

Universität Trier
Fachbereich VI: Geographie/Geowissenschaften
Fach: Klimatologie

Diplomarbeit

Einfluss meteorologischer und luftchemischer Parameter auf die NO₂-Immissionskonzentration am Beispiel von ausgewählten Luftmessstationen in Baden- Württemberg

Eingereicht von Saskia Buchholz
Matrikelnummer: 656665

Wissenschaftliche Leitung: Prof. Dr. Helbig (Fach: Klimatologie)
Prof. Dr. Dr. Fischer (Fach: Analytische und
ökologische Chemie)

Wissenschaftliche Betreuung: Dipl. Phys. Udo Lambrecht (IFEU Institut)
Dipl.-Ing. Frank Dünnebeil (IFEU Institut)

München, Mai 2006

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die durch Ihre fachliche und persönliche Unterstützung zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Dr. Garber und Herrn Kahra vom Umweltbundesamt, die die Idee für diese Diplomarbeit mir bildlich in die Hände gelegt haben.

Den Mitarbeitern des Fachbereiches IV Verkehr des IFEU Institutes in Heidelberg danke ich für die umfassende fachliche Betreuung während der gesamten Arbeit. Sie haben mich herzlich aufgenommen und jederzeit tatkräftig unterstützt. Ich danke Herrn Lambrecht und Herrn Dünnebeil für viele gute Ideen, Anregungen und die konstruktive Kritik die mir zuteil wurde. Sie haben maßgeblich zum Gelingen und zur Verbesserung der Diplomarbeit beigetragen.

Den Mitarbeitern des Amtes für Umweltschutz der Stadt Stuttgart insbesondere Herrn Prof. Baumüller, Herrn Kapp und Herrn Vogt danke ich für die Bereitstellung von Daten, ohne die die Diplomarbeit in diesem Umfang nicht möglich gewesen wäre.

Danken möchte ich an dieser Stelle auch meiner Tante Nadine. Sie hat maßgeblich dazu beigetragen, dass diese Diplomarbeit den Regeln der Neuen Deutschen Rechtschreibung folgt.

Besonderer Dank gilt auch meiner Familie und meinem Freund Stefan die mich während meines gesamten Studiums unterstützt haben.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| Abbildungsverzeichnis | i |
| Tabellenverzeichnis | iv |
| Abkürzungsverzeichnis | v |
| 1 Einleitung | 1 |
| 2 Hintergrund und Ziel der Arbeit | 3 |
| 3 Grundlagen | 5 |
| 3.1 Aufbau und Zusammensetzung der Atmosphäre | 5 |
| 3.2 Emissionen der Stickoxide mit besonderem Blick auf den Verkehrssektor | 8 |
| 3.3 Chemische Reaktionen der Stickoxide | 12 |
| 3.3.1 Homogene Gasphasenreaktionen der Stickoxide | 14 |
| 3.3.2 Bildung und Abbau von Ozon | 17 |
| 3.3.3 Photochemischer Smog | 19 |
| 3.3.4 Multiphasenreaktionen und heterogene Reaktionen der Stickoxide | 20 |
| 3.4 Transport von Luftschadstoffen in der Troposphäre | 21 |
| 3.4.1 Atmosphärische Grenzschicht | 22 |
| 3.4.2 Stabilität der Atmosphäre | 24 |
| 3.4.3 Transport und Durchmischung in der Stadtgrenzschicht | 26 |
| 4 Datengrundlage | 30 |
| 4.1 Auswahl und Dokumentation der Messstellen | 30 |
| 4.2 Datenauswertung und Datenverfügbarkeit | 32 |
| 5 Zeitreihen der Immissionskonzentration ausgewählter Luftschadstoffe | 33 |
| 5.1 Entwicklung der NO _x -, NO-, NO ₂ - und Ozon-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen | 33 |
| 5.2 Der Beitrag des städtischen Hintergrundes zur NO ₂ -Immissionskonzentration der Verkehrsmessstellen | 39 |
| 6 Der Einfluss luftchemischer Parameter auf die NO₂-Immissionskonzentration | 44 |
| 6.1 Spurengase mit Einfluss auf die NO ₂ -Immissionskonzentration | 44 |
| 6.2 Verläufe der Immissionskonzentration ausgewählter Spurenstoffe | 50 |
| 6.2.1 Tages- und Wochengang | 51 |
| 6.2.2 Jahresgang | 61 |
| 6.3 NO ₂ -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von Ozon | 70 |
| 6.4 Zusammenfassung | 77 |
| 7 Der Einfluss meteorologischer Parameter auf die Stickoxid-Immissionskonzentration | 79 |
| 7.1 Topographie und Ausbreitungsbedingungen in Stuttgart | 79 |
| 7.2 Immissionskonzentration in Abhängigkeit von den Ausbreitungsbedingungen | 81 |
| 7.2.1 Häufigkeit der Bodeninversionen und freien Inversionen in Stuttgart | 82 |
| 7.2.2 Mischungsschichthöhe | 84 |
| 7.2.3 Schichtungsstabilität | 91 |
| 7.3 Abhängigkeit der Immissionskonzentration vom Wind | 96 |
| 7.3.1 Windgeschwindigkeit | 96 |
| 7.3.2 Windrichtung | 102 |
| 7.4 Zusammenfassung | 105 |

| | | |
|----------|-------------------------------------|------------|
| 8 | Diskussion und Ausblick..... | 106 |
| | Literaturverzeichnis | 110 |
| | Anhang A..... | 114 |
| | Anhang B..... | 121 |
| | Anhang C..... | 124 |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|--------|---|----|
| Abb.1 | Vertikalaufbau der Erdatmosphäre..... | 6 |
| Abb.2 | NO _x -Emissionen nach Emittentengruppen in Deutschland 2002 | 8 |
| Abb.3 | Entwicklung der NO _x -Emissionen in Deutschland nach Emittentengruppen | 9 |
| Abb.4 | Minderung der Schadstoffemissionen im Straßenverkehr | 11 |
| Abb.5 | Abschwächung des elektromagnetischen Spektrums des Sonnenlichtes beim Durchgang durch die Erdatmosphäre | 13 |
| Abb.6 | Abschwächung des elektromagnetischen Spektrums der Wellenlängen < 400 nm beim Durchgang durch die Erdatmosphäre | 13 |
| Abb.7 | Reaktionen der Stickoxide in der Atmosphäre | 17 |
| Abb.8 | Ozonbildung und -abbau in Abhängigkeit von NO _x | 19 |
| Abb.9 | Änderung des horizontalen Windvektors in der Ekman-Spirale..... | 24 |
| Abb.10 | Nächtliches vertikales Temperaturprofil in der atmosphärischen Grenzschicht..... | 25 |
| Abb.11 | Vertikales Temperaturprofil in der atmosphärischen Grenzschicht am Tag..... | 26 |
| Abb.12 | Aufbau der Stadtgrenzschicht | 27 |
| Abb.13 | Beeinflussung der mittleren Windgeschwindigkeit in verschiedenen Höhen durch städtische Bebauung..... | 27 |
| Abb.14 | Windströmung in einer Straßenschlucht bei Queranströmung..... | 28 |
| Abb.15 | Vertikale Temperaturprofile über dem Freiland und einer Stadt in Tallage in einer Strahlungsnacht | 29 |
| Abb.16 | Schematisches Profil der horizontalen Schadstoffverteilung über einer Großstadt | 30 |
| Abb.17 | Entwicklung der NO _x -Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg | 34 |
| Abb.18 | Entwicklung der NO-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg | 35 |
| Abb.19 | Entwicklung der NO ₂ -Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg | 36 |
| Abb.20 | Entwicklung des NO ₂ /NO _x -Immissionsverhältnisses an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg..... | 37 |
| Abb.21 | NO ₂ -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der NO _x -Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg..... | 38 |
| Abb.22 | Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg..... | 39 |
| Abb.23 | Lokaler und regionaler Beitrag zur NO ₂ -Immissionsbelastung der Verkehrs-Messtellen 2004 | 40 |
| Abb.24 | Vergleichende Entwicklung der NO ₂ -Immissionskonzentration an Verkehrsbelasteten und nicht Verkehrsbelasteten Messstationen..... | 41 |
| Abb.25 | Entwicklung der lokalen NO ₂ -Zusatzbelastung an baden-württembergischen Verkehrsmessstationen..... | 42 |

| | | |
|--------|--|----|
| Abb.26 | Zusammenhang zwischen NO ₂ und dem Produkt aus NO und Ozon (JMW 1995 bis 2004) nach dem MWG an ausgewählten baden-württembergischen Luftgütemessstationen | 48 |
| Abb.27 | Zusammenhang zwischen NO ₂ und dem Produkt aus NO und Ozon (1/2h-Werte im Juni 2004) nach dem MWG Stuttgart-Straße..... | 50 |
| Abb.28 | Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004 .. | 53 |
| Abb.29 | Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004 | 55 |
| Abb.30 | Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004 | 57 |
| Abb.31 | Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004 | 59 |
| Abb.32 | Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004 | 61 |
| Abb.33 | Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004..... | 63 |
| Abb.34 | Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart | 65 |
| Abb.35 | Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim | 66 |
| Abb.36 | Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg | 68 |
| Abb.37 | Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe | 70 |
| Abb.38 | Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004 | 71 |
| Abb.39 | Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004..... | 73 |
| Abb.40 | Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004 | 74 |
| Abb.41 | Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004 | 76 |
| Abb.42 | Topographie der Stadt Stuttgart | 79 |
| Abb.43 | Schwachwindhäufigkeit in Stuttgart und im Neckartal..... | 80 |
| Abb.44 | Windrosen im Stadtgebiet Stuttgart..... | 81 |
| Abb.45 | Relative Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze (0 Uhr UTC) Stuttgart 2004 | 82 |
| Abb.46 | Relative Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze (12 Uhr UTC) Stuttgart 2004 | 83 |
| Abb.47 | Häufigkeit der nächtlichen Bodeninversionen und ihre Inversionsmächtigkeit Stuttgart-Schnarrenberg 2004..... | 84 |
| Abb.48 | Relative Häufigkeit der nächtlichen Mischungsschichthöhen Stuttgart 2004 | 85 |
| Abb.49 | Relative Häufigkeit der täglichen Mischungsschichthöhen Stuttgart 2004..... | 86 |

| | | |
|--------|---|-----|
| Abb.50 | NO _x -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der nächtlichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004 | 87 |
| Abb.51 | NO _x -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004 | 88 |
| Abb.52 | NO-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004 | 89 |
| Abb.53 | NO ₂ -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004 | 90 |
| Abb.54 | Relative Häufigkeit der labilen oder stabilen Temperaturschichtung zwischen Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900hPa Niveau 12 Uhr UTC 2004 | 92 |
| Abb.55 | NO _x -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004 | 93 |
| Abb.56 | NO-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004 | 94 |
| Abb.57 | NO ₂ -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004 | 95 |
| Abb.58 | Relative Häufigkeit der nächtlichen Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum..... | 97 |
| Abb.59 | Relative Häufigkeit der täglichen Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum..... | 98 |
| Abb.60 | Mittlerer Tagesgang der Windgeschwindigkeit Stuttgart 2004..... | 98 |
| Abb.61 | Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart Bad Cannstatt | 99 |
| Abb.62 | Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum..... | 100 |
| Abb.63 | Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart-Zuffenhausen..... | 100 |
| Abb.64 | Windrosen Stuttgart Bad Cannstatt und Zuffenhausen 2004..... | 103 |
| Abb.65 | Schadstoffwindrosen NO und NO ₂ Stuttgart Bad Cannstatt und Zuffenhausen 2004 | 104 |
| Abb.66 | Luftmessnetz Baden-Württemberg..... | 114 |
| Abb.67 | Luftmessstationen in Stuttgart..... | 119 |
| Abb.68 | Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004 | 125 |
| Abb.69 | Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004. | 126 |
| Abb.70 | Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004 | 127 |
| Abb.71 | Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004 | 129 |
| Abb.72 | Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004 ... | 130 |
| Abb.73 | Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004 . | 131 |

Tabellenverzeichnis

| | | |
|--------|---|-----|
| Tab.1 | Stickstoffdioxidgrenzwerte nach der RL 1999/30/EG..... | 2 |
| Tab.2 | Volumenkonzentrationen der ständigen und variablen Gase in den unteren 100 km der Atmosphäre..... | 7 |
| Tab.3 | Physikalische Kräfte der atmosphärischen Strömung..... | 22 |
| Tab.4 | Reaktionskonstanten verschiedener Oxidationsreaktionen von Stickstoffmonoxid | 47 |
| Tab.5 | Relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen Stuttgart-Schnarrenberg 2004 ... | 85 |
| Tab.6 | Lineare Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Mischungsschichthöhe Stuttgart-Schnarrenberg 2004 | 91 |
| Tab.7 | Relative Häufigkeit der Windgeschwindigkeit Tag und Nacht 2004 | 96 |
| Tab.8 | Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit..... | 101 |
| Tab.9 | Lineare und potenzielle Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit 2004..... | 102 |
| Tab 10 | Ergebnisse der Modellstudien zur Berechnung der NO ₂ -Immissionskonzentration..... | 108 |
| Tab.11 | Lücken in den Originalzeitreihen von NO (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die Verkehrsmessstationen..... | 121 |
| Tab.12 | Lücken in den Originalzeitreihen von NO (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die städtischen Hintergrundmessstellen..... | 121 |
| Tab.13 | Lücken in den Originalzeitreihen von NO ₂ (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die Verkehrsmessstationen..... | 122 |
| Tab.14 | Lücken in den Originalzeitreihen von NO ₂ (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die städtischen Hintergrundmessstellen..... | 122 |
| Tab.15 | Anzahl der Radiosondenaufstiege in Stuttgart Schnarrenberg 2004 | 123 |

Abkürzungsverzeichnis

| | |
|------------------|--|
| BImSchG | Bundes-Immissionsschutzgesetz |
| BImSchV | Bundes-Immissionsschutzverordnung |
| CARB | California Air Resources Board |
| CRT | Continuous Regenerating Trap |
| DTV | durchschnittliche tägliche Verkehrsstärke |
| DWD | Deutscher Wetterdienst |
| Eol | Exchange of Information |
| G-Kat | geregelter 3-Wege-Katalysator für Benzinmotoren |
| HG | städtischer Hintergrund |
| IFEU | Institut für Energie- und Umweltforschung Heidelberg |
| JMW | Jahresmittelwert |
| Kfz | Kraftfahrzeug |
| KW | Kohlenwasserstoffe (engl. HC) |
| Lkw | Lastkraftwagen |
| LUBW | Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg |
| MMW | Monatsmittelwert |
| NMVOC | flüchtige organische Verbindungen ohne Methan |
| NO | Stickstoffmonoxid |
| NO ₂ | Stickstoffdioxid |
| NO _x | Stickoxide (Summe aus NO und NO ₂) |
| O ₃ | Ozon |
| ÖPNV | öffentlicher Personennahverkehr |
| PBL | atmosphärische Grenzschicht (engl. planetary boundary layer) |
| Pkw | Personenkraftwagen |
| PM | Particulate Matter |
| PM ₁₀ | Feinstaub mit aerodynamischem Durchmesser von < 10 µm |
| PPB | Teilchen pro Milliarde (engl. parts per billion) |
| PPM | Teilchen pro Millionen (engl. parts per million) |
| PPT | Teilchen pro Billionen (engl. parts per trillion) |
| SSB AG | Stuttgarter Straßenbahn AG |
| UMEG | ehemaliges Zentrum für Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Gerätesicherheit, heute Teil der LUBW |
| UBA | Umweltbundesamt |
| VOC | flüchtige organische Verbindungen |

1 Einleitung

Die industrielle Nutzung fossiler Rohstoffe zur Energie- und Wärmeerzeugung war nicht nur mit einem rasanten wirtschaftlichen und sozialen Aufschwung und umwälzenden technischen Neuerungen verbunden, sondern auch mit einem sprunghaften Anstieg der Luftbelastung, durch die überwiegend industrielle aber auch häusliche Nutzung der Kohle. Die Ursache der Luftbelastung lag im Ausstoß von gasförmigen und vor allem festen Luftverunreinigungen (Ruß) als unerwünschtes Nebenprodukt der Verbrennung fossiler Brennstoffe wie Kohle. Damit einher ging die Belastung der menschlichen Gesundheit. Erkrankungen der Atemwege wie Bronchitis und Asthma traten unabhängig von sozialer Herkunft und Alter auf.

Die Verwendung neuer Energieträger (z.B. Erdöl, Atomkraft und erneuerbare Energien), die Einführung von Techniken zur industriellen Abgasnachbehandlung und Genehmigungsverfahren für stationäre und mobile Anlagen – geregelt durch umfangreiche Vorschriften des Immissionsschutzrechtes – haben über die Jahre zur Reduktion der lokalen und überregionalen anthropogenen Luftbelastung in Europa geführt. Dennoch ist die Belastung der Luft mit Schadstoffen vor allem in Städten und Ballungsräumen auch heute noch sehr hoch.

Die Europäische Union hat deshalb in den letzten Jahren eine Vielzahl von Verordnungen und Richtlinien zur Luftreinhaltepolitik auf den Weg gebracht. Es wurden Luftqualitätsziele definiert, um schädliche Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Umwelt zu vermeiden und somit die gegenwärtige Luftqualität zu erhalten bzw. zu verbessern. Die Richtlinie 96/62/EG über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität vom 27. September 1996 bildet den Rahmen der Luftreinhaltepolitik in den EU-Staaten. Auf Grundlage dieser Richtlinie wurden bis heute vier Tochterrichtlinien erlassen:

- die Richtlinie 1999/30/EG vom 22.4.1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft,
- die Richtlinie 2000/69/EG vom 16.11.2000 über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft,
- die Richtlinie 2002/3/EG vom 12. 2. 2002 über den Ozongehalt der Luft und
- die Richtlinie 2004/107/EG vom 15. 12. 2004 über Grenzwerte für Nickel, Cadmium, Arsen und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe.

Die Tochterrichtlinien legen für bestimmte Luftschadstoffgruppen Grenz- und Richtwerte fest, die eine für die menschliche Gesundheit und die Umwelt unbedenkliche lufthygienische Situation gewährleisten sollen.

Die Immissionsgrenzwerte der Tochterrichtlinien wurden durch das Siebte Gesetz zur Änderung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (BImSchG) und die Neufassung der 22. Bundes-Immissionsschutzverordnung (BImSchV) in deutsches Recht umgesetzt. Die Einhaltung der Grenzwerte ist somit auch in Deutschland ab dem im Gesetz bestimmten Zeitpunkt für einen definierten Mittelungszeitraum (z.B. 1h-Mittel und Jahresmittelwert) bindend.

Für den Luftschadstoff Stickstoffdioxid (NO₂) legt die 22. Bundes-Immissionsschutzverordnung (BImSchV) in § 3 Immissionsgrenzwerte, Toleranzmargen und Alarmschwellen fest. Mit dem Inkrafttreten der Verordnung gelten zum Schutz der menschlichen Gesundheit ab dem 1. Januar 2010 ein 1h-Grenzwert von 200 µg/m³ bei zulässigen 18 Überschreitungen und ein Jahresmittelgrenzwert von 40 µg/m³. Bis zum 1. Januar 2010 wird auf den Immissionsgrenzwert die so genannte Toleranzmarge aufgeschlagen, die sich am Anfang jedes Jahres um einen bestimmten Prozentsatz reduziert (vgl. Tabelle 1). Immissionsgrenzwert plus Toleranzmarge sind mit dem Inkrafttreten der 22. BImSchV einzuhalten. Der gültige NO₂-Jahresmittelgrenzwert für das Jahr 2006 liegt bei 48 µg/m³ 2004 betrug der Jahresmittelgrenzwert 52 µg/m³.

Tab.1 Stickstoffdioxidgrenzwerte nach der RL 1999/30/EG

| | Mittelungs- zeitraum | Grenzwert | Toleranzmarge | Zeitpunkt bis zu dem der Grenzwert zu erreichen ist |
|--|---------------------------------|--|--|--|
| 1-Stunden- Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit | 1 Stunde | 200 µg/m ³ NO ₂ dürfen nicht öfter als 18mal im Kalenderjahr überschritten werden | 50 % (100 µg/m ³) bei Inkrafttreten dieser Richtlinie, jährliche Reduzierung am 1. Januar eines Jahres um 10 % (10 µg/m ³) bis auf 0 % am 1. Januar 2010 | 1.1.2010 |
| Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit | Kalenderjahr | 40 µg/m ³ NO ₂ | bei Inkrafttreten 50% (20 µg/m ³), jährliche Reduzierung am 1. Januar eines Jahres um 2 µg/m ³ bis auf 0 % am 1. Januar 2010 | 1.1.2010 |
| Jahresgrenzwert für den Schutz der Vegetation | Kalenderjahr | 30 µg/m ³ NO _x | keine | 19.7.2010 |

2 Hintergrund und Ziel der Arbeit

An der überwiegenden Mehrheit der städtischen Messstationen und im ländlichen Raum wird der ab 2010 gültige NO₂-Jahresmittelgrenzwert von 40 µg/m³ bereits heute unterschritten. Problematisch erscheint die Einhaltung der Luftqualitätsziele in städtischen Ballungsräumen. Dort wird der aktuell gültige NO₂-Jahresmittelgrenzwert zuzüglich Toleranzmarge deutlich überschritten.

Die Überschreitung eines Immissionsgrenzwertes führt nach § 47 BImSchG zur Aufstellung eines Luftreinhalteplans durch die zuständige Behörde. Der Luftreinhalteplan beinhaltet Maßnahmen, die erforderlich sind, um die anspruchsvollen Grenzwerte sicherzustellen. Es handelt sich um kurzfristig und langfristig wirkende Maßnahmen, die zur dauerhaften Verminderung von Luftverunreinigungen geeignet sein müssen [§ 47 BImSchG]. Eine sinnvolle Maßnahmenplanung setzt voraus, dass alle Quellen und Wirkungsgefüge des Luftschadstoffes bekannt sind. In vielen Städten und Kommunen konnte der Straßenverkehr als Hauptverursacher der Luftbelastung mit NO₂ identifiziert werden.

Der Verkehrssektor ist in den letzten Jahrzehnten durch steigende Mobilität, Wachstum und Verlagerung des Gütertransports von der Schiene auf die Straße zum Hauptverursacher der lokalen und regionalen Belastung mit Stickoxiden, Kohlenmonoxid und Feinstaub geworden. Dafür sprechen auch die Immissionskonzentrationen an verkehrsnahen Messstellen, die ein Vielfaches über den Immissionskonzentrationen des Stadtgebietes liegen. Betrachtet man die baden-württembergischen Messstellen, die 2004 den NO₂-Jahresmittelwert zzgl. Toleranzmarge überschritten haben, fällt auf, dass es sich ausschließlich um verkehrsnahen Luftgütemessstellen handelt.

Im Zusammenhang mit der Aufstellung der Luftreinhaltepläne und der Maßnahmenplanung ist die zeitliche Entwicklung der NO₂-Immissionskonzentration an straßennahen Messstationen von großer Relevanz. Diese verläuft an den baden-württembergischen Verkehrsmessstationen nicht einheitlich, neben sinkenden Trends gibt es auch konstante oder steigende NO₂-Immissionstrends (vgl. Abbildung 23/Kapitel 5). Dabei stehen die steigenden NO₂-Immissionskonzentrationen im scheinbaren Widerspruch zu den Erfolgen bei der Minderung verkehrsbedingter NO_x-Emissionen. Durch technische Lösungen der Abgasnachbehandlung konnten – beispielsweise durch den Einsatz des 3-Wege-Katalysators in Ottomotoren – die NO_x-Emissionen von 1990 bis 2002 um die Hälfte gesenkt werden [Daten des UBA]. Auch vor dem Hintergrund steigender Fahrleistungen führte die Halbierung der NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs zu einer signifikanten Abnahme der NO_x-Immissionskonzentration an den straßennahen Messstellen (vgl. Abbildung 21/Kapitel 5).

Vor dem Hintergrund der sinkenden NO_x-Emissionen und -Immissionen diskutieren nationale und internationale Wissenschaftler und mit der Luftreinhaltung beauftragte Personen die möglichen Ursachen für die steigende NO₂-Immissionskonzentration an Verkehrsmessstationen. Im Mittelpunkt der Diskussion stehen zwei mögliche Erklärungsansätze. Zum einen wird der Einfluss steigender Ozonkonzentrationen im städtischen Hintergrund auf die chemische NO₂-Bildung im Straßenraum diskutiert (siehe dazu Rabl 2005). Der zweite Erklärungsansatz geht von einem erhöhten NO₂-Anteil an den NO_x-Emissionen der Kraftfahrzeuge aus. Verschiedene Studien haben anhand von Emissionsmessungen und Modellierungen diesen Sachverhalt nachgewiesen (Verweis auf die Studien von Carslaw, California Air Resources Board (CARB) und Aviso).

Diese Diplomarbeit möchte an die aktuelle Diskussion zu möglichen Ursachen der Erhöhung der NO₂-Immissionskonzentration anknüpfen und den aktuellen Wissenstand aufbereiten. Dahingehend wird untersucht wie sich die Situation an den baden-württembergischen Verkehrsmessstationen bezüglich des Verlaufs der NO₂-Immissionskonzentration darstellt.

Im Einführungsteil werden die Komplexität und Interdisziplinarität dieses Themas umrissen. Dazu werden einleitend die Quellen und die Entwicklung der Stickoxidemissionen, insbesondere des Verkehrssektors, dargestellt. Anschließend werden die

Ausbreitungsbedingungen in der Troposphäre und deren Modifikationen durch städtische Bebauung beschrieben. Ferner wird auf das Verhalten der Stickoxide in der unteren Troposphäre eingegangen indem die wichtigsten Umwandlungsprozesse der Stickoxide beschrieben werden.

Im Hauptteil wird mit Blick auf bereits bestehende Forschungsergebnisse der Einfluss verschiedener meteorologischer und luftchemischer Parameter auf die NO₂-Immissionskonzentration an ausgewählten baden-württembergischen Messstationen untersucht.

Ziel dieser Arbeit ist es, meteorologische und luftchemische Parameter mit Einfluss auf die NO₂-Immissionskonzentration zu qualifizieren. Für die Untersuchung wurden baden-württembergische Luftgütemessstellen ausgewählt, die den ab 2010 gültigen NO₂-Grenzwert (Jahresmittelwert) 2004 überschritten haben und die über einen Zeitraum von 10 Jahren luftchemische und teilweise meteorologische Parameter kontinuierlich gemessen haben. Es werden ausgehend von der gegebenen Datengrundlage Immissionszeitreihen einzelner Luftschadstoffe an den verkehrsnahen Messstellen dargestellt und mit Immissionszeitreihen des städtischen Hintergrundes verglichen. Bei der Untersuchung zu möglichen luftchemischen Einflussfaktoren steht die Wirkung einer erhöhten Ozonkonzentration im Mittelpunkt. Anhand von Tages-, Wochen- und Jahregängen soll der Einfluss der Ozonkonzentration auf die NO₂-Immissionskonzentration untersucht werden. Hinsichtlich des Einflusses der Meteorologie werden Zusammenhänge zwischen verschiedenen Ausbreitungsbedingungen und der NO_x- und NO₂-Immissionskonzentration am Beispiel der Stadt Stuttgart untersucht.

Im Schlussteil wird die Relevanz der Ergebnisse für die zukünftige Luftreinhalteplanung diskutiert und auf weiterführende Ergebnisse anderer Studien, insbesondere zur NO_x- und NO₂-Emissionsentwicklung und Modellierung hingewiesen.

3 Grundlagen

3.1 Aufbau und Zusammensetzung der Atmosphäre

Die Atmosphäre der Erde kann vertikal unter Berücksichtigung des Temperaturverlaufes in so genannte Stockwerke gegliedert werden. Die Troposphäre als das unterste Stockwerk reicht bis in 12 km Höhe, wobei die Höhe in Polnähe mit nur 8 km am geringsten ist und in den Tropen mit bis zu 15 km am höchsten ist. In der Troposphäre spielen sich alle wichtigen Wetterphänomene ab, wie Wolkenbildung und Niederschlag. Physikalisch ist die Troposphäre durch eine stetige mittlere Temperaturabnahme von 0,65 K/100 m (nach ICAO Standard Atmosphäre) und einen vertikalen und turbulenten Luftmassentransport gekennzeichnet. 80 % der Masse der Atmosphäre verteilen sich auf die Troposphäre. 4 Vol % Wasser und eine Vielzahl organischer und anorganischer Komponenten bestimmen die mögliche Zusammensetzung und damit die chemischen Reaktionen. In der bodennahen Schicht der 1 bis 2 km mächtigen atmosphärischen Grenzschicht bewirkt der Einfluss der Erdoberfläche eine starke Änderung der meteorologischen Parameter Wind, Temperatur und Feuchtigkeit. Die Troposphäre wird nach oben hin von der Tropopause begrenzt.

An die Tropopause schließt sich eine Schicht an, die für die Entwicklung des Lebens auf der Erde von besonderer Bedeutung ist die Stratosphäre. Die Stratosphäre erstreckt sich von 15 bis 50 km Höhe und ist charakterisiert durch die Ozonschicht. Diese Schicht befindet sich in ca. 30 km Höhe und bewirkt eine Absorption der lebensgefährlichen kurzwelligeren solaren Strahlung. Mit dieser Absorption ist eine Temperaturerhöhung verbunden, die sich im Temperaturprofil der Stratosphäre widerspiegelt. Die Temperatur nimmt mit steigender Höhe bis in ca. 30 km Höhe zu, wo dann das stratosphärische Temperaturmaximum von ca. 0°C erreicht ist. Die inverse Temperaturschichtung ermöglicht nur noch sehr langsame vertikale Durchmischungsprozesse mit überwiegend laminarer Luftströmung. Der Wasserdampfgehalt der Stratosphäre ist sehr gering, da die Tropopause als „kalte“ Barriere den Transport von Wasserdampf von der Troposphäre in die Stratosphäre unterbindet. Organische Spezies wie Methan und halogenierte Kohlenwasserstoffe können auf Grund ihrer langen Lebensdauer in hohen Konzentrationen vorliegen. Die Stratosphäre wird nach oben hin von der Stratopause begrenzt

An die Stratopause schließt sich in Höhen zwischen 50 und 85 km die Mesosphäre an. In dieser Schicht nimmt die Temperatur wieder stetig mit der Höhe ab und erreicht in 80 km Höhe mit ca. -100°C ein messbares Minimum. Die folgende Thermosphäre und die Exosphäre haben eine so geringe Teilchendichte und damit so einen geringen Druck, dass bereits von einem allmählichen Übergang in den planetaren Raum gesprochen werden kann. Die Abbildung 1 verdeutlicht noch einmal den besprochenen vertikalen Aufbau der Erdatmosphäre, der auf der Differenzierung nach Temperaturgradienten beruht.

Es gibt weitere vertikale Gliederungsmöglichkeiten der Atmosphäre, wie den Grad der Ionisierung oder die Zusammensetzung der Atmosphäre. Die vertikale Gliederung der Atmosphäre nach dem Kriterium der Zusammensetzung sähe wie folgt aus: Die unterste Schicht der Atmosphäre wird als Homosphäre bezeichnet, da hier die Atmosphäre gut durchmischt ist. In der Homosphäre befindet sich die überwiegende Masse der Atmosphäre. Ab etwa 80 bis 100 km Höhe schließt sich die Heterosphäre mit einer Unterteilung nach dem Molekulargewicht an; Stoffe mit hohem Molekulargewicht befinden sich somit in den unteren Schichten der Heterosphäre.

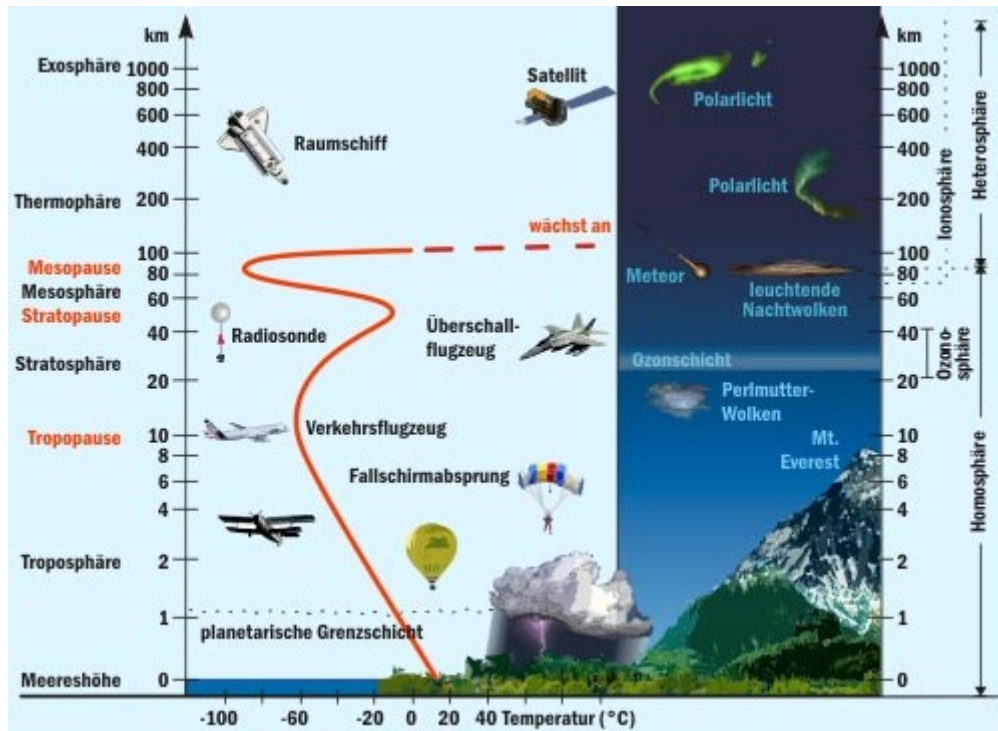


Abb.1 Vertikalaufbau der Erdatmosphäre [Quelle: DWD]

Die Zusammensetzung der Atmosphäre ist für den Ablauf chemischer Reaktionen entscheidend. Die Erdatmosphäre setzt sich zu 99,9 Vol % aus den Gasen Stickstoff (N_2), Sauerstoff (O_2), und dem Edelgas Argon (Ar) zusammen. Wasser in allen Aggregatzuständen ist mit seinen variablen Anteilen von 0 bis 4 Vol % vor allem in der Troposphäre von großer Bedeutung. Heutige und zukünftige Probleme der Luftreinhaltung hängen jedoch mit der Änderung der Spurengaskonzentration zusammen. Spurengase haben an der Atmosphäre nur einen Anteil von 0,01 Vol %, d.h. atmosphärische Spurengase kommen nur in geringsten Konzentrationen (parts per billion by volume ppbv und parts per trillion by volume pptv) vor. Der massive Eingriff des Menschen in den Naturhaushalt führt zu einer Anreicherung von atmosphärischen Spurenstoffen über das natürliche Maß hinaus. So ist die Anzahl an bekannten und noch unbekanntem Spurenstoffen gestiegen und die Spurenstoffkonzentrationen vieler Gase haben sich in den letzten hundert Jahren nachweislich erhöht. Spurengase sind meist anthropogener Herkunft und verändern die natürliche Zusammensetzung der Atmosphäre nachhaltig, deshalb werden sie auch als Luftschadstoffe bezeichnet.

Atmosphärische Strömungen transportieren die emittierten Luftverunreinigungen über große Entfernungen von ihren Ursprungsgebieten weg. Dabei unterliegen die primär emittierten Luftschadstoffe vielfältigen chemischen Umwandlungen und der irreversiblen Deposition aus der Atmosphäre. Generell ist die Belastung der Atmosphäre mit primären Luftverunreinigungen im Umfeld ihrer Quellen am höchsten. Die räumliche und zeitliche Verteilung der Luftschadstoffe ist somit das Ergebnis zeitabhängiger regionaler und lokaler Emissionsquellen sowie meteorologischer und chemischer Abläufe [Sentuc 2004]. Die Unterschiede in der Spurengaskonzentration in unbelasteter Luft und durchschnittlich belasteter Luft in Stadt- und Ballungsgebieten zeigt Tabelle 2.

Tab.2 Volumenkonzentrationen der ständigen und variablen Gase in den unteren 100 km der Atmosphäre [Jacobsen 2002]

| Volumenkonzentrationen der „ständigen“ Gase in den unteren 100 km der Atmosphäre | | | |
|---|---|----------------------------------|---|
| Gas | Chemische Formel | Volumenkonzentration | |
| | | Prozent | ppmv |
| molekularer Stickstoff | N ₂ | 78,08 | 780.000 |
| molekularer Sauerstoff | O ₂ | 20,95 | 209.500 |
| Argon | Ar | 0,93 | 9.300 |
| Neon | Ne | 0,0015 | 15 |
| Helium | He | 0,0005 | 5 |
| Krypton | Kr | 0,0001 | 1 |
| Xenon | Xe | 0,000005 | 0,05 |
| Volumenkonzentrationen der „variablen“ Gase in zwei unterschiedlich verschmutzten atmosphärischen Regionen der unteren 100 km der Atmosphäre | | | |
| Gas | Chemische Formel | Volumenkonzentration ppbv | |
| | | saubere Luft | verschmutzte Luft |
| Anorganisch | | | |
| Wasserdampf | H ₂ O | 3,0 – 4,0 x 10 ⁷ | 5,0 x 10 ⁶ – 4,0 x 10 ⁷ |
| Kohlendioxid | CO ₂ | 365.000 | 365.000 |
| Kohlenmonoxid | CO | 40 – 200 | 2.000 – 10.000 |
| Ozon | O ₃ | 10 – 100 | 10 – 350 |
| Schwefeldioxid | SO ₂ | 0,02 – 1 | 1 – 30 |
| Stickstoffmonoxid | NO | 0,005 – 0,1 | 0,05 – 300 |
| Stickstoffdioxid | NO ₂ | 0,01 – 0,3 | 0,2 – 200 |
| Organisch | | | |
| Methan | CH ₄ | 1,8 | 1.800 – 2.500 |
| Ethan | C ₂ H ₆ | 0 – 2,5 | 1 – 50 |
| Ethen | C ₂ H ₄ | 0 – 1 | 1 – 30 |
| Formaldehyd | HCHO | 0,1 – 1 | 1 – 200 |
| Toluol | C ₆ H ₅ CH ₃ | | 1 – 30 |
| Xylol | C ₆ H ₄ (CH ₃) ₂ | | 1 – 30 |
| Methylchlorid | CH ₃ CL | 0,61 | 0,61 |

3.2 Emissionen der Stickoxide mit besonderem Blick auf den Verkehrssektor

Die Emissionen der Stickoxide sind – bezogen auf die globale Emissionsbelastung – zu 88 % auf natürliche Prozesse zurückzuführen. In den europäischen Industrienationen und Deutschland überwiegt jedoch der anthropogene Anteil an den NO_x-Emissionen. Anthropogene Emissionen sind direkt oder indirekt auf menschliche Aktivitäten zurückzuführen (Produktionsprozesse, Nutzung fossiler Brennstoffe zur Energiegewinnung, Landwirtschaft etc.), während natürliche Emissionen auf Vorgängen in der Umwelt beruhen, die auch ohne menschliches Zutun ablaufen (Waldbrände, Vulkaneruptionen etc.). Das Bundesimmissionsschutzgesetz (BImSchG) definiert die Emissionen als die von einer Anlage ausgehenden Luftverunreinigungen, Geräusche, Strahlen etc. Somit unterscheiden sich die Emissionen grundsätzlich von den Immissionen, die als einwirkende Luftverunreinigungen, Geräusche etc. verstanden werden können [§ 3 BImSchG].

In Deutschland entstehen Stickoxide hauptsächlich bei der Verbrennung fossiler Energieträger im Verkehrs- und Energiesektor (vgl. Abbildung 2).

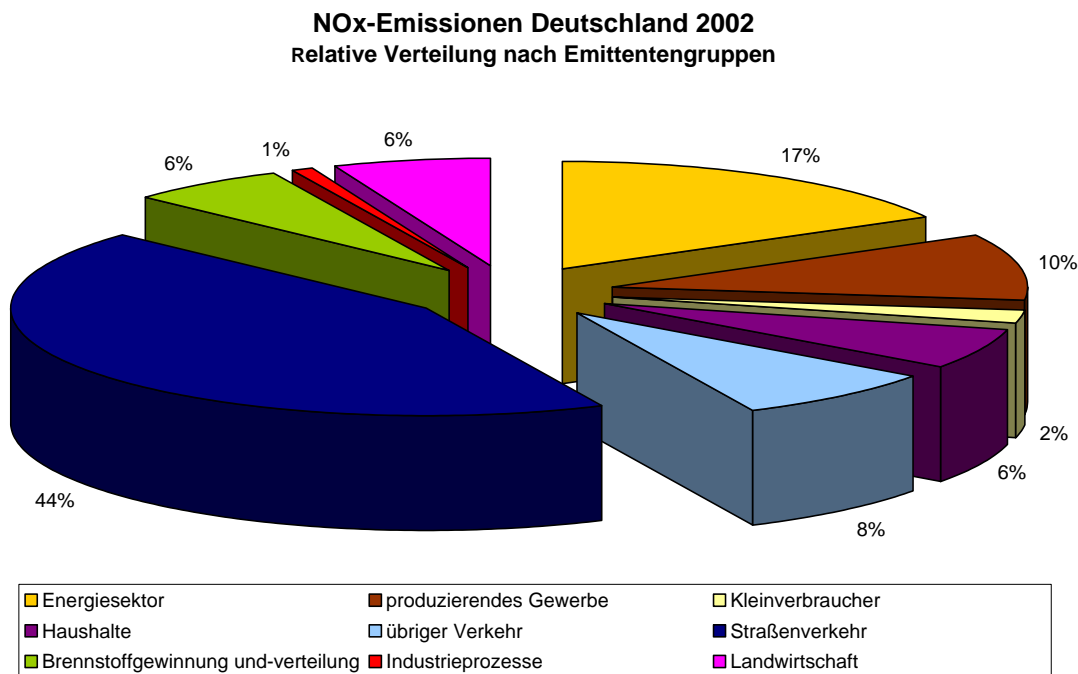


Abb.2 NO_x-Emissionen nach Emittentengruppen in Deutschland 2002 [Quelle: UBA]

Mit ca. 52 % hat der Verkehrssektor in Deutschland den größten Anteil an den Stickoxid-Emissionen davon entfallen ca. 44 % auf den Straßenverkehr. Der Energiesektor (17 %) und das produzierende Gewerbe (10 %) tragen in hohem Maße zur Luftbelastung mit Stickoxiden bei. Die NO_x-Emissionen der Haushalte, der Brennstoffgewinnung und -verteilung sowie der Landwirtschaft liegen mit je 6 % deutlich niedriger. Die NO_x-Emissionen der Kleinverbraucher und Industrieprozesse sind mit < 3 % vernachlässigbar.

In Deutschland sind die NO_x-Emissionen auf Grund einer restriktiven Gesetzgebung seit den 1990er Jahren rückläufig. Teilweise wurde dieser Rückgang durch den Zusammenbruch der ostdeutschen Industrie nach der Wiedervereinigung beschleunigt [Sentuc 2004].

Entwicklung der Stickstoffoxidemissionen im Vergleich zu 1990 nach Quelltypen

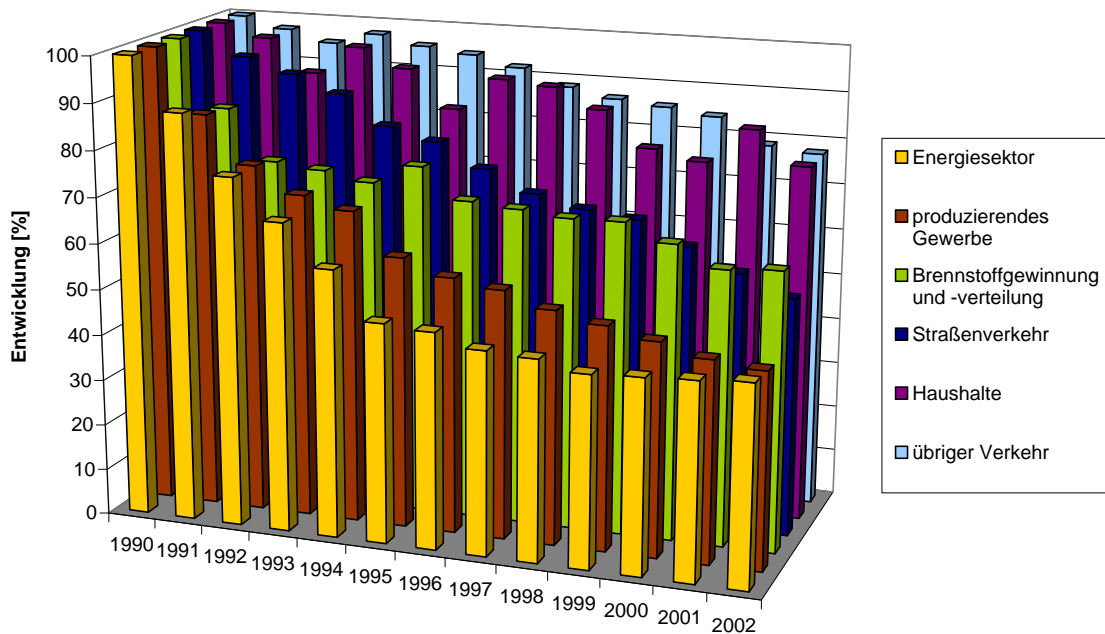


Abb.3 Entwicklung der NO_x-Emissionen in Deutschland nach Emittentengruppen [Quelle: UBA]

Erfreulicherweise ist die Entwicklung der Stickoxidemissionen in allen Sektoren rückläufig (vgl. Abbildung 3). Auf Grund der Übersichtlichkeit wurde auf die Sektoren mit dem geringsten Anteil an den jährlichen NO_x-Emissionen – Landwirtschaft, Kleinverbraucher und Industrieprozesse – verzichtet. Bezogen auf das Referenzjahr 1990 konnten die NO_x-Emissionen je nach Sektor um 20 bis 70 % gesenkt werden. Im produzierenden Gewerbe und Energiesektor wurden mit einer Einsparung von 60 % der NO_x-Emissionen des Referenzjahres die größten Minderungen erreicht. Grund sind die vielfältigen Vorschriften im Bereich des Immissionsschutzes für genehmigungsbedürftige und nicht genehmigungsbedürftige Anlagen. Die NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs konnten um etwa die Hälfte gesenkt werden, der übrige Verkehr (Bahn-, Flug- und Schiffsverkehr) konnte seinen Schadstoffausstoß in Bezug zum Referenzjahr um 20 % minimieren. Die Einsparungspotentiale im Verkehrssektor haben hinsichtlich ihres Verursacheranteils eine überdurchschnittlich hohe Wirkung auf die NO_x-Immissionskonzentration.

Auf Grund der Bedeutung des Verkehrssektors für die Luftbelastung mit Stickoxiden wird der Verkehrssektor, insbesondere der Straßenverkehr, gesondert betrachtet. Grundsätzlich emittiert der Straßenverkehr alle wichtigen in der 22. BImSchV festgeschriebenen Luftschadstoffe. Die Emissionen des Luftschadstoffes Schwefeldioxid (SO₂) konnten durch die Entschwefelung des Kraftstoffes soweit gesenkt werden, dass sie heute die Grenze der Nachweisbarkeit erreicht haben [Sentuc 2004]. Bei anderen Luftverunreinigungen konnten keine so deutlichen Reduktionen erzielt werden (vgl. Abbildung 4). Der sekundär gebildete Luftschadstoff Ozon und dessen Vorläufersubstanzen (NO_x und NMVOC) führen nach wie vor in den Sommermonaten zur Bildung von photochemischem Smog, der die menschliche Gesundheit und die Umwelt maßgeblich belastet. Ein vordergründiges Problem ist in diesem Zusammenhang der Individualverkehr – vor allem der werktägliche Pendlerverkehr –, der zur übermäßigen Belastung der Luft in Stadtgebieten beiträgt.

Die Emissionen des Straßenverkehrs beruhen auf der Verbrennung kohlenstoffhaltiger Erdölprodukte [Sentuc 2004]. Auch alternative Kraftstoffe wie Erdgas und Wasserstoff werden bereits von einigen Automobilherstellern erprobt und angeboten: dennoch konnten sich diese Kraftstoffe auf Grund vielfältiger Hemmnisse noch nicht flächendeckend durchsetzen.

Bei der Verbrennung von Kraftstoff entstehen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Brennstoffe und dem Brennprozess neben der gewonnenen Energie auch unerwünschte Nebenprodukte wie gasförmige Luftschadstoffe und feste Rußpartikel [Sentuc 2004]. Die gasförmigen und festen Luftschadstoffe werden mit dem Abgasstrom in die Atmosphäre abgegeben.

Bei der vollständigen Verbrennung (stöchiometrische Verbrennung) werden alle Bestandteile des Kraftstoffs oxidiert. Als Reaktionsprodukte entstehen Kohlendioxid und Wasserdampf. Der bei der Verbrennung entstehende Wasserdampf ist in globaler Sicht relativ unbedeutend, da die natürlichen Feuchteflüsse weitaus größer als die anthropogen verursachten Einträge sind [Sentuc 2004]. Problematisch ist der Ausstoß von Kohlendioxid, das auf Grund seiner Absorptionseigenschaften zum anthropogenen Treibhauseffekt beiträgt. Als Luftschadstoff ist Kohlendioxid unbedeutend, da es keine unmittelbare toxische Wirkung auf Lebewesen besitzt [Sentuc 2004].

Bei der vollständigen Verbrennung handelt es sich um einen Idealfall, der bei hohen Temperaturen und mangelnder Sauerstoffzufuhr nicht gegeben ist. Der Kohlenstoff wird nur zu Kohlenmonoxid (CO) oxidiert, das auf Grund seiner im Gegensatz zu Sauerstoff erhöhten Affinität zum Hämoglobin stark toxisch ist. Weitere Bestandteile des Abgases der unvollständigen Verbrennung sind Ruß (engl. black carbon), Stickoxide, Alkohole, Aldehyde, organische Säuren und Aromaten [Sentuc 2004]. Diese Reaktionsprodukte sind für die lokale Schadstoffbelastung von großer Bedeutung.

Die Entstehung der Stickoxide bei der Verbrennung ist nach Sentuc „Weder auf den verwendeten Kraftstoff noch auf den technischen Prozess zurückzuführen, sondern liegt vielmehr in der Zusammensetzung der Luft begründet, die dem Kraftstoff als Oxidationsmittel zugeführt wird“. Mit 78 Vol % ist molekularer Stickstoff (N_2) der Hauptbestandteil der Luft, er wird bei jeder Verbrennung in die Reaktionskette mit einbezogen. So entsteht bei allen Verbrennungsprozessen, an denen Luft beteiligt ist, aus der Reaktion von Sauerstoff mit Stickstoff Stickstoffmonoxid.

Das emittierte Stickstoffmonoxid wird bereits unmittelbar im Abgasstrom zu NO_2 aufoxidiert, so dass ganz allgemein von Stickoxidemissionen (NO_x -Emissionen) gesprochen wird. Die NO_x -Emissionen und NO_x -Immissionen werden in dieser Arbeit als Summe aus NO und NO_2 angegeben, wobei sich die Massenangabe auf das Molekulargewicht von NO_2 bezieht. Derzeit wird von einem mittleren NO_2/NO_x -Emissionsverhältnis im Abgas für Diesel- und Ottomotoren von 5 % ausgegangen [vgl. IVU 2005 und Carlaw 2004].

Die bisher erreichten Emissionsminderungen konnten durch technische Maßnahmen – Optimierung des Verbrennungsprozesses, Einbau und Nachrüstung von Katalysatoren – und die Entschwefelung des Kraftstoffes erreicht werden. Die Abbildung 4 zeigt die erzielte Emissionsminderung einiger verkehrsbedingter fester und gasförmiger Luftschadstoffe im Jahr 2002 gegenüber dem Referenzjahr 1990.

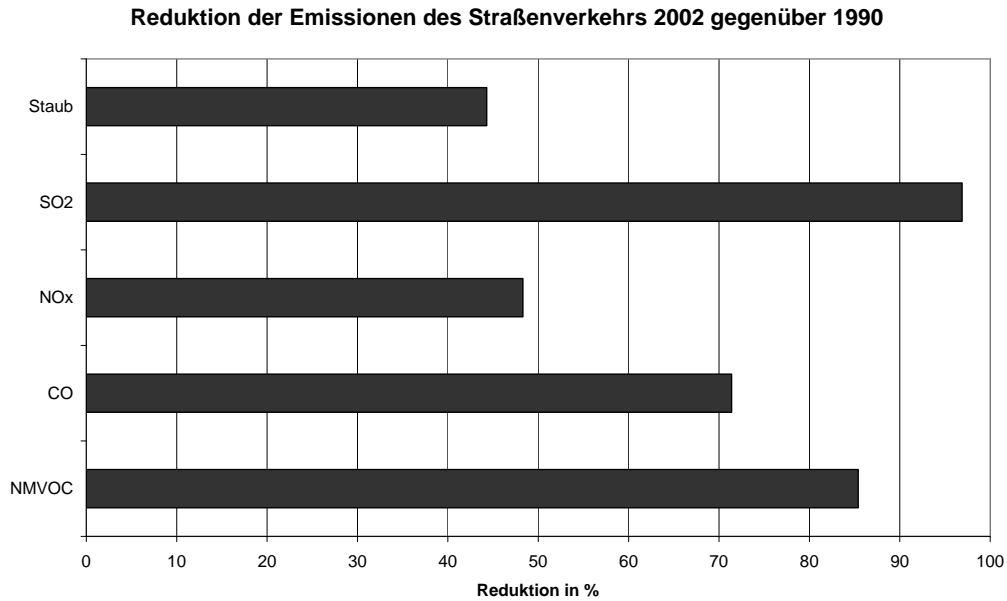


Abb.4 Minderung der Schadstoffemissionen im Straßenverkehr [Quelle: UBA]

Zukünftige Prognosen gehen von einem starken Wachstum des Verkehrssektors in Deutschland aus. Neue technische Lösungen zur Minderung der Staub- und Stickoxidemissionen gewinnen vor diesem Hintergrund zunehmend an Bedeutung. Trotz steuerlicher Anreize ist bislang in einem Großteil der Fahrzeugflotte noch nicht der Stand der Technik zur Abgasminderung umgesetzt. Viel versprechende technische Lösungen zur Emissionsminderung von Ruß, Feinstaub und Stickoxiden wie neue Filtersysteme und Katalysatoren sollten in Zukunft durch weitere steuerliche Anreize gefördert werden. Neue viel versprechende Emissionsminderungen eröffnen sich bei Fahrzeugen mit neuen Antriebstechniken wie dem Toyota Prius (Hybridantrieb). Diese Fahrzeuge unterschreiten bereits heute den Abgasstandard der im Oktober 2005 eingeführten Euro-4 Norm für Benzin-Pkw.

