduzieren.
- Horizontalmessungen sollten auch in geringen Höhen stattfinden, da dieser Bereich von großer Bedeutung ist. Eine Extrapolation von Messwerten bis zum Erdboden, die in größeren Höhen z. B. von einem Flugzeug erfasst werden, ist mit großen Unsicherheiten verbunden. Vielmehr sind hierfür, wie gezeigt, Messungen mit einem kleinen, ferngesteuerten Luftschiff in geringen Höhen gut geeignet.

7.3 Ausblick

Für die Untersuchung der folgenden Probleme der Luftreinhaltung eignet sich das Fesselballonmesssystem ebenfalls:

- Untersuchung von Punktquellen, z. B. Abluftfahne eines Industrieschornsteins
- Untersuchung von diffusen Emissions- bzw. Linienquellen, z. B. Abgasfahnen von Industriegebieten, Abraumhalden oder Umschlagplätzen von Schüttgütern (Partikelemissionen)
- Bilanzierung von Luftverunreinigungen, die von Industriegebieten, Abraumhalden oder Umschlagplätzen von Schüttgütern freigesetzt werden, indem mehrere Fesselballonmesssysteme im Luv und Lee des Untersuchungsgebiets in Kombination mit anderen luftgetragenen Messsystemen zum Einsatz kommen
- Untersuchung von mikro- bis mesoskaligen meteorologischen Phänomenen und deren Auswirkungen auf die Luftqualität, z. B. Berg-Talwind-Systeme, Flurwinde, Kaltluftflüsse, Land-Seewind-Systeme etc.
- Bei zukünftigen Projekten dieser Art müssten die eingesetzte Messtechnik und die Berechnungsmethoden dahingehend optimiert werden, dass die anzusetzenden Unsicherheiten verringert werden können.
- Bilanzierung von Städten:
  Für den kombinierten Einsatz von Boden-, Luftschiff- und Fesselballonmesssystemen sollte bei der Durchführung ähnlicher Experimente in der Zukunft eine Stadt mit einer geringeren flächenhaften Ausdehnung und damit einer insgesamt kleineren Abgasfahne gewählt werden, um alle Vorteile dieser Messsysteme optimal nutzen zu können.
  Um die Abgasfahne einer Stadt einfacher und definierter erfassen zu können, würde sich eine Stadt eignen, die sich in einem Tal befindet, das vorzugsweise entlang der Hauptwindrichtung ausgerichtet ist. Dadurch werden die Windströmungen durch die Talhänge kanalisiert.
- Bilanzierung von Straßen und Autobahnen:
  Der messtechnische Aufwand könnte verringert werden, wenn sichergestellt werden kann, dass die im Luv ankommenden Luftmassen vertikal gleichmäßig verteilt sind, was beim Projekt BAB II – mit Ausnahme von CO_2 - auch der Fall war. Dann könnte auf Vertikalmessungen verzichtet werden und die Bestimmung der Vorbelastung durch eine Bodenmessstation erfolgen.
  Zudem könnte der enorme personelle Aufwand reduziert werden, indem im Lee der Straße ein automatischer Aufzug zum Einsatz käme.

8 Literatur

[1] GSF (Hrsg.): Troposphärenforschung 1996 – 2002. Projektplan Förderzeitraum 1996 –1999, Version 1.0. München 1997.

[2] Umweltbundesamt: Luft kennt keine Grenzen. Ratgeber http://www.umweltbundesamt.org/fpdf-l/2473.pdf.

[3] Richtlinie 2000/69/EG des Rates vom 16. November 2000 über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft. Amtsblatt der EG.

[4] Umweltbundesamt: Daten zur Umwelt - Der Zustand der Umwelt in Deutschland - Ausgabe 2005. Berlin 2006.

[5] Umweltbundesamt: Ozonsituation 2000 in der Bundesrepublik Deutschland. Berlin 2000.

[6] Kühlwein, J., Friedrich, R., 2000: Uncertainties of modelling emissions from road transport. In: Atmospheric Environment 34, pp. 4603-4610.

[7] Umweltbundesamt, 2008: Umweltdaten Deutschland Online, Umwelt und Verkehr, Motorisierter Straßenverkehr, Kraftfahrzeugbestand – Stand 2005. www.env-it.de/umweltdaten/public/theme.do?nodeIdent=2332.

[8] Wickert, B., 2001: Berechnung anthropogener Emissionen in Deutschland für Ozonsimulationen – Modellentwicklung und Sensitivitätsstudien. Dissertation, Universität Stuttgart.

[9] Grauer, A., 1999: Untersuchung des Abgasemissionsverhaltens von Kraftfahrzeugen mit einem On-Board-Messsystem. Dissertation, Universität Stuttgart.

[10] Obermeier, A., Friedrich, R., John, C., Seier, J., Vogel, H., Fiedler, F., Vogel, B., 1995: Photosmog - Möglichkeiten und Strategien zur Verminderung des bodennahen Ozons. Landsberg: ecomed Verlagsgesellschaft.

[11] Obermeier, A.; Seier, J., John, C., Berner, P., Friedrich, R., 1996: TRACT - Erstellung einer Emissionsdatenbasis für TRACT. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Forschungsbericht Band 27, Stuttgart.

[12] Bundesverkehrsministerium (Hrsg.), 1996: Verkehr in Zahlen 1995. Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung (DIW) Berlin.

[13] Klemm, O., Schaller, E., 1994: Aircraft Measurement Of Air Pollutant Fluxes Across the Borders of Eastern Germany. In: Atmospheric Environment 28, No. 17, pp. 2847-2860.

[14] Paffrath, D., Peters, W., Rösler, F., Baumbach, G., 1987: Fallstudie über den Beitrag des Ferntransports von SO_2 zur lokalen Luftverschmutzung in der Bundesrepublik Deutschland. Staub – Reinhaltung der Luft, 47, H. 7/8, S. 35 - 41.

[15] Svennsson, G., Klemm, O., 1998: Aircraft measurements and model simulations of the air quality in Athens, Greece. In: Atmospheric Environment 32, Nr. 12, S. 2269 - 2289.

[16] Staehelin, J., Schläpfer, K., Bürgin, T., Steinemann, U., Schneider, S., Brunner, D., Bäumle, M., Meier, M., Zahner, C., Keiser, S., Stahel, W., Keller, C., 1995: Emission factors from road traf-

fic from a tunnel study (Gubrist tunnel, Switzerland). Part I: concept and first results. In: Science and Total Environment 169, pp. 141-147.

[17] Staehelin, J., Keller, C. , Stahel, W. A. , Schläpfer, K. , Steinemann, U. , Burgin, T. , Schneider, S., 1997: Modelling emission factors of road traffic from a tunnel study. In: Environmetrics 8, pp. 219-239

[18] Staehelin, J., Keller, C., Stahel, W., Schläpfer, K., Wunderli, S., 1998: Emission factors from road traffic from a tunnel study (Gubrist tunnel, Switzerland). Part III: Results of organic compounds, SO_2 and speciation of organic exhaust emission. In: Atmospheric Environment 32, pp. 999-1009.

[19] John, Ch., Friedrich, R., Staehelin, J., Schläpfer, K., Stahel, W. A., 1999: Comparison of emission factors for road traffic from a tunnel study (Gubrist tunnel, Switzerland) and from emission modelling. In: Atmospheric Environment 33, pp. 3367-3376.

[20] Pierson, W. R., Gertler, A. W., Robinson, N. F., Sagebiel, J. C., Zielinska, B., Bishop, G. A., Stedman, D. H., Zweidinger, R. B., Ray, W. D., 1996: Real-world automotive emissions — summary of studies in the Fort McHenry and Tuscarora mountain tunnel. In: Atmospheric Environment 30, pp. 2233-2256.

[21] Hwa, M.-Y., Hsieh, Ch.-Ch., Wu, T.-Ch., Chang, L.-F. W., 2002: Real-world vehicle emissions and VOCs profile in the Taipei tunnel located at Taiwan Taipei area. In: Atmospheric Environment 36, pp. 1993-2002.

[22] Schmid, H., Pucher, E., Ellinger, R., Biebl, P., Puxbaum, H., 2001: Decadal reductions of traffic emissions on a transit route in Austria – results of the Tauerntunnel experiment 1997. In: Atmospheric Environment 35, pp. 3585-3593.

[23] Kurtenbach, R., Becker, K. H., Gomes, J. A. G., Kleffmann, J., Lörzer, J. C., Spittler, M., Wiesen, P., Ackermann, R., Geyer, A., Platt, U., 2001: Investigations of emissions and heterogeneous formation of HONO in a road traffic tunnel. In: Atmospheric Environment 35, pp. 3385-3394.

[24] Kurtenbach, R., Ackermann, R., Becker, K.H., Geyer, A., Gomes, J.A.G., Platt, U., Wiesen, P., 2002: Verification of the Contribution of Vehicular Traffic to the total NMVOC Emissions in Germany and the Importance of the NO_3 Chemistry in the City Air. In: Journal of Atmospheric Chemistry 42, pp. 395-411. Kluwer Academic Publisher, Netherlands.

[25] Gehrig, R., Hill, M., Buchmann, B., Imhof, D., Weingartner, E., Baltensperger, U., 2003: Verifikation von PM10-Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. Forschungsprojekt ASTRA 2000/415, EMPA – Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt, PSI – Paul Scherrer Institut.

[26] 22. BImSchV (2007): Zweiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes: Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft in der Fassung der Bekanntmachung vom 4. Juni 2007 (BGBl. I S. 1006).

[27] Kristensson, A., Johansson, C., Westerholm, R., Swietlicki, E., Gidhagen, L., Wideqvist U., Vesely, V., 2004: Real-world traffic emission factors of gases and particles measured in a road tunnel in Stockholm. In: Atmospheric Environment 38, Issue 5, February 2004, pp. 657-673.

[28] Rauterberger-Wulff, A., Israel, G.W., Pesch, M., Schlums, C., 1995: Bestimmung des Beitrags von Reifenabrieb zur Rußimmission an stark befahrenen Straßen. VDI-Berichte Nr. 1228. VDI

Verlag, Düsseldorf.

[29] Sturm, P.-J., Baltensperger, U., Bacher, M., Lechner, B., Hausberger, S., Heiden, B., Imhof, D., Weingartner, E., S.H. Prevot, A., Kurtenbach, R., Wiesen, P., 2003: Roadside Measurements of Particulate Matter (PM) size distribution. In: Atmospheric environment , pp. 5273 – 5281.

[30] Sturm, P.-J., Hausberger, S., Engler, D., Bacher, M., Lechner, B., Rodler, J., Eichlseder, H., 2003: PM size distribution measurements in engine exhaust in context to road tunnel and ambient air measurements. In: 5th International Technion Symposium "Technology for Peace – Science for Mankind" – Particulate Matter and Health., pp. 21 – 28.

[31] Imhof, D., Weingartner, E., S. H. Prévôt, A., Ordóñez, C., Kurtenbach, R., Wiesen, P., Rodler, J., Sturm, P., McCrae, I., Sjödin, Å., Baltensperger, U., 2005: Aerosol and NO_x emission factors and submicron particle number size distributions in two road tunnels with different traffic regimes. Atmos. Chem. Phys. Discuss. 5, pp. 5127-5166.

[32] Clark, N., Gautram, M., Wayne, S., Thompson, G., Nine, R., Riddle, W., Lyons, D., Maldano, H., 2003: Regulated emissions from the California heavy-duty diesel truck fleet determined in the E55 emissions inventory program, 13th CRC Workshop San Diego.

[33] Pucher, E., Puxbaum, H., Schmid, H., 1999: Tauerntunnel Air Quality Measurements, 1997: Verification of the Modelling by Measured Results - Proceedings of the 8th International Symposium "Transport and Air Pollution" in Sturm P.J. ed.; Reports of the Institute for Internal Combustion Engines and Thermodynamics, Vol. 76; pp. 273-287, Graz.

[34] Sturm, P.J., Rodler, J., Lechner, B., Almbauer, R.A., 2001: Validation of emission factors for road vehicles based on street tunnel measurements. International Journal of Vehicle Design 27 (1–4), pp. 65-75.

[35] Rogak, S.N., Pott, U., Dann, T., Wang, D., 1998: Gaseous Emissions from Vehicles in a Traffic Tunnel in Vancouver, British Columbia. J. Air & Waste Manage. Assoc. 48, pp. 604-615.

[36] Kirchstetter, T.W., Singer, B.C., Harley, R.A., Kendell, G.R., Traverse, M., 1999: Impact of California Reformulated Gasoline on Motor Vehicle Emissions. 1. Mass Emission Rates. Environ. Sci. Technol. 33, pp. 318-328.

[37] Fraser, M.P., Cass, G.R., Simoneit, B.R.T., 1998: Gas-Phase and Particle-Phase Organic Compounds Emitted from Motor Vehicle Traffic in a Los Angeles Roadway Tunnel. Environ. Sci. Technol. 32, pp. 2051-2060.

[38] Gregori, M., Lanzerstorfer, C., Oberlinninger, H., Puxbaum, H., Biebl, P., Gläser, O., Villinger, J., 1989: Tauerntunnel-Luftschadstoffuntersuchung 1988, Report, Umweltbundesamt, Salzburg, Österreich.

[39] Schmid, H., Puxbaum, H., Pucher, E., Biebl, P., Willau, E., Heimbucher, G., 1998: Tauerntunnel Luftschadstoffuntersuchung 1997. Report, Umweltbundesamt, Salzburg, Österreich.

[40] De Haan, P., Keller, M., 2000: Emission Factors for Passenger Cars: Application of Instantaneous Emission Modelling. In: Atmospheric Environment 34, pp. 4629-4638.

[41] Zweidinger, R.B. et al., 1988: Detailed hydrocarbon and aldehyde mobile source emissions from roadway studies. In: Environmental Science & Technology 22, 8/1988, pp. 956-962.

[42] Hooghiemstra, H.S., 1985: Emissienschattingen wegverkeer d.m.v. een massabalans. Eindsverslag project LB 135, Landbauhochschule Wageningen, Niederlande.

[43] Kantamaneni, R. et al., 1996: The measurement of roadway PM_{10} emissions rates using atmospheric tracer ratio techniques. In: Atmospheric Environment 30, 24/1996, pp. 4209-4223.

[44] Sagebiel, J.C. et al., 1996: Real-World emissions and calculated reactivities of organic species from motor vehicles. In: Atmospheric Environment 30, 12/1996, pp. 2287-2296.

[45] Handa, T. et al., 1984: In situ emissions levels of carcinogenic and mutagenic compounds from diesel and gasoline engine vehicles on an expressway. In: Environmental Science & Technology 18, 12/1984, pp. 895-902.

[46] Hampton, C. V. et al., 1982: Hydrocarbon gases emitted from vehicles on the road. 1. a qualitative gas chromatography/mass spectrometry survey. In: Environmental Science & Technology 16, 5/1982, pp. 287-298.

[47] Pierson, W.R. et al., 1983: Mutagenicity and chemical characteristics of carbonaceous particulate matter from vehicles on the road. In: Environmental Science & Technology 17, 1/1983, pp. 31-44.

[48] Ondov, J.M., Zoller, W.H., Gordon, G.E., 1982: Trace element emissions on aerosols from motor vehicles. In: Environmental Science & Technology 16, 6/1982, pp. 318-328.

[49] Benner, B.A., Gordon, G.E., 1989: Mobile sources of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: a roadway tunnel study. In: Environmental Science & Technology 23, 10/1989, pp. 1269-1278.

[50] Pierson, W.R., Gertler, A.W., Bradow, R.L., 1990: Comparison of the SCAQS Tunnel Study with other on-road vehicle emission data. In: Air Waste Management Association 40, pp. 1495-1504.

[51] Ingalls, M.N., 1989: On-road vehicle emission factors from measurements in a Los Angeles area tunnel. Paper 89-137. 3. Air and Waste Management Association, 82nd National Meeting, Anaheim, CA.

[52] Gregori, M. et al., 1989: Tauerntunnel – Luftschadstoffuntersuchung 1988 – Ergebnisse der Meßkampagne vom 16.-18. Sept. 1988. Bericht 4/89. Abteilung Umweltanalytik, Institut für Analytische Chemie, Technische Universität Wien.

[53] Oehme, M., Larssen, S., Brevik, E. M., 1991: Emission factors of PCDD and PCDF for road vehicles obtained by tunnel experiment. In: Chemosphere 23, 11-12/1991, pp. 1699-1708.

[54] Haszpra, L., Szilágyi, I., 1994: Non-methane hydrocarbon composition of car exhaust in Hungary. In: Atmospheric Environment 28, 16/1994, pp. 2257-2267.

[55] Bishop, G. A. et al., 1996: Method comparisons of vehicle emissions measurements in the Fort McHenry and Tuscarora Mountain Tunnels. In: Atmospheric Environment, Vol. 30, 12/1996, pp. 2307-2316.

[56] Robinson, N.F., et al., 1996: Comparison of MOBILE 4.1 and MOBILE 5 predictions with measurements of vehicle emission factors in Fort McHenry and Tuscarora Mountain Tunnels. In: Atmospheric Environment 30, 12/1996, pp. 2257-2267.

[57] Gertler, A.W. et al., 1996: Apportionment of NMHC tailpipe us non-tailpipe emissions in the Fort McHenry and Tuscarora Mountain Tunnels. In: Atmospheric Environment 30, 12/1996, pp. 2297-2305.

[58] Zielinska, B. et al., 1996: Volatile organic compounds up to C20 emitted from motor vehicles; measurements methods. In: Atmospheric Environment 30, 12/1996, pp. 2269-2286.

[59] Mc Laren, R. et al., 1997: Real-world measurements of exhaust and evaporative emissions in the Cassiar Tunnel predicted by chemical mass balance modeling. In: Environmental Science & Technology 30, pp. 426-438.

[60] Cadle, S.H. et al., 1997: Real-world vehicle emissions – A summary of the sixth coordinating research council on-road vehicle emissions workshop. In: Air and Waste Management Association 47, pp. 426-438.

[61] Gertler, A., Pierson, W.R., 1996: Recent measurements of mobile source emission factors in North American tunnels. In: The Science of the Total Environment, 180/190 1996, pp. 107-113.

[62] Staehelin, J. et al., 1994: Erfassung von Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs mittels Messungen im Gubristtunnel (Projekt EUROTRAC – Subprojekt GENEMIS). Schlussbericht Zürich und Basel.

[63] Sjödin, A., Cooper, D.A., Andréasson, K., 1995: Estimations of real-world N_2O emissions from road vehicles by means of measurements in a traffic tunnel. In: Air Waste Management Association 45, pp. 186-190.

[64] Sjödin, A. et al., 1997: On-road emission factors derived from measurements in a traffic tunnel. 4th International Symposium "Transport and Air Pollution" Avignon, 9-13 June 1997. Preliminary documents, INRETS ed., Bronn.

[65] Israel, G.W. et al., 1996: Methode zur Ermittlung von EC-Flottenemissionsfaktoren des Straßenverkehrs. In: VDI-Berichte 1257 "Aktuelle Aufgaben der Messtechnik in der Luftreinhaltung". Tagung Heidelberg, Juni 1996, VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf.

[66] Ostermayer, U., 1996: Bestimmung von Pkw- und Lkw-Emissionsfaktoren aus Tunnelmessungen. Diplomarbeit am Fachgebiet Luftreinhaltung. TU Berlin, 1996.

[67] Kirchstetter, T.W. et. al., 1996: Impact of oxygenated gasoline use on California light-duty vehicle exhaust. In: Environmental Science & Technology 30, pp. 661-670.

[68] Kirchstetter, T.W., Harley, R.A., Littlejohn, D., 1996: Measurement of nitrous acid in motor vehicle exhaust. In: Environmental Science & Technology 30, pp. 2843-2849.

[69] Gertler, A.W., Abu-Allaban, M., Coulombe, W., Gillies, J.A., Pierson, W.P., Rogers, F.C., Sagebiel, J.C., Tarnay, L., Cahill, T.A., 2001: Measurements of mobile source particulate emissions in a highway tunnel. In: International Journal of Vehicle Design 27 (1-4), pp. 86-93.

[70] John, Ch., Friedrich, R., Staehelin, J., Schläpfer, K., Stahel, W.A., 1999: Comparison of emission factors for road traffic from a tunnel study (Gubristtunnel, Switzerland). In: Atmospheric Environment 33, pp. 3367–3376.

[71] Ulevicius, V., Mordas, G., 2002: On-road vehicle fine particle emissions from measurements in a Vilnus tunnel. Proceedings of the 11th International Symposium on Transport and Air Pollution, GRAZ, 2002, pp. 372-376, ISBN 3-901351-59-0, Rudolph Pischinger.

[72] Abu-Allaban, M., Gillies, J.A., Gertler, A.W., Clayton, R., Proffitt, D., 2002: Determination of on-road PM10 and PM2.5 emission rates using roadside measurements. Proceedings of the 11th International Symposium on Transport and Air Pollution, GRAZ, 2002, pp. 377-384, ISBN 3-901351-59-0, Rudolph Pischinger.

[73] Sternbeck, J., Sjödin, A., Andreasson, K., 2002: Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension - results from two tunnel studies. In: Atmospheric Environment 36, pp. 4735-4744.

[74] Schlums, C., 1998: Charakterisierung der Quellgruppenbeiträge zur Immission von Ruß und anderen verkehrsrelevanten Schadstoffen an Hauptverkehrsstraßen. Dissertation, TU Berlin.

[75] Schläpfer, K., Schneider, A., 2000: Tunnelmessungen zur Ermittlung von Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. Luftschadstoffemissionen des Straßenverkehrs, Folgearbeiten zum BUWAL-Bericht SRU Nr. 255, Arbeitsunterlage 22. Carobtech AG, Basel. Im Auftrag des Lufthygieneamtes beider Basel, Liestal, und des Bundesamtes für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern.

[76] Jiang, W., Singleton, D. L., Hedley, M., McLaren, R., 1997: Sensitivity of ozone concentrations to VOC and NO_x emissions in the Canadian Lower Fraser Valley. In: Atmospheric Environment 31, pp. 627-638.

[77] Hanna, S. R., Chang, J. C., Fernau, M. E., 1998: Monte Carlo estimates of uncertainties in predictions by a photochemical grid model (UAM-iV) due to uncertainties in input variables. In: Atmospheric Environment 32, pp. 3619-3628.

[78] Bergin, M. S., Noblet, G. S., Petrini, K., Dhieux, J. R., Milford, J. B., Harley, R. A., 1999: Formal uncertainty analysis of a Lagrangian photochemical air pollution model. In: Environmental Science and Technology 33, pp. 1116-1126.

[79] Russell, A., Dennis, R., 2000: NARSTO critical review of photochemical models and modeling. In: Atmospheric Environment 34, pp. 2283-2324.

[80] EPA, 1995: Compilation of Air Pollutant Emission Factors, 5. Edition. Research Triangle Park NC 27711.

[81] National Academy of Sciences, 1991: Rethinking the Ozone Problem in Urban and Regional Air Pollution. Washington D.C.: National Academy Press.

[82] Kolar, J., 1990: Stickstoffoxide und Luftreinhaltung – Grundlagen, Emissionen, Transmissionen, Immissionen, Wirkungen. Berlin – Heidelberg: Springer.

[83] Baumbach, G., 1993: Luftreinhaltung. Berlin – Heidelberg: Springer.

[84] Hupfer, P.; Kuttler, W., 1998: Witterung und Klima – Eine Einführung in die Meteorologie und Klimatologie, 10. Auflage. Stuttgart – Leipzig: B. B. Teubner.

[85] Umweltbundesamt, 2004: Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. Version 2.1. Dokumentation zur Version Deutschland erarbeitet durch INFRAS AG Bern/Schweiz in Zusammenarbeit mit IFEU Heidelberg. Hrsg.: Umweltbundesamt Berlin. http://www.hbefa.net/.

[86] Törgyekes, S., 1998: Ableitung spezifischer Abgas-Emissionsfaktoren für Kraftfahrzeugkollektive anhand von Konzentrationsmessungen in einem städtischen Straßentunnel. Dissertation, Institut für Straßen- und Verkehrswesen, Universität Stuttgart, ISBN 3-9804958-2-5 D93.

[87] Umweltbundesamt, 2008: Daten zur Umwelt – Umweltzustand in Deutschland, Umwelt und Verkehr, Emissionsmindernde Anforderungen im Verkehr. Grenzwerte für Schadstoffemissionen für Pkw / Lkw und Busse: http://www.umweltbundesamt-umwelt-deutschland.de/umwelt-daten/public/document/downloadImage.do?ident=13856.

[88] Heeb, N.V., Forss, A.M., Bach, C., Mattrel, P., 2000: Velocity-dependent emission factors of benzene, toluene and C2-benzenes of a passenger car equipped with and without a regulated 3-way catalyst. In: Atmospheric Environment 34, pp. 1123-1137.

[89] De Vlieger, I., 1997: On-board emission and fuel consumption measurement campaign on petrol driven passenger cars. In: Atmospheric Environment 31, pp. 3753-3761.

[90] Durbin, T.D., Johnson, K., Miller, J.W., Maldonado, H., Chernich, D., 2008: Emissions from heavy-duty vehicles under actual on-road driving conditions. In: Atmospheric Environment 42, pp. 4812-4821.

[91] Chen, C., Huang, C., Jing, Q., Wang, H., Pan, H., Li, L., Zhao, J., Dai, Y., Huang, H., Schipper, L., Streets, D.G., 2007: On-road emission characteristics of heavy-duty diesel vehicles in Shanghai. In: Atmospheric Environment 41, Issue 26, pp. 5334-5344.

[92] Zhang, Y., Stedman, D.H., Bishop, G.A., Guenther, P.L., Beaton, S.P., 1995: Worldwide on-road vehicle exhaust emissions study by remote sensing. In: Environ. Sci. Technol. 29, pp. 2286-2294.

[93] Petrea, D.M.V., 2007: Emissions of Non-Methane Volatile Organic Compounds (NMVOC) from Vehicular Traffic in Europe. Dissertation, Institut für Chemie, Bergische Universität Wuppertal.

[94] Lamb, B.K., McManus, J.B., Shorter, J.H., Kolb, C.E., Mosher, B., Harriss, R.C., Allwine, E., Blaha, D., Hiward, T., Guenther, A., Lott, R.A., Siverson, R., Westberg, H., Zimmerman, P., 1995: Development of Atmospheric Tracer Methods to measure Methane Emissions Factors from Natural Gas Facilities and Urban Areas. In: Environ. Sci. Technol. 29, pp. 468-479.

[95] Leunig, R., Baker, S.K., Jamie, I.M., Hsu, C.H., Klein, L., Denmead, O.T. and Griffith, D.W.T., 1999: Methane emissions from free-ranging sheep: a comparison of two measuring methods. In: Atmospheric Environment 33, pp. 1357-1365.

[96] Möllmann-Coers, M., 1999: TFS-Jahresbericht, ASS, Forschungszentrum Jülich.

[97] Leisen, P., Mülle, W.-R., Heich, H.-J., Hasselbach, W., Müller, J., Waldeyer, H., 1992: Entwicklung der Abgasbelastung an Autobahnen. Umweltbundesamt, Berlin, (UFOPLAN-Nr. 104 02 585).

[98] Meier, E., Plaßmann, E., Wolff, C., Heusch, H., Schmidt, G., Hassel, D., Jost, P., Leisen, P., Waldeyer, H., Heine, P., Voss, H.J., 1986: Abschlußbericht über die Ergebnisse des Abgas-Großversuch. Hrsg. VdTÜV, Köln: Verlag TÜV Rheinland GmbH.

[99] Vogel, B., Corsmeier, U., Vogel, H., Fiedler, F., Kühlwein, J., Friedrich, R., Obermeier, A., Weppner, J., Kalthoff, N., Bäumer, D., Bitzer, A., Jay, K., 2000: Comparison of measured and calculated motorway emission data. In: Atmospheric Environment 34, pp. 2437-2450.

[100] Hucho, W.-H., 1981: Aerodynamik des Automobils. Vogel, Würzburg.

[101] Peters, J.-L., 1990. Bestimmung des aerodynamischen Widerstands des ICE/V im Tunnel und auf freier Strecke durch Auslaufversuche. Eisenbahntechnische Rundschau 39, S. 559-564.

[102] Colberg, C.A, Tona, B., Stahel, W.A., Meier, M., Staehelin, J., 2005: Comparison of a road traffic emission model (HBEFA) with emissions derived from measurements in the Gubrist road tunnel, Switzerland. In: Atmospheric Environment 39, pp. 4703-4714.

[103] Handler, M., Puls, C., Zbiral, J., Marr, I., Puxbaum, H., Limbeck, A., 2008: Size and composition of particulate emissions from motor vehicles in the Kaisermühlen-Tunnel, Vienna. In: Atmospheric Environment, Volume 42, pp. 2173-2186.

[104] Hausberger, S., Rodler, J., Sturm, P., Rexeis, M., 2003. Emission factors for heavy duty vehicles and validation by tunnel measurements. Atmospheric Environment, Volume 37, 5237-5245.

[105] Grieshop, A.P., Lipsky, E.M., Pekney, N.J., Takahama, S., Robinson, A.L., 2006: Fine particle emission factors from vehicles in a highway tunnel: Effects of fleet composition and season. In: Atmospheric Environment 40, Supplement 2, pp. 287-298.

[106] Ning, Z., Polidori, A., Schauer, J.J., Sioutas, C., 2008: Emission factors of PM species based on freeway measurements and comparison with tunnel and dynamometer studies. Atmospheric Environment 42, Issue 13, pp. 3099-3114.

[107] Hueglin, C., Buchmann, B., Weber R.O., 2006: Long-term observation of real-world road traffic emission factors on a motorway in Switzerland. In: Atmospheric Environment 40, Issue 20, pp. 3696-3709.

[108] Gehrig, R., Hill, M., Buchmann, B., Imhof, D., Weingartner, E. and Baltensperger, U., 2004: Separate determination of PM_{10} emission factors of raod traffic for tailpipe emissions and emissions from abrasion and resuspension processes. In: International Journal of Environment and Pollution 22, pp. 312-325.

[109] Jones, A.M, Harrison, R.M., 2006: Estimation of the emission factors of particle number and mass fractions from traffic at a site where mean vehicle speeds vary over short distances. In: Atmospheric Environment 40, pp. 7125–7137.

[110] Krautstrunk, M., Neumann-Hauf, G., Schlager, H., Klemm, O., Beyrich, F., Corsmeier, U., Kalthoff, N., Kotzian, M., 2000: An experimental study on the planetary boundary layer transport of air pollutants over East Germany. In: Atmospheric Environment 34, pp. 1247-1266.

[111] Pätz, H.-W., Corsmeier, U., Glaser, K., Vogt, U., Kalthoff, N., Klemp, D., Kolahgar, B., Lerner, A., Neininger, B., Schmitz, T., Schultz, M. G., Slemr, J., Volz-Thomas, A., 2000: Measurements of trace gases and photolysis frequencies during SLOPE96 and a coarse estimate of the local OH concentration from HNO_3 formation. In: Journal of Geophysical Research 105, No. D1, pp. 1563-1583.

[112] Neininger B., Fuchs, W., Bäumle, M., Volz-Thomas, A., S.H. Prévôt, A., Dommen, J., 2001: A small aircraft for more than just ozone: MetAir's 'Dimona' after ten years of evolving development. Proc. of the 11th Symposium on Meteorological Observations and Instrumentation, 14-18 Jan 2001, Albuquerque, New Mexico, American Meteorological Society, pp. 123-128.

[113] Konrad, S., 2000: Untersuchungen zur Radikalchemie in der Abluftfahne von Berlin – ein Beitrag zum Feldexperiment BERLIOZ. Diss. Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 2: Chemie der Belasteten Atmosphäre, Bergische Universität Wuppertal. Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3812 ISSN 0944-2952

[114] Slemr, F., Baumbach, G., Blank, P., Corsmeier, U., Fielder, F., Friedrich, R., Habram, M., Kalthoff, N., Klemp, D., Kühlwein, J., Mannschreck, K., Möllmann-Cörs, M., Nester, K., Panitz, H.-J., Rabl, P., Slemr, J., Vogt, U., Wickert, B., 2002: Evaluation of Modelled Spatially and Temporarily Highly Resolved Emission Inventories of Photosmog Precursors for the City of Augsburg: The Experiment EVA and its Major Results. In: Journal of Atmospheric Chemistry 42, pp. 207-233.

[115] Kalthoff, N., Bäumer, D., Corsmeier, U., Kohler, M., Vogel, B., 2005: Vehicle-induced turbulence near a motorway. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5737-5749.

[116] VDI, 2003: VDI-Richtlinie 3782 Blatt 7 - Kfz-Emissionsbestimmung, Luftbeimengungen. VDI/DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 1b. November 2003.

[117] Kühlwein, J., 2004: Unsicherheiten bei der rechnerischen Ermittlung von Schadstoffemissionen des Straßenverkehrs und Anforderungen an zukünftige Modelle. Dissertation, Universität Stuttgart.

[118] Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. Amtsblatt der EG.

[119] Lazaridis, M., Semb, A., Pacyna, J., Hov, Ø., Schaug, J., Larssen, S., Tarrason, L., Tsyro, S., Simpson, D., Olendrzynski, K., Andersson-Sköld, Y., 2000: Status report with respect to Measurements, Modelling and Emissions of Particulate Matter in EMEP: an integrated approach. EMEP Report 5/2000.

[120] Rao, S. T.; Sedefian, L.; Czapski, U. H., 1979: Characteristics of turbulence and dispersion of pollutants near major highways. In: Journal of Applied Meteorology 18, pp. 283-293

[121] Eskridge, R. E.; Rao, S. T.: Measurement and prediction of traffic-induced turbulence and velocity fields near roadways. In: Journal of Climate and Applied Meteorology 22, 1983, pp. 1431-1443.

[122] Wenzel, A., 1998: Untersuchungen zur Stoffbilanz bei der Ausbreitung einer passiven Beimengung aus einer Linienquelle. In Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe Nr. 21, S. 74-95.

[123] Kühlwein, J., Wickert, B., Trukenmüller, A., Theloke, J., Friedrich, R., 2002: Emission-modelling in high spatial and temporal resolution and calculation of pollutant concentrations for comparisons with measured concentrations. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp. 7-18.

[124] Kühlwein, J., Friedrich, R., 2005: Traffic measurements and high performance modelling of motorway emission rates. In: Atmospheric Environment Volume 39, Issue 31, pp. 5722-5736.

[125] Bäumer, D.; Vogel, B.; Fiedler, F., 2005: A new parameterisation of motorway-induced turbulence and its application in a numerical model. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5750-5759.

[126] Weitkamp, C. et al., 2001: Vergleichsmessungen von Ozon-Vertikalprofilen zwischen vier Lidar- und drei In-situ-Meßsystemen. Abschlussbericht des Vorhabens "Ozonlidar-Aerosolkorrektur" (OLAK) im Rahmen des BMBF-Verbundvorhabens Troposphärenforschung, Leitthema 3: Prozessstudien zur Oxidantienbildung und Oxidationskapazität, Bericht des GKSS-Forschungszentrums Geesthacht GmbH.

[127] Panitz, H.-J., Nester, K., Fiedler, F., 2002: Mass budget simulation of NO_x and CO for the evaluation of calculated emissions for the city of Augsburg (Germany). Emissions of the city of Augsburg determined using the mass balance method. Emission-modelling in high spatial and temporal resolution and calculation of pollutant concentrations for comparisons with measured concentrations. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp. 33-51.

[128] Platt, U., 1986: Oxidierte Stickstoffverbindungen in der Atmosphäre. IMA-Querschnittsseminar „Atmosphärische Prozesse“ 22.24.1.86, Texte 13/86, Umweltbundesamt Berlin.

[129] Mannschreck, K., 2001: Experimentelle Bestimmung von städtischen Emissionen anhand von Konzentrationsmessungen im Lee einer Stadt. Dissertation, Bergische Universität Wuppertal.

[130] VDI 3786 Blatt 8, 1987: Meteorologische Messungen für Fragen der Luftreinhaltung – Aerologische Messungen. Hrsg. Verein Deutscher Ingenieure. Ausg. Juni 1987.

[131] Beswick, K.M., Simpson, T.W., Fowler, D., Gallagher, M.W., Choularton, T.W., Har-greaves, K.J., Sutton, M.A., Kaye, A., 1998: Methane emissions on large scales. In: Atmospheric Environment 32, No. 19, pp. 3283-3291.

[132] Güsten H., Heinrich, G., Sprung, D., 1998: Nocturnal depletion of ozone in the upper Rhine Valley. In: Atmospheric Environment 32, No. 7, pp. 1195-1202.

[133] Pisano, J. T., McKendry, I., Steyn, D. G., Hastie, D. R., 1997: Vertical nitrogen dioxide and ozone concentrations measured from a tethered balloon in the lower Fraser Valley. In: Atmospheric Environment 31, No. 14, pp. 2071-2078.