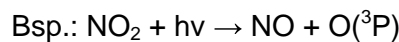
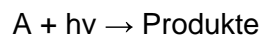
3.3 Chemische Reaktionen der Stickoxide

Vor der Darstellung der einzelnen Reaktionen der der Stickoxide in der Troposphäre, wird kurz eine Einleitung zu den wichtigsten atmosphärischen Reaktionen gegeben.

In der Atmosphärenchemie unterscheidet man zwischen homogenen und heterogenen Reaktionen. Homogene Reaktionen beschreiben Reaktionen zwischen Stoffen einer Phase, z.B. homogene Gasphasenreaktionen. Heterogene Reaktionen umfassen Reaktionen von Stoffen unterschiedlicher Aggregatzustände.

Chemische Gasphasenreaktionen werden herkömmlich in photolytische und chemisch kinetische Reaktionen eingeteilt.

Photolyse oder Photodissoziation ist definiert als die Absorption von solarer Strahlung (Photonen, Lichtquanten) durch Moleküle, wodurch ein oder mehrere Radikale oder andere reaktive Teilchen abgespalten werden. Das Photon ist Initiator dieser uni-molekularen Reaktion (Reaktion mit Beteiligung nur eines Reaktionspartners).



Die Energie eines Photons der Frequenz ν ist nach dem Plankschen Gesetz $h\nu$ [Seinfeld 1998]. Die photochemisch aktive Strahlung der Erdoberfläche liegt zwischen Wellenlängen von 290 bis 700 nm, wobei die kurzwellige Strahlung die energiereichere Strahlung ist.

Damit photochemische Prozesse stattfinden, müssen zwei Voraussetzungen erfüllt sein: Das Molekül muss in der Lage sein, die verfügbare Strahlung zu absorbieren. Des weiteren muss die absorbierte Energie ausreichen, um eine chemische Bindung zu spalten, was durch die sog. Quantenausbeute ($\bar{\Phi}_A(\lambda)$) angegeben wird [Guderian 2000]

Die Photonenenergie kann mit der Bindungsenergie der Moleküle verglichen werden. Chemische Reaktionen werden dann hervorgerufen, wenn die Energie die Elektronenübergänge in Molekülen anregt, mit der Photonenergie übereinstimmt [Seinfeld 1998]. Absorption von Strahlung kann unter diesem Aspekt nur stattfinden, wenn ein höheres Energieniveau im Molekül existiert, das von einem niedrigeren Niveau getrennt ist und die gleiche Energie wie das einfallende Photon besitzt.

Die Geschwindigkeit der Photolyse hängt von der Intensität und der Wellenlänge des Lichtes, der Konzentration des absorbierenden Stoffes und den Absorptionsquerschnitten ab [Guderian 2000]. Der Absorptionsquerschnitt ($\bar{\sigma}_A(\lambda)$) beschreibt das quantitative Maß der Wahrscheinlichkeit einer Photonenabsorption in Abhängigkeit von der Wellenlänge.

Photophysikalisch unterscheiden sich diese Prozesse dahin gehend, ob es nach der Absorption des Photons zu einer Lichtabstrahlung kommt oder ob die Photolyse ohne Abstrahlung von Licht vonstatten geht. Zu den Reaktionen mit Strahlungsübergängen zählen Fluoreszenz und Phosphoreszenz; zu den Reaktionen ohne Strahlungsübergang gehören der Energie-Transfer und inter system crossing.

Das von der Sonne emittierte Spektrum entspricht annähernd dem eines schwarzen Strahlers von 6000 K. Die Gesamtbestrahlungsstärke außerhalb der Erdatmosphäre beträgt 1360 W/m² (Solarkonstante) Die spektrale Verteilung außerhalb der Atmosphäre unterscheidet sich deutlich von der spektralen Verteilung an der Erdoberfläche (vgl. Abbildung 5). Der Grund liegt in der Schwächung der Strahlung – durch Absorption, Reflexion und Streuung an gasförmigen und festen Teilchen – beim Durchgang durch die Atmosphäre.

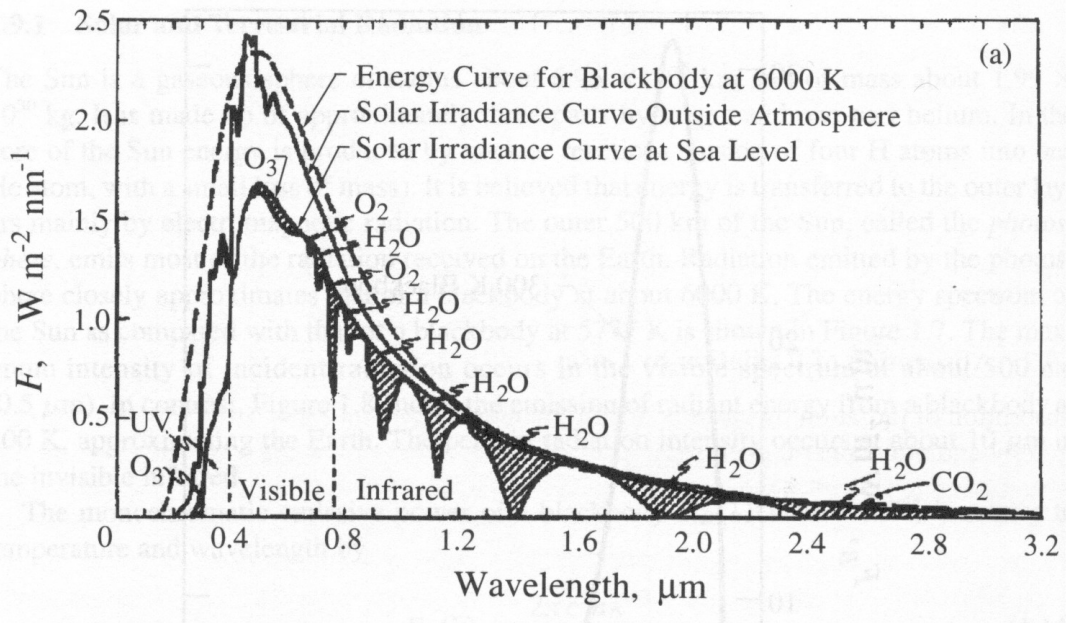


Abb.5 Abschwächung des elektromagnetischen Spektrums des Sonnenlichtes beim Durchgang durch die Erdatmosphäre [Seinfeld 1998]

Für die Schwächung der solaren Strahlung ist eine Vielzahl von Gasen verantwortlich: die bedeutendsten sind Kohlendioxid, Ozon und Wasserdampf. Kohlendioxid und Wasserdampf absorbieren die solare Strahlung im sichtbaren und infraroten Wellenlängenbereich. Die Absorption im UV-Bereich wird durch das stratosphärische Ozon hervorgerufen, das in ca. 30 km Höhe sein Konzentrationsmaximum besitzt. Im ultravioletten Teil des Spektrums tritt in der Atmosphäre eine vollständige Absorption der Strahlung mit Wellenlängen λ kleiner 290 nm auf [Liljequist 1979]. Das solare Spektrum und die photochemisch aktive Strahlung sind somit höhenabhängig (vgl. Abbildung 6).

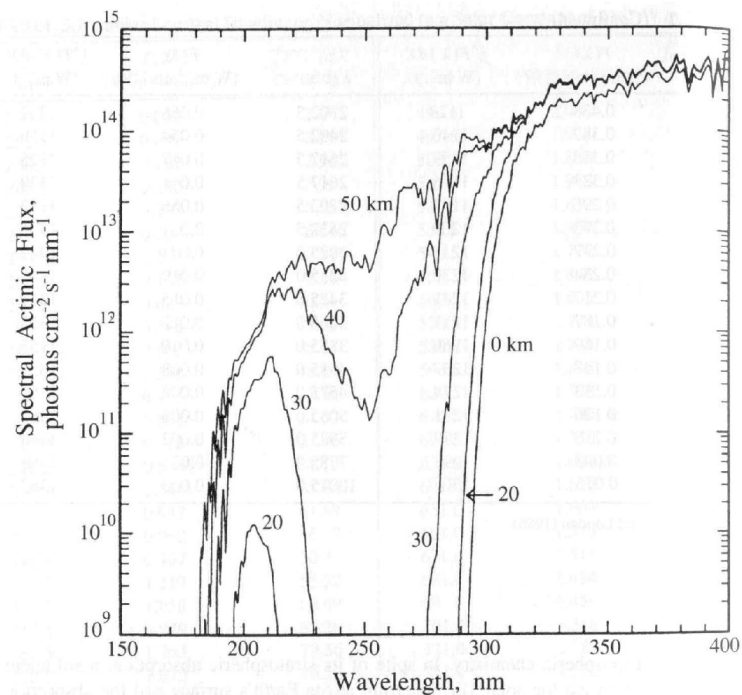


Abb.6 Abschwächung des elektromagnetischen Spektrums der Wellenlängen $< 400 \text{ nm}$ beim Durchgang durch die Erdatmosphäre [Seinfeld 1998]

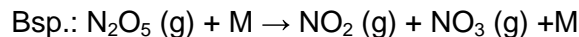
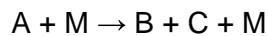
In der Troposphäre gibt es nur eine Hand voll Photolysereaktionen mit Bedeutung für den Abbau der Spurengase. Der Grund liegt in den Absorptionsspektren der Gase, die nur vereinzelt mit dem Wellenlängenbereich des troposphärischen Spektrums übereinstimmen. Die Photolyse von Stickstoffdioxid ist eine der bedeutendsten Reaktionen der Troposphäre, weil sie zur Bildung von troposphärischem Ozon führt. Weitere für die Troposphäre bedeutsame Photolysereaktionen gehen z.B. Ozon, Aldehyde und salpetrige Säure (HONO) ein. Verbindungen mit Absorptionsspektren im infraroten Wellenlängenbereich sind von untergeordneter Bedeutung, da die absorbierte Energie zu gering ist, um nennenswerte Radikalreaktionen zu starten [Guderian 2000].

Bei der zweiten Gruppe der chemisch *kinetischen Reaktionen* handelt es sich immer um bi-molekulare Reaktionen, d.h. es sind mindestens zwei Reaktionspartner beteiligt. Kinetische Reaktionen beinhalten folgende Typen:

- thermische Zersetzung
- Isomerisation
- und gewöhnliche Kollisionsreaktionen

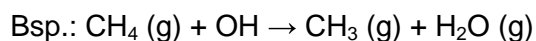
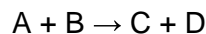
Von thermischer Zersetzung und Isomerisation spricht man, wenn die kinetische Energie der Kollision den energetischen Zustand eines Reaktionspartners erhöht, so dass er sich thermisch zersetzt oder isomerisiert. Bei der thermischen Zersetzung dissoziiert der angeregte Reaktionspartner in zwei oder mehr Produkte. Thermische Reaktionen benötigen zu ihrem Ablauf Licht [Guderian 2000]. Die Isomerisation bedingt eine Veränderung der chemischen Struktur des Reaktionsmoleküls ohne eine Änderung in der Zusammensetzung und dem Molekulargewicht. Es entsteht ein Reaktionsprodukt, das eine andere Form als der Ausgangsstoff besitzt [Guderian 2000].

Beispiel für eine thermische Zersetzung:



M ist der Stoßpartner, der die Kollisionsenergie liefert. Meist handelt es sich um N_2 und O_2 -Moleküle, die in der Atmosphäre in hohen Konzentrationen vorliegen. Reaktionen mit so genannten Stoßpartnern sind druckabhängig, da die Konzentration von M proportional zum Luftdruck ist. Thermische Zersetzungen sind temperaturabhängig. Bei hohen Temperaturen laufen sie in der Regel schneller ab als bei niedrigen Temperaturen [Guderian 2000].

Die bi-molekulare Kollisionsreaktion ist der häufigste Reaktionstyp in der Gruppe der kinetischen Reaktionen und findet zwischen zwei miteinander kollidierenden aktiven Reaktionspartnern statt.



In einigen Fällen resultieren bi-molekulare Reaktionen aus Kollisionskomplexen die schließlich zu Produkten auseinander brechen.



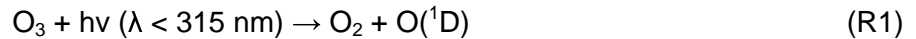
AB^* besitzt eine schwache Bindung und ist somit relativ instabil. Eine Doppelbindung indiziert, dass die Reaktion irreversibel ist. Ter-molekulare Kollisionsreaktionen – Reaktionen zwischen drei Reaktionspartnern – sind sehr selten, da die Möglichkeit einer simultanen Kollision von drei Spurengasen sehr gering ist [Guderian 2000].

3.3.1 Homogene Gasphasenreaktionen der Stickoxide

Die Oxide des Stickstoffes NO und NO_2 gehören zu den wichtigsten atmosphärischen Spurenstoffen, da sie an einer Vielzahl von chemischen Reaktionen beteiligt sind. Sie

kontrollieren die OH-Radikalkonzentration und beeinflussen damit die Selbstreinigungs-fähigkeit der Atmosphäre [Crutzen 1998]. Zusätzlich besitzen sie eine katalytische Funktion bei der troposphärischen Ozonproduktion und sind somit indirekt als auch direkt Bestandteil des photochemischen Smog.

Die Atmosphäre der Erde ist eine oxidierende Atmosphäre. Schon in relativ kurzen Zeiträumen werden die meisten Spurengase mit niedriger Oxidationszahl – darunter NO, CO, CH₄ etc – aufoxidiert. Verschiedene Oxidationsmittel steuern die Oxidationsprozesse in der Troposphäre. Das wohl wichtigste Oxidationsmittel in der Troposphäre ist das Hydroxylradikal OH, da es mit einer Vielzahl organischer und anorganischer Spurengase in Wechselwirkung treten kann [Crutzen 1998]. Das Hydroxylradikal wird durch Photolyse von Ozon bei Wellenlängen kleiner als 320 nm und anschließender Reaktion mit Wasser gebildet [Folkers 2001].

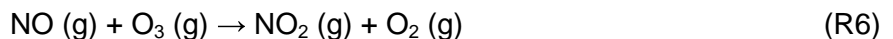
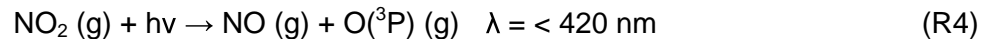


Die Konzentration der Hydroxylradikale in der Troposphäre hängt somit maßgeblich von der Ozonkonzentration und dem Wassergehalt ab. Der Abbau der verschiedenen Spurengase wird durch die Reaktion mit Radikalen eingeleitet. In Anwesenheit einer mit Stickoxiden hoch belasteten Atmosphäre wird durch die Reaktion des HO₂-Radikals (Hydroperoxyradikals) mit Stickstoffmonoxid Stickstoffdioxid gebildet.



Auf diese Weise wird ein OH-Radikal wieder regeneriert und kann in einer Folgereaktion für den weiteren Abbau von atmosphärischen Luftverunreinigungen, z.B. Methan, zur Verfügung stehen. Dazu bedarf es aber eines hohen NO-Mischungsverhältnisses, dass das OH/HO₂-Gleichgewicht auf die Seite des OH verschiebt [Folkers 2001].

Ein weiteres wichtiges Oxidationsmittel, dessen Produktion und Abbau hauptsächlich durch die Stickoxide gesteuert wird, ist Ozon (O₃). Die bedeutendste Quelle für die chemische Ozonproduktion in der Troposphäre ist die Photolyse von NO₂ bei Wellenlängen kleiner als 420 nm und anschließender Reaktion mit Sauerstoff.



Durch die Reaktion des gebildeten Ozons mit NO wird ein NO₂ Molekül regeneriert. Die Photolyse von Stickstoffdioxid stellt somit nur eine temporäre Senke für NO₂ dar. Umgekehrt gibt es auch keinen richtigen Verlust von Ozon, da dieses nach Reaktion 4 und 5 sofort wieder gebildet wird. Es stellt sich ein *photostationäres Gleichgewicht* (engl. photostationary state) ein, das erstmalig von Leighton beschrieben wurde.

$$[\text{O}_3]_{\text{ss}} = \frac{J_4 \times [\text{NO}_2]}{k_6 \times [\text{NO}]} \quad (\text{G1})$$

Die Einstelldauer des PSS ist im Wesentlichen durch die Photolyserate von NO₂ bestimmt und beträgt an sonnigen Tagen zur Mittagszeit etwa 100 Sekunden [Konrad 2000]. Da die Photolyse des Stickstoffdioxides nur bei Licht stattfinden kann, wird sich das PSS nur tagsüber einstellen. Das photostationäre Gleichgewicht ist charakterisiert durch eine zeitliche Konstanz der Spurenstoffkonzentrationen.

$$\frac{d[X]}{dt} = 0 \quad (\text{G2})$$

Diese Gleichgewichtsbeziehung gilt jedoch nur für eine momentan eingestellte Situation, da das PSS durch äußere Einflussfaktoren (z.B. Schadstoffemissionen oder Transport) permanent gezwungen wird sich neu einzustellen [IVU 2005].

Das photostationäre Gleichgewicht wird beispielsweise durch die Anwesenheit von Kohlenwasserstoffen in der Atmosphäre gestört. Beim Abbau der Kohlenwasserstoffe entstehen Hydroxyl- und Hydroperoxyradikale die mit Stickstoffmonoxid reagieren und dabei Stickstoffdioxid bilden [Folkers 2001].

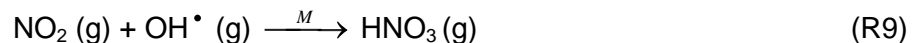
In einem ersten Schritt reagiert in Anwesenheit von Kohlenwasserstoffen ein OH-Radikal mit einem flüchtigen organischen Kohlenwasserstoff (RH) unter Bildung eines Alkylperoxiradikal (RO_2).



Ähnlich wie in Reaktion 3 reagiert anschließend das NO mit den in der Atmosphäre befindlichen RO_2 Radikalen. Es wird NO_2 und ein RO-Radikal gebildet, welches für weitere Abbaureaktionen zur Verfügung steht [Manschreck, 2004].

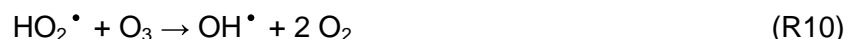


Im Ergebnis all dieser Radikalreaktionen kommt es zur Oxidation des Stickstoffmonoxids zu Stickstoffdioxid ohne den Verbrauch eines Ozonmoleküls. Wächst das NO_x -Mischungsverhältnis auf ca. 1 ppb und mehr an, dominiert die Reaktion des OH-Radikals mit NO_2 [Folkers 2001].



In Schadstoffbelasteten Gebieten ist diese Reaktion am Tag die wichtigste Abbruchreaktion der Gasphasenchemie in der Troposphäre, da sie zu einer endgültigen Entfernung des OH-Radikals und der Stickoxide durch anschließende Deposition führt. Die täglich durchschnittliche OH Konzentration in der sauberen freien Troposphäre beläuft sich zwischen 2×10^5 und 3×10^6 Moleküle pro cm^3 . In belasteter Luft liegen die OH Konzentrationen mit 1×10^6 bis 1×10^7 Molekülen pro cm^3 um ein Vielfaches höher.

Zusammengefasst, führt die Oxidation von flüchtigen organischen Kohlenwasserstoffen (engl. volatile organic compounds) in einer NO_x -haltigen Atmosphäre zu einer Netto-Ozonproduktion. Die Oxidation der Kohlenwasserstoffe in einer NO_x -armen Atmosphäre führt hingegen zu einer Ozondestruktion, da in diesem Fall das HO_2 über folgende Reaktion in OH konvertiert wird [Folkers 2001].



Die Abbildung 7 veranschaulicht noch einmal die wichtigsten troposphärischen Gasphasenreaktionen um das PSS unter Beteiligung der Stickoxide.

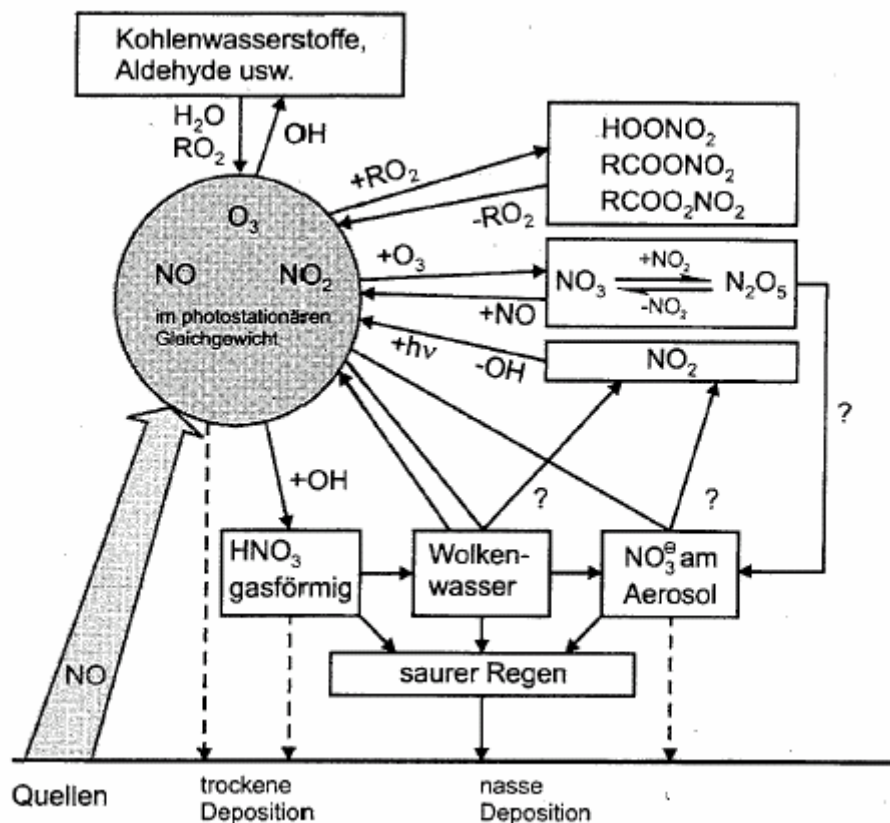
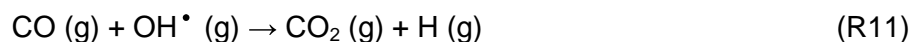


Abb.7 Reaktionen der Stickoxide in der Atmosphäre [Helbig 1999]

3.3.2 Bildung und Abbau von Ozon

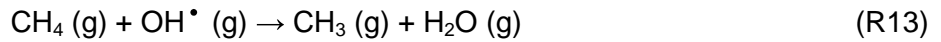
Die Messung der Ozonkonzentrationen in Abluffahrten von Ballungsgebieten ergeben höhere Ozonkonzentrationen als sie durch das photostationäre Gleichgewicht und damit die Stickoxidemissionen erklärt werden können. Die Netto-Ozonbildung ist also auch auf die Einflüsse weiterer Substanzen (CH₄, ROG, CO) zurückzuführen [Guderian 2000].

Bei diesen Substanzen handelt es sich vornehmlich um Kohlenmonoxid (CO), Methan (CH₄) und verschiedene organische Gase (NMVOC). Die genannten Gase regen die Ozonproduktion alle auf die gleiche Weise an, indem sie Radikale bilden, die in der Folge mit Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid reagieren. Kohlenmonoxid initiiert die Ozonproduktion über die folgenden Radikalreaktionen.



Im Anschluss an diese Reaktionen wird Stickstoffdioxid aus der Reaktion des HO₂-Radikals mit NO gebildet. Die Photolyse des Stickstoffdioxides führt wiederum zur Bildung eines Ozonmoleküls, ohne vorherigen Abbau eines Ozonmoleküls. Die Reaktion 11 ist ein weiteres Beispiel für die oxidative Wirkung des OH-Radikals in der Atmosphäre. Die Lebensdauer von Kohlenmonoxid in Abhängigkeit von der OH-Konzentration der freien Troposphäre beträgt 28 bis 110 Tage, so dass der Ablauf des PSS nur unwesentlich durch Kohlenmonoxid gestört wird [Jacobson 2002].

Methan ist das organische Gas mit der längsten Lebensdauer (8 bis 12 Jahren). Die lange Lebenszeit ist ein Grund für die gute horizontale und vertikale Durchmischung der Atmosphäre mit Methan bis in die Tropopausenregion. Über der Tropopause nimmt das Mischungsverhältnis stark ab. Der wichtigste troposphärische Verlustprozess von Methan ist die Reaktion mit OH-Radikalen, die in der Folge zur Ozonproduktion führt.



Bei der Verbindung CH_3O_2 handelt es sich um ein Methylperoxyradikal. Die Menge an Ozon über diesen Bildungsmechanismus ist klein verglichen mit der Menge aus dem PSS.

Andere organische Gase wie Ethan und Propan mit einem relativ hohen Mischungsverhältnis (0 bis 1 ppbv) und einer Lebensdauer von mehreren Tagen bilden ebenfalls durch Oxidation Radikale der Gruppe RO_2 . Diese Radikale reagieren in einer mit Stickoxiden belasteten Atmosphäre zu Stickstoffdioxid und führen so zur Produktion von Ozon [Jacobson 2002].

Ozonproduktion und -abbau finden in verschiedenen belasteten Luftmassen statt. Dabei spielt vor allem die Konzentration der Vorläufersubstanzen (Stickoxide und flüchtige organische Gase) die entscheidende Rolle.

Die höchsten anthropogenen Spurengaskonzentrationen werden im Lee der Stadtgebiete und Ballungsräume (im sogenannten „urban plume“) gemessen [Konrad 2000]. Die aufoxidierten Schadstoffspezies werden mit dem Wind ins Umland transportiert. In Stadtgebieten ist die Konzentration an Ozon sehr gering, da Stickoxidquellen mit überwiegendem NO-Anteil eine Senke für Ozon sind. Mit dem Wind werden die Stickoxide in emittentenferne Gebiete wie Stadtrandlagen, Grünflächen und das Umland transportiert. Während des Transportes kommt es zur Verteilung der Schadstoffe auf ein größeres unbelastetes Luftvolumen und damit zur Senkung der Konzentration durch Verdünnung. Zugleich wird NO während des Transports zu NO_2 oxidiert, so dass sich der Ozonabbau auf Grund der niedrigen NO-Konzentration verringert. Durch den verminderten Abbau ist die Ozonkonzentration in Emittentenfernen Gebieten relativ hoch, trotz geringerer Konzentration der Vorläufersubstanz NO_2 .

Hinzu kommt eine steigende VOC-Konzentration in den Stadtrandlagen und im Umland, weil Kohlenwasserstoffe während des Transportes kaum abgebaut werden und VOC aus biogenen Quellen hinzukommen [LFU Bayern 2004]. Beim Abbau der Kohlenwasserstoffe entstehen Hydroxylradikale, die mit dem verbleibenden Stickstoffmonoxid nach Reaktion 3 reagieren. Es kommt netto zu einer Ozonproduktion. Voraussetzung dafür ist die gute Durchmischung von Luftmassen mit hohem Stickoxidanteil und Luftmassen mit relativ hohem Anteil an Kohlenwasserstoffen. Wird das gebildete Ozon über weite Strecken transportiert, kommt es im Laufe des Transports zur Reduktion der Ozonkonzentration, beispielsweise durch trockene Deposition. Diese ist die wichtigste Senke für Ozon. Die Abbildung 8 zeigt die Ozonproduktion und den -abbau in Abhängigkeit von der Stickoxidkonzentration.

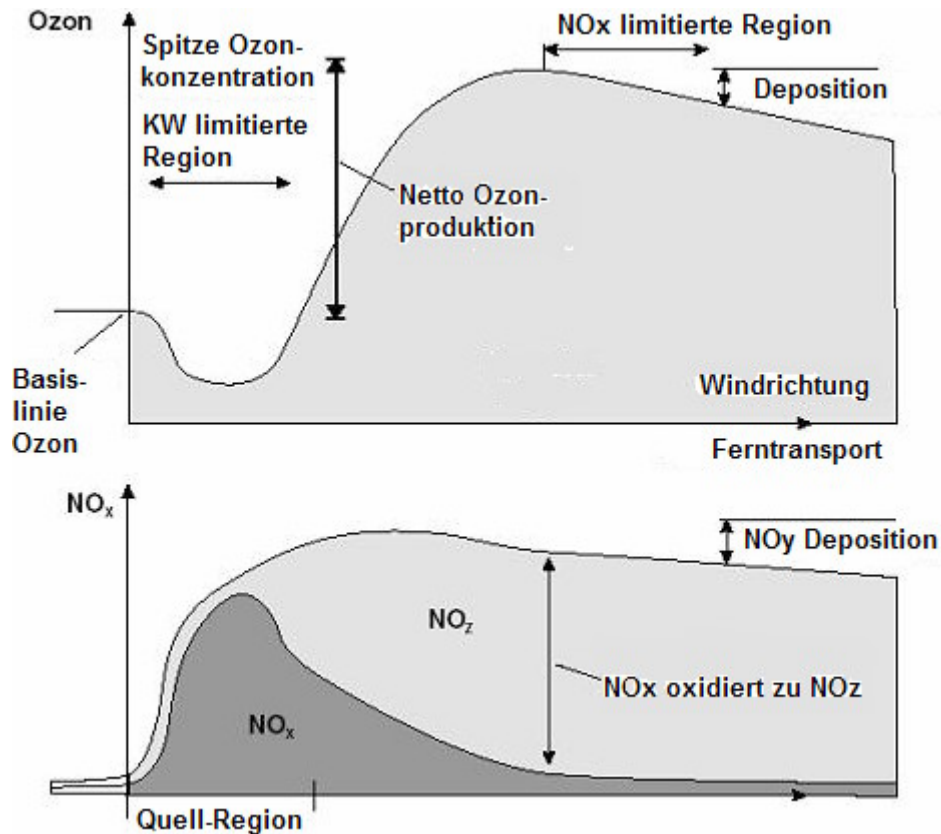


Abb.8 Ozoneinwirkung und -abbau in Abhängigkeit von NO_x [nach Solberg 2004]

Die Ozonekonzentration der bodennahen Atmosphäre wird durch die Einmischung aus der planetarischen Grenzschicht, den schubmäßigen Eintrag aus der Stratosphäre (stratosphärische Intrusion) und der In-situ-Produktion bestimmt.

Dieser Ansatz ist neu, gingen doch die Wissenschaftler vor drei Jahrzehnten noch davon aus, dass troposphärisches Ozon ausschließlich durch die Einmischung aus der Stratosphäre in die bodennahe Atmosphäre gelangt [Crutzen 1998]. Der Einfluss der Einmischung von Ozon aus der Stratosphäre ist zwar eine wichtige Ozonquelle für die freie Troposphäre, doch ist heute bekannt, dass der Einfluss auf die bodennahe Ozonekonzentration bei Photochemiebedingungen eher gering ist [Guderian 2000].

3.3.3 Photochemischer Smog

Photochemischer Smog ist ein komplexes Gemisch aus verschiedenen Photooxidantien und Aerosolen. Einige der Komponenten werden direkt emittiert, während andere über chemische und physikalische Reaktionen erst gebildet werden [Jacobson 2002]. Hauptkomponente des Photochemie Smogs ist mit einem Anteil von bis zu 90 % das Ozon. Daneben existieren weitere kurzlebige, hochreaktive Radikale und stabile Zwischen- oder Endprodukte des photochemischen und oxidativen Abbaus organischer Verbindungen wie Peroxyacetylnitrat PAN, Peroxybenzoylnitrat PBN, Formaldehyd und Ketone [LFU Bayern 2004]. Diese Verbindungen sind auf Grund ihrer geringeren Konzentration von untergeordneter Bedeutung.

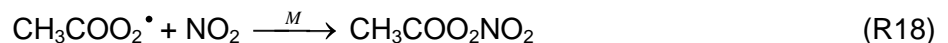
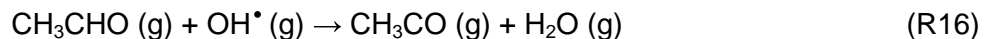
Die solare Strahlung liefert die Energie für die Bildung des photochemischen Smogs. Hohe Ozonwerte verbunden mit Smogperioden treten deshalb vor allem im Sommer bei hoher Sonneneinstrahlung und Windstille auf. Am höchsten sind die Smog-Konzentrationen in der Regel nachmittags zwischen 13:00 und 19:00 Uhr. Neben dem Einfluss des Sonnenlichts auf die photochemischen Reaktionen fördert auch die hohe Temperatur die Ozonproduktion, denn mit der Temperatur nimmt die Emission hochreaktiver Kohlenwasserstoffe aus der Phytosphäre und der Verdunstung von z.B. Lösemitteln stark zu [LFU Bayern 2004].

Die Bildung von Ozon aus den beiden Vorläufersubstanzen der Stickoxide und flüchtigen organischen Gase wurde bereits ausführlich erläutert. Deshalb wird in diesem Kapitel nur kurz auf die Bildung und den Zerfall der Peroxiacetylnitrate, einer weiteren wichtigen Substanz des Photo-smogs eingegangen.

PAN entsteht bei der Oxidation organischer Gase wie Ethan. Ein wichtiges Zwischenprodukt bei der Oxidation von Ethan ist Acetaldehyd (CH₃CHO), das über folgende Reaktion produziert wird.



Acetaldehyd ist eine Vorläufersubstanz des Peroxyacetylnitrates (PAN), einer Verbindung die in städtischen Luftmassen von 2 bis 100 pptv auf bis zu 1 ppbv ansteigen kann. In sehr verschmutzten Luftmassen z.B. bei Smogepisoden kann die Konzentration auf bis zu 35 ppbv ansteigen.



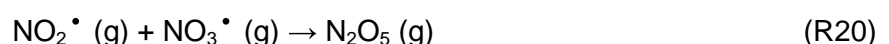
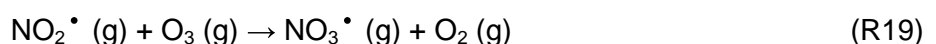
PAN hat seine größten Konzentrationen während des Nachmittags. In den Nachtstunden ist es nicht von Bedeutung, da es wie Ozon in Abhängigkeit von der solaren Strahlung gebildet wird [Jacobson 2002].

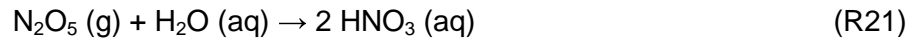
Der thermische Zerfall der Peroxinitrate lässt verschiedene Fragmente entstehen, wobei eine Möglichkeit des Zerfalls in der Umkehrung der Reaktion 18 besteht [Schurath 1987]. Die Umkehrreaktion ist abhängig von der Temperatur. Bei einer Temperatur von 300 K und Drücken von ca. 1013 hPa beträgt die Lebenszeit von PAN ca. 25 Minuten. Mit steigender Temperatur steigt auch die Lebensdauer [Jacobson 2002]. Je stabiler das Peroxyacetylnitrat – in Abhängigkeit von der Temperatur – umso größer ist die Zeitspanne zwischen Bildung und Zerfall und damit auch die räumliche Distanz, die das Molekül zwischen dem Ort der Bildung und dem Ort des Zerfalls zurücklegen kann. Auf diese Weise können Peroxyacetylnitrate Stickoxide in Reinluftgebiete eintragen und dort eine starke Ozonbildung verursachen [Guderian 2000]. Somit erhöht sich – nach dem thermischen Zerfall der Peroxinitrate – die effektive atmosphärische Lebensdauer der Stickoxide.

3.3.4 Multiphasenreaktionen und heterogene Reaktionen der Stickoxide

Neben den homogenen Gasphasenreaktionen gibt es in der Atmosphäre Reaktionen, die beispielsweise an flüssigen oder festen Oberflächen ablaufen. In der Atmosphärenchemie werden Reaktionen mit Beteiligung von kondensierter Materie in heterogene Prozesse und Multiphasenprozesse unterschieden. Multiphasenreaktionen sind Reaktionen, die im gesamten Tropfenvolumen ablaufen. Heterogene Reaktionen finden hingegen nur an der Partikeloberfläche statt [Folkers 2001]. Solche von den homogenen Gasphasenreaktionen verschiedenen Prozesse laufen in Verbindung mit der Chemie der Stickoxide vor allem nachts ab.

Die chemischen Reaktionen der Stickoxide unterscheiden sich während Tag und Nacht erheblich. In der Nacht findet auf Grund der fehlenden solaren Strahlung keine Photolysereaktion des Stickstoffdioxides statt. So setzt die Bildung von Ozonmolekülen oder OH-Radikalen aus und auch das photostationäre Gleichgewicht kommt zum Erliegen. Es kommt in der Folge in mehreren Reaktionsschritten zur Reaktion von Ozon mit Stickstoffdioxid unter Bildung von Salpetersäure HNO₃.





Die Bildung der Salpetersäure nach Reaktion 21 läuft an Aerosol- und Hydrometeor-Oberflächen ab. Die gute Wasserlöslichkeit von N_2O_5 bewirkt die Lösung in den Wolkentröpfchen oder Aerosolpartikeln und damit die Bildung von Salpetersäure [Folkers 2001]. Über die Deposition dieser Tropfen wird die Salpetersäure und damit die Stickoxide irreversibel aus der Atmosphäre entfernt. Die Bildung von Salpetersäure, die auch tagsüber stattfinden kann (vgl. Reaktion 9) ist die effektivste Senke für die Stickoxide.

Stickoxide sind ebenfalls an der Bildung von sekundären Aerosolen beteiligt. Aerosole können als Folge der Reaktion von Spurengasen und durch Kondensation von Gasen mit niedrigem Dampfdruck entstehen [Helbig 1999]. Ein kleiner Teil der SO_2 und NO_x -Emissionen bildet durch chemische Reaktion aerosolförmiges Sulfat bzw. Nitrat. Aerosole, die nicht direkt emittiert werden, sondern als Folge von Spurengasreaktionen entstehen, nennt man „sekundäre“ Aerosole. Ein Großteil der sekundären Partikel werden aus Ammoniumnitrat und Ammoniumsulfat aufgebaut [Guderian 2000]. Dabei reagiert HNO_3 mit Ammoniak zu Ammoniumnitrat-Aerosol. HNO_3 besitzt sowohl in der planetaren Grenzschicht als auch in der freien Troposphäre eine Lebensdauer von weniger als einem Tag [Folkers 2001]. Aus Schätzungen ergibt sich für eine mitteleuropäische Stadt eine jährliche sekundäre Aerosolbildung von ungefähr 3000 t für eine Stadt mit 100 000 Einwohnern [Helbig 1999]. Dies ist deutlich mehr als die direkte Emission von staubförmigem Aerosol durch Industrie, Kfz-Verkehr und Hausbrand.

Während sich die Reaktionsgeschwindigkeit von Gasphasenreaktionen proportional zur Konzentration der Ausgangsstoffe verhält, ist die Kinetik von Prozessen, an denen Partikel beteiligt sind, schwerer zu beschreiben. Neben dem spezifischen Oberflächen-/Volumenverhältnis hängt die Geschwindigkeit von heterogenen Reaktionen und Multiphasenprozessen oft auch von der chemischen Zusammensetzung der Oberfläche und ihrem Aggregatzustand ab [Folkers 2001].

3.4 Transport von Luftschadstoffen in der Troposphäre

Vertikale und horizontale Transportprozesse bestimmen die Ausbreitung atmosphärischer Spurengase und Partikel in der Atmosphäre und haben somit Einfluss auf die Immissionskonzentration von Luftschadstoffen. Der Transport von Luftschadstoffen findet in einem weiten raum-zeitlichen Maßstab statt. Dabei tragen kleinräumige Turbulenzen – in der Größenordnung von Millimetern und Sekunden – ebenso zur Durchmischung der Luft bei wie Frontensysteme mit einer Erstreckung von bis zu mehreren tausend Kilometern.

Der Transport von Luftmassen mit den darin enthaltenen Spurenstoffen und Partikeln wird in der freien Atmosphäre durch Druckgradienten ausgelöst. Aus der Druckdifferenz zwischen Gebieten mit hohem und tiefem Luftdruck resultiert eine Beschleunigung der Teilchen hin zum tiefen Luftdruck. Damit erklärt sich der Wind als eine Ausgleichströmung zwischen zwei Druckgebilden [Helbig 1999].

Neben der Druckgradientkraft, die die Strömung erzeugt, haben zwei weitere elementare Kräfte Einfluss auf die atmosphärische Strömung, nämlich die Gravitationskraft und die Reibungskraft. Daneben gibt es noch zwei weitere so genannte Scheinkräfte, die erst durch die Rotation der Erde entstehen und eine Ablenkung der Teilchen von der durch die Druckgradienten vorgegebenen Richtung bewirken.

Tab.3 Physikalische Kräfte der atmosphärischen Strömung

| Elementare Kräfte | |
|--------------------------|--|
| Druckgradientkraft | $\vec{F}_p = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p$ |
| Gravitationskraft | $\vec{F}_g = \vec{g}$ |
| Reibungskraft | $\vec{F}_r = \vec{\nabla} \times \tau_{i,j}$ |
| Scheinkräfte | |
| Coriolis-Kraft | $\vec{F}_c = -2\vec{\Omega} \times \vec{v}$ |
| Zentrifugal-Kraft | $\vec{F}_z = -\vec{\Omega} \times (\vec{\Omega} \times \vec{r})$ |

Die folgende Gleichung beschreibt den einfachen Zusammenhang zwischen einem Druckfeld und dem daraus resultierenden Windfeld:

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{F}_p + \vec{F}_g + \vec{F}_c + \vec{F}_r \quad (G3)$$

$d\vec{v}/dt$ beschleunigende Kraft

\vec{F}_p Druckgradientkraft

\vec{F}_g Schwerebeschleunigung

\vec{F}_c Corioliskraft

\vec{F}_r Reibungskraft

Die Reibungskraft, die durch die Oberflächenrauigkeit hervorgerufen wird (Bebauung, Waldflächen und Gebirge), entzieht der Strömung durch Dissipation Energie und bewirkt eine Abnahme der Windgeschwindigkeit nahe der Erdoberfläche. Die Reibungskraft ist für Strömungen in der freien Atmosphäre nicht von Bedeutung. Bei Annahme von Reibungsfreiheit und einer unbeschleunigten Horizontalbewegung ergeben sich folgende Terme:

Beschleunigungsfrei $d\vec{v}/dt = 0$

Horizontalbewegung $\vec{F}_g = 0$

Reibungsfreiheit $\vec{F}_r = 0$

Der Gleichgewichtszustand zwischen Druckgradientkraft und Corioliskraft wird als Geostrophischer Wind v_g bezeichnet. Der geostrophische Wind gilt in guter Näherung für den Wind oberhalb der atmosphärischen Grenzschicht [Helbig 1999].

3.4.1 Atmosphärische Grenzschicht

Die bodennahe Luftschicht unterliegt dem Einfluss der Erdoberfläche und unterscheidet sich somit grundsätzlich von der freien Troposphäre. Sie wird als *atmosphärische Grenzschicht* (engl. planetary boundary layer) bezeichnet. Die Entwicklung und Höhe der atmosphärischen Grenzschicht reagiert auf Änderungen der Oberflächenprozesse wie Evapotranspiration und Transport fühlbarer und latenter Wärme und ist abhängig von der Orographie und Rauigkeit.

Die Höhe der atmosphärischen Grenzschicht wird ferner von synoptischen Wetterlagen beeinflusst [Helbig 1999].

Die atmosphärische Grenzschicht erstreckt sich bis in die Höhe, in der keine relevanten Veränderungen der energetischen Flüsse durch den Erdboden mehr festgestellt werden können [Helbig 1999]. An der Obergrenze der atmosphärischen Grenzschicht beginnt die freie Höhenströmung, d.h. der geostrophische Wind, der von der Reibung gänzlich unbeeinflusst ist. Nach dieser Definition kann also keine feste Grenzschichthöhe angegeben werden. Die Höhe schwankt im Tages- und Jahresverlauf innerhalb eines Intervalls von wenigen Dekametern bei stabiler Schichtung und mehr als 1000 m über Grund bei sehr labiler Schichtung [Helbig 1999]. Über Wasserflächen existiert nur ein schwacher Tagesgang der Grenzschichthöhe, da die Oberflächentemperatur der Wasseroberfläche nur wenig im Tagesverlauf schwankt. Über Landflächen führt der größere Kontrast der Oberflächenaufheizung zwischen Tag und Nacht zu größeren Schwankungsbreiten. Die Höhe der atmosphärischen Grenzschicht ist um die Mittagszeit am größten, wenn die Luft- und Bodentemperatur ihr Maximum erreicht [Brasseur 2003].

Die atmosphärische Grenzschicht wird in die laminare Bodenschicht, die Prandtl-Schicht und die Ekman Schicht (Abbildung 9) unterteilt. Die *laminare Bodenschicht* hat für die Schadstoffausbreitung keine Bedeutung, da sie die unterste Schicht direkt über dem Erdboden von nur wenigen mm Höhe beschreibt. In der laminaren Bodenschicht findet ein Wärme- und Stofftransport ausschließlich durch molekulare Diffusion statt.

Die bodennahe *Prandtl-Schicht* (engl. surface layer) erstreckt sich bis in Höhen von 100 bis 200 m. In der Prandtl-Schicht gilt in erster Näherung eine konstante Schubspannung und ein turbulenter Austausch, der proportional zur Entfernung vom Erdboden ist. Unter diesen Bedingungen und unter der Annahme einer neutralen atmosphärischen Schichtung, nicht zu dichten und hohen Bodenstrukturen, horizontaler Homogenität und genügend großem Abstand von der Erdoberfläche ($z \gg z_0$) lässt sich über das logarithmische Windprofil die Horizontalgeschwindigkeit u in der Höhe z bestimmen.

$$u = \frac{u_*}{\kappa} \ln \frac{z}{z_0} \quad (G4)$$

| | |
|----------|------------------|
| u_* | Schubspannung |
| κ | Karman Konstante |
| z | Höhe über Grund |
| z_0 | Rauhigkeitslänge |

Gand allgemein nimmt der Wind mit zunehmendem Abstand vom Erdboden zu.

In der *Ekman-Schicht* wird nicht nur die Windgeschwindigkeit sondern auch die Windrichtung mit der Höhe modifiziert. Mit zunehmender Höhe nimmt die Windgeschwindigkeit zu und der bodennahe Wind dreht in die von der Reibung unbeeinflusste geostrophische Windrichtung ein. Die daraus resultierende Ekman-Spirale ist in der Abbildung 5 wiedergegeben. Je größer der Reibungseinfluss des Bodens auf die Strömung, umso stärker ist die Ablenkung des bodennahen Windfeldes von der Richtung der Höhenströmung [Helbig 1999].

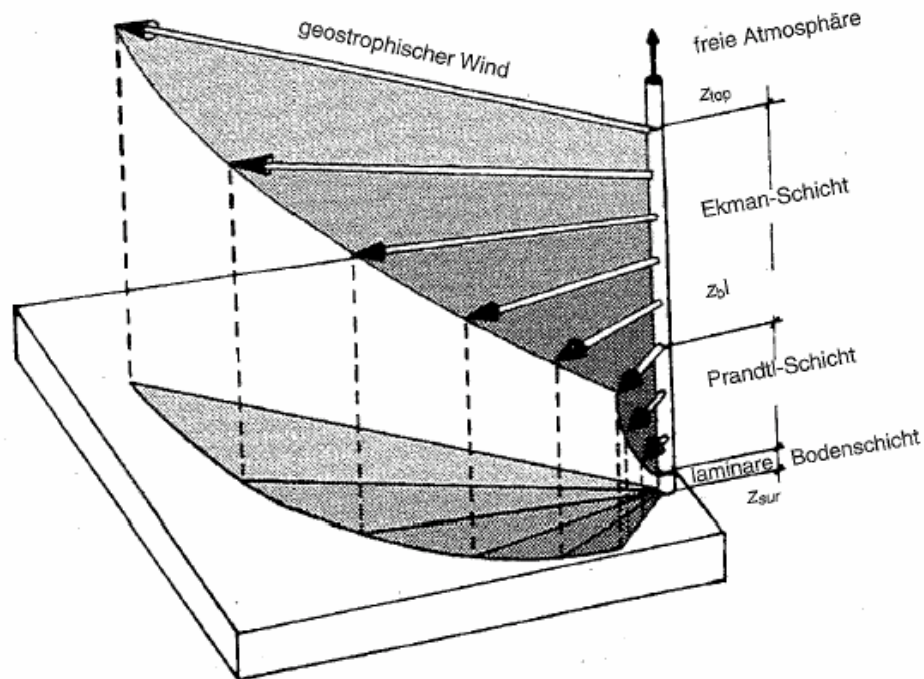


Abb.9 Änderung des horizontalen Windvektors in der Ekman-Spirale [Helbig 1999]

Eine effiziente Wärmeleitung bzw. Diffusion von Gasen in der atmosphärischen Grenzschicht wird durch turbulente Austauschprozesse erreicht. Turbulente Transportprozesse sind bis zu 10^5 -fach effektiver als der molekulare Austausch der laminaren Bodenschicht [Bendix 2004].

Der turbulente Vertikalaustausch von Luftpaketen ist eine Funktion von Windgeschwindigkeit, Rauigkeit der Unterlage und Schichtungsstabilität, die im Folgenden kurz erläutert wird.

3.4.2 Stabilität der Atmosphäre

Die vertikale Ausbreitung atmosphärischer Luftschadstoffe hängt ganz entscheidend von der atmosphärischen Schichtung (Stabilität) ab. Die Stabilität der Atmosphäre kann beispielsweise über die Temperaturschichtung definiert werden [Helbig 1999]. Dabei wird ein abgeschlossenes Luftvolumen betrachtet, das von der umgebenden Atmosphäre so abgegrenzt ist, dass keine Wärmeleitung oder Mischung mit der umgebenden Luft stattfindet [Liljequist 1979]. Wird dieses Luftpaket in vertikaler Richtung bewegt, dann durchläuft es eine adiabatische Zustandsänderung. Es sind 3 mögliche Zustandsänderungen bekannt:

Neutrale oder trocken-indiferente Temperaturschichtung

Die Temperaturabnahme in der Atmosphäre mit der Höhe entspricht dem trockenadiabatischen Temperaturgradienten von $\Gamma = 0,98 \text{ K}/100\text{m}$. Bei genügender Hebung und Abkühlung des Luftpaketes erreicht die relative Feuchtigkeit 100 % und das enthaltene Wasser beginnt zu kondensieren. Ab diesem Zeitpunkt nimmt die Temperatur nicht mehr so schnell ab wie vorher, da die latente Wärme des Wasserdampfes dem Luftpaket zugeführt wird [Liljequist 1979]. Es wird nun von einem feuchtadiabatischen Temperaturgradienten gesprochen. Für den Austausch von Luftteilchen bedeutet die neutrale Temperaturschichtung eine gute vertikale Durchmischung der Atmosphäre und damit gute Voraussetzungen für den Transport und die Verdünnung von emittierten Luftschadstoffen.

Labile Temperaturschichtung

Die Temperaturabnahme mit der Höhe ist größer als der trockenadiabatische Temperaturgradient $T > \Gamma$. Das Luftpaket, das sich adiabatisch abkühlt, ist wärmer als die umgebende Luftmasse. Damit ist eine weitere Beschleunigung in Richtung der anfänglichen

Bewegung verbunden. Für vertikale Austauschprozesse ist eine labile Temperaturschichtung sehr förderlich.

Stabile Temperaturschichtung

Die Temperaturabnahme in der Atmosphäre ist geringer als der trockenadiabatische Temperaturgradient $T < \Gamma$. Für den Austausch bedeutet das, ein sich adiabatisch abkühlendes Luftpaket gelangt bei seinem Aufstieg in eine wärmere Umgebungsatmosphäre, wird abgebremst und in die entgegengesetzte Richtung (Ausgangslage) beschleunigt. Bei der mechanischen Turbulenz werden die vertikalen Luftbewegungen gedämpft, wenn die atmosphärische Schichtung stabil ist. Je stabiler die Schichtung umso wirksamer die Dämpfung des Vertikaltransportes. Am wirksamsten werden Vertikalbewegungen von Inversionen unterdrückt [Liljequist 1979]. Inversionen sind eine Form der stabilen Schichtung, bei der die Temperatur mit der Höhe nicht ab-, sondern zunimmt [Helbig 1999].

Inversionen können auf unterschiedliche Art und Weise gebildet werden. Die häufigste Form der Inversion ist die nächtliche Strahlungsinversion, die sich bei einer negativen Strahlungsbilanz vom Erdboden aus bildet. In der zweiten Nachthälfte erreichen die Strahlungsinversionen ihre größten Mächtigkeiten verbunden mit einer geringen mechanischen Turbulenz [Bendix 2004]. Nach Sonnenaufgang baut sich die Inversion von der erwärmten Erdoberfläche aus wieder ab. Ferner können Inversionen durch die großräumige Absenkung von Luftschichten in Hochdruckgebieten (Absinkinversion) oder durch Advektionsvorgänge, wie beim Aufgleiten warmer Höhenluft über bodennahe Kaltluft, entstehen. Inversionen werden in Bodeninversionen und freie Inversionen (Höheninversionen) unterteilt (vgl. Abbildung 10 und 11). Während die Bodeninversionen direkt auf der Erdoberfläche aufliegen, befinden sich Höheninversionen in wenigen 100 m bis 1000 m Höhe über dem Erdboden. Sie unterbinden ebenso wie freie Inversionen mit ihrer stabilen Schichtung turbulente Prozesse.