[134] Sahashi, K., Hieda, T., Yamasita, E., 1996: Nitrogen-Oxide layer over the urban heat island in Okayama City. In: Atmospheric Environment 30, No. 3, pp. 531-535.

[135] Greenberg, J.P., Guenther, A., Zimmermann, P., Baugh, W., Geron, C., Davis, K., Helmig, D., Klinger, L.G., 1999: Tethered balloon measurements of biogenic VOCs in the atmospheric boundary layer. In: Atmospheric Environment 33, pp. 855-867.

[136] Clark, R.D., 1999: Boundary layer research using the Millersville University tethered balloon facility. From: A collection of the 13th AIAA lighter than air systems technology conference and AIAA international balloon technology conference technical papers, Norfolk.

[137] Steisslinger, B., 1994: Einfluß von Temperaturinversionen auf Konzentration und Verteilung von Luftverunreinigungen. VDI-Fortschritt-Berichte, Reihe 15, Nr. 122, Düsseldorf: VDI Verlag.

[138] Baumbach, G., Grauer, A., Semmler, R., Steisslinger, B., Wanner, H., Künzle, T., Neu, U., 1993: A tethersonde measuring system for detection of O_3, NO_2, hydrocarbon concentrations and meteorological parameters in the lower boundary layer. In: Meteorologische Zeitschrift, Nr.2, S. 178-188.

[139] Baumbach, G., Vogt, U., 1995: A Tethered-Balloon Measurement System for the Determination of the Spatial and Temporal Distribution of Air Pollutants such as O_3, NO_2, VOC, Particles and Meteorological Parameters. In: Eurotrac Newsletter 16, pp. 23-29.

[140] Atmospheric Instrumentation research (AIR) Inc., 1986: Atmospheric Data Aquisition System (ADAS), Models AIR-3A, AI-3B, AIR-3C. Operation and technical reference manual, Boulder, Colorado.

[141] Glaser, K., 2001: Methoden der Qualitätssicherung bei der Messung von Luftverunreinigungen bei Feldexperimenten. Dissertation, Universität Stuttgart.

[142] DIN EN 13649: Emissionen aus Stationären Quellen. Bestimmung der Massenkonzentration von einzelnen gasförmigen organischen Verbindungen. Berlin: Beuth 2002.

[143] Kröplin, B., Schäfer, I., 1995: Experience by design of the solar powered Airships Lotte 1-3. Proceedings of the 11th AIAK lighter than air systems technology conference, May 1995, Clearwater Beach, Florida.

[144] Schäfer, I., 1994: Fliegen leichter als Luft – Das Solarluftschiff. In: Dinkler, D.; Hänle, U. (Hrsg.): Numerische und experimentelle Methoden in der Statik und Dynamik. Institut für Statik und Dynamik der Luft- und Raumfahrtkonstruktionen, Stuttgart.

[145] Vogt, U., Dreiseidler, A., Baumbach, G., Kurtenbach, R., Petrea, M., Kohler M., Corsmeier, U., 2005: Quality assurance of air pollutant measurements during the BAB II field experiment. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5642-5664.

[146] Jacobeit, J., 1986: Stadtklimatologie von Augsburg unter besonderer Berücksichtigung der lufthygienischen Situation sowie des Lärms. Augsburger Geographische Hefte, Nr. 6, Lehrstuhl für Physische Geographie der Universität Augsburg.

[147] Kanter, H.-J., Mohnen, V. A., Volz-Thomas, A., Junkermann, W., Glaser, K., Weitkamp, H., Slemr, F., 2002: Quality assurance in TFS for inorganic compounds. In: Journal of Atmospheric Chemistry 42, pp. 235-253.

[148] Volz-Thomas, A., Slemr, J., Konrad, S., Schmitz, T., Apel, E. C., Mohnen, V. A., 2002: Quality Assurance of Hydrocarbon Measurements of the German Tropospheric Research Focus (TFS). In: Journal of Atmospheric Chemistry 42, pp. 255-279.

[149] Schlenker, M., 1997: GPS-Versuch zum Schleppfehler. Persönlicher Bericht.

[150] Zongmin, W., 1986: Die Kriging-Methode zur Lösung mehrdimensionaler Interpolationsprobleme. Dissertation, Universität Göttingen.

[151] Kühlwein, J., Friedrich, R., Kalthoff, N., Corsmeier U., Slemr, F., Habram, M., Möllmann-Coers, M.: Comparison of modelled and measured total CO and NO_x emission rates. In: Atmospheric Environment, Band 36, Supplement No. 1, (2002), S53-S60.

[152] Mannschreck, K., Klemp, D., Kley, D., Friedrich, R., Kühlwein, J., Wickert, B., Matuska, P., Habram, M., Slemr, F., 2002: Evaluation of an emission inventory by comparison of modelled and measured emission ratios of individual HCs, CO and NO_x. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp 81-94.

[153] Kalthoff, N., Corsmeier, U., Schmidt, K., Kottmeier, C., Fiedler, F., Habram, M., Slemr, F., 2002: Emissions of the city of Augsburg determined using the mass balance method. Emissionmodelling in high spatial and temporal resolution and calculation of pollutant concentrations for comparisons with measured concentrations. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp 19-31.

[154] Möllmann-Coers, M., Klemp, D., Mannschreck, K., Slemr, F., 2002: Determination of anthropogenic emissions in Augsburg area by the source-tracer-ratio method. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp. 95-107.

[155] Klemp., D., Mannschreck, K., Pätz, H.W., Habram, M., Matuska, P., Slemr, F., 2002: Determination of anthropogenic emission rations in the Augsburg area from concentration ratios: results from long-term measurements. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp. 61-80.

[156] Möllmann-Coers, M., Klemp, D., Mannschreck, K., Slemr, F., 2002: Statistical study of the diurnal variation of modeled and measured NMHC contributions. In: Atmospheric Environment 36, Supplement No. 1, pp. 109-122.

[157] DIN ISO 13752: Luftbeschaffenheit. Ermittlung der Unsicherheit eines Messverfahrens unter Feldbedingungen mit Hilfe eines als Referenz benutzten zweiten Messverfahrens. Berlin: Beuth 1999.

[158] Rosenbohm, E., Vogt, R., Scheer, V., Nielsen, O. J., Dreiseidler, A., Baumbach, G., Imhof, D.; Baltensperger, U., Fuchs, J., Jaeschke, W., 2005: Particulate size distributions measured at a motorway during the BAB II campaign. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5696-5709.

[159] Imhof, D., Weingartner, E., Vogt, U., Dreiseidler, A., Rosenbohm, E., Scheer, V., Vogt, R., Nielsen, O. J., Kurtenbach, R., Corsmeier, U., Kohler, M., Baltensperger, U., 2005: Vertical distribution of aerosol particles and NO_x close to a motorway. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5710-5721.

[160] Backhaus, K., Erichson, B., Plinke, W., Weiber, R., 2003: Multivariate Analysenmethoden. Eine anwendungsorientierte Einführung, 10. Auflage. Heidelberg, New York, Springer-Verlag Berlin.

[161] Backhaus, K., Erichson, B., Plinke, W., Weiber, R., 1994: Multivariate Analysemethoden. Eine anwendungsorientierte Einführung., 7. Aufl.; Berlin, Heidelberg, New York.

[162] Kohler, M., Corsmeier, U., Vogt, U., Vogel, B., 2005: Estimation of gaseous real-world traffic emissions downstream a motorway. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5665-5684.

[163] Corsmeier, U., Imhof, D., Kohler, M., Kühlwein, J., Kurtenbach, R., Petrea, M., Rosenbohm, E., Vogel, B., Vogt, U., 2005: Comparison of measured and model-calculated real-world traffic emissions of gaseous and particulate compounds. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5760-5775.

[164] Steinemann, U., Zumsteg, F., 2005: Verkehrs- und Schadstoffmessungen 2005 im Gubristtunnel. Ostluft, Amt für Abfall, Wasser, Energie und Luft des Kantons Zürich (AWEL), Auftragsnummer US 89-16, www.ostluft.ch.

[165] Imhof, D., Weingartner, E., Ordóñez, C., Gehrig, R., Hill, M., Buchmann, B., Baltensperger, U., 2005: Real-World Emission Factors of Fine and Ultrafine Aerosol Particles for Different Traffic Situations in Switzerland. In: Environ. Sci. Technol. 39 (21), pp 8341-8350.

[166] Benter, T., Lörzer, J., 2003: Messungen ausgewählter Abgaskomponenten in einem Verkehrstunnel zur Bestimmung von Emissionsfaktoren. Bergische Universität Wuppertal, Fachbereich 9, Physikalische Chemie, Bericht Nr. 62, ISSN 1436-2198.

[167] Umweltbundesamt, 1999: Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. Version 1.2. Dokumentation zur Version Deutschland erarbeitet durch INFRAS AG Bern/Schweiz. Hrsg.: Umweltbundesamt Berlin. http://www.hbefa.net/.

[168] Gomes, J.A.G., Benter, T., 2003. Impact of road traffic emissions on the ozone formation in Germany. University of Wuppertal, Berichte der Physikalischen Chemie, No. 61, ISSN: 1436-2198.

[169] Stemmler, K., Bugmann, S., Buchmann, B., Reimann, S., Staehelin, J., 2005: Large decrease of VOC emissions of Switzerland's car fleet during the past decade: results from a highway tunnel study. In: Atmospheric Environment 39, pp. 1009-1018.

[170] Gomes, A, 2001: Impact of Road Traffic Emissions on the Ozone Formation in Germany. Dissertation, Institut für Chemie, Bergische Universität Wuppertal.

[171] Mittermaier, B., Schmitz, T., Hassel, D., Weber, N. B., Klemp, D., 2004: VOC-Split of gasoline and diesel passenger cars. In: Emissions of Air Pollutants - Measurements, Calculations and Uncertainties / eds.: R. Friedrich, S. Reis. - Springer, Berlin. 3-540-00840-3. pp. 25 – 32.

[172] Petrea, M., Kurtenbach, R., Wiesen, P., Vogt, U., Baumbach, G., 2005: NMHC measurements of motorway emissions during the BAB II field campaign. In: Atmospheric Environment 39, Issue 31, pp. 5685-5695.

[173] Touaty, M., Bonsang, B., 2000: Hydrocarbon emissions in a highway tunnel in the Paris area. Atmospheric Environment 34, pp. 985-996. Elsevier Science.

[174] Sjödin, A., Persson, K., Andréasson, K., Arlander, B., Galle, B., 1998. On road emission factors derived from measurements in a traffic tunnel. International Journal of Vehicle Design 20, pp. 147-158.

[175] Keskinen, J., Pietarinen, K., Lehtimäki, M., 1992. Electrical low pressure impactor. Journal of Aerosol Science 23, pp. 353-360.

[176] Baltensperger, U., Weingartner, E., Burtscher, H., Keskinen, J., 2001. Dynamic mass and surface area measurements. In: Baron, P.A., Willeke, K. (Eds.), Aerosol Measurement - Principles, Techniques and Applications, pp. 387-418.

[177] Ketzel, M., Wåhlin, P., Kristensson, A., Swietlicki, E., Berkowicz, R., Nielsen, O.J., Palmgren, F., 2004: Particle size distribution and particle mass measurements at urban, near-city and rural level in the Copenhagen area and Southern Sweden. In: Atmospheric Chemistry and Physics 4, pp. 281-292.

[178] Gramotnev, G., Brown, R., Ristovski, Z., Hitchins, J., Morawska, L., 2003: Determination of average emission factors for vehicles on a busy road. Atmospheric Environment 37, pp. 465-474.

[179] Jamriska, M., Morawska, L., 2001: A model for determination of motor vehicle emission factors from on-road measurements with a focus on submicrometer particles. In: The Science of the Total Environment 264, pp. 241-255.

[180] Gidhagen, L., Johansson, C., Ström, J., Kristensson, A., Swietlicki, E., Pirjola, L., Hansson, H.-C., 2003: Model simulation of ultrafine particles inside a road tunnel. In: Atmospheric Environment 37, pp. 2023-2036.

[181] Kirchstetter, T.W., Harley, R.A., Kreisberg, N.M., Stolzenburg, M.R., Hering, S.V., 1999: On-road measurements of fine particle and nitrogen oxide emissions from light- and heavy-duty motor vehicles. In: Atmospheric Environment 33, pp. 2955-2968.

[182] Kirchstetter, T.W., Harley, R.A., Kreisberg, N.M., Stolzenburg, M.R., Hering, S.V., 1999: Corrigendum to - On-road measurements of fine particle and nitrogen oxide emissions from light- and heavy-duty motor vehicles" Atmospheric Environment 33 (18), Atmospheric Environment 36, pp. 2955–2968.

[183] 33. BImSchV (2004): Dreiunddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes: Verordnung zur Verminderung von Sommersmog, Versauerung und Nährstoffeinträgen vom 13. Juli 2004 (BGBl. I S. 1612).

[184] 23. BImSchV (1996): Dreiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes. Verordnung über die Festlegung von Konzentrationswerten vom 16. Dezember 1996 (BGBl. I 1996 S. 1962).

[185] Pope, C.A., Burnett, R.T., Thun, M.J., Calle, E.E., Krewski, D., Ito, K., Thurston, G.D., 2002: Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. In: Journal American Medical Association 287, pp. 1132-1142.

[186] IPCC (International Panel on Climate Change), 2001: The Scientific Basis. Cambridge University Press, New York.

[187] Horvath, H., Kreiner, I., Norek, O., Georgi, B., 1988: Diesel emissions in Vienna. In: Atmospheric Environment 22, Issue 7, pp. 1255-1269.

[188] Hamilton R.S., Mansfield T.A., 1991: Airborne particulate elemental carbon: Its sources, transport and contribution to dark smoke and soiling. In: Atmospheric Environment Part A - General Topics, 25, pp. 715-723.

[189] Ang, K.B., Baumbach, G., Vogt, U., Dreher, W., Pesch, P., 2008: Bestimmung der Herkunft von Partikeln an einem stark verkehrsbeeinflussten Messstandort in Stuttgart durch korngrößenspezifische Partikelsammlung und Einzelkornanalysen. VDI-Kolloquium "Neue Entwicklungen bei der Messung und Beurteilung der Luftqualität" in Nürnberg, 24.-25. Juni 2008, S. 111-118.

[190] BUWAL, 2001. PM_{10} Fragen und Antworten zu Eigenschaften, Emissionen, Immissionen, Auswirkungen und Maßnahmen. BUWAL (Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft), Abteilung Luftreinhaltung und NIS, Bern.

[191] Ballach, J., 2000: Entwicklung und Absicherung leistungsfähiger Analyseverfahren zur Bestimmung von Benzol und Ruß in der Lufthygiene. Dissertation Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main.

[192] Rußemissionen berechnet mit Emissionsmodell des IER. Persönliche Mitteilung an Autor der Arbeit durch J. Kühlwein.

[193] Weingartner, E., Keller, C., Pfahel, W.A., Burtscher, H., Baltensberger, U., 1997: Aerosol emissions in a road tunnel. In: Atmospheric Environment 31, pp. 451-462.

[194] Israel, W., Schlums, C., Treffeisen, R., Pesch, M., 1996: Rußimmissionen in Berlin: Herkunftsbestimmung - Kfz-Flottenemissionsfaktoren - Vergleichbarkeit von Probenahmemethoden. VDI-Fortschritt-Berichte; Reihe 15 Nr. 152. VDI-Verlag, Düsseldorf.

[195] Rauterberger-Wulff, A., 1997: Beitrag des Reifen- und Bremsabriebs zur Rußimmission an Straßen. Fortschritt-Berichte VDI, Reihe 15, Nr. 202. VDI-Verlag, Düsseldorf.

[196] Neu U., 1995: Ozonversuch Neckarsulm/Heilbronn - Wissenschaftliche Auswertungen. Umweltministerium Baden-Württemberg.

[197] Vogt, U., Baumbach, G., Wanner, H., Neu, U., 1994: Analyse der Messergebnisse des Ozon-Modellversuchs Heilbronnn/Neckarsulm. In: IVD-Bericht, Nr. 31. Stuttgart: Eigenverlag Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen (IVD).

[198] Baumbach, G., Glaser, K., Grauer, A., Vogt, U., 1999: Determination of air pollutants from cities by tethered balloon and airship measurements. In: VDI-Berichte, Nr. 1443.

[199] Baumbach G., Glaser, K., Vogt, U., 1998: Mass Flow Balance of Air Pollutants over Cities – Comparison of Tethered Balloon Measurement Results and Emission Inventories. In: Poceedings of the "11th World Clean Air and Environment Congress"; Volume 5, Durban South Africa, 14-16 September 1998.

[200] Baumbach, G., Vogt, U., Glaser, K., 2002: Einfluss von bodennaher Sperrschichten auf das Ozonaufkommen in Stadtgebieten. In: proment – Photosmog II. Jahrgang 27, Heft 1 und 2, Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes 2002, S. 68-75.

[201] Baumbach, G., Vogt, U., 1999: Experimental determination of the effect of mountain-valley breeze circulations on air pollution in the vicinity of Freiburg. In: Atmospheric Environment 33, pp. 4019-4027.

[202] Baumbach, G., Vogt, U., 1995: Experimentelle Bestimmung des Transports von Luftverunreinigungen aus der Stadt Freiburg ins Zartener Becken (Dreisamtal) und umgekehrt. Jahresbericht der Arbeitsgruppe Luftreinhaltung der Universität Stuttgart (ALS), S. 147-157.

[203] Baumbach, G., Vogt, U., 1996: Study of air pollution transport from a city into a Black Forest Valley with the help of tethersonde measurements: Example of the City of Freiburg, Germany. From: ICUC '96: International Conference on Urban Climatology, 10 – 14 June 1996, Essen/Germany.

[204] Vogt, U., Baumbach, G., Glaser, K., 1998: Influence of the “Höllentäler“ Mountain-Valley Wind on the Air Quality of Freiburg. From: Symposium on Advances in Regional Climatology, 5-7 October 1998, Karlsruhe/Germany, pp. 88-89.

[205] Baumbach, G., Glaser, K., Vogt, U., 1997: Fesselballon- und Luftschiffmessungen beim Schauinsland Ozone Precursor Experiment – SLOPE. Aus: Tagungsband der Fachtagung MET-TOOLS III, Deutsche Meteorologische Gesellschaft e.V., Fachausschuss "Umweltmeteorologie" (Akumet), S. 29.

[206] Volz-Thomas, A., Geiß, H., Flocke, F., Klemp, D., Knaps, A., Kolahgar, B., Kramp, F., Lerner, A., Möllmann-Coers, M., Pätz, H. W., Schmitz, T., Schultz, M., Adrian, G., Corsmeier, U., Kalthoff, N., Bisling, P., Glauer, J., Köhler, S., Weitkamp, C., Matzarakis, A., Thamm, H. P., Baumbach, G., Glaser, K., Rüger, U., Vogt, U., Sperling, T., Weschke, W., Massmeier, K., Bösenberg, J., Grassi, L., Linne, H., Slemr, J., Leibrock, E., Neininger, B., Bäumle, M., Fuchs, W., Thielen, H., 1998: The Schauinsland Ozone Precursor Experiment (SLOPE). From: Proceeding of the EUROTRAC-2 Symposium, Garmisch-Partenkirchen, pp. 43-51.

[207] Baumbach, G.; Hansen, S.; Rühling, A.; Vogt, U., 1999: Messungen der Kaltluftströme und Luftverunreinigungs-Vertikalprofile im Plangebiet Stuttgart 21. Untersuchungen zur Umwelt "Stuttgart 21", Heft 15, Amt für Umweltschutz (Hrsg.), Stuttgart.

[208] Vogt, U., Baumbach, G., Glaser, K., 2000: Ergebnisse von Fesselballonsondierungen zur Ermittlung von Kaltluftflüssen im Stuttgarter Talkessel. Aus: Tagungsband der Fachtagung MET-TOOLS IV, Deutsche Meteorologische Gesellschaft e.V., Fachausschuss "Umweltmeteorologie" (Akumet), S. 111-113.

[209] Vogt, U., Baumbach, G., Glaser, K., Rühling, A., 1999: Determination of cold air flows and the vertical distribution of air pollutants in Stuttgart/Germany. From: ICUC/ICB '99: International Conference on Urban Climatology, 8 – 12 November 1999, Sydney/Australia.

[210] Barth, H. G., Baumbach, G., 2001: Air Quality and Urban Development in Izmir, Turkey. Pro Universitate Verlag.

[211] Baumbach, G., Bayram, A., Glaser, K., Onat, L., Müezzinoglu, A., Vogt, U., 1997: Spatial and temporal distribution of air pollutants in Izmir - results of ground level and tethered balloon measurement. In: Environmental Research Forum 7-8, pp. 101-106.

[212] Vogt, U., Baumbach, G., Glaser, K., Bayram, A., Müezzinoglu, A., Barth, H.G., Ketelhake, G., 1999: Determination of the spatial and temporal distribution of air pollutants in an urban agglomeration. From: ICUC/ICB '99: International Conference on Urban Climatology, 8-12 November 1999, Sydney/Australia.

[213] Baumbach, G., Vogt, U., Bauerle, P., Glaser, K., 2004: Mass balancing by means of vertical and horizontal profiles determined with tethered balloon and airship soundings. In: GENEMIS - EUROTRAC-2 Subproject Final Report, Berlin – Heidelberg – New York: Springer, pp. 235-241.

[214] Bauerle, P., 2000: Aufbereitung und Auswertung eines Datensatzes zur Durchführung von Massenstrombilanzen der Luftverunreinigungen einer Großstadt. Diplomarbeit Nr. 2684 am Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart.

[215] Vogt, U., Baumbach, G., Glaser, K., 1999: Transport phenomenon of air pollutants in city plumes observed by vertical profile measurements. From: ICUC/ICB '99: International Conference on Urban Climatology, 8-12 November 1999, Sydney/Australia.

[216] Glaser, K., Vogt, U., Baumbach, G., Volz-Thomas, A., Geiss, H., 2003: Vertical profiles of O_3, NO_2, NO_x, VOC and meteorological parameters during the Berlin Ozone Experiment (BERLIOZ) campaign. In: Journal of Geophysical Research 108, No. D4, pp. 8-1 to 8-14.

[217] Weitkamp, C., Baumbach, G., Becker, K. H., Braun-Schoen, S., Burger, H., Dinev, S., Fabian, R., Frey, S., Fritzsche, K., Glaser, K., Glauer, J., Herb, F., Immler, F., Junkermann, W., Kanter, H. J., Lindemann, C., Loescher, A., Mohnen, V.A., Möller, D., Neidhardt, B., Olariu, R.,; Reimer, E., Schmidt, V., Schubert, G., Spittler, M., Vogt, U., Weidauer, D., Windholz, L., Wöste, L., 2000: Wie richtig sind Lidarmessungen der Ozonverteilung? In: Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft 60, Nr.7-8, S. 279-284.

[218] Weitkamp, C., Glauer, J., Neidhardt, B., Kanter, H. J., Junkermann, W., Mohnen, V. A.; Seiler, W., Glaser, K., Vogt, U., Braun-Schoen, S., Burger, H., Baumbach, G., Dinev, S., Loescher, A., Windholz, L., Fabian, R., Schmidt, V., Schaller, E., Möller, D., Frey, S., Herb, F., Immler, F., Wöste, L., Schubert, G., Fritzsche, K., Siegel, S., Spittler, M., Olariu, R., Becker, K. H., Reimer, E., Lindemann, C., Weidauer, D., 2001: Blind Ozone Differential-Absorption Lidar Comparison. Twentieth International Laser Radar Conference (20ILRC), 10 - 14 July 2000, Vichy/France.

[219] Braun-Schön, S., 2000: Güte des Referenzdatensatzes für LIDAR-Messungen während der OLAK-Messkampagne. Diplomarbeit am Lehrstuhl für Umweltmeteorologie der Brandenburgischen Universität Cottbus in Zusammenarbeit mit dem Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart.

[220] Baumbach, G., Pfeiffer, H., 2004: Preliminary assessment of ambient air quality in Cyprus. Abschlussbericht, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, Universität Stuttgart.

[221] Vogt, U., Endlicher, W., Baumbach, G., Schultz, E., Dawidowski, L., Arkouli, M., Müller, M., Wolf-Benning, U., 2007: Air Quality and Urban Climate Investigations in the Megacity of Buenos Aires. Tagungsband: 6th International Conference on Urban Air Quality, 27-29 March 2007, Limassol, Cyprus.

[222] Arkouli, M., Vogt, U., Endlicher, W., Baumbach, G., Schultz, E., Müller, M., Wolf-Benning, U., Ulke, G., Dawidowski, L., 2007: Air quality and urban climate of the megacity of Buenos Aires. Poceedings of the "14th World Clean Air and Environment Congress"; Brisbane, 9-13 September 2007.

[223] ISO: Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, 1. Edition 1995.

[224] Petzold, A., 1995: Rußmessungen unter Immissionsbedingungen an Standorten unterschiedlicher Belastung. In: Emissionen des Straßenverkehrs – Immissionen in Ballungsgebieten. VDI-Berichte 1228. Tagung Berlin, 7. und 8. September 1995.

[225] Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), 1997: Rußmessungen in der Außenluft. Methodik und Resultate. Umwelt-Materialien Nr. 80. Luft. Bern.

[226] VDI-Richtlinie 2465, Blatt 1: Messen von Ruß (Immission). Chemisch-analytische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffs nach Extraktion und Thermodesorption des organischen Kohlenstoffs. VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4. Beuth Verlag GmbH, Berlin, März 1995.

[227] DIN 12341, 1998: Luftbeschaffenheit – Ermittlung der PM_{10}-Fraktion von Schwebstaub – Referenzmethode und Feldprüfverfahren zum Nachweis der Gleichwertigkeit von Messverfahren und Referenzmethode. Deutsche Fassung EN 12341, Kommission Reinhaltung der Luft / KRdL im VDI und DIN – Normenausschuss, Düsseldorf, Beuth-Verlag, Berlin.

[228] Cardina, J.A., 1973: The Determination of Rubber. In: Atmospheric Dusts. Rubber Chem. Technol. 46, Pages 232-241.

[229] Rauterberger-Wulff, A., 1999: Determination of Emission Factors for Tire Wear Particles up to 10 µm by Tunnel Measurements. 8th International Symposium Transport and Air Pollution, Graz, Austria, 31. May - 2. June 1999.

[230] Schultz, E., Czank, M., Dreher, W., 1993: Untersuchungen zur morphologischen und strukturellen Charakterisierung elementarkohlenstoffhaltiger Partikel. VDI-Berichte Nr. 1059.

[231] Kühlwein, J., Friedrich, R., 2005: Verkehrsmessungen und Emissionsmodellierung. Vortrag beim Abschlusskolloquium zum Projekt BAB II. Validierung von Kfz-Emissionsdaten „Das Karlsruher Autobahnprojekt BAB II“, Forschungszentrum Karlsruhe, 1. Dezember 2005.

Anhang 1: Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten, Lebensdauer und abgebauter Anteil der gemessenen Spurenstoffe hinsichtlich der Reaktion mit OH und O_3. Die Lebensdauer für die Reaktion mit OH-Radikalen wurde berechnet für eine OH-Konzentration von 2 x 10^6 Molekülen x cm^{-3}. Die Lebensdauer für die Reaktion mit O_3 wurde für eine O_3-Konzentration von 40 ppb berechnet [129].

Substanz	k_{OH} [$cm^3 \cdot s^{-1}$]	Lebensdauer [d]	abgebauter Anteil nach 0.5h [%]	k_{O3} [$cm^3 \cdot s^{-1}$]	Lebensdauer [d]	abgebauter Anteil nach 0.5h [%]
Ethen	8.52E-12[1]	0.68	3.0	1.59E-18[2]	7.43	0.3
Ethin	9.00E-13[2]	6.43	0.3	1.00E-20[6]	1.12E+3	0.0
Ethan	2.57E-13[2]	22.52	0.1	--	--	--
Propen	2.63E-11[2]	0.22	9.0	1.01E-17[2]	1.17	1.8
n-Propan	1.12E-12[2]	5.17	0.4	--	--	--
i-Butan	2.19E-12[2]	2.64	0.8	--	--	--
1-Buten	3.14E-11[2]	0.18	10.7	9.64E-18[2]	1.23	1.7
i-Buten	5.44E-11[2]	0.11	17.8	1.13E-17[2]	1.05	2.0
1,3-Butadien	6.66E-11[2]	0.09	21.3	6.30E-18[2]	1.87	1.1
n-Butan	2.44E-12[2]	2.37	0.9	--	--	--
i-Pentan	3.70E-12[2]	1.56	1.3	--	--	--
1-Penten	3.14E-11[2]	0.18	10.7	1.00E-17[2]	1.18	1.7
n-Pentan	4.00E-12[2]	1.45	1.4	--	--	--
Isopren	1.01E-10[2]	0.06	30.5	1.28E-17[2]	0.92	2.2
trans-2-Penten	6.70E-11[2]	0.09	21.4	3.15E-16[7]	0.04	42.6
cis-2-Penten	6.50E-11[2]	0.09	20.9	2.09E-16[7]	0.06	30.8
2,2-Dimethylbutan	2.34E-12[2]	2.47	0.8	--	--	--
Cyclopentan	5.02E-12[2]	1.15	1.8	--	--	--
2,3-Dimethylbutan	5.78E-12[2]	1.00	2.1	--	--	--
2-Methylpentan	5.30E-12[2]	1.09	1.9	--	--	--
3-Methylpentan	5.40E-12[2]	1.07	1.9	--	--	--
n-Hexan	5.45E-12[2]	1.06	1.9	--	--	--
Methylcyclopentan	6.80E-12[3]	0.85	2.4	--	--	--
2,4-Dimethylpentan	5.00E-12[2]	1.16	1.8	--	--	--
Benzol	1.23E-12[1]	4.70	0.4	1.00E-23[8]	1.18E+6	0.0
Cyclohexan	7.21E-12[2]	0.80	2.6	--	--	--
2-Methylhexan	5.10E-12[3]	1.13	1.8	--	--	--
2,3-Dimethylpentan	6.10E-12[3]	0.95	2.2	--	--	--
3-Methylhexan	5.10E-12[3]	1.13	1.8	--	--	--
i-Oktan	3.57E-12[2]	1.62	1.3	--	--	--
n-Heptan	7.02E-12[2]	0.82	2.5	--	--	--
Methylcyclohexan	1.04E-11[1]	0.56	3.7	--	--	--
Toluol	5.96E-12[1]	0.97	2.1	2.30E-22[8]	5.13E+4	0.0
n-Oktan	8.72E-12[1]	0.66	3.1	--	--	--
Ethylbenzol	7.10E-12[1]	0.82	2.5	8.70E-23[8]	1.36E+5	0.0
p-Xylol	1.43E-11[1]	0.40	5.0	1.00E-20[1]	1.18E+3	0.0
m-Xylol	2.36E-11[1]	0.25	8.1	1.00E-20[1]	1.18E+3	0.0
o-Xylol	1.37E-11[1]	0.42	4.8	2.30E-22[8]	5.13E+4	0.0
n-Nonan	1.05E-11[1]	0.55	3.7	--	--	--
n-Propylbenzol	5.70E-12[1]	1.02	2.0	1.00E-20[1]	1.18E+3	0.0
1,3,5-Trimethylbenzol	5.75E-11[1]	0.10	18.7	1.00E-20[1]	1.18E+3	0.0
1,2,4-Trimethylbenzol	3.25E-11[1]	0.18	11.0	1.00E-20[1]	1.18E+3	0.0
Dekan	1.16E-11[1]	0.50	4.1	--	--	--
NO_x	8.20E-12[5]	0.71	2.9	3.50E-17[5]	0.34	5.9
CO	2.40E-13[4]	24.11	0.1	1.00E-21[9]	1.18E+4	0.0

[1] [*Atkinson*, 1992]; [2] [*Atkinson*, 1997 a]; [3] [*Kwok und Atkinson*, 1995]; [4][*Atkinson et al.*, 1992]; [5] [*Atkinson et al.*, 1997 c]; [6] [*DeMore et al.*, 1997]; [7] [*Atkinson*, 1984]; [8][*Borrell et al.*, 1996]; [9] [*Stedman und Niki*, 1973].