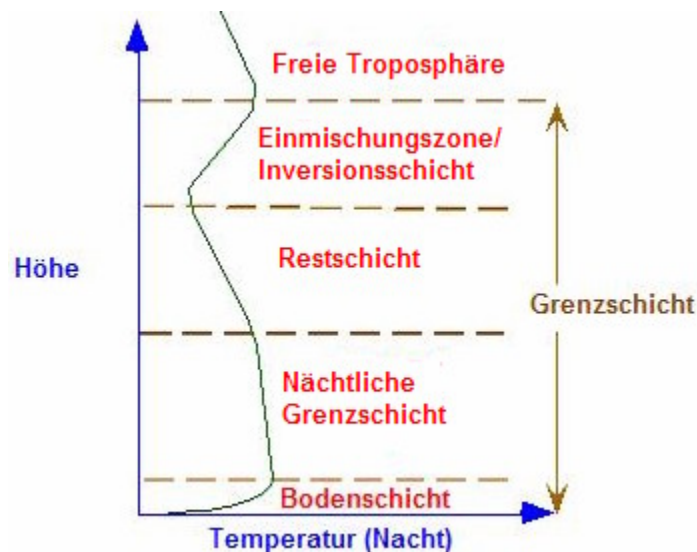


Abb.10 Nächtliches vertikales Temperaturprofil in der atmosphärischen Grenzschicht [nach Jacobson 2002]

Nach Sonnenaufgang baut sich von der erwärmten Erdoberfläche aus eine thermisch turbulente Mischungsschicht auf, die je nach Strahlungsintensität auf eine Mächtigkeit von 2000 bis 2500 m Höhe anwachsen kann (vgl. Abbildung 11). Die maximale Mischungsschichthöhe ist nach Bendix definiert als: „Das Höhenniveau, bei dem der thermische Auftrieb eines von der Erdoberfläche trockenadiabatisch aufsteigenden Luftpaketes zum Erliegen kommt“ [Bendix 2004]. Somit gibt die tägliche Mischungsschichthöhe das maximale Luftvolumen an bis zu dem Luftschadstoffe verdünnt werden können. Reste der Mischungsschicht bleiben nach Sonnenuntergang als Restschicht (engl. Residual layer) über der aufbauenden nächtlichen Bodeninversion bestehen [Bendix 2004].

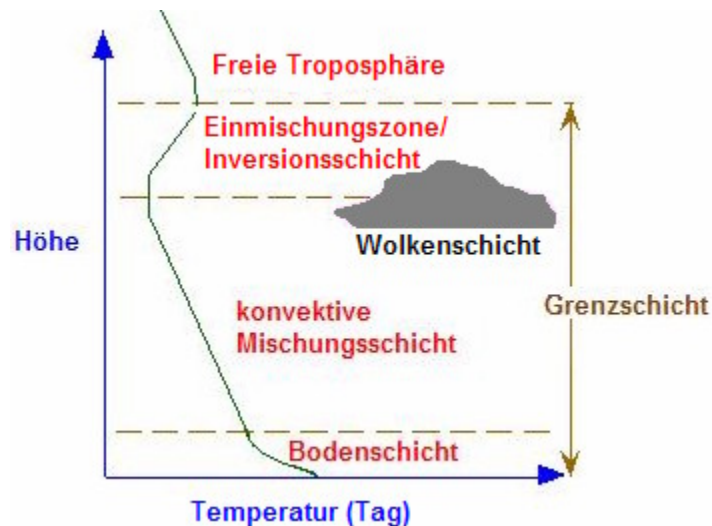


Abb.11 Vertikales Temperaturprofil in der atmosphärischen Grenzschicht am Tag [nach Jacobson 2002]

Die obere Begrenzung der Residual layer bildet die Einmischungszone (engl. Entrainment zone). Sie ist stabil geschichtet und trennt die Luftmassen aus der atmosphärischen Grenzschicht (pbl) von den Luftmassen der freien Troposphäre. Manchmal ist die Schicht so stabil geschichtet, dass sie als Inversion agiert und den Austausch der Luftmassen zwischen der atmosphärischen Grenzschicht und der freien Troposphäre unterbindet [Brosseur 2003]. In diesem Fall – der oftmals mit dem Auftreten einer Inversionswetterlage (Absinkinversionen) verbunden ist – können sich Luftschadstoffe über mehrere Tage hinweg in der bodennahen Atmosphäre anreichern. In der Folge treten an diesen Tagen hohe Luftschadstoffkonzentrationen verbunden mit möglichen Grenzwertüberschreitungen auf.

3.4.3 Transport und Durchmischung in der Stadtgrenzschicht

Das horizontale und vertikale Windfeld der atmosphärischen Grenzschicht hat wesentlichen Einfluss auf die klimatische und lufthygienische Situation in der Stadt sowie im Umland. Grundsätzlich unterscheidet sich das städtische Windfeld von dem des Umlandes, da das Windfeld durch die Bebauung eine Modifikation erfährt. Damit ergeben sich für Städte durch eine Veränderung der Strömungsverhältnisse andere Belüftungs- und Belastungssituationen. In Stadtgebieten wird das horizontale und vertikale Windfeld durch verschiedene Modifikationen der Oberfläche verändert. Dazu zählen:

- die Vergrößerung der Rauigkeit durch Bauwerke
- der Aufbau einer Hindernisschicht zwischen den Gebäuden durch veränderte Energieabgabe an die Atmosphäre, anthropogene Energieströme sowie Energiespeicherung in Baumaterialien und geringere Strahlungsverluste durch die dreidimensionale Stadtstruktur

Zwischen Umland und Stadt besteht ein Übergang von der weniger beeinflussten Umlandgrenzschicht (engl. rural boundary layer) zur stärker modifizierten Stadtgrenzschicht (engl. urban boundary layer). Dabei bildet sich vom Boden aufwärts eine durch den Stadteinfluss gestörte Grenzschicht aus, die stadteinwärts anwächst und nach größerer Entfernung über eine starke vertikale Mächtigkeit verfügt. Die städtische Grenzschicht gewinnt kontinuierlich an Höhe und erreicht im Lee in ca. 1000 m vom Stadtrand ihre größte Mächtigkeit mit bis zu 100 m. Die maximale Mächtigkeit dieser internen Grenzschicht ist abhängig vom Rauigkeitsunterschied zwischen Stadt und Umland und von der Fläche der dichten Innenstadtbebauung. Damit wird die Windgeschwindigkeitsabschwächung über dem Stadtgebiet abhängig von der Höhe über Grund und der Entfernung vom Stadtrand (vgl.

Abbildung 12). Des Weiteren baut sich zwischen den Gebäuden eine Stadthindernisschicht (engl. urban canopy layer) auf [Helbig 1999].

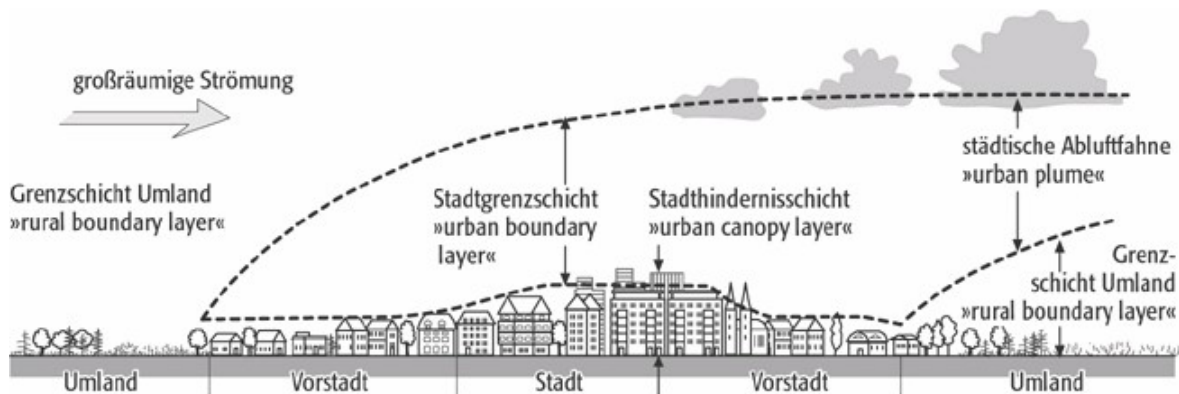


Abb.12 Aufbau der Stadtgrenzschicht [nach Oke 1995]

Bodennah stellt sich die Strömung sehr schnell auf die dichte Bebauung ein, mit dem Resultat einer starken Windgeschwindigkeitsverminderung. Die Verminderung der Windgeschwindigkeit hat Auswirkungen auf den Transport und die Durchmischung und damit auf die Anreicherung der Luft mit Schadstoffen. Der Einbruch der Windgeschwindigkeit auf mittlerem Dachniveau ist von besonderer Bedeutung für die Schadstoffkonzentration in Stadtgebieten, da die Windströmung wesentlich zur Verdünnung, Durchmischung und zum Transport der belasteten Stadtluft beiträgt. Die in Abbildung 12 dargestellten Vorgänge sind idealisiert. Sie verdeutlichen dennoch den Rückgang der Windgeschwindigkeit im Einflussbereich einer Stadt in Abhängigkeit von der Höhe. In der Realität erfährt das Windfeld durch eine allmähliche Stadtverdichtung und die Labilisierung der urbanen Grenzschicht durch Abwärme zusätzliche Modifikationen [Helbig 1999].

Die Rauigkeitselemente der städtischen Bebauung bewirken eine enorme Reduktion der Windgeschwindigkeit beim Auftreffen einer Strömung auf das Stadtgebiet. Dabei wird der Wind in Bodennähe am meisten abgebremst. Mit steigender Höhe über der Stadt sinkt auch die Windgeschwindigkeitsreduktion die sich durch die Reibung ergibt. Den schematischen Verlauf der mittleren Windgeschwindigkeit in verschiedenen Höhen über einer Stadt zeigt Abbildung 13.

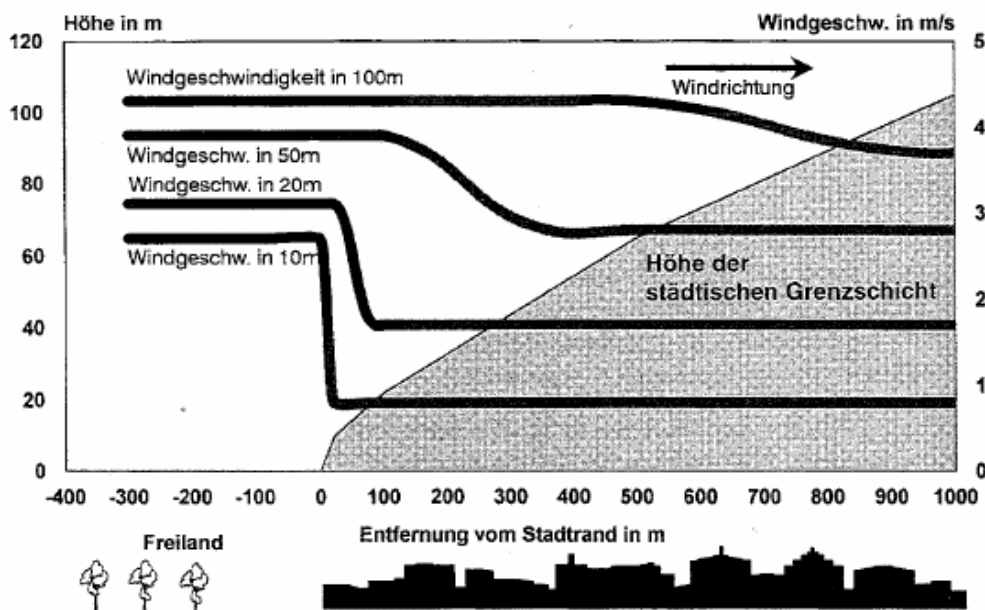


Abb.13 Beeinflussung der mittleren Windgeschwindigkeit in verschiedenen Höhen durch städtische Bebauung [Helbig 1999]

Neben der Windgeschwindigkeitsänderung bewirkt die Stadtbebauung auch eine Veränderung der Windrichtungsverteilung. Zunächst wird durch die zum Zentrum zunehmende Bodenrauigkeit eine Umströmung der Stadt bewirkt kleinräumig erfolgt die Umströmung einzelner Hindernisse. Die stärksten Richtungsänderungen ergeben sich in der Stadthindernisschicht, d.h. in der unmittelbar durch die Bebauung beeinflussten Schicht. Die Art der Strömung ergibt sich aus den Höhen-/Abstandsverhältnissen sowie den Lage-/Höhenverhältnissen. Nach Oke werden folgende Strömungsformen unterschieden:

- Strömung um isolierte Einzelhindernisse
- beeinflusste Wellenströmung und
- Gebäudeüberströmung

In Städten liegt häufig der Typ Gebäudeüberströmung vor, etwa bei Straßenschluchten oder Blockbebauung. Für die Strömungsverhältnisse und die Belüftung von Straßenschluchten sind neben dem Verhältnis von Höhe zu Breite auch der Winkel der Straßenachse zu Hauptwindrichtungen, die Varianz der Bebauungshöhen, die Dachneigung sowie Strömungshindernisse im Straßenraum von Bedeutung [Helbig 1999]. Die Windverhältnisse im Straßenraum werden hauptsächlich von der Anströmrichtung im Überdachniveau bestimmt. Bei Queranströmung (90° zur Straßenachse) entsteht innerhalb der Schlucht ein Rotor mit abwärtsgerichteter Strömung auf der Luv- und aufwärtsgerichteter Strömung auf der Leeseite (vgl. Abbildung 14). In der Nähe der Bodenoberfläche strömt der Wind genau entgegen zur Überdachwindrichtung. Die Rotorbildung bewirkt eine deutliche Geschwindigkeitsreduktion in Abhängigkeit von der vorherrschenden Bebauungsstruktur und der Höhe der Randbebauung.

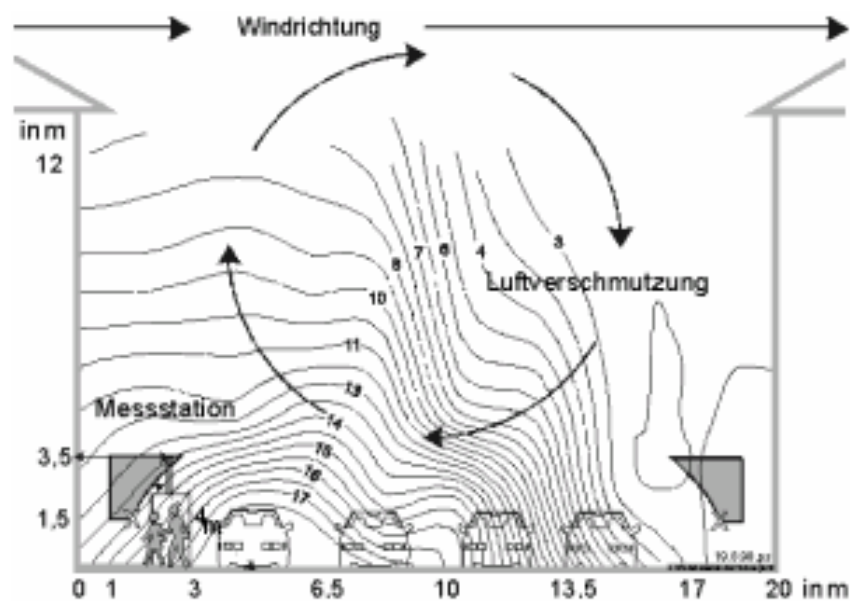


Abb.14 Windströmung in einer Straßenschlucht bei Queranströmung [Quelle: Senat Berlin]

Bei Längsanströmung (Anströmwinkel entspricht $\pm 20^\circ$ der Straßenachse) kommt es zur Kanalisierung des Windes in der Straßenschlucht. Die Windgeschwindigkeit wird nur wenig herabgesetzt und kann sogar erhöht werden. Bei schräger Anströmung des Windes im Überdachniveau überlagern sich die für Quer- und Längsanströmung besprochenen Effekte. Das Resultat ist eine schraubenförmige Rotorbildung in der Straßenschlucht [Helbig 1999].

Bei der Beurteilung der Immissionen in Straßenschluchten spielt die Wirbelbildung eine zentrale Rolle. Durch die damit einhergehenden Transportvorgänge werden Luv- und Leeseite einer Straße unterschiedlich belastet und die Verweilzeiten von Schadstoffen im Straßenraum erhöht. Je besser die Belüftung der Straße umso geringer ist die zu erwartende Schadstoffkonzentration. Bei einem Höhen-/Breitenverhältnis von $< 0,8$ und einer Straßenausrichtung in Hauptwindrichtung ist die Belüftung ausreichend. Bei einem Höhen-

/Breitenverhältnis von $> 1,0$ und/oder häufiger Queranströmung sind die Austauschverhältnisse eher ungünstig [Helbig 1999].

Nicht nur Straßenschluchten verursachen eine komplexe Veränderung im Windfeld auch Bauwerke die gegenüber der umliegenden Bebauung deutlich herausragen, z.B. Hochhauskomplexe, führen zur Modifikation des Windfeldes in der Stadthindernisschicht [Helbig 1999].

All diese Effekte auf das Windfeld überlagern sich innerhalb der Stadtbebauung und machen eine Untersuchung und Berechnung für die Windgeschwindigkeit und -richtung nur mit Hilfe von Windkanaluntersuchungen und Modellen möglich [Helbig 1999].

Die erhöhte Rauigkeit der Stadtoberfläche und die veränderten Energieströme bewirken eine erhöhte Turbulenzintensität. Dabei wird unterschieden zwischen mechanischer Turbulenz und thermischer Turbulenz. Für die thermische Turbulenz (Konvektion) ist in erster Linie der Strom fühlbarer und latenter Wärme und die anthropogene Wärmeabgabe an die untersten Luftschichten maßgebend, durch die eine Labilisierung der Luft eingeleitet wird. Die Wärmeabgabe vom Boden wird dabei stark vom Material seinem Wärmespeichervermögen und seiner Wärmeleitfähigkeit bestimmt. Da Stadtgebiete die eingestrahlte Energie in größerem Maß in fühlbare Wärme umsetzen, wird die thermische Turbulenz über dem Stadtbereich verstärkt. Als Folge ist z.B. bei der städtischen Wärmeinsel die Häufigkeit von Bodeninversionen herabgesetzt und abgehobene Bodeninversionen treten auf.

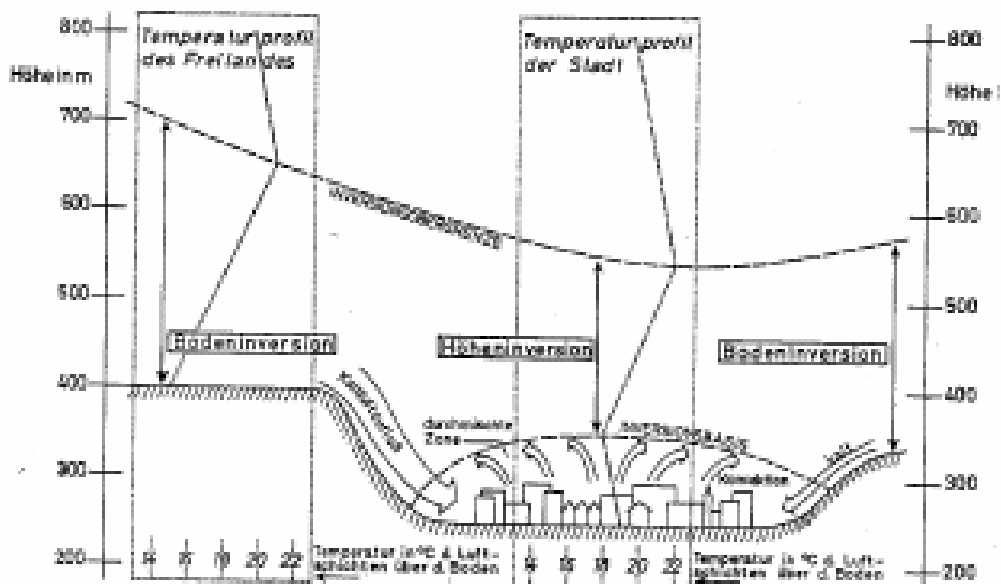


Abb.15 Vertikale Temperaturprofile über dem Freiland und einer Stadt in Tallage in einer Strahlungsnacht [Helbig 1999]

Die mechanische Turbulenz erfährt ebenfalls eine Veränderung in Stadtgebieten. Eine Vergrößerung der Schubspannung durch die Rauigkeit der Oberfläche bewirkt eine verstärkte mechanische Turbulenz [Helbig 1999]. Damit lässt sich der Vertikalaustausch der Luftmassen bei gleichzeitiger Verringerung der Horizontalgeschwindigkeit verbessern. Je nach Windgeschwindigkeitsverteilung und Schichtung kann durch die stärkere vertikale Durchmischung eine Verdünnung oder eine Erhöhung von Schadgaskonzentrationen, in Abhängigkeit von der Quellhöhe, erzielt werden.

4 Datengrundlage

4.1 Auswahl und Dokumentation der Messstellen

Die Messung und Überwachung der Luftqualität ist in Deutschland Sache der Bundesländer. Sie betreiben Messnetze zur Ermittlung der Luftqualität (Immissionskonzentration) auf der Grundlage des Bundes-Immissionsschutzgesetzes und seiner Verordnungen. In Deutschland gibt es neben den 16 Messnetzen der Länder noch ein weiteres Messnetz des Umweltbundesamtes, das der Ermittlung der großräumigen Luftschadstoffkonzentration dient.

Das Immissionsmessnetz Baden-Württemberg wird im Auftrag des Umweltministeriums Baden-Württemberg vom Zentrum für Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Gerätesicherheit (UMEG) betrieben. Die UMEG – als Teil der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg (LUBW) – unterscheidet zwischen langjährig messenden stationären Messstellen, den so genannten Dauermessstellen, und Spotmessungen. Die Spotmessungen dienen der Erfassung verkehrsbedingter Schadstoffe (NO_x , CO, PM_{10}) an hochfrequentierten Straßen über einen Zeitraum von Monaten bis Jahren. Die stationären Messstellen (vgl. Abbildung 66 Anhang) sind flächendeckend über das Bundesland verteilt, wobei die Stationsdichte in den Ballungsgebieten Stuttgart, Mannheim und Karlsruhe am höchsten ist. Die Verteilung der Messstellen hat ein repräsentatives Bild der Luftqualität für das gesamte Bundesland mit einer feineren Auflösung der Luftbelastung in den Ballungszentren zur Folge.

Die räumliche und zeitliche Verteilung der Luftschadstoffe ist abhängig von der Entfernung und Stärke der Emissionsquellen und den Transformationsprozessen in der Atmosphäre. Die Lage der Messstelle spiegelt all diese Faktoren in der Höhe der Immissionskonzentration wieder. Somit unterscheidet sich die Verteilung der horizontalen Schadstoffkonzentration eines primären anthropogenen Luftschadstoffes zwischen Stadt und Umland (vgl. Abbildung 16).

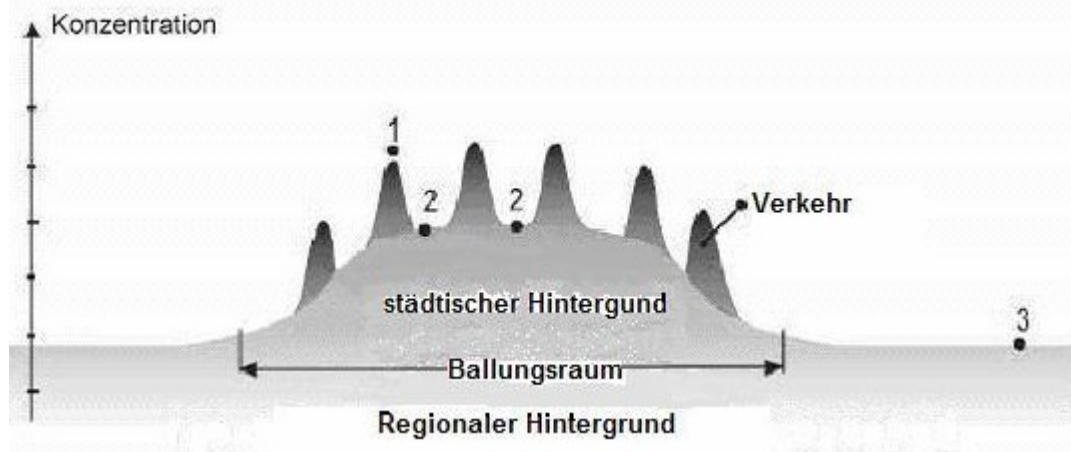


Abb.16 Schematisches Profil der horizontalen Schadstoffverteilung über einer Großstadt [nach Spangl et al. 2005]

Regionen fernab von Emittenten, in die Luftschadstoffe überwiegend durch Transportvorgänge gelangen, werden als Reinluftgebiete (3) oder auch als ländlicher Hintergrund bezeichnet. Diese Gebiete haben eine sehr geringe Immissionsbelastung an primären Luftschadstoffen. Die Immissionskonzentration sekundärer Luftschadstoffe wie Ozon kann gegenüber Ballungsgebieten deutlich erhöht sein.

Der städtische Hintergrund (2) bildet die Immissionsbelastung repräsentativ für das gesamte Stadtgebiet ab. Die großräumig in der Stadt existierende Grundbelastung wird durch alle relevanten regionalen Quellen und zusätzlich durch den großräumigen ländlichen Hintergrund bestimmt.

Neben den regionalen Unterschieden gibt es in der Stadt auch kleinräumige Unterschiede in den Immissionskonzentrationen. Grund sind lokale Emittenten wie der Straßenverkehr. Die lokale Belastung (1) an diesen so genannten „hot spots“ spiegelt neben der städtischen Luftbelastung auch die Emissionsbeiträge aller relevanten Emittenten in unmittelbarer Nähe der Messstelle wider. An den „hot spots“ werden die höchsten Luftschadstoffbelastungen gemessen.

Nach dieser Unterscheidung setzt sich die Stickstoffdioxidkonzentration an einer Verkehrsmessstelle (hot spot) aus der städtischen Hintergrundbelastung (Summe überregionaler und städtischer Beitrag) und der lokalen Zusatzbelastung zusammen.

Um der unterschiedlichen Immissionsbelastung gerecht zu werden und eine einheitliche Stationsklassifizierung in der Europäischen Union (EU) zu gewährleisten, werden die Messstationen nach dem „Eol-Verfahren“ (engl. Exchange of Information) der Europäischen Umweltagentur in neun Kategorien mit der Unterscheidung zwischen Gebietstyp (Stadt, Vorstadt und ländlich) und Stationstyp (Hintergrund, Industrie und Verkehr) eingeteilt. Die Unterscheidung nach diesem Verfahren erlaubt eine erste grobe Abschätzung zur Höhe der Emissionsbelastung und daraus resultierend der Immissionskonzentration. Eine Klassifikation der Messstellen nach dem „Eol“-Verfahren erfolgte bereits durch das Umweltbundesamt, so dass auf diese Einteilung bei der Stationsauswahl zurückgegriffen werden konnte.

Auswahl der Messstationen

Das Hauptkriterium für die Wahl der betrachteten Messstationen war die Überschreitung des ab 2010 gültigen NO₂-Jahresmittelgrenzwertes von 40 µg/m³. Die von der UMEG ausgewiesenen vier Verkehrsmessstellen in Stuttgart, Karlsruhe, Mannheim und Freiburg sowie die Luftmessstation Stuttgart Zuffenhausen haben dieses Kriterium erfüllt.

Um die Zusatzbelastung durch den Straßenverkehr quantifizieren zu können, muss die großräumige städtische Hintergrundkonzentration von Stickstoffdioxid bekannt sein. Deshalb wurde zu jeder Verkehrsstation eine Messstation im städtischen Hintergrund ausgewählt. Die großräumige überregionale Belastung wird an Hand zweier Reinluftmessstationen dokumentiert. Die vollständige Dokumentation der verwendeten Messstationen mit Lagebeschreibung befindet sich im Anhang A.

Der Untersuchungszeitraum reicht für die Dauermessstellen von 1995 bis 2004, da die Messungen der Verkehrsmessstellen erst Ende 1994 begann.

Neben den Dauermessstellen gibt es eine Reihe von Spotmessstellen, die den ab 2010 gültigen NO₂-Grenzwert (1h-Grenzwert oder Jahresmittelgrenzwert) 2004 um ein Vielfaches überschritten. Aus diesen Spotmessungen wurden die Stuttgarter Spotmessungen herausgesucht und näher betrachtet. Die Spotmessungen begannen im Jahr 2004, deshalb muss auf eine Zeitreihenanalyse verzichtet werden. Das Augenmerk der Arbeit liegt somit auf den vier Verkehrsmessstationen, welche durch die UMEG 1995 zur Dokumentation der verkehrsbedingten Schadstoffbelastung im Innerortsbereich aufgestellt wurden. Welche meteorologischen und luftchemischen Parameter von den Stationen gemessen werden, ist detailliert dem Anhang A zu entnehmen und soll hier nicht weiter ausgeführt werden. Die Lage der verwendeten Stuttgarter Messstellen ist der Abbildung 67 (Anhang) zu entnehmen.

Der Einfluss der Meteorologie auf die NO₂-Immissionskonzentration wird für die Stadt Stuttgart untersucht, da die Messnetzdicke (Luftgütemessstellen und Klimamessstellen) sehr hoch ist und zusätzlich Radiosondenaufstiege des DWD an der Klimastation Schnarrenberg zur Verfügung stehen.

Der Untersuchungszeitraum reicht vom 1. Januar 2004 bis zum 31. Dezember 2004. Somit können, wenn vorhanden, jahreszeitliche Effekte in den Ausbreitungsbedingungen sichtbar gemacht werden.

Für den Untersuchungszeitraum werden Messdaten von acht Stuttgarter Messstellen untersucht. Dabei handelt es sich um von der UMEG durchgeführte Spotmessungen und um

drei kontinuierlich betriebene Dauermessstellen. Weiterhin wurden die Luftschadstoffdaten für die Überdachmessstation Stuttgart Schwabenzentrum ausgewertet, die freundlicherweise vom Amt für Umweltschutz, Abteilung Stadtklimatologie der Stadt Stuttgart zur Verfügung gestellt wurden. Alle verwendeten Stationen und Spotmessungen werden im Anhang A ausführlich beschrieben.

An der Klimastation Stuttgart Schnarrenberg werden vom Deutschen Wetterdienst (DWD) zweimal pro Tag – 0 Uhr und 12 Uhr UTC – Radiosondenaufstiege vorgenommen. Dabei werden von der Radiosonde meteorologische Parameter wie Temperatur, relative Feuchte und der Windvektor im vertikalen Profil ermittelt und an die Bodenstation gefunkt. Für das Jahr 2004 wurden die Daten der Radiosondenaufstiege vom DWD zur Verfügung gestellt.

Die vollständigen Namen der Stationen, wie sie dem Anhang A zu entnehmen sind, werden im Text und in den Grafiken beibehalten.

4.2 Datenauswertung und Datenverfügbarkeit

Die folgenden Auswertungen beruhen ausschließlich auf den von der LUBW und vom Amt für Umweltschutz Stuttgart bereitgestellten Messwerten der Immissionskonzentration und meteorologischen Parameter. Die Daten der Dauermessstellen konnten von der Internetseite der LUBW in Form einer Textdatei herunter geladen werden. Anschließend wurden die Daten aufbereitet und in Excel-Formate überführt. Alle anderen Daten (Amt für Umweltschutz und DWD) lagen bereits in einer Excel-Datei vor.

Die Messwerte der Dauermessstellen liegen als halbstündige Konzentrationswerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ vor. Für die Jahre 1994 bis 1999 erfolgte von der LUBW die Normierung der Luftschadstoffe NO und NO₂ auf 0°C, vor 1994 und ab 2000 wurde auf 20°C normiert, so dass hier eine Korrektur der betreffenden Schadstoffe zwischen 1994 und 1999 auf 20°C vorgenommen wurde. Die Messwerte der Station Stuttgart Schnarrenberg sind im betrachteten Zeitraum durchgehend auf 20°C normiert. Die Messwerte der Spotmessungen liegen als Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, normiert auf 20°C, vor.

Regelmäßige Kalibrierung und Wartung sowie allgemeine Ausfälle der Messgeräte führen zu einem Datenverlust. Die Anforderungen der 22. BImSchV an die Qualität der Daten sehen für die kontinuierliche Messung der Stickoxide vor, dass 90 % der Messwerte zur Auswertung vorliegen müssen (Mindestdatenerfassung). Die Vollständigkeit der Originalzeitreihen von NO und NO₂ wird für die Dauermessstellen in den Tabellen 11 bis 14 (Anhang) dargestellt.

Vom Deutschen Wetterdienst wurden für das Jahr 2004 die vertikalen Profile von Temperatur, relativer Feuchte und Windvektor der Radiosondenaufstiege für den 0 Uhr und 12 Uhr UTC Termin zur Verfügung gestellt. Die Tabelle 15 (Anhang) gibt für jeden Monat die Vollständigkeit des gemessenen Datensatzes an. Die vorhandenen Datensätze sind bis auf September 2004 in allen Monaten unvollständig, wobei im Juli und August nur 79 % und 84 % der maximal möglichen Datensätze vorhanden sind.

In einer Access Datenbank wurden alle Stationsdaten zusammengefasst und über Abfragen miteinander verknüpft. Die Verknüpfungen erfolgten jeweils zwischen den Hintergrundmessstellen, zu denen auch die Station Stuttgart Schwabenzentrum zählt und den zugehörigen Verkehrsbeeinflussten Messstellen. Somit können die meteorologischen und luftchemischen Parameter (z.B. Ozon) der Hintergrundmessstationen mit denen an der Straßenstation zeitgleich betrachtet werden. Da bei der meteorologischen Untersuchung in Stuttgart zwei Hintergrundstationen zur Verfügung stehen, wird im Text ausdrücklich erwähnt, welche Station verwendet wurde. Die grafische Aufbereitung der Daten erfolgte ausschließlich in Excel.

5 Zeitreihen der Immissionskonzentration ausgewählter Luftschadstoffe

Um die zukünftige Immissionssituation des Luftschadstoffes NO_2 in Baden-Württemberg beurteilen zu können, muss die zeitliche Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration der letzten Jahre bekannt sein. Ferner spielt auch die Entwicklung anderer atmosphärischer Spurenstoffe, die in enger Beziehung zu NO_2 stehen, eine große Rolle. Zu diesen Spurenstoffen gehören Stickstoffmonoxid und Ozon.

Die Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration wird hauptsächlich vom Emissionsverhalten der verschiedenen Quellgruppen gesteuert. Von besonderer Bedeutung ist deshalb die Betrachtung der Stickoxid-Immissionskonzentration (NO_x), da diese Größe die Entwicklung der NO_x -Emissionen am besten kennzeichnet. Für die Stickoxide werden die Zeitreihen der Immissionskonzentrationen der Verkehrsmessstationen und der Messstationen im städtischen Hintergrund gegenüber gestellt.

5.1 Entwicklung der NO_x -, NO -, NO_2 - und Ozon-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen

In diesem Kapitel soll die Langzeitentwicklung der Stickoxid-Immissionskonzentration an acht ausgewählten Messstationen im Zeitraum 1995 bis 2004 untersucht werden. Grundlage dafür sind Jahresmittelwerte aus Halbstundenwerten für die im Anhang A aufgeführten Luftmessstationen des amtlichen Luftmessnetzes Baden-Württemberg. Für jeden Ballungsraum wurden je eine Station im städtischen Hintergrund und eine Verkehrsstation ausgewählt.

Die Jahresmittelwerte wurden direkt aus den vorliegenden Halbstundenwerten gebildet. Durch Messausfälle und notwendige Kalibrierungen sind die Datensätze lückenhaft. Wie groß die Lücken in den Originalzeitreihen sind, wird in den Tabellen im Anhang B wiedergegeben. Bei einer Untersuchung des Meteorologischen Institutes der Universität Freiburg wurde deutlich, dass der Anteil der Datenlücken immer geringer wird. Zu Beginn der 1990er Jahre und in den 1980er Jahren erreichten die Datenlücken eine Häufigkeit von über 10 % [Mayer 2001].

In den Datensätzen vorhandene Datenlücken wurden nicht ersetzt. Die Plausibilität der Messwerte wurde nur in sofern geprüft, dass auftretende negative Messwerte gleich Null gesetzt wurden. Ferner wurden die Immissionskonzentrationen von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid der Jahre 1995 bis 1999, die in diesem Zeitraum auf 0°C normiert waren, auf 20°C umgerechnet.

Für jede der acht Messstationen enthalten die folgenden drei Abbildungen die komponentenspezifischen Jahresmittelwerte. Dabei werden die Jahresmittelwerte vor allem durch die jährliche Emissionssituation und die vorhandene Witterung geprägt.

Die Abbildung 17 gibt einen ersten Überblick über die Entwicklung der Stickoxid-Immissionskonzentration der letzten 10 Jahre an den vier ausgewählten Verkehrsmessstationen und den zugehörigen Hintergrund-Stationen. Betrachtet man die NO_x -Immissionskonzentration, so ist an allen Stationen ein negativer Trend mit jedoch unterschiedlichem Betrag erkennbar. Besonders stark ist der Rückgang der NO_x -Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen. Dort sank die NO_x -Immissionsbelastung gegenüber dem Referenzjahr 1995 um 30 bis 50 %. Auch an den Hintergrundstationen ist ein Rückgang der NO_x -Immissionskonzentration mit max. 40 % im gleichen Zeitraum beobachtbar.

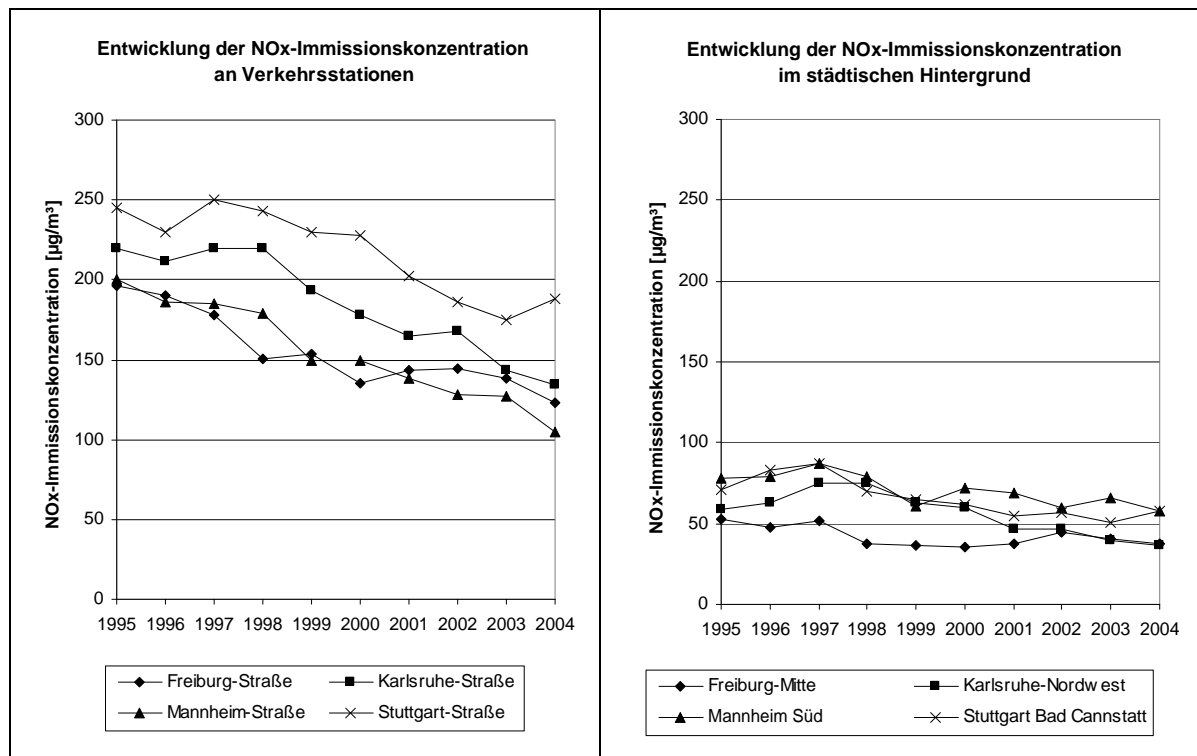


Abb.17 Entwicklung der NO_x-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

Die hohe Reduktion der NO_x-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen kann auf die verbesserten technischen Maßnahmen zur Abgasminderung im Verkehrssektor zurückgeführt werden. Verkehrszählungen liegen an den Verkehrsmessstationen nur für das Jahr 2004 vor, wobei die mittlere tägliche Verkehrsstärke (DTV) an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz mit 45.500 Fahrzeugen weitaus größer ist als in Freiburg, wo der DTV-Wert bei 14.000 liegt. Diese Verkehrsstärken haben natürlich einen maßgeblichen Einfluss auf die Höhe der Immissionskonzentration der Stickoxide. 2004 lag die NO_x-Immissionskonzentration an der Verkehrsstation Stuttgart deutlich über der der Station Freiburg. Karlsruhe – mit einem DTV von 29.500 Fahrzeugen – liegt bei der NO_x-Immissionskonzentration zwischen den Stationen Stuttgart und Freiburg.

Betrachtet man die Entwicklung der NO-Immissionskonzentration (siehe Abbildung 18), fällt auf, dass NO an der jeweiligen Verkehrsmessstelle deutlich stärker als NO_x zurückgeht. Dies lässt sich auf den überwiegenden Anteil von NO im Abgas der Fahrzeuge zurückführen. Die Summe der Stickoxide sinkt nicht so stark, da auch die NO₂-Immissionskonzentration den Trend mitbestimmt. Bei der NO-Immissionskonzentration ist der Trend an allen acht Messstationen rückläufig. An den Verkehrsmessstationen ist der Rückgang der NO-Immissionskonzentration besonders deutlich. Er ist an allen Stationen höher als der Rückgang der NO_x-Immissionskonzentration. An der Station Stuttgart-Straße ist die NO-Immissionskonzentration im Jahr 2004 gegenüber 2003 leicht angestiegen. Der gleiche Anstieg spiegelt sich auch bei der NO_x-Immissionskonzentration wieder. Eventuell liegt diesem Ergebnis ein wachsendes Verkehrsaufkommen zugrunde, dies kann jedoch auf Grund fehlender Verkehrszählungen nicht geprüft werden.

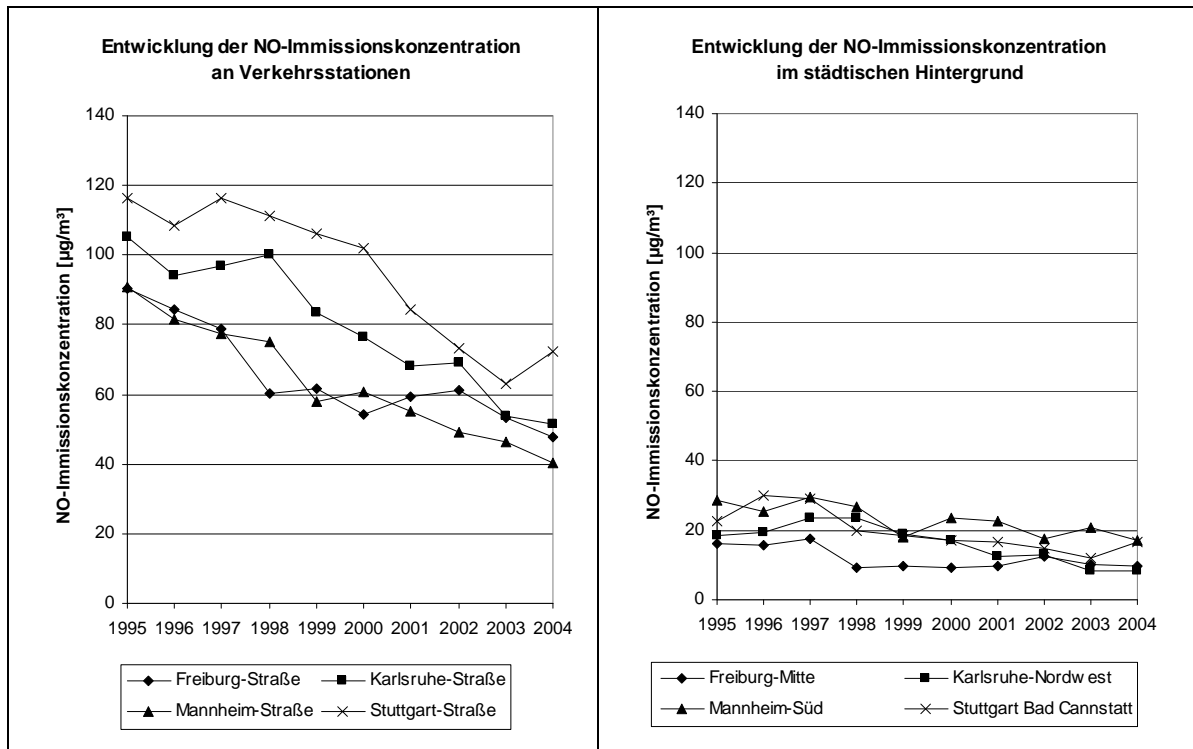


Abb.18 Entwicklung der NO-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

Die Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstationen zeigt keine einheitliche Tendenz. Wie in Kapitel 2 bereits erwähnt wurde, gibt es neben sinkenden auch stagnierende oder sogar steigende Trends der NO_2 -Immissionskonzentration. Die Abbildung 19 links zeigt die Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration an den vier Verkehrsmessstellen in Baden-Württemberg. Die Station Stuttgart Arnulf-Klett ist die einzige Messstation in Baden-Württemberg, an der auf Grundlage der Zeitreihe ein steigender Trend für den Luftschadstoff NO_2 zu beobachten ist. Ein deutschlandweiter Vergleich zeigt, dass es weitere überwiegend verkehrsnaher Messstationen gibt, an denen die NO_2 -Konzentration stagniert oder sogar ansteigt, z.B. die Station München Stachus.

An den Verkehrsstationen Mannheim und Freiburg nimmt die NO_2 -Immissionskonzentration deutlich ab. Der JMW 2004 an der Station Mannheim-Straße ist nach Angaben der UMEG nicht repräsentativ für die Entwicklung der NO_2 -Konzentration, da im Jahr 2004 umfangreiche Baumaßnahmen in der Umgebung der Messstelle durchgeführt wurden, die zu einer veränderten Verkehrsführung und damit zu einer deutlichen Abnahme der durchschnittlichen täglichen Verkehrsstärke führten. Es gibt somit drei unterschiedliche Entwicklungstendenzen, die möglicherweise auf unterschiedliche und nur für die Station spezifische Ursachen zurückzuführen sind. Ob sich bezüglich der Entwicklung der luftchemischen Faktoren allgemeine Aussagen für die vier Verkehrsmessstationen ableiten lassen, wird in Kapitel 6 untersucht.

Die Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration an den zugehörigen Messstellen des städtischen Hintergrundes ist an allen Stationen leicht zurückgegangen. In Bezug zum Referenzjahr konnte ein Rückgang von 9 % in Mannheim bis zu 25 % in Karlsruhe erreicht werden. Seit 1998 wird an diesen vier Messstationen der ab 2010 gültige NO_2 -Jahresmittelgrenzwert unterschritten.

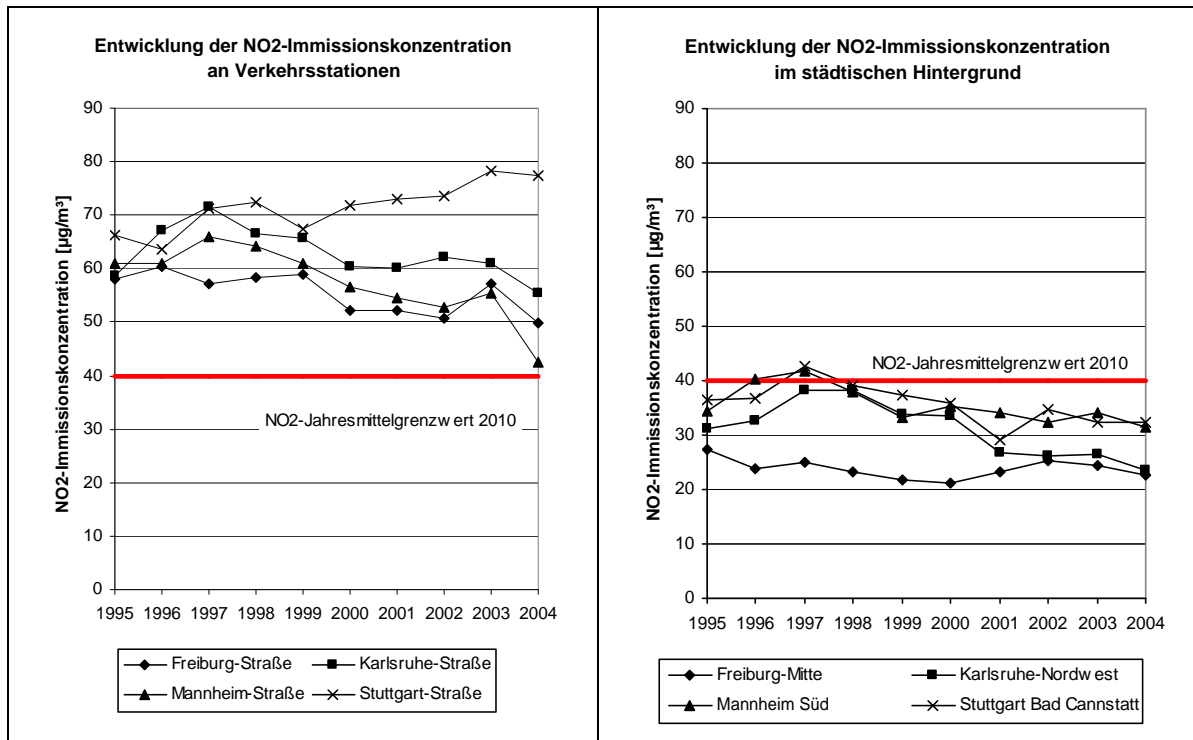


Abb.19 Entwicklung der NO₂-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

Interessant ist in diesem Zusammenhang die Entwicklung des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses an Verkehrsmessstationen und im städtischen Hintergrund. Bei der Betrachtung des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses an den vier baden-württembergischen Verkehrsmessstationen (Abbildung 20 links) kann ein kontinuierlicher Anstieg festgestellt werden. Im Jahr 2004 lag das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis an allen vier Verkehrsmessstationen bei 0,4. Mitte der 1990er Jahre lag dieses Verhältnis im Mittel unter 0,3. Das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis im städtischen Hintergrund zeigt über die letzten 10 Jahre ebenfalls einen positiven Trend. Für die ländlichen Stationen konnte in den letzten Jahren kein positiver Trend beobachtet werden [siehe hierzu Rabl 2005 und Böisinger 2005].

Der Umwandlungsgrad von NO zu NO₂ ist sowohl orts- als auch zeitabhängig, da die Bildung von NO₂ sowohl von der Konzentration der Stickoxide als auch von anderen Größen abhängt (z.B. Ozon-Immissionskonzentration und Strahlung). Das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis nimmt statistisch gesehen mit steigender NO_x-Immissionskonzentration ab. Je größer die emittierte NO_x-Menge im Vergleich zur Vorbelastung ist, desto geringer ist das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis. Mit zunehmender zeitlicher und räumlicher Entfernung erfolgt dann die Oxidation von Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid. Das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis erhöht sich und erreicht in ländlichen Regionen z.B. Welzheimer Wald oder Schwarzwald mit Werten um 0,8 bis 0,9 bei sehr geringen NO- und NO₂-Immissionskonzentration sein Maximum. Weiterhin zeigt das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis eine Abhängigkeit von der Jahreszeit. Im Sommer ist das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis, bei einer hohen Oxidationskapazität der Atmosphäre, größer. Die Oxidationskapazität ergibt sich vor allem aus hohen Radikalkonzentrationen (z.B. OH-Radikale), der Ozon-Immissionskonzentration und auch der NO₂-Immissionskonzentration.

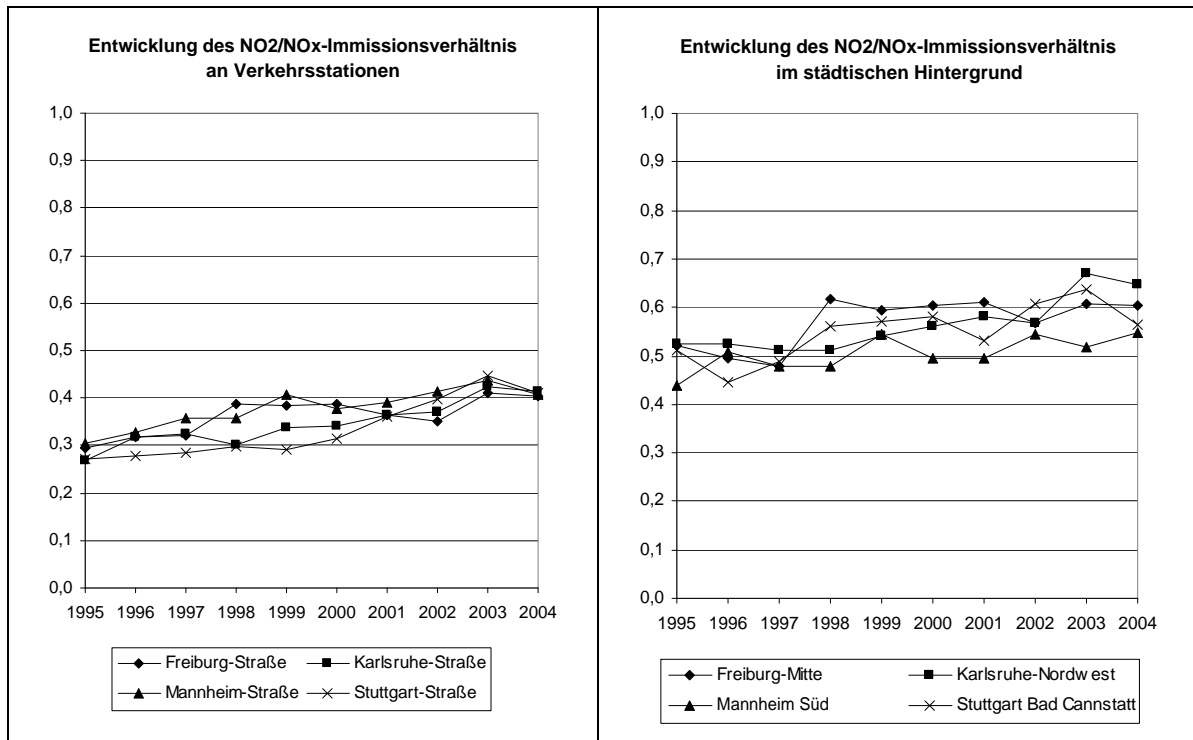


Abb.20 Entwicklung des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

Die möglichen Gründe für einen Anstieg des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses sind nicht genau belegt. Sehr wahrscheinlich geht der Anstieg hauptsächlich mit dem Rückgang der NO_x-Emissionen und somit der NO_x-Immissionskonzentration einher. Dieser negative Trend der NO_x-Immissionskonzentration ist an allen vier Verkehrsmessstellen messbar. Der starke Rückgang der NO-Immissionskonzentration lässt auch bei moderat sinkender NO₂-Immissionskonzentration wie in Freiburg oder Mannheim das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis ansteigen. Jedoch gehen Rabl und Scholz davon aus, dass eine „Änderung zu höheren Konversionsraten [...] nicht ausreichend durch die lediglich von den NO_x-Konzentrationen abhängige Konversionsrate beschrieben werden kann“. Dies kann für alle vier Verkehrsmessstationen festgestellt werden. Somit muss es weitere Einflüsse, die den Anstieg des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses an den Verkehrsmessstationen erklären können, geben.