Anhang 2: Projekte, die in den Jahren von 1994 bis 2007 mit Fesselballonen (FB) und dem Luftschiff (LS) der Universität Stuttgart durchgeführt wurden

Jahr	Projekt-name	Untersuchungsgegenstand	Ort	Anzahl FB und LS*	Literatur
1994	Ozon-versuch	**Ozonbildung + Bilanzexperiment:** - Einfluss von Emissionsreduktionen auf die Ozonbildung - Durchführung der ersten Massenbilanzierung einer Stadt	Heilbronn	2 FB	[196], [197], [198], [199], [200]
1994	Höllentäler	**Lokales Windsystem:** Untersuchung des Einflusses des lokalen Berg-Tal-Windsystems (Höllentäler) auf die Luftqualität von Freiburg i. Br.	Freiburg i. Br.	1 FB 1 LS	[201], [202], [203], [204]
1996	SLOPE	**Ozonchemie und lokale Transportvorgänge:** Untersuchung der Ozonbildung aus Precursoren auf dem Weg von Freiburg zum Schauinsland	Freiburg i. Br.	1 FB 1 LS	[111], [205], [206]
1996/1997	Stuttgart 21	**Lokale Strömungssysteme:** Untersuchung von Kaltluftflüssen und deren Einfluss auf die Luftqualität von Stuttgart im Zusammenhang mit den Baumaßnahmen für das Projekt Stuttgart 21	Stuttgart	2 FB 1 LS	[207], [208], [209]
1996/1997	Türkei	**Regionales Windsystem und lokale Strömungssysteme:** Untersuchung des Einflusses des Land-See-Windsystems, des Berg-Tal-Windsystems und von Hangwinden auf die Luftqualität einer Stadt	Izmir/ Türkei	1 FB	[210], [211], [212]
1998	EVA	**Bilanzexperiment:** Messtechnische Bestimmung der freigesetzten Emissionen einer Stadt und Vergleich mit berechneten Emissionen	Augsburg	3 FB 1 LS	[198], [213], [214], [215], [114]
1998	BERLIOZ	**Ozonchemie:** Untersuchungen zur Ozonbildung aus Precursoren in der Abluftfahne der Großstadt Berlin	Berlin	2 FB	[216], [215]
1999	OLAK	**Qualitätssicherung:** Vergleichsmessungen zwischen In-situ-Messungen (Fesselballon + Flugzeug) mit der Fernerkundungsmethode LIDAR	Berlin	1 FB	[126], [217], [218], [219]
2003	Zypern	**Regionales Windsystem, lokale Strömungssysteme und Luftqualität:** Untersuchung des Einflusses des Land-Seewindsystems, des Berg-Tal-Windsystems und von Hangwinden auf die Luftqualität zweier zypriotischer Städte	Nicosia, Limassol/ Zypern	1 FB	[220]
2006/ 2007	BARUCA	**Regionales Windsystem, lokale Strömungssysteme und Luftqualität:** - Feststellung der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Luftverunreinigungen in Buenos Aires - Untersuchung lokaler Windsysteme auf die Luftqualität der Stadt	Buenos Aires/ Argentinien	2 FB	[221], [222]

*FB ... Fesselballon LS ... Luftschiff

Anhang 3: Technische Daten der am Fesselballon und Luftschiff eingesetzten Geräte zur Messung von Luftverunreinigungen [141]

		O_3	NO_2/NO_x	NO_2	SO_2	CO_2	VOC
Beschreibung in Anhang		A1	A2	A2	A3	A4	A5
Bezeichnung des Geräts:		GFAS OS-2-B	LMA4	NO_2-Sonde	Eigenbau	CIRAS-L	METEK 2500B (nur Probensammlung)
Technische Daten	Meßprinzip:	Chemi-lumineszenz	Chemilumineszens (Luminol)	Chemilumineszens (Luminol)	Konduktometrie	IR-Absorption	Sammlung auf NIOSH-Röhrchen
	Rüstzeit:[1]	30 min	30 min	30 min	120 min	30 min	15 min
	Einlaufzeit:[1]	2h	120 min	120 min	60 min	30 min	10 s
	Luftvolumenstrom:[2]	100 l/min	0,1-0,3 l /min	1,5 l/min	0,55 l/min	0,1 l/min	1 l/min
	Einstellzeit:[1]	23 ms	< 10 s	< 10 s	6 min	< 10 s	entfällt
	Hilfsenergien:[1]	12 V= bis 15 W	12 V = bis 50 W	12 V= bis 10 W	12 V= 20 W	12 V= 1 W	autark, 8 h Betriebsdauer
	Masse:[3]	1,2 kg	11 kg	1,5 kg	5,3 kg	2,6 kg	0,8 kg
	Umgebungsanforderungen[1]: Temperatur:	-50 bis +50 °C	5 - 50°C	5- 50 °C	-5 - 40°C	0 - 50°C	- 10 - 50°C
	Luftfeuchte:	0 – 95 %	5-95%	5 – 95%	0 - 100%	5 - 100%	0 - 100%
	Lage:	jede Lage	aufrecht	aufrecht	aufrecht	jede Lage	jede Lage
	linearer Meßbereich:[4]	0 – 250 ppb v/v	0 - 80 ppb v/v	3 - 80 ppb v/v	0 - 150 ppbv/v	300 - 1000 ppm	0 - 10 ppm
	Datenausgabe:	0 - 2 V	0 - 1 V	0 - 1 V	0 - 1 V	0-1 V oder RS232	entfällt
relevante Querempfindlichkeiten:			PAN	PAN	(CO_2)		
Kompensation erforderlich für Änderungen von	Luftdruck:	ja	nein	ja	ja	ja	ja
	Temperatur:	ja	nein	ja	nein	nein	ja
	Luftfeuchte:	ja	nein	nein	nein	nein	nein

1) Definition siehe VDI 2449 Blatt 2 [70]; 2) Volumenstrom der vom Gerät zur Analyse benötigten Gasmenge
3) Masse ohne Akkus zur Stromversorgung 4) Bereich der Meßgröße, innerhalb der das Gerät eine lineare Kennlinie besitzt

Anhang 4: Verfahrenskenngrößen (Präzision, Unsicherheit, Nachweisgrenze) der am Fesselballon und Luftschiff eingesetzten Geräte zur Messung von Luftverunreinigungen [141]

	O_3	NO_2/NO_x	NO_2	SO_2	CO_2	VOC
Bezeichnung des Geräts:	GFAS OS-2-B	LMA4	NO_2-Sonde	Eigenbau	CIRAS-L	METEK 2500B (nur Probenahme)
Beschreibung in Anhang:	A1	A2	A2	A3	A4	A5
Wiederholpräzision**2** als Funktion der Meßgröße c: $s_r = \sqrt{a_0^2 + a_2^2 \cdot c^2}$	a_0 = 0,53 a_2 = 0,054 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-1)	a_0 = 0,33 a_2 = 0,082 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-4)	a_0 = 0,04 a_2 = 0,10 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-13)	a_0 = 20 a_2 = 0,093 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-19)	s_r = 0,8 ppm bei c = 350 ppm v/v	a_0 = 4 (= 5)**1** a_2 = 0,04 (= 0,08)**1** **c in ppt v/v** siehe Gl.(5-20) (bzw. Gl.(5-21)**1**
Meßunsicherheit als Funktion der Meßgröße c: $u(c) = \sqrt{a_0^2 + a_2^2 \cdot c^2}$	a_0 = 0,53 a_2 = 0,058 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-2)	a_0 = 0,33 a_2 = 0,096 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-5)	a_0 = 0,04 a_2 = 0,11 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-14)	a_0 = 20 a_2 = 0,093 **c in ppbv/v** siehe Gl.(5-19)	u = 3,6 ppm bei c = 350 ppm v/v	a_0 = 9 (= 11)**1** a_2 = 0,07 (= 0,14)**1** **c in ppt v/v** siehe Gl.(5-26) (bzw. Gl.(5-27)**1**
Meßunsicherheit für vorgegebene Konzentration c:	c = 60 ppb v/v: u = **3,5 ppbv/v** u/c = **5,8 %**	c = 10 ppb v/v: u = **10,2 ppbv/v** u/c = **10,2 %**	c = 10 ppb v/v **u = 11 ppbv/v** **u/c = 11 %**	c = 100 ppb v/v: **u = 22 ppbv/v** **u/c = 22 %**	-	c = 200 ppt v/v: **u = 17 ppt v/v (= 30 ppt v/v)**1 **u/c = 8 % (= 15 %)**1
Meßergebnis an der Nachweisgrenze: $c_{NWG} = \frac{a_0}{\sqrt{\frac{1}{k^2} - a_2^2}}$	c_{NWG} = **1 ppbv/v**	c_{NWG}=**0,67 ppbv/v**	c_{NWG}=**0,17 ppbv/v**3 bzw. c_{NWG}=**0,48 ppbv/v**4	c_{NWG}=**41 ppbv/v**	-	c_{NWG} = **18 ppt (=23 ppt v/v)**1

1) Angaben ohne Klammer: Gruppe 1; Angaben in Klammern: Gruppe 2
2) oder Meßunsicherheit ohne Berücksichtigung der Unsicherheit des Kalibrierstandards
3) bei Korrektur des nichtlinearen Verhaltens (Berechnung nicht über Gl.(4-24), s. Kapitel 5.4.3)
4) ohne Korrektur des nichtlinearen Verhaltens (Berechnung nicht über Gl.(4-24), s. Kapitel 5.4.3)

Anhang 5: Messgeräte, deren Messprinzipien, Anzahl der Geräte, Betreiber und Einsatzort, die am Qualitätssicherungsprogramm des Projekts BAB II teilgenommen haben

Komp.	Gerätebezeichnung	Hersteller	Messprinzip	Anz.	Betr. in BAB II	Einsatzort
NO, NO_x	APNA 360	Horiba	Chemilumineszenz	1	BASF	B
NO, NO_x	NO-Anal. CLD AL 770 ppt und Photolysis Converter PLC 760	ECO-Physics	Chemilumineszenz	1	BUGH	B
NO, NO_x	ML9841A	MonitorLabs	Chemilumineszenz	2	IMK	TA
NO, NO_x	MLU 200A	MLU	Chemilumineszenz	1	FORD	B
NO_2	LMA3	Scintrex	Flüssigchemilumineszenz (Luminol)	1	IFK	A
NO_2, NO_x	LMA4	Scintrex	Flüssigchemilumineszenz (Luminol)	1	IFK	A
NO, NO_x	Bendix	Bendix	Chemilumineszenz	2	IFK	A
NO, NO_x	ML 8840	MonitorLabs	Chemilumineszenz	1	ZUF	B
CO	MLU 300	MLU	NDIR-Fotometrie	1	FORD	B
CO	AL5001	Aerolaser	UV-Fluoreszenz	2	IMK	TA
CO_2	BINOS	Fischer-Rosemount	NDIR-Fotometrie	2	IFK	A/TA
VOC	Airmovoc 2010	Airmotec	Online-Gaschromatograph -> kontinuierliche Messungen	2	BUGH	B
VOC	NIOSH Aktivkohleröhrchen	Dräger	Aktivkohleanreicherung, Extraktion mit CS_2, GC-Analyse	8	IFK	T, versch. Höhen
O_3	TE 49	Thermo Environmental Instruments	UV-Absorption	4	BUGH/ IFK/ ZUF	A/B
O_3	MLU 400	MLU	UV-Absorption	1	FORD	B
O_3	O341M	Environnement	UV-Absorption	6	IMK	T, versch. Höhen
O_3	Bendix	Bendix	Chemilumineszenz	1	ZUF	B
O_3	APOA 360	Horiba	UV-Absorption	2	BASF/IFK	B/T
EC	Aethalometer AE-16	Magee Inc.	Lichtabsorption	2	IMK/IFK	B
EC/OC $PM_{2,5}$/PM_{10}	Analyser RP5400	Ruprecht& Pataschnik	Sammlung des Aerosols und Verbrennung zu CO_2	2	FORD/ZUF	B
$PM_{2,5}$/ PM_{10} *	TEOM 1400a	Ruprecht& Pataschnik	PM online durch Messung der Schwingfrequenzänderung des Probefilters	1	FORD	B
PM_1 *	FH62-IR	Eberline	Absorption von ß-Strahlung	2	IMK	B
PM_{10} *	FH62-IR	Eberline	Absorption von ß-Strahlung	2	IMK	B
PM_{10} *	LVS – Low Volume Sampler	Leckel	Probensammlung auf Filter und gravimetrische Bestimmung der Konz.	5	IFK/ZUF	B
$PM_{2,5}$/ PM_{10} *	Partisol	Ruprecht& Pataschnik	Dichotomous Sampler for $PM_{2.5}$ and PM_{10} for subsequent mass and composition	1	FORD	B
PM **	SMPS - Scanning Mobility Particle Sizer	TSI GmbH	Elektrische Beweglichkeit Größenbereich: 10 (20) - 440 (730) nm; Anz. Kanäle: 107	5	BUGH/ FORD/ PSI/UNIKO	B/T
PM **	ELPI - Electric Low Pressure Impactor	Dekati Ltd.	Aerodynamischer Durchmesser Größenbereich: 40 - 10.000 nm; Anzahl der Kanäle: 51	1	PSI	A
PM **	OPC - Optischer Partikelzähler 1.108	Grimm	Streulichtfotometer Größenbereich: 300 (750) - 10.000 (20.000) nm	4	IFK/ZUF	A/T
PM **	APS - Relaxation Time Spectrometer	TSI GmbH	Time-of-flight (aerodynamischer Durchmesser) 550 - 20.000 nm; channels: 12	1	FORD	B
PM ***	LQ 1-DC	Matter Engineering	Diffusion Charger	1	PSI	A

* Massenkonzentration in µg/m³
** Anzahlkonzentration in Partikel/cm³
*** Oberflächenkonzentration in µm²/cm³

B…Boden
A...Aufzug
TA...Turmansaugung

Anhang 6: Teilnehmerorganisationen am Projekt EVA - Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt

- Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung (IFU)
- **Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK), Universität Stuttgart**
- Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK), Universität Karlsruhe/Forschungszentrum Karlsruhe
- Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), Universität Stuttgart
- Institut für Chemie der Belasteten Atmosphäre (ICG-2), Forschungszentrum Jülich
- Abteilung Arbeitssicherheit und Strahlenschutz (ASS), Forschungszentrum Jülich
- Bayerisches Landesamt für Umweltschutz (LfU), Augsburg

Anhang 7: Messorte, Organisationen, Messsysteme, gemessene Parameter (T...Temperatur, Rf...relative Feuchte, p...Luftdruck, υ...Windgeschwindigkeit, dir...Windrichtung, G, R, Q, B, H...Energiebilanz), Messintervalle (m), Mittelungszeiträume (a), Messhöhe und vertikale Auflösung Δz der im Projekt EVA - Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt - durchgeführten meteorologischen Messungen [114]

Site	Institute	System	Measured parameters	Measuring (m) or averaging (a) interval	Measurement height (agl)
BifA (Bif)	IMK	radiosonde	T, Rf, p, v, dir	5 s (m)	Up to ca 6 km
BifA (Bif)	IMK	energy balance	T, Rf, p, v, dir, G, R, Q, B, H	10 min (a)	4 m
University (Uni)	IMK	sodar	v, dir	15 min (a)	$z_o = 50$ m $\Delta z = 25$ m
Radegundis (Rad)	IFU	ground station	T, Rf, p, v, dir	10 s (m)	8 m
Deuringen (Deu)	IMK	wind profiler	T, v, dir	30 min (a)	$z_o = 60$ m $\Delta z = 40$ m
Leitershofen (Lei)	IVD	tethered balloon	T, Rf, p, v, dir	10 s (m)	50–620 m
Stätzling (Stä)	IVD	tethered balloon	T, Rf, p, v, dir	10 s (m)	0–460 m
Stätzling (Stä)	IVD	airship	T, p, v, dir	10 s (m)	0–425 m
Stätzling (Stä)	ICG-2	ground station	T, Rf, p, v, dir	10 s (m)	10 m (T, Rf: 4.5 m)
Dornier 128	IMK	aircraft	T, Rf, p, v, dir	2 s (m)	
Partenavia 68	IFU	aircraft	T, Rf, p, v, dir	2 s (m)	

Anhang 8: Messorte, Organisationen, Messsysteme, gemessene Parameter, Messintervalle (m), Mittelungszeiträume (a), Messhöhe (in m über Grund) der im Projekt EVA - Evaluierung berechneter Emissionsdatensätze am Beispiel einer Stadt - durchgeführten Messungen von Luftverunreinigungen [114]

Site	Institute	System	Measured parameters	Measuring (m) or averaging (a) interval	Measurement height in m agl
BifA (Bif)	IMK	Ground station	CO, NO_x, O_3	10 min (a)	4
University (Uni)	IMK	Ground station	CO, NO_x, O_3	10 min (a)	4
Stätzling (Stä)	ICG-2	Ground station	CO, NO_x, NO_y, O_3, CH_2O, NMHC	10 min (a)	10
Stätzling (Stä)	IVD	Tethered balloon	NO_x, O_3, NMHC		0–460 m
Stätzling (Stä)	IVD	airship	NO_x, O_3	10 s (m)	0–425 m
Radegundis (Rad)	IFU	ground station	CO, NO_x, NO_y, O_3, CH_2O, NMHC	10 min (a)	4
Leitershofen (Lei)	IVD	Ground station	CO, CO_2, SO_2, NO_x	10 min (a)	4
Frechholzhausen (Fre)	LfU	Ground station	CO, CO_2, SO_2, NO_x, BTX	ca 30 min (a)	3.5
Augsburg Bourges Platz (Bou)	LfU	Ground station	CO, NO_x, SO_2	30 min (a)	3.5
Augsburg, Königsplatz (Kön)	LfU	Ground station	CO, NO_x, SO_2	30 min (a)	3.5
Augsburg Haunstetten (Hau)	LfU	Ground station	O_3, SO_2	30 min (a)	3.5
Tracer sampling line	ASS	Ground sites	SF_6, CO	20 min (m)	1
Ultralight aircraft	IFU	Sampling onboard aircraft	SF_6, CO		
Dornier 128	IMK	Aircraft	CO, NO_x, O_3, 2 s m) air samples in canisters	150–2000 m	
Partenavia 68	IFU	Aircraft	CO, NO_x, O_3, air samples in canisters	2 s (m)	150–2000 m

Anhang 9: Qualitätssicherung im Rahmen des Projekts EVA

Im Rahmen von Verbundprojekten spielt die Qualitätssicherung eine entscheidende Rolle. Die Messergebnisse von Projektpartnern, die teilweise Geräte mit unterschiedlichen Messprinzipien zum Einsatz bringen, deren Ergebnisse auf die unterschiedlichsten Kalibrierstandards zurückzuführen sind und deren Betreiber unterschiedliche Kalibrierphilosophien verfolgen, müssen aber letztendlich miteinander vergleichbar sein. Konzentrationsdifferenzen, die im Luv und Lee eines Untersuchungsgebiets auftreten, müssen großteils auf die wirklich vorhandenen Konzentrationsdifferenzen und nicht auf Abweichungen der Messergebnisse bei gleichen Konzentrationen zurückzuführen sein, da sonst die Bilanzierungsergebnisse einer zu großen Unsicherheit unterliegen würden. Aus diesem Grunde wurde in den TFS-Projekten[1] größter Wert auf die Qualitätssicherung der Daten gelegt. Sie lag für alle Projekte in einer Hand und wurde vom IfU[2] organisiert und ausgewertet. Zur Reduzierung des Aufwands wurden teilweise Qualitätssicherungsmaßnahmen unterschiedlicher TFS-Projekte, z. B. EVA und BERLIOZ[3], zusammengelegt und gemeinsam ausgewertet. In diesem Kapitel soll nur auf die wichtigsten Schritte und Ergebnisse der Qualitätssicherung eingegangen werden. Ausführliche Literatur dazu ist in [147] und [148] zu finden.

Im Projekt EVA kam sowohl für die Konzentrationsmessung der anorganischen Komponenten wie auch für die Kohlenwasserstoffe ein dreistufiges Qualitätssicherungskonzept zur Anwendung:

- **Stufe I:** Analyse der Kalibrierstandards der Betreiber durch das Qualitätssicherungsteam
- **Stufe II:** Ringversuche der Projektteileilnehmer mit vorgegebenen Kalibrierstandards des Qualitätssicherungsteams
- **Stufe III:** Außenluftvergleichsmessungen

Vor bzw. nach den Messkampagnen wurden alle Messstationen bzw. -systeme an einem Ort zusammengezogen und über einen Zeitraum von mehreren Tagen wurden die Geräte wie im realen Messeinsatz betrieben, d. h. mit derselben Gasansaugung und Datenerfassung und denselben Kalibrierprozeduren wie im regelmäßigen Einsatz während der Messkampagnen. Dabei kamen nacheinander die drei Stufen des Qualitätssicherungsprogramms zur Anwendung:

In **Stufe I** wurden vom Qualitätssicherungsteam die Kalibrierstandards analysiert, die von den Gerätebetreibern für die regelmäßigen Kalibrierungen während der Messkampagnen benutzt wurden.

In **Stufe II** hatten die Betreiber ihre Geräte entsprechend ihren üblichen Kalibrierprozeduren mit eigenen Kalibriergasen zu kalibrieren und mussten dann Kalibrierstandards von unbekannter Konzentration, die vom Qualitätssicherungsteam zur Verfügung gestellt wurden, analysieren.

---

[1] TFS - Troposphärenforschungsschwerpunkt
[2] IfU - Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe
[3] BERLIOZ - Berlin Ozon Experiment

In **Stufe III** fanden Immissionsvergleichsmessungen der Außenluft statt. Dazu wurden über einen Zeitraum von mindestens einem Tag Immissionsmessungen durchgeführt. Um zeitliche Verschiebungen der Konzentrationsverläufe und Spitzenkonzentrationen an den einzelnen Messgeräten aufgrund horizontaler Unterschiede in den Konzentrationen und Konzentrationsverläufen zu vermeiden, wurde nicht in unmittelbarer Nähe von größeren Emissionsquellen gemessen. Zudem wurden die Ansaugstellen der einzelnen Messsysteme auf engstem Raum konzentriert.

Aus Stufe I wurden dann vom Qualitätssicherungsteam bei größeren Abweichungen zwischen Ist- und Sollwert Korrekturfaktoren ermittelt, die den Gerätebetreibern mitgeteilt wurden und auf alle innerhalb der TFS-Projekte erzeugten Messwerte anzuwenden waren. Bei dieser Art von Abweichung handelte es sich um eine systematische Abweichung aufgrund falscher Konzentrationen der vom Betreiber benutzten Kalibriergase.

Des Weiteren wurden die Ergebnisse der Maßnahmen aus den Stufen II und III dazu verwendet, um festzustellen, ob die im Vorfeld der Experimente definierten Datenqualitätsziele von den Messgeräten eingehalten werden konnten. Die Datenqualitätsziele für einige der Messkomponenten sind in Tabelle A9.1 zusammengefasst. Auf diese Weise wurde sichergestellt, dass Ergebnisse, welche die Datenqualitätsziele erfüllten, bedenkenlos weiteren Auswertungen zugeführt werden konnten, welche Ergebnisse nur mit Einschränkung (mit so genannten

Tabelle A9.1: Datenqualitätsziele für alle Projekte im Rahmen des Troposphärenforschungsschwerpunkts

Substanz	**Genauigkeit**		**Vergleichbarkeit mit vorgegebenen Standards**	
	in %	**in ppb**	**in %**	**in ppb**
CO	10	30	5	20
O_3	10	2	5	2
NO	10	1	5	1
NO_2	15	1,5	10	2
NO_x	15	1,5	20	2
NO_y	25	2	20	2
VOCs	Mischungsverhältnisse $\geq$ 0,1 ppb			
Alkane	10 %		5 %	
Alkene	20 %		20 %	
Alkine	20 %		5 %	
Aromaten	15 %		10 %	
	Mischungsverhältnisse < 0,1 ppb			
alle VOCs	50 %			
	Mischungsverhältnisse < 0,01 ppb			
alle VOCs	100 %			

Flags versehen) weiter genutzt werden konnten und welche total verworfen werden mussten. Ergaben sich bei der Auswertung Fälle, in denen Geräte die Datenqualitätsziele nicht erreichten und die Abweichungen systematischer Natur waren, so konnten diese ebenfalls wie in Stufe I durch Einführung von Korrekturfaktoren ausgeglichen werden, wodurch manche Messwerte u. U. die Datenqualitätsziele doch noch erreichten. In Tabelle A9.2 sind die Endergebnisse der innerhalb des EVA-Projektes durchgeführten Qualitätssicherungsmaßnahmen für die anorganischen Komponenten zusammengefasst [147]. Alle Daten, die vom IFK erhoben wurden, haben die Datenqualitätsziele erfüllt. Die meisten Daten wurden mit dem Code L2; F0 belegt. Dies bedeutet, dass die endgültigen Daten (L2 – Level 2; F0 – Flag 0) die Datenqualitätsziele ohne Einschränkung erfüllten und somit ohne Anwendung von Kalibrierfaktoren weiter verwendet werden konnten. Das Ozongerät am Standort Stätzling erhielt den Code L2; F1 (Level 2; Flag 1). Dies bedeutet, dass die Daten vor der weiteren Nutzung einer Korrektur unterworfen werden mussten, dann aber die Datenqualitätsziele erfüllten. Das CO-Gerät am Standort Stätzling erhielt den Code L2; F2. Dies bedeutet, dass die CO-Daten die Datenqualitätsziele nur für höhere Konzentrationen von > 300 ppb erreichten. Aufgrund dieses Befunds wurden die Daten des Geräts nicht weiter ausgewertet. Alle NO_x-Geräte mit Molybdän-Konverter erhielten den Code L1; F4. Die Molybdän-Konverter dieser Chemilumineszenz-Geräte reduzieren nicht nur NO_2 zu NO, sondern auch einen unbekannten Anteil weiterer Stickstoffoxide, z. B. HNO_3, PAN, organische Nitrate etc. Dies führt zu erhöhten NO_x-Konzentrationen und muss in weiteren Auswertungen berücksichtigt werden.

Die Endergebnisse der Untersuchungen zur Qualitätssicherung von Kohlenwasserstoffmessungen sind in Tabelle A9.3 aufgeführt [148], [129]. Das IFK erzielte mit einer Ausnahme alle vorgegebenen Datenqualitätsziele. Die Komponente 1,2,4-Trimethylbenzol erfüllte das Datenqualitätsziel von 15 % für die Genauigkeit für Aromaten nicht.

Tabelle A9.2: Final Data Quality of Augsburg-EVA measurements (Auszug aus [147])

Institution	Station	O_3	NO	NO_2	NO_x	NO_y	CO
Ground Stations							
ICG2	Stätzling	L2; F1	L2; F0			L2; F0	L2; F1
IFU	Radegundis	L2; F1				L2; F0	L2; F0
IMK	BifA	L2; F0	L2; F0			L1; F4	L2; F1
IMK	Universität	L2; F0	L2; F0			L1; F4	L2, F1
IFK	Stätzling	L2; F1	L2; F0			L1; F4	
IFK	Leitershofen	L2; F0	L2; F0			L1; F4	L2; F2
LFU		L2; F0	L2; F2	L1; F4			L2; F0
Aircraft							
IMK	IBUF	L2; F0				L1; F4	L2; F0
IFU	GITY	L2; F0				L1; F4	L2; F0

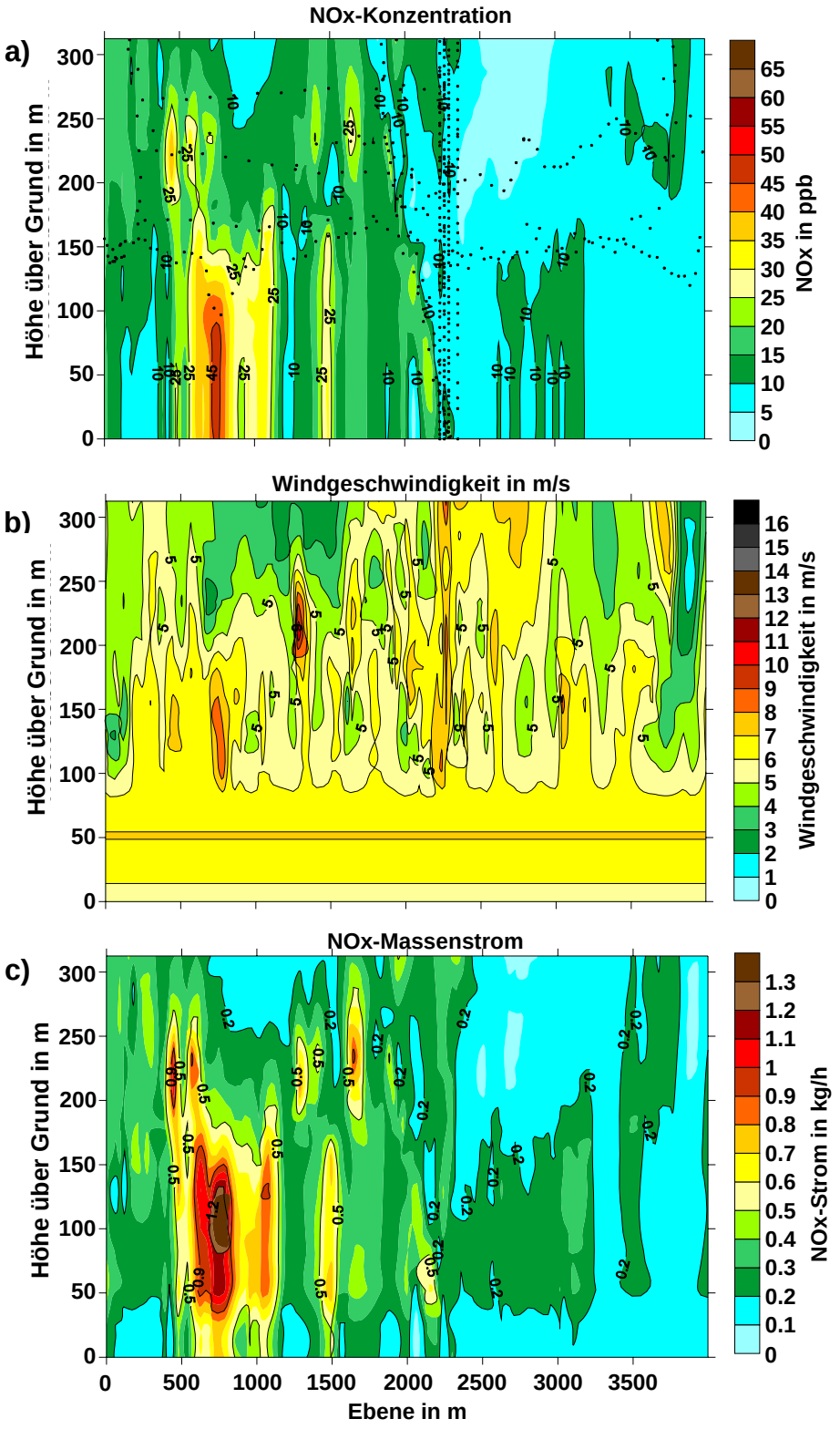
Code:

L2; F0	Level 2 ; Flag 0; DQO met
L2; F1	Level 2; Flag 1; DQO met after correction
L2; F20%	Level 2; Flag 20%; limited accuracy (20 %)
L2; F2	Level 2; Flag 2; questionable for values below 1 ppb (NO); NOw < 2 ppb; CO < 300 ppb)
L2; F3	Level 2; Flag 3; questionable for NO_y < 2 ppb due to possible inlet artifacts
L1; F4	Level 1; Flag 4; NO_y => NO_w (Mo- or Stainless Steel Converter)
L0; F5	Level 0; Flag 5; data of unknown quality

Tabelle A9.3: Zusammenfassende Ergebnisse aller Qualitätssicherungsmaßnahmen im Rahmen der TFS-Projekte (Auszug aus [148] bzw. [129]) für VOC; Auflistung der VOC-Komponenten, die die Datenqualitätsziele komplett oder unter bestimmten Bedingungen erreicht haben

	DB#	IVD	BUGH	ZUF	IFU-2	MetAir	LMU-2	LMU-1
Compound								
Ethane	3	–	–	4	–	–	–	–
Propene	6	–	3, >50	–	–	–	–	–
Propane	7	–	4	4	–	–	–	–
trans-2-Butene	9		5					
cis-2-Butene	12		5					
i-Butane	13	–	4	4	1, <100	–	–	–
n-Butane	14	–	–	4	–	–	–	–
cis-2-Pentene	22	–	–	–	–	4	–	–
2-Methyl-2-Butene	23	–	5	5	–	4	–	–
i-Pentane	25	–	–	4	–	4	–	–
n-Pentane	26	1, <100	4	4	2, >50	4	–	–
Benzene	28	–	–	–	–	4	–	–
2-Methyl-1-pentene	31	–	–	–	–	4	–	–
cis-2-Hexene	38	–	–	–	–	4	–	–
Cyclohexane	42	3, >100	–	–	–	4	–	–
2,2-Dimethylbutane	43	–	3, >50	4	–	4	–	–
2,3-Dimethylbutane	44	–	3, >50	–	–	4	–	–
2-Methylpentane	45	4	–	–	–	–	–	–
3-Methylpentane	46	1, <100	3, >50	3, >50	–	–	3, >50	3, >50
n-Hexane	47	3, >100	3, >50	4	–	–	–	–
Toluene	48	2, >50	–	–	–	4	–	–
Methylcyclohexane	54	–	–	3, >20	–	4	–	–
n-Heptane	61	3, >100	–	–	–	–	–	–
3-Methylhexane	63	3, >100	3, >20	3, >50	–	4	3, >20	–
Ethylbenzene	64	3, >100	–	3, >20	–	4	–	–
o-Xylene	65	4	–	–	–	4	–	–
2,2,4-Trimethylpentane	69	3, >100	–	–	–	–	–	–
2,3,4-Trimethylpentane	70	3, >50	3, >20	–	–	4	–	–
3-Methylheptane	79	3, >50	–	–	–	–	–	–
n-Octane	81	3, >50	3, >10	3, >20	–	4	–	–
n-Propylbenzene	85	–	–	–	–	4	–	–
1,2,3-Trimethylbenzene	86	–	–	–	–	4	–	–
1,2,4-Trimethylbenzene	87	–	–	–	–	4	–	–
4-Ethyltoluene	89	–	–	–	–	4	–	–
1,3,5-Trimethylbenzene	91	–	–	–	–	4	–	–
n-Nonane	102	–	–	–	–	4	–	–
n-Decane	120	–	–	–	–	4	–	–
a-Pinene	124	4	–	–	–	–	–	–
Ethenylbenzene (Styrene)	145	–	–	–	–	4	–	–
Groups of compounds (M = methyl)								
i-Butene + 1-Butene	10, 11	–	3, >50	3, >100	–	–	–	–
1,3-Butadiene + n-Butane	8, 14	–	4	–	2, >250	–	–	–
2-M-1-Butene + n-Pentane	20, 26	–	–	–	–	4	1, <100	3, >100
Isoprene + t-2-Pentene	16, 21	–	5	5	–	4	–	–
2,3-Dimethylbutane + 2-M-pentane + Cyclopentane	44, 45, 24	–	3, >100	–	–	4	1, <50	–
2-M-pentane + Cyclopentane	45, 24	–	3, >100	–	–	4	–	–
M-cyclopentane + 2,4-Dimethylpentane	41, 59	3, >50	–	3, >50	–	–	–	–
Benzene + Cyclohexane	28, 42	–	5	5	–	–	1, <150	–

Anhang 10: Räumliche Verteilung
a) der NO_x-Konzentrationen
b) der flächennormalen Windgeschwindigkeit
c) des resultierenden NO_x-Massenstroms in der Lee-Bilanzebene am 22.10.1998, 10:30–12:00 UTC



Anhang 11: Bestimmung der Unsicherheiten der Massenstromberechnung im Projekt EVA

Zur Bestimmung der Unsicherheiten der berechneten Massenströme wird das Prinzip der Unsicherheitsfortpflanzung nach Gleichung A11.1 angewendet. Hierzu müssen Messunsicherheiten für Windgeschwindigkeit, Windrichtung und NO_x-Konzentration betrachtet werden. Es werden die Unsicherheiten der Messgeräte dieser Größen berücksichtigt sowie die Streuung der interpolierten NO_x-Massenströme in einem Gitternetz von 25 x 25 m. Letzteres soll für die Unsicherheit der Inhomogenität der berechneten NO_x-Massenströme in den Ebenen gelten. Je inhomogener die Messwerte in der Ebene sind, desto unsicherer ist die Interpolation der Werte zwischen den gemessenen Datenpunkten. Werden Konzentrationsspitzen gemessen, die von nahegelegenen Emissionsquellen stammen, ist die genaue Größe und Lage dieser Veränderung in der Ebene mit wenigen Daten nicht zu bestimmen. Es ist möglich, dass einige Konzentrationsspitzen nicht gemessen wurden, da größere ungemessene Freiräume in der Ebene unvermeidlich sind. Aus diesen Gründen stellt die Inhomogenität den gewichtigsten Term bei der Berechnung der Gesamtunsicherheit dar (siehe Tabelle A11.2).

Die Messunsicherheit von NO_x beträgt bei einer Zweipunktkalibrierung mit dem Messgerät LMA4 und einem Konzentrationsbereich von 1 bis 45 ppb ca. 10 %. Die Windgeschwindigkeit wurde mit einem dreiarmigen Schalenkreuzanemometer gemessen, wobei die Messunsicherheit bei einem mittleren flächennormalen Wind von 5 m/s und einer Genauigkeit von 0,5 m/s 10 % beträgt. Für die Messung der Windrichtung mit einer Genauigkeit von 10 ° und Windrichtungsschwankungen von 75 ° beträgt die Unsicherheit 13 % [141].

Für die Inhomogenität der interpolierten Werte in den Bilanzierungsfenstern wurde die Unsicherheit mit der Formel A11.2 bestimmt.

$$M = \pm\sqrt{m^2 + m'^2 + m''^2 + ...(m^{(q)})^2} \qquad \textbf{(A11.1)}$$

- M: Summe der Einzelunsicherheiten m
- m: Einzelunsicherheit

$$u(\bar{y}) = \frac{\sigma_y}{\bar{y}} \cdot 100\ \% \qquad \textbf{(A11.2)}$$

- $u(y)$: relative Unsicherheit des Mittelwerte $\bar{y}$ in %
- σ_y: Standardabweichung der Messwerte
- $\bar{y}$: Mittelwert der Messwerte

In Tabelle A11.1 sind die Unsicherheiten der Messgeräte für die Größen NO_x, Windgeschwindigkeit (WG) und Windrichtung (WR) dargestellt. Nach dem Unsicherheitsfortpflanzungsgesetz ergibt dies eine Unsicherheit der Messung von 19,2 %. In Tabelle A11.2 sind die Unsicherheiten für die berechneten NO_x-Massenstromflüsse in den Ebenen angegeben. Die gesamte Unsicherheit wurde mit Hilfe des Unsicherheitsfortpflanzungsgesetzes aus den Unsicherheiten, der Inhomogenität und den Messungen berechnet. Die Unsicherheiten der Berech-

nungen in den Ebenen bewegen sich zwischen 47,9 und 64,4 %. Die Unsicherheit wird vor allem durch die Inhomogenität der gemessenen Parameter bestimmt. Eine gute vertikale und horizontale Vermischung ist für eine Minderung der Unsicherheiten sehr wichtig. Werte weit unter 20 % Unsicherheit sind aber auch bei einer guten Vermischung der emittierten Komponenten nicht erreichbar, wie aus hier nicht dargestellten Detailberechnungen ersichtlich wurde. Bei genügender Entfernung der Messpunkte von den Emittenten würde die gesamte Unsicherheit bestenfalls 30 % betragen können.

Tabelle A11.1: Unsicherheiten der Messgrößen und deren Summe

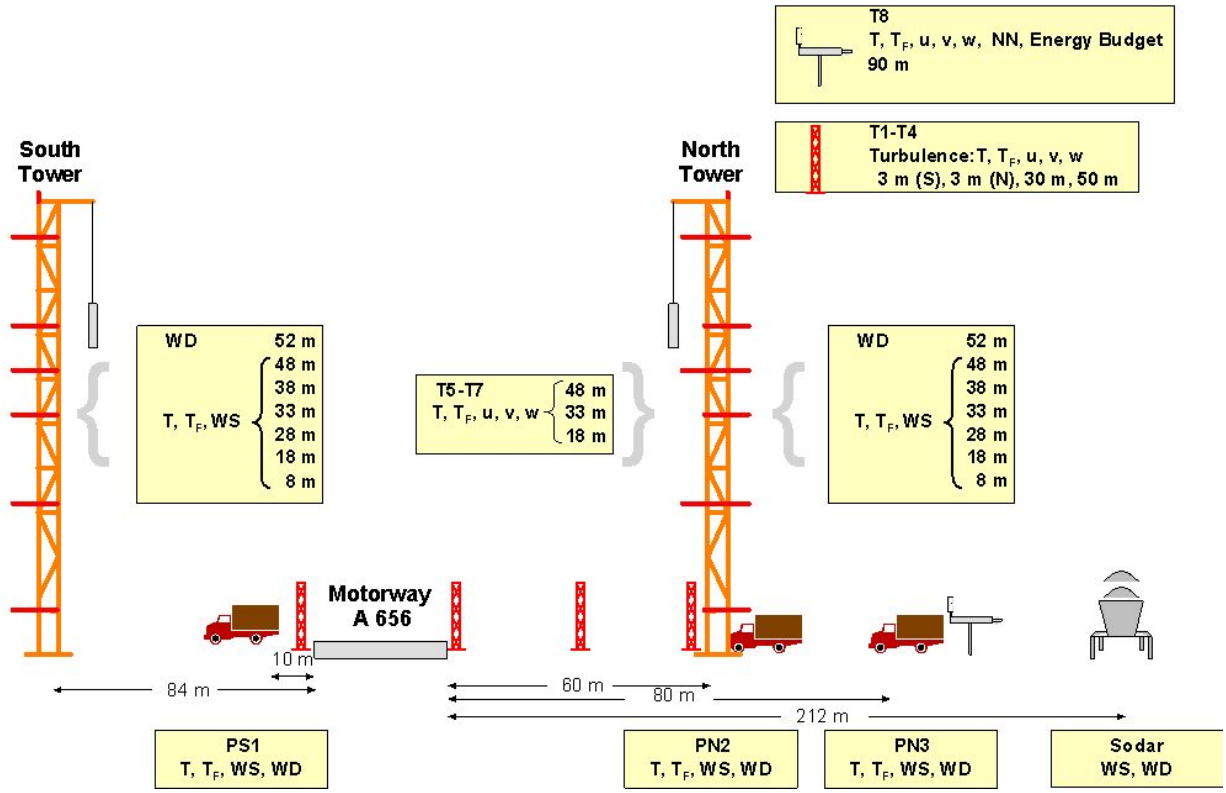
Komponente	**Unsicherheit in %**
NO_x	10
WG	10
WR	13
Summe (entspr. Formel 5.5)	**19,2**

Tabelle A11.2: Unsicherheiten der NO_x–Massenströme für den 22. und 23.10.1998 und Anteil der Inhomogenität der NO_x-Konzentrationen

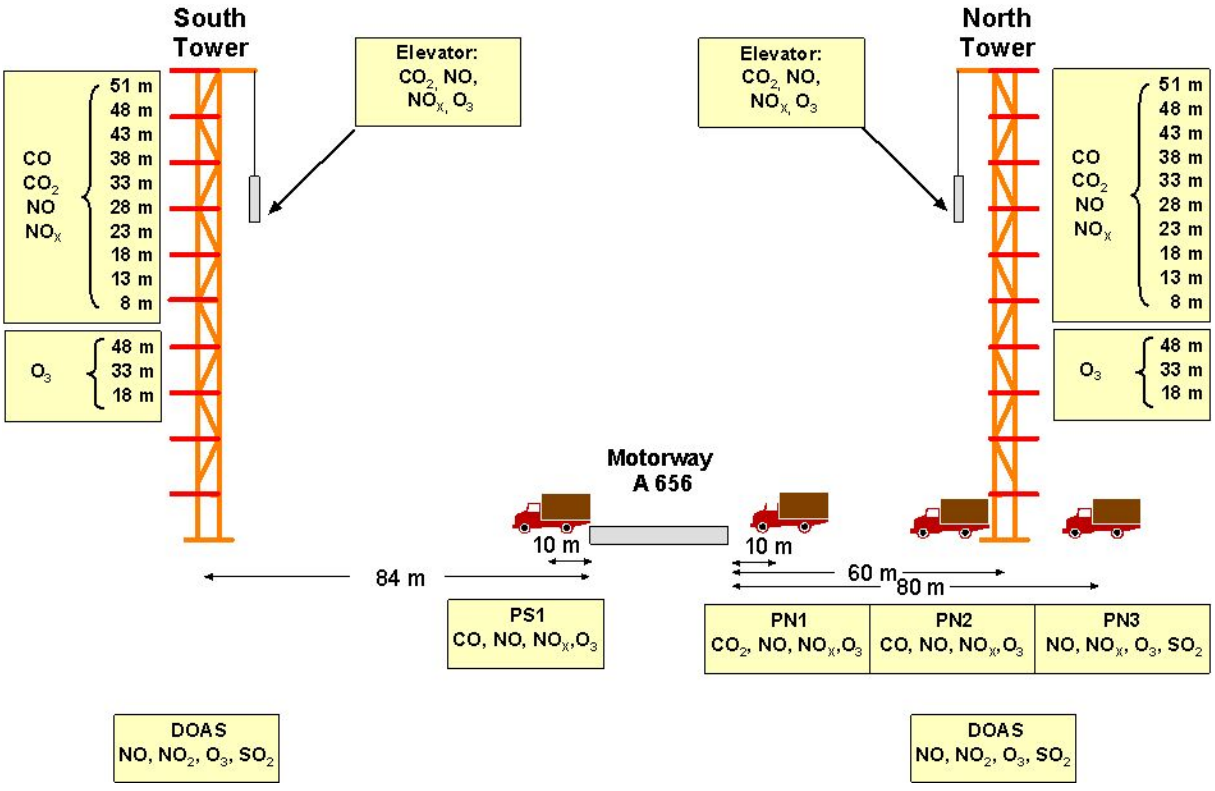
Datum	**Zeit in UTC**	**Unsicherheit für die Inhomogenität in %**	**Gesamte Unsicherheit in %**	
22.10.1998	10:30-12:00	53,0	**56,4**	
	12:00-13:30	61,4	**64,4**	
23.10.1998	10:00-11:40	43,9	**47,9**	**53,0***
	11:40-13:00	54,9	**58,1**	

* Mittelwert aus den Gesamtunsicherheiten von 10:00 bis 13:00 UTC

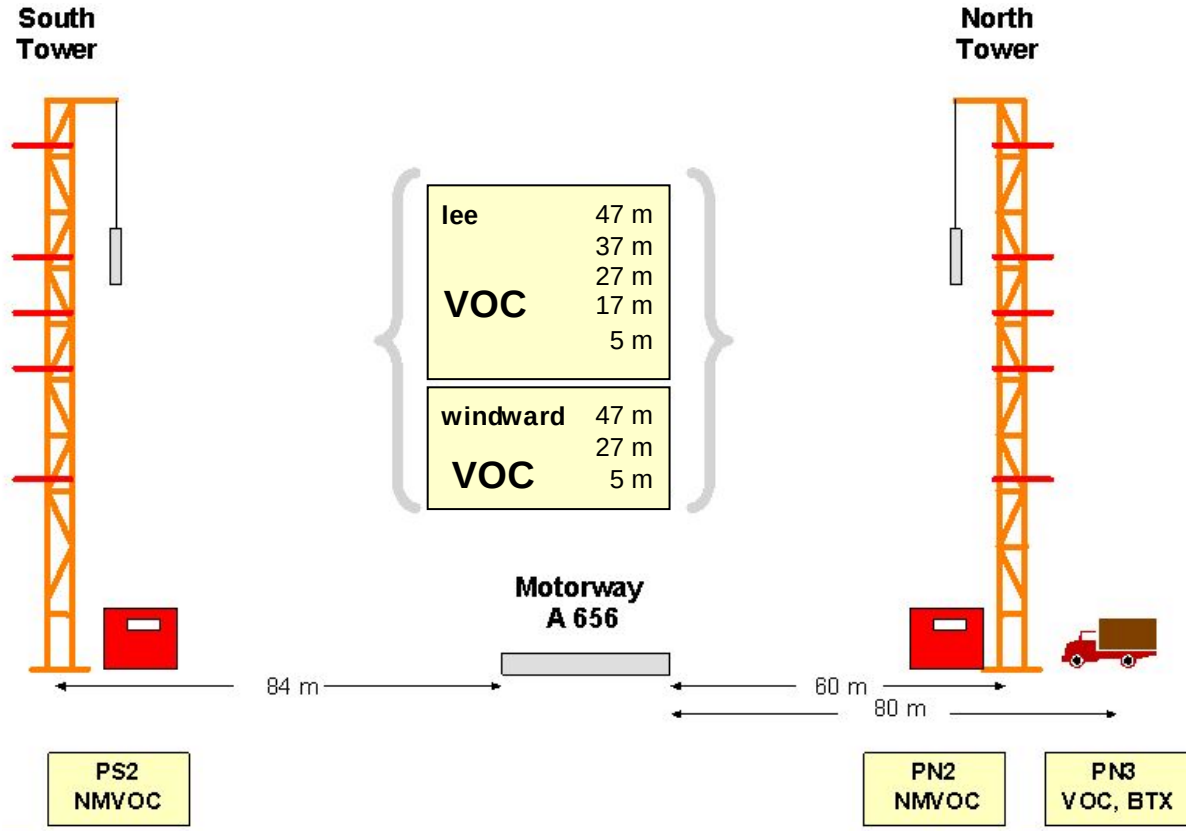
Anhang 12a: Anordnung der meteorologischen Messgeräte im Projekt BAB II



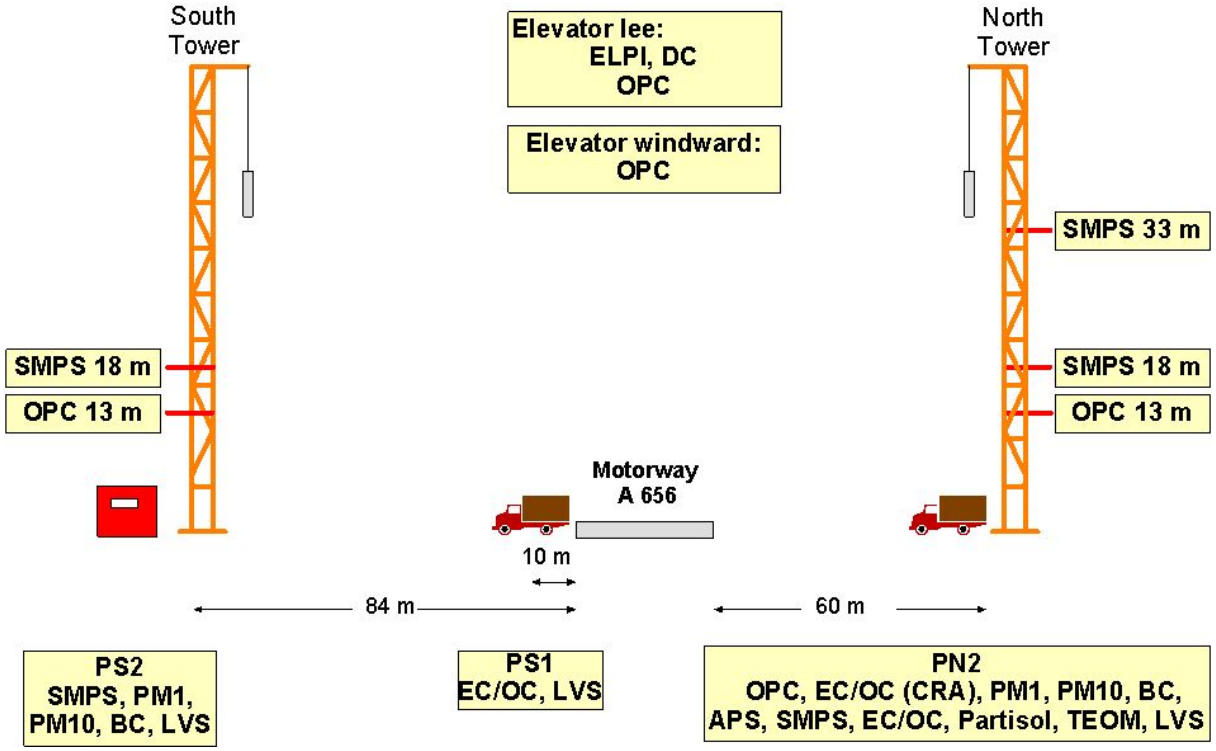
Anhang 12b: Anordnung der Messgeräte für CO, CO_2, NO_x, O_3 und SO_2 im Projekt BAB II



Anhang 12c: Anordnung der VOC-Probennahmen im Projekt BAB II



Anhang 12d: Anordnung der Partikelprobennahmen und der Partikelmessgeräte im Projekt BAB II



Anhang 13: Qualitätssicherung im Rahmen von BAB II

Wie beim Verbundprojekt EVA spielte auch beim Projekt BAB II die Qualitätssicherung eine entscheidende Rolle, und es wurde sehr viel Aufwand in deren Durchführung investiert. Die Messergebnisse von Projektpartnern, die teilweise Geräte mit unterschiedlichen Messprinzipien verwendeten, deren Ergebnisse auf die unterschiedlichsten Kalibrierstandards zurückzuführen sind und deren Betreiber unterschiedliche Kalibrierphilosophien verfolgen, müssen untereinander vergleichbar sein. Dies ist notwendig, damit die ermittelten Konzentrationsdifferenzen, die im Luv und Lee eines Untersuchungsgebiets auftreten, nicht das Resultat von Messunsicherheiten sind, sondern den wirklich vorhandenen Konzentrationsdifferenzen zwischen Luv und Lee entsprechen, da sonst die Bilanzierungsergebnisse einer zu großen Unsicherheit unterliegen würden. Die Qualitätssicherung verfolgt zwei wesentliche Ziele: Erstens werden mit Hilfe von Vergleichsmessungen an Prüfgasen und am realen Medium - der Außenluft - Abweichungen der einzelnen Messgeräte untereinander bestimmt und für jedes Messgerät eine Korrekturgleichung ermittelt, die auf alle Messergebnisse angewendet wird. Zweitens werden die nach der Korrektur immer noch vorhandenen, zufälligen Abweichungen der Messergebnisse herangezogen, um die Messunsicherheiten der Messergebnisse zu bestimmen.

Die gesamte Durchführung und Auswertung der umfangreichen Qualitätssicherungsmaßnahmen im Projekt BAB II lagen in der Hand des IVD. In diesem Kapitel soll nur auf die wichtigsten Schritte und Ergebnisse der Qualitätssicherung eingegangen werden. Ausführliche Literatur dazu ist in [145] zu finden.

Das gesamte Qualitätssicherungsprogramm wurde in einzelne Schritte unterteilt, die dem Flussbild in Bild A13a entnommen werden können. Zuerst wurden alle zu messenden Gase und Partikel in drei Gruppen unterteilt, auf die jeweils die gleichen Qualitätssicherungsmaßnahmen angewendet wurden:

- **Gruppe 1:** NO/NO_x und CO
- **Gruppe 2:** Flüchtige organische Verbindungen (VOCs), O_3, Ruß und Partikel (PM_1-, PM_{10}-Massenkonzentrationsmessung)
- **Gruppe 3:** Partikel (Messung von Anzahlkonzentration und Größenverteilung)

Im Gegensatz zum Qualitätssicherungsprogramm des Projekts EVA, das in drei Stufen ablief, wurde das Programm im Projekt BAB II zweistufig angelegt:

- **Stufe I:** Ringversuche mit Kalibrierstandards des Qualitätssicherungsteams
- **Stufe II:** Außenluftvergleichsmessungen

Alle Messstationen bzw. -systeme wurden mehrmals (Details zu den Zeiträumen, den Standorten und den Maßnahmen siehe Tabelle A13a) an einen Ort zusammengezogen und die Geräte über einen Zeitraum von mehreren Tagen wie im realen Messeinsatz betrieben, d. h. mit derselben Gasansaugung und Datenerfassung und denselben Kalibrierprozeduren wie im regelmäßigen Einsatz während der Messkampagnen. Dann kamen die zwei Stufen des Qualitätssicherungsprogramms zur Anwendung:

Tabelle A13.1: Phasen (I bis III) während der Qualitätssicherung im Projekt BAB II; Daten, Messorte und Messkomponenten

Phase	**Measures**
Phase I **date:** April 3 to 5, 2001 **site:** Karlsruhe	1. calibration gas application: NO, NO_x, CO, 2. comparison measurements in ambient air: NO, NO_x, CO, O_3 (orientation measurements for particulate matter analysers)
Phase II **date:** April 26 to 27, 2001 **site:** Heidelberg	2. comparison measurements in ambient air: VOC, elemental carbon, particulate matter (number concentrations)
Phase III **date:** May 25 to 29, 2001 **site:** Heidelberg	1. calibration gas application: NO, NO_x, CO, 2. comparison measurements in ambient air: NO, NO_x, CO, O_3, VOC, elemental carbon, particulate matter (PM_{10}, PM_1), particulate matter (number concentrations)

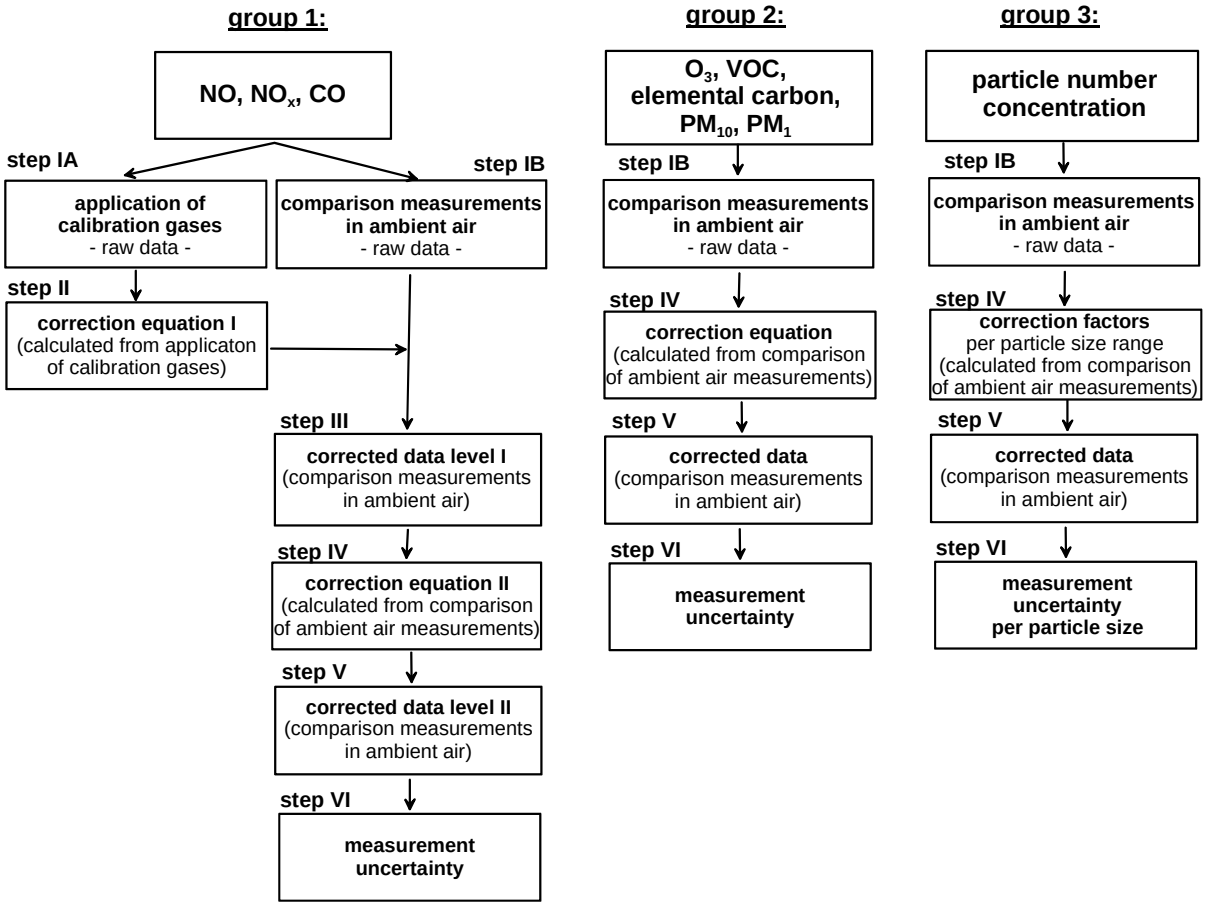


Bild A13.1: Flussdiagramm zur Qualitätssicherung im Projekt BAB II: Einteilung der Parameter in drei Gruppen (1 bis 3) und Unterteilung der Qualitätssicherung in einzelne Schritte (I bis VI)

In Stufe I kalibrierten die Betreiber ihre Geräte entsprechend ihren üblichen Kalibrierprozeduren und mussten dann Kalibrierstandards für sie unbekannter Konzentrationen, die vom Qualitätssicherungsteam zur Verfügung gestellt wurden, analysieren. Es wurde eine Dreipunktkalibrierung mit Nullgas, mit niedrig und mit höher konzentriertem Kalibriergas durchgeführt. Die Konzentrationen der verwendeten Kalibriergase wurden ihrerseits vom Umweltbundesamt in mehreren Analysen bestimmt. Das Umweltbundesamt ist seit 1999 EU-Referenzlabor und besitzt für NO, CO und VOCs den nationalen deutschen Standard, weshalb es seinerseits an internationale Standards angebunden ist. Die Standards werden vom UBA mit Hilfe der Methode der volumetrischen statischen Injektion nach ISO 6144 mit einer Unsicherheit von < 0,5 % hergestellt. Details zu den verwendeten Kalibriergasen finden sich in der folgenden Tabelle:

Tabelle A13.2: Kalibriergase, die im Projekt BAB II im Rahmen der Qualitätssicherung zum Einsatz kamen

Gas no.	Component	Concentration as given by manufacturer	Comparison with primary standard UBA	Standard deviation of analyses	No. of analyses
CG-1a	NO in N_2	392 ppb	412 ppb	1 ppb (0.2%)	6
CG-1 b	NO in N_2	399 ppb	419.2 ppb	0.5 ppb (0.1%)	3
CG-2a	NO in N_2	80 ppb	86.2 ppb	0.4 ppb (0.4%)	6
CG-2b	NO in N_2	82 ppb	85.8 ppb	0.2 ppb (0.2 %)	3
CG-4a	CO in N_2	2550 ppb	2647 ppb	36 ppb (1.3%)	6
CG-4b	CO in N_2	2380 ppb	2513 ppb	15 ppb (0.6 %)	3
CG-5a	CO in N_2	830 ppb	962 ppb	28 ppb (2.9 %)	6
CG-5b*	CO in syn. air	1130 ppb	1223 ppb	45 ppb (3.7 %)	3
CG-6a	CO_2 in N_2	833 ppm	not analysed		
CG-7a	CO_2 in N_2	425 ppm	not analysed		
CG-8a	syn. air	0 ppb	0.2 ppb	0.1 ppb	6
CG-8b	syn. air	0 ppb	10 ppb*		n.n.

* analysiert vom IMK-IFU (Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Institut für Atmosphärische Umweltforschung)

Stufe I des Qualitätssicherungsprogramms diente dazu, systematische Abweichungen der Messergebnisse zu ermitteln und zu eliminieren, die dadurch entstanden, dass die Gerätebetreiber die Konzentrationen der Prüfgase, die sie zur regelmäßigen Kalibrierung der Messgeräte verwendeten, nicht exakt kannten. Üblicherweise werden käuflich erwerbbare Prüfgase mit einer Genauigkeitsangabe der Ist-Konzentration von $\pm$ 5 % verwendet. Zum Abgleich aller im Projekt verwendeten Prüfgase und zur Eliminierung dieser Fehlerquelle wurde diese Stufe der Qualitätssicherung für alle im Projekt eingesetzten Messgeräte durchgeführt, die während der Messkampagne regelmäßig mit Prüfgasen der Gerätebetreiber kalibriert wurden. Die Ergebnisse einer Applikation eines NO-Prüfgases auf alle beteiligten NO/NO_x-Messgeräte sind beispielhaft in Bild A13.2 dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass einige der Messgeräte die vom UBA festgestellte Ist-Konzentration von 86,2 ppb sehr gut trafen (Geräte Nr. 2 und 4), andere Geräte (Nr. 1, 6 und 7) lagen mit < 80 ppb deutlich unter dem Ist-Wert und die Geräte Nr. 5 und 8 lagen deutlich über diesem Wert. Aus diesen und weiteren Prüfgasaufgaben wurde über eine Korrelationsrechnung für jedes eingesetzte Messgerät eine Korrekturgleichung (Korrekturgleichung I) erstellt. Diese Gleichung wurde dann auf die Messergebnisse des Außenluftvergleichs aus Stufe II angewendet.

In Stufe II fanden Vergleichsmessungen in der Außenluft statt. Dazu wurden über einen Zeitraum von einem bis mehrere Tage Immissionsmessungen durchgeführt. Um zeitliche Verschiebungen der Konzentrationsverläufe und Spitzenkonzentrationen an den einzelnen Messgeräten aufgrund horizontaler Unterschiede in den Konzentrationen und Konzentrationsverläufen zu vermeiden, wurden die Ansaugstellen der einzelnen Messwagen auf engstem Raum konzentriert. Dennoch traten Zeitverzögerungen zwischen den Konzentrationsverläufen der einzelnen Messgeräte untereinander auf, was sich insbesondere bei starken Konzentrationsänderungen bemerkbar machte. Durch Bildung von 1-Stundenmittelwerten aus den aufgenom-

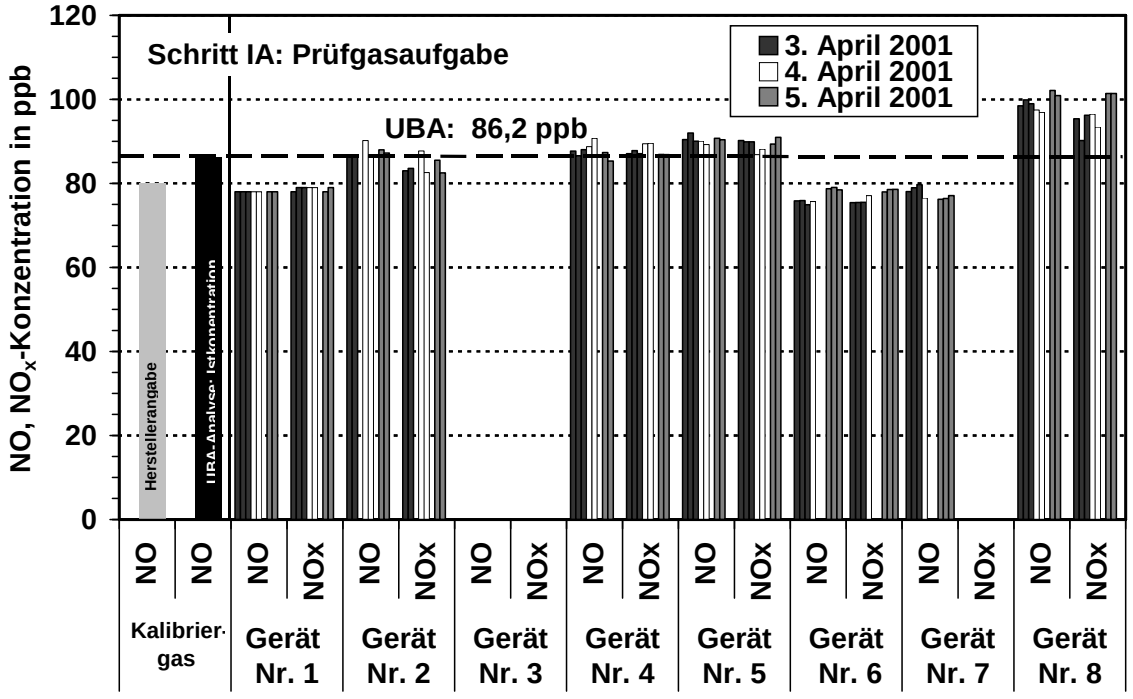


Bild A13.2: NO-Prüfgasaufgabe auf alle NO/NO_x-Messgeräte; Vergleich mit Ist-Konzentration (UBA) und Konzentrationsangabe des Prüfgasherstellers

menen Kurzzeitwerten (i.A. 1-Minutenmittelwerte) konnte dieses Problem jedoch behoben werden. In Bild A13.2 sind die NO-Rohdaten aller NO/NO_x-Messgeräte als 1-Stundenmittelwerte aufgetragen, die vom 25. bis 29.5.2001 bei Vergleichsmessungen im Einsatz waren. Im betrachteten Zeitraum kamen sowohl sehr niedrige Werte im unteren ppb-Bereich als auch höhere Werte von bis zu 60 ppb vor. Alle Geräte folgten sehr gut dem aus den Einzelwerten berechneten arithmetischen Mittelwert (blaue Linie: Mittelwerte der Geräte Nr. 1 bis 8), der für weitere Berechnungen als Referenzwert diente. Im Detail konnten aber für einzelne Messgeräte systematische Abweichungen vom Mittelwert festgestellt werden. Teilweise konnten diese Abweichungen durch die Anwendung der in Stufe I berechneten Korrekturgleichungen reduziert oder gar eliminiert werden. Es blieb allerdings für die meisten Geräte eine systematische Abweichung erhalten. Diese wurde durch die Anwendung einer zweiten Korrekturgleichung (Korrekturgleichung II), die über Korrelationsrechnungen aus den Außenluftmessungen berechnet wurde, gänzlich eliminiert. Die Korrekturgleichungen wurden den Gerätebetreibern mitgeteilt und auf alle im Projekt BAB II gewonnenen Messergebnisse angewendet.

Für die Komponenten der Gruppen 2 und 3 kamen keine Prüfgasaufgaben in Frage oder waren nicht vorgesehen. Die Korrektur der systematischen Abweichungen dieser Geräte wurde gänzlich über die Außenluftvergleichsmessungen durchgeführt.

Es blieb aber immer noch eine Messunsicherheit bestehen, die nicht durch Korrekturen beseitigt werden konnte. Es handelt sich hierbei um zufällige Schwankungen bzw. Abweichungen der Messgeräte vom "richtigen Wert". Die Kenntnis von der Messunsicherheit ist für die Massenbilanzierung sehr wichtig, da die im Luv und Lee des Bilanzraums gemessenen Konzentrationsdifferenzen sehr viel größer sein müssen als die Messunsicherheit. Für die Berechnung der Messunsicherheit für alle Komponenten der Gruppen 1 bis 3 kam die Richtlinie DIN ISO 13752 zur Anwendung [157].

Diese Richtlinie kann angewendet werden, wenn die Messwerte der einzelnen Messgeräte und

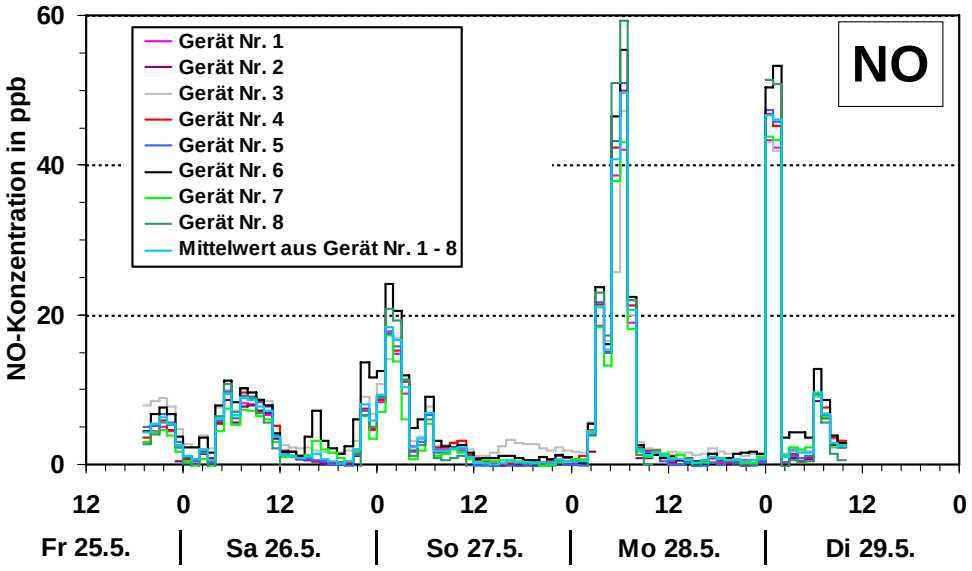


Bild A13.3: Außenluftvergleich aller NO/NO_x-Messgeräte – 1-Stundenmittelwerte, Rohdaten vom 25. bis 29.5.2001 an der Autobahn A 656 bei Heidelberg

die Referenzdaten in einem linearen Zusammenhang stehen. Da dies bei den vorliegenden Daten der Fall war, kam Gleichung A13.1 für die Berechnung der Standardabweichung s der Messwerte von den Referenzwerten zur Anwendung. Die Gleichung liefert von der Konzentration abhängige Werte:

$$s^2 = a_0^2 + a_1^2 * c_{ref} + a_2^2 * c_{ref}^2 \qquad \textbf{(A13.1)}$$

s	Standardabweichung
c_{ref}	Referenzkonzentration
a_0, a_1, a_2	Koeffizienten

Die Koeffizienten a_0 bis a_2 müssen iterativ bestimmt werden. Die iterativen Gleichungen wurden mit Hilfe des Tools "Solver" im Softwareprogramm Excel gelöst, welches die wahrscheinlichste Funktion L (*Maximum-Likelihood-Function*) zur Anpassung der Modellfunktion an die Messdaten verwendet. Aus Gleichung A13.1 für die Berechnung der Standardabweichung und dem Fehlerfortpflanzungsgesetz entstand Gleichung A13.2 für die Berechnung der Messunsicherheit u:

$$u = \sqrt{2} * s = \sqrt{2 * (a_0^2 + a_1^2 * c_{ref} + a_2^2 * c_{ref}^2)} \qquad \textbf{(A13.2)}$$

Bei der Messunsicherheit u nach Gleichung A13.2 handelt es sich um eine kombinierte Messunsicherheit. Diese Gleichung eignet sich für den vorliegenden Fall besonders gut, bei dem letztendlich Konzentrations- bzw. Massendifferenzen im Luv und Lee der Autobahn betrachtet werden [223].

In Bild A13.4 sind beispielhaft für den NO_x-Kanal der NO/NO_x-Messgeräte erneut die Ergebnisse der Außenluftvergleichsmessungen dargestellt, vor und nachdem die wichtigsten Einzelschritte des Qualitätssicherungsprogramms auf die Daten angewendet wurden. Es handelt sich um x-y-Diagramme, wobei die Messwerte (1-Stundenmittelwerte) der einzelnen Messgeräte auf der Abszisse in Abhängigkeit von den Referenzwerten (Mittelwert aus allen Messgeräten) aufgetragen sind. In Bild A13.4a sind die Rohdaten dargestellt, wobei die Kalibrierungen der Gerätebetreiber eingearbeitet sind. Die unterschiedlichen Steigungen der eingezeichneten Kalibriergeraden bedeuten, dass systematische Abweichungen der einzelnen Geräte untereinander in größerem Maße vorhanden waren. Die Daten in Bild A13.4b wurden durch Anwendung der zuvor beschriebenen Korrekturgleichungen I auf die Rohdaten von Bild A13.4a gewonnen. Die Abweichungen der korrigierten Werte der einzelnen Messeräte von den Referenzdaten konnten somit schon bedeutend reduziert werden. Die Steigungen der Kalibriergeraden haben sich im Vergleich zu Bild A13.4a einander angenähert. Nach Anwendung der Korrekturgleichungen II auf die Datensätze ergab sich Bild A13.4c. Die systematischen Abweichungen der Messwerte der Einzelgeräte konnten vollständig beseitigt werden. Dies ist deutlich anhand der identischen Kalibriergeraden für alle Messgeräte zu erkennen. Trotzdem blieb eine zufällige Messunsicherheit vorhanden, die mit Hilfe der Gleichung A13.2 bestimmt wurde und in Bild A13.4d bildlich dargestellt ist. Die Messunsicherheit nimmt mit zunehmenden Konzentrationen ebenfalls zu.