Für die vollständige Betrachtung des NO₂/NO_x-Immissionsverhältnisses soll zum Schluss noch eine Gegenüberstellung der NO₂-Immissionskonzentration mit der NO_x-Immissionskonzentration gemacht werden. Die Abbildung 21 zeigt die Abhängigkeit des NO₂-Jahresmittelwertes vom Jahresmittelwert der NO_x-Immissionskonzentration für die ausgewählten Verkehrsmessstationen und die Messstellen im städtischen Hintergrund. Diese Gegenüberstellung mit der zugehörigen Gleichung für das Umwandlungsmodell NO-NO₂ wurde von Romberg 1996 entwickelt [Bösinger 2005]. Der Ansatz beruht auf den Jahresmittelwerten der jeweiligen Konzentration und sagt aus, dass mit steigender NO_x-Immissionskonzentration die NO₂-Immissionskonzentration zunimmt.

Zwischen beiden Parametern besteht eine logarithmische Abhängigkeit. Die logarithmische Abhängigkeit wird deutlich, wenn durch die Punkte eine Regressionskurve (so genannte Rombergkurve) gezogen wird. Bei Anwendung der zugehörigen Rombergformel lässt sich aus den NO_x-Immissionskonzentrationen die zugehörige NO₂-Immissionskonzentration ableiten [siehe dazu Bösinger 2005]. Bei der Regressionskurve in der Grafik handelt es sich nicht um die Rombergkurve – als mittlere Kurve für über 100 deutsche Stationen – sondern nur um die Regressionskurve für die betrachteten 8 Messstellen. Wie bei der Betrachtung des Bestimmtheitsmaßes (R²) festgestellt werden kann, ist der logarithmische Zusammenhang der beiden Immissionskonzentrationen sehr hoch. Bei einer Halbierung der NO_x-

Immissionskonzentration von 200 auf 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ würde sich die NO_2 -Immissionskonzentration gerade einmal um 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ von 65 auf 45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ reduzieren.

Bei näherer Betrachtung der Abbildung 21 fällt auf, dass die Station Stuttgart-Straße in den letzten Jahren überdurchschnittlich von der Kurve abweicht. Bei Abnahme der NO_x -Immissionskonzentration wird anstatt einer Abnahme eine Zunahme der NO_2 -Immissionskonzentration festgestellt. Die anderen Messstationen liegen im Bereich der Regressionskurve. Die möglichen Gründe für das Verhalten der Station Stuttgart-Straße und der geringen NO_2 -Abnahme im Gegensatz zur NO_x -Abnahme sollen in den folgenden Kapiteln beleuchtet werden.

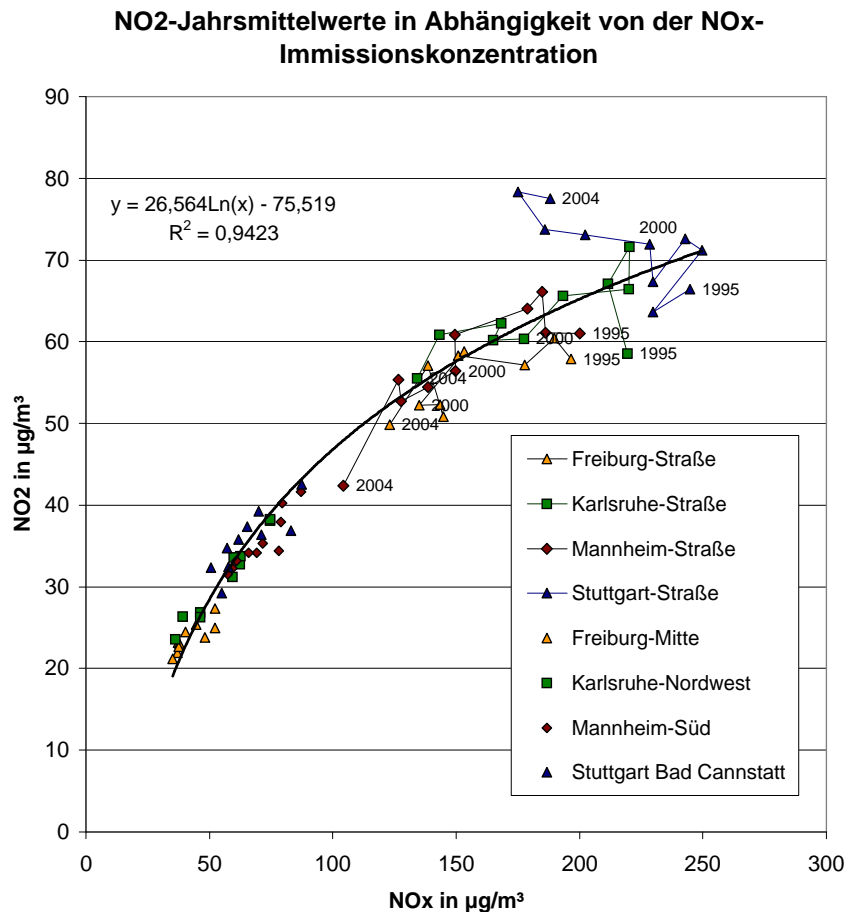


Abb.21 NO_2 -Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der NO_x -Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

Die Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration ist in diesem Zusammenhang von großer Bedeutung. Deshalb wird in der nächsten Abbildung die Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration im Zeitraum 1995 bis 2004 dargestellt.

Für alle Messstationen kann ein deutlich positiver Trend der Ozon-Immissionskonzentration in den letzten 10 Jahren festgestellt werden. Mit 7 % gegenüber dem Referenzjahr ist der Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration an der Messstation Freiburg-Mitte am geringsten. An der Station Mannheim-Süd lag die Ozon-Immissionskonzentration 2004 25 % über dem Niveau von 1995. Die Stationen Stuttgart und Karlsruhe liegen mit einem Anstieg von 21 und 13 % dazwischen. Der Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration wird in mehreren Publikationen auf das erhöhte NO_x/NMVOC -Immissionsverhältnis zurückgeführt [siehe dazu z.B. Sentuc 2004].

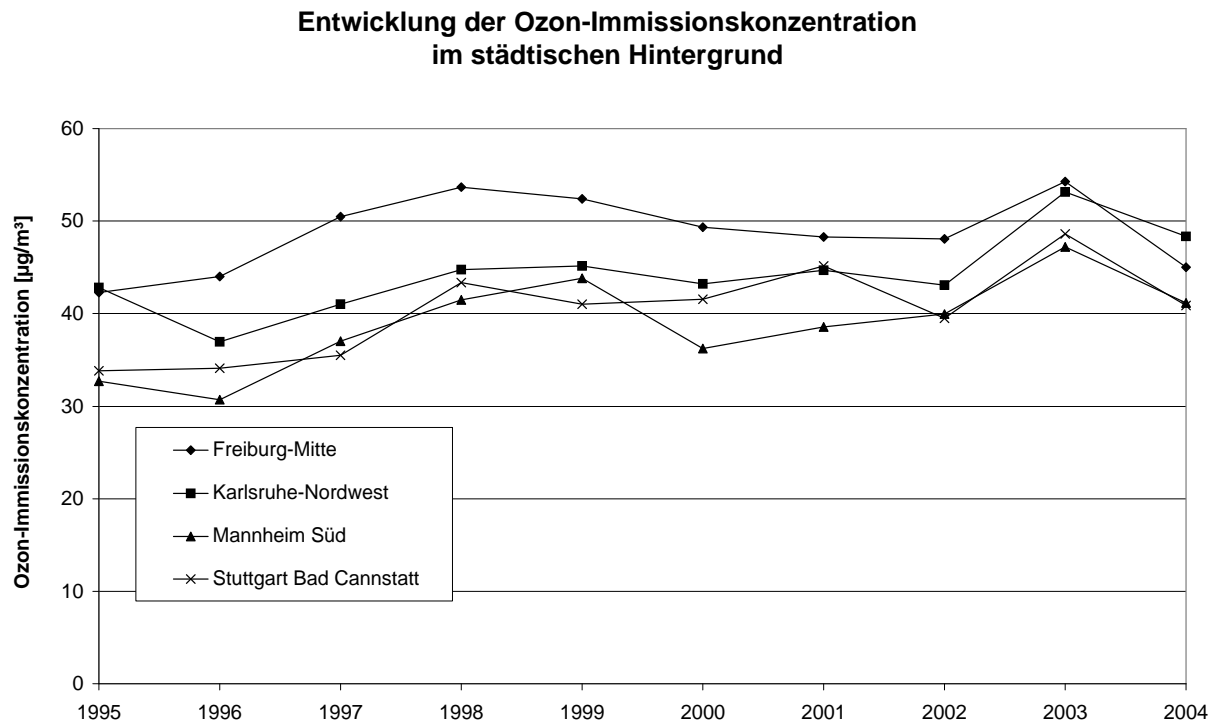


Abb.22 Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration an ausgewählten Messstationen in Baden-Württemberg

5.2 Der Beitrag des städtischen Hintergrundes zur NO_2 -Immissionskonzentration der Verkehrsmessstellen

Bestimmte chemische Reaktionen sind lokal begrenzt wie die Oxidation von NO mit Ozon die üblicherweise vor allem in Straßenschluchten bei hoher Emission von NO_x und auch Verkehr und Industrie nur lokal emittieren. Deshalb soll die Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstelle noch einmal detailliert zum städtischen Hintergrund betrachtet werden.

Die Schadstoffbelastung der Luft im städtischen Hintergrund kann als Gleichgewicht zwischen regionalen und lokalen Emittenten einerseits und der Transmission (Schadstofftransport und chemischen Umwandlung) andererseits gesehen werden. Zum städtischen Hintergrundniveau zählen vor allem die Emissionsbeiträge aus industriellen Quellen, Kleinf Feuerungen, dem Straßenverkehr sowie weiteren Quellen aus Land-, Forst- und Bauwirtschaft.

Zur Erfassung der großräumigen städtischen Schadstoffbelastung ist die Lage der Messstelle entscheidend. Sie sollte sich nicht in unmittelbarer Nähe zu Industrieanlagen und Verkehrswegen befinden, da lokale Belastungen dazu führen, dass die Schadstoffkonzentration im städtischen Hintergrund fälschlicherweise als zu hoch eingestuft wird.

Nun soll die NO_2 -Immissionskonzentration der Verkehrsmessstellen im Jahr 2004 aufgeteilt nach der Herkunft der Belastung betrachtet werden. Dabei wird zwischen ländlichem Hintergrund, städtischem Hintergrund und dem lokalen Beitrag unterschieden.

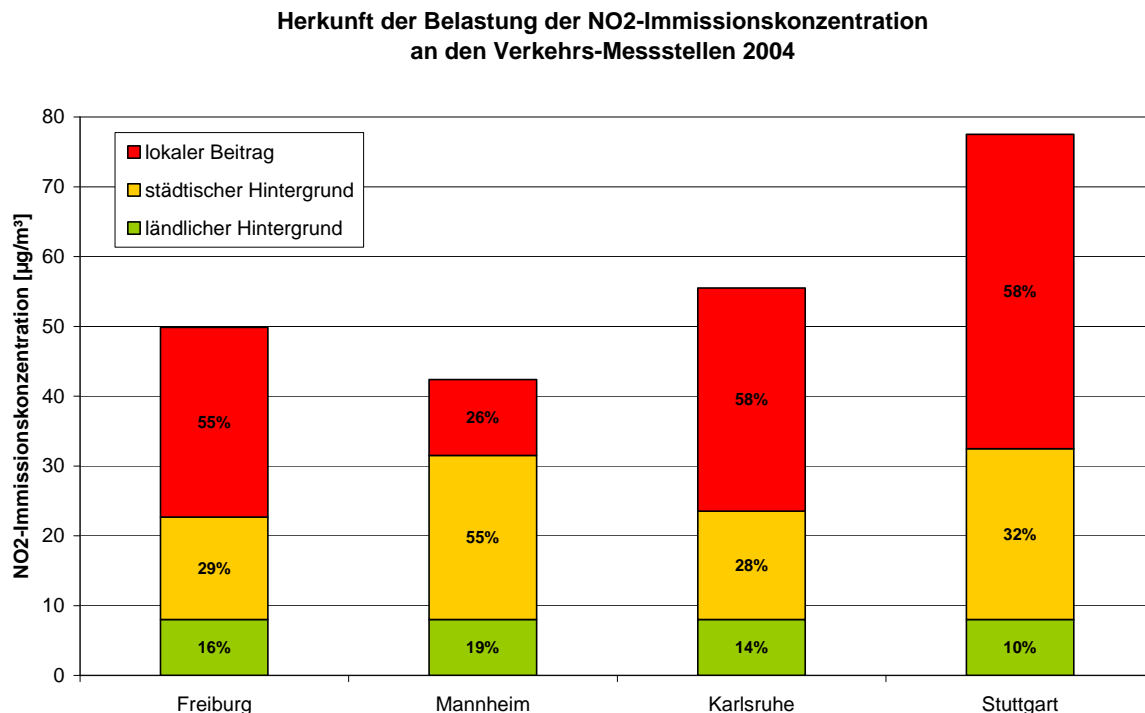


Abb.23 Lokaler und regionaler Beitrag zur NO₂-Immissionsbelastung der Verkehrs-Messstellen 2004

Aus den drei überregionalen Hintergrundmessstationen Welzheimer Wald, Schwäbische Alb und Schwarzwald Süd kann für das Gebiet von Baden-Württemberg ein Mittelwert von 8 µg/m³ NO₂ für den ländlichen Hintergrund angenommen werden [UMEG 2005]. Die Anteile des ländlichen Hintergrundes an den NO₂-Jahresmittelwerten tragen an den Verkehrsmessstellen mit 10 bis 19 % zum Jahresmittelwert bei.

Der Anteil des städtischen Hintergrundes an der NO₂-Immissionsbelastung schwankt zwischen 28 und 55 %. In Karlsruhe beträgt der Anteil des städtischen Hintergrundes mehr als 55 % und liegt damit höher als in Stuttgart, wo der Anteil des städtischen Hintergrundes und ländlichen Hintergrundes an der NO₂-Immissionskonzentration Arnulf-Klett-Platz weniger als die Hälfte beiträgt.

Die hohe bis sehr hohe NO₂-Immissionskonzentration ist an den Verkehrsmessstationen fast ausschließlich auf den lokalen Beitrag zurückzuführen, die mit über 50 % zur jährlichen NO₂-Belastung an diesen Messstellen beiträgt. Der lokale Beitrag an der Station Mannheim-Straße ist für das Jahr 2004 wegen des bereits angeführten Rückganges des DTV so gering.

Der städtische und ländliche Hintergrund ist mit seinen Anteilen von 40 bis 60 % an der NO₂-Immissionskonzentration der Verkehrsmessstationen von großer Bedeutung. Änderungen in der Höhe der NO₂-Immissionskonzentration des städtischen Hintergrundes wirken sich auch auf die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstelle aus. Eine Gegenüberstellung der Entwicklung der NO₂-Immissionskonzentration (Jahresmittelwert) an Verkehrsmessstellen und städtischen Hintergrundmessstellen (siehe Abbildung 24) bringt erste Erkenntnisse ob lokale oder aber regionale Faktoren den Anstieg oder die Stagnation der NO₂-Immissionskonzentration bedingen.

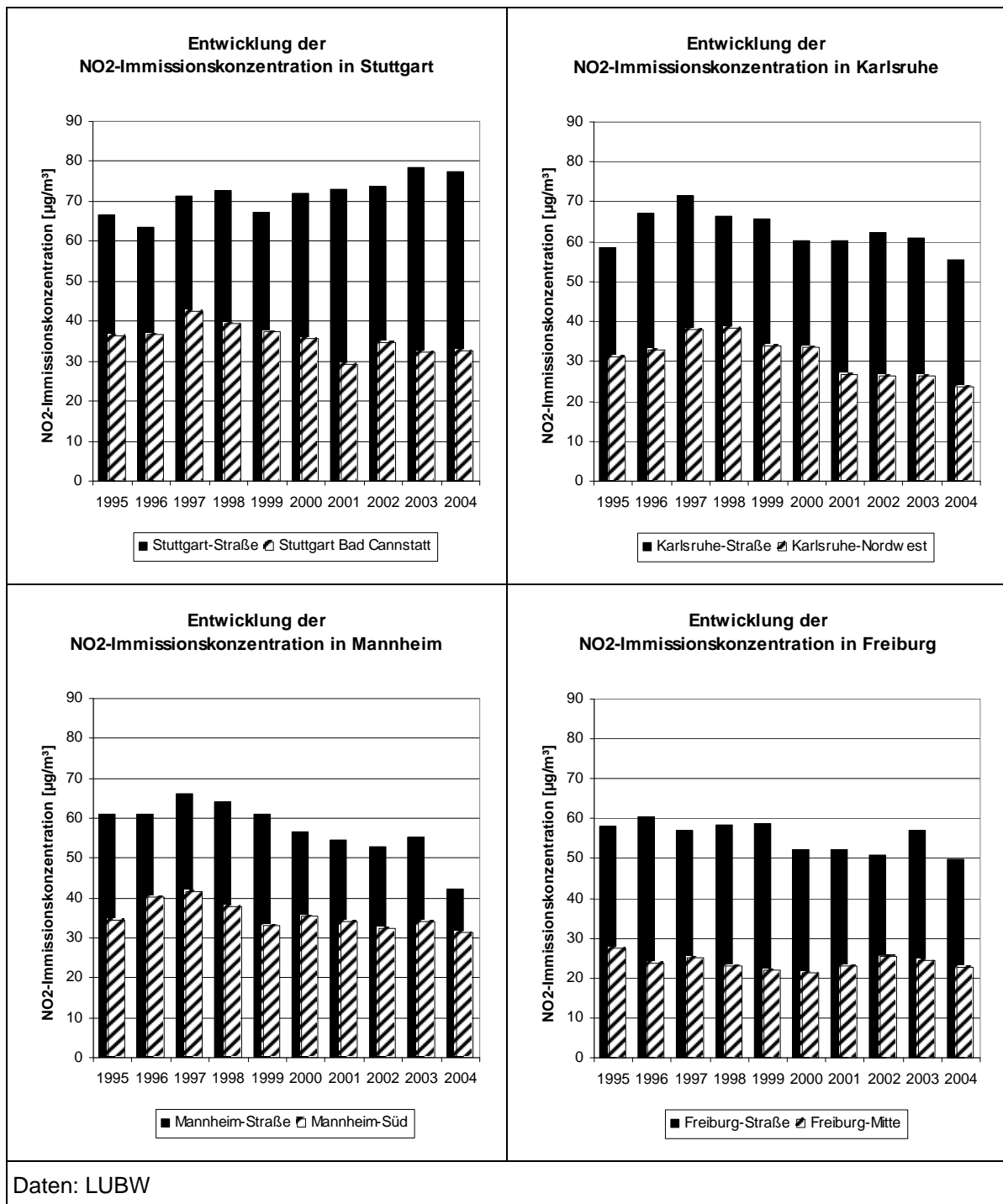


Abb.24 Vergleichende Entwicklung der NO₂-Immissionskonzentration an Verkehrsbelasteten und nicht Verkehrsbelasteten Messstationen

Die NO₂-Immissionskonzentration ist an den betrachteten Messstellen im städtischen Hintergrund in den letzten Jahre leicht gesunken. Im gleichen Zeitraum konnte ein leichter Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration nur an den Verkehrsmessstellen Mannheim und Freiburg beobachtet werden. An der Verkehrsmessstelle Karlsruhe ist kein signifikanter Trend zu beobachten. Die NO₂-Konzentration blieb über die Jahre annähernd konstant. An der Verkehrsstation Stuttgart war bis Ende der 1990er Jahre ebenfalls kein signifikanter Trend erkennbar: In den letzten fünf Jahren kam es aber zu einem Anstieg der NO₂-Immissionskonzentration.

Der Rückgang der NO₂-Konzentration im städtischen Hintergrund spricht bei einem Anstieg der gemessenen NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmesssstelle, wie dies in Stuttgart beobachtet wird, für einen Anstieg der lokalen NO₂-Zusatzbelastung (lokaler Beitrag). Dabei berechnet sich die lokale NO₂-Zusatzbelastung aus der Differenz der NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmesssstelle und der zugehörigen Messstelle im städtischen Hintergrund.

Die Abbildung 25 zeigt für alle Verkehrsstationen die Entwicklung der lokalen NO₂-Zusatzbelastung. Die Höhe der lokalen NO₂-Zusatzbelastung der Verkehrsmessstationen ergibt sich wie schon die Gesamtimmissionskonzentration aus der Abhängigkeit der täglichen Verkehrsstärke (DTV). Dabei zeigt die Höhe der NO₂-Zusatzbelastung jedoch deutlicher eine Abhängigkeit vom DTV als die Gesamtkonzentration, da hier noch andere Quellen eine Rolle spielen.

An der Station Freiburg ist bezogen auf das Referenzjahr 1995 ein leichter Rückgang der NO₂-Zusatzbelastung um 10 % zu verzeichnen. In Mannheim wurde ein Rückgang der NO₂-Zusatzbelastung im gleichen Zeitraum von 60% erreicht. Betrachtet man die lokale Zusatzbelastung für die Straßenstation Mannheim im Jahr 2004, so muss berücksichtigt werden, dass es 2004 durch umfangreiche Baumaßnahmen in der Nähe der Messstelle zu einem deutlichen Rückgang des Verkehrs kam und damit zum Rückgang der lokalen NO₂-Zusatzbelastung um 50 % gegenüber 2003 geführt hat. Nimmt man das Jahr 2004 aus der Betrachtung heraus, ergibt sich für die NO₂-Zusatzbelastung an der Verkehrsmessstation Mannheim kein wesentlicher Trend zu niedrigeren oder höheren NO₂-Immissionskonzentrationen. An den Verkehrsstationen Karlsruhe und Stuttgart ist im Zeitraum der letzten 10 Jahre die NO₂-Zusatzbelastung gestiegen. Besonders stark ist die Zunahme mit ca. 40 % an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz.

**Entwicklung der NO₂-Zusatzbelastung
an den baden-württembergischen Verkehrs-Messstationen**

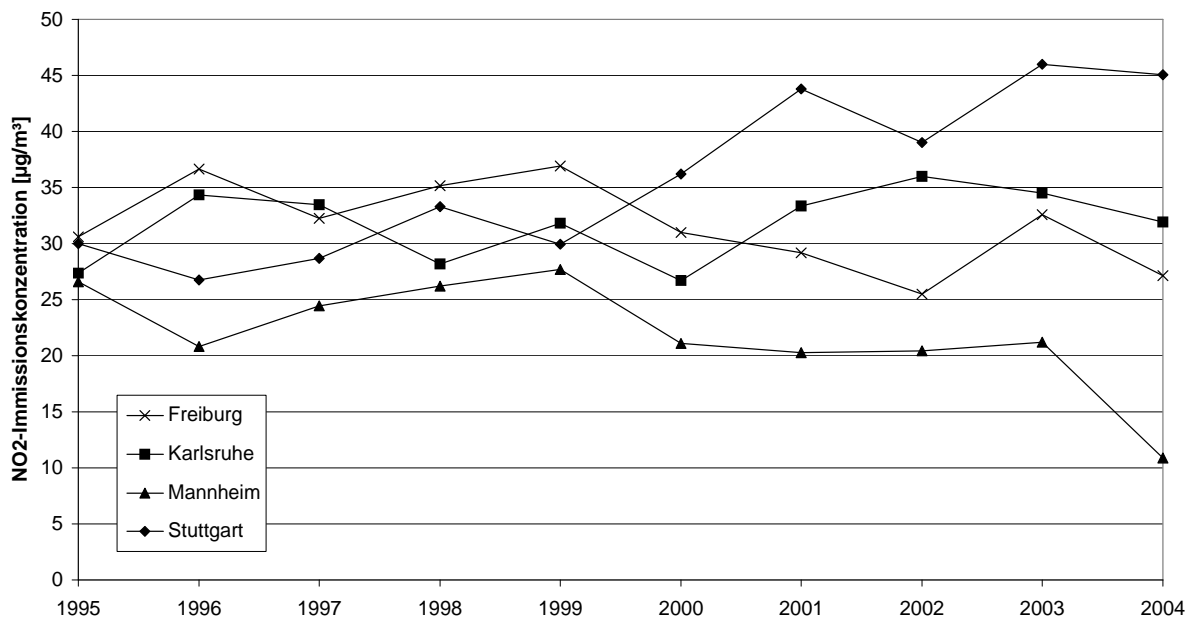


Abb.25 Entwicklung der lokalen NO₂-Zusatzbelastung an baden-württembergischen Verkehrsmessstationen

Der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung in Karlsruhe und Stuttgart spricht für einen veränderten Einfluss lokaler Faktoren. Somit scheiden für diese Stationen Veränderungen im Emissionsverhalten weit entfernter Quellen (Industrie, Hausbrand etc.) und veränderte Einträge

durch Ferntransport aus. Änderungen sind somit auf lokale Quellen – an den Verkehrsmessstellen ist dies der Verkehrssektor – und lokale chemische Prozesse und Transportbedingungen beschränkt. Auch der geringe Rückgang der NO₂-Zusatzbelastung in Freiburg und Mannheim spricht für lokale Einflüsse, die nur eine geringe Absenkung der NO₂-Immissionskonzentration bei stetem Rückgang der NO_x-Emissionen und -Immissionen zulassen.

6 Der Einfluss luftchemischer Parameter auf die NO₂-Immissionskonzentration

Chemische Reaktionen führen zur Umwandlung der primär emittierten Luftschadstoffe in sekundäre Luftschadstoffe. Diese Umwandlungsreaktionen, in Abhängigkeit der Konzentration und Mischungsverhältnisse der Spurengase und Partikel, bestimmen neben der Emission und dem Transport ganz wesentlich die Immissionskonzentration der Luftschadstoffe. Während die Immissionskonzentration der NO_x allein durch Emission und Transport erklärt werden kann, unterliegt die Immissionskonzentration von Stickstoffdioxid auch dem Einfluss luftchemischer Reaktionen.

In den folgenden Auswertungen soll in einem ersten Schritt geklärt werden, welche Reaktionen an den Verkehrsmessstellen zur Bildung von NO₂ führen. Ferner soll der Einfluss der Ozon-Immissionskonzentration auf die NO₂-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen differenziert nach Jahreszeiten und Wochentagen untersucht werden. Besonderes Augenmerk liegt dabei auf der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz da hier steigende NO₂-Immissionskonzentrationen bei einem signifikanten Rückgang der NO_x-Immissionskonzentration registriert werden.

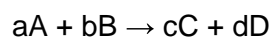
6.1 Spurengase mit Einfluss auf die NO₂-Immissionskonzentration

In städtischen Agglomerationen führen Verkehr und Industrie zu hohen Belastungen der Luft mit Stickoxiden. Diese werden zu 95 % als Stickstoffmonoxid emittiert, so dass die Konversionsrate (NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis) in der Nähe von Stickoxid-Emittenten gering ist (vgl. Abbildung 20 links). Der NO₂-Anteil im Abgas der Benzin- und Diesel-Pkw wird in der Literatur mit 5 % angegeben [nähere Informationen bei Carslaw 2004 und IVU 2005]. Genauere Aussagen zu den Emissionsanteilen der Stickoxide im Autoabgas sind derzeit nicht möglich, da Emissionsmessungen nur für die Summe der Stickoxide gesetzlich vorgeschrieben sind.

Bei der Betrachtung der Konversionsraten (siehe Abbildung 20) fällt auf, dass bereits an den Verkehrsmessstellen das NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis deutlich über den im Abgas angenommen 5 % liegt (NO₂/NO_x-Immissionsverhältnis 0,05). Die Luftgütemessstellen befinden sich in unmittelbarer Nähe zur Fahrbahn mit einem maximalen Abstand von 5 m. Für die Konversionsrate bedeutet das, dass bereits eine bestimmte Menge NO im Straßenraum in der zur Verfügung stehenden Zeit von der Fahrbahn bis zur Messstelle oxidiert wurde. Die Luftgütemessstelle misst somit bereits den beginnenden Prozess der Oxidation von Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid.

Damit NO₂ bis zur Luftgütemessstelle gebildet wird, müssen die chemischen Reaktionen eine notwendig hohe Reaktionsgeschwindigkeit gegenüber dem durchschnittlichen Aufenthalt der Stoffe in der Straße haben. Mit Hilfe der Berechnung der Reaktionsgeschwindigkeit lässt sich eine erste allgemeine Abschätzung bezüglich der Relevanz der verschiedenen Oxidationsreaktionen von Stickstoffmonoxid vornehmen.

Die Reaktionsgeschwindigkeit R einer elementaren oder komplexen Reaktion



kann mit folgender Gleichung berechnet werden:

$$R = k \times [A]^m \times [B]^n. \quad (G5)$$

k Geschwindigkeitskonstante

m, n ganzzahlig oder gebrochene pos. und neg. Exponenten

[A] Konzentration oder Teilchendichte

Für die einzelnen Ausgangsstoffe und Produkte ergibt sich in Abhängigkeit der stöchiometrischen Koeffizienten (a, b, c und d) ein Verbrauch (-) oder eine Produktion (+) in Abhängigkeit von der Zeit.

$$R = -\frac{1}{a} \frac{d[A]}{dt} = -\frac{1}{b} \frac{d[B]}{dt} = +\frac{1}{c} \frac{d[C]}{dt} = +\frac{1}{d} \frac{d[D]}{dt} \quad (G6)$$

Für die einzelnen Stoffkonzentrationen berechnet sich die Reaktionsgeschwindigkeit wie folgt:

$$\frac{d[A]}{dt} = -k_A \times [A] \quad (G7)$$

k_A Reaktionskonstante erster Ordnung [s^{-1}]

Daraus ergibt sich die Abhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit von der Konzentration des Stoffes A. Je höher die Konzentration eines Stoffes ist, umso höher ist die Reaktionsgeschwindigkeit, d.h. umso größer ist die Zahl der effektiven Zusammenstöße zwischen zwei oder mehreren Molekülen.

Viele Reaktionskonstanten sind temperatur- und druckabhängig. Diese Abhängigkeit kann über die empirische Arrhenius-Beziehung beschrieben werden.

$$k_T = A \exp(-E_a/RT) \quad (G8)$$

R allgemeine Gaskonstante ($8,3143 \text{ JK}^{-1}\text{Mol}^{-1}$)

T Temperatur [Kelvin]

E_a Aktivierungsenergie

Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten der wichtigsten in der Atmosphäre ablaufenden Reaktionen sowie deren Temperatur- und Druckverhalten wurden mehrfach evaluiert. Eine Zusammenfassung der Reaktionskonstanten der Gasphasenreaktionen der O_x, HO_x, NO_x und SO_x Spezies kann bei Atkinson et al. 2004 nachgeschlagen werden.

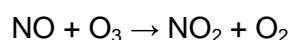
Bei Photolysereaktionen wird die Reaktionskonstante k_A durch die Photolyse Frequenz J_A ersetzt.

$$\frac{d[A]}{dt} = -J_A \times [A] \quad (G9)$$

Mit Hilfe der Reaktionskonstante oder Photolysefrequenz kann die Lebenszeit τ eines Stoffes berechnet werden. Die Lebenszeit des Stoffes A bei einer Reaktionen 2. Ordnung, oder Photolysereaktionen berechnet sich nach:

$$\tau = \frac{1}{k_A [A]} \quad \tau = \frac{1}{J_A} \quad (G10)$$

Für die Oxidation des Stickstoffmonoxides mit Ozon sollen nun beispielhaft die Reaktionsgeschwindigkeit und die Lebenszeit des Ozon-Moleküls berechnet werden.



Die Reaktionskonstante k dieser Reaktion beträgt $1,8 \times 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ sec}^{-1}$ bei einer Temperatur von 298 K [Atkinson 2004].

In der Gasphasenkinetik erfolgt die Konzentrationsangabe in Anzahl Teilchen pro Volumen. Diese Konzentrationsangabe variiert mit dem Gesamtdruck. Durch die Ausdehnung der Luft mit der Höhe verändert sich die Konzentration pro Volumeneinheit, deshalb rechnet man besser mit Mischungsverhältnissen. Die Umrechnung von Mischungsverhältnissen (ppmv) in Konzentrationsangaben Teilchen pro cm³ ist druck- und temperaturabhängig. Zur Umrechnung wird das ideale Gasgesetz verwendet.

$$p \times V = n \times R \times T \quad (G11)$$

n Stoffmenge [Mol]

V Volumen [l]

p Druck [hPa]

Die Konzentration von n Mol Teilchen in einem Volumen V ergibt sich bei Normaldruck (1013,25 hPa) und einer Temperatur von 298 K zu:

$$\frac{n}{V} = \frac{1013,25[hPa]}{8,3143[JK^{-1}Mol^{-1}] \times 298,15[K]} = 0,0409[Mol/l] \quad (G12)$$

Diese Umrechnung bezieht sich bei gegebenem Druck und Temperatur auf Reaktionen in Bodennähe und ist für eine grobe Abschätzung der möglichen Reaktionen im Straßenraum völlig ausreichend. Die Angabe soll nun auf Teilchen pro cm³ umgerechnet werden. Dazu wird die Avogadrosche Zahl (1 Mol entspricht einer Anzahl von 6,02 × 10²³ Molekülen) verwendet.

$$\begin{aligned} n/V &= 0,0409 [Mol/l] \times 10^{-3} [l/cm^3] \times 6,02 \times 10^{23} [Moleküle/Mol] \\ &= 2,46 \times 10^{19} \text{ Moleküle cm}^{-3} \end{aligned} \quad (G13)$$

Nun werden die mittleren Reaktionskonstanten in ppm⁻¹ min⁻¹ angegeben. Dabei entspricht 1 ppm 2,46 × 10¹³ Molekülen pro Kubikzentimeter. Für die Oxidation des Stickstoffmonoxides durch Ozon ergibt sich:

$$\begin{aligned} k_{298} &= 1,8 \times 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ sec}^{-1} \times 60 \text{ sec} \times 2,46 \times 10^{13} \text{ Moleküle cm}^{-3} \\ &= 26,6 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1} \end{aligned} \quad (G14)$$

Der Umrechnungsfaktor zwischen cm³ Moleküle⁻¹ sec⁻¹ und ppm⁻¹ min⁻¹ beträgt bei 298 K 1,47 × 10¹⁵ [Seinfeld 1998]. Die 27 ppm⁻¹ min⁻¹ werden auch als mittlere Reaktionskonstante für die Reaktion von NO mit Ozon in dem Chemie-Modell RADM2 angegeben [Sentuc 2004]. Die Lebenszeit des Stickstoffmonoxides für diese Reaktion berechnet sich unter Annahme einer konstanten NO-Immissionskonzentration nach:

$$\tau_{NO} = \frac{1}{26,6 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1} \times 0,05 \text{ ppm}} = 0,75 \text{ Minuten.} \quad (G15)$$

Die 0,05 ppm (60 µg/m³) entsprechen einem mittleren Tagesmittelwert der NO-Immissionskonzentration an den vier Verkehrsmessstellen im Jahr 2004 angenommen.

Tab.4 Reaktionskonstanten verschiedener Oxidationsreaktionen von Stickstoffmonoxid

| Reaktion | Reaktionskonstante (298 K) in $\text{cm}^3 \times \text{Moleküle}^{-1} \times \text{sec}^{-1}$ | Reaktionskonstante (298 K) in $\text{ppm}^{-1} \times \text{min}^{-1}$ | Lebenszeit [NO] in min |
|---|---|---|---------------------------|
| $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ | $1,8 \times 10^{-14}$ | 26,6 | 0,75 |
| $\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow 2 \text{NO}_2$ | $2,6 \times 10^{-11}$ | $3,84 \times 10^4$ | $5,23 \times 10^{-4}$ |
| $\text{NO} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}$ | $8,8 \times 10^{-12}$ | $1,3 \times 10^4$ | $1,55 \times 10^{-3}$ |
| $2 \text{NO} + \text{O}_2 \rightarrow 2 \text{NO}_2$ | $2,0 \times 10^{-38}$ ($\text{cm}^6 \times \text{Moleküle}^{-2} \times \text{sec}^{-1}$) | $2,95 \times 10^{-23}$ | $6,8 \times 10^{23}$ |
| $\text{O} + \text{NO} + \text{M} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{M}$ (M = N ₂) | $1,0 \times 10^{-31}$ | $1,48 \times 10^{-16}$ | $1,36 \times 10^{17}$ |

Die Oxidation von Stickstoffmonoxid mit Nitratradikalen (NO₃[°]) ist in der Straßenschlucht trotz notwendig hoher Reaktionsgeschwindigkeit am Tag nicht relevant. Die Reaktion kann in dieser Form nur in der Nacht ablaufen, da das Nitratradikal schon bei geringer Sonneneinstrahlung photolytisiert [Platt 2003].

Die Oxidation von NO durch reinen Sauerstoff findet nur bei extrem hohen Konzentrationen von Stickstoffmonoxid (1000 ppm) statt. Solche hohen Konzentrationen werden in der Atmosphäre nicht gemessen, deshalb kann diese Reaktion unter Außenluftbedingungen vernachlässigt werden. Dies beweist auch die sehr langsame Reaktionsgeschwindigkeit trotz hoher Sauerstoffkonzentrationen.

Die Oxidationsreaktionen von Stickstoffmonoxid mit Ozon und Hydroxylradikalen laufen innerhalb weniger Tausendstel Sekunden ab. Dabei ist die Reaktionsgeschwindigkeit natürlich abhängig von der Konzentration dieser beiden Spurenstoffe. Beide Spurengase haben ihre höchsten Konzentrationen zur Mittagszeit vor allem in den Sommermonaten. Die mittlere Ozon-Immissionskonzentration an vergleichbar hoch belasteten Verkehrsmessstellen (z.B. München Stachus) lag in den letzten Jahren im Mittel um die 25 bis 30 µg/m³. Die Messung der Konzentration von Radikalen vor allem der OH-Radikale in stickoxidbelasteter Luft wird nur in aufwendigen Sondermesskampagnen ermittelt. Bei diesen Messungen wurden Konzentrationen der OH-Radikale mit bis zu 6×10^6 Molekülen/cm³ ermittelt [Konrad 2000]. Damit liegen die Konzentrationen deutlich unter dem ppt(V) Bereich ($2,46 \times 10^7$ Moleküle/cm³). Die Konzentration der Radikale insbesondere der Peroxyradikale ist sehr gering, so dass sie kaum zu den hohen NO₂-Immissionskonzentrationen mit bis zu 200 ppb(V) an den Verkehrsmessstellen beitragen. Ein weiter Grund für die relativ geringe Bedeutung der Radikale in der Straßenschlucht ist, dass Radikale immer wieder neu gebildet werden müssen um für die Oxidation des in der Straße emittierten NO zur Verfügung zu stehen. Von der Schnelligkeit dieser Bildungsreaktionen hängt es ab, ob die Oxidation des NO durch Radikale im Straßenraum von Bedeutung ist. Radikale werden hauptsächlich aus biogenen und anthropogenen Kohlenwasserstoffen (KW) gebildet. Der photolytische Abbau der Kohlenwasserstoffe bei dem Radikale gebildet werden benötigt viel Zeit. Da die atmosphärische Strömung die Luft im Straßenraum innerhalb weniger Minuten bei freier Anströmung komplett austauschen kann, reicht die zur Verfügung stehende Zeit nicht aus um eine relevante Menge an Stickstoffdioxid zu bilden. Hinzu kommt, dass in den letzten 15 Jahren der verkehrsbedingte Ausstoß der NMVOC-Emissionen um 85 % gesenkt werden konnte (vgl. Abbildung 4).

Es wird nun davon ausgegangen, dass Stickstoffdioxid im Straßenraum hauptsächlich durch die Oxidation von Stickstoffmonoxid mit Ozon gebildet wird. Modellrechnungen von AVISO [AVISO 2005] bestätigen dieses Ergebnis. Mit ihren Modellrechnungen bildeten Sie die NO₂-Produktion unter alleiniger Berücksichtigung der Ozon-Chemie genauso gut ab wie unter Berücksichtigung der wichtigsten Radikalreaktionen. Die Vernachlässigung der Radikalreaktionen führte nur zu

minimalen Fehlern in den Nachkommastellen. Die englische Forschungsgruppe um Carslaw bestätigt ebenfalls, dass die Radikalbildungsreaktionen erst mit zunehmender Entfernung und längerer Reaktionszeit an Bedeutung gewinnen [Carslaw 2005 Estimation of road vehicle S. 170].

Ein Zusammenhang zwischen dem Produkt der Ozon- und NO-Immissionskonzentration und der NO₂-Immissionskonzentration besteht über das photostationäre Gleichgewicht.



Es handelt sich nicht um ein chemisches Gleichgewicht im engeren Sinne, da die Hinreaktion von Stickstoffdioxid und Sauerstoff in dieser Form nicht ablaufen kann. Dies ist nur über die Reaktionen 4 und 5 möglich. Da diese Reaktionen jedoch sehr schnell ablaufen und deshalb oftmals vernachlässigt werden, spricht man dennoch von einem chemischen Gleichgewicht.

Setzt man die beteiligten Stoffe nach dem Massenwirkungsgesetz (MWG) in Beziehung, so ergibt sich folgende Gleichung:

$$K_c = \frac{[\text{NO}]^d \times [\text{O}_3]^c}{[\text{NO}_2]^a} \quad (\text{G16})$$

K_c Gleichgewichtskonstante

Dieser beschriebene Zusammenhang zwischen dem Produkt aus Ozon- und NO-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Immissionskonzentration wird für die ausgewählten Luftgütemessstationen in Baden-Württemberg für die Jahresmittelwerte von 1995 bis 2004 in Abbildung 26 dargestellt. Jeder Punkt repräsentiert dabei ein Jahr an einer Messstation. Die Verkehrsmessstationen und der städtische Hintergrund werden der Übersichtlichkeit halber durch Kreise gekennzeichnet.

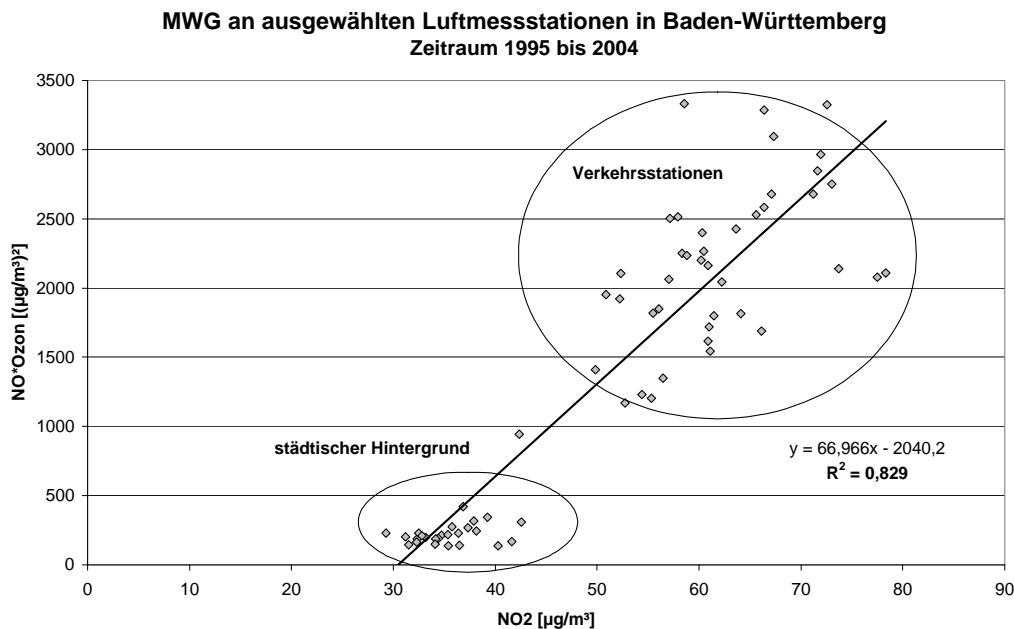


Abb.26 Zusammenhang zwischen NO₂ und dem Produkt aus NO und Ozon (JMw 1995 bis 2004) nach dem MWG an ausgewählten baden-württembergischen Luftgütemessstationen

Nach der Methode der kleinsten Quadrate ergibt sich ein guter linearer Zusammenhang zwischen der Höhe des Produktes aus NO- und Ozon-Immissionskonzentration und davon abhängig der NO₂-Immissionskonzentration. Beachtet werden muss, dass die Ozon-Immissionskonzentration vom städtischen Hintergrund die NO-Immissionskonzentration von

den Verkehrsmessstationen verwendet wurde. Die Gleichgewichtskonstanten liegen bei den Verkehrsmessstellen im Mittel über alle Jahre bei 41 bis 56. Die Gleichgewichtskonstanten im städtischen Hintergrund liegen mit mittleren Werten um 22 bis 25 darunter.

Das photostationäre Gleichgewicht beschreibt den funktionalen Zusammenhang nicht nur für die Jahresmittelwerte, es wird auch ein linearer Zusammenhang für die gemessenen Halbstundenwerte berechnet. Dies verdeutlicht die Abbildung 27. In der linken Abbildung werden für die Station Stuttgart-Straße alle Halbstundenwerte im Juni 2004 zwischen 11 und 15 Uhr aufgetragen. In der rechten Abbildung ist der lineare Zusammenhang für die Nachtstunden zwischen 22 und 2 Uhr dargestellt.

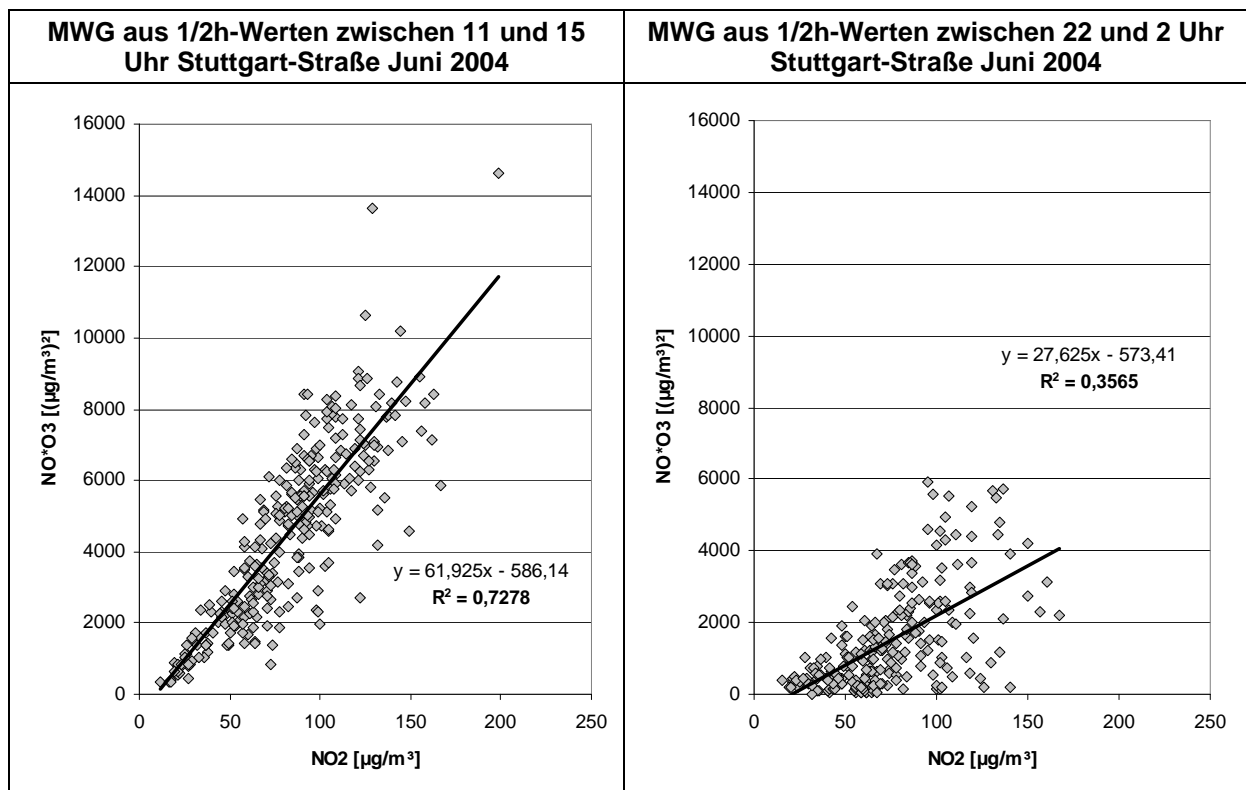


Abb.27 Zusammenhang zwischen NO₂ und dem Produkt aus NO und Ozon (1/2h-Werte im Juni 2004) nach dem MWG Stuttgart-Straße

Es ist deutlich zu erkennen, dass am Tag vor allem um die Mittagsstunden ein photochemisches Gleichgewicht ausgebildet ist. Der lineare Zusammenhang zwischen dem Produkt aus NO- und Ozon-Immissionskonzentration und davon abhängig der NO₂-Immissionskonzentration ist gut. In den Nachtstunden lässt sich kein linearer Zusammenhang zwischen den drei Spurengaskonzentrationen darstellen, d.h. das photochemische Gleichgewicht kommt zum Erliegen. In den Nachtstunden ist das photostationäre Gleichgewicht durch vielfältige Konkurrenzreaktionen und fehlende NO_x-Emissionen nicht ausgebildet.

6.2 Verläufe der Immissionskonzentration ausgewählter Spurenstoffe

In Kapitel 6.1 wurden anhand der Reaktionsgeschwindigkeiten die Reaktionen bestimmt, die einen Einfluss auf die NO₂-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen haben. Als wichtigste Reaktion wurde die Oxidation von Stickstoffmonoxid mit Ozon identifiziert.

In den folgenden zwei Unterkapiteln sollen die wichtigsten Spurenstoffkonzentrationen für die NO₂-Bildung im Tages-, Wochen- und Jahresverlauf dargestellt werden. Ziel ist es, anhand dieser Verläufe eine Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentration bzw. der lokalen NO₂-Zusatzbelastung an den Verkehrsmessstellen von den möglichen Vorläufersubstanzen Ozon und NO zu erkennen.

Jedes Unterkapitel beginnt in einem ersten Teil mit der jeweiligen Darstellung des Tages-, Wochen- oder Jahresverlaufs der ausgewählten Immissionskonzentrationen für die zwei Stationen in Stuttgart und das Jahr 2004. Für die Darstellung des Wochengangs wurde neben den Tagesmittelwerten auch der Wochengang für die Stundenmittelwerte dargestellt. So ist nicht nur der Wochengang sondern gleichfalls der mittlere Tagesgang an den einzelnen Wochentagen erkennbar. In einem zweiten Teil wird dann die Entwicklung der Ozon-, NO-, NO₂-Immissionskonzentration und der NO₂-Zusatzbelastung anhand der Verläufe der Jahre 1998, 2001 und 2004 für alle Verkehrsmessstationen dargestellt.

6.2.1 Tages- und Wochengang

Die folgenden Tages- und Wochengänge in der Abbildung 28 sollen beispielhaft für die Stationen Stuttgart-Straße (NO_x, NO, NO₂-Immissionskonzentration und NO₂-Zusatzbelastung) und Stuttgart Bad Cannstatt (Ozon-Immissionskonzentration) erklärt werden. Die Grafiken zu den Tages- und Wochengängen an den Messstationen Mannheim, Freiburg und Karlsruhe befinden sich im Anhang C (Abbildungen 68 bis 70).

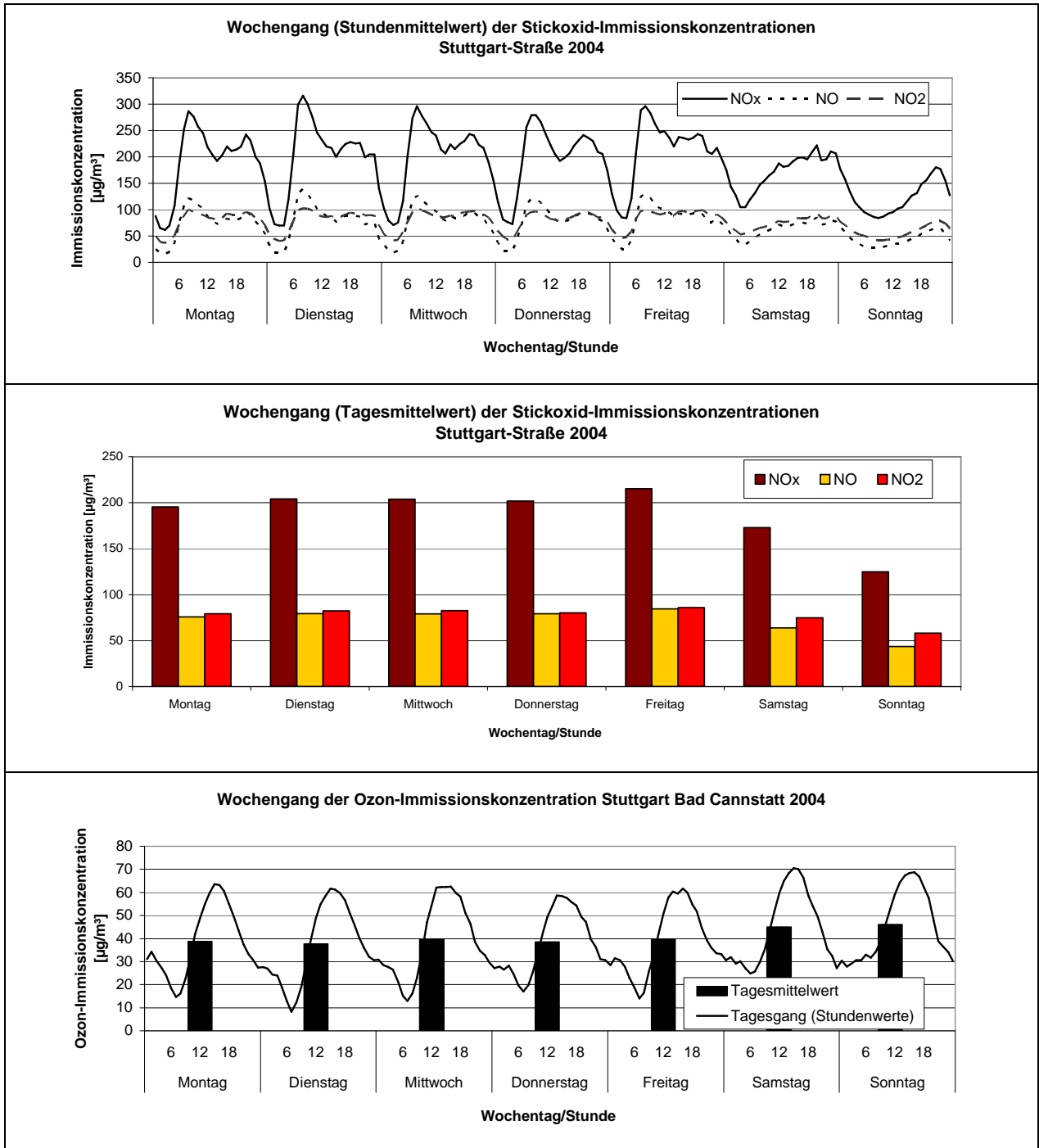
Der Wochengang der NO_x, NO, NO₂-Immissionskonzentration an der Station Stuttgart-Straße zeigt eine typische Abhängigkeit vom Verkehrsaufkommen. Demnach ist die Belastung der Verkehrsstation an den Werktagen Montag bis Freitag am höchsten. Zum Wochenende sinkt die Höhe der Stickoxid-Immissionskonzentration ab und erreicht am Sonntag ihr niedrigstes Niveau. Die niedrigeren Stickoxid-Immissionskonzentrationen am Wochenende sind eine Folge des um 35 % niedrigeren Ausstoßes an NO_x-Emissionen gegenüber den Werktagen. Ursache ist der sinkende Lkw-Anteil am Wochenende, durch reduzierten Lieferverkehr an Samstagen und Sonntagen sowie dem in Deutschland geltenden Sonntagsfahrverbot für schwere Lkw [Sentuc 2004]. Auf diesem Phänomen beruht auch der Wochengang der Ozon-Immissionskonzentration mit erhöhten Werten am Wochenende und niedrigeren Werten werktags. Ein Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration am Wochenende kann mit einem höheren NMVOC/NO_x-Verhältnis erklärt werden. Der Grund liegt in dem sinkenden Lkw-Anteil des Verkehrs am Wochenende, durch reduzierten Lieferverkehr an Samstagen und dem in Deutschland geltenden Sonntagsfahrverbot für schwere Lkw. Da dieselbetriebene schwere Lastkraftwagen vorwiegend Stickoxide emittieren, reduziert sich die Menge der emittierten Stickoxide am Wochenende [Sentuc 2004]. Durch ein erhöhtes NMVOC/NO_x-Verhältnis kann mehr Ozon gebildet werden.