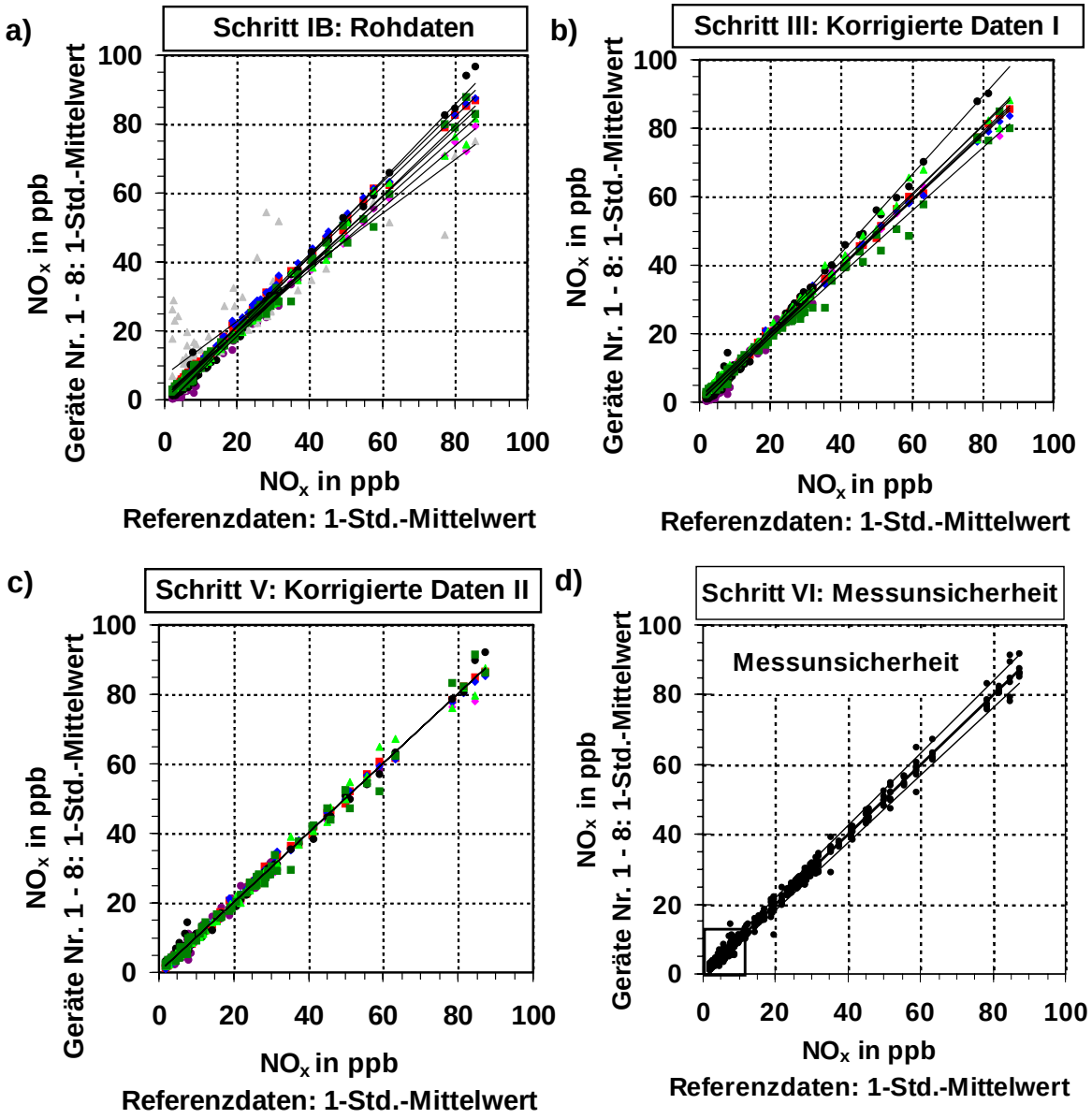


Bild A13.4: Außenluftvergleich aller NO/NO_x-Messgeräte – 1-Stundenmittelwerte vom 25. bis 29.5.2001 an der Autobahn A 656 bei Heidelberg

a) Rohdaten
b) Korrigierte Daten I – Nach Anwendung der Korrekturgleichung I aus Prüfgasaufgaben
c) Korrigierte Daten II – Nach Anwendung der Korrekturgleichung II aus Außenluftvergleichen
d) Verbleibende Messunsicherheit

In Tabelle A13.3 sind die Korrekturformeln für die einzelnen, in BAB II eingesetzten Messgeräte aufgelistet. In Bild A13.5 und A13.6 sind die berechneten Messunsicherheiten für die weiteren Messkomponenten bildlich dargestellt. Den Tabellen A13.4 und A13.5 können die berechneten kombinierten Messunsicherheiten für unterschiedliche Konzentrationen für alle Gase und Partikel entnommen werden.

Tabelle A13.3: Korrekturgleichungen aller im Projekt BAB II verwendeten Messgeräte

Analyser no.	Component	Correction equation
1	NO	$x_{corrected} = 1.1140 * y_{uncorrected} - 0.37$
	NO_x	$x_{corrected} = 1.1138 * y_{uncorrected} - 2.17$
2	NO	$x_{corrected} = 1.1177 * y_{uncorrected} + 0.15$
	NO_x	$x_{corrected} = 1.0134 * y_{uncorrected} + 1.65$
3	NO	$x_{corrected} = 1.1975 * y_{uncorrected} - 2.10$
	NO_x	not possible, NOx channel defect
4	NO	$x_{corrected} = 0.9898 * y_{uncorrected} + 0.08$
	NO_x	$x_{corrected} = 0.9857 * y_{uncorrected} - 1.07$
5	NO	$x_{corrected} = 1.0177 * y_{uncorrected} - 0.26$
	NO_x	$x_{corrected} = 1.0083 * y_{uncorrected} - 1.10$
6	NO	$x_{corrected} = 0.9221 * y_{uncorrected} - 1.14$
	NO_x	$x_{corrected} = 0.9355 * y_{uncorrected} + 1.64$
7	NO	$x_{corrected} = 1.1283 * y_{uncorrected} - 0.07$
	NO_x	$x_{corrected} = 1.0891 * y_{uncorrected} - 1.18$
8	NO	$x_{corrected} = 0.8473 * y_{uncorrected} + 1.39$
	NO_x	$x_{corrected} = 1.0481 * y_{uncorrected} - 0.56$
9	CO	$x_{corrected} = 1.0173 * y_{uncorrected} + 53.01$
10	CO	$x_{corrected} = 1.2079 * y_{uncorrected} - 36.50$
11	CO	$x_{corrected} = 0.8742 * y_{uncorrected} + 18.74$

Analyser no.	Component	Correction equation
1	O_3	$x_{corrected} = 1.0248 * y_{uncorrected} + 0.84$
2	O_3	$x_{corrected} = 1.0054 * y_{uncorrected} - 2.39$
3	O_3	$x_{corrected} = 1.0784 * y_{uncorrected} + 3.47$
4	O_3	$x_{corrected} = 0.9921 * y_{uncorrected} - 0.26$
5	O_3	$x_{corrected} = 1.0620 * y_{uncorrected} - 1.96$
6	O_3	$x_{corrected} = 0.9638 * y_{uncorrected} + 2.14$
7	O_3	$x_{corrected} = 0.9534 * y_{uncorrected} - 0.29$
8	O_3	$x_{corrected} = 1.0190 * y_{uncorrected} + 1.92$
9	O_3	$x_{corrected} = 0.9491 * y_{uncorrected} + 7.37$
10	O_3	$x_{corrected} = 0.7186 * y_{uncorrected} + 0.91$
11	O_3	$x_{corrected} = 1.0240 * y_{uncorrected} + 0.05$
12	O_3	$x_{corrected} = 1.0219 * y_{uncorrected} + 3.04$
13	EC	$x_{corrected} = 1.0533 * y_{uncorrected}$
14	EC	$x_{corrected} = 0.9518 * y_{uncorrected}$
15	PM_1	$x_{corrected} = 0.9534 * y_{uncorrected} - 0.32$
16	PM_1	$x_{corrected} = 0.9534 * y_{uncorrected} - 0.33$
17	PM_{10}	$x_{corrected} = 0.9534 * y_{uncorrected} - 0.34$
18	PM_{10}	$x_{corrected} = 0.9534 * y_{uncorrected} - 0.35$
19	VOC-1	$x_{corrected} = 12.870 * y_{uncorrected} - 1.05$
	VOC-2	$x_{corrected} = 0.9670 * y_{uncorrected} - 0.04$
	VOC-3	$x_{corrected} = 1.1730 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-4	$x_{corrected} = 0.973 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-5	$x_{corrected} = 1.0890 * y_{uncorrected} - 0.10$
	VOC-6	$x_{corrected} = 0.8860 * y_{uncorrected} - 0.01$
	VOC-7	$x_{corrected} = 0.9610 * y_{uncorrected} - 0.13$
	VOC-8	$x_{corrected} = 0.7850 * y_{uncorrected} - 0.01$
	VOC-9	$x_{corrected} = 0.5970 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-10	$x_{corrected} = 0.6100 * y_{uncorrected} - 0.01$
20	VOC-1	$x_{corrected} = 1.5450 * y_{uncorrected} - 0.49$
	VOC-2	$x_{corrected} = 0.7400 * y_{uncorrected} - 0.02$
	VOC-3	$x_{corrected} = 1.6310 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-4	$x_{corrected} = 0.8620 * y_{uncorrected} - 0.02$
	VOC-5	$x_{corrected} = 1.1290 * y_{uncorrected} - 0.05$
	VOC-6	$x_{corrected} = 1.2080 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-7	$x_{corrected} = 0.9820 * y_{uncorrected} - 0.12$
	VOC-8	$x_{corrected} = 0.6080 * y_{uncorrected} - 0.01$
	VOC-9	$x_{corrected} = 0.7070 * y_{uncorrected} - 0.03$
	VOC-10	$x_{corrected} = 0.5200 * y_{uncorrected}$

Für die Gase und Partikel der Gruppen 1 und 2, außer für VOCs, lagen die berechneten Messunsicherheiten auch für höhere Konzentrationen im Bereich von 3 bis 10 % und damit weit niedriger als die gemessenen Differenzen zwischen Luv und Lee. Die VOCs wiesen höhere Unsicherheiten von 10 bis maximal 45 % auf. Bei einigen VOC-Komponenten lag die Messunsicherheit im Bereich der gemessenen Differenzen zwischen Luv und Lee, was zu sehr unsicheren Bilanzierungsergebnissen führte. Die Partikel der Gruppe 3 wiesen noch größere Messunsicherheiten auf, wobei die während der Messkampagne aufgetretenen Konzentrationen im Lee der Autobahn oftmals um den Faktor 2 bis 3 höher lagen als die Luv-Konzentrationen, wodurch die hohen Messunsicherheiten auch in diesem Fall nicht so sehr ins Gewicht fielen [158], [159].

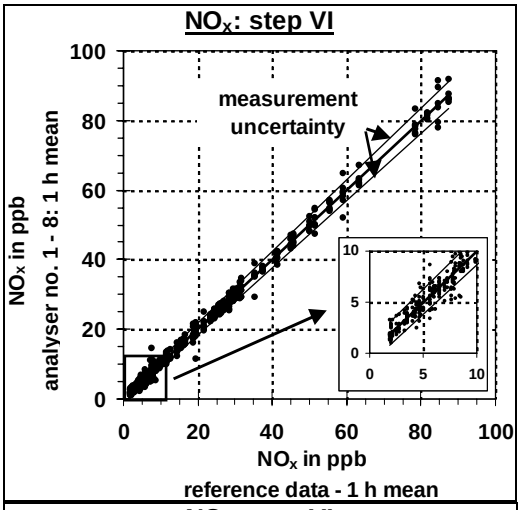
Bild A13.5: Vergleichsmessungen in der Außenluft während den Phasen I und III: Ergebnisse der einzelnen Messgeräte über dem Referenzwert (1 Stundenmittelwert aller Messgeräte); Bereich der Messunsicherheit als Geraden aufgetragen

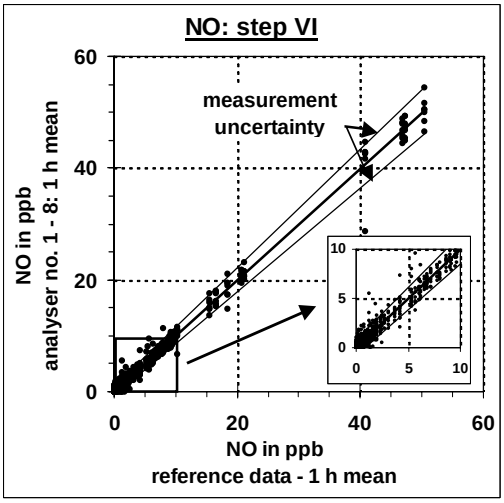
a) NO_x - korrigierte Daten Level II (step VI, links); NO korrigierte Daten Level II (step VI, rechts)

b) NO_2 - korrigierte Daten Level II (step VI, links)

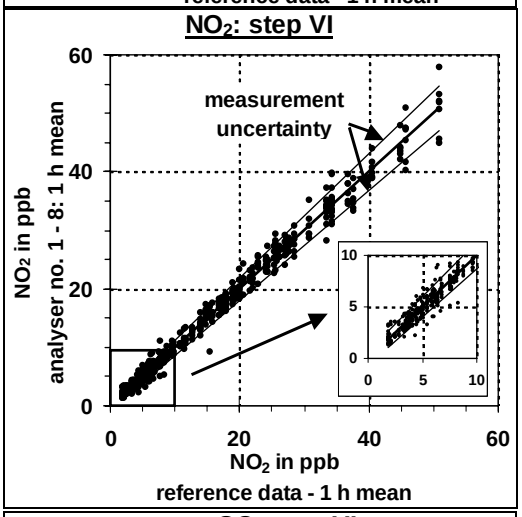
c) CO (*Nr. 9, 10 und 11)* - korrigierte Daten Level II (step VI, links); CO *(Nr. 10 und 11)* - korrigierte Daten Level II (step VI, rechts)

a)

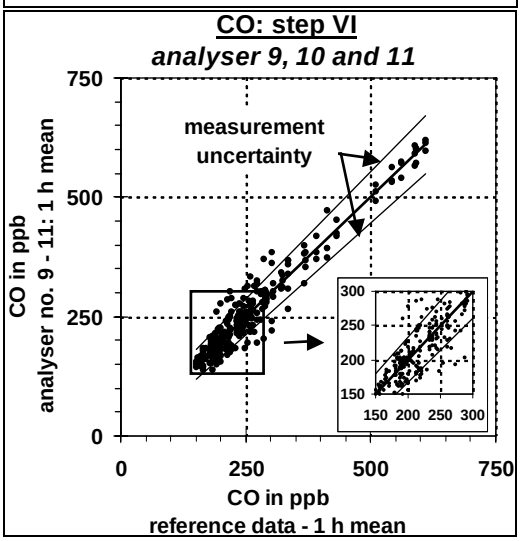




b)



c)



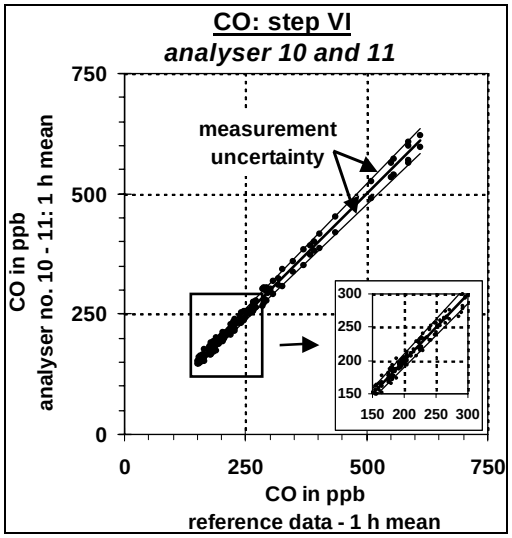
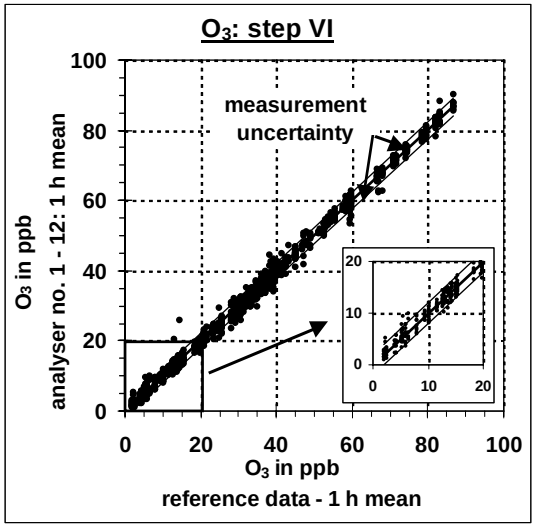
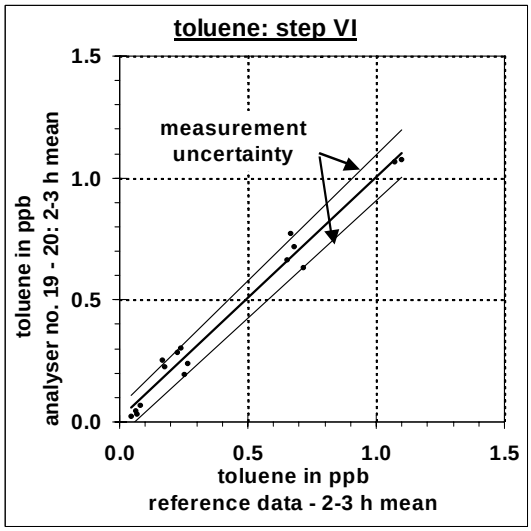


Bild A13.6: Außenluftvergleichsmessungen für O_3 (Phase I und III), und für EC, PM_1, und PM_{10} (Phase III); Ergebnisse der einzelnen Messgeräte (korrigiert) über den Referenzwerten (korrigiert) aufgetragen; Bereich der Messunsicherheit zwischen den beiden äußeren Geraden

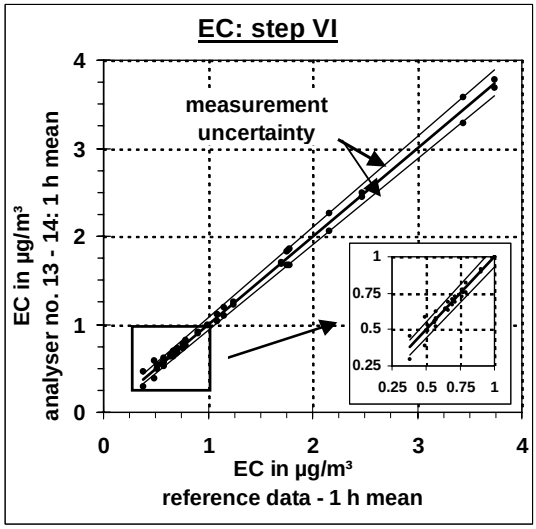
a) O_3 (links), Toluol (rechts)
b) EC (links), PM_1 (rechts)
c) PM_{10}

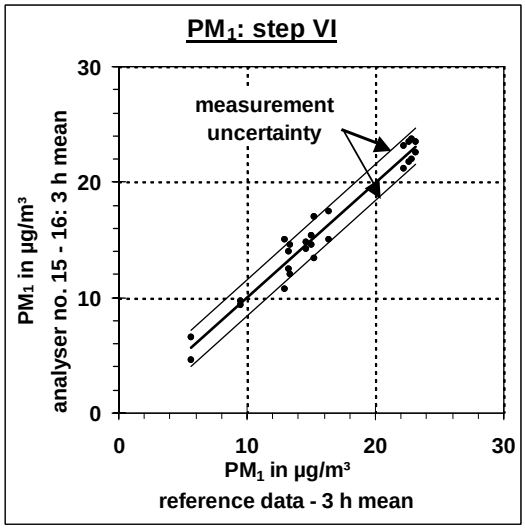
a)





b)





c)

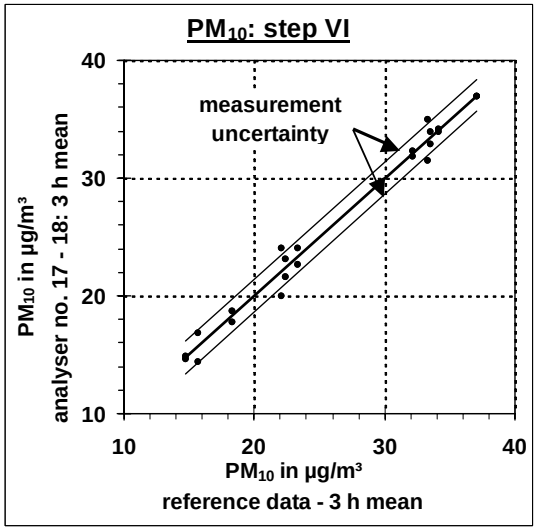


Tabelle A13.4: Variationskoeffizienten, absolute (in ppb oder in µg*m^{-3}) und relative "kombinierte" Messunsicherheit (in %) bei unterschiedlichen Konzentrationen für NO_x-, NO-, NO_2-, VOC-, O_3-, CO-, EC-, PM_1- und PM_{10}-Messgeräte

Component	Coefficient a0	a1	a2	Concentration in ppb — Absolute "combined" uncertainty u in ppb | Relative "combined" uncertainty u in %				
NO_x	0.6108	0.2594	0.0078	0 ppb: 0.9 ppb | -	10 ppb: 1.5 ppb | 14.5 %	25 ppb: 2.0 ppb | 8.2 %	50 ppb: 2.8 ppb | 5.6 %	90 ppb: 3.7 ppb | 4.1 %
NO	0.4659	0.3707	0	0 ppb: 0.7 ppb | -	5 ppb: 1.3 ppb | 26.9 %	10 ppb: 1.8 ppb | 17.8 %	25 ppb: 2.7 ppb | 10.8 %	50 ppb: 3.8 ppb | 7.5 %
NO_2	0.6391	0.1134	0.0526	0 ppb: 0.9 ppb | -	5 ppb: 1.0 ppb | 20.8 %	10 ppb: 1.3 ppb | 12.8 %	25 ppb: 2.2 ppb | 8.9 %	50 ppb: 4.0 ppb | 8.0 %
CO	0.2004	1.6818	-0.0012	150 ppb: 29.1 ppb | 19.4 %	250 ppb: 37.6 ppb | 15.0 %	400 ppb: 47.6 ppb | 11.9 %	500 ppb: 53.2 ppb | 10.6 %	650 ppb: 60.6 ppb | 9.3 %
CO no. 10, 11	*0.6978*	*0.2360*	*0.0298*	*150 ppb: 7.6 ppb | 5.1 %*	*250 ppb: 11.8 ppb | 4.7 %*	*400 ppb: 18.2 ppb | 4.5 %*	*500 ppb: 22.4 ppb | 4.5 %*	*650 ppb: 28.7 ppb | 4.4 %*
O_3	1.4635	-0.0845	0	0 ppb: 2.1 ppb | -	10 ppb: 2.1 ppb | 21.0 %	25 ppb: 2.2 ppb | 8.6 %	50 ppb: 2.2 ppb | 4.5 %	90 ppb: 2.4 ppb | 2.6 %
EC	0.0375	0.000	-0.0260	0.3 µg/m³: 0.05 µg/m³ | 18.1 %	1 µg/m³: 0.06 µg/m³ | 6.5 %	2.5 µg/m³: 0.11 µg/m³ | 4.2 %	3 µg/m³: 0.12 µg/m³ | 4.1 %	4 µg/m³: 0.16 µg/m³ | 3.9 %
PM_1	1.0932	0.000	0	5 µg/m³: 1.5 µg/m³ | 30.9 %	10 µg/m³: 1.5 µg/m³ | 15.5 %	15 µg/m³: 1.5 µg/m³ | 10.3 %	20 µg/m³: 1.5 µg/m³ | 7.7 %	25 µg/m³: 1.5 µg/m³ | 6.2 %
PM_{10}	0.9616	0.000	0	15 µg/m³: 1.4 µg/m³ | 9.1 %	20 µg/m³: 1.4 µg/m³ | 6.8 %	25 µg/m³: 1.4 µg/m³ | 5.4 %	30 µg/m³: 1.4 µg/m³ | 4.5 %	40 µg/m³: 1.4 µg/m³ | 3.4 %
2-methylpentane	0.1130	0.000	0.000	0.05 ppb: 0.16 ppb | 319.7 %	0.25 ppb: 0.16 ppb | 63.9 %	0.50 ppb: 0.16 ppb | 32.0 %	0.75 ppb: 0.16 ppb | 21.3 %	1.25 ppb: 0.16 ppb | 12.8 %
3-methylpentane	0.0136	0.000	-0.084	0.05 ppb: 0.02 ppb | 40.4 %	0.25 ppb: 0.04 ppb | 14.2 %	0.50 ppb: 0.06 ppb | 12.5 %	0.75 ppb: 0.09 ppb | 12.2 %	1.25 ppb: 0.15 ppb | 12.0 %
n-hexane	0.0140	0.000	-0.187	0.05 ppb: 0.02 ppb | 47.6 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 27.7 %	0.50 ppb: 0.13 ppb | 26.8 %	0.75 ppb: 0.20 ppb | 26.6 %	1.25 ppb: 0.33 ppb | 26.6 %
Benzene	0.0000	0.000	0.203	0.05 ppb: 0.01 ppb | 28.7 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 28.7 %	0.50 ppb: 0.14 ppb | 28.7 %	0.75 ppb: 0.22 ppb | 28.7 %	1.25 ppb: 0.36 ppb | 28.7 %
Cyclohexane	0.0000	-0.130	0.000	0.05 ppb: 0.04 ppb | 82.1 %	0.25 ppb: 0.09 ppb | 36.7 %	0.50 ppb: 0.13 ppb | 26.0 %	0.75 ppb: 0.16 ppb | 21.2 %	1.25 ppb: 0.21 ppb | 16.4 %
n-heptane	0.0000	0.000	0.209	0.05 ppb: 0.01 ppb | 29.5 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 29.5 %	0.50 ppb: 0.15 ppb | 29.5 %	0.75 ppb: 0.22 ppb | 29.5 %	1.25 ppb: 0.37 ppb | 29.5 %
Toluene	0.0416	-0.0513	0.000	0.05 ppb: 0.06 ppb | 121.9 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 27.6 %	0.50 ppb: 0.08 ppb | 15.6 %	0.75 ppb: 0.09 ppb | 11.5 %	1.25 ppb: 0.10 ppb | 8.0 %
Ethylbenzene	0.0000	-0.0579	0.176	0.05 ppb: 0.02 ppb | 44.3 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 29.8 %	0.50 ppb: 0.14 ppb | 27.4 %	0.75 ppb: 0.20 ppb | 26.6 %	1.25 ppb: 0.32 ppb | 25.9 %
o-xylene	0.0000	-0.082	0.000	0.05 ppb: 0.03 ppb | 52.0 %	0.25 ppb: 0.06 ppb | 23.2 %	0.50 ppb: 0.08 ppb | 16.4 %	0.75 ppb: 0.10 ppb | 13.4 %	1.25 ppb: 0.13 ppb | 10.4 %
m-/p-xylene	0.0139	-0.079	0.123	0.05 ppb: 0.03 ppb | 66.0 %	0.25 ppb: 0.07 ppb | 29.4 %	0.50 ppb: 0.12 ppb | 23.8 %	0.75 ppb: 0.16 ppb | 21.8 %	1.25 ppb: 0.25 ppb | 20.1 %

Tabelle A13.5: Messunsicherheit U für verschiedene Partikelzähler (SMPS...scanning mobility particle sizer, ELPI...electrical low pressure impactor, OPC...optical particle counter, APS...time-of-flight-Partikelzähler), die im Projekt BAB II eingesetzt und den Qualitätssicherungsmaßnahmen unterzogen wurden, für verschiedene Partikeldurchmesser d_p

Reference Device	Diameter	SMPS-1	SMPS-3	SMPS-4	SMPS-5	ELPI	*ELPI*	OPC-2	*OPC-2*	OPC-1	OPC-3	*OPC-3*	OPC-4	*OPC-4*	APS	*APS next*	APS best fit	*APS fit*
	d_P	U	U	U	U	U	d_P	U	d_P	U	U	d_P	U	d_P	U	d_P	U	d_P
SMPS-2	**20**	19%	42%	64%	52%	n.d.												
	30	12%	39%	76%	54%	n.d.												
	41	10%	29%	34%	47%	29%	*41*											
	50	10%	24%	33%	41%	44%	*77*											
	76	9%	25%	25%	32%	57%	*77*											
	98	9%	25%	23%	28%	28%	*131*											
	131	8%	33%	19%	26%	26%	*131*											
	151	9%	34%	18%	28%	23%	*131*											
	175	9%	31%	17%	29%	19%	*131*											
	202	10%	39%	13%	29%	27%	*205*											
	225	10%	40%	13%	32%	33%	*205*											
	250	13%	44%	16%	27%	38%	*205*											
	300	20%	61%	25%	33%	36%	*316*											
SMPS-2 (OPC-2)	**346**	28%	76%	34%	42%	38% (41%)	*316*	66%	*346*	(6%)	n.d.						23%	*583*
	400	46%	R < 0.5	41%	50%	47% (n.d.)	*316*	58%	*346*	(n.d.)	n.d.		R < 0.5				n.d.	
	447	54%	n.d.	52%	67%	49% (37%)	*499*	R < 0.5	*447*	(7%)	n.d.		R < 0.5		45%	*542*	21%	*777*
OPC-2	**570**					19%	*794*			9%	n.d.		R < 0.5		70%	*583*	20%	*898*
	721					21%	*794*			12%	n.d.		R < 0.5		65%	*723*	15%	*1114*
	894					20%	*794*			10%	13%	*866*	63%	*1025*	36%	*898*	33%	*1114*
	1265					34%	*1262*			13%	18%	*1414*	72%	*1025*	36%	*1286*	16%	*1486*
	1789					R < 0.5				19%	16%	*1414*	R < 0.5		22%	*1873*	21%	*1715*
	2449					R < 0.5				13%	14%	*2449*	R < 0.5		20%	*2458*	17%	*1981*
	3464					R < 0.5				15%	24%	*4183*	R < 0.5		21%	*3523*	17%	*3051*
	4472					R < 0.5				22%	21%	*4183*	R < 0.5		25%	*4371*		
	6124					R < 0.5				24%	24%	*6124*	R < 0.5		36%	*6264*		
	8660					R < 0.5				41%	44%	*8660*	R < 0.5		62%	*8354*		

n.d. not determined

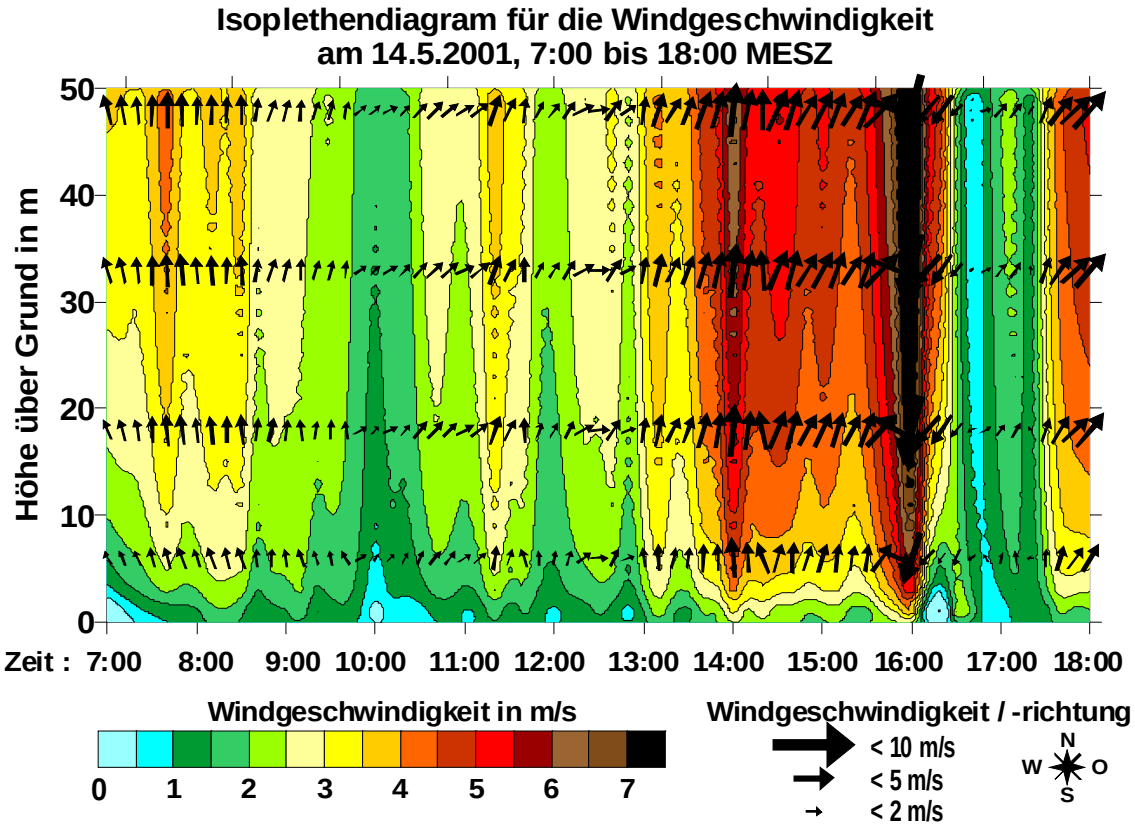
Anhang 14: BAB II-Intensivmessphasen (**SOPs – Special Observation Periods**). 1. Mai (Dienstag) und 24. Mai (Donnerstag) waren Feiertage, weshalb diese Tage nicht als normale Wochentage betrachtet werden konnten.

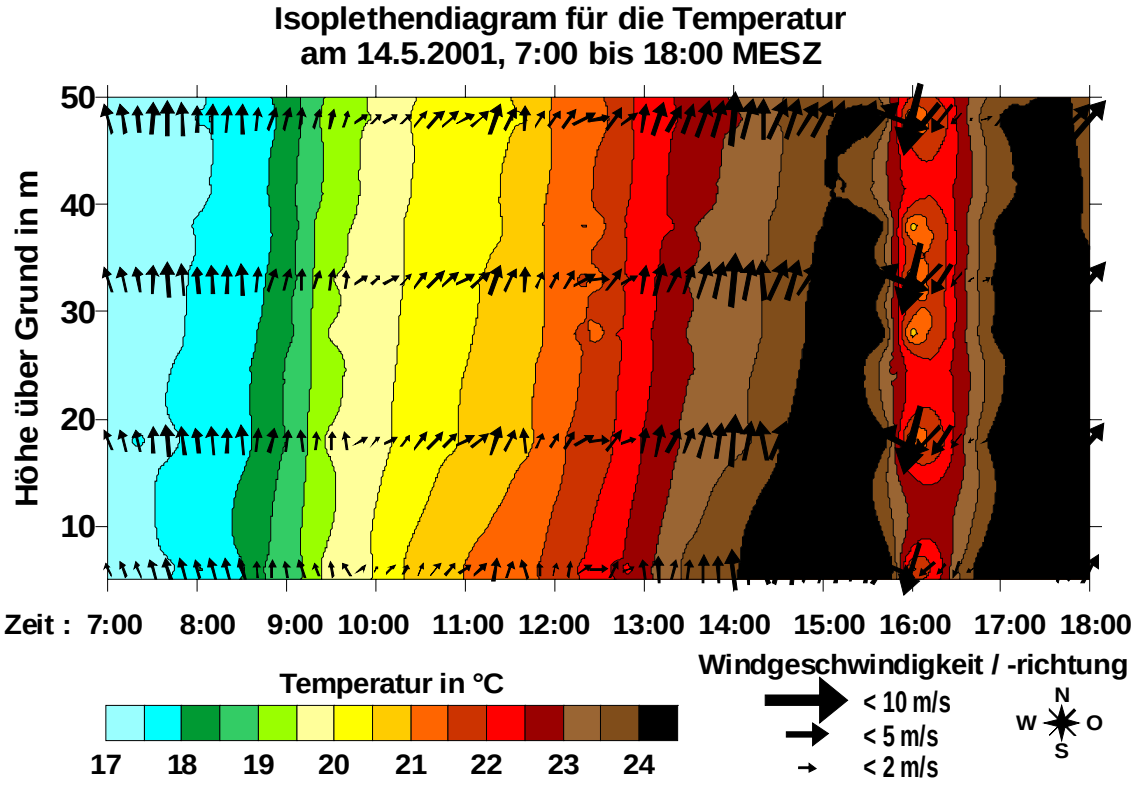
SOP No.	**Wochentag**	**Beginn SOP**		**Ende SOP**	
		Datum	**Uhrzeit**	**Datum**	**Uhrzeit**
1	*Dienstag*/Mittwoch	1. Mai	20:00	2. Mai	20:00
2	Montag/Dienstag	7. Mai	20:00	8. Mai	20:00
3	Dienstag/Mittwoch	8. Mai	20:00	9. Mai	20:00
4	Sonntag/Montag	13. Mai	20:00	14. Mai	20:00
5	Mittwoch/Donnerstag	16. Mai	14:00	17. Mai	22:00
6	Freitag	18. Mai	06:00	18. Mai	22:00
7	Mittwoch/*Donnerstag*	23. Mai	20:00	24. Mai	20:00

Anhang 15: Perioden während BAB II, die sich für eine Bilanzierung eigneten: Wind aus Sektoren 0° - 90° oder 180° - 270°; CO-Konzentrationsdifferenzen Lee-Luv > 20 ppb und NO_x-Konzentrationsdifferenzen Lee-Luv > 5 ppb; Verkehrsdichte > 1000 Fahrzeuge/Stunde, Mindestintervalllänge 3 bzw. 4 zusammenhängende Stunden; Nachtstunden wurden ausgenommen, nur Perioden zwischen 6:00 und 20:00 MESZ wurden zugelassen; SOP-Intervalle sind grau hinterlegt

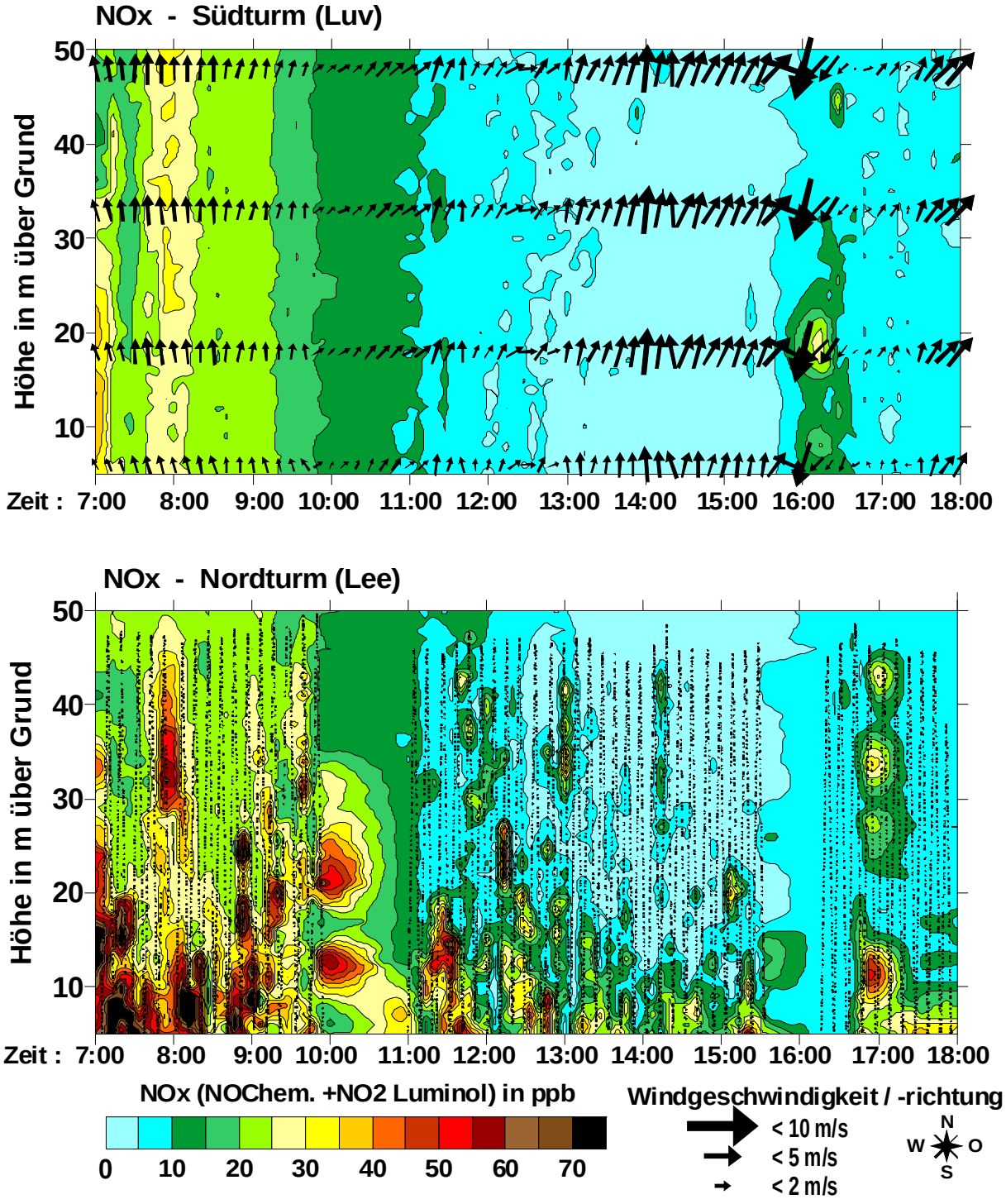
Windrichtung	Wochentag	Beginn MESZ	Ende MESZ	Dauer	Regen
Süd	Donnerstag	3. Mai, 07:00	3. Mai, 20:00	13	
Süd	Freitag	4. Ma , 06:00	4. Mai, 12:00	6	
Süd	Dienstag	8. Mai, 16:00	8. Mai, 20:00	4	
Süd	Montag	14. Mai, 06:00	14. Mai, 20:00	14	O
Süd	Dienstag	15. Mai, 06:00	15. Mai, 20:00	14	
Süd	Mittwoch	16. Mai, 06:00	16. Mai, 10:00	4	
Süd	Donnerstag	17. Mai, 06:00	18. Mai, 20:00	14	O
Süd	Freitag	18. Mai, 06:00	19. Mai, 20:00	14	O
Nord	Mittwoch	2. Mai, 06:00	2. Mai, 08:00	2	
Nord	Mittwoch	2. Mai 16:00	2. Mai, 19:00	3	
Nord	Samstag	5. Mai, 06:00	5.Mai, 20:00	14	
Nord	Sonntag	6. Mai, 12:00	6. Mai, 20:00	8	
Nord	Montag	7. Mai, 06:00	7. Mai, 20:00	14	
Nord	Donnerstag	8. Mai, 06:00	8. Mai, 10:00	4	
Nord	Donnerstag	10. Mai, 06:00	10. Mai, 12:00	6	
Nord	Freitag	11. Mai, 09:00	12. Mai, 20:00	11	
Nord	Montag	21. Mai, 06:00	21. Mai, 19:00	13	
Nord	Dienstag	22. Mai, 06:00	22. Mai, 20:00	14	
Nord	Mittwoch	23. Mai, 06:00	23. Mai, 11:00	5	
Nord	Freitag	25. Mai, 06:00	25. Mai, 10:00	4	

Anhang 16a: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der Windgeschwindigkeit und der Temperatur am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ

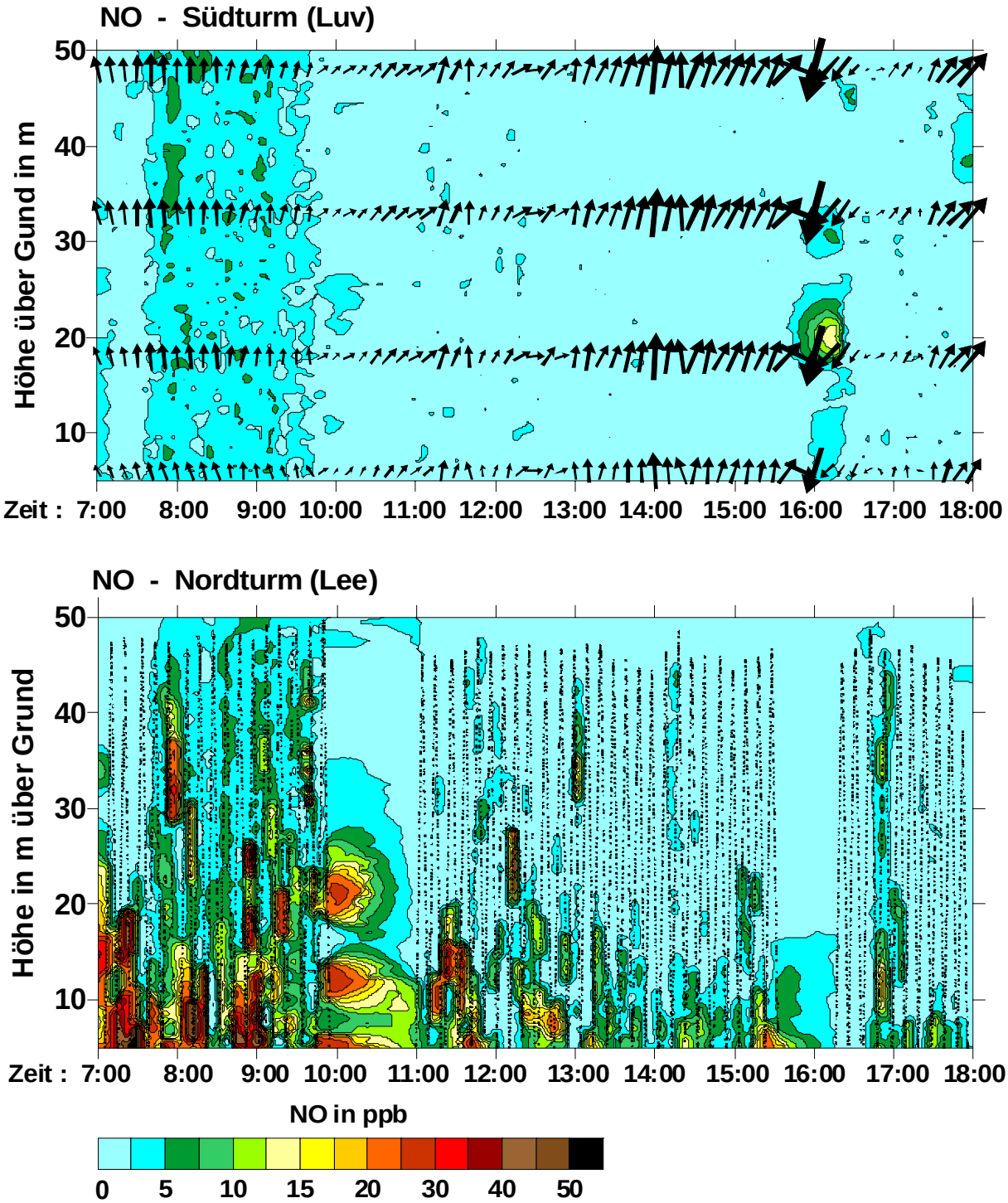




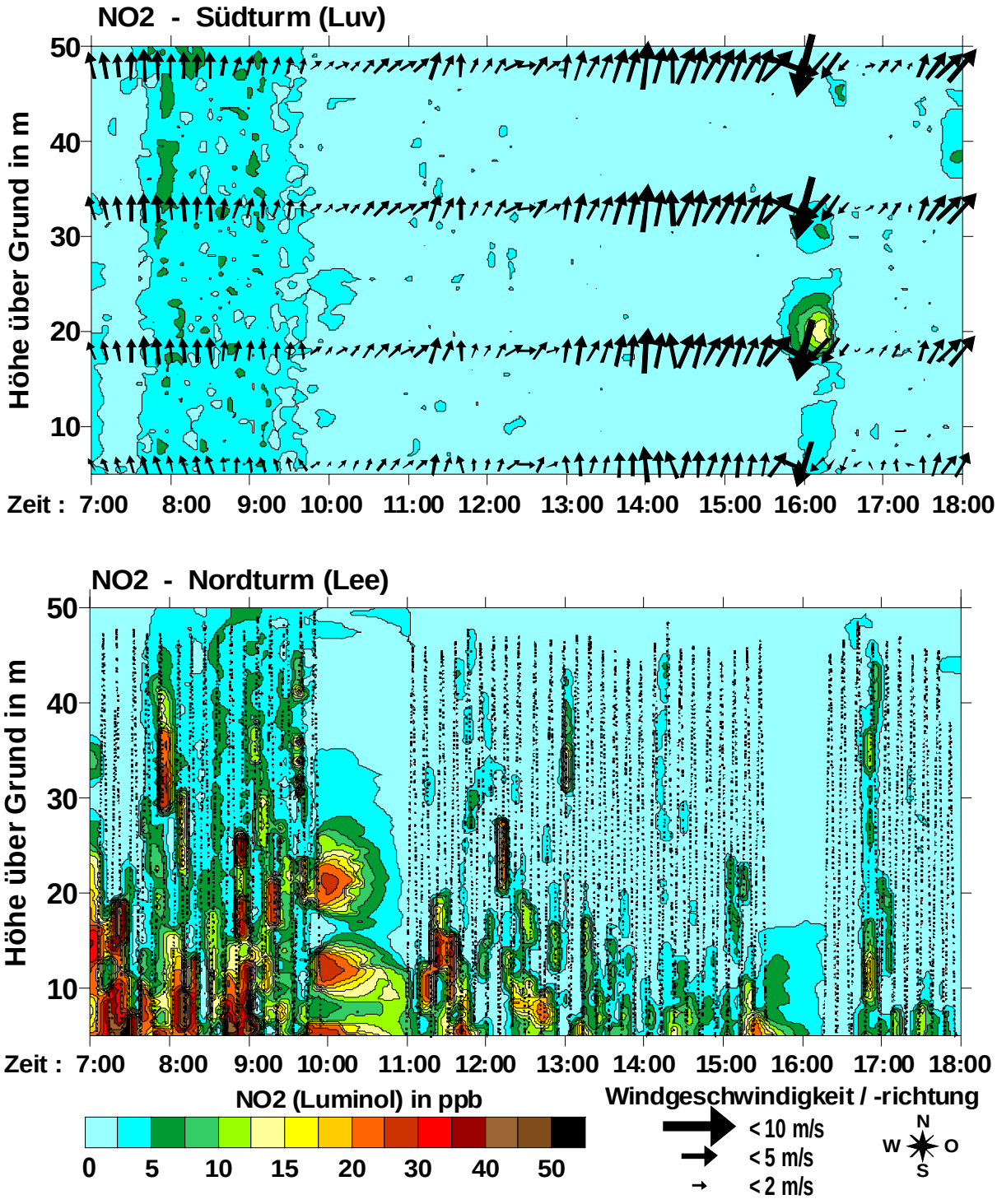
Anhang 16b: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der NO_x-Konzentrationen am Südturm (Luv) und Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ



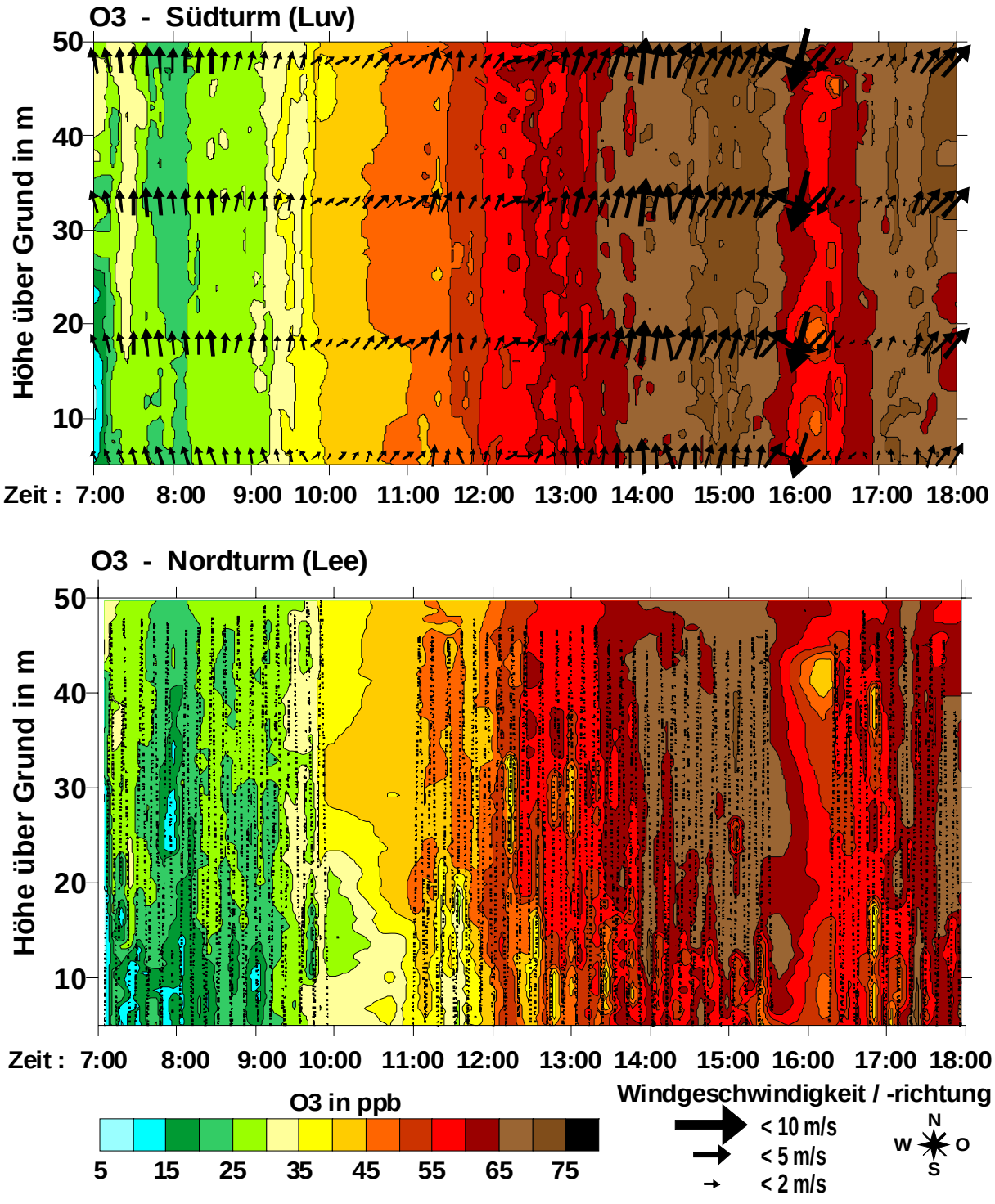
Anhang 16c: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der NO-Konzentrationen am Südturm (Luv) und Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ



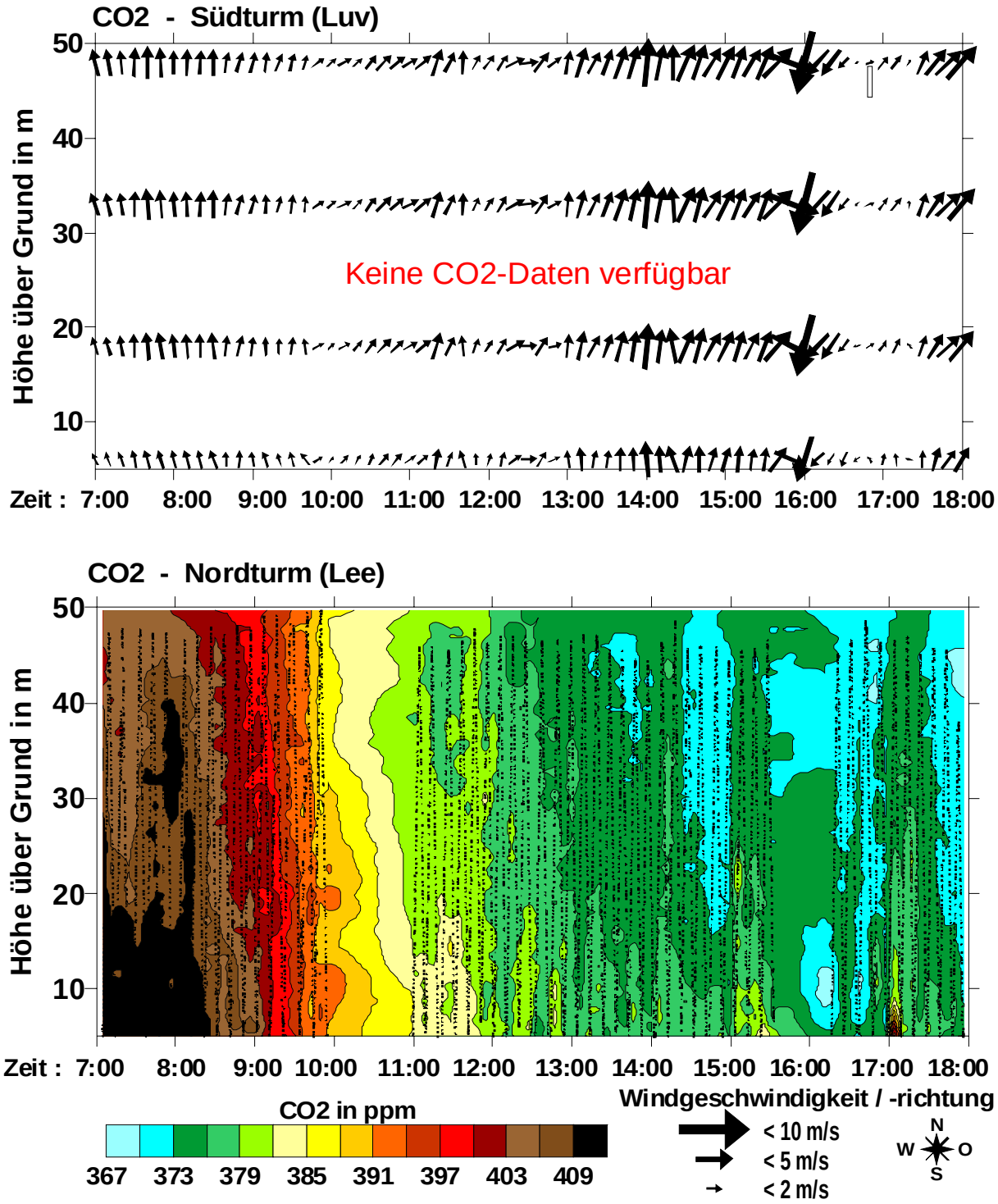
Anhang 16d: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der NO_2-Konzentrationen am Südturm (Luv) und Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ



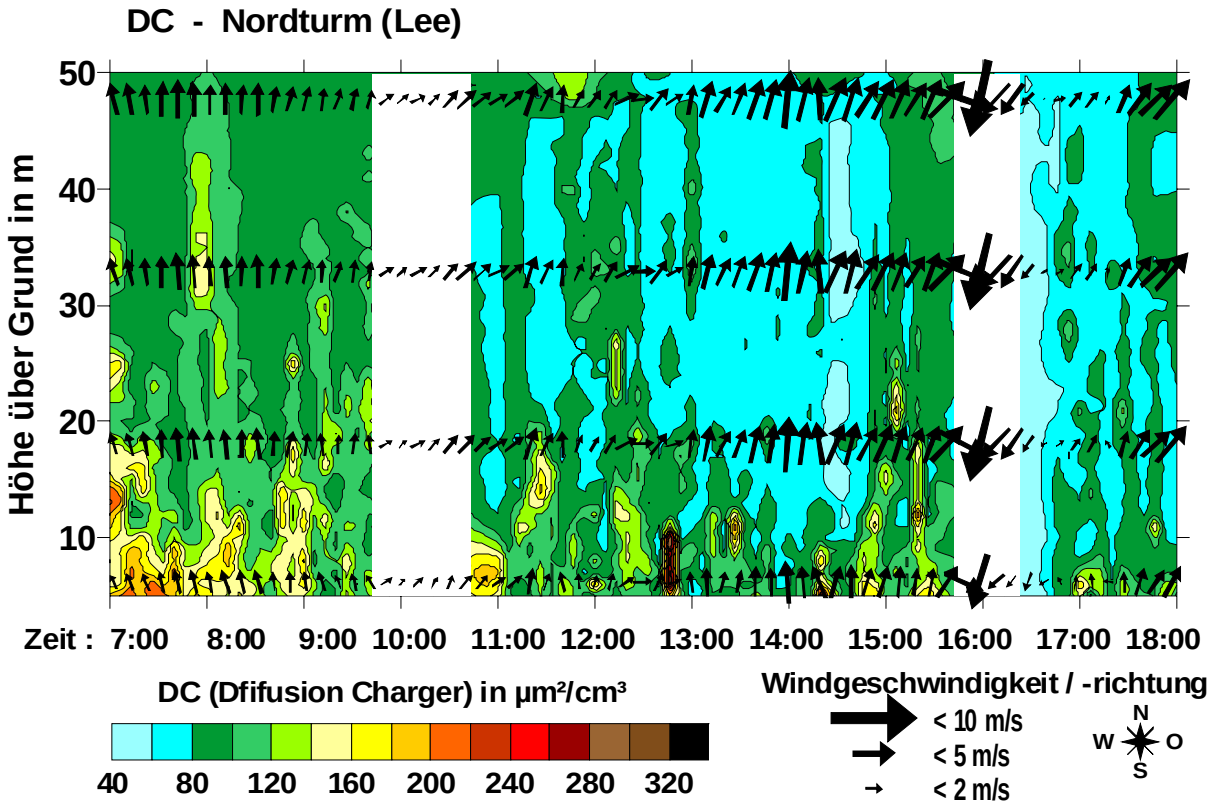
Anhang 16e: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der O_3-Konzentrationen am Südturm (Luv) und Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ



Anhang 16f: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der CO_2-Konzentrationen am Südturm (Luv) und Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ

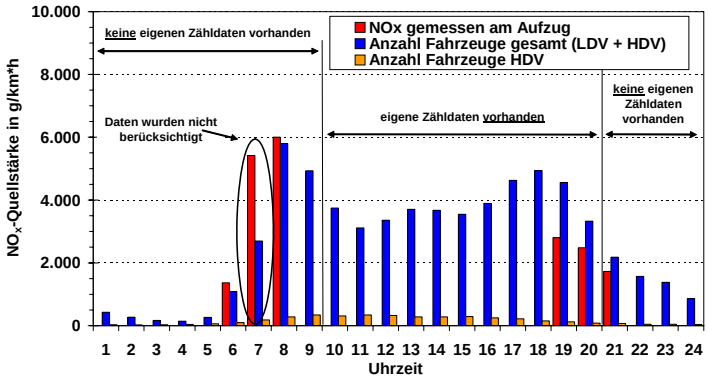


Anhang 16g: Isoplethendiagramme mit Windpfeildiagramm der Partikeloberfläche (DC – diffusion charger) am Nordturm (Lee) am 14.5.2001 von 7:00 bis 18:00 MESZ

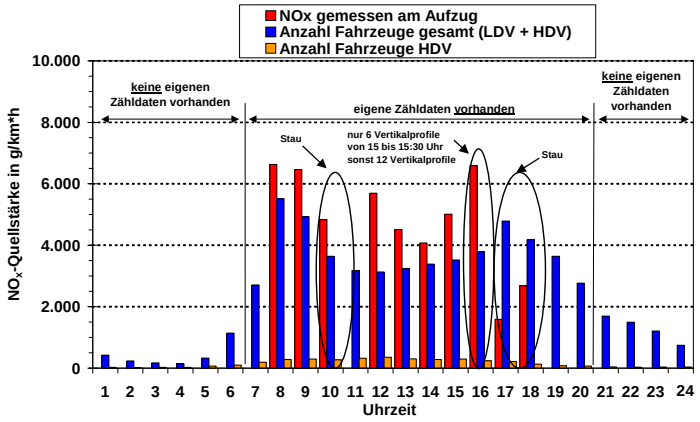


Anhang 17: NO_x-Quellstärke in g/(km*h) -> rote Balken, Fahrzeugzahlen (LDV und HDV -> blaue Balken und HDV -> orange Balken). Bereiche mit eigenen Verkehrszahlen und Bereiche ohne eigene Verkehrszahlen, d. h. hilfsweise vorhandene Verkehrszahlen abgeleitet von Daten einer weiter entfernten automatischen Zählstelle; a) SOP 3 – 8.5.2001, b) SOP 4 – 14.5.2001, c) SOP 5 – 17.5.2001; d) SOP 6 – 18.5.2001

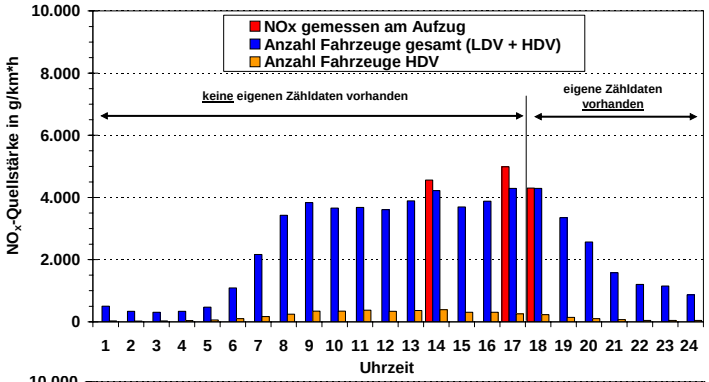
a)



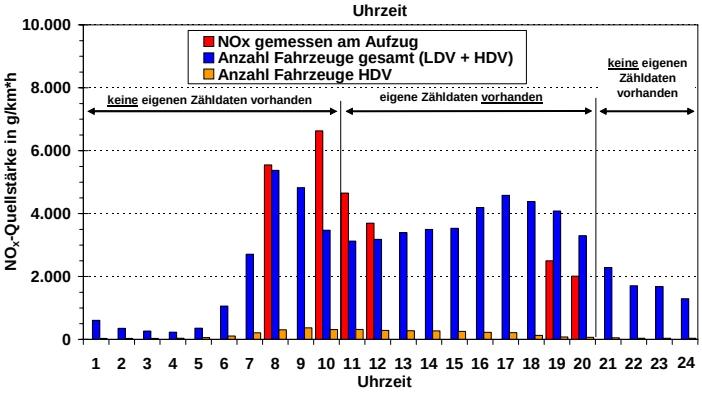
b)



c)



d)



Anhang 18: NO_x-Emissionsfaktoren für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle} berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse

a) Datenbasis: Aufzugmessungen
b) Datenbasis: Turmansaugung
c) Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Aufzugmessungen
d) Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Turmansaugung

a) Aufzugmessungen n = 20		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		0,44 ± 0,10 g/km	
Schwerverkehr - HDV		11,41 ± 1,46 g/km	
Alle Fahrzeuge (FZ)		1,14 ± 0,18 g/km	
F_{krit} =3,6*10^{-7}	F-Wert = 40,2	R^2_{mult} = 0,82	$R^2_{alle\ FZ}$ = 0,28
t_{min} = 2,1[1]	t-Wert $_{LDV}$ = 4,6	t-Wert $_{HDV}$ = 7,8	t-Wert $_{alle\ FZ}$ = 14,0

b) Turmansaugung n = 122		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		0,68 ± 0,12 g/km	
Schwerverkehr - HDV		6,86 ± 1,57 g/km	
Alle Fahrzeuge (FZ)		1,08 ± 0,21 g/km	
F_{krit} = 5,3*10^{-6}	F-Wert = 13,5	R^2_{mult} = 0,18	$R^2_{alle\ FZ}$ = 0,09
t_{min} = 1,66[1]	t-Wert $_{LDV}$ = 4,4	t-Wert $_{HDV}$ = 5,9	t-Wert $_{alle\ FZ}$ = 21,5

c) Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Aufzugmessungen: n = 20		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		0,55 ± 0,02 g/km	
Schwerverkehr - HDV		5,63 ± 0,33 g/km	
Alle Fahrzeuge (FZ)		0,84 ± 0,03 g/km	
F_{krit} = 5,7*10^{-14}	F-Wert = 299	R^2_{mult} = 0,99	$R^2_{alle\ FZ}$ = 0,62
t_{min} = 2,1[1]	t-Wert $_{LDV}$ = 25,4	t-Wert $_{HDV}$ = 17,2	t-Wert $_{alle\ FZ}$ = 28,2

d) Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Turmansaugung: n = 122		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		0,59 ± 0,02 g/km	
Schwerverkehr - HDV		5,61 ± 0,31 g/km	
Alle Fahrzeuge (FZ)		0,92 ± 0,02 g/km	
F_{krit} = 8,4*10^{-43}	F-Wert = 244	R^2_{mult} = 0,80	$R^2_{alle\ FZ}$ = 0,41
t_{min} = 1,66[1]	t-Wert $_{LDV}$ = 26,4	t-Wert $_{HDV}$ = 18,3	t-Wert $_{alle\ FZ}$ = 57,6

[1] Bei einer Wahrscheinlichkeit von 95%

Eine weitere statistische Kenngröße, die bei einer Multiplen Regressionsanalyse eine wichtige Rolle spielt, ist u. a. der F-Test. So könnte es sein, dass der Wert des Bestimmtheitsmaßes R^2 sich nur aufgrund zufälliger Einflüsse ergeben hat und eine Veränderung der Schätzwerte in Wirklichkeit gar nicht auf eine lineare Veränderung der unabhängigen Variablen zurückzuführen ist. Vereinfacht gesagt, ermöglichen die Ermittlung des F-Wertes und der Vergleich mit Tabellenwerten eine Beurteilung der Regressionsgleichung als Ganzes mit einer vorher festgelegten Wahrscheinlichkeit. Üblicherweise werden hierfür 0,95 bzw. eine Wahrscheinlichkeit von 95 % gewählt. Die genauen Tabellenwerte lassen sich über die Zahl der Freiheitsgrade und die Zahl der erklärenden Variablen ermitteln. Unter Freiheitsgraden versteht man dabei die Differenz zwischen der Zahl der Beobachtungen und der Zahl der erklärenden Variablen abzüglich eins. Ist also der berechnete F-Wert größer als der Tabellenwert, so kann davon ausgegangen werden, dass mit der angenommenen Wahrscheinlichkeit die Regressionsgleichung als Ganzes statistische Gültigkeit besitzt [161]. Im vorliegenden Fall lagen die berechneten F-Werte für die multiple Regressionsanalyse mit 40,2 weit über dem kritischen F-Wert von $3{,}6*10^{-7}$.

Wenn die Prüfung der gesamten Regressionsfunktion durch den F-Test nicht zur Verwerfung des Modells führt, so kann, wie im Folgenden geschehen, eine Prüfung der einzelnen Regressionskoeffizienten vorgenommen werden. Hierfür eignet sich der sogenannte t-Test. Die in der multiplen Regressionsanalyse ermittelten Regressionskoeffizienten B_i lassen sich durch den t-Test auf Signifikanz prüfen. Das Signifikanzniveau wurde mit einer Vertrauenswahrscheinlichkeit von 0,95, also 95 %, für die ermittelten Regressionskoeffizienten festgelegt. Für den vorliegenden Fall mit 20 Einzelergebnissen ergibt sich ein Student-Faktor t von 2,1, der überschritten werden sollte. Die Berechnungen für die multiple Regressionsanalyse ergaben Werte von 7,8 (HDV) und 4,5 (LDV). Nach Anwendung des F-Tests und des t-Tests kann mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit von einem linearen Zusammenhang für die Ergebnisse der multiplen Regressionsanalyse ausgegangen werden.

Die t-Werte und der F-Wert liegen sehr weit entfernt vom notwendigen Minimum- bzw. dem kritischen Wert. Somit ist ein sehr guter Zusammenhang zwischen den Einzelwerten und den berechneten Emissionsfaktoren gegeben. Die Qualität der Berechnungsergebnisse ist sehr gut. Der berechnete Emissionsfaktor für den Schwerverkehr EF_{HDV} ist mit 5,63 g/km ungefähr zehn Mal höher als der Emissionsfaktor für den Leichtverkehr EF_{LDV} mit 0,55 g/km. Der Emissionsfaktor für die gesamte Flotte (alle Fahrzeuge) EF_{Alle} liegt bei 0,84 g/km.