Interessant erscheint in diesem Zusammenhang auch der Wochengang der NO₂-Immissionskonzentration. Denn die NO₂-Immissionskonzentration ist am Wochenende zwar geringer als an den Werktagen (Montag bis Freitag), dennoch ist die Reduktion gegenüber der NO_x- oder NO-Immissionskonzentration gering. Die Betrachtung der NO₂-Zusatzbelastung bringt darüber Klarheit. So ist die NO₂-Zusatzbelastung an der Verkehrsmessstelle Stuttgart-Straße am Samstag im Mittel genauso hoch wie der Tagesmittelwert Montag bis Freitag. Nur am Sonntag ist die NO₂-Zusatzbelastung deutlich geringer als an den Werktagen. Dies scheint unerwartet, zumal die NO_x-Immissionskonzentration von Freitag auf Samstag im Tagesmittelwert deutlich gesunken ist. An der Messstation Mannheim kann dieses Phänomen auch nachgewiesen werden, während in Karlsruhe und Freiburg die NO₂-Zusatzbelastung am Samstag deutlich niedriger als an den Werktagen Montag bis Freitag ist (vgl. Grafiken im Anhang).

Der Tagesgang der Stickoxide (NO_x, NO, NO₂-Immissionskonzentration) an der Station Stuttgart-Straße zeigt ebenfalls einen typischen Verlauf. Der Tagesverlauf ist wie der Wochengang hauptsächlich durch den Berufs- und Pendlerverkehr geprägt. Dabei ergeben sich Tag und Nacht Unterschiede in der Emission der Stickoxide von ca. 65 % [Wickert 2001]. Dem ab 5 Uhr einsetzenden Verkehr folgt ein steiler Anstieg der NO_x-, NO- und NO₂-Immissionskonzentrationen. Ein zweites Maximum im Tagesverlauf der Stickoxide gibt es in den Abendstunden. Bei NO_x und NO sind die Maxima am Morgen deutlich ausgeprägter als das Maximum am Abend. Die Gründe liegen in den schlechteren Austauschbedingungen der noch stabilen thermischen Schichtung in den Morgenstunden. Auf die NO-Immissionskonzentration wirkt in den Abendstunden zusätzlich eine erhöhte Ozontitration [Mayer 2001]. Bei Stickstoffdioxid erreichen beide Maxima in etwa die gleiche Größenordnung. Am Wochenende ist der Tagesverlauf modifiziert. Es tritt nur noch ein Maximum in den Nachmittags- und Abendstunden auf.

Die Tagesgänge der Ozon-Immissionskonzentration und der NO₂-Zusatzbelastung sind in ihrem Verlauf annähernd identisch. Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung tritt eine Stunde nach Erreichen der maximalen Ozonkonzentration 15 bis 16 Uhr ein. Am Vormittag ist ein rasanter Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration zu erkennen. Dieser Anstieg kann nicht auf die

Ozonbildung zurückgeführt werden, sondern vielmehr auf den Eintrag von Ozon aus der höher gelegenen Einmischungsschicht durch Konvektion.



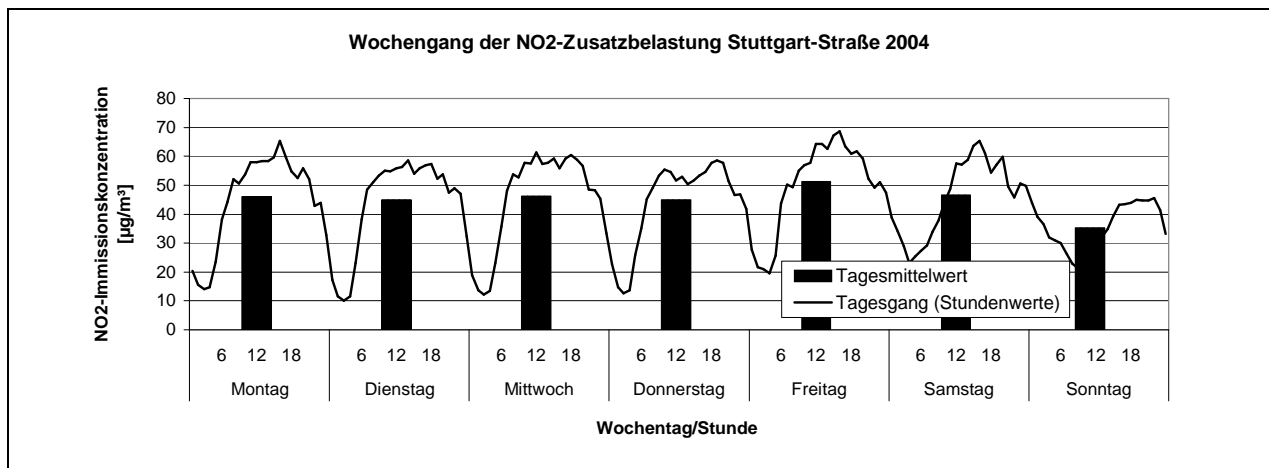


Abb.28 Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004

Im zweiten Teil werden nun die mittleren Tages- und Wochengänge der NO-, NO₂- und Ozon-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung der Jahre 1998, 2001 und 2004 dargestellt.

Die Abbildung 29 zeigt die Tages- und Wochengänge auf Basis der Stundenmittelwerte 1998, 2001 und 2004 für die Stationen Stuttgart-Straße (Stickoxide) und Stuttgart Bad Cannstatt (Ozon). Die Tagesgänge der NO-Immissionskonzentration zeigen für die ausgewählten Jahre gleiche Verläufe bei unterschiedlichen Niveaus. Ganz deutlich ist die Reduktion der NO-Immissionskonzentration feststellbar mit den höchsten Niveaus 1998 und den niedrigsten Niveaus 2004. Die Maxima der NO-Immissionskonzentration konnten um mehrere 10er µg/m³ reduziert werden. Auffällig ist, dass das zweite Maximum in den Abendstunden 2004 an den Werktagen kaum noch ausgebildet ist. Ansonsten ist der Tagesverlauf mit einem steilen Anstieg der NO-Immissionskonzentration in den frühen Morgenstunden und einem Abfall über die Nacht 1998 genauso ausgebildet wie 2001 und 2004.

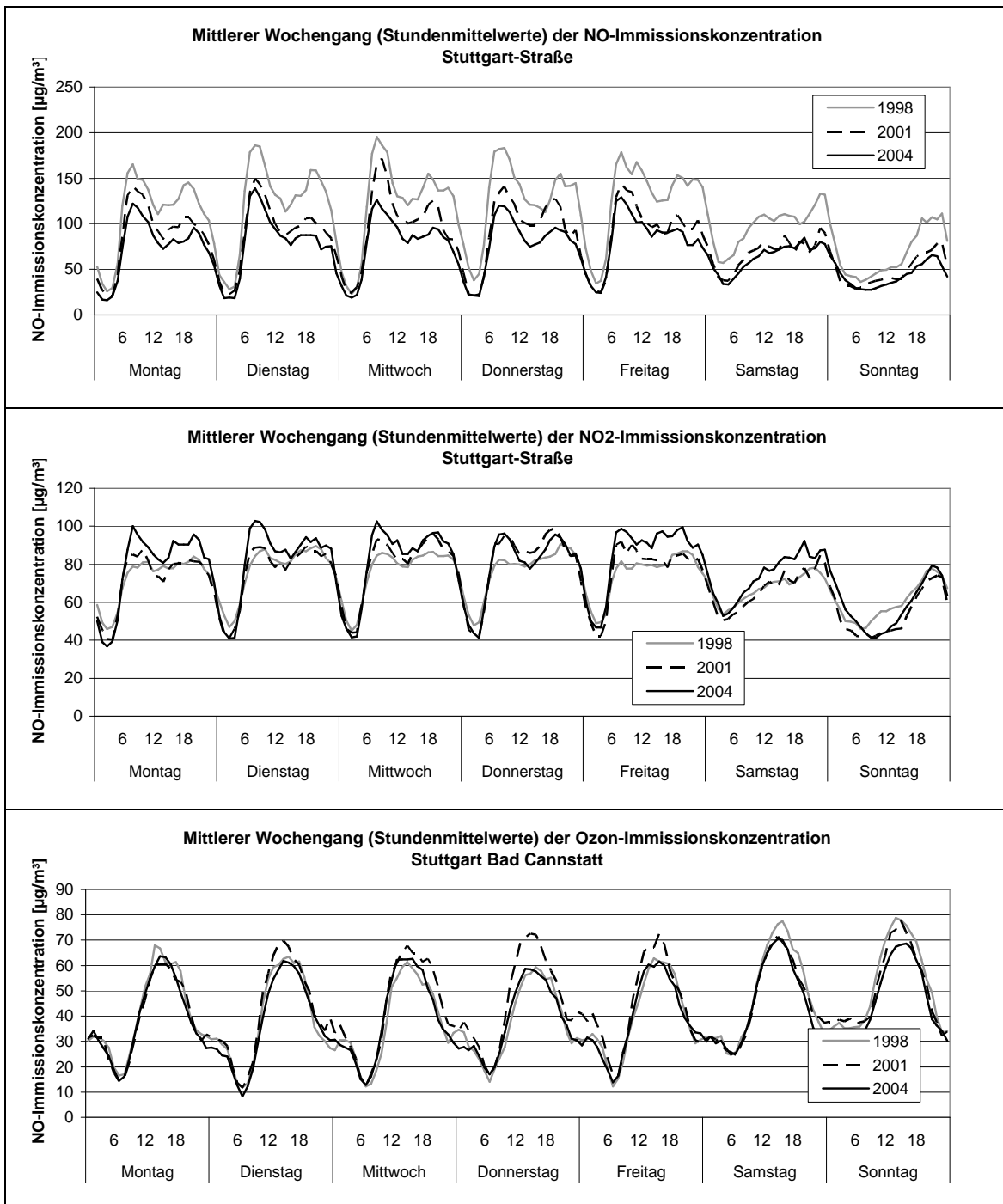
Für den Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration gilt das Gleiche, er hat sich über die drei betrachteten Jahre nur auf seinem Niveau geändert. Leicht erhöhte Konzentrationen (bis zu 20 µg/m³) werden jeweils zu dem morgendlichen als auch zu dem abendlichen Maximum gemessen. Im Jahr 2004 tritt jedoch auf einmal eine leicht höhere Morgenspitze in den Vordergrund (vgl. zweite Abbildung von oben).

Der Tagesgang der Ozon-Immissionskonzentration hat sich ebenfalls nicht im Verlauf jedoch in der Höhe der maximalen Ozon-Immissionskonzentration geändert. Während in den Jahren 1998 und 2004 keine Veränderung der Ozon-Immissionskonzentration an den Werktagen Montag bis Freitag zu sehen ist, war im Jahr 2001 die Ozon-Immissionskonzentration an diesen Tagen leicht erhöht. Ein einheitlicher ansteigender Trend kann bei der Betrachtung dieser Jahre nicht beobachtet werden.

Interessant ist in diesem Zusammenhang der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung in den Jahren 1998, 2001 und 2004. Gleich der Tagesverlauf der NO₂-Zusatzbelastung 1998 noch eher dem Tagesverlauf der Ozon-Immissionskonzentration – langsam ansteigende NO₂-Zusatzbelastung mit Einsetzen der Konvektion von Ozon aus den höheren Luftschichten – so gleicht er in den Jahren 2001 und 2004 eher dem Verlauf der Stickoxide. Schon in den frühen Morgenstunden setzt ein steiler Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung ein. Eben so abrupt ist nun der Abfall zu den späten Abend und Nachtstunden. Die geringste NO₂-Zusatzbelastung wird in allen Jahren zwischen 0 und 5 Uhr gemessen. Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung ist jedoch nicht mehr wie 1998 in den späten Nachmittags- und Abendstunden sondern hält sich Werktags über den gesamten Tag (9 bis 21 Uhr). Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung wird 2004 bereits vor dem Eintreten der Ozonspitze erreicht (vgl. Dienstag und Mittwoch). Geht man von dem Tagesgang (Montag bis Freitag) 1998 aus, erfolgte eine Zunahme der NO₂-

Zusatzbelastung vor allem in den Vormittagsstunden und am frühen Morgen, genau dann, wenn keine Änderung des Ozontagesganges beobachtet werden kann.

Eine Erhöhung der NO₂-Immissionskonzentration und der NO₂-Zusatzbelastung in den frühen Morgenstunden an der Station Stuttgart-Straße kann für die Jahre 2001 und 2004 nicht mit der Ozon-Immissionskonzentration erklärt werden. Der Tagesgang der Ozon-Immissionskonzentration hat sich hinsichtlich der Höhe der Konzentration während der Mittags- und Nachtstunden geändert. Das Einsetzen der Konvektion des Ozons aus höheren Luftschichten fand in allen drei Jahren zur gleichen Zeit statt. Der steile morgendliche Anstieg der NO₂-Immissionskonzentration und der NO₂-Zusatzbelastung muss somit andere Ursachen haben. Möglicherweise konnten veränderte Verkehrsemissionen den steilen morgendlichen Anstieg und die ganzzertlich hohe Konzentration über den Tag bewirken.



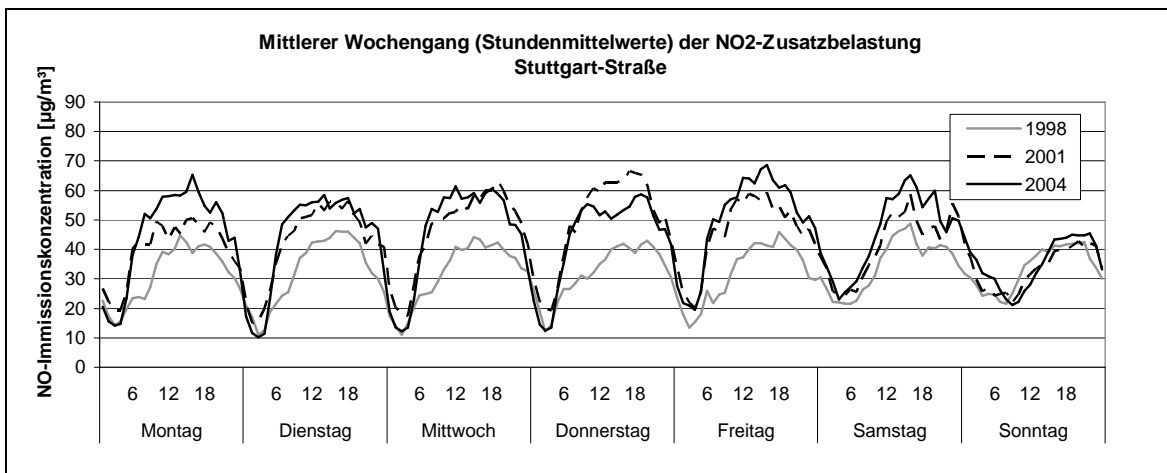


Abb.29 Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004

Der Tages- und Wochengang für die Stationen Mannheim-Straße (Stickoxide) und Mannheim-Süd (Ozon) ist in Abbildung 30 dargestellt. Die Tagesgänge der NO-Immissionskonzentration zeigen für die drei ausgewählten Jahre annähernd gleiche Verläufe bei unterschiedlichen Niveaus. Der Tagesverlauf beginnt mit einem steilen Anstieg der NO-Immissionskonzentration in den frühen Morgenstunden, setzt sich fort mit seinen zwei Maxima am Vormittag und während der Abendstunden und endet mit dem Abfall während der Nacht. Auch an der Station Mannheim-Straße ist die Reduktion der NO-Immissionskonzentration von 1998 über 2001 bis 2004 erkennbar. Das höchste Niveau wurde für die Werktage mit 140 µg/m³ während des morgendlichen Maximums 1998 erreicht. Das morgendliche Maximum der Werktage sank bis auf 80 µg/m³ im Jahr 2004. Auch an der Station Mannheim-Straße ist das zweite Maximum in den Abendstunden deutlich weniger ausgebildet, vor allem in den Jahren 2001 und 2004.

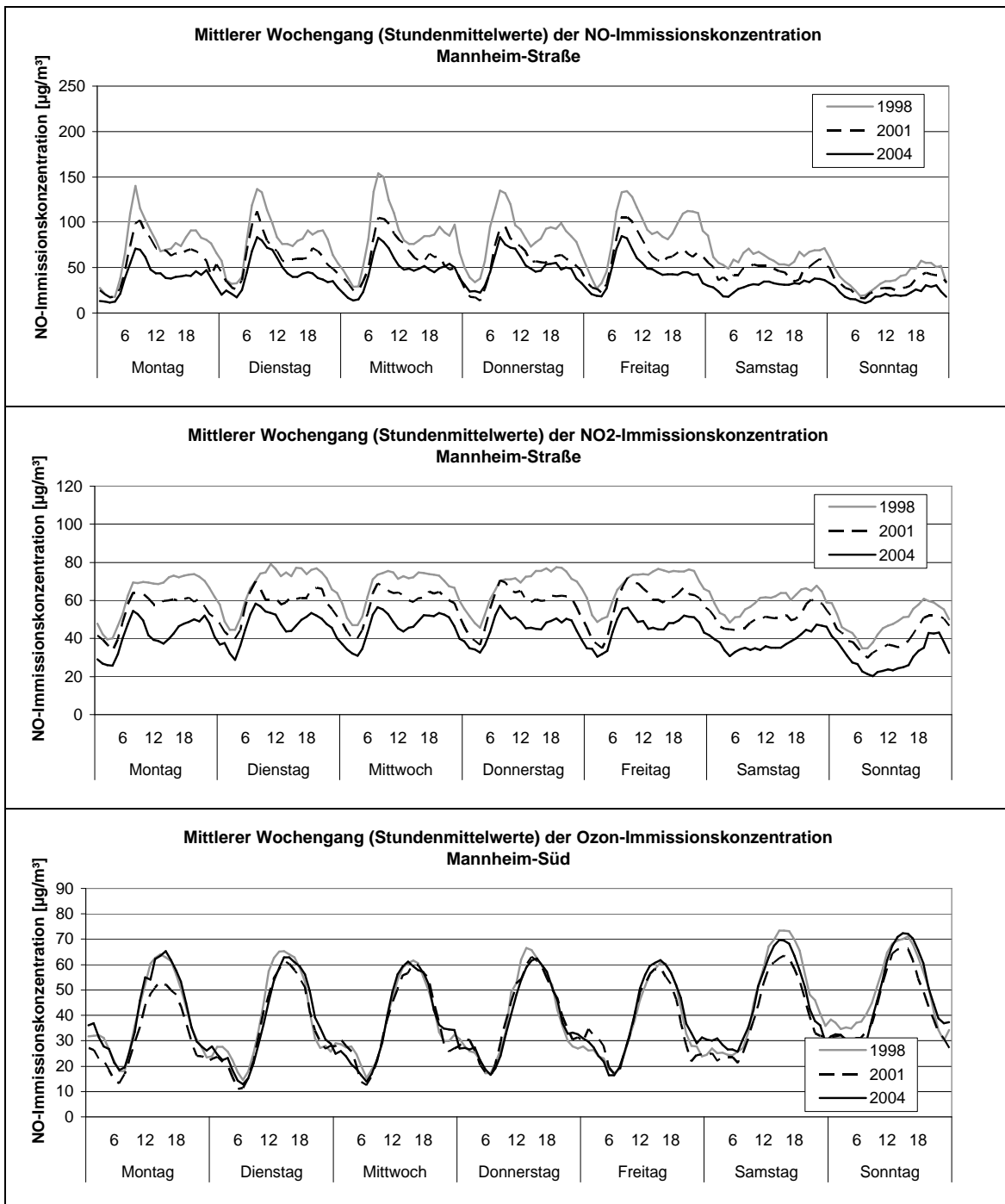
Für den Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration ergibt sich für die Station Mannheim-Straße eine andere Entwicklung als für Stuttgart. Die Höhe der NO₂-Immissionskonzentration konnte in den Jahren 2001 und 2004 gegenüber 1998 deutlich gesenkt werden. Eine Reduktion der NO₂-Immissionskonzentration fand zu allen Tages- und Nachtzeiten statt. Auch im Verlauf des Tagesganges sind einige Änderungen erkennbar. 1998 zeigt der Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration nicht wie in Stuttgart-Straße die zwei ausgeprägten Maxima während der Morgen und Abendstunden. Vielmehr war eine kontinuierlich hohe NO₂-Immissionskonzentration über den gesamten Tag erkennbar. Bereits 2001 und noch deutlicher im Jahr 2004 sind auch an der Verkehrsmessstation Mannheim-Straße die zwei Maxima ausgebildet. Interessant ist auch hier, dass die beiden Maxima 2004 nicht identisch sind. Das morgendliche Maximum ist an den Werktagen (Montag bis Freitag) etwas größer im Vergleich zum abendlichen Maximum. Ganz so große Unterschiede wie an der Verkehrsmessstation Stuttgart-Straße ergeben sich jedoch nicht.

Der Tagesgang der Ozon-Immissionskonzentration hat sich kaum verändert. Allein die Höhe der maximalen Ozon-Immissionskonzentration vor allem am Wochenende unterlag einer leichten Abnahme am Wochenende gegenüber dem Jahr 1998. Ansonsten sind keine Änderungen bezüglich der Jahre 1998 und 2004 feststellbar. Bei der Betrachtung dieser drei Jahre kann kein ansteigender Trend beobachtet werden.

Der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung unterscheidet sich in allen drei Jahren voneinander. Eindeutig ist, dass die NO₂-Zusatzbelastung über die Jahre 1998, 2001 und 2004 zu allen Tages- und Nachtzeiten deutlich gesunken ist. Die negativen Werte der NO₂-Zusatzbelastung 2004 ergeben sich hinsichtlich des Phänomens, dass die Belastung an der Verkehrsmessstation in den Nachtstunden geringer war als im städtischen Hintergrund. Der Verlauf der NO₂-Zusatzbelastung über den Tag gleicht dem Verlauf der Ozon-Immissionskonzentration. Der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung setzt wie in Stuttgart vor der

Konvektion von Ozon ein. Jedoch ist der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung eher als moderat und nicht als steil zu bezeichnen. Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung befindet sich mit leichter Verzögerung dann, wenn auch das Ozon-Maximum gemessen wird. Somit kann nicht wie in Stuttgart eine hohe NO₂-Zusatzbelastung über den gesamten Tag festgestellt werden sondern vielmehr ein Aufbau und Abbau innerhalb einer kürzeren Zeitspanne.

Die starke Abnahme der NO₂-Zusatzbelastung 2004 hat mit der dort stattgefundenen Abnahme der Verkehrsstärke zu tun. Diese wurde auf Grund von Baumaßnahmen im Jahr 2004 registriert. Die deutliche Abnahme im Jahr 2001 gegenüber 1998 kann mit einer geringeren Ozon-Immissionskonzentration aber auch mit geringeren NO- und damit zusammenhängenden NO_x-Immissionen erklärt werden.



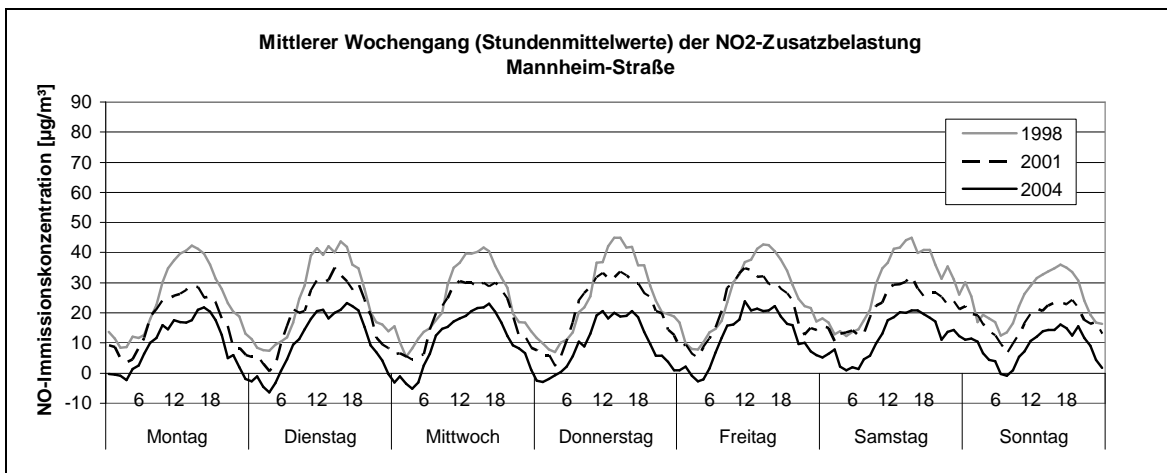


Abb.30 Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004

Der Tages- und Wochengang für die Stationen Freiburg-Straße (Stickoxide) und Freiburg-Mitte (Ozon) ist in Abbildung 31 dargestellt. Die Tagesverläufe der NO-Immissionskonzentration zeigen für die drei ausgewählten Jahre gleiche Verläufe mit unterschiedlich hohen NO-Immissionskonzentrationen. Auffallend an der Station Freiburg-Straße ist, dass das zweite Maximum der NO-Immissionskonzentration in den Abendstunden weder 1998 noch 2001 oder 2004 erkennbar ist. Der Tagesgang der Werktagen zeigt somit ein Maximum während der Vormittagsstunden und eine kontinuierliche Abnahme der NO-Immissionskonzentration hin zu den Abend- und Nachtstunden. Die geringsten NO-Immissionskonzentrationen werden an allen Tagen zwischen 0 und 5 Uhr gemessen. Auch in Mannheim konnte die Belastung der Luft mit Stickstoffmonoxid reduziert werden. Die Reduktion zeigt sich vor allem am Vormittag und Nachmittag.

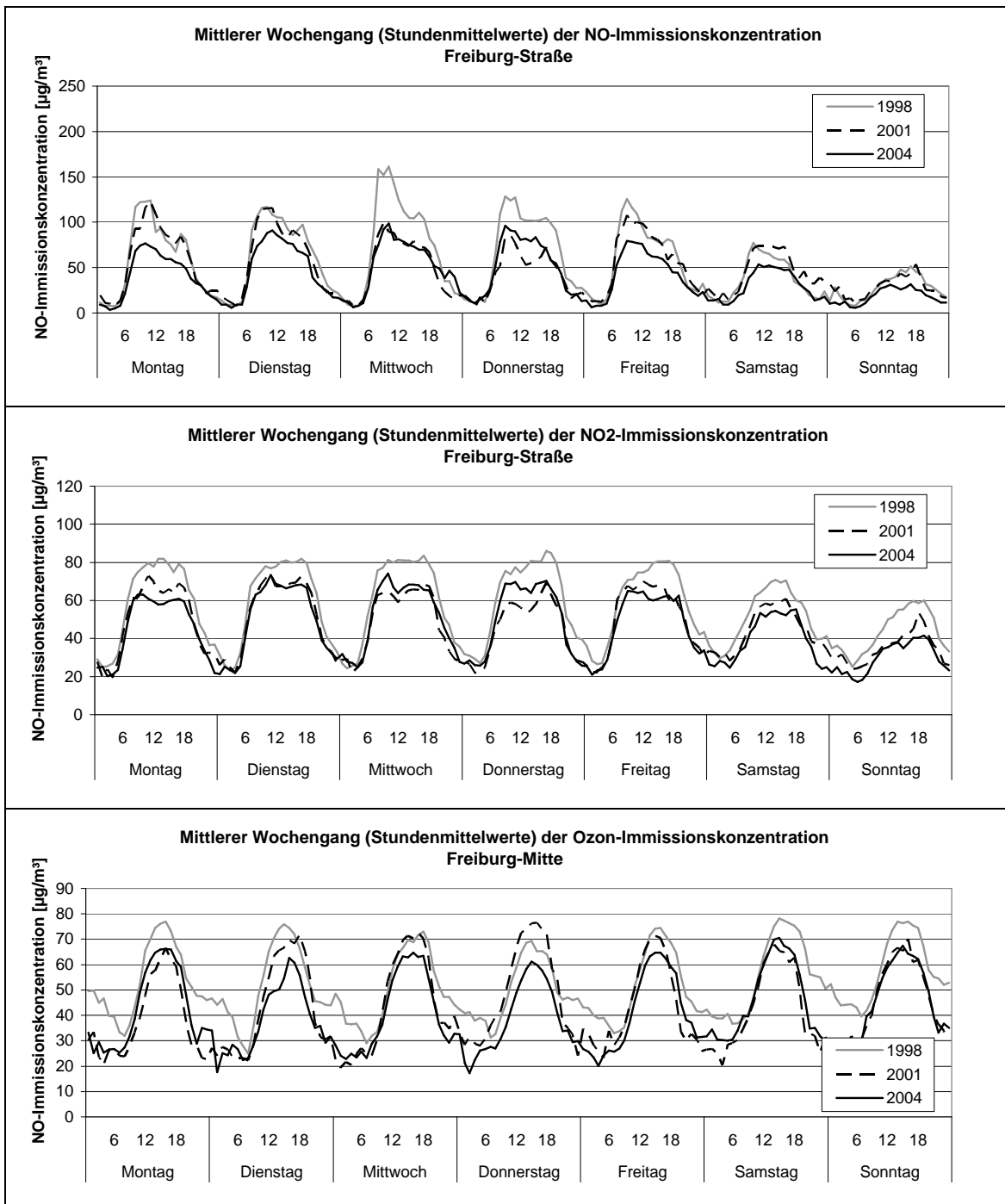
Für den Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration ergibt sich für die Station Freiburg-Straße die gleiche Entwicklung wie für die Station Mannheim-Straße. Die Höhe der NO₂-Immissionskonzentration konnte in den Jahren 2001 und 2004 deutlich gegenüber 1998 gesenkt werden. Die höchsten Reduktionen der NO₂-Immissionskonzentration konnten in den Mittagsstunden verzeichnet werden. Der Tagesgang der NO₂-Immissionskonzentration zeigt für die Station Freiburg-Straße nicht die zwei typischen Maxima wie sie in Stuttgart ausgebildet sind. Vielmehr ist in allen drei Jahren eine kontinuierlich hohe NO₂-Immissionskonzentration über den gesamten Tag erkennbar. 1998 und in leichten Ansätzen auch 2001 war eine leicht höhere NO₂-Immissionskonzentration während der Nachmittag- und Abendstunden erkennbar.

Der Tagesgang der Ozon-Immissionskonzentration verändert sich hinsichtlich der Höhe der Ozon-Maxima deutlich von Jahr zu Jahr. Ansonsten sind keine Änderungen bezüglich der Jahre 1998 und 2004 feststellbar. Bei der Betrachtung dieser drei Jahre kann kein ansteigender Trend beobachtet werden. 1998 lag die Ozon-Immissionskonzentration fast an allen Wochentagen deutlich über dem Niveau 2001 und 2004. Vor allem zu den Mittag- und Nachtstunden war die Ozon-Immissionskonzentration 2001 und 2004 deutlich geringer. Die geringsten Ozon-Immissionskonzentrationen wurden an Werktagen 2004 erreicht.

Der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung unterscheidet sich wie die Ozon-Immissionskonzentration in allen drei Jahren deutlich voneinander. 1998 war die NO₂-Zusatzbelastung Werktags (Montag bis Freitag) am größten. 2001 und 2004 waren die NO₂-Zusatzbelastungen annähernd gleich. Die negativen Werte der NO₂-Zusatzbelastung 2004 ergeben sich wie auch in Mannheim daraus, dass die Belastung an der Verkehrsmessstation in den Nachstunden geringer war als im städtischen Hintergrund. Der Verlauf der NO₂-Zusatzbelastung über den Tag gleicht dem Verlauf der Ozon-Immissionskonzentration. Wie in Mannheim ist auch der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung in Freiburg moderat hinsichtlich des steilen Anstiegs der NO₂-Zusatzbelastung in Stuttgart. Wie an den beiden Stationen vorher

befindet sich das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung mit leichter Verzögerung denn, wenn das Ozon-Maximum erreicht ist. In Stuttgart wurde 2001 und 2004 das Maximum bereits während des Vormittages erreicht.

Die starke Abnahme der NO₂-Zusatzbelastung 2004, aber auch 2001 gegenüber 1998, kann mit der geringeren Ozon- und NO-Immissionskonzentration in diesen Jahren erklärt werden. Warum jedoch die NO₂-Zusatzbelastung 2004 und 2001 an allen Wochentagen bei unterschiedlich hoher NO- und Ozon-Immissionsbelastung beinahe identisch ist kann nicht so einfach erklärt werden. Sicher spielt hier das Mischungsverhältnis der Stoffe untereinander eine entscheidende Rolle, sodass trotz geringer NO- und Ozon-Immissionskonzentration genauso viel NO₂ gebildet wurde wie 2001.



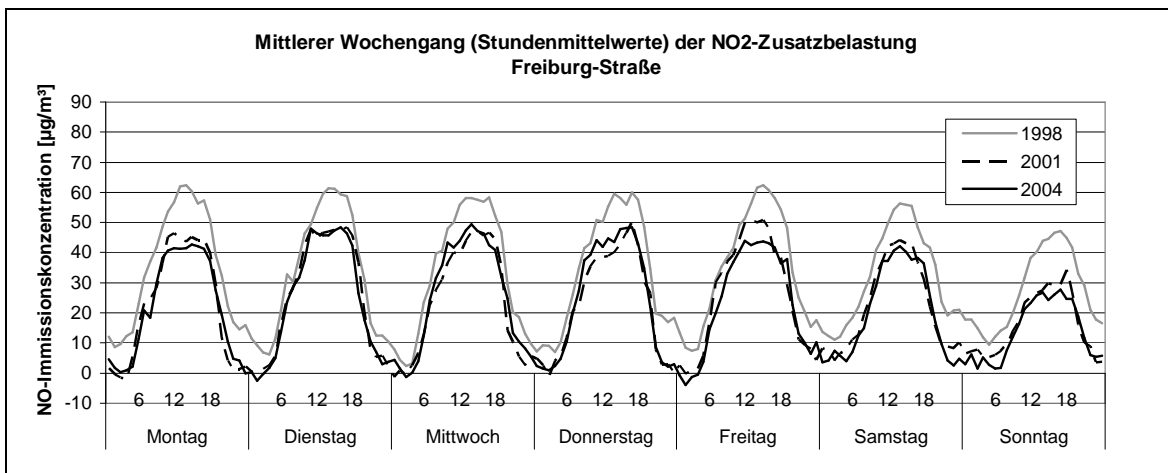


Abb.31 Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004

Für die Stationen Karlsruhe-Straße (Stickoxide) und Karlsruhe-Nordwest (Ozon) wird der Tages- und Wochengang in Abbildung 32 dargestellt. Die Tagesverläufe der NO-Immissionskonzentration zeigen an der Station Karlsruhe-Straße die gleiche Entwicklung wie sie bereits für die drei anderen Verkehrsstationen festgestellt wurde. Ausgehend vom Jahr 1998 konnte die NO-Immissionskonzentration zu den Tages- und Nachtzeiten an allen Wochentagen deutlich reduziert werden. An der Station Karlsruhe-Straße ist das zweite Maximum der NO-Immissionskonzentration in den Abendstunden ausgebildet. Auch an dieser Stationen werden die geringsten NO-Immissionskonzentrationen zwischen 0 und 5 Uhr gemessen.

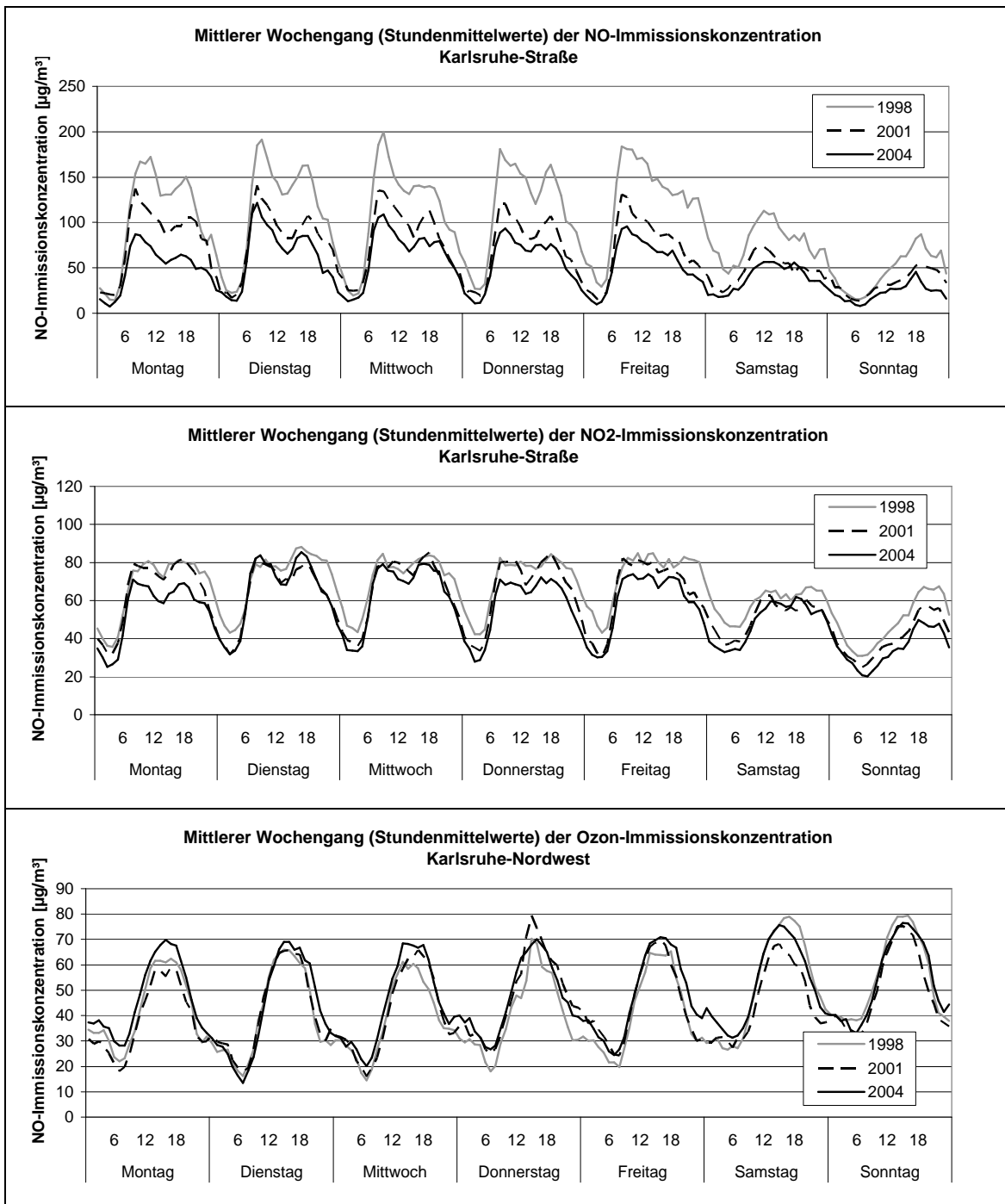
Für den Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration ergibt sich für die Station Karlsruhe-Straße die gleiche Entwicklung wie für die Verkehrsstationen in Mannheim und Freiburg. Die Höhe der NO₂-Immissionskonzentration konnte in den Jahren 2001 und 2004 deutlich gegenüber 1998 gesenkt werden. Die höchsten Reduktionen der NO₂-Immissionskonzentration werden vor allem in Mittag-, Abend- und Nachtsstunden verzeichnet. Für den Verlauf ergeben sich wie an der Station Stuttgart-Straße ebenfalls zwei Maxima der NO₂-Immissionskonzentration in den Morgen- und Abendstunden. Die Maxima haben in allen Jahren werktags das gleiche Niveau.

Der Tagesgang der Ozon-Immissionskonzentration verändert sich hinsichtlich der Höhe der Ozon-Maxima deutlich von Jahr zu Jahr. Eine einheitliche Entwicklung kann auf der Grundlage der drei Jahre für die Werktage und das Wochenende nicht beobachtet werden. 1998 lag die Ozon-Immissionskonzentration an den Werktagen unter dem Niveau der Jahre 2001 und 2004. Die höchsten Ozon-Immissionskonzentrationen wurden Werktag (Montag bis Freitag) 2004 erreicht, mit Ausnahme des Donnerstag.

Der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung unterscheidet sich hinsichtlich der Höhe der NO₂-Zusatzbelastung in allen drei Jahren deutlich voneinander. Eine Entscheidung welches Jahr die höchste NO₂-Zusatzbelastung werktags hatte kann nicht eindeutig gemacht werden. 2001 und 2004 waren die NO₂-Zusatzbelastungen höher als 1998, dabei zeigen beide Jahre an unterschiedlichen Wochentagen jeweils die höchste NO₂-Zusatzbelastung. Negative Werte der NO₂-Zusatzbelastung wie in Mannheim und Freiburg treten in Karlsruhe nicht auf. Interessant ist, dass die NO₂-Zusatzbelastung an der Station Karlsruhe-Straße eine regelrechte Spitze zu den späten Nachmittagsstunden aufweist. Diese Spitze kann bei keiner der drei anderen Stationen festgestellt werden (vgl. NO₂-Zusatzbelastung Montag bis Donnerstag). Vor allem in den Jahren 2001 und 2004 tritt diese Spitze besonders zutage. Der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung unterscheidet sich in Karlsruhe deutlich von dem Verlauf in Stuttgart, obwohl beide Stationen einen Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung verzeichnen.

Der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung in Karlsruhe 2004 und 2001 gegenüber 1998 ist möglicherweise auf den Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration in diesen Jahren zurückzuführen. Dafür spricht, dass sich die NO₂-Zusatzbelastung überwiegend in den

Nachmittagsstunden erhöht hat. Zu diesen Stunden wurde auch der Ozonanstieg festgestellt. In den frühen Morgenstunden ist ein Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung 2004 gegenüber 1998 feststellbar. Dieser morgendliche Anstieg zeigt bereits hohe NO₂-Zusatzbelastungen bevor überhaupt die Konvektion von Ozon einsetzt. Jedoch ist dieser Anstieg in Karlsruhe werktags weniger ausgeprägt als in Stuttgart.



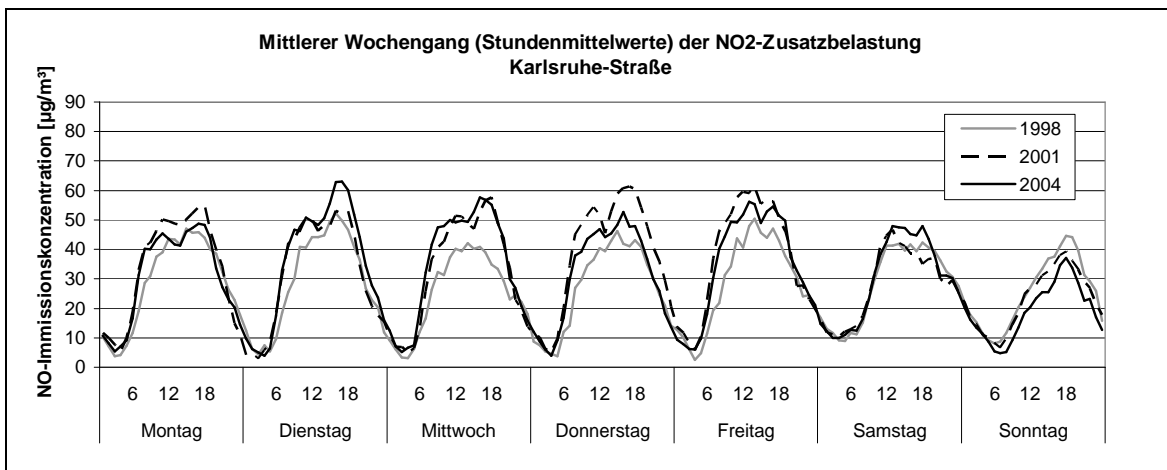


Abb.32 Entwicklung des Wochengangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004

6.2.2 Jahrgang

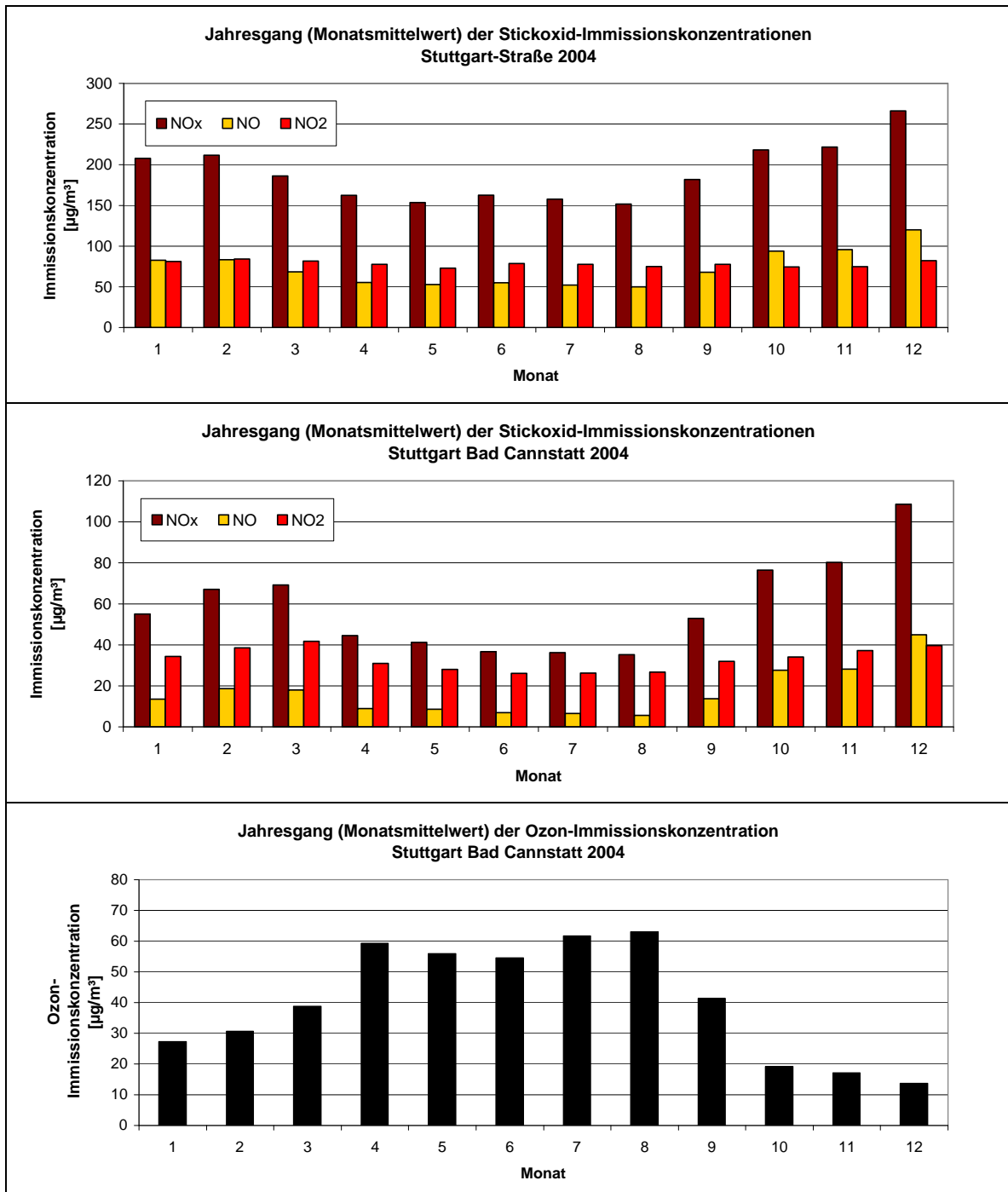
Der Jahrgang der Stickoxid-Immissionskonzentrationen (NO_x, NO und NO₂) auf Basis der Monatsmittelwerte wird beispielhaft für die Hintergrundmessstation Stuttgart Bad Cannstatt sowie für die Verkehrsmessstation Stuttgart Arnulf-Klett-Platz dargestellt. Weiterhin wird der Jahrgang für den sekundären Luftschadstoff Ozon an der Hintergrundmessstelle sowie der Jahrgang der NO₂-Zusatzbelastung an der Verkehrsmessstation gezeigt. Alle Grafiken der Jahrgänge der NO_x-, NO-, NO₂-, NO₂-Zusatzbelastung und Ozon-Immissionskonzentration für die Messstationen in Mannheim, Freiburg und Karlsruhe befinden sich im Anhang C (Abbildungen 71 bis 73).

Die Abbildung 33 oben zeigt den Jahrgang der Stickoxid-Immissionskonzentrationen für die Station Stuttgart-Straße im Jahr 2004. Für die NO_x- und NO-Immissionskonzentration zeigt sich ein deutlicher Jahrgang mit hohen Immissionskonzentrationen im Winterhalbjahr und niedrigen Immissionskonzentrationen während der Sommermonate. Der Jahrgang der NO₂-Immissionskonzentration ist an der Station Stuttgart-Straße sehr undeutlich ausgeprägt. Mit einer NO₂-Immissionskonzentration von durchschnittlich 77 µg/m³ im Sommer und 81 µg/m³ im Winter existiert er dennoch.

Dagegen kann in Stuttgart Bad Cannstatt für NO_x, NO und NO₂ ein deutlicher Jahrgang mit minimaler Immissionskonzentration im Sommer und einem winterlichen Immissionskonzentrationsmaximum festgestellt werden. Das Niveau der Luftbelastung mit Stickstoffdioxid ist an der Messstation Stuttgart Arnulf-Klett-Platz etwa doppelt bis dreifach so hoch wie in Stuttgart Bad Cannstatt. Dort lag die NO₂-Immissionskonzentration im Sommer 2004 bei durchschnittlich 26 µg/m³ und im Winter bei 37 µg/m³. Der Jahrgang der Stickoxide ist ein Resultat der meteorologischen Bedingungen der Schadstoffausbreitung (siehe dazu Kapitel 7).

Der Jahrgang der Ozon-Immissionskonzentration hat einen typischen Verlauf mit sehr hohen Immissionskonzentrationen in den Sommermonaten und geringen Immissionskonzentrationen in den Wintermonaten. Der Jahrgang der Ozon-Immissionskonzentration ist die Folge des Wechselspiels zwischen den Ozonvorläufersubstanzen (NO_x und NMVOC) und den meteorologischen Faktoren (Temperatur und Strahlung). Im Sommer werden bei hohen Temperaturen und hoher Sonneneinstrahlung große Mengen an flüchtigen organischen Verbindungen freigesetzt. Diese stammen überwiegend aus biogenem Material und aus Lösemitteln. Die hohen Temperaturen und die Sonneneinstrahlung fördern zusätzlich die Photolyse von NO₂ und damit den schnelleren Ablauf der Ozonbildung.

Der Jahresgang der lokalen NO₂-Zusatzbelastung am Arnulf-Klett-Platz in Stuttgart unterscheidet sich deutlich vom Jahresgang der NO₂-Immissionskonzentration. Die höchsten Konzentrationen der NO₂-Zusatzbelastung werden in den Sommermonaten erreicht und fallen demzufolge mit den hohen Ozon-Immissionskonzentrationen zusammen. Die NO₂-Zusatzbelastung hat jedoch ein weiteres Maximum in den Wintermonaten und zeigt entsprechend, demnach auch einen Zusammenhang mit den hohen winterlichen NO_x-Immissionskonzentrationen. Die geringste lokale NO₂-Zusatzbelastung wird im Frühjahr und im Herbst gemessen.