Anhang 19: CO-Emissionsfaktoren und statistische Kenngrößen der Multiplen Regressionsanalyse

a) Datenbasis: Turmansaugung

a) Turmansaugung **n = 121**		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug** **in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		*3,13 ± 0,30 g/km*	
Schwerverkehr - HDV		*5,80 ± 3,98 g/km*	
Alle Fahrzeuge		2,62 ± 0,13 g/km	
$F_{krit} = 1{,}82*10^{-3}$	F-Wert = 6,66	$R^2_{mult} = 0{,}1$	$R^2_{alle\ FZ} = 0{,}07$
$t_{min} = 1{,}66$[1]	t-Wert $_{LDV} = 6{,}6$	t-Wert $_{HDV} = -1{,}64$	t-Wert $_{alle\ FZ} = 21{,}3$

[1] Bei einer Wahrscheinlichkeit von 95%

Anhang 20: Zusammenfassung der Konzentrationen in µg/Nm³, welche am Boden und in unterschiedlichen Höhen am Nordturm (N) und Südturm (S) im Luv und Lee der Autobahn A 656 am 17. Mai 2001 für die Komponenten C_4-C_5 gemessen wurden

Zeitintervall	**13:00- 16:30 MESZ**								**16:30- 20:15 MESZ**						
Höhe am Nord- (N) bzw. Südturm (S)	**N-05m**	**N-17m**	**N-27m**	**N-37m**	**N-47m**	**S-05m**	**S-27m**	**S47m**	**N-05m**	**N-17m**	**N-27m**	**N-37m**	**S-05m**	**S-27m**	**S-47m**
i-Butan	0,267	0,022	0,019	0,020	0,017	0,020	0,020	0,020	0,347	0,021	0,021	0,019	0,020	0,022	0,011
i-Buten, 1-Buten	0,323	0,346	0,303	0,325	0,275	0,316	0,314	0,325	0,451	0,319	0,322	0,287	0,297	0,324	0,171
1,3-Butadien, n-Butan	0,483	0,312	0,273	0,293	0,248	0,285	0,283	0,293	0,523	0,342	0,342	0,342	0,318	0,347	0,183
trans-2-Buten	0,026	0,047	0,041	0,044	0,038	0,043	0,043	0,044	0,043	0,047	0,048	0,042	0,044	0,048	0,025
cis-2-Buten	0,028	0,060	0,052	0,056	0,048	0,055	0,054	0,056	0,046	0,044	0,045	0,040	0,041	0,045	0,024
i-Pentan	0,904	0,120	0,105	0,113	0,096	0,110	0,109	0,113	1,067	0,080	0,081	0,072	0,074	0,081	0,043
n-Pentan	0,443	0,399	0,349	0,374	0,317	0,364	0,362	0,375	0,368	0,668	0,675	0,600	0,621	0,678	0,357
Isopren, trans-2-Penten	0,128	0,051	0,045	0,048	0,041	0,047	0,047	0,048	0,196	0,190	0,192	0,171	0,177	0,193	0,102
cis-2-Penten	0,012	0,054	0,048	0,051	0,043	0,050	0,049	0,051	0,074	0,127	0,128	0,114	0,118	0,129	0,068
2-Methylpentan	0,095	0,049	0,042	0,046	0,039	0,044	0,044	0,046	0,118	0,044	0,045	0,040	0,041	0,045	0,024
3-Methylpentan	0,119	0,275	0,240	0,258	0,219	0,251	0,249	0,258	0,136	0,286	0,289	0,257	0,266	0,290	0,153
Benzol	0,320	0,195	0,170	0,183	0,155	0,222	0,221	0,229	0,382	0,213	0,215	0,191	0,198	0,216	0,114
Cyclohexan	0,087	0,053	0,047	0,050	0,042	0,081	0,081	0,084	0,113	0,096	0,097	0,086	0,090	0,098	0,051
Toluol	0,688	0,420	0,367	0,394	0,334	0,383	0,381	0,394	0,893	0,450	0,455	0,405	0,419	0,457	0,241
Ethylbenzol	0,135	0,124	0,108	0,116	0,099	0,113	0,112	0,116	0,191	0,130	0,131	0,116	0,121	0,131	0,148
o-Xylol	0,131	0,080	0,070	0,075	0,064	0,057	0,057	0,059	0,173	0,074	0,075	0,067	0,069	0,075	0,040
m-, p-Xylol	0,349	0,213	0,186	0,200	0,169	0,166	0,166	0,171	0,476	0,240	0,242	0,216	0,187	0,204	0,108

Anhang 21a: Berechnete VOC-Quellstärken in g/(km*h), mittlere Verkehrsdichte und Schwerverkehrsanteil (HDV) am 08., 14., 17. und 18.05.2001 – Teil 1

VOC-Quellstärken in g/(km*h)	**08.05.2001 Mittwoch (Wochentag)**				**14.05.2001 Donnerstag (Wochentag)**			**17.05.2001 Samstag (Wochenende)**		**18.05.2001 Sonntag (Wochenende)**		
MESZ	**04:45-07:45**	**08:00-10:00**	**17:00-19:00**	**20:00-22:00**	**8:00-10:00**	**10:15-12:15**	**12:30-14:30**	**13:00-16:30**	**16:30-20:15**	**12:00-16:00**	**16:00-18:00**	**18:00-20:00**
Mittlere Verkehrs-dichte	**3194 ± 2398**	**4339 ± 839**	**4749 ± 269**	**1874 ± 433**	**4342 ± 962**	**3180 ± 71**	**3384 ± 137**	**4261 ± 832**	**4675 ± 999**	**3655 ± 367**	**4483 ± 143**	**3689 ± 554**
Schwerverkehrs-anteil - HDV	**6,8 ± 2,0**	**7,6 ± 1,0**	**2,9 ± 0,3**	**2,9 ± 0,4**	**6,7 ± 0,8**	**10,6 ± 1,1**	**8,7 ± 0,5**	**7,7 ± 2,3**	**3,3 ± 0,6**	**7,1 ± 1,3**	**3,8 ± 1,3**	**2,0 ± 0,2**
i-Butan	23,96 ± 7,19	17,84 ± 5,35	-	-	4,46 ± 1,34	35,39 ± 10,62	28,02 ± 8,41	15,58 ± 4,67	27,62 ± 8,29	16,90 ± 5,07	22,26 ± 6,68	6,24 ± 1,87
iso-/1-Butan	17,79 ± 5,37	7,30 ± 2,19	-	-	-	-	-	5,45 ± 1,64	3,12 ± 0,94	4,20 ± 1,26	-	-
1,3-Butadien/ n-Butan	63,04 ± 18,91	37,30 ± 11,19	-	-	-	-	-	28,79 ± 8,64	33,75 ± 10,13	34,96 ± 10,49	-	18,09 ± 5,43
i-Pentan	58,82 ± 17,65	50,11 ± 15,03	-	-	131,74 ± 39,52	172,76 ± 51,83	135,68 ± 40,70	38,26 ± 11,48	51,80 ± 15,54	43,68 ± 13,10	58,39 ± 17,52	59,80 ± 17,94
Isopren/trans-2-Penten	-	-	20,06 ± 6,02	-	34,29 ± 10,29	-	18,26 ± 5,48	-	-	7,69 ± 2,31	13,63 ± 4,09	12,49 ± 3,75
cis-2-Penten	55,38 ± 16,61	54,54 ± 16,36	-	-	13,76 ± 4,13	27,65 ± 8,30	-	-	-	3,78 ± 1,13	-	4,04 ± 1,21
2-Methylpentan	16,40 ± 4,92	11,25 ± 3,38	30,36 ± 9,11	-	32,52 ± 9,76	18,23 ± 5,47	12,18 ± 3,65	3,30 ± 0,99	26,36 ± 7,91	-	9,36 ± 2,81	25,45 ± 7,64
3-Methylpentan	6,18 ± 1,85	2,92 ± 0,88	4,86 ± 1,46	4,89 ± 1,47	11,32 ± 3,39	-	2,23 ± 0,67	5,47 ± 1,64	8,82 ± 2,65	-	8,30 ± 2,49	-
Benzol	26,86 ± 8,06	17,63 ± 5,29	34,17 ± 10,25	26,69 ± 8,01	38,35 ± 11,50	34,74 ± 10,72	31,57 ± 9,47	20,50 ± 6,15	30,11 ± 9,03	45,24 ± 13,57	47,73 ± 14,32	43,11 ± 12,93
Cyclohexan	2,48 ± 0,74	-	0,63 ± 0,19	-	2,90 ± 0,87	-	2,32 ± 0,70	-	5,70 ± 1,71	-	1,37 ± 0,41	-
3-Methylhexan	5,54 ± 1,66	2,17 ± 0,65	7,55 ± 2,27	4,14 ± 1,24	10,77 ± 3,23	3,17 ± 0,95	8,23 ± ,47	2,62 ± 0,79	-	8,95 ± 2,68	12,16 ± 3,65	7,74 ± 2,32

Anhang 21b: Berechnete VOC-Quellstärken in g/(km*h), mittlere Verkehrsdichte und Schwerverkehrsanteil (HDV) am 08., 14., 17. und 18.05.2001 – Teil 2 (Fortsetzung)

VOC-Quellstärken in g/(km*h)	**08.05.2001 Mittwoch (Wochentag)**				**14.05.2001 Donnerstag (Wochentag)**			**17.05.2001 Samstag (Wochenende)**		**18.05.2001 Sonntag (Wochenende)**		
MESZ	**04:45-07:45**	**08:00-10:00**	**17:00-19:00**	**20:00-22:00**	**8:00-10:00**	**10:15-12:15**	**12:30-14:30**	**13:00-16:30**	**16:30-20:15**	**12:00-16:00**	**16:00-18:00**	**18:00-20:00**
Mittlere Verkehrs-dichte	**3194 ± 2398**	**4339 ± 839**	**4749 ± 269**	**1874 ± 433**	**4342 ± 962**	**3180 ± 71**	**3384 ± 137**	**4261 ± 832**	**4675 ± 999**	**3655 ± 367**	**4483 ± 143**	**3689 ± 554**
Schwerverkehrs-anteil - HDV	**6,8 ± 2,0**	**7,6 ± 1,0**	**2,9 ± 0,3**	**2,9 ± 0,4**	**6,7 ± 0,8**	**10,6 ± 1,1**	**8,7 ± 0,5**	**7,7 ± 2,3**	**3,3 ± 0,6**	**7,1 ± 1,3**	**3,8 ± 1,3**	**2,0 ± 0,2**
2,2,4-Trimethyl-pentan	5,53 ± 1,66	1,28 ± 0,38	7,90 ± 2,37	7,82 ± 2,35	21,84 ± 6,55	23,12 ± 6,94	7,73 ± ,32	7,55 ± 2,27	13,68 ± 4,10	12,63 ± 3,79	19,32 ± 5,79	11,85 ± 3,55
n-Heptan	2,78 ± 0,83	1,50 ± 0,45	3,94 ± 1,18	6,56 ± 1,97	2,07 ± 0,62	3,94 ± 1,18	3,24 ± 0,97	0,52 ± 0,16	4,63 ± 1,39	-	7,40 ± 2,22	6,12 ± 1,84
2,3,4-Trimethyl-pentan	-	-	-	1,94 ± 0,58	4,30 ± 1,29	-	-	-	-	-	-	-
Toluol	59,86 ± 17,96	40,86 ± 12,26	67,90 ± 20,37	58,83 ±17,65	138,92 ± 41,68	62,18 ± 18,65	58,79 ± 17,64	38,14 ± 11,44	76,55 ± 22,96	74,20 ± 22,26	100,08 ± 30,02	77,58 ± 23,27
n-Oktan	76,28 ± 22,88	30,93 ± 9,30	-	-	17, 80 ± 5,34	-	-	-	-	9,21 ± 2,76	-	-
Ethylbenzol	10,48 ± 3,14	14,61 ± 4,38	9,67 ± 2,90	18,90 ± 5,67	25,65 ± 7,70	11,29 ± 3,39	10,54 ± 3,16	7,19 ± 2,16	12,84 ± 3,85	16,95 ± 5,09	23,70 ± 7,11	16,35 ± 4,91
m-/p-Xylol	31,05 ± 9,3	22,92 ± 6,88	35,53 ± 10,6	38,02 ± 11,41	71,10 ± 21,33	37,53 ± 11,26	33,52 ± 10,06	21,71 ± 6,51	46,98 ± 14,09	45,14 ± 13,54	59,76 ± 17,93	47,10 ± 14,13
o-Xylol	9,16 ± 2,75	-	12,20 ± 3,66	10,97 ± 3,29	23,55 ± 7,07	12,29 ± 3,69	-	8,69 ± 2,61	17,98 ± 5,39	15,28 ± 4,58	26,83 ± 8,05	15,26 ± 4,58
1,2,4-Trimethyl-benzol/Dekan	-	-	-	-	44,94 ±13,48	-	-	7,28 ± 2,18	13,32 ± 4,00	-	-	-

Anhang 22: Partikelemissionsfaktoren pro Fahrzeug (FZ) und Standardabweichung für die aktive Partikeloberfläche (aus DC-Messungen), die Partikelanzahl (N_{10}) und die Partikelvolumina ($V_{0,25}$, $V_{0,64}$ und V_1) pro Fahrzeug getrennt nach Leichtverkehr (LDV), Schwerverkehr (HDV) und alle Fahrzeuge gemeinsam; statistische Kenngrößen F_{krit}, F-Wert, t_{min} und t-Wert; n - Anzahl der Stundenmittelwerte, die der Berechnung zugrunde lagen; *Kursiv: Werte mussten verworfen werden*

Partikeloberfläche in cm²/km: n = 18		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		$EF_{LDV} = 8.100 \pm 1.700$	
Schwerverkehr - HDV		$EF_{HDV} = 69.000 \pm 23.700$	
alle Fahrzeuge		$EF_{Alle} = 12.500 \pm 3.300$	
$F_{krit} = 9{,}4*10^{-2}$	F-Wert = 2,77	$R^2 = 0{,}26$	$R^2_{\text{alle FZ}} = 0{,}18$
$t_{min} = 1{,}75$	t-Wert $_{LDV} = 4{,}7$	t-Wert $_{HDV} = 2{,}9$	t-Wert $_{\text{alle FZ}} = 16{,}4$
Partikelanzahl N_{10} in Partikel/km: n = 12		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		$EF_{LDV} = 1{,}22 * 10^{14} \pm 0{,}49 * 10^{14}$	
Schwerverkehr - HDV		$EF_{HDV} = 7{,}79 * 10^{14} \pm 6{,}32 * 10^{14}$	
alle Fahrzeuge		$EF_{Alle} = 1{,}80 * 10^{14} \pm 0{,}42 * 10^{14}$	
$F_{krit} = 0{,}31$	F-Wert = 1,33	$R^2 = 0{,}21$	$R^2_{\text{alle FZ}} = 0{,}2$
$t_{min} = 1{,}81$	t-Wert $_{LDV} = 3{,}2$	t-Wert $_{HDV} = 13{,}6$	t-Wert $_{\text{alle FZ}} = 13{,}6$
Partikelvolumen $V_{0,25}$ in cm³/km: n = 12		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		$EF_{LDV} = 0{,}03 \pm 0{,}02$	
Schwerverkehr - HDV		$EF_{HDV} = 0{,}41 \pm 0{,}26$	
alle Fahrzeuge		$EF_{Alle} = 0{,}06 \pm 0{,}04$	
$F_{krit} = 0{,}22$	F-Wert = 1,77	$R^2 = 0{,}28$	$R^2_{\text{alle FZ}} = 0{,}0006$
$t_{min} = 1{,}81$	t-Wert $_{LDV} = 1{,}53$[1]	t-Wert $_{HDV} = 1{,}58$[1]	t-Wert $_{\text{alle FZ}} = 10{,}0$
Partikelvolumen $V_{0,64}$ in cm³/km: n = 12		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV[2]		*$EF_{LDV} = 0{,}03 \pm 0{,}02$*	
Schwerverkehr – HDV[2]		*$EF_{HDV} = 0{,}41 \pm 0{,}26$*	
alle Fahrzeuge		$EF_{Alle} = 0{,}07 \pm 0{,}02$	
$F_{krit} = 0{,}06$	F-Wert = 3,93	$R^2 = 0{,}44$	$R^2_{\text{alle FZ}} = 0{,}42$
$t_{min} = 1{,}81$	t-Wert $_{LDV} = 3{,}3$	t-Wert $_{HDV} = 0{,}8$[2]	t-Wert $_{\text{alle FZ}} = 14{,}2$
Partikelvolumen V_1 in cm³/km: n = 12		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr – LDV[2]		*$EF_{LDV} = 0{,}09 \pm 0{,}02$*	
Schwerverkehr – HDV[2]		*$EF_{HDV} = 0{,}15 \pm 0{,}28$*	
alle Fahrzeuge		$EF_{Alle} = 0{,}09 \pm 0{,}02$	
$F_{krit} = 0{,}06$	F-Wert = 3,93	$R^2 = 0{,}59$	$R^2_{\text{alle FZ}} = 0{,}59$
$t_{min} = 1{,}81$	t-Wert $_{LDV} = 4{,}2$	t-Wert $_{HDV} = 0{,}6$²	t-Wert $_{\text{alle FZ}} = 16{,}9$

[1] t-Wert liegt knapp unterhalb von t_{min}; Emissionsfaktor EF_{HDV} ist nur mit einer ca. 90 %-igen Wahrscheinlichkeit signifikant, wird aber trotzdem betrachtet und nicht verworfen

[2] EF_{LDV} und EF_{HDV} unterscheiden sich nicht stark genug, als dass eine Aufteilung möglich wäre. Überprüfung mit t-Test ergab zu geringen t-Wert -> EF_{LDV} und EF_{HDV} müssen verworfen werden, nur Angabe von EF_{Alle} möglich

Anhang 23: Rußmesstechnik und Qualitätssicherung für Rußmessungen

Aethalometern liegt ein optisches Messverfahren zu Grunde, weshalb der Messwert von Kohlenstoff als BC (black carbon) angegeben wird. Außerdem basieren Aethalometern auf der Lasertransmissionsmethode. Partikel werden auf der Oberfläche eines Quarzfaserfilterbandes abgeschieden. Die Messung erfolgt durch die Abschwächung eines Laserstrahls (sichtbares Licht im Bereich von 530 nm) beim Durchtritt durch die Partikelschicht. Dabei wird ausgenutzt, dass der Absorptionskoeffizient von elementarem Kohlenstoff im sichtbaren Licht um mehrere Größenordnungen über dem der anderen im Abgas und der Umgebung vorkommenden Aerosolbestandteile (organischer Kohlenstoff, Sulfat, Wasser etc.) liegt. Allerdings können Streuverluste von nicht kohlenstoffhaltigen Partikeln zu Mehrbefunden führen, weshalb stets eine vom Standort [224] und der Jahreszeit [225] abhängige Kalibrierung des Aethalometers durch Vergleich mit einer Referenzmethode vorgenommen werden muss. Zudem können Mehrbefunde durch Mehrfachreflexionen des Laserstrahls im Filtermaterial hervorgerufen werden. Auch diese Mehrbefunde lassen sich durch einen Vergleich mit Referenzmethoden kompensieren. Eine quasi-kontinuierliche Messweise kommt zustande, indem nach Erreichen der vorgegebenen Schwärzung das Filterband automatisch weitertransportiert wird und anschließend der nächste Messwert ermittelt werden kann. Im Projekt BAB II wurden auf diese Art und Weise die BC-Konzentrationen im Luv und Lee der Autobahn in einem Zeitintervall von 5 Minuten ermittelt.

Die in Deutschland gültige Referenzmethode für Rußmessungen ist die sehr aufwändige thermische Messmethode der Coulometrie, die in der VDI-Richtlinie 2465, Blatt 1 beschrieben wird [226]. Der auf Glas- oder Quarzfaserfilter abgeschiedene Kohlenstoff wird in zwei Verfahrensschritten durch Flüssigextraktion und Thermodesorption in EC und OC getrennt. Durch diese zwei Schritte lässt sich der OC vom Filtermaterial lösen, der EC bleibt jedoch daran haften. Die beiden Fraktionen werden nacheinander in einer Sauerstoffatmosphäre ver-

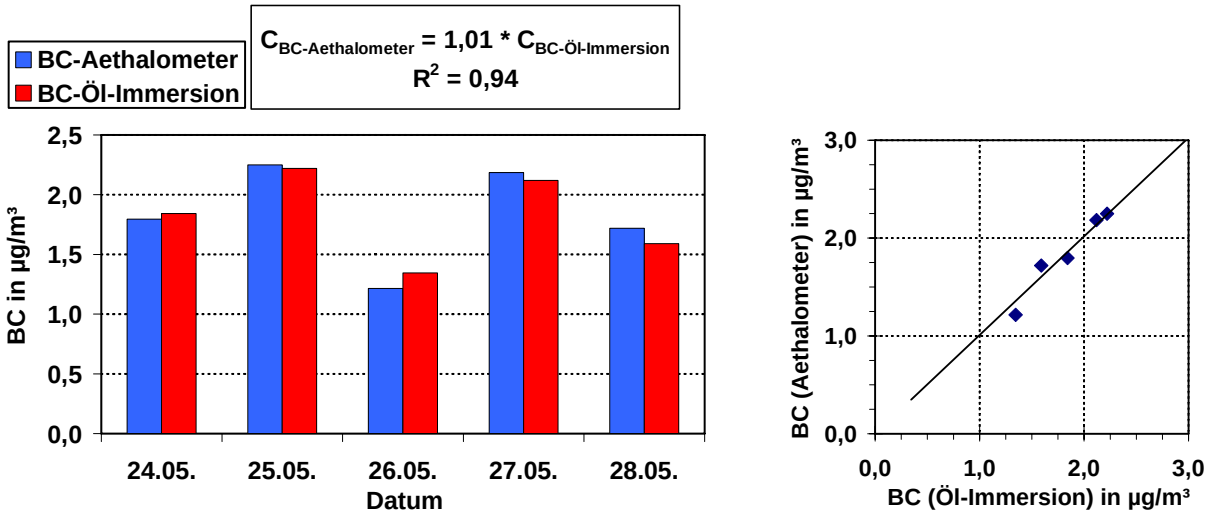


Bild A23.1: Vergleich von 24-h-Messwerten bei BC-Parallelmessungen mit einem Aethalometer und einer PM_{10}-Filterprobensammlung mit anschließender BC-Analyse (Öl-Immersion)

brannt und das entstehende CO_2, das ein Maß für die EC- bzw. OC-Konzentration in der Probe ist, durch coulometrische Titration bestimmt.

Eine weitere mögliche EC-Analysemethode ist die Öl-Immersionsmethode. Sie wurde ausführlich von Ballach beschrieben, mit der Coulometrie-Referenzmethode verglichen und dahingehend verbessert, dass sie als leistungsfähige Analysemethode für die Bestimmung von Ruß in der Luftreinhaltung empfohlen wurde [191]. Der schon erwähnte Einfluss durch Streuverluste an nicht kohlenstoffhaltigen Partikeln und Verluste durch Mehrfachreflexionen an Filterbestandteilen bei optischen Messverfahren können durch die Öl-Immersionsmethode auf ein Minimum reduziert werden. Dies geschieht durch Einbettung der Filter in ein Immersionsöl. Wenn dieses Öl einen ähnlichen Brechungsindex wie das Filtermaterial und die meisten der nicht EC-haltigen Partikel besitzt, werden diese Partikel und das Filtermaterial für optische Verfahren sozusagen unsichtbar gemacht. Auf diese Weise können Mehrbefunde durch Streueffekte und Mehrfachreflexionen nahezu vollständig vermieden werden. Folglich eignet sich die Öl-Immersionsmethode sehr gut zur Bestimmung des EC-Gehalts von Filterproben. Voraussetzung ist, dass geeignete Filtermaterialien aus Glas- oder Quarzfaser verwendet werden. Diese Analysemethode wird standardmäßig vom Deutschen Wetterdienst (DWD) in Freiburg, Abteilung Medizin-Meteorologie, eingesetzt. Dort wurden einige der in BAB II mit Hilfe von Kleinfiltergeräten (LVS3 – Fa. Leckel) mit PM_{10}-Abscheidern (Referenzmethode zur Bestimmung von PM_{10} – [227]) beladene Filterproben auf ihre EC-Konzentrationen analysiert.

Im Rahmen der Qualitätssicherung innerhalb von BAB II wurden Parallelmessungen durchgeführt. Über einen Zeitraum von fünf Tagen wurden vom 24. bis 28. Mai 2001 fünf 24-h-Proben PM_{10} mit Hilfe eines Kleinfiltergeräts auf Glasfaserfilter (GF 9 - Fa. Schleicher & Schüll) gesammelt und die BC-Konzentrationen anschließend mit der Öl-Immersionsmethode und einem optischen Bildanalyseverfahren bestimmt. Parallel dazu wurden mit einem der beiden Aethalometer Messungen vorgenommen, welches über die gesamte Messperiode an einer der Turmbasen im Einsatz war. Die Konzentrationen schwankten, wie in Bild A23.1 (links) gezeigt, zwischen 1,2 µg/m³ BC am 26.05. und 2,3 µg/m³ BC am 25.05. Die Abweichungen der Werte beider BC-Analysemethoden sind sehr gering, was sich in einem Korrelationsfaktor von 1,01 und einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0{,}94$ widerspiegelt. Es stellt sich nun die Frage, wie viel des gemessenen BC tatsächlich aus den Abgasen der Fahrzeuge stammt und wie viel dem Reifenabrieb - Reifen bestehen immerhin bis zu 30 % [228], [28] aus Ruß - und der Wiederaufwirbelung dieser Ruß-Partikel zuzuschreiben ist. Rauterberg-Wulff [229] hat durch Messungen in einem Straßentunnel in Berlin nachgewiesen, dass die Mindestgröße der vom Reifenabrieb stammenden Russpartikel 4 µm beträgt. Zudem stellte sie fest, dass weniger als 10 % der gemessenen PM_{10}-Rußimmissionen im Tunnel vom Reifenabrieb und der Aufwirbelung stammen und somit mehr als 90 % dem Dieselruß zugerechnet werden können. Im Abstand von 60 bzw. 84 m von einer frei angeströmten Autobahn, wie

dies im Projekt BAB II der Fall war, dürfte der Rußanteil vom Reifenabrieb noch geringer sein, da die Abriebpartikel nicht ständig wiederaufgewirbelt werden und zu höheren Konzentrationen im Straßenraum führen, wie dies in einer städtischen Straßenschlucht oder noch sogar verstärkt in einem Tunnel der Fall ist. Schultz [230] und andere Autoren [175], [189] kamen zu dem Schluss, dass der Großteil der vom Reifenabrieb stammenden Rußpartikel im Korngrößenbereich von 10 bis 50 µm zu finden ist. Somit kann davon ausgegangen werden, dass in den PM_{10}-Proben, die mit der Öl-Immersionsmethode analysiert wurden, nur ein geringer Anteil Rußpartikel vom Reifenabrieb enthalten war und der Großteil von den Autoabgasen stammt. Außerdem ist stark zu vermuten, dass Reifenabrieb an einem geraden Autobahnabschnitt, auf dem meist mit konstanter Geschwindigkeit gefahren wird, eine geringere Rolle spielt als auf einer innerstädtischen Straße, auf der die Fahrzeuge ständig beschleunigen und abgebremsen. Dies wurde u. a. auch von Rauterberg-Wulff festgestellt [195]. Des Weiteren wurde von Rauterberg-Wulff der Beitrag der Bremsbeläge zu den Rußimmissionen ermittelt [195]. Er lag im Tunnel, in dem Bremsvorgänge im Allgemeinen nur selten vorkommen, bei weniger als 1 % und ist somit vernachlässigbar. Aethalometer besitzen keinen PM_{10}-Abscheidekopf, wodurch es theoretisch möglich wäre, dass auch gröbere Partikel erfasst wurden. Allerdings ist zu vermuten, dass diese gröberen Rußpartikel, sofern sie denn wirklich in der Außenluft vorhanden waren, im langen Ansaugschlauch des Aethalometers verblieben und gar nicht bis zum Abscheidefilter gelangt wären. Des Weiteren lässt die sehr gute Übereinstimmung der BC-Konzentrationen der beiden untersuchten Methoden - also Aethalometer und Öl-Immersionsmethode - den Schluss zu, dass auch mit dem Aethalometer nur BC gemessen wurde, das aus Abgasen und nicht vom Reifenabrieb stammt.

Anhang 24: Ruß-Emissionsfaktoren pro Fahrzeug für den Leichtverkehr EF_{LDV}, Schwerverkehr EF_{HDV} und alle Fahrzeuge EF_{Alle} berechnet mit Hilfe einer Linearen Multiplen Regressionsanalyse

a) Datenbasis: Aufzugmessungen
b) Datenbasis: Turmansaugung
c) Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Aufzugmessungen
d) Datenbasis: Emissionsmodellierung für Messzeiträume der Turmansaugung

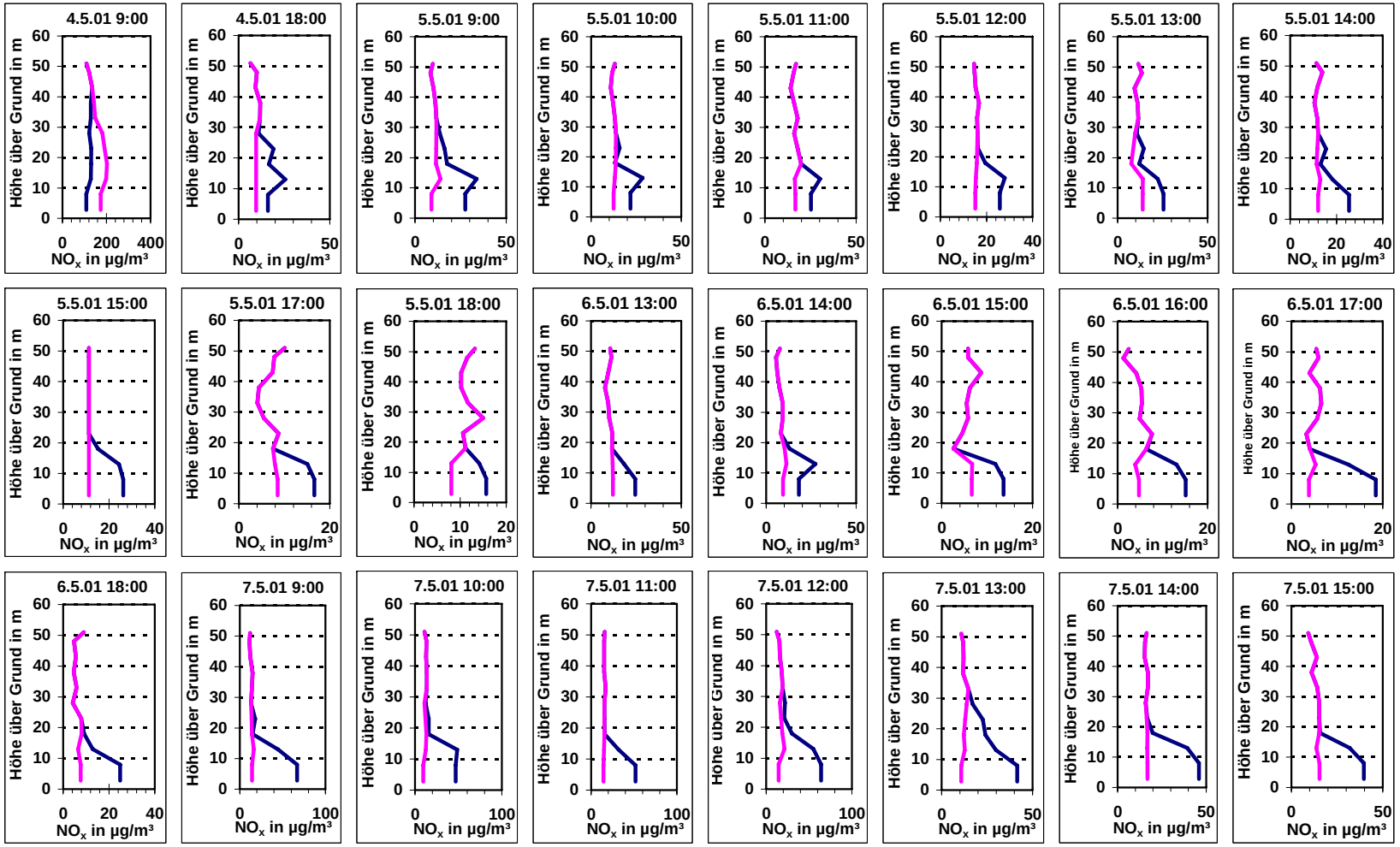
Datenbasis: Turmansaugung n = 103		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		13 ± 2 mg/km	
Schwerverkehr - HDV		149 ± 30 mg/km	
Alle Fahrzeuge		21 ± 4 mg/km	
$F_{krit} = 2{,}2*10^{-6}$	F-Wert = 14,9	$R^2_{mult} = 0{,}23$	$R^2_{alle\ FZ} = 0{,}17$
$t_{min} = 1{,}66$[1]	t-Wert LDV = 5,79	t-Wert $_{HDV} = 4{,}98$	t-Wert $_{alle\ FZ} = 23{,}1$
Datenbasis: Aufzugmessungen n = 18		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		15 ± 3 mg/km	
Schwerverkehr - HDV		136 ± 46 mg/km	
Alle Fahrzeuge		23 ± 6 mg/km	
$F_{krit} = 8{,}4*10^{-2}$	F-Wert = 2,9	$R^2_{mult} = 0{,}27$	$R^2_{alle\ FZ} = 0{,}25$
$t_{min} = 1{,}75$[1]	t-Wert LDV = 4,35	t-Wert $_{HDV} = 2{,}98$	t-Wert $_{alle\ FZ} = 15.6$
Datenbasis: Emissionsmodellierung für den Zeitraum der Aufzugmessungen: n = 103		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		14 ± 1 mg/km	
Schwerverkehr - HDV		137 ± 10 mg/km	
Alle Fahrzeuge		22 ± 1 mg/km	
$F_{krit} = 4{,}2*10^{-28}$	F-Wert = 126,4	$R^2_{mult} = 0{,}71$	$R^2_{alle\ FZ} = 0{,}4$
$t_{min} = 1{,}66$[1]	t-Wert LDV = 17,2	t-Wert $_{HDV} = 12{,}4$	t-Wert $_{alle\ FZ} = 44{,}8$
Datenbasis: Emissionsmodellierung für den Zeitraum der Turmansagung: n = 18		**Emissionsfaktor pro Fahrzeug in g/km**	
Leichtverkehr - LDV		15 ± 3 mg/km	
Schwerverkehr - HDV		122 ± 42 mg/km	
Alle Fahrzeuge		22 ± 1 mg/km	
$F_{krit} = 0{,}046$	F-Wert = 3,80	$R^2_{mult} = 0{,}32$	$R^2_{alle\ FZ} = 0{,}09$
$t_{min} = 1{,}75$[1]	t-Wert LDV = 4,88	t-Wert $_{HDV} = 2{,}98$	t-Wert $_{alle\ FZ} = 17{,}6$

[1] Bei einer Wahrscheinlichkeit von 95 %

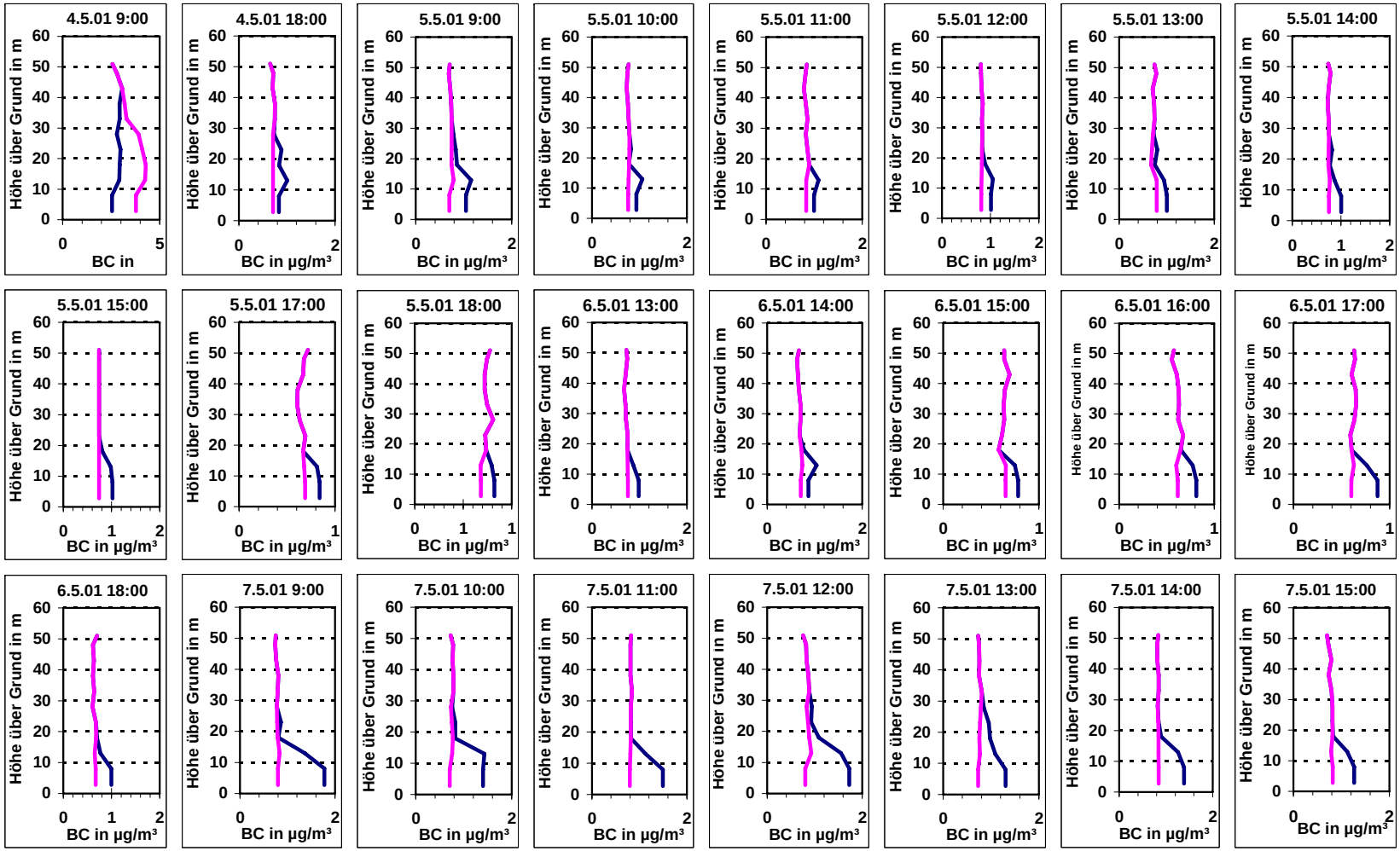
Anhang 25: Meteorologische Bedingungen und Fahrzeuganzahl (Gesamt, Leichtverkehr (LDV), Schwerverkehr (HDV) und Motorräder) am 13.05.2001, 22:50-23:30 MESZ und am 14.05.2001, 7:00-10:00 und 11:00-14:30 MESZ.