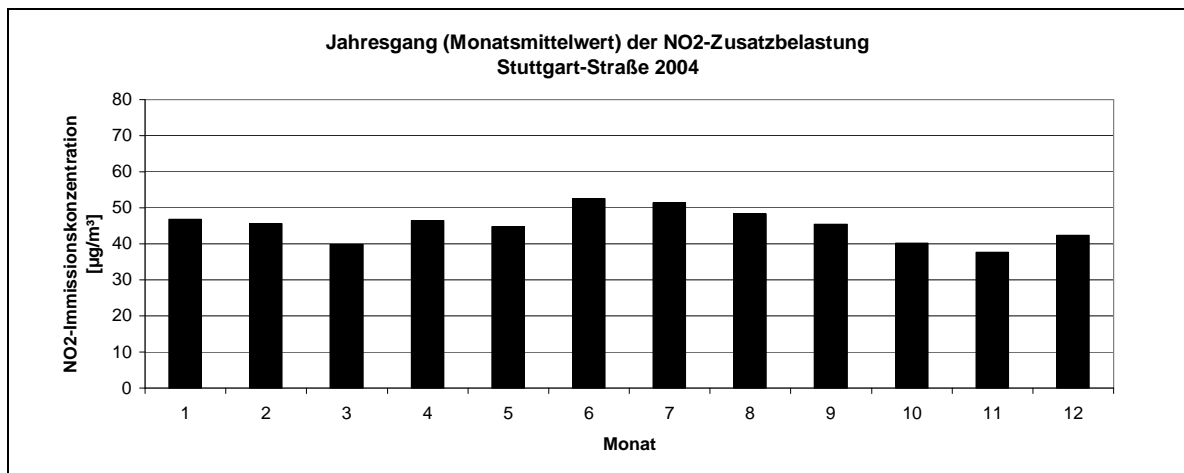


Abb.33 Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004

Im zweiten Teil werden die mittleren Jahresgänge der NO-, NO₂- und Ozon-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung der Jahre 1998, 2001 und 2004 dargestellt.

Für die Stationen Stuttgart-Straße (Stickoxide) und Stuttgart Bad Cannstatt (Ozon) wird der Jahresgang in Abbildung 34 dargestellt. Die Entwicklung der NO-Immissionskonzentration an der Station Stuttgart-Straße zeigt einen negativen Trend. Ausgehend vom Jahr 1998 konnte die NO-Immissionskonzentration in allen Monaten deutlich reduziert werden. Die geringsten NO-Immissionskonzentrationen wurden somit im Jahr 2004 erreicht. Der Jahresverlauf mit geringen NO-Immissionskonzentrationen im Sommer und höheren Werten im Winter war in allen drei Jahren gleich.

Der Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsstation Stuttgart-Straße hat sich zwischen den Jahren 2001/2004 und 1998 verändert. In den Monaten Oktober und November hat sich die NO₂-Immissionskonzentration von 1998 bis 2001 deutlich erhöht. Zu 2004 gibt es keine Sprünge. Mit Ausnahme des Jahres 1998 liegt die NO₂-Immissionskonzentration im Mittel jeden Monat bei 80 µg/m³. Der Jahresgang ist wie bereits oben beschrieben wurde nicht so deutlich ausgeprägt wie bei NO.

Der Jahresgang der Ozon-Immissionskonzentration veränderte sich hinsichtlich der Höhe der Ozon-Monatsmittelwerte. Ein einheitlicher Trend nach Jahreszeiten kann auf der Grundlage der Monatsmittelwerte nicht beobachtet werden. Mal lag die Ozon-Immissionskonzentration 2004 unter dem Niveau von 1998, z.B. im Januar oder Februar, und mal lag sie deutlich niedriger als 1998 z.B. im November und Dezember. Die höchsten Ozon-Immissionskonzentrationen wurden in den drei ausgewählten Jahren im Mai bis August erreicht.

Der Jahresgang der NO₂-Zusatzbelastung hat zwei ausgeprägte Maxima. Dies wird besonders im Jahr 2004 deutlich. Die höheren NO₂-Zusatzbelastungen werden in den Sommermonaten bei gleichzeitig hoher Ozon-Immissionskonzentration erreicht. Das zweite Maximum mit den niedrigeren NO₂-Zusatzbelastungen macht sich in den Wintermonaten bemerkbar. Hier besteht jedoch ein Unterschied zu den Jahren 2001 und 1998. In diesen Jahren wurde gegenüber dem Sommermaximum kein zweites Wintermaximum festgestellt. Die Winterkonzentrationen lagen 2001 deutlich unter den Sommer-, Herbst- und Frühjahrskonzentrationen. Dennoch war die Höhe der NO₂-Zusatzbelastung 2001 im Gegensatz zu 1998 in allen Monaten deutlich höher.

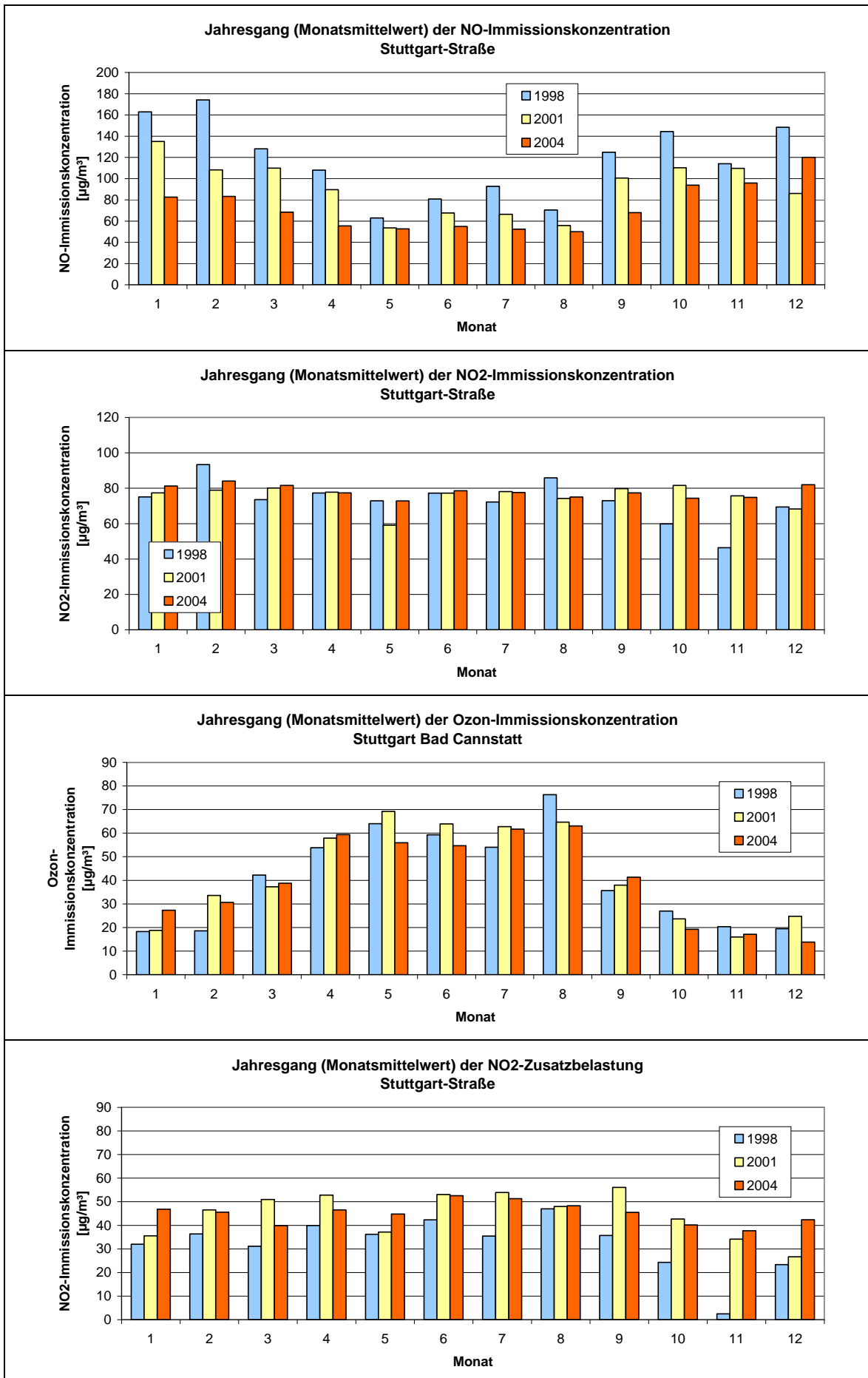


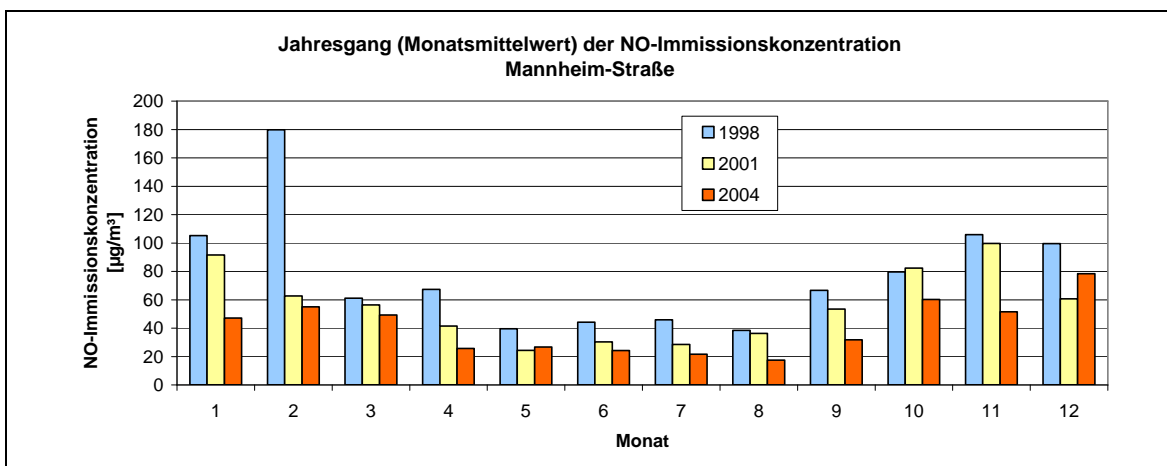
Abb.34 Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart

Die Abbildung 35 stellt die Jahresgänge der NO_x- NO₂- und Ozon-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung in Mannheim dar. Die NO-Immissionskonzentration an der Station Mannheim-Straße konnte für alle Monate der Jahre 2001 und 2004 gegenüber dem Jahr 1998 reduziert werden. Im Jahresverlauf zeigen sich die geringsten NO-Immissionskonzentrationen während der Sommermonate. Dies gilt für alle drei Jahre. 2004 waren, auf Grund des verminderten Verkehrsaufkommens im Jahr 2004, die NO-Immissionskonzentrationen in allen Monaten mit Ausnahme des Dezembers geringer als im Jahr 2001.

An der Verkehrsstation Mannheim-Straße kann für die drei Jahre eine Reduktion der NO₂-Immissionskonzentration von 1998 über 2001 bis 2004 festgestellt werden. 1998 zeigt der Jahresverlauf der NO₂-Immissionskonzentration die höchsten Konzentrationen im Sommer und die niedrigsten in den Wintermonaten. Dieser Verlauf hat sich gegenüber dem Jahr 2004 deutlich gewandelt. Denn 2004 wurden die höchsten NO₂-Immissionskonzentrationen nicht in den Sommermonaten sondern in den Wintermonaten gemessen. Dieser Jahresverlauf mit seiner überdurchschnittlich geringen NO₂-Belastung gleicht dem Jahresverlauf einer Messstation im städtischen Hintergrund.

Der Jahresgang der Ozon-Immissionskonzentration an der Station Mannheim-Süd zeigt die gleichen Besonderheiten wie an der Station Stuttgart Bad Cannstatt. Eine einheitliche Tendenz für die Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration kann wie bei der Betrachtung der Zeitreihe nicht gemacht werden. Die Ozon-Immissionskonzentration 2004 lag in 8 von 12 Monaten unter dem Niveau von 1998. Jedoch sind diese Fälle keiner einheitlichen Jahreszeit zuzuordnen. Eine pauschale Aussage für eine konkrete Entwicklung in eine Richtung ist für die Ozon-Immissionskonzentration anhand dieser drei Jahre nicht machbar.

Der Jahresgang der NO₂-Zusatzbelastung zeigte in Mannheim in den Jahren 1998 und 2001 nur ein Maximum in den Sommermonaten. Für den Jahresgang 2004 waren zwei Maxima der NO₂-Zusatzbelastung, im Winter und im Sommer, ausgebildet. Die höheren NO₂-Zusatzbelastungen sind in den Sommermonaten eng mit der erhöhten Ozon-Immissionskonzentration verbunden. Für die Höhe der lokalen NO₂-Belastung ergibt sich ein Rückgang in den Jahren 2001 und 2004 gegenüber dem Jahr 1998.



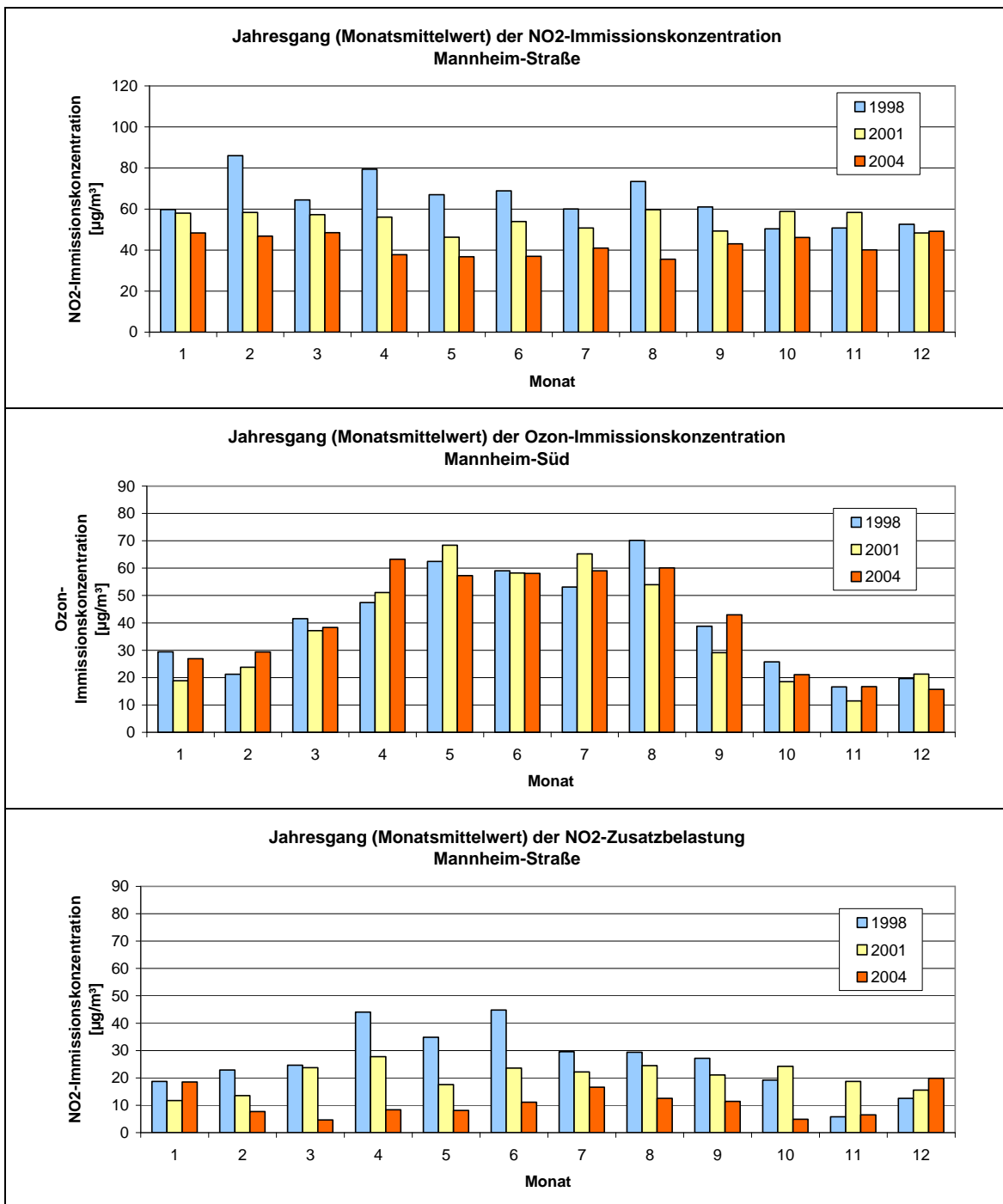


Abb.35 Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim

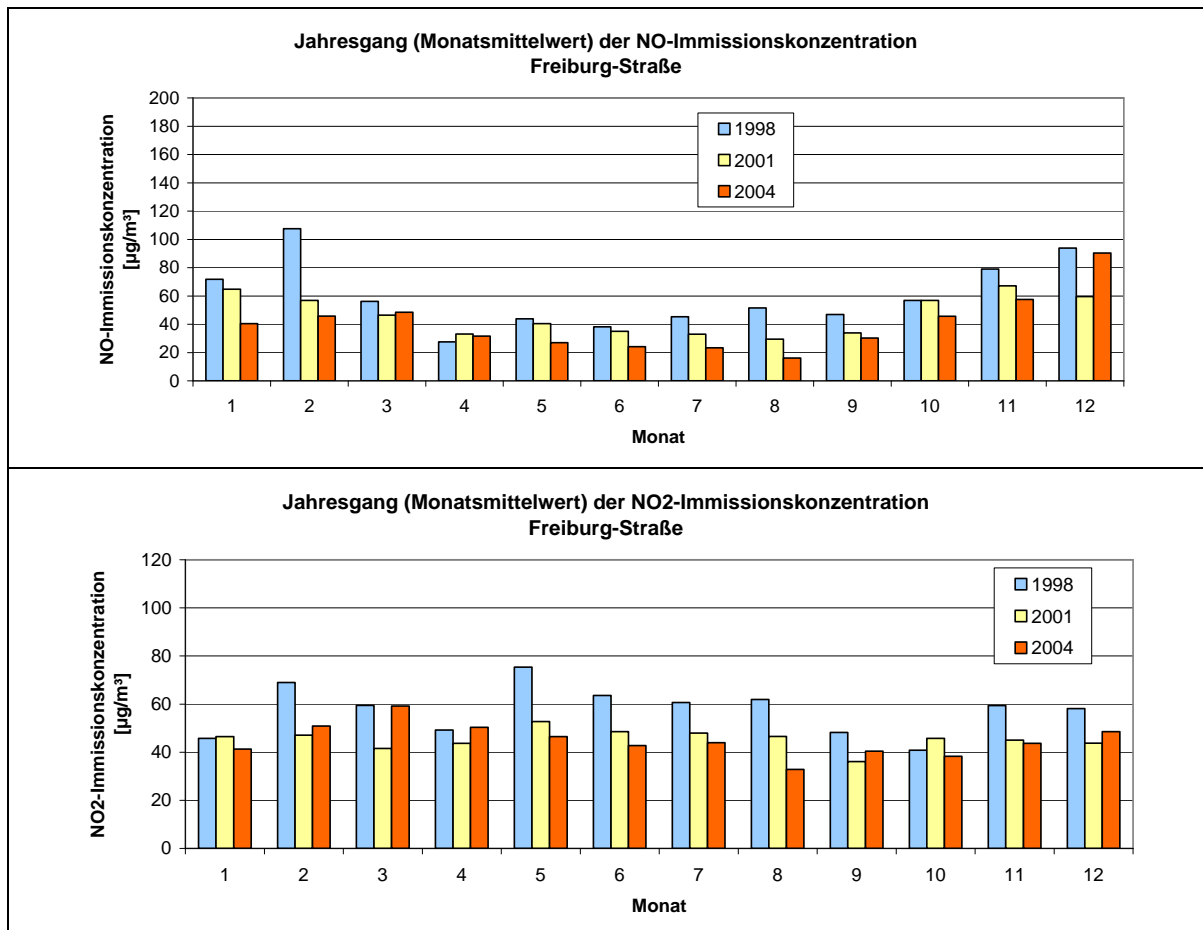
Die Abbildung 36 zeigt die Jahresgänge der NO_x- NO₂- und Ozon-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung in Freiburg. Die NO-Immissionskonzentration an der Station Freiburg-Strasse konnte für alle Monate, mit Ausnahme des Aprils, war in den Jahren 2001 und 2004 deutlich geringer als 1998. Der Jahresverlauf der NO-Immissionskonzentrationen ist in allen Jahren der gleiche mit geringer NO-Immissionskonzentration in den Sommermonaten und den höchsten Immissionskonzentrationen im Winter.

Der Jahresgang der NO₂-Immissionskonzentration verläuft mit kleineren Abweichungen genauso wie an den beiden vorhergehenden Verkehrsmessstationen. An der Station Freiburg-Strasse taten die höchsten Belastungen der Luft mit NO₂ im Verlauf der ersten Jahreshälfte (Januar bis August) auf. Dies kann für die drei ausgewählten Jahre beobachtet werden. Im Jahr 2004 wurden für Freiburg-Strasse die höchsten NO₂-Immissionskonzentrationen

(Monatsmittelwert) im Frühjahr und die geringsten NO₂-Immissionskonzentrationen im Herbst gemessen. 1998 war die NO₂-Immissionskonzentration deutlich höher als in den darauf folgenden Jahren.

Der Jahresgang der Ozon-Immissionskonzentration zeigt die gleichen Besonderheiten wie bereits in Stuttgart Bad Cannstatt und Mannheim-Süd. Ein einheitlicher Trend für die Entwicklung der Ozon-Immissionskonzentration kann anhand dieser drei Jahre nicht abgelesen werden. Für die Ozon-Immissionskonzentrationen sind neben den Vorläufersubstanzen auch das Angebot an solarer Strahlung und die Lufttemperatur ausschlaggebend. Die meteorologischen Parameter lassen entgegen den Vorläufersubstanzen in dieser kurzen Zeitspanne keinen Trend erkennen. Ein Trend für meteorologische Parameter kann nur anhand langer Zeitreihen – mindestens 30 Jahre – genau bestimmt werden.

Entgegen der NO₂-Immissionskonzentration hat der Jahresgang der NO₂-Zusatzbelastung ein Maximum in den Sommermonaten. Die höchsten NO₂-Zusatzbelastungen (Monatsmittelwert) fallen mit den hohen Ozon-Immissionskonzentrationen der Sommermonate zusammen. Ein weiteres Maximum der NO₂-Zusatzbelastung in den Wintermonaten existiert an der Station Freiburg-Straße nicht. Die Zusatzbelastung ist im Winter genauso hoch oder niedriger als im Frühjahr und Herbst. Für die Höhe der lokalen NO₂-Belastung ergibt sich ein Rückgang in den Jahren 2001 und 2004 gegenüber dem Jahr 1998. Dieser Rückgang war in den Monaten Mai bis August besonders hoch.



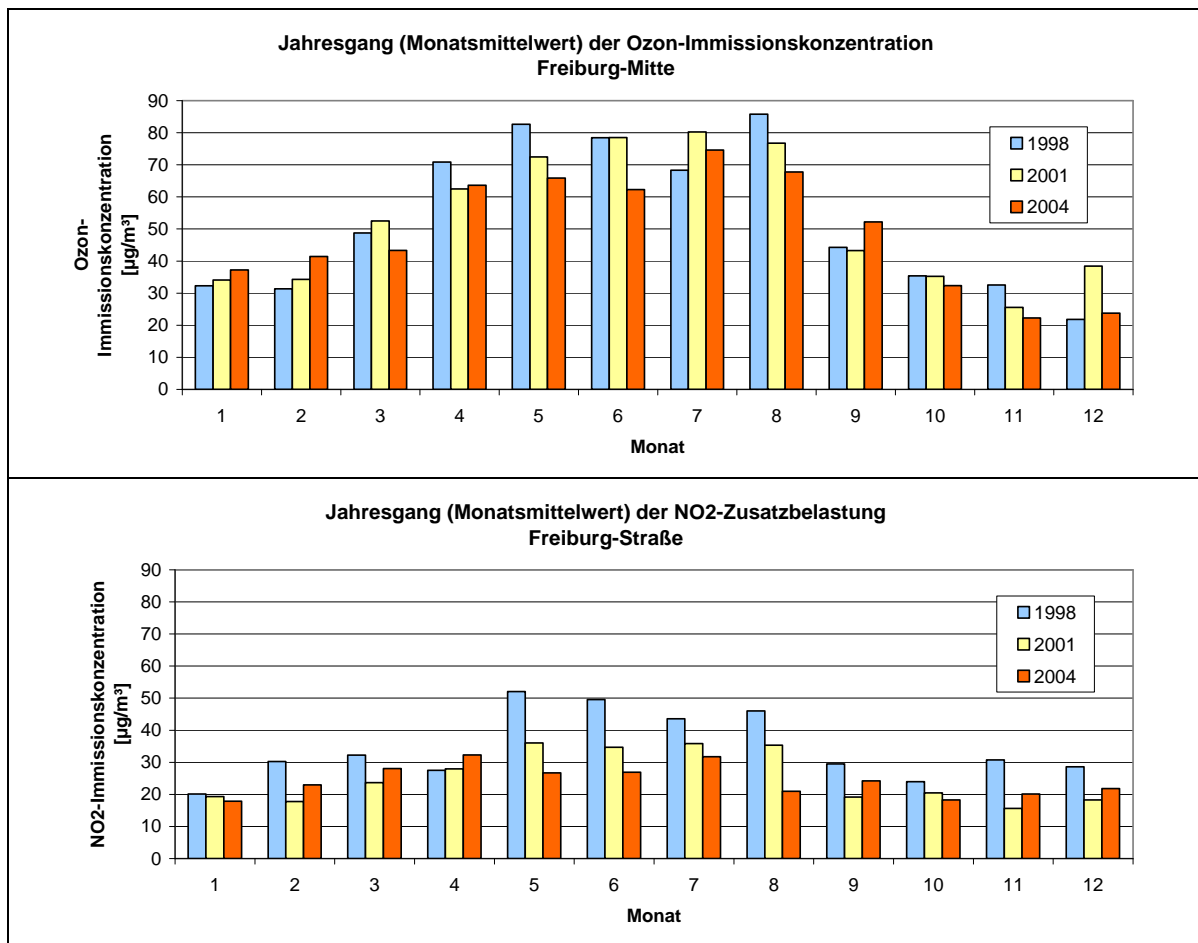


Abb.36 Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg

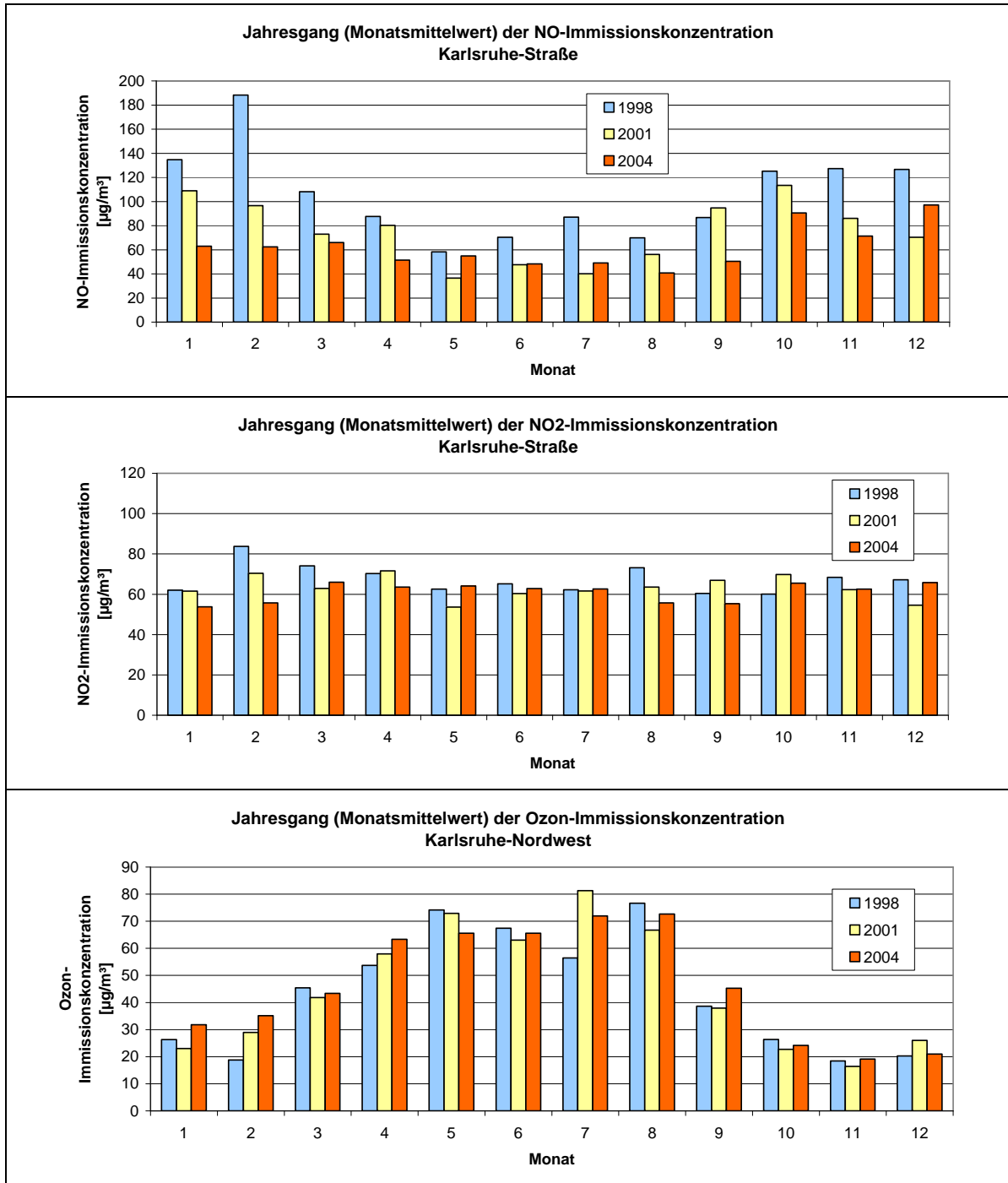
In der Abbildung 37 werden die Jahresgänge der NO_x- NO₂- und Ozon-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung für die Messstationen in Karlsruhe veranschaulicht. Die NO_x-Immissionskonzentration an der Station Karlsruhe-Straße war in allen Monaten der Jahre 2001 und 2004 mit Ausnahme des Septembers 2001 deutlich geringer als 1998. Der Rückgang der NO_x-Immissionskonzentration im Jahresmittel konnte für die betrachteten vier Verkehrsmessstellen auch im Monatsmittelwert nachgewiesen werden.

Der Jahresgang der NO₂-Immissionskonzentration verlief wie an der Verkehrsmessstation Stuttgart-Straße. Der Verlauf der NO₂-Immissionskonzentration hat sich zwischen den Jahren 2001/2004 und 1998 kaum verändert. Im Monatsmittel hat sich die NO₂-Immissionskonzentration 2004 gegenüber 1998 in allen Monaten mit Ausnahmen des Mai und des Oktobers reduziert. Ein Jahresgang der NO₂-Immissionskonzentration ist auch an der Station Karlsruhe-Straße kaum ausgeprägt. Die NO₂-Immissionskonzentration lag im Mittel jeden Monat bei 60 µg/m³.

Der Jahresgang der Ozon-Immissionskonzentration auf Basis der Monatsmittelwerte zeigte die gleichen Besonderheiten wie an allen Messstationen im städtischen Hintergrund. Der geringe Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration im Jahresmittel konnte für die vier Hintergrundmessstellen bei Betrachtung der Monatsmittelwerte nicht nachgewiesen werden. Die gestiegene und gesunkene Ozon-Immissionskonzentration richtet sich dabei nicht nach Jahreszeiten. Es gibt Monate, in denen die Ozon-Immissionskonzentration 2004 und auch 2001 unter der des Jahres 1998 lag. Daneben war in einigen Monaten die Situation umgekehrt.

Für die Station Karlsruhe-Straße ist die Entwicklung der NO₂-Zusatzbelastung genauso uneinheitlich wie die Ozon-Immissionskonzentration. In drei von zwölf Monaten lag die NO₂-Zusatzbelastung 2004 unter der des Jahres 1998. Ein einheitlicher Jahresgang der NO₂-Zusatzbelastung kann in Karlsruhe nicht erkannt werden. 2001 wurden die höchsten

Monatsmittelwerte der NO₂-Zusatzbelastung im Frühjahr und Herbst gemessen. 2004 wurden die höchsten Monatsmittelwerte der NO₂-Zusatzbelastung in den Monaten April bis Juli gemessen.



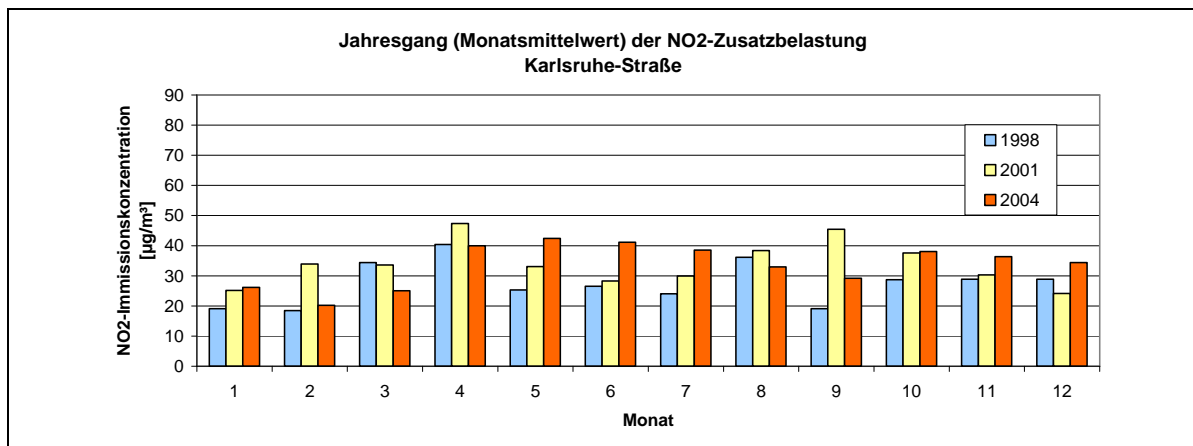


Abb.37 Entwicklung des Jahresgangs der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe

6.3 NO₂-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von Ozon

Um die Aussage bezüglich einer NO₂-Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration zu pauschalisieren, werden nun die NO₂-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration an der jeweiligen Hintergrundmessstelle betrachtet. Für die Betrachtung des Jahres- oder Tagesganges konnte eine Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentration von der Ozon-Immissionskonzentration nur vermutet werden. Die höchsten Konzentrationen des Luftschadstoffes Stickstoffdioxid, insbesondere die NO₂-Zusatzbelastung, traten genau dann auf, als die Ozon-Immissionskonzentration am höchsten war.

Um eine mögliche Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentrationen von Ozon zu prüfen, werden im folgenden Kapitel nochmals Betrachtungen zu beiden Luftschadstoffen gemacht. Die Basis der Betrachtung bilden Tagesmittelwerte der Immissionskonzentration ausgewählter Luftschadstoffe im Jahr 2004. Es wurde nur ein Jahr in möglichst nicht allzu ferner Vergangenheit für die Betrachtung gewählt. Innerhalb der Zeitspanne eines Jahres kann eine kontinuierliche Änderung der Fahrzeugflotte und größere Änderungen des Verkehrsaufkommens praktisch ausgeschlossen werden. Für die Betrachtung wurden die Werkzeuge Montag bis Freitag gewählt. Diese Tage haben ein annähernd gleiches Verkehrsaufkommen und somit annähernd gleiche Tagesmittelwerte der Stickoxide, wie der Tages- und Wochengang der Luftschadstoffkonzentration beweist.

Für die Betrachtung wurden Tagesmittelwerte der Immissionskonzentrationen gebildet. Die Ozon-Immissionskonzentration wurde in Klassen mit einer Bandbreite von je 10 µg/m³ eingeteilt. Anschließend wurden die Tagesmittelwerte der Stickoxid-Immissionskonzentration desselben Tages der jeweiligen Klasse der Ozon-Immissionskonzentration zugeordnet. Für jede Klasse wurde nun ein Klassenmittelwert der jeweiligen Stickoxid-Immissionskonzentration gebildet.

Für die Auswertung wird die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstelle nicht nur als Gesamtbelastung betrachtet sondern nochmals differenziert in städtischen Hintergrund (NO₂-Immissionskonzentration an den jeweiligen Hintergrundmessstellen) und Zusatzbelastung. Diese Differenzierung wird für das gesamte Jahr, die Sommermonate (Juni, Juli und August) und die Wintermonate (Januar, Februar und Dezember) vorgenommen. Bei dieser Zuordnung ist zu beachten, dass der dargestellte Winter nicht dem chronologischen Winter entspricht, sondern aus den beiden Winterhälften eines Jahres zusammengesetzt ist.

Für die Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz ist die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Ozon-Immissionskonzentration an der Hintergrundstation Stuttgart Bad Cannstatt in Abbildung 38 dargestellt.

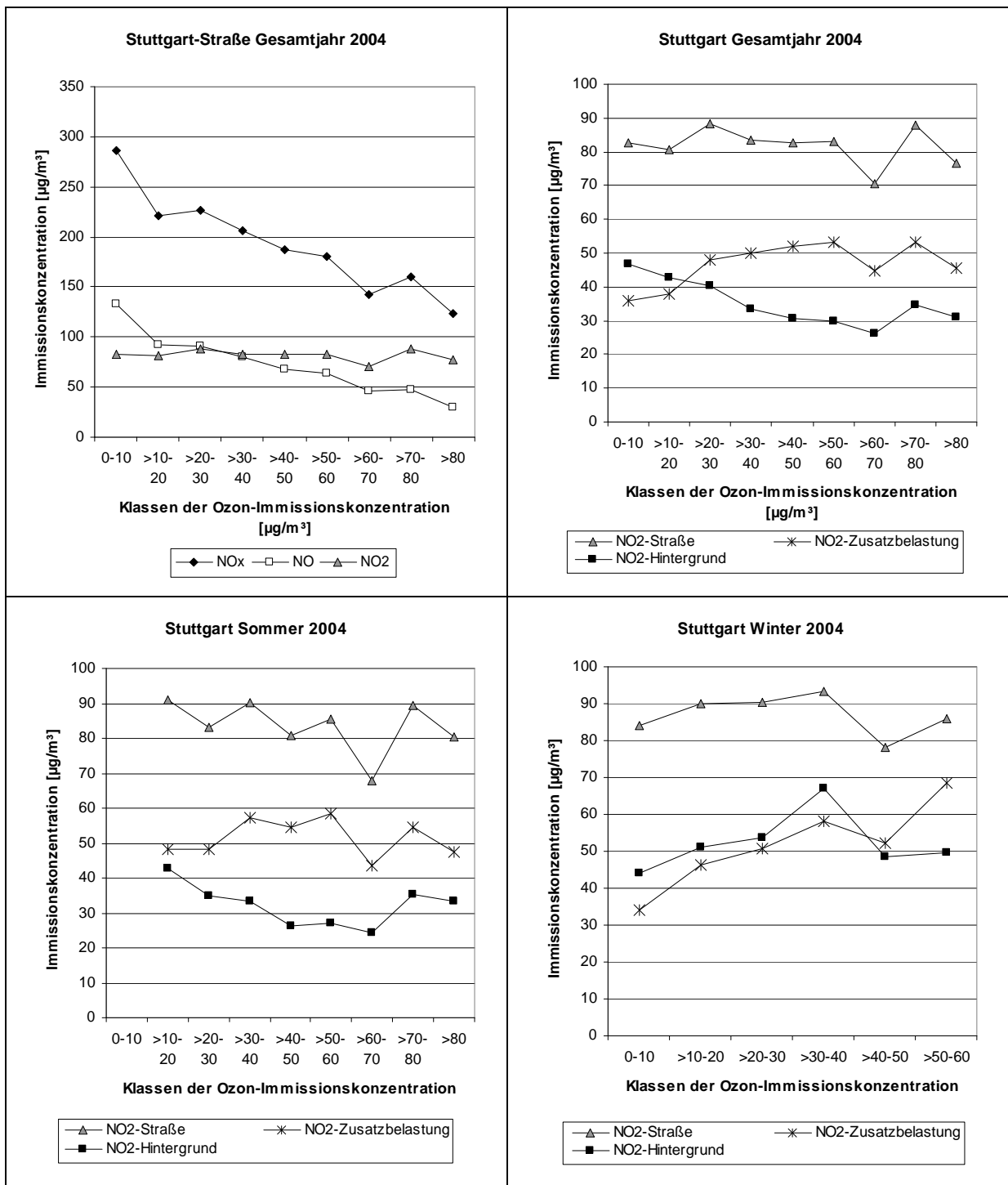


Abb.38 Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Stuttgart 2004

Bei der Betrachtung der Abhängigkeit der Immissionskonzentrationen von NO_x, NO und NO₂ von Ozon (oben links) fällt auf, dass mit zunehmender Ozonkonzentration die NO-Immissionskonzentration stark zurückgeht, während die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsstation über alle Klassen annähernd konstant bleibt. Diese Abhängigkeit ist plausibel, denn Stickstoffmonoxid wird durch Ozon abgebaut, wohingegen Stickstoffdioxid gebildet wird. Die Fälle mit geringer Ozon-Immissionskonzentration (< 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und hoher NO_x- und NO-Immissionskonzentrationen sind mit ungünstigen Austauschbedingungen verbunden. Es handelt sich überwiegend um Tage im Herbst und Winter.

Eine Unterteilung der NO₂-Gesamtbelastung an der Verkehrsmessstation in städtischer Hintergrund und Zusatzbelastung für das Gesamtjahr 2004 zeigt die Abbildung oben rechts. Es zeigen sich zwei völlig konträre Verläufe der NO₂-Hintergrundbelastung und der NO₂-Zusatzbelastung. Während die NO₂-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund mit steigender Ozon-Immissionskonzentration abnimmt, steigt die NO₂-Zusatzbelastung an der Straße mit steigender Ozon-Immissionskonzentration. Die sinkende NO₂-Immissionskonzentration im Hintergrund hängt mit einer besseren Durchmischung der unteren Luftschichten zusammen. In diesen Fällen wird das Ozon sehr wirksam über Konvektion an die Station herangetragen. Als Folge steigt die Ozonkonzentration. Für die NO₂-Zusatzbelastung bedeuten steigende Ozon-Immissionskonzentrationen eine erhöhte lokale NO₂-Produktion im Straßenraum.

Unterschiede ergeben sich für die Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz bei der Betrachtung der Sommer- und Wintermonate. Während eine hohe Ozon-Immissionskonzentration in den Sommermonaten 2004 kaum zu einer Erhöhung der NO₂-Zusatzbelastung beitrug, stieg die NO₂-Zusatzbelastung in den Wintermonaten deutlich mit der Ozon-Immissionskonzentration an. Schlechte Ausbreitungsbedingungen im Winter führen neben dem Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung gleichfalls zu einem Anstieg der NO₂-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund. Im Sommer sind die Austauschbedingungen ideal. Die Luftschadstoffe werden nicht nur gut miteinander vermischt, sondern auch sehr schnell wieder aus der Straße transportiert und verdünnt. Aus diesem Grund sind kaum Unterschiede in der Höhe der NO₂-Zusatzbelastung bei Ozon-Immissionskonzentrationen von < 30 µg/m³ und >60 bis 70 µg/m³ zu erkennen. Die besseren Austauschbedingungen zeigen sich auch in der Abnahme der NO₂-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund.

Die Abbildung 39 zeigt die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen an der Station Mannheim-Straße von der Ozon-Immissionskonzentration in Mannheim-Süd. Wie bei den vorhergehenden Betrachtungen ergibt sich auch für Mannheim ein deutlicher Zusammenhang zwischen der NO₂-Zusatzbelastung an der Verkehrsmessstation und der Ozon-Immissionskonzentration in Mannheim-Süd. Die Abbildung oben rechts veranschaulicht, dass mit steigender Ozon-Immissionskonzentration über das Gesamtjahr auch die NO₂-Zusatzbelastung steigt. Für die Abhängigkeit der NO₂-Zusatzbelastung nach Jahreszeiten ergeben sich ganz ähnliche Aussagen wie für die Station Stuttgart-Straße.

Eine höhere Ozon-Immissionskonzentration bedeutet eine erhöhte konvektive Einmischung des Ozons aus höheren Luftschichten. Diese findet bei guten Austauschbedingungen vor allem im Frühjahr und Sommer statt. Bei guten Austauschbedingungen – in unserem Falle gleichzusetzen mit besonders hohen Ozon-Immissionskonzentrationen – sinken auch die Immissionskonzentrationen von NO_x und NO. Die NO₂-Immissionskonzentration bleibt jedoch über alle Ozon-Klassen annähernd konstant. Hier wirken einer besseren Verdünnung und einem besserem Schadstofftransport chemische Oxidationsreaktionen entgegen.

Eine Unterteilung der NO₂-Gesamtbelastung in städtischen Hintergrund und Zusatzbelastung für das Gesamtjahr 2004 zeigt wiederum die obere rechte Abbildung. Interessant ist, dass die NO₂-Immissionskonzentration (NO₂-Straße) den gleichen Verlauf wie die NO₂-Hintergrundbelastung hat. Lediglich das Niveau der NO₂-Immissionskonzentration ist an der Verkehrsmessstelle größer. Ein leichter Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung an der Straße mit steigender Ozon-Immissionskonzentration ist auch in Mannheim deutlich zu erkennen. Der Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung liegt bei einer Ozon-Immissionskonzentration von >30 bis 40 µg/m³ und >60 bis 70 µg/m³ mit 10 µg/m³ im Mittel am höchsten.

In den Sommermonaten steigt mit zunehmender Ozon-Immissionskonzentration neben der NO₂-Zusatzbelastung auch die NO₂-Hintergrundbelastung und damit die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstation an. Ursache für die steigende NO₂-Belastung sind austauscharme Wetterlagen (Hochdruckwetterlagen) mit geringer vertikaler Durchmischung und hohen Ozon-Immissionskonzentrationen. Die hohen Ozon-Immissionskonzentrationen am Boden kommen bei Hochdruckwetterlagen durch Ozon-Bildung

zustande, die durch die starke Sonneneinstrahlung, hohe Temperaturen und hohe NO_x-Immissionskonzentrationen unterstützt wird. In den Wintermonaten wird ein deutlicher Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung mit steigender Ozon-Immissionskonzentration gemessen. Dieser Anstieg ist jedoch nur auf die Zusatzbelastung beschränkt, die Hintergrundbelastung sinkt mit steigender Ozon-Immissionskonzentration.

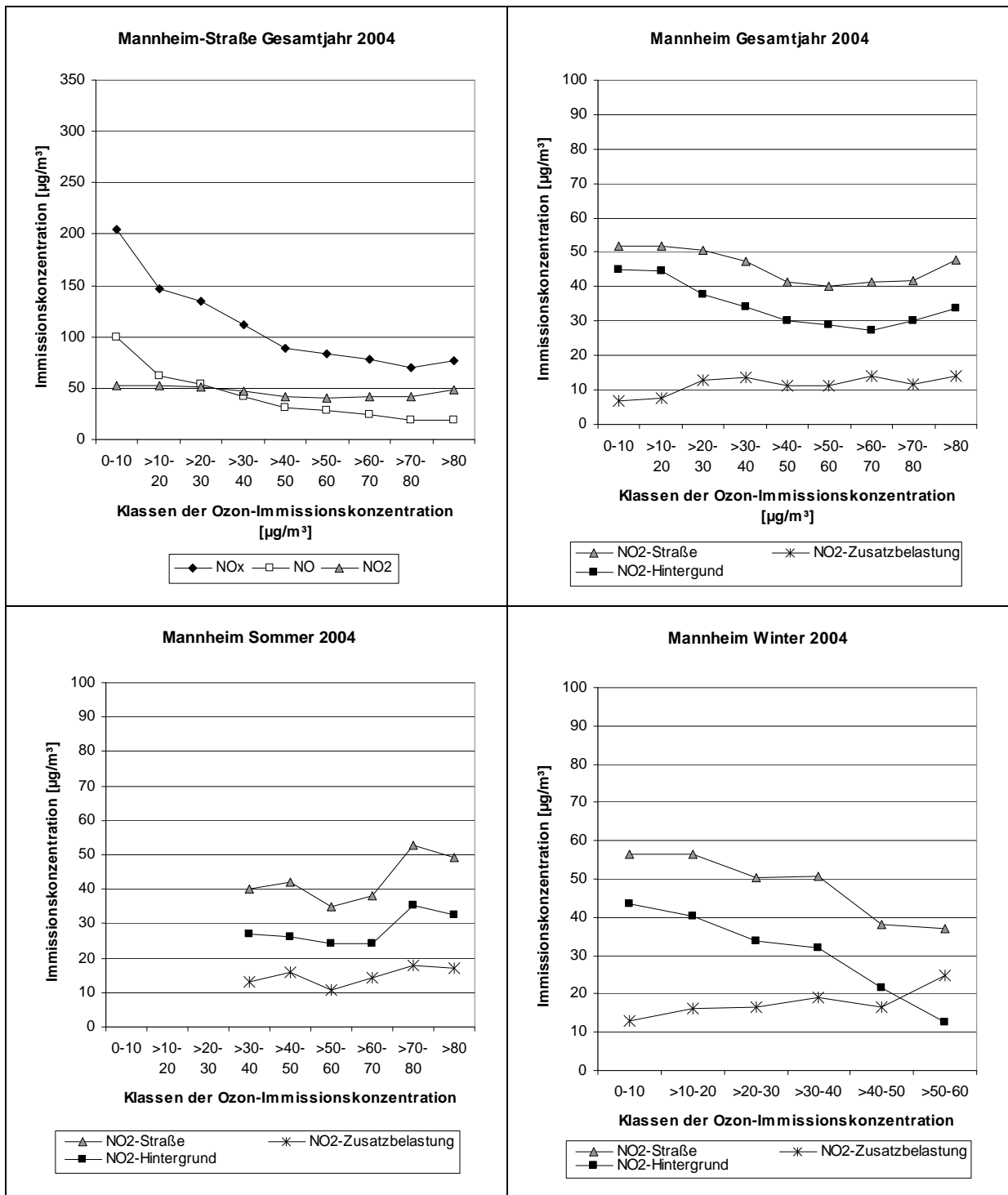


Abb.39 Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004

Die Abbildung 40 zeigt die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen an der Station Freiburg-Straße von der Ozon-Immissionskonzentration in Freiburg-Mitte. Die zwei oberen Abbildungen veranschaulichen, dass ab einer Ozon-Immissionskonzentration von

> 60 µg/m³ in Freiburg jegliche Stickoxid-Immissionskonzentration ansteigt. Wie schon in Mannheim spielen auch in Freiburg die Ausbreitungsbedingungen eine große Rolle. Hohe Ozon-Immissionskonzentrationen sind ein Zeichen für gute konvektive Einmischung von Ozon aus der Residualschicht im Laufe der Vormittagstunden.

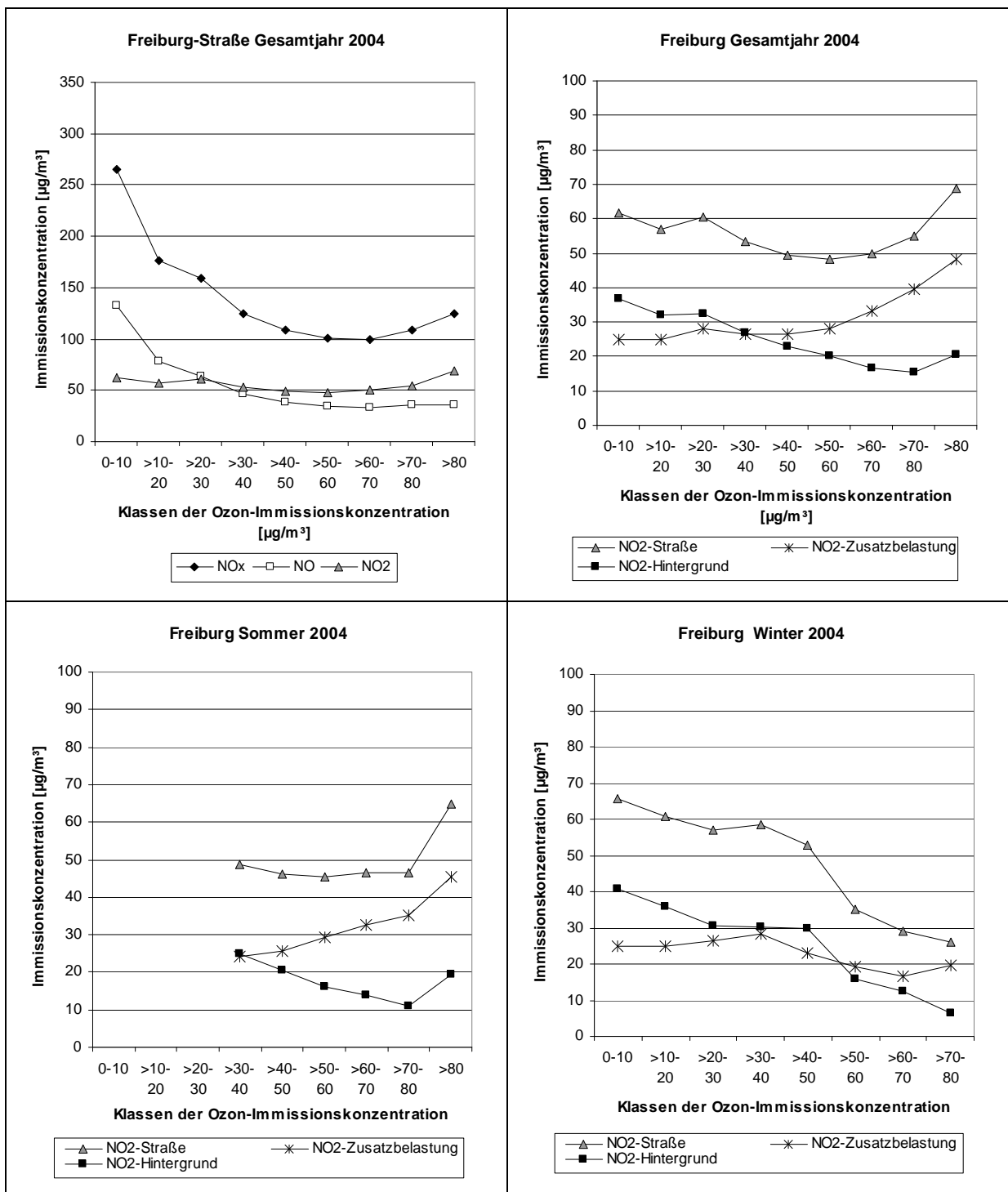


Abb.40 Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004

Sehr hohe Ozon-Immissionskonzentrationen sind jedoch mit Hochdruckwetterlagen verbunden, die eine stabile Temperaturschichtung und schlechte Ausbreitungsbedingungen mit sich bringen. Dies ist erkennbar an der steigenden NO_x-Immissionskonzentration bei Ozon-Immissionskonzentrationen > 70 µg/m³ (siehe Abbildung 40 oben links). Ebenfalls ein Indiz für

schlechtere Austauschbedingungen in den Sommermonaten ist die steigende NO₂-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund bei Ozon-Immissionskonzentrationen von > 70 µg/m³ (siehe Abbildung 40 unten links).

In Freiburg führte in den Sommermonaten 2004 ein Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration zu einem signifikanten mittleren Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung an der Verkehrsstation. In den Wintermonaten sank die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstelle und im städtischen Hintergrund mit steigender Ozon-Immissionskonzentration. Auch die mittlere NO₂-Zusatzbelastung nahm mit steigender Ozon-Immissionskonzentration ab. Im Winter dominieren die Ausbreitungsbedingungen die Stickoxid-Immissionskonzentrationen. Hohe NO₂-Immissionskonzentrationen sind verbunden mit schlechten Ausbreitungsbedingungen und geringen Ozon-Immissionskonzentrationen. Mit steigender Ozon-Immissionskonzentration sind im Winter gute Ausbreitungsbedingungen verknüpft, so dass trotz steigender Ozon-Immissionskonzentration die NO₂-Zusatzbelastung auf Grund der sehr guten Durchmischung abgenommen hat.

Die Abbildung 41 stellt die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen an der Station Karlsruhe-Straße von der Ozon-Immissionskonzentration in Karlsruhe-Nordwest dar. In der oberen linken Abbildung sind ganz deutlich die Abnahme der NO-Immissionskonzentration und die Konstanz der NO₂-Immissionskonzentration mit steigender Ozon-Immissionskonzentration zu erkennen.

Die Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentration/NO₂-Zusatzbelastung von der Höhe der Ozon-Immissionskonzentration kann für das Gesamtjahr 2004 in der oberen rechten Abbildung betrachtet werden. Wie bei den vorhergehenden Stationen auch zeigt sich ein deutlicher Zusammenhang zwischen der NO₂-Zusatzbelastung und der Ozon-Immissionskonzentration. Mit steigender Ozon-Immissionskonzentration steigt an der Verkehrsmessstelle Karlsruhe die NO₂-Zusatzbelastung an. Wobei sich in den Wintermonaten ein höherer Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung bei insgesamt größerem Rückgang der NO₂-Hintergrundkonzentration ergibt als in den Sommermonaten.

Für die NO₂-Zusatzbelastung an den vier Verkehrsmessstellen ist eine deutliche Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration feststellbar. Mit einem Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration sind vor allem im Winter relativ gute Ausbreitungsbedingungen verknüpft, so dass die NO₂-Immissionsbelastung im städtischen Hintergrund zurückgeht. Wenn für diese Fälle der sinkenden NO₂-Immissionsbelastung im städtischen Hintergrund die NO₂-Zusatzbelastung mit zunehmender Ozon-Immissionskonzentration ansteigt, können schlechtere Austauschbedingungen als Grund für den Anstieg ausgeschlossen werden. Somit ist die Bildung von Stickstoffdioxid der Grund für die steigende NO₂-Zusatzbelastung.

Bei all diesen Betrachtungen ist nochmals anzumerken, dass die wesentlichen Parameter wie die Ozonkonzentration sowie meteorologische Größen nicht direkt von der Hintergrundmessstelle auf die Verkehrsmessstation übertragbar sind. Messungen an den Standorten im städtischen Hintergrund liefern keine Aussagen über die kleinräumigen meteorologischen und luftchemischen Bedingungen an den exponierten Messstellen. Die allgemeine Gültigkeit eines Zusammenhangs zwischen Ozon-Immissionskonzentration im Hintergrund und NO₂-Immissionskonzentration ist an der Verkehrsmessstelle kritisch zu bewerten. Wieviel Ozon tatsächlich für die Bildung von NO₂ zur Verfügung steht, darüber kann keine konkrete Aussage gemacht werden. Generell wird die Ozon-Immissionskonzentration bei horizontalen und vertikalen Transportprozessen bis zum Erreichen der Verkehrsmessstelle nochmals deutlich reduziert. Die Ozon-Immissionskonzentration ist an den Verkehrsmessstellen geringer als im städtischen Hintergrund. Weiterhin gilt, dass die an der Verkehrsmessstelle gemessenen Spurengase auf ihrem Weg von der Fahrbahn bis zur Luftgütemessstation schon begonnen haben zu reagieren und auch in ihrem weiteren Verlauf reagieren werden. Somit gilt für die Messung der Stickoxide insbesondere für NO das gleiche wie für Ozon. Wieviel NO für die Bildung von NO₂ zur Verfügung steht, darüber kann ebenfalls keine genaue Aussage gemacht werden.

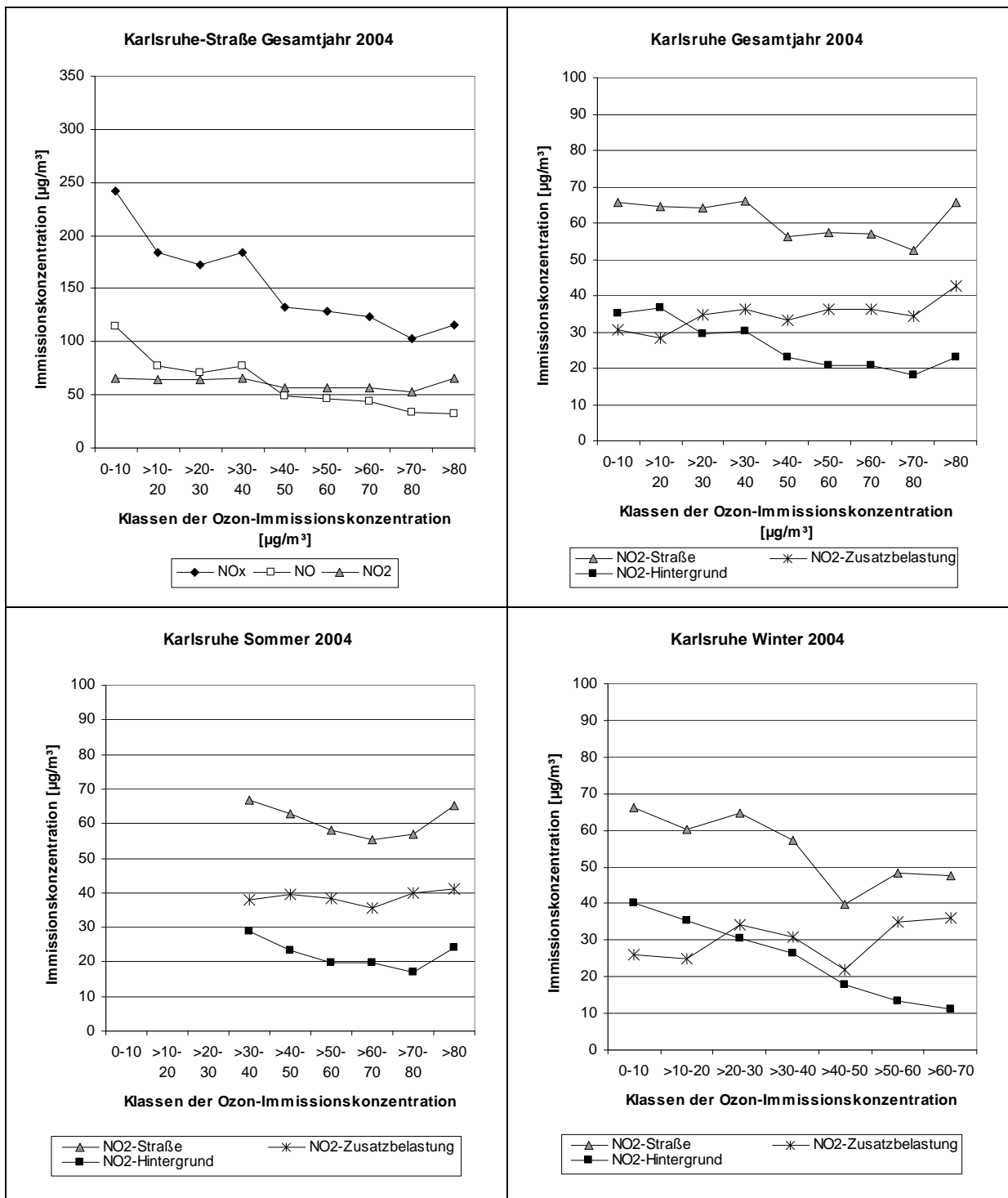


Abb.41 Stickoxid-Immissionskonzentrationen in Abhängigkeit von der Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004

6.4 Zusammenfassung

Aus den Untersuchungen zu Kapitel 6 lassen sich einige wichtige Erkenntnisse zur Belastung der Luft mit Stickoxiden im Allgemeinen und Stickstoffdioxid im Besonderen ableiten. Im Mittelpunkt der Untersuchung stand die Wirkung der Ozon-Immissionskonzentration auf die Höhe der NO₂-Luftbelastung an vier ausgewählten Verkehrsmessstellen. Dabei konnte die Oxidation von Stickstoffmonoxid mit Ozon als wichtigste Bildungsreaktion von Stickstoffdioxid im Straßenraum identifiziert werden.

Anhand der Untersuchung der Tages- und Wochengänge wurde gezeigt, dass hohe NO₂-Immissionskonzentrationen in den Stunden von 9 bis 18 Uhr vor allem werktags auftreten. Hieraus lässt sich entnehmen, dass hohe NO₂-Immissionskonzentrationen mit hohen NO_x-Immissionskonzentrationen und somit starkem Verkehrsaufkommen gekoppelt sind.

Um die NO₂-Belastung differenzierter betrachten zu können, wurde die NO₂-Immissionskonzentration an der Verkehrsmessstelle in Hintergrund- und lokale Zusatzbelastung unterteilt. Für einen möglichen Zusammenhang mit der Ozon-Immissionskonzentration wurde nunmehr die NO₂-Zusatzbelastung betrachtet. Bei der Betrachtung des Tagesganges wurde deutlich, dass die höchsten NO₂-Zusatzbelastungen zum Zeitpunkt der höchsten Ozon-Immissionskonzentration auftraten. Die gleiche Abhängigkeit konnte auch für den Jahresgang festgestellt werden. Dort wurden die höchsten Monatsmittelwerte der NO₂-Zusatzbelastung in den Sommermonaten gemessen, als auch die Ozon-Immissionskonzentration ihre höchsten Werte erreichte.

Die Untersuchung zur Abhängigkeit der Stickoxide von der Ozon-Immissionskonzentration bestätigte die bis dahin vermutete Abhängigkeit. Für die Fälle in denen die Wirkung der Ausbreitungsbedingungen als Ursache für den Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung ausgeschlossen werden konnte, wurde die erhöhte Ozon-Immissionskonzentration als Ursache für den Anstieg erkannt. Ein Zusammenhang konnte also zwischen der NO₂-Zusatzbelastung und der Ozon-Immissionskonzentration festgestellt werden. Mit steigender Ozon-Immissionskonzentration steigt die lokale NO₂-Zusatzbelastung an den ausgewählten Verkehrsmessstellen. Die Ozon-Immissionskonzentration hat damit ebenfalls Einfluss auf die Höhe der NO₂-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen.

Für die Annahme, dass erhöhte Ozon-Immissionskonzentrationen die Ursache der steigenden NO₂-Immissionskonzentration sind, kann folgendes zusammengefasst werden.

- Mit dem Rückgang der NO_x-Immissionsbelastung ist normalerweise auch der Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration verbunden. Das zeigt der Rückgang der Jahresmittelwerte in Mannheim und Freiburg aber auch der Wochengang aller Stationen. Wobei der Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration an den verkehrsbeeinflussten und nicht-verkehrsbeeinflussten Messstationen auf Grund erhöhter Ozon-Immissionskonzentrationen nicht die gleiche Größenordnung wie der Rückgang der NO_x-Immissionsbelastung erreicht.
- Der Rückgang der NO_x-Emissionen durch verbesserte Abgasnachbehandlung führt im städtischen Hintergrund zu einem verminderten Abbau des Ozons. Somit kam es in den letzten Jahren zu einem Anstieg der mittleren Ozon-Immissionskonzentration (Jahresmittelwert) im städtischen Hintergrund. Für die Hintergrundstationen bedeutet ein verminderter Ozon-Abbau auch eine verminderte NO₂-Bildung (vgl. Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund Abbildung 19).
- Der Anstieg der mittleren Ozon-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund führt an den Verkehrsstationen nicht generell zu einer erhöhten NO₂-Bildung, auch wenn im Straßenraum trotz Rückgang der NO_x-Immissionen ein Überschuss an NO für die Reaktion mit Ozon zur Verfügung steht. Trotz steigender Ozon-Immissionskonzentration in den vier Städten wurde nur an den Stationen Stuttgart-Straße und Karlsruhe-Straße

eine Zunahme der NO₂-Zusatzbelastung registriert. Die Verkehrsmessstationen Mannheim und Freiburg zeigen gegenüber dem Referenzjahr 1995 einen leichten Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration sowie der NO₂-Zusatzbelastung. Dieser Unterschied in der Entwicklung der NO₂-Zusatzbelastung kann nicht allein mit der Erhöhung der mittleren Ozon-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen erklärt werden. Daneben spielt die Höhe der NO-Immissionskonzentration sowie das Mischungsverhältnis zwischen NO und Ozon eine große Rolle. Bei der sehr hohen Belastung mit Stickoxiden wie an der Station Stuttgart-Straße führt die leichte Abnahme der NO_x-Immissionskonzentration zwischen Freitag und Samstag zu einer Erhöhung der NO₂-Zusatzbelastung. Bei den geringer belasteten Stationen Karlsruhe und Freiburg führt die Abnahme der NO_x-Immissionskonzentration am Wochenende auch zu einer Abnahme der NO₂-Zusatzbelastung. Das Mischungsverhältnis der Stoffe NO und Ozon spielt in diesem Zusammenhang die entscheidende Rolle.

Gegen die Annahme, dass allein die erhöhten Ozon-Immissionskonzentrationen an der Station Stuttgart-Straße zu einer Erhöhung der NO₂-Immissionskonzentration und der NO₂-Zusatzbelastung geführt haben, spricht die Entwicklung des Tagesgangs. Die NO₂-Immissionskonzentration (Werktag) zeigte 1998 im Tagesgang ein Maximum in den Nachmittags- und frühen Abendstunden. 2004 (Werktag) traten die höchsten NO₂-Immissionskonzentrationen jedoch am Vormittag bei unverändertem Verlauf der Ozon-Immissionskonzentration mit den höchsten Ozon-Immissionskonzentrationen in den Nachmittagsstunden auf. Ähnliches gilt für den Vergleich der NO₂-Zusatzbelastung. Während 1998 der Tagesgang der NO₂-Zusatzbelastung annähernd dem Tagesverlauf der Ozon-Immissionskonzentration entsprach, so glich er 2001 und 2004 eher dem Tagesverlauf der Stickoxide. Der extrem steile Anstieg in den frühen Morgenstunden (ab 6 Uhr) setzte 2001 und 2004 genau mit dem Pendler- und Berufsverkehr ein. Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung wurde 2001 und 2004 nicht mehr nur am späten Nachmittag erreicht. Vielmehr war die NO₂-Zusatzbelastung an Werktagen über den gesamten Zeitraum von 9 bis 21 Uhr hoch. Ferner überschreitet die NO₂-Zusatzbelastung an der Station Stuttgart-Straße an ausgewählten Stunden deutlich die Höhe der zur Verfügung stehenden Ozon-Immissionskonzentration. Somit würde mehr NO₂ gebildet werden, als Ozon für die Reaktion zur Verfügung steht. Eine mögliche Erhöhung der Bildung von NO₂ über Kohlenwasserstoffe und NO scheidet auf Grund der 75 %-igen Reduktion der Kohlenwasserstoffe im Autoabgas aus.

An der Verkehrsmessstelle Karlsruhe sind die Erhöhung der NO₂-Zusatzbelastung und die relative Konstanz der NO₂-Immissionskonzentration auf den Anstieg der Ozon-Immissionskonzentration zurückzuführen. Dafür spricht die Erhöhung der NO₂-Zusatzbelastung in den Nachmittagsstunden. Das Maximum der NO₂-Zusatzbelastung in den Nachmittagsstunden fällt nach wie vor mit dem Maximum der Ozon-Immissionskonzentration zusammen. Eine drastische Erhöhung der NO₂-Zusatzbelastung in den frühen Morgenstunden wie an der Station Stuttgart-Straße gibt es nicht.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass der Anstieg der mittleren Ozon-Immissionskonzentration im städtischen Hintergrund, bei sehr hoch belasteten Verkehrsstationen, in Verbindung mit gesunkenen NO_x-Immissionskonzentrationen zu einem Anstieg der NO₂-Zusatzbelastung führen kann. Weniger verkehrsbelastete und damit stickoxidbelastete Stationen zeigen trotz Anstiegs der mittleren Ozon-Immissionskonzentration einen leichten Rückgang der NO₂-Zusatzbelastung. Da für die Zukunft mit einer weiteren Reduktion der Stickoxid-Emissionen im Verkehrssektor gerechnet werden kann, ist auch mit einem Rückgang der NO₂-Immissionskonzentration zu rechnen. Dies würde in absehbarer Zukunft bei hohem Rückgang der NO_x-Immissionskonzentration auch die Verkehrsstation Stuttgart-Straße betreffen (siehe Wochengang 2004 Vergleich Montag Sonntag).

7 Der Einfluss meteorologischer Parameter auf die Stickoxid-Immissionskonzentration

Die Ausbreitung und der Transport primär emittierter und sekundär gebildeter Luftschadstoffe hängen überwiegend von den meteorologischen Bedingungen in der atmosphärischen Grenzschicht ab. Hierzu zählen unter anderem die Mischungsschichthöhe, die das Volumen, auf das die Luftschadstoffe durch turbulenten Austausch verdünnt werden, bestimmt. Andere Parameter die Ausbreitung und Transport der Luftschadstoffe bestimmen, sind Stabilitäts- und Turbulenzmaße sowie das vertikale Windprofil, das Ausbreitungsrichtung und -geschwindigkeit vorgibt.

Welchen Einfluss Ausbreitung und Transport auf die Immissionskonzentration der Stickoxide insbesondere Stickstoffdioxid haben, soll in diesem Kapitel am Beispiel der Stadt Stuttgart betrachtet werden. Dabei steht die Betrachtung der meteorologischen Faktoren Windgeschwindigkeit und -richtung, Mischungsschichthöhe und Schichtungsstabilität im Vordergrund. Der Einfluss weiterer meteorologischer Parameter wie z.B. Globalstrahlung oder Niederschlag auf die NO₂-Immissionskonzentration wird im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht untersucht. Denn das Interesse liegt auf den Parametern mit Relevanz für die atmosphärische Ausbreitung.

7.1 Topographie und Ausbreitungsbedingungen in Stuttgart

Die Stadt Stuttgart liegt im Neckarbecken, abgeschirmt durch den Schwarzwald im Westen, die Schwäbische Alb im Süden, den Schurwald im Osten und das Strom- und Heuchelberggebiet im Nordwesten. Das Zentrum von Stuttgart liegt in einer Keupersenke (240 m ü. NN), geprägt durch die im Süden, Westen und Osten bis zu 520 m ansteigenden Randhöhen. Nur im Verlauf des Nessenbachtals besteht im Nordosten eine Öffnung zum Neckartal [Stadtklima Stuttgart]. Die Kessellage Stuttgarts hat einen großen Einfluss auf die Klimatelemente, z.B. Strahlung, Lufttemperatur, Feuchte, Niederschlag und Wind. Die Abbildung 42 veranschaulicht die Lage der Stadt mit den umgebenden Randhöhen und dem Neckartal im Vordergrund. Die rote Fläche markiert das Plangebiet Stuttgart 21 um den Stuttgarter Hauptbahnhof.

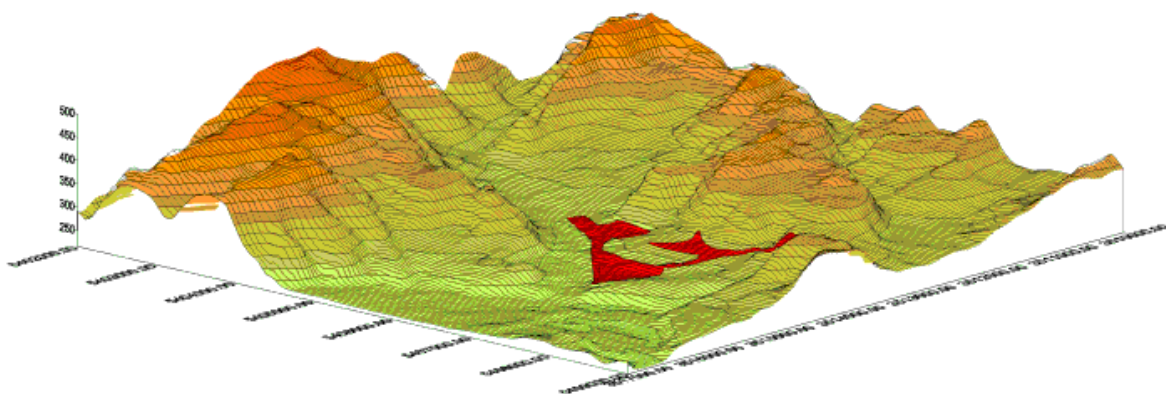


Abb.42 Topographie der Stadt Stuttgart [Stadtklima Stuttgart]

Ein wesentliches Merkmal des Stuttgarter Klimas mit Bedeutung für die Schadstoffausbreitung ist seine Windarmut, die auf die Lage der Stadt inmitten zweier Stufenrandbuchten zurückzuführen ist. Ferner ist die gesamte Region des Neckarbeckens bekannt für niedrige Windgeschwindigkeiten bei häufiger Windstille. Die Ursache hierfür ist die großräumige Luftdruckverteilung in Süddeutschland und die Abschattung durch die Höhenzüge der umliegenden Mittelgebirge (Schwarzwald, die Schwäbische Alb etc).

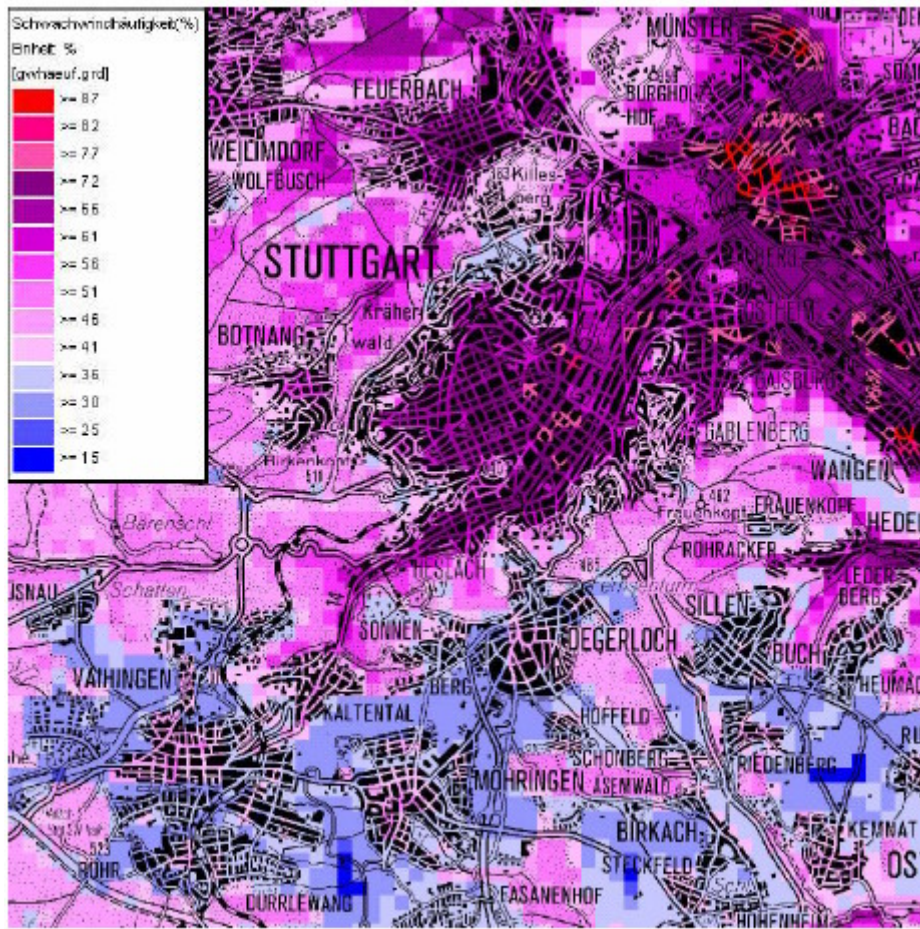


Abb.43 Schwachwindhäufigkeit in Stuttgart und im Neckartal [CD Rom Stadtklima 21]

Bei Gradientwindlagen kann die Höhenabhängigkeit der Windgeschwindigkeit beobachtet werden. Die höchsten Windgeschwindigkeiten treten dann in den offenen Lagen der Filder und an den umgebenden Höhenrücken auf, während in den Tälern wie dem Nesenbachtal und im Stadtkern wesentlich niedrigere Windgeschwindigkeiten gemessen werden. Neben der Kessellage der Stadt kann auch die Bebauung zu einer Modifikation und Abschwächung des Windfeldes führen. Auf Grund der erhöhten Bodenrauigkeit durch die Bebauung kommt es zu einer Windgeschwindigkeitabschwächung über dem Stadtgebiet. Die Abschwächung über der Stadt kann im Mittel 10 bis 30 % gegenüber dem Umland betragen [Helbig 1999].

Die Windarmut im Stuttgarter Stadtkessel wirkt sich negativ auf die Durchmischung der bodennahen Luftschichten aus und vermindert die Verdünnung und den Transport der städtischen Luftschadstoffe. Vor allem im Winter bei windschwachen Wetterlagen (z. B. bei anhaltendem Hochdruckeinfluss) ist der vertikale Luftaustausch stark behindert, so dass die Frischluftzufuhr in das Stadtgebiet dann von lokalen Windsystemen abhängig ist.

Wegen der ausgeprägten topographischen Gliederung des Stuttgarter Raumes ist sowohl bei höheren Windgeschwindigkeiten (überregionales Windregime) als auch bei Schwachwindsituationen (Ausbildung thermischer Windsysteme) eine deutliche lokale Modifikation des bodennahen Windes zu erkennen [Stadtklima Stuttgart].

Bedingt durch die Topografie kann für Stuttgart keine einheitliche Windrichtungsverteilung angegeben werden (vgl. Abbildung 44). Für das Innenstadtgebiet ergeben sich hauptsächlich südöstliche bis südwestliche Windrichtungen. Markante Luftströmungen aus nördlicher Richtung werden hingegen nur im Zentrum gemessen. Im Neckartal und Nesenbachtal liegen die Windrichtungen parallel zur Talachse. Die Hochfläche der Fildern hat eine relativ

einheitliche, der Windrichtung Süddeutschlands entsprechende, südöstliche bis westliche Windrichtungsverteilung.

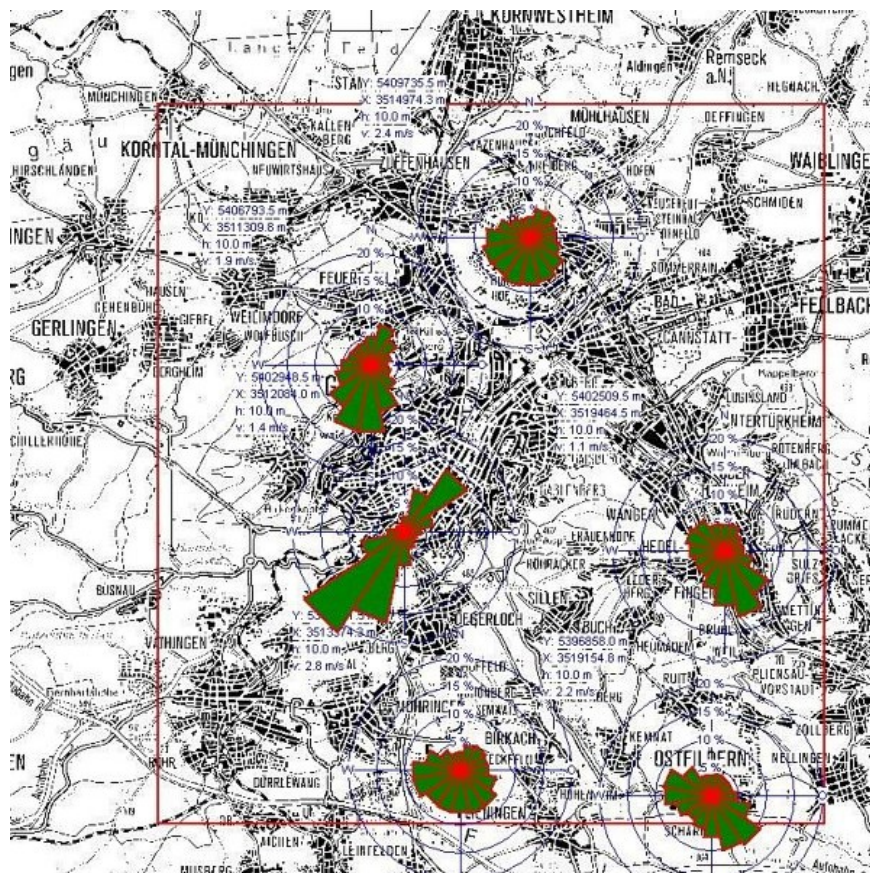


Abb.44 Windrosen im Stadtgebiet Stuttgart [Stadtklima Stuttgart]

Vor allem die Bebauung beeinflusst neben der allgemeinen Reduktion der Windgeschwindigkeit auch die Änderung der Windrichtung bei der Umströmung von Hindernissen. Die Abhängigkeit der Windgeschwindigkeit von der topographischen Lage, der Flächennutzung und Bebauung ist für die Stadt Stuttgart im Rahmen des Stadtklimaprojektes „Stuttgart 21“ ausführlich untersucht worden.

7.2 Immissionskonzentration in Abhängigkeit von den Ausbreitungsbedingungen

Die Möglichkeit zur vertikalen Ausbreitung von Luftschadstoffen in der atmosphärischen Grenzschicht wird über die Stabilität der atmosphärischen Schichtung gesteuert. Dabei können die Schichtungsstabilität selbst oder andere Stabilitätsmaße für die Beschreibung der Ausbreitungsverhältnisse herangezogen werden. Ein solches Stabilitätsmaß ist z.B. die Mischungsschichthöhe. Beide Stabilitätsmaße ergeben sich aus dem vertikalen Verlauf der Lufttemperatur. Auf dieser Grundlage soll im nun folgenden Kapitel die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentration in Stuttgart von der Mischungsschichthöhe und der Schichtungsstabilität untersucht werden.

Die Vertikalprofile insbesondere der Lufttemperatur wurden freundlicherweise vom Deutschen Wetterdienst zur Verfügung gestellt. Diese Vertikalprofile werden an der Station Stuttgart-Schnarrenberg mit Hilfe von Radiosondenaufstiegen zweimal pro Tag (0 Uhr und 12 Uhr UTC) aufgezeichnet. Die Vertikalprofile reichen dabei bis in Höhen von 10.000 m. Das Interesse dieser Arbeit liegt im Wesentlichen auf den Ausbreitungsbedingungen der atmosphärischen Grenzschicht. Somit sind nur die unteren 2.000 bis 3.000 m Höhenmetern von Bedeutung.

Die Radiosondenaufstiege beginnen an der Klimastation Stuttgart-Schnarrenberg in einer Höhe von 315 m über dem Meeresniveau. Dem Stuttgarter Talkessel wird eine mittlere Höhe von 250 m über NN zugeordnet. Für die folgenden Untersuchungen wurde nur das vertikale Temperaturprofil der Station Stuttgart-Schnarrenberg herangezogen. Auf eine Ergänzung des Temperaturprofils um Temperaturen im Stadtzentrum wurde verzichtet, da die daraus gewonnenen vertikalen Temperaturprofile insbesondere zum 12 Uhr UTC Termin nicht plausibel waren. Alle Höhenangaben der meteorologischen Parameter beziehen sich, wenn nicht anders erwähnt, auf das Niveau des Stuttgarter Talkessels. Das bedeutet, dass alle Höhenangaben des Vertikalprofils um 250 m nach unten korrigiert werden, d.h. eine in Stuttgart-Schnarrenberg registrierte Bodeninversion (315 m ü NN) bedeutet, dass die Inversion 65 m über dem Stuttgarter Talkessel beginnt.

7.2.1 Häufigkeit der Bodeninversionen und freien Inversionen in Stuttgart

In den Grundlagen wurde die Inversion als Form einer sehr stabilen Schichtung bereits definiert. Das vertikale Temperaturprofil der Radiosondenaufstiege in Stuttgart-Schnarrenberg 2004 wurde nun auf Temperaturzunahmen mit der Höhe untersucht. Dabei gehen in die Untersuchung alle Temperaturzunahmen unabhängig von der Mächtigkeit der Inversion oder der Höhe der Temperaturzunahme ein. Anhand der Untergrenze der Inversion wird eine Einteilung in Bodeninversion und erste freie Inversion vorgenommen. Als Bodeninversion werden alle Inversionen bezeichnet, die bereits in Stuttgart-Schnarrenberg (315 m ü NN) eine Zunahme der Temperatur mit der Höhe aufweisen. Die erste freie Inversion ist die erste auftretende Höheninversion unabhängig davon, ob bereits eine Bodeninversion existiert oder nicht.

Die relative Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze wird erst einmal unabhängig von der Inversionsart jeweils getrennt für den 0 Uhr und 12 Uhr UTC Termin dargestellt. Anschließend veranschaulicht die Abbildung 45 noch einmal die Häufigkeit der Bodeninversionen unterteilt nach der Inversionsmächtigkeit für den 0 Uhr UTC Termin.

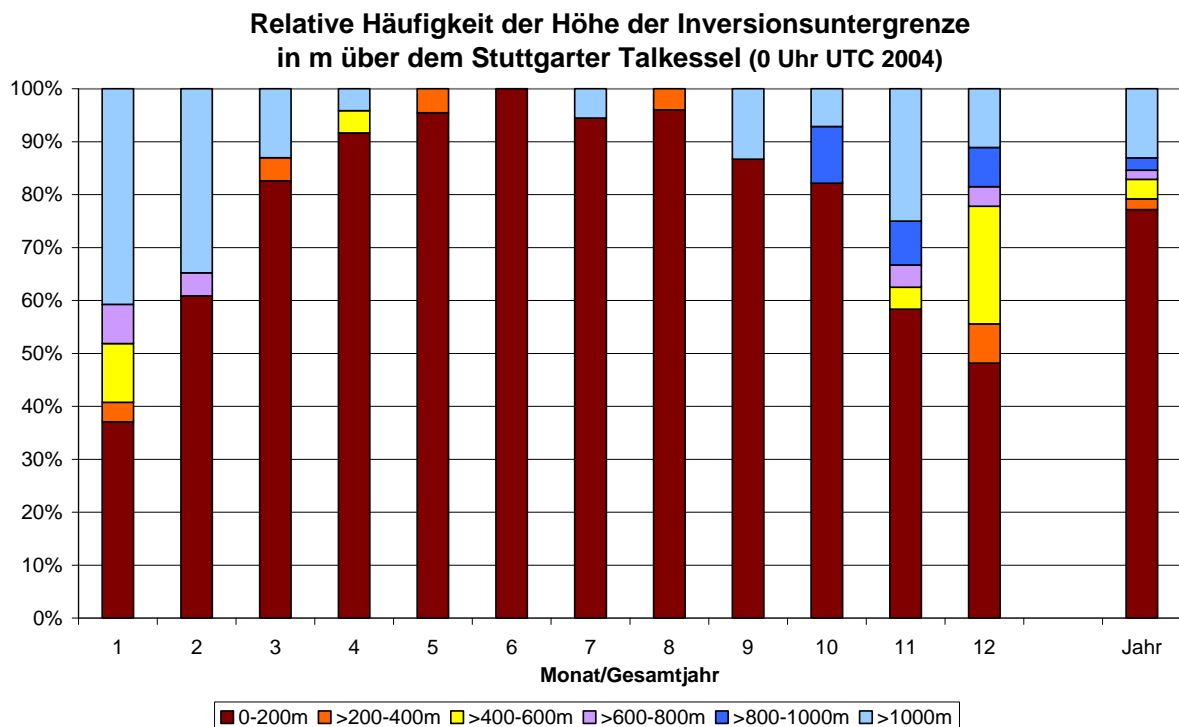


Abb.45 Relative Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze (0 Uhr UTC) Stuttgart 2004

2004 wurden in Stuttgart nächtliche Bodeninversionen und bodennahe Inversionen bis 200 m über Talgrund mit einer mittleren jährlichen Häufigkeit von ca. 77 % registriert. Nächtliche bodennahe Inversionen treten mit einer Häufigkeit von ca. 90 % vor allem in den Sommermonaten auf. In den Wintermonaten sinkt die Häufigkeit auf ca. 50 %. Ursache ist die verstärkte nächtliche Wärmeabstrahlung in den Sommermonaten, die zu einer negativen Strahlungsbilanz und damit zur Bildung einer nächtlichen Bodeninversion führt.

Tagsüber gingen die bodennahen Inversionen bis 200 m Höhe über Stuttgart auf eine mittlere jährliche Häufigkeit von ca. 10 % zurück. Im Winter halten sich bei Hochdruckwetterlagen die Inversionen oft tagelang als abgehobene Bodeninversionen über der Stadt. Die solare Strahlung ist im Winter zu schwach um zu einem schnellen Abbau der Inversion beizutragen. Somit liegen im Winter die Inversionsuntergrenzen am Tag mit 40 bis 80 % bei einer Höhe von unter 800 m. Im Sommer werden die nächtlichen bodennahen Inversionen durch den erhöhten Strahlungsgenuss und die damit verbundene schnelle Erwärmung des Bodens und der unteren Luftschichten fast vollständig abgebaut. Inversionen ab einer Höhe von > 1000 m werden mit einer Häufigkeit von über 70 % registriert.

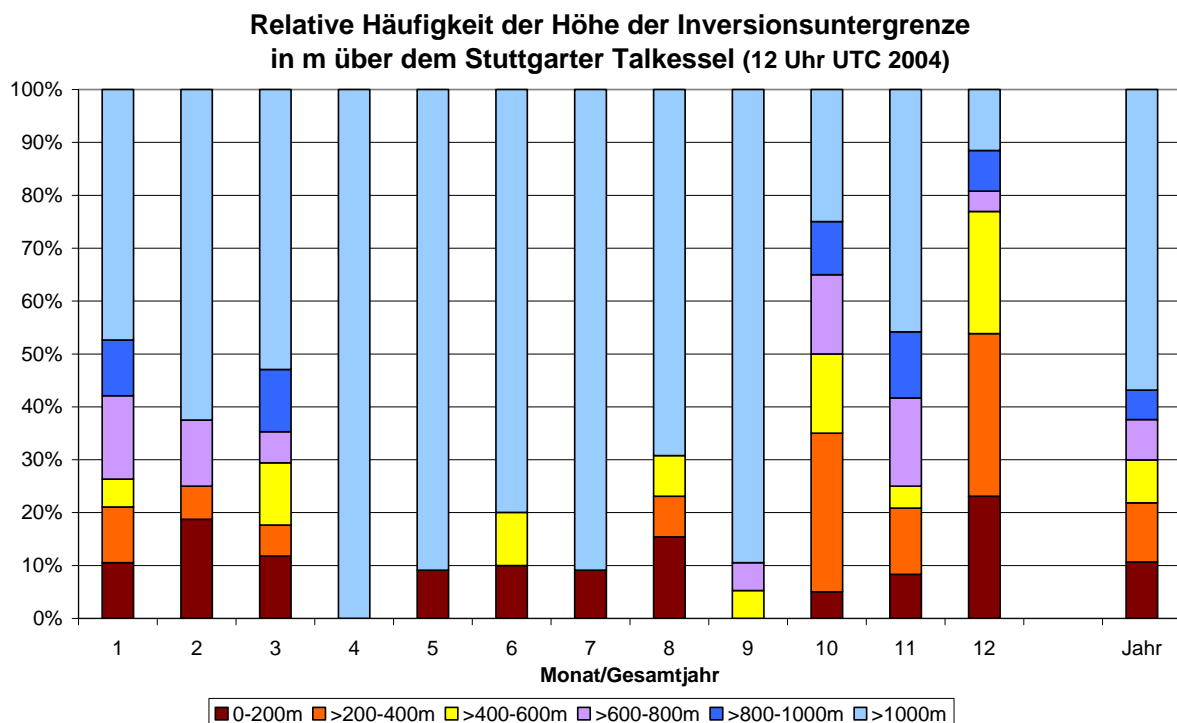


Abb.46 Relative Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze (12 Uhr UTC) Stuttgart 2004

Die Abbildung 47 zeigt die Häufigkeit der Bodeninversionen in Stuttgart-Schnarrenberg zum 0 Uhr UTC Termin. Dabei wurde weiterhin eine Unterteilung nach der Inversionsmächtigkeit vorgenommen. Auf die Darstellung der Anzahl der Bodeninversionen zum 12 Uhr UTC Termin wurde auf Grund der geringen und fehlenden Bodeninversionen verzichtet.

Wie bereits in der Abbildung 45 zu den relativen Häufigkeiten der Höhe der Inversionsuntergrenzen (0 Uhr UTC) zu erkennen war, treten Bodeninversionen und bodennahe Inversionen bis 200 m Höhe der Inversionsuntergrenze mit der höchsten Wahrscheinlichkeit in den Sommermonaten auf. Dies untermauert die Abbildung zur Häufigkeitsverteilung der Bodeninversionen in Stuttgart-Schnarrenberg noch einmal. Die Wahrscheinlichkeit des Auftretens einer nächtlichen Bodeninversion war in den Monaten April bis September (Sommerhalbjahr) 2004 jeden zweiten bis dritten Tag gegeben. Dabei war die Wahrscheinlichkeit des Auftretens einer Bodeninversion mit einer Mächtigkeit von <50 m mit 61 % sehr hoch. Doch auch Inversionen mit einer Mächtigkeit von über 100 m traten vor allem

in den Monaten Juni bis Oktober auf. Im Winter 2004 waren Bodeninversionen mit einer Anzahl von unter 15 im gesamten Monat recht gering.

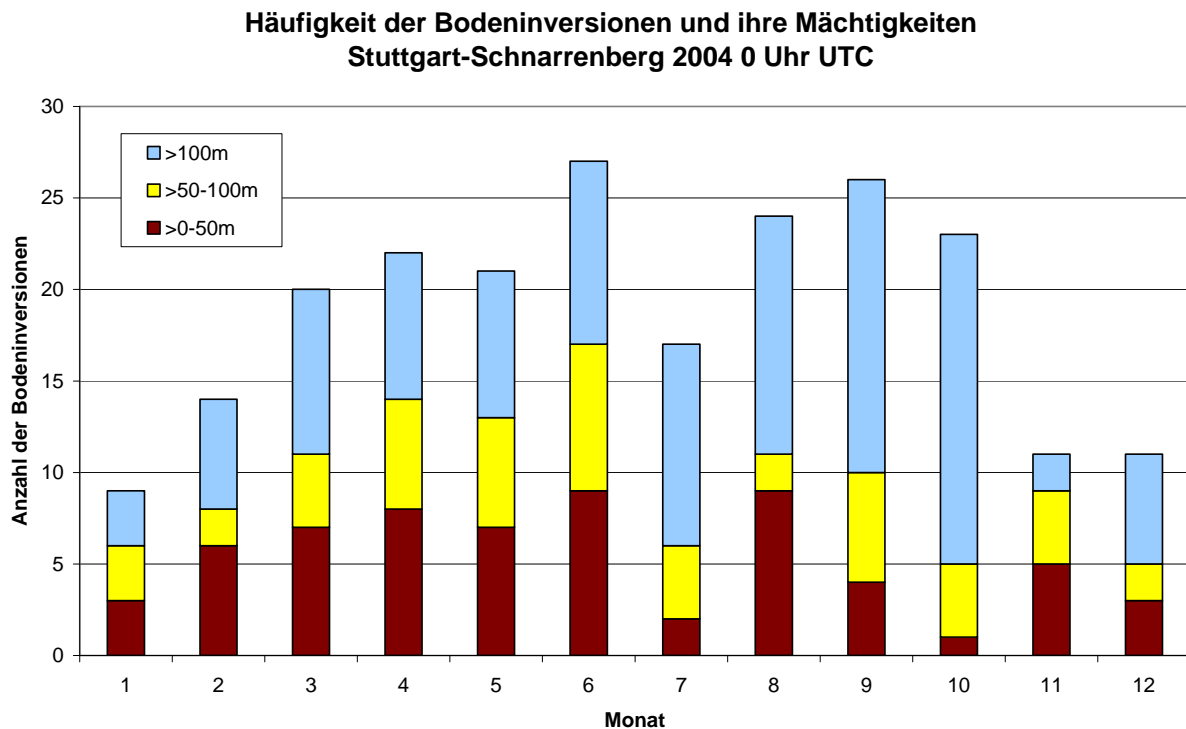


Abb.47 Häufigkeit der nächtlichen Bodeninversionen und ihre Inversionsmächtigkeit Stuttgart-Schnarrenberg 2004

Die Höhe der Inversionsuntergrenze über dem Stuttgarter Talkessel hat großen Einfluss auf die vertikale Ausbreitung von städtischen Luftschadstoffen. Bodennahe Inversionen die mit einer sehr stabilen Schichtung in Bodennähe verbunden sind, behindern regelrecht den Luftschadstofftransport. Die Höhe der Inversionsuntergrenze ist eng verknüpft mit der Höhe der Mischungsschicht. Beide sind abhängig von der vertikalen Temperaturschichtung. Dabei bedeuten niedrige Inversionsuntergrenze und Bodeninversionen auch geringe Mischungsschichthöhen.

7.2.2 Mischungsschichthöhe

Die Mischungsschicht ist definiert als eine dem Boden aufliegende Luftschicht mit kräftiger vertikaler Durchmischung und annähernd trockenadiabatischem Temperaturgradienten (0,65 K/100 m). Die freie Konvektion trägt zur Diffusion der Luftschadstoffe in einem bestimmten Luftvolumen bei, wobei die Höhe der Mischungsschicht die obere Grenze der möglichen vertikalen Ausdehnung des Luftvolumens beschreibt [Oke 1995].

Für die folgenden Auswertungen soll nun die Mischungsschichthöhe über dem Stuttgarter Talkessel bestimmt werden. Hierzu wird wie schon zu den Inversionen das vertikale Temperaturprofil der Station Schnarrenberg (315 m ü NN) untersucht. Die Mischungsschichthöhe definiert sich in unserem Fall als eine dem Boden aufliegende Schicht mit einem vertikalen Temperaturgradienten von > 0,7 K/100 m. Für eine übersichtlichere Darstellungsform wird die Mischungsschichthöhe anschließend in 6 Klassen mit je 200 m Höhenunterschied unterteilt. In der Tabelle 5 sind für das Gesamtjahr 2004 die relativen Häufigkeiten der Mischungsschichthöhen nach der vorgenommenen Klasseneinteilung für den 0 Uhr und den 12 Uhr UTC Termin dargestellt.

Tab.5 Relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen Stuttgart-Schnarrenberg 2004

| Mischungsschichthöhe | (0 Uhr UTC) | (12 Uhr UTC) |
|----------------------|-------------|--------------|
| 0-200 m | 76 % | 7 % |
| >200-400 m | 6 % | 5 % |
| >400-600 m | 4 % | 6 % |
| >600-800 m | 3 % | 5 % |
| >800-1000 m | 3 % | 5 % |
| >1000 m | 8 % | 72 % |
| Summe | 100% | 99% |

Die Abbildung 48 veranschaulicht die relativen Häufigkeiten der nächtlichen Mischungsschichthöhen über dem Stuttgarter Talkessel im Jahresverlauf. Es ist deutlich erkennbar, dass im Sommerhalbjahr die relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen bis 200 m mit bis zu 100 % im August deutlich höher als im Winterhalbjahr ist. Im Winterhalbjahr liegt die relative Häufigkeit geringer Mischungsschichthöhen bei maximal 84 %. Über das gesamte Jahr betrachtet liegt die Häufigkeit der Mischungsschichthöhen bis 200 m bei 75 %. Mischungsschichthöhen > 200 m treten über das Jahr gesehen in den Nachtstunden nur mit einem Anteil von 25 % auf.

Nachts wird durch die negative Strahlungsbilanz und den damit verbundenen Temperaturrückgang der bodennahen Luftschichten eine Bodeninversion aufgebaut, die in der Folge auch eine geringe Mischungsschichthöhe nach sich zieht. Die relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen gleicht somit dem Jahresverlauf der relativen Häufigkeit der Höhe der Inversionsuntergrenze. Beide Parameter stehen in unmittelbarem Zusammenhang, da mit dem Auftreten einer Inversion stets ein Rückgang des Temperaturgradienten verbunden ist.

**Relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen
(0 Uhr UTC) Stuttgart 2004**

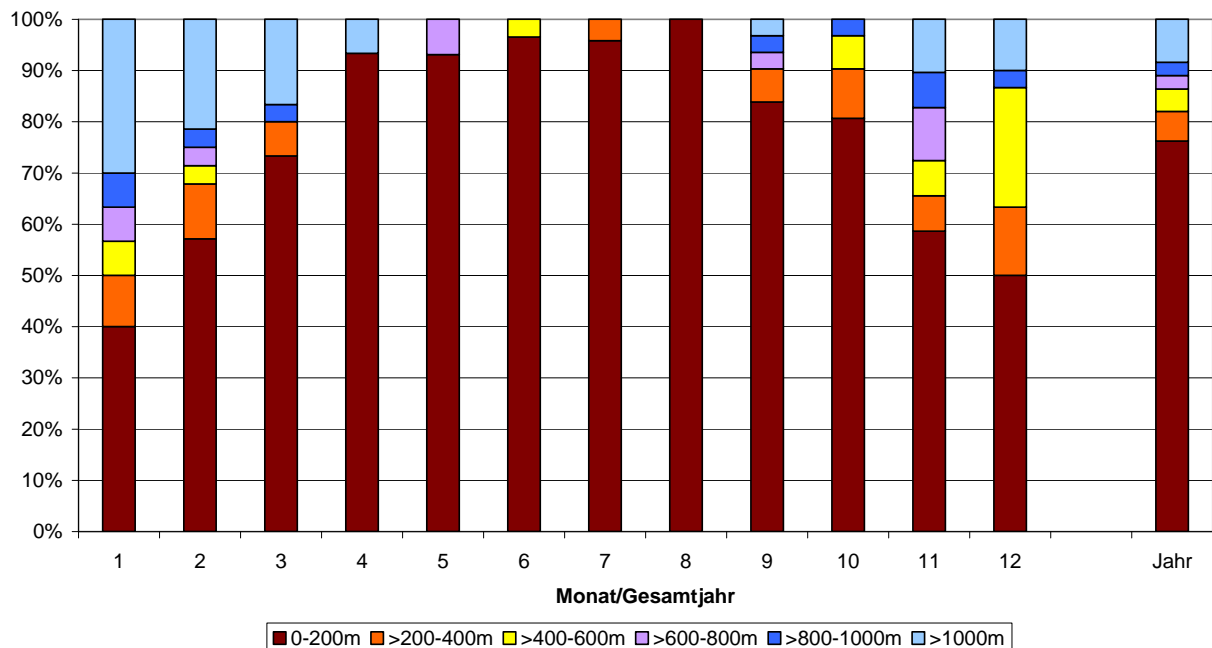


Abb.48 Relative Häufigkeit der nächtlichen Mischungsschichthöhen Stuttgart 2004

Tagsüber erwärmt sich mit Einsetzen der Globalstrahlung der Boden und die bodennahen Luftschichten, sodass Inversionen aufgelöst werden und die vertikale Durchmischung der unteren Luftschichten deutlich verbessert wird. Mischungsschichthöhen bis 200 m Höhe treten

zur Mittagszeit nur noch mit einer mittleren Wahrscheinlichkeit von unter 10 % auf. Die Mischungsschichthöhen erreichen am frühen Nachmittag ihre maximalen Höhen. Die Mischungsschichthöhen reichen dann ohne weiteres bis in eine Höhe von über 2000 m. Besonders in den Sommermonaten werden durch die erhöhte Sonneneinstrahlung die höchsten Mischungsschichthöhen erreicht. Die Mischungsschichthöhen >1.000 m haben im Sommer eine relative Häufigkeit von 75 bis 90 %. Geringere tägliche Mischungsschichthöhen werden hingegen in den Herbst- und Wintermonaten erreicht. Mischungsschichthöhen bis 1.000 m Höhe die während der Sommermonate nur mit einer relativen Häufigkeit von bis zu 20 % auftraten, treten nun mit bis zu 75 %iger Wahrscheinlichkeit auf.