Meteorologische Größen						
Anzahl Vertikalprofile	Luv 22:50-23:30 MESZ 8		Lee 7:00-10:00 MESZ 32		Lee 11:00-14:30 MESZ 40	
	Mittelwert	σ	Mittelwert	σ	Mittelwert	σ
Windgeschw. (6 m) in m/s	2,7	0,3	2,2	0,4	2,6	0,9
Windgeschw. (48 m) in m/s	6,0	0,5	3,1	0,7	3,6	1,2
Windrichtung (6 m) in Grad	106,3	7,3	167,6	19,2	197,0	28,9
Windrichtung (52 m) in Grad	95,5	4,4	189,5	11,1	208,1	20,7
Temperatur (6 m) in °C	21,0	0,2	18,3	0,9	22,6	1,2
Relative Feuchte (6 m) in %	34,5	0,5	62,9	1,4	54,6	5,2
Spez. Feuchte (6 m) in g/kg	5,4	0,0	8,3	0,6	9,4	0,3
Globalstrahlung in W/m²	-0,8	0,2	290,6	153,7	683,4	141,2
Fahrzeuganzahl						
	Luv 23:00-24:00 MESZ		Lee 7:00-10:00 MESZ		Lee 11:00-15:00 MESZ	
	1/Std.	Anteil in %	1/Std.	Anteil in %	1/Std.	Anteil in %
Gesamt	839	100,0	4695	100,0	3320	100,0
LDV – Leichtverkehr (PKW und Lieferfahrzeuge)	812	96,8	4379	93,3	2981	89,8
HDV – Schwerverkehr (LKW und Busse)	12	1,4	284	6,0	310	9,3
Motorräder	15	1,8	32	0,7	29	0,9

Anhang 26a: Beispiele für NO_x-Vertikalprofile aus der Turmansaugung vom 04. bis 07.05.2001, welche für die NO_x-Massenbilanzierung Verwendung fanden



Anhang 26b: Beispiele für berechnete BC-Vertikalprofile aus der Korrelationsrechnung von NO_x und BC vom 04. bis 07.05.2001, welche für die BC-Massenbilanzierung Verwendung fanden



Anhang 27: Emissionsmodellierung im Projekt BAB II

Die Emissionsmodellierung im Projekt BAB II wurde ebenfalls von Mitarbeitern des Instituts für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER) der Universität Stuttgart durchgeführt. Es kam ein sehr aufwändiges und verfeinertes Emissionsmodell zur Anwendung [124], [117]. Um die in Kapitel 3.3.1 dargestellten Unsicherheiten der berechneten Emissionen auf ein Minimum zu reduzieren, wurden umfangreiche Messungen und Erhebungen des Verkehrs durchgeführt, die sich auf Verkehrsstärke, Fahrmuster bzw. Verkehrssituationen, Flottenzusammensetzung und Längsneigung der Fahrbahn bezogen. Auf diese Weise blieb als einzige Quelle für Unsicherheiten der berechneten Emissionen die Bestimmung der Emissionsfaktoren übrig, welche letztendlich mit den gemessenen Emissionen überprüft werden sollten. Alle anderen genannten Quellen für Unsicherheiten konnten durch ihre Bestimmung eliminiert werden. Das Vorgehen ist in Bild A27.1 detailliert dargestellt. Die Verkehrsuntersuchungen erfolgten in zwei Qualitätsstufen. Während der in Anhang 14 dargelegten Intensivmessphasen (SOPs) wurden manuelle Zählungen der Fahrzeuge auf der Autobahn (unterteilt in neun Fahrzeugklassen), Geschwindigkeits- und Beschleunigungsmessungen sowie Videoaufzeichnungen zur Erfassung der Fahrzeugkennzeichen durchgeführt. Zusätzlich wurden Daten einer Dauermessstelle und eines sogenannten Staumelders über den gesamten Messzeitraum vom 27. April bis 27. Mai 2001 ausgewertet. Die Ergebnisse der kontinuierli-

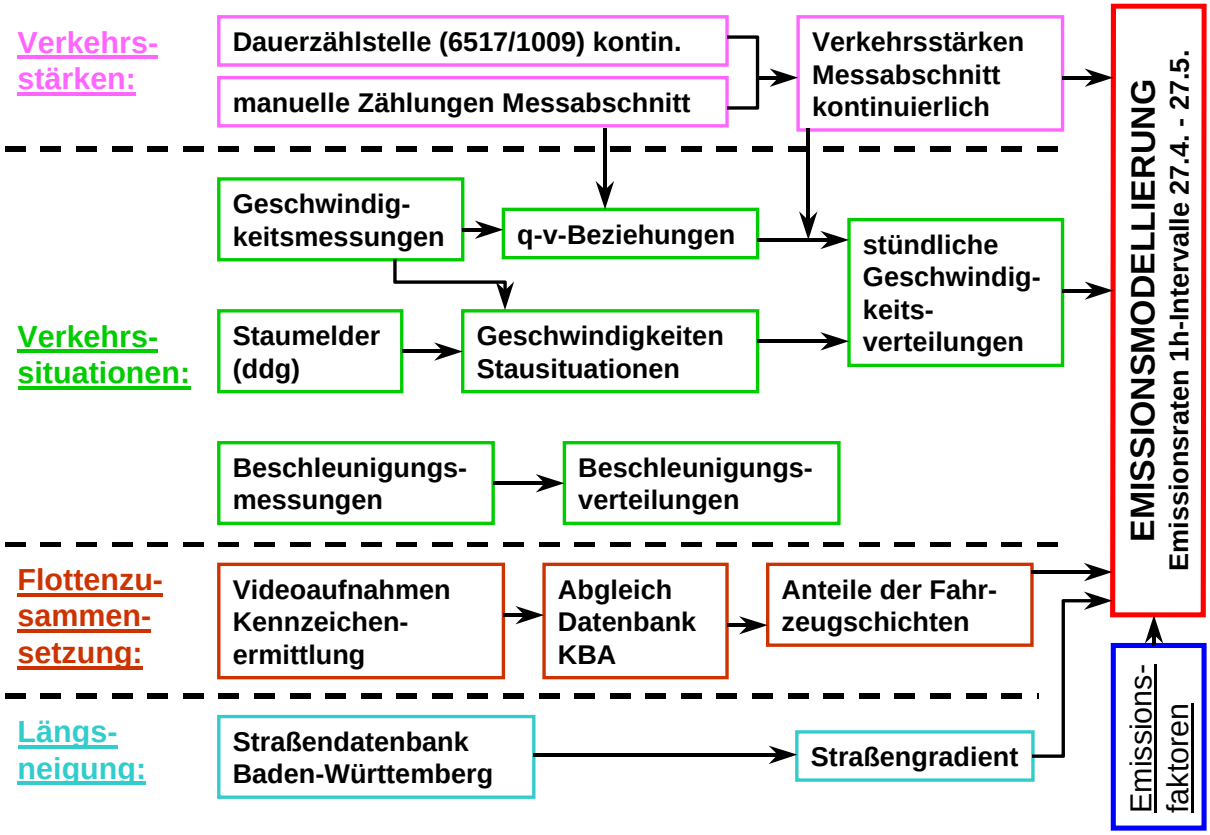


Bild A27.1: Gemessene und erhobene Eingangsdaten für die Emissionsmodellierung im Projekt BAB II [231]

chen Dauerzählstelle und der manuellen Zählungen während der SOPs dienten der Bestimmung der stündlichen Verkehrsstärken, getrennt für die beiden Fahrtrichtungen. Zusätzlich dienten die Fahrzeugzahlen zusammen mit den Ergebnissen der Geschwindigkeitsmessungen der Aufstellung eines Verkehrsstärke-Geschwindigkeits-Diagramms (q-v-Diagramm). Daraus wurden stündliche Verkehrssituationen bestimmt. Außerdem wurden zwischen zwei Autobahnbrücken, die in ca. 1.100 m Abstand voneinander über die Autobahn führten, Beschleunigungsmessungen durchgeführt, um festzustellen, ob es auf dem betrachteten Streckenabschnitt zu nennenswerten Beschleunigungs- bzw. Verzögerungsvorgängen kommt. Die Flottenzusammensetzung wurde durch Videoaufzeichnungen der Fahrzeuge auf der Autobahn während der SOPs bestimmt. Insgesamt wurden mit dieser Methode über 18.000 Fahrzeuge registriert und im Anschluss die Kennzeichen der Fahrzeuge mit Hilfe einer entsprechenden Software automatisch in eine Datenbank überführt. Für diese Fahrzeuge wurde durch Datenbankabgleich mit dem Zentralen Fahrzeugregister des Kraftfahrtbundesamtes (KBA) eine Zuordnung von fahrzeugspezifischen Eigenschaften wie Fahrzeugkategorie, Motorenart, Abgasstandard, Gewicht, Hubraum des Motors und Erstzulassung erlangt. So konnte für insgesamt acht Stunden während der SOPs die exakte Flottenzusammensetzung bestimmt werden, die in die Berechnung der Anteile der einzelnen Fahrzeugschichten einging. Zusammen mit dem aus der Straßendatenbank des Landes Baden-Württemberg stammenden Wert für die Längsneigung des betrachteten Autobahnabschnitts, den ermittelten Verkehrsstärken, Verkehrssituationen und den in der beschriebenen Weise bestimmten Fahrzeugschichten wurden die benötigten Emissionsfaktoren dem Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA Version 1.2) entnommen. Die gesamten Eingangsdaten wurden dem Emissionsmodell zugeführt, um die auf der Autobahn freigesetzten Emissionen zu berechnen. Durch Korrelationsrechnungen zwischen den sehr detailliert erhobenen Daten während der SOPs und den kontinuierlich durchgeführten Verkehrszählungen an den Dauermessstellen konnten die Emissionen für die betrachteten Luftverunreinigungen als Stundenmittelwerte über den gesamten Messzeitraum bestimmt werden.

Die Verkehrszählungen ergaben, dass sich im gesamten Messzeitraum im Mittel 87,6 % Pkw, 6,4 % Lieferwagen, 2,7 % Lkw, 1,0 % Lastzüge, 0,8 % Sattelzüge, 0,3 % Busse und 1,2 % Motorräder auf dem betrachteten Streckenabschnitt der Autobahn A 656 zwischen Heidelberg und Mannheim bewegten. Der HDV-Anteil (Schwerverkehr: Lkw, Lastzüge, Sattelzüge und Busse) lag mit 4,8 % deutlich unter dem Bundesdurchschnitt. Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, dass die Autobahn A 656 die beiden Ballungsräume Mannheim-Ludwigshafen und Heidelberg miteinander verbindet und weniger vom Transitverkehr benutzt wird, der sich hauptsächlich in Nord-Süd-Richtung auf den benachbarten Autobahnen A5 und A6 bewegt. Detaillierte Angaben zur Verkehrszusammensetzung finden sich in Tabelle A27.1.

Die Geschwindigkeitsmessungen ergaben als mittlere Fahrgeschwindigkeit für Fahrzeuge des Leichtverkehrs 111,5 km/h bzw. 114,3 km/h bei einer Standardabweichung von 16 km/h (sie-

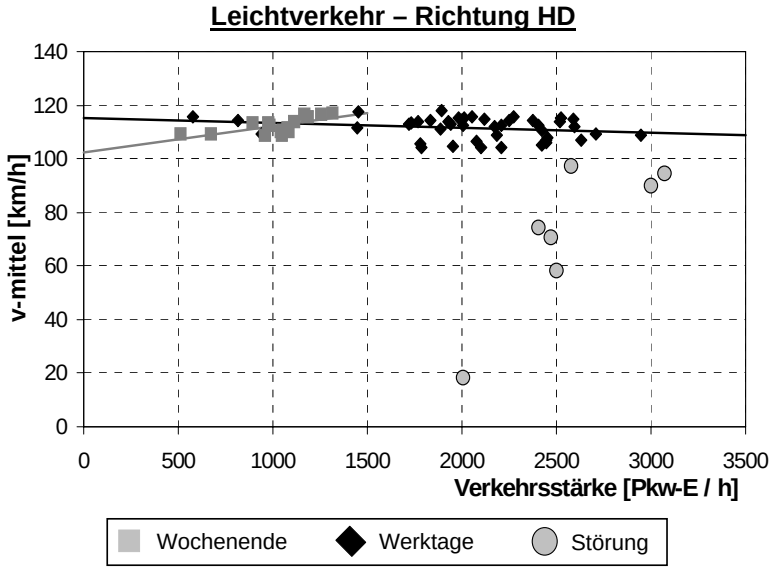


Bild A27.2: Verkehrsstärke-Geschwindigkeits-Diagramm für den Leichtverkehr in Richtung Heidelberg [15]

he Bild A27.4). Diesem Mittelwert liegen über 34.000 Einzelgeschwindigkeitsmessungen zu Grunde. Fahrzeuge des Schwerverkehrs fuhren im Mittel mit einer Geschwindigkeit von 85,8 km/h bzw. 86,4 km/h bei einer Standardabweichung von rund 7 km/h, wobei 1.794 Fahrzeuge der entsprechenden Fahrzeugkategorien überprüft wurden. Dem Verkehrsstärke-Geschwindigkeits-Diagramm für den Leichtverkehr (LDV) in Bild A27.4 ist zu entnehmen, dass sich die mittleren Fahrgeschwindigkeiten in einem relativ engen Band zwischen 100 und 120 km/h bewegten und, abgesehen von Stausituationen, keine signifikante Abhängigkeit von der Verkehrsstärke aufwiesen.

Die Beschleunigungsmessungen ergaben, dass es im Bereich des Messfelds nur zu geringen Beschleunigungs- bzw. Verzögerungsaktivitäten kam. Betrachtet man den Leicht- und den Schwerverkehr zusammen, so ergab sich im Mittel in Richtung Mannheim eine leichte Beschleunigung von 0,021 m/s² und in Richtung Heidelberg eine leichte Verzögerung von 0,029 m/s². Hätten sich bei den Beschleunigungs- und Verzögerungsmessungen größere Werte ergeben, so hätten diese in der Auswahl der Emissionsfaktoren berücksichtigt werden müssen. Solche Emissionsfaktoren existieren zwar vereinzelt in der Literatur, im Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA) sind sie jedoch nicht enthalten. Detaillierte Angaben zu den Beschleunigungsmessungen finden sich in Bild A27.5.

Die Berechnungen der Emissionen mit Hilfe des Emissionsmodells wurden stufenweise verbessert. Folgende vier Qualitätsstufen kamen zur Anwendung, wobei die gemessenen Verkehrsdaten nach und nach in das Emissionsmodell miteinflossen:

- Stufe 0: Keine gemessenen Verkehrsdaten - ausschließlich Daten aus Literatur und

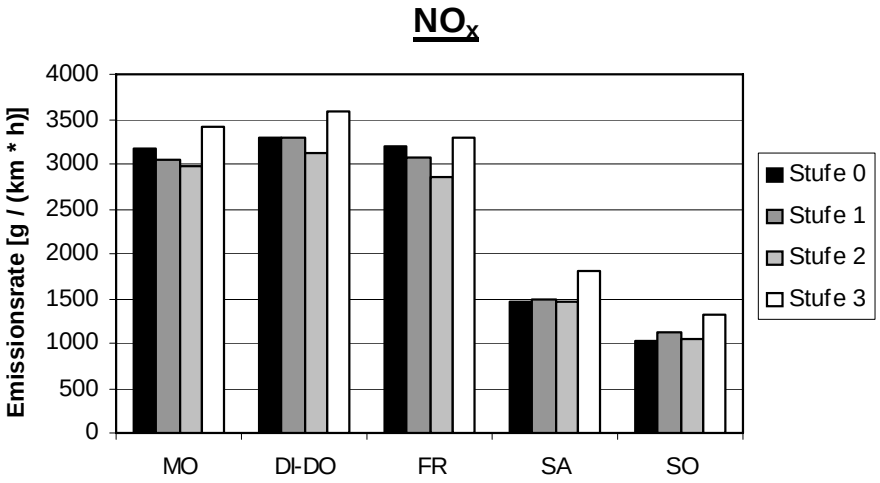


Bild A27.3: Mittlere stündliche Emissionsraten in g/(km*h) für die Komponente NO_x während der gesamten Messperiode vom 27. April bis 27. Mai 2001 für Zeiten mit starkem Verkehr von 6:00 bis 20:00 Uhr; Unterteilung in Montage, Dienstage bis Donnerstage, Freitage, Samstage und Sonntage; ausgenommen sind die beiden Tage 19. und 20. Mai 2001, an denen die Autobahn gesperrt war

  dem Handbuch für Emissionsfaktoren

- Stufe 1: Verkehrsstärken aus manuellen und automatischen Zählungen (für sieben Fahrzeugkategorien)
- Stufe 2: Geschwindigkeitsverteilungen (für sieben Fahrzeugkategorien)
- Stufe 3: Flottenzusammensetzung (Schichtverteilung aus Kennzeichenauswertung)

Die Emissionsfaktoren für die einzelnen Stufen wurden dem Handbuch für Emissionsfaktoren entnommen und bleiben für alle Stufen unverändert.

Beispielhaft sind in Bild A27.3 für die Komponente NO_x die mittleren stündlichen Emissionsraten des Verkehrs auf der Autobahn A 656 für die einzelnen Qualitätsstufen (Stufen 0 bis 3) dargestellt. Für weitere Komponenten sind die entsprechenden Diagramme in Bild A27.6 zu finden. Es fand eine Unterteilung für verschiedene Wochentage bzw. mehrere Wochentage statt: Montage, Dienstage bis Donnerstage, Freitage, Samstage und Sonntage. Man kann deutlich erkennen, dass die Emissionsraten an den Werktagen (Montag bis Freitag) sehr ähnlich sind und um den Faktor 2 höher liegen als an Samstagen sowie um den Faktor 3 höher als an Sonntagen. Des Weiteren fällt auf, dass sich die Emissionen von Stufe zu Stufe verändern. Die Änderungen zwischen den Stufen 0 und 2 sind nicht sehr ausgeprägt, während die Zunahme der Emissionsraten von Stufe 2 auf Stufe 3 jedoch sehr deutlich ist. Der Grund ist in folgender Tatsache zu suchen:

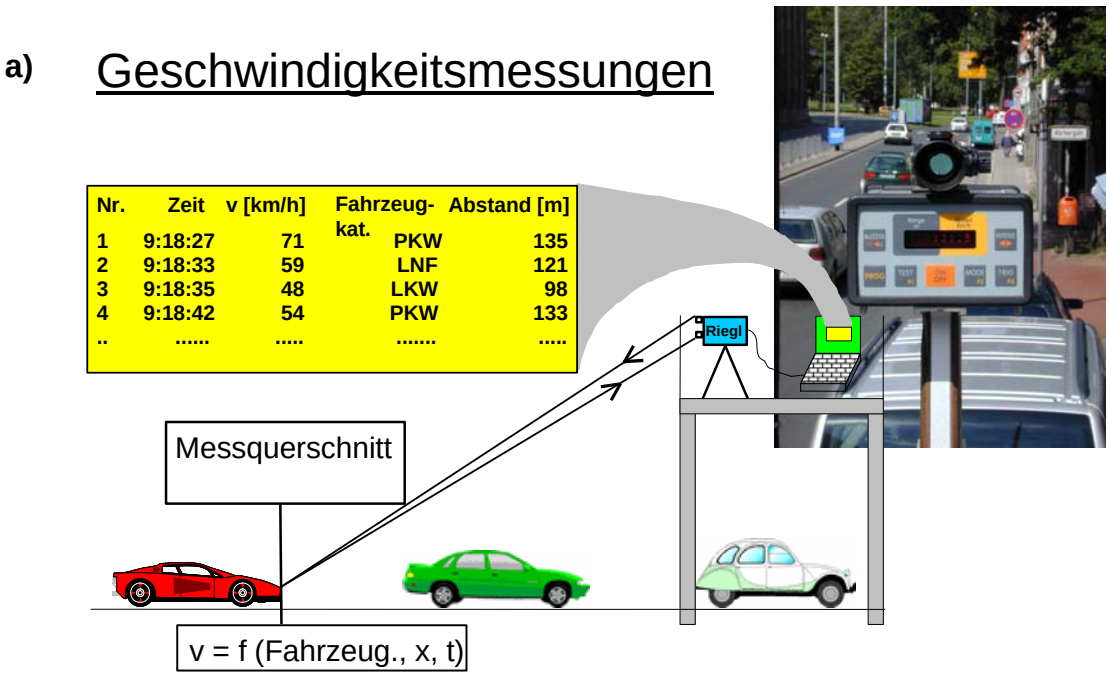
Untersuchungen aufgrund der Kennzeichenerfassung zeigten teilweise sehr große Unterschiede zwischen den Fahrzeugschichten des Handbuchs für Emissionsfaktoren und den tatsächlich erfassten Fahrzeugschichten. Im Allgemeinen kann festgehalten werden, dass das Handbuch für Emissionsfaktoren sowohl für Lkw (Euro 3) als auch für Pkw (Euro 3 und Euro 4) von einer größeren Anzahl von Fahrzeugen mit höheren Abgasnormen ausgeht als tatsächlich erfasst wurde. Entsprechend lag der Anteil an Fahrzeugen mit älteren Abgasnormen im erfassten Fahrzeugkollektiv höher als dies laut Handbuch für Emissionsfaktoren der Fall sein dürfte, wodurch auch die berechneten Emissionen aufgrund der Kennzeichenauswertung höher ausfielen (Level 3) als die Angaben innerhalb des Handbuchs für Emissionsfaktoren (Level 2). Detaillierte Angaben zu den Fahrzeugschichten sind Bild A27.7 zu entnehmen.

Tabelle A27.1: Mittlere tägliche Verkehrsströme auf der Autobahn A 656 zwischen dem Autobahnkreuz Heidelberg und dem Autobahnkreuz Mannheim in der Zeit vom 27. April bis 27. Mai 2001 (ausgenommen 19. und 20. Mai, als die Autobahn gesperrt war) für unterschiedliche Fahrzeugkategorien [124]

		Fahrzeugkategorien								
	Fahrzeuge / Tag	**MR in %**	**PKW in %**	**LNF in %**	**LKW in %**	**LZ in %**	**SZ in %**	**Bus in %**	**LDV in %**	**HDV in %**
Montage	62.007	1,0	86,7	6,6	3,4	1,2	0,9	0,2	94,3	5,7
Dienstage - Donnerstage	64.890	1,0	86,0	6,8	3,4	1,4	1,1	0,3	93,8	6,2
Freitage	64.492	1,0	86,8	6,6	3,2	1,2	0,9	0,3	94,4	5,6
Samstage	43.542	1,3	91,1	5,6	1,0	0,3	0,2	0,5	98,0	2,0
Sonn- und Feiertage	36.434	1,8	92,2	4,9	0,4	0,1	0,1	0,5	98,9	1,1
Werktage	60.590	1,0	86,9	6,6	3,1	1,2	0,9	0,3	94,5	5,5
Alle Tage	55.592	1,2	87,6	6,4	2,7	1,0	0,8	0,3	95,2	4,8

MR: Motorräder **PKW**: Personenkraftwagen **LNF**: Leichte Nutzfahrzeuge **LKW**: Lastkraftwagen **LZ**: Lastzüge **SZ**: Sattelzüge **Bus**
LDV: Light Duty Vehicles - Fahrzeuge des Leichtverkehrs: MR + PKW + LNF
HDV: Heavy Duty Vehicles - Fahrzeuge des Schwerverkehrs: LKW + LZ + SZ + Bus

Bild A27.4: a) Geschwindigkeitsmessungen während BAB II an der Autobahn A 656 zwischen dem Autobahnkreuz Heidelberg und dem Autobahnkreuz Mannheim [231]
b) Verteilung der Fahrgeschwindigkeiten nach Geschwindigkeitsklassen, getrennt nach Fahrzeugen des Leicht- und Schwerverkehrs (Anzahl der gemessenen Fahrzeuge: LDV: 34.219, HDV: 1.794) [124]



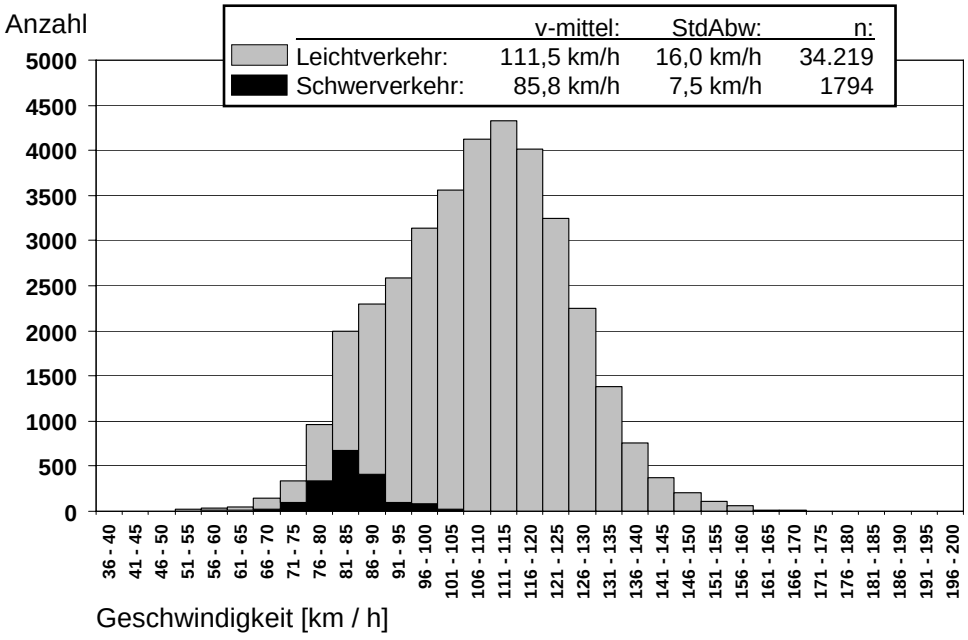
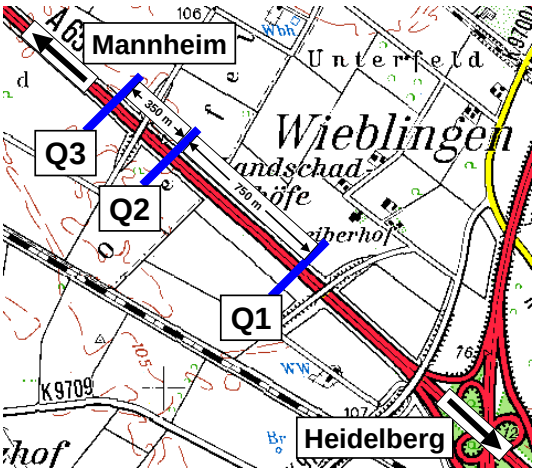
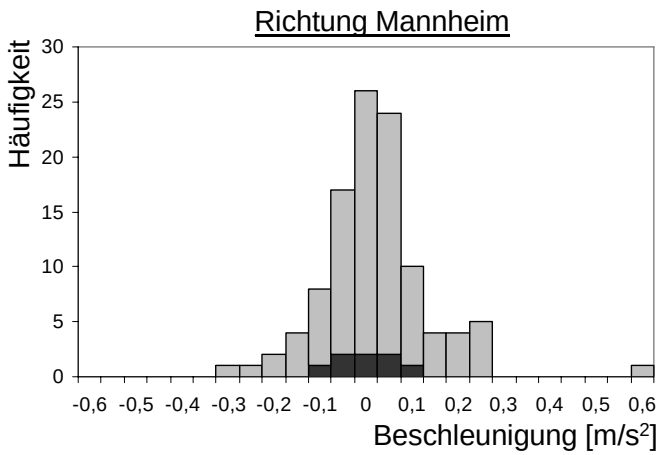


Bild A27.5: a) Beschleunigungsmessungen während BAB II an der Autobahn A 656 zwischen dem Autobahnkreuz Heidelberg und dem Autobahnkreuz Mannheim [124]
b) Verteilung der gemessenen Beschleunigung bzw. Verzögerung in Richtung Mannheim (Anzahl der Einzelmessungen: 49)
c) Verteilung der gemessenen Beschleunigung bzw. Verzögerung in Richtung Heidelberg (Anzahl der Einzelmessungen: 107)

a)



b)



c)

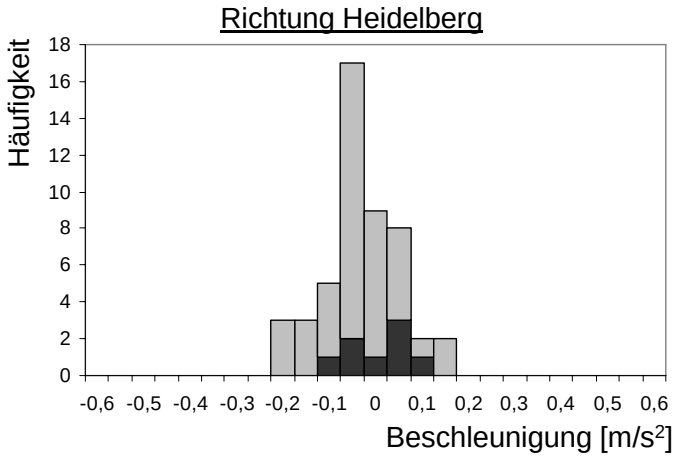


Bild A27.6: Mittlere stündliche Emissionsraten in g/(km*h) für CO, NO_x, Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) und PM_{10} für die gesamte Messperiode von 27. April bis 27. Mai 2001 für Zeiten mit starkem Verkehr von 6:00 bis 20:00 Uhr; ausgenommen sind die beiden Tage 19. und 20. Mai 2001, an denen die Autobahn gesperrt war [124]

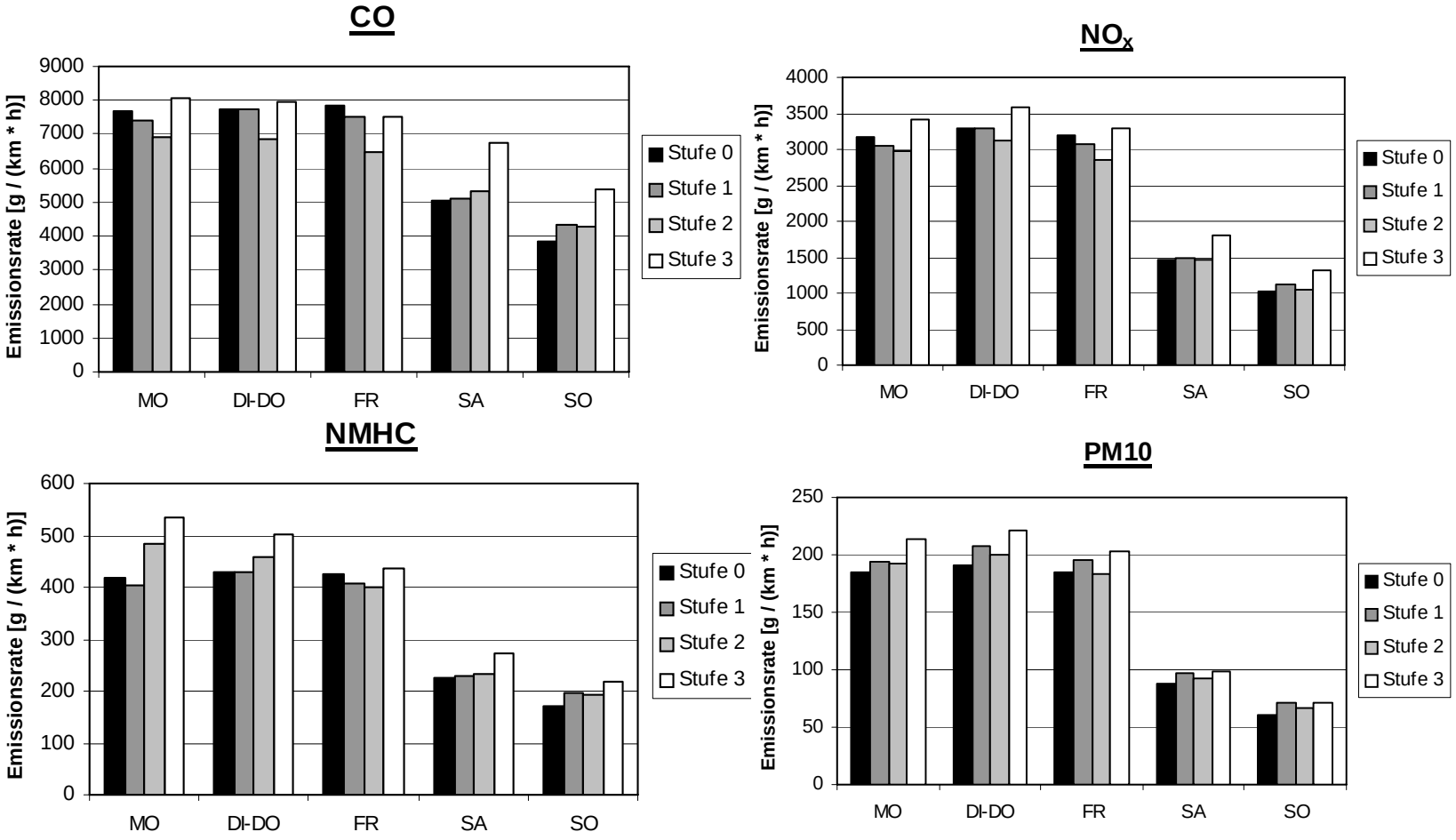
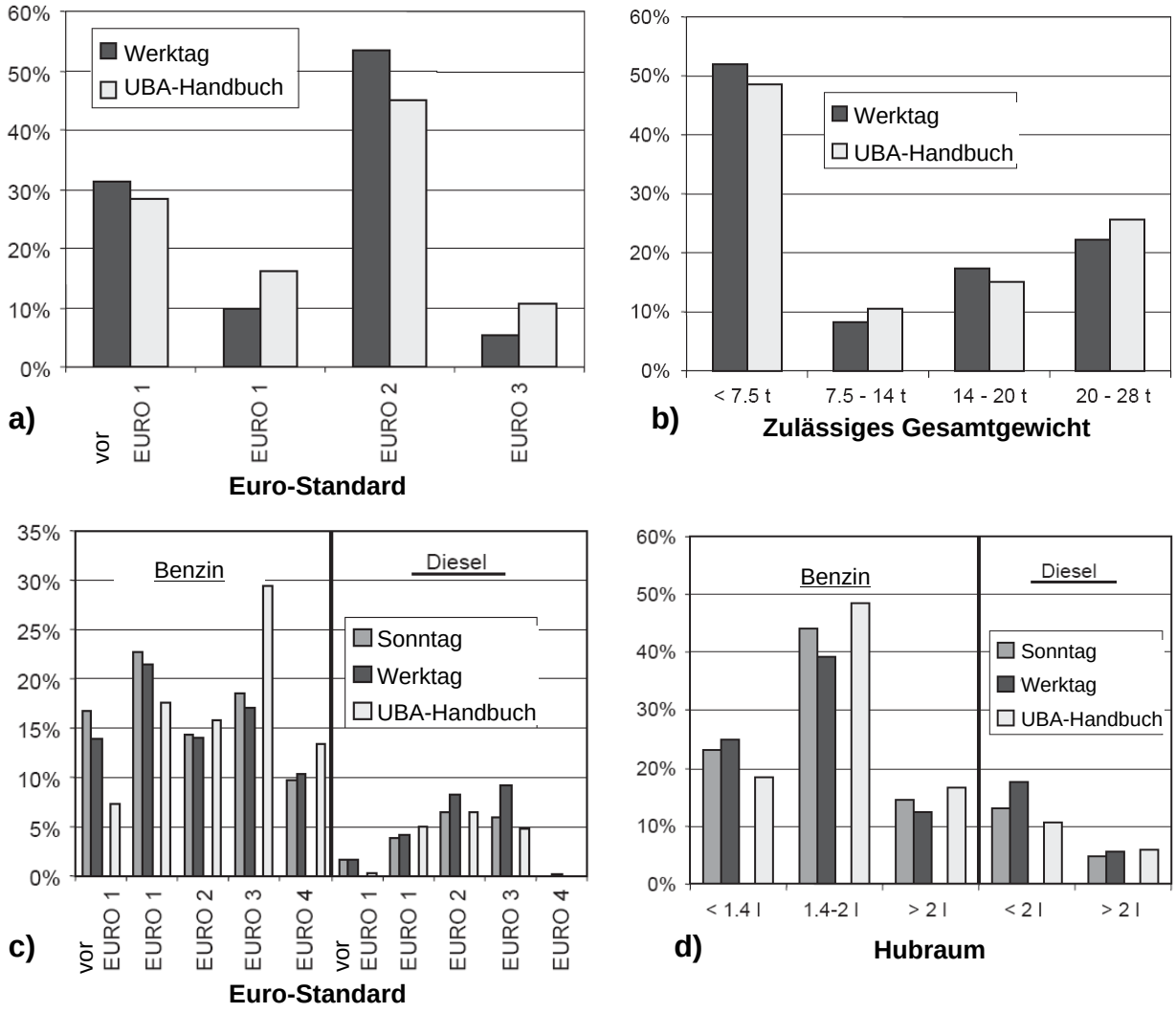



Bild A27.7: Vergleiche der durch Zählung und Kennzeichenauswertung bestimmten Kenngrößen mit den Angaben im UBA-Handbuch für Emissionsfaktoren (HBEFA1.1) [124]
a) Emissionsstandards – Euro-Standards für Lkw (ohne Anhänger)
b) Zulässiges Gesamtgewicht für Lkw (ohne Anhänger)
c) Emissionsstandards unterteilt in Benzin- und Dieselfahrzeuge für Pkw
d) Hubraum der Pkw