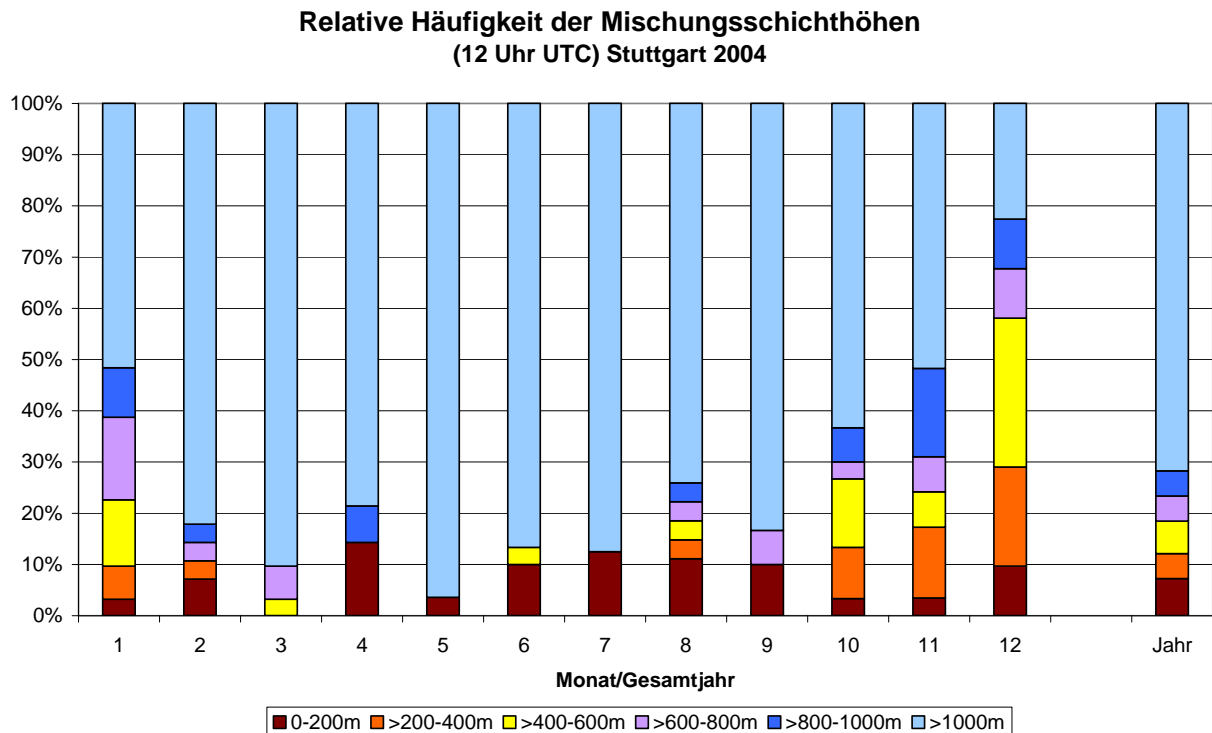


Abb.49 Relative Häufigkeit der täglichen Mischungsschichthöhen Stuttgart 2004

Im nun folgenden Teil wird untersucht, ob ein Zusammenhang zwischen der Stickoxid-Immissionskonzentration und der Mischungsschichthöhe um 12 Uhr UTC besteht. Für die Auswertung wurden Tagesmittelwerte der NO_x-, NO- und NO₂-Immissionskonzentration gebildet. Eine mögliche Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentration von der Mischungsschichthöhe wird nur für die Werktage Montag bis Freitag untersucht. Samstage und Sonntage werden nicht in die Betrachtung einbezogen, da die niedrigeren Immissionskonzentrationen als Folge des geringeren Verkehrsaufkommens am Wochenende zu einer Fehlinterpretation der Ergebnisse führen können.

Für die folgenden Darstellungen wurde die Einteilung der Mischungsschichthöhe in 6 Klassen beibehalten. Die Tagesmittelwerte der Stickoxid-Immissionskonzentrationen werden, in Abhängigkeit der an diesem Tag existierenden Mischungsschicht, der entsprechenden Klasse zugeordnet. In jeder Klasse werden die Tagesmittelwerte der Luftschadstoffkonzentration nochmals zu einem Mittelwert zusammengefasst. Bevor jedoch die Abhängigkeit von der am Mittag existierenden Mischungsschicht dargestellt wird, soll gezeigt werden, dass auch für die nächtliche Mischungsschichthöhe eine Abhängigkeit besteht.

Die Abbildung 50 zeigt die mittleren NO_x-Immissionskonzentrationen (Tagesmittelwert) in Abhängigkeit von der nächtlichen Mischungsschichthöhe. Für die Dauermessstellen und auch die Spotmessungen wird deutlich, dass bei nächtlichen Mischungsschichthöhen bis 400 m über dem Talkessel die höchsten NO_x-Tagesmittelwerte gemessen werden. Bei

Mischungsschichthöhen von > 400 m nimmt die mittlere tägliche NO_x-Immissionskonzentration ab. Die Änderungen der Tagesmittelwerte sind hinsichtlich der nächtlichen Mischungsschichthöhe als gering einzustufen. Dies resultiert daraus, dass die nächtliche Mischungsschichthöhe die Luftschadstoffkonzentration in den Nacht- und den frühen Morgenstunden beeinflusst. Zu diesem Zeitpunkt sind die Schadstoffkonzentrationen in der städtischen Atmosphäre sehr gering und haben deshalb kaum einen Einfluss auf die Tagesmittelwertbildung. Die maximale Mischungsschichthöhe in den frühen Nachmittagsstunden beeinflusst die Höhe der Tagesmittelwerte in viel höherem Maße, da der Schadstoffausstoß am Tag sein höchstes Niveau erreicht. Ferner muss darauf hingewiesen werden, dass die Klasse der Mischungsschichthöhen von 0 bis 200 m mit 78 % Häufigkeit auftritt. Die Klassen > 200 bis 1.000 m haben eine relative Häufigkeit von < 5 %. Sie sind somit als nicht repräsentativ einzustufen, da nicht genügend Tagesmittelwerte für die Mittelwertbildung der Klassen vorliegen. Die Klasse >1.000 m hat eine relative Häufigkeit von 12 %. Aus diesem Grund soll auf die Darstellung der Abhängigkeit der Immissionskonzentrationen von der nächtlichen Mischungsschichthöhe verzichtet werden.

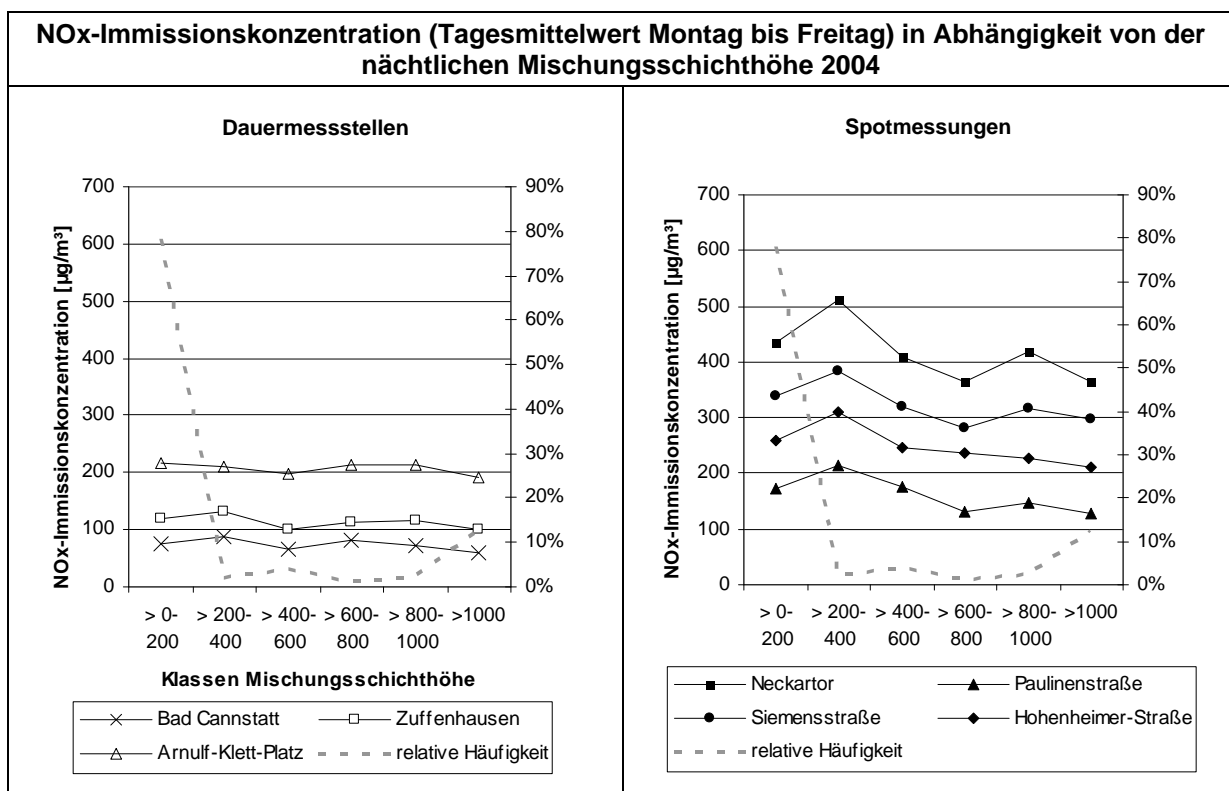


Abb.50 NO_x-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der nächtlichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004

Für die Höhe der NO- und NO₂-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der nächtlichen Mischungsschichthöhe gilt für die Dauermessstellen als auch für die Spotmessungen folgendes: Betrachtet man die beiden Klassen 0-200 m und >1.000 m so kann für die NO- als auch die NO₂-Immissionskonzentration festgestellt werden, dass bei nächtlichen Mischungsschichthöhen von >1.000 m die mittlere Luftschadstoffkonzentration geringer ist als bei Mischungsschichthöhen < 200 m.

Die mittlere Abhängigkeit der NO_x-Immissionskonzentration von der Mischungsschichthöhe 12 Uhr UTC ist in Abbildung 51 dargestellt. Die Abhängigkeit der Höhe des Tagesmittelwertes der NO_x-Immissionskonzentration ist deutlicher ausgeprägt als in den Nachtstunden. An der Hintergrund-Station Stuttgart Bad Cannstatt ist der Rückgang des NO_x-Tagesmittelwertes mit 64 % zwischen den Klassen 0-200 m und > 1.000 m Mischungsschichthöhe am größten. Geringere mittlere Reduktionen werden an den Verkehrsmessstellen und den Spotmessungen

erreicht. An der Station Stuttgart Siemensstraße betrug der Rückgang zwischen den Klassen 0-200 m und > 1.000 m nur 12 %. Jedoch gilt für alle Stationen eine Abnahme der NO_x-Immissionskonzentration mit zunehmender täglicher Mischungsschichthöhe.

An dieser Stelle soll noch kurz die relative Häufigkeit der mittäglichen Mischungsschichthöhen erwähnt werden. Die relative Häufigkeit ist für die Interpretierbarkeit der Ergebnisse von großer Bedeutung. Die relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhen (Montag bis Freitag) ist für die Einteilung in 6 Klassen zur Mittagszeit ausgeglichen. Alle Klassen hatten eine relative Häufigkeit von = 5 %. Mit größter Wahrscheinlichkeit treten zur Mittagsstunde (13 Uhr MEZ) Mischungsschichthöhen > 1.000 m auf. In 15 % der Fälle traten Mischungsschichthöhen bis 200 m Höhe verbunden mit einer Bodeninversion oder sehr tiefen ersten freien Inversion auf. In diesen Fällen wird die vertikale Durchmischung fast vollständig unterbunden. Das führt in der Folge zum Anstieg der NO_x-Immissionskonzentration. An der Station Stuttgart Neckartor werden unter solchen Bedingungen die höchsten NO_x-Tagesmittelwerte mit durchschnittlich 700 µg/m³ gemessen.

Nach diesen Ergebnissen ist vor allem die Verteilung der Stickoxid-Emissionen des Verkehrs auf die tagsüber existierende Mischungsschicht von größter Bedeutung. Denn die Emissionen des Verkehrs werden direkt am Boden freigesetzt und in der atmosphärischen Grenzschicht verteilt. Die nächtliche Mischungsschichthöhe bestimmt, inwieweit sich die Luft mit Schadstoffen über die Nacht anreichert. Dies hat ebenfalls Auswirkungen auf den Tagesmittelwert der NO_x-Immissionskonzentration aber in geringerem Ausmaß.

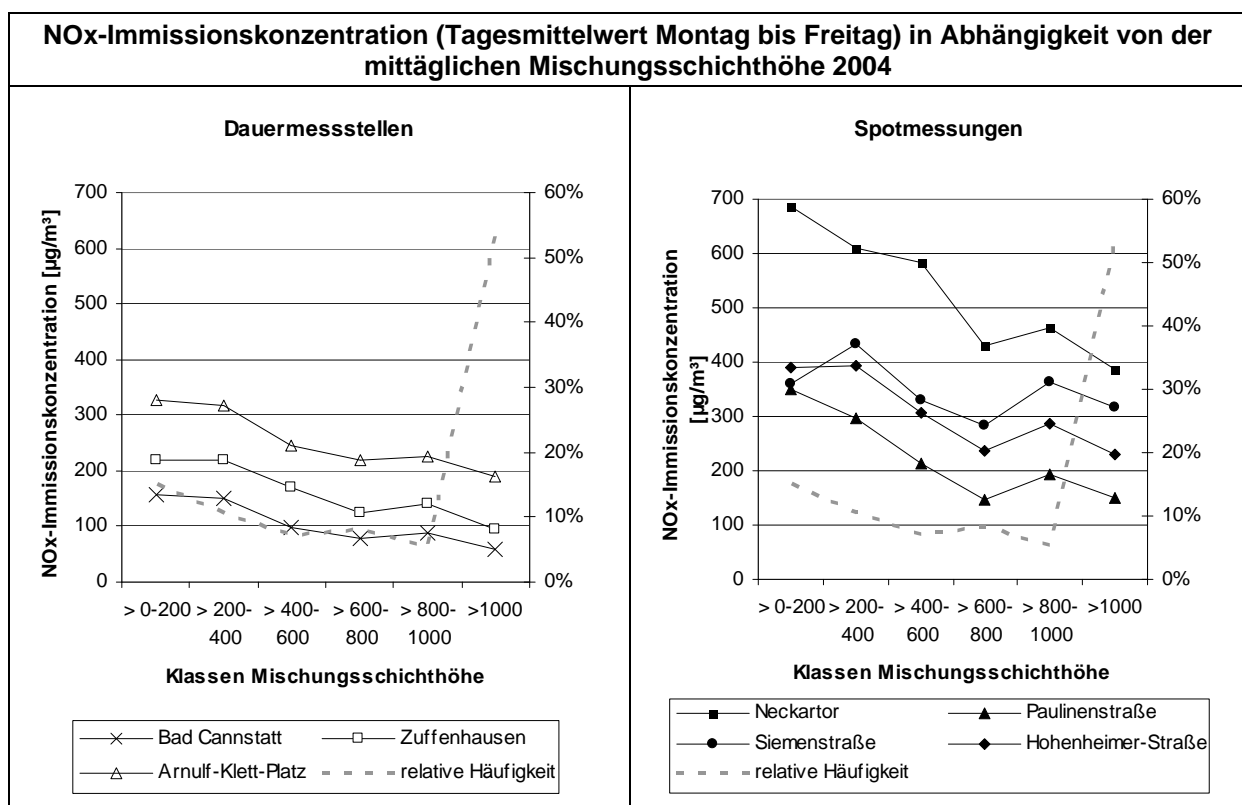


Abb.51 NO_x-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004

Für die NO-Immissionskonzentration kann in der Abbildung 52 die Abhängigkeit von der Mischungsschichthöhe um 12 Uhr UTC wie für die NO_x-Tagesmittelwerte beobachtet werden. An den wenig verkehrsbelasteten Stationen und an der Hintergrund-Station Stuttgart Bad Cannstatt ist der Rückgang des NO-Tagesmittelwertes mit 70 bis 80 % zwischen den Klassen 0-200 m und > 1.000 m am größten. Geringere mittlere Reduktionen werden wie auch bei NO_x an der Verkehrsmessstelle Stuttgart-Straße und den Spotmessungen erreicht. An der Station Stuttgart Siemensstraße war der Rückgang der NO-Immissionskonzentration zwischen den

Klassen 0-200 m und > 1.000 m mit nur 23 % am geringsten. Für die NO-Immissionskonzentration an allen Stationen gilt: Je höher die mittägliche Mischungsschichthöhe umso niedriger die NO-Immissionskonzentration.

Bei Mischungsschichthöhen bis 200 m Höhe werden die höchsten NO_x-Immissionskonzentrationen gemessen. Denn mit dem Auftreten einer Bodeninversion oder sehr tiefen ersten freien Inversion ist eine geringe Verdünnung der Luftschadstoffe verbunden. Diese können nur auf ein kleines Luftvolumen verteilt werden. In diesen Fällen werden an der Station Stuttgart Neckartor NO-Tagesmittelwerte mit durchschnittlich 350 µg/m³ gemessen. Auch an der Hintergrundstation Stuttgart Bad Cannstatt steigen die NO-Immissionskonzentrationen im Tagesmittelwert auf über 70 µg/m³ an.

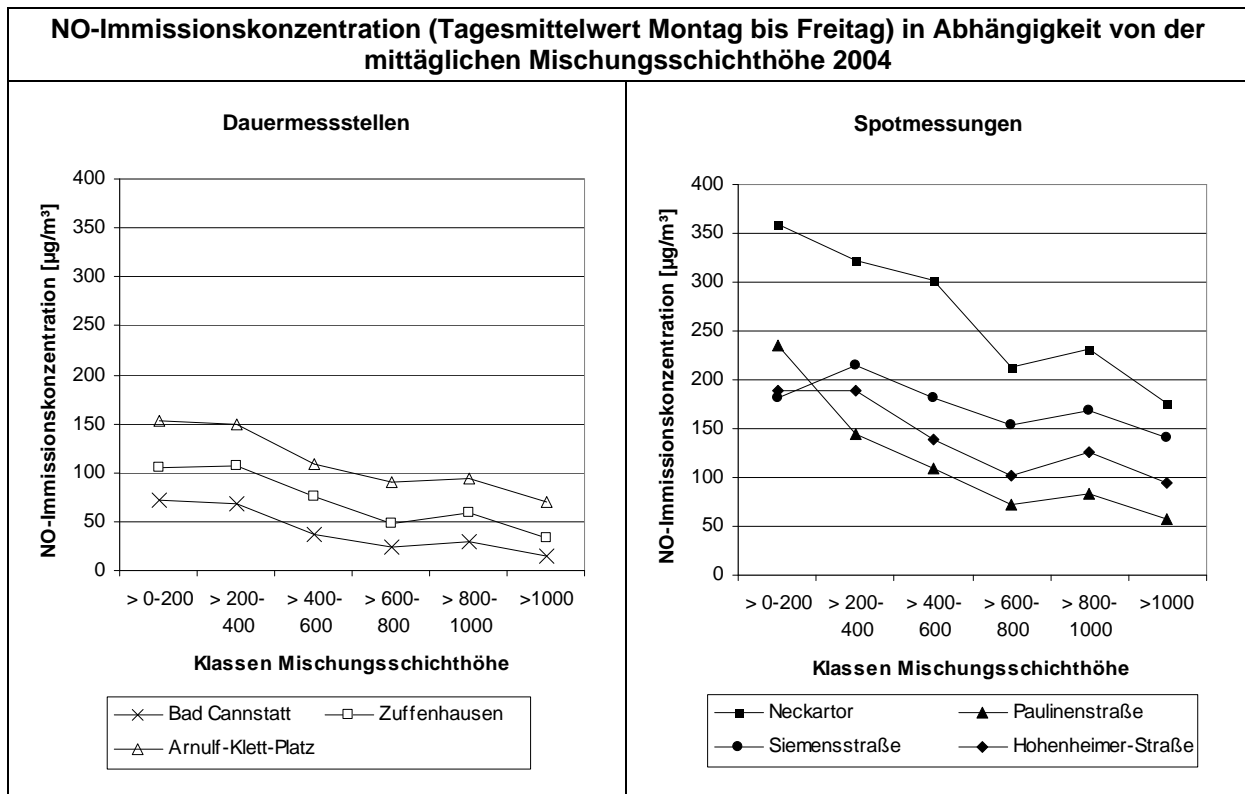


Abb.52 NO-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004

Die besondere Verteilung der Stickoxide hinsichtlich der Mischungsschichthöhe/Höhe der Inversionsuntergrenze – nämlich die Abnahme der NO_x- und NO-Immissionskonzentration mit steigender Mischungsschichthöhe – ergibt sich für bodennahe Emittenten. Stickoxide werden in Stadtgebieten überwiegend durch den Verkehr emittiert. Bei Quellen in großer Höhe wie Industrieanlagen und Schornsteine in mehreren Metern Höhe sieht die Verteilung der Stickoxide hinsichtlich der Mischungsschichthöhe aus. Dann kann es mit zunehmender Mischungsschichthöhe (Höhe der Inversionsuntergrenze) auch zu einer Erhöhung der Schadstoffkonzentration kommen, da bei bestimmten Situationen die Luftschadstoffe aus der Höhe in Richtung Boden eingemischt werden können (Looping oder Fumigation).

Der mögliche Zusammenhang zwischen NO₂-Immissionskonzentration und Mischungsschichthöhe um 12 Uhr UTC ist in Abbildung 53 veranschaulicht. An der Hintergrundmessstation Stuttgart Bad Cannstatt und der gering verkehrsbelasteten Station Stuttgart-Zuffenhausen kann ein leichter Rückgang des NO₂-Tagesmittelwertes mit 29 bis 22 % zwischen den Klassen 0-200 m und > 1.000 m festgestellt werden. Sehr geringe mittlere Reduktionen werden für die Spotmessungen mit Ausnahme der Station Stuttgart Siemensstraße und die Dauermessstelle Stuttgart-Straße erzielt. An der Station Stuttgart Siemensstraße wurde für die Klasse > 1.000 m ein mittlerer Anstieg der NO₂-

Immissionskonzentration von 21 % gegenüber der Klasse 0-200 m berechnet. Für die NO₂-Immissionskonzentration ergibt sich somit je nach Lage der Station ein unterschiedlicher Zusammenhang.

Der Minderungseffekt der NO₂-Immissionskonzentration ist bei großen Mischungsschichthöhen wesentlich geringer als bei der NO_x- oder NO-Immissionskonzentration. Die Ursache liegt in der guten vertikalen Durchmischung bei hohen täglichen Mischungsschichthöhen. Im Tagesverlauf wird Ozon aus der nachts existierenden Restschicht in bodennahe Luftschichten eingemischt. In der Folge kommt es dann zu einer NO₂-Produktion im Straßenraum durch den Abbau von Ozon. Die NO₂-Immissionskonzentration bleibt an den verkehrsbelasteten Stationen über alle Klassen annähernd konstant oder steigt sogar an während die NO_x-Immissionskonzentration abnimmt.

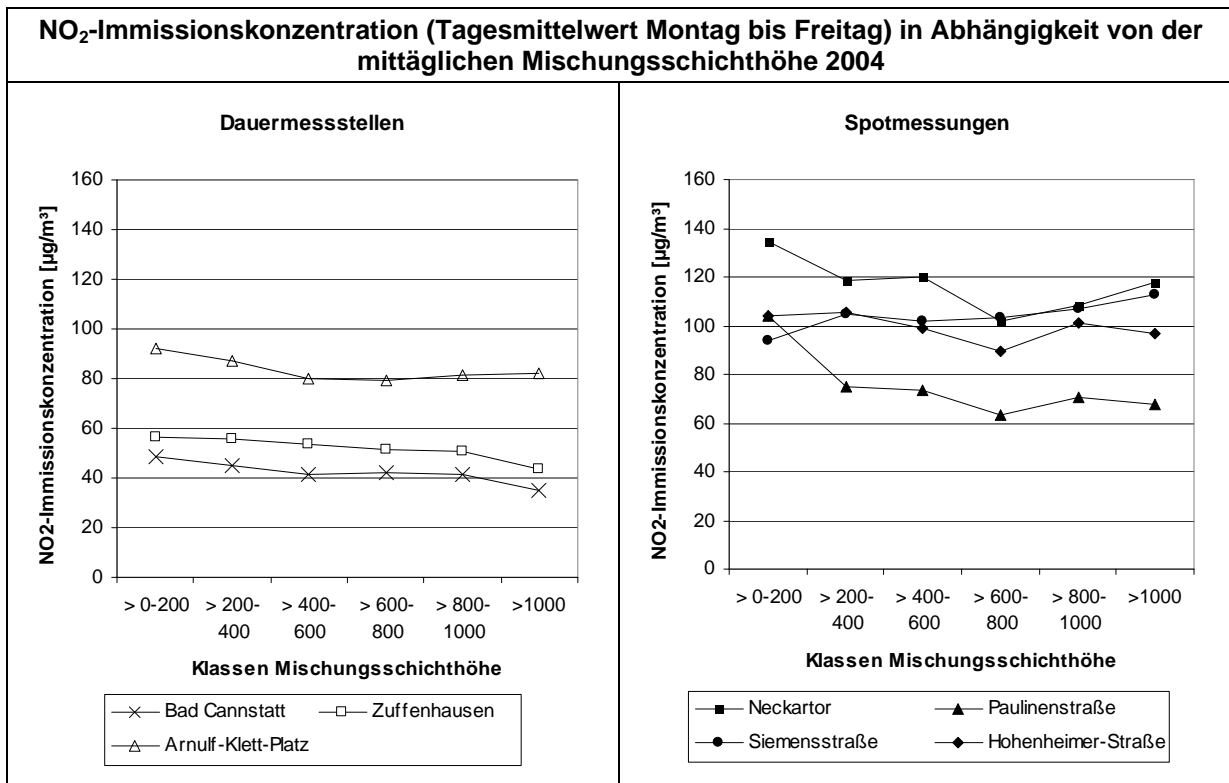


Abb.53 NO₂-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Mischungsschichthöhe Stuttgart 2004

In der Tabelle 6 sind die Bestimmtheitsmaße für die lineare Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) von der täglichen Mischungsschichthöhe wiedergegeben. Für die mittleren NO_x- und NO-Immissionskonzentrationen besteht für alle Stationen, mit Ausnahme der Station Stuttgart Siemensstraße, eine hohe bis sehr hohe lineare Abhängigkeit von der Mischungsschichthöhe. Für die Tagesmittelwerte der NO₂-Immissionskonzentration sind die linearen Abhängigkeiten von der Mischungsschichthöhe für die Stationen Bad Cannstatt Zuffenhausen und Siemensstraße hoch. Für alle anderen Stationen ist keine lineare Abhängigkeit von der Mischungsschichthöhe gegeben.

Tab.6 Lineare Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Mischungsschichthöhe Stuttgart-Schnarrenberg 2004

| Luftmessstation | R ² (Stickoxid-Immissionskonzentration und Mischungsschichthöhe 12 Uhr UTC) | | |
|------------------------------|--|------|-----------------|
| | NO _x | NO | NO ₂ |
| Stuttgart Arnulf-Klett-Platz | 0,89 | 0,91 | 0,53 |
| Stuttgart Bad Cannstatt | 0,88 | 0,86 | 0,84 |
| Stuttgart Zuffenhausen | 0,89 | 0,89 | 0,86 |
| Stuttgart Hohenheimer Straße | 0,78 | 0,82 | 0,32 |
| Stuttgart Paulinenstraße | 0,8 | 0,82 | 0,56 |
| Stuttgart Siemensstraße | 0,23 | 0,6 | 0,75 |
| Stuttgart Neckartor | 0,91 | 0,92 | 0,40 |

Es ist wichtig zu wissen, dass die Schwankungsbreiten bezüglich des gemittelten Tagesmittelwertes in einer Klasse sehr groß sein können, besonders in den Klassen 0 bis 200 m und 200 bis 400 m. In diesen Klassen führen sehr hohe Tagesmittelwerte der jeweiligen Luftschadstoffkonzentration dazu, dass der gemittelte Tagesmittelwert einer Klasse so hoch ist. Diese hohen Tagesmittelwerte (Montag bis Freitag) treten nur bei sehr geringen vertikalen Mischungsschichthöhen auf. Für eine Interpretation bedeutet das, dass ein linearer Zusammenhang zwischen NO_x- und NO-Immissionskonzentration und mittäglicher Mischungsschichthöhe nur im Mittel nicht aber für den einzelnen Tag Gültigkeit besitzt. Die Reduktion des Tagesmittelwertes der NO_x- und NO-Immissionskonzentration mit zunehmender Mischungsschichthöhe basiert vor allem auf der Abnahme der hohen bis sehr hohen Luftschadstoffbelastungen. Geringe bis mittlere Luftschadstoffbelastungen treten in allen Klassen auf.

7.2.3 Schichtungsstabilität

Die Schichtungsstabilität der unteren Atmosphäre ist auch ein Parameter der zur Bestimmung guter und schlechter Ausbreitungsbedingungen herangezogen wird. Dabei bestimmt der vertikale Temperaturgradient ob ein vertikaler Luftmassenaustausch möglich ist. Bei stabiler Schichtung wird die Turbulenz fast vollständig unterdrückt und aufwärts gerichtete Luftbewegungen finden nicht mehr oder in geringem Maße statt [Oke 1995].

Zur Bewertung der vertikalen Ausbreitungsbedingungen wird in diesem Kapitel der vertikale Temperaturgradient (Kelvin/100 m) zwischen der Station Stuttgart-Schwabenzentrum (250 m ü NN) und dem 900 hPa Niveau des vertikalen Temperaturprofils bestimmt. Die Höhendifferenz der beiden Stationen schwankt je nach vorherrschendem Luftdruck. Im Mittel liegt das 900 hPa Niveau in einer Höhe von ca. 1.000 m. Der Temperaturgradient wird in der nachfolgenden Auswertung auf die Höhendifferenz von 100 m bezogen. Die labile Schichtung wird definiert durch einen vertikalen Temperaturgradienten von > 0,98 K/100 m. Die stabile Schichtung wird gleichgesetzt mit einem vertikalen Temperaturgradienten von < 0,98 K/100 m. Indifferente Schichtung wurde bei diesem Vergleich zu keinem Zeitpunkt gemessen.

Die Abbildung 54 zeigt die Schichtungsstabilität bezüglich des 900 hPa Niveau für die Mittagszeit (12 Uhr UTC). Im Jahr 2004 traten labile Schichtungszustände mit einer Wahrscheinlichkeit von 60 % auf. Es zeichnet sich jedoch ein deutlicher Jahresgang der Schichtungsstabilität bis in 1.000 m Höhe ab. Im Frühjahr und Sommer überwiegt mit ca. 80 % der labile Schichtungstyp. Im Winterhalbjahr dominiert mit einer mittleren relativen Häufigkeit von 70 % die stabile Schichtung.

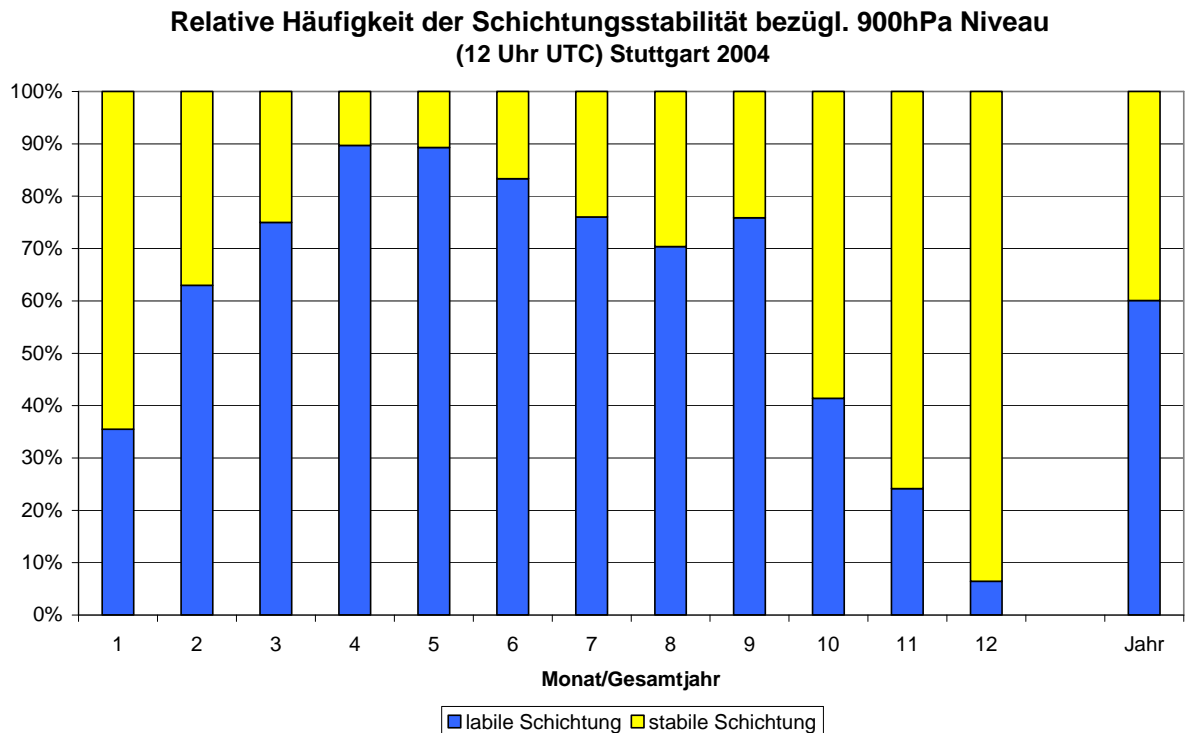


Abb.54 Relative Häufigkeit der labilen oder stabilen Temperaturschichtung zwischen Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900hPa Niveau 12 Uhr UTC 2004

Auf die Darstellung der nächtlichen Schichtungsstabilität bezüglich des 900 hPa Niveau wurde verzichtet, da 2004 in den Nachtstunden zu 100 % stabile Schichtung vorherrschend war. Die Stabilität der Atmosphäre besonders der atmosphärischen Grenzschicht ist eng verknüpft mit dem Auftreten von Inversionen. Das Auftreten einer stabilen Schichtung hängt oftmals mit dem Vorhandensein einer Inversion innerhalb dieser Höhe zusammen.

Im folgenden Teil wird untersucht, ob ein Zusammenhang zwischen der Stickoxid-Immissionskonzentration und der Schichtungsstabilität am Mittag (12 Uhr UTC) besteht. Für die Auswertung wurden wie bei der Untersuchung zur Mischungsschichthöhe Tagesmittelwerte der NO_x-, NO- und NO₂-Immissionskonzentration gebildet. Die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentration von der Schichtungsstabilität wird nur für die Werktage Montag bis Freitag untersucht. Grundlage für die Einteilung der Schichtungsstabilität bildet die Temperaturdifferenz zwischen der Klimastation Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900 hPa Niveau. Die Temperaturdifferenz, die sich auf eine Höhendifferenz von mehreren hundert Metern bezieht wird auf die Höhendifferenz 100 m umgerechnet.

Nachfolgend wurde die Schichtungsstabilität in 6 Klassen, mit einem Unterschied von 0,5 K/100 m pro Klasse, eingeteilt. Die Tagesmittelwerte der Stickoxid-Immissionskonzentrationen werden in Abhängigkeit der an diesem Tag existierenden Temperaturschichtung der entsprechenden Klasse zugeordnet. In jeder Klasse wird aus den enthaltenen Tagesmittelwerten der Luftschadstoffkonzentration ein Mittelwert für die jeweilige Klasse gebildet.

Hinsichtlich der relativen Häufigkeit ist darauf hinzuweisen, dass die Klassen sehr hoher Stabilität (< 0 K/100 m) nur mit einer relativen Wahrscheinlichkeit von 1 bis 2 % im Jahr 2004 aufgetreten sind. Für die Mittelwertbildung wurden weniger als 5 Tagesmittelwerte herangezogen. Deshalb sollen bei der Interpretation nur die Temperaturschichtungen mit einem vertikalen Temperaturgradienten von >0 bis 1,5 K/100 m betrachtet werden. Die relative Häufigkeit liegt für diese Klassen über 5 %.

Die Abbildung 55 zeigt die mittleren NO_x-Immissionskonzentrationen (Tagesmittelwert) in Abhängigkeit von dem Temperaturgradient der atmosphärischen Schichtung (12 Uhr UTC) bis zum Druckniveau 900 hPa. Die Dauermessstellen und die Spotmessungen haben bei stabiler Schichtung (< 0,98 K/100 m) höhere NO_x-Tagesmittelwerte als bei labiler Schichtung (> 0,98 K/100 m). Dabei scheint der Grad der Stabilität ebenfalls eine Rolle zu spielen. Bei sehr stabilen Temperaturschichtungen (< 0 K/100 m), gleichbedeutend mit einer Temperaturzunahme, sind die NO_x-Immissionskonzentrationen am höchsten. An der städtischen Hintergrundstation Stuttgart Bad Cannstatt ist die NO_x-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) bei labiler Schichtung (> 1 bis 1,5 K/100 m) um 53 % geringer als bei stabiler Schichtung (> 0 bis 0,5 K/100 m). An den Spotmessungen und Verkehrsmessstellen werden geringere Reduktionen zwischen 45 und 18 % erreicht.

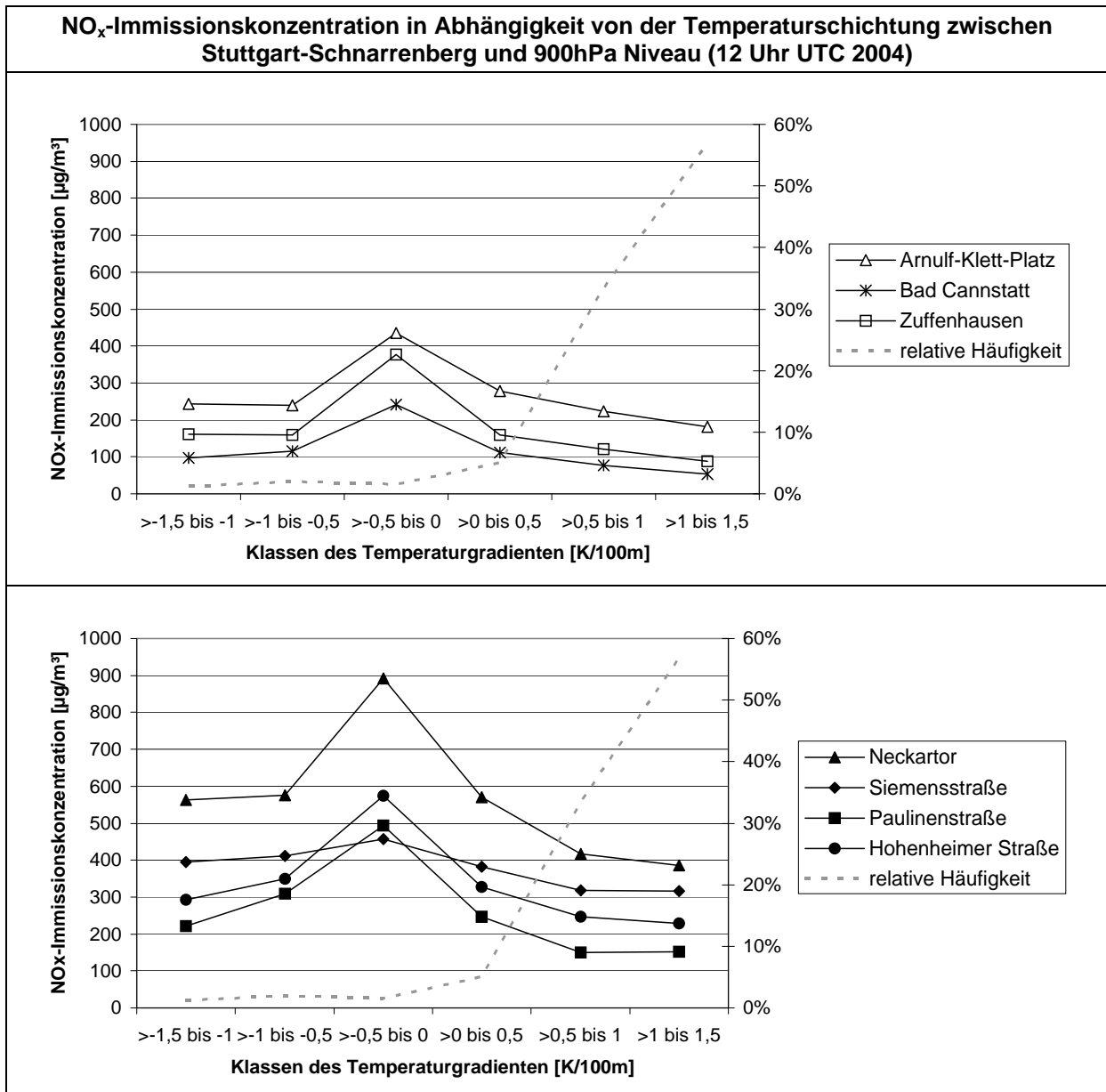


Abb.55 NO_x-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004

Die Abbildung 56 zeigt die mittleren NO-Immissionskonzentrationen (Tagesmittelwert) in Abhängigkeit vom Temperaturgradient der atmosphärischen Schichtung (12 Uhr UTC) zwischen Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900 hPa Druckniveau. Für die NO-Immissionskonzentration kann festgestellt werden, dass sowohl an den Dauermessstellen als auch an den Spotmessstellen die NO-Immissionskonzentration mit steigender Labilität der

Schichtung abnimmt. Bei sehr stabilen Temperaturschichtungen (< 0 K/100 m) treten die höchsten NO-Immissionskonzentrationen auf. Bei labiler Temperaturschichtung sind die NO-Immissionskonzentrationen weitaus geringer, wie an der Hintergrundstation Stuttgart Bad Cannstatt. Dort ist die NO_x-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) bei labiler Schichtung (> 1 bis 1,5 K/100 m) um 74 % gegenüber der stabilen Schichtung (> 0 bis 0,5 K/100 m) gesunken. An den Spotmessungen und Verkehrsmessstellen liegen die Reduktionen zwischen 62 und 29 %.

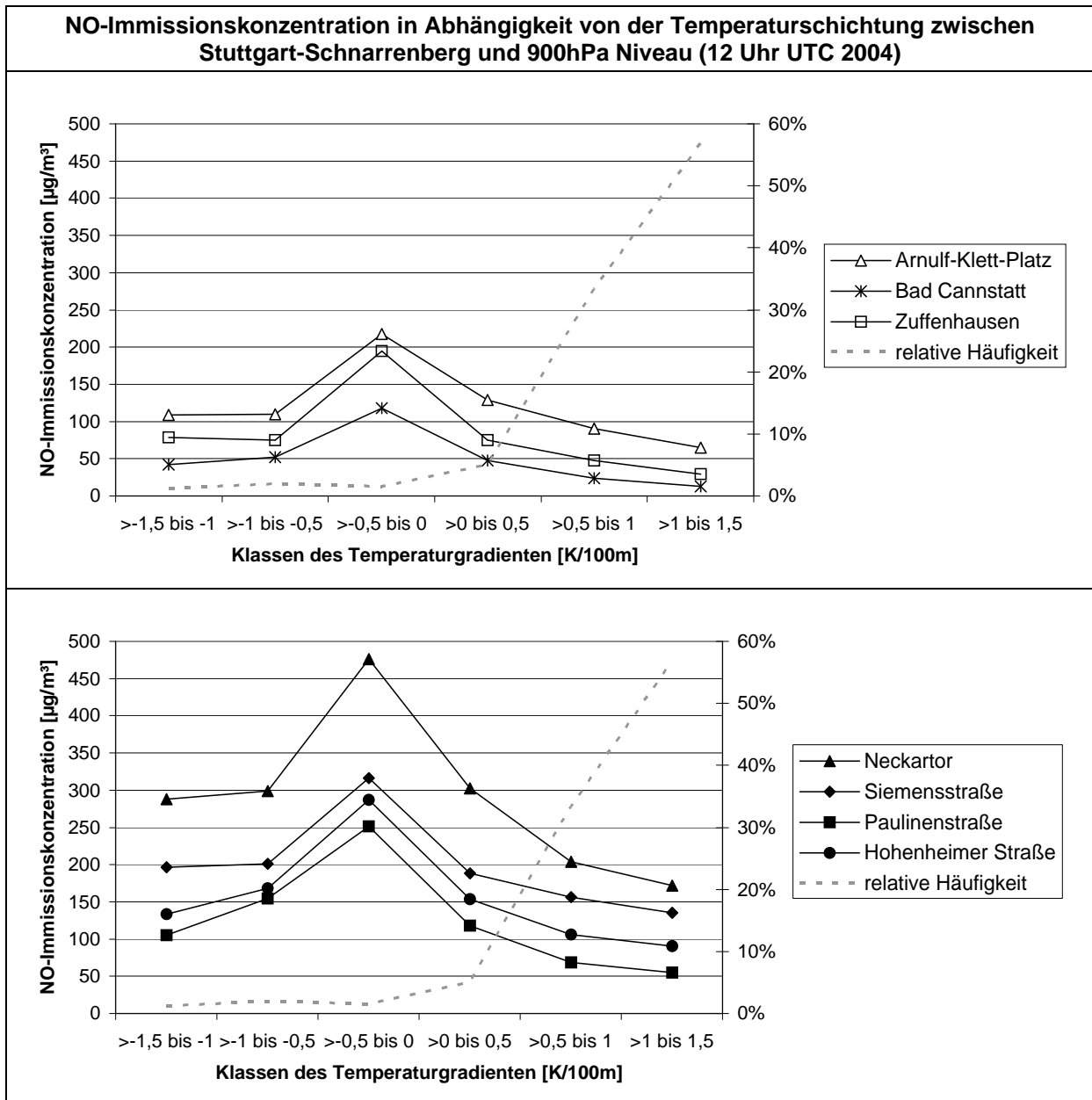


Abb.56 NO-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004

Die Abbildung 57 veranschaulicht die Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentration vom Temperaturgradienten der atmosphärischen Schichtung (12 Uhr UTC) zwischen Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900 hPa Druckniveau. Die NO₂-Immissionskonzentration steigt mit steigender Labilität der Schichtung an. Damit unterscheidet sich die Abhängigkeit der NO₂-Immissionskonzentration von der Temperaturschichtung deutlich von den Abhängigkeiten der NO_x- und NO-Immissionskonzentration. Bei stabiler Temperaturschichtung (-1,5 bis -1 K/100 m) sind die NO₂-Immissionskonzentrationen mit Ausnahme der Station Stuttgart Neckartor

niedriger als bei labiler Temperaturschichtung (1 bis 1,5 K/100 m). Der Unterschied der mittleren NO₂-Immissionskonzentration zwischen den beiden Klassen ist jedoch sehr gering.

Die Stationen Stuttgart Bad Cannstatt und Zuffenhausen zeigen eine Abnahme der NO₂-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) bei labiler Schichtung (> 1 bis 1,5 K/100 m) um 11 und 1 % gegenüber der stabilen Schichtung (> 0 bis 0,5 K/100 m). An den Spotmessstellen und der Verkehrsmessstelle Stuttgart Arnulf-Klett-Platz (Stuttgart-Straße) erhöht sich die NO₂-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) bei labiler Schichtung (> 1 bis 1,5 K/100 m) um 2 bis 15 % gegenüber der stabileren Schichtung (> 0 bis 0,5 K/100 m).

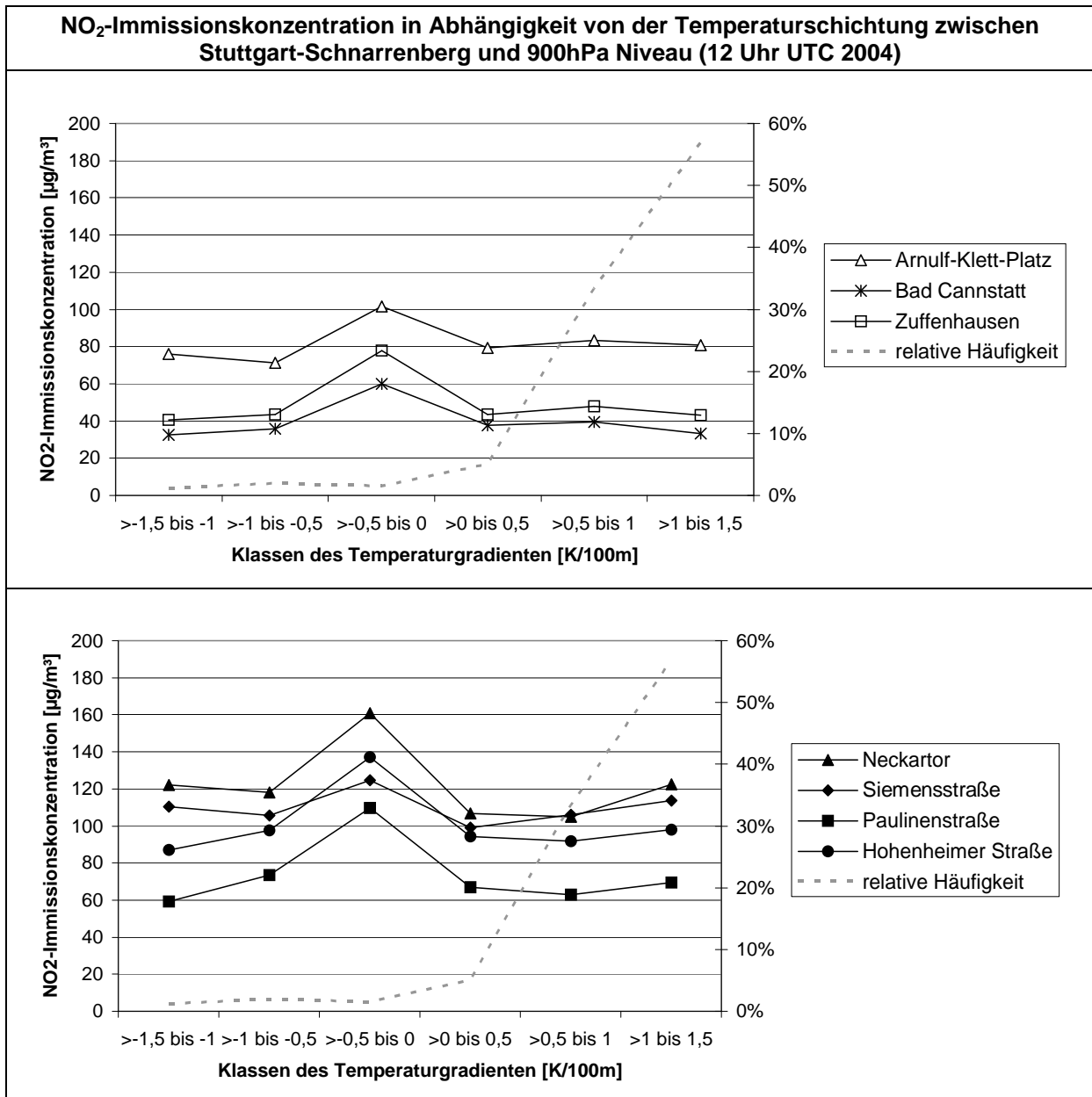


Abb.57 NO₂-Immissionskonzentration in Abhängigkeit von der täglichen Temperaturschichtung 2004

Schon bei näherer Betrachtung kann eine lineare Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Schichtungsstabilität über alle Klassen ausgeschlossen werden. Grund dafür ist die Nichtbeachtung von möglichen markanten Punkten (z.B. eine freie Inversion) zwischen der Station Stuttgart-Schnarrenberg und dem 900 hPa Druckniveau. Mit dieser Methode werden Austauschbedingungen zugrunde gelegt, die nicht real existieren. Beispielsweise kann eine Bodeninversion in Stuttgart-Schnarrenberg den vertikalen Austausch der Luftschadstoffe über der Stadt Stuttgart stark behindern, obwohl zwischen Stuttgart-

Schnarrenberg und dem 900 hPa Druckniveau eine labile Temperaturschichtung bestimmt wurde. Um diese Einschränkung zu umgehen, könnte man die Stabilität der atmosphärischen Schichtung bis zum ersten markanten Punkt bestimmen. Bei dieser Methode wird jedoch die maximal mögliche vertikale Ausdehnung der emittierten Luftschadstoffe auf das vorgegebene Luftvolumen nicht berücksichtigt.

7.3 Abhängigkeit der Immissionskonzentration vom Wind

Hinsichtlich der Untersuchung zur Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentration von der Windgeschwindigkeit und -richtung liegen Windmessungen an den Stuttgarter Stationen Bad Cannstatt, Zuffenhausen und Schwabenzentrum vor. An den Messstationen Zuffenhausen und Bad Cannstatt wird die Windgeschwindigkeit in 3,5 m Höhe gemessen, während der Windvektor an der Station Stuttgart-Schwabenzentrum auf Überdachniveau in 26 m Höhe gemessen wird. Die Windmessungen in 3,5 m Höhe sind deshalb nur für die Messstation repräsentativ, da in der Umgebung befindliche Hindernisse (z.B. Bauwerke und Bewuchs) den Windvektor zu stark modifizieren. Eine Übertragung der Messergebnisse auf andere Stuttgarter Messstationen ist in diesem Fall nicht möglich. Der Windvektor, insbesondere die Windrichtung an der Station Stuttgart-Schwabenzentrum kann ebenfalls nicht auf andere Stuttgarter Messstellen übertragen werden. Lokale Gegebenheiten wie die Lage der Straße zur Windrichtung, in der die Verkehrsmessstationen liegen, sind von weitaus größerer Bedeutung als der Windvektor im Überdachniveau. Dieser wird durch die örtlichen Gegebenheiten so stark modifiziert, dass er, wenn nicht direkt gemessen, nur mit Hilfe von Modellen in Form von Windstatistiken und synthetischen Windrosen etc. berechnet werden kann.

7.3.1 Windgeschwindigkeit

Die relative Häufigkeit der Windgeschwindigkeit 2004 unterteilt in 6 Klassen wird in Tabelle 7 beispielhaft für die Station Stuttgart-Schwabenzentrum dargestellt. Jede Klasse umfasst einen Windgeschwindigkeitsbereich von 1 m/s umfasst.

Tab.7 Relative Häufigkeit der Windgeschwindigkeit Tag und Nacht 2004

| Windgeschwindigkeit | Nacht | Tag |
|---------------------|-------|------|
| 0-1 m/s | 11% | 10% |
| >1-2 m/s | 47% | 39% |
| >2-3 m/s | 29% | 27% |
| >3-4 m/s | 8% | 13% |
| >4-5 m/s | 3% | 7% |
| >5 m/s | 2% | 4% |
| Summe | 100% | 100% |

Unterschiede hinsichtlich der Windgeschwindigkeitsverteilung nach Klassen ergeben sich für die Tag- und Nachtstunden. Tagsüber nehmen die geringeren Windgeschwindigkeiten bis 3 m/s deutlich ab, bei gleichzeitiger Zunahme der Häufigkeit der Windgeschwindigkeit > 3 m/s. Die erhöhte solare Strahlung führt bei der täglichen Erwärmung des Bodens und der unteren Luftschichten zu einer Erhöhung der Windgeschwindigkeit. Mit der Erhöhung der Windgeschwindigkeit am Tag setzt auch eine Erhöhung der thermischen Turbulenz ein.

Die relative Häufigkeit der nächtlichen Windgeschwindigkeit nach Klassen an der Station Stuttgart-Schwabenzentrum zeigt über das Jahr 2004 nur kleine Unterschiede zwischen den Jahreszeiten. Sehr geringe Windgeschwindigkeiten bis 2 m/s treten mit der größten Häufigkeit von 70 % in den Monaten Oktober bis Dezember auf. In den Sommermonaten liegt die Häufigkeit geringer Windgeschwindigkeiten (< 2 m/s) bei unter 60 %. Sehr hohe Windgeschwindigkeiten größer 3 m/s haben mit 20 bis 30 % die größte Häufigkeit im Januar und Februar. In den Sommermonaten werden diese Windgeschwindigkeiten nur mit 10 %-iger

Wahrscheinlichkeit erreicht. Dafür ist die Häufigkeit von mittleren Windgeschwindigkeiten (2 bis 3 m/s) im Sommerhalbjahr am größten.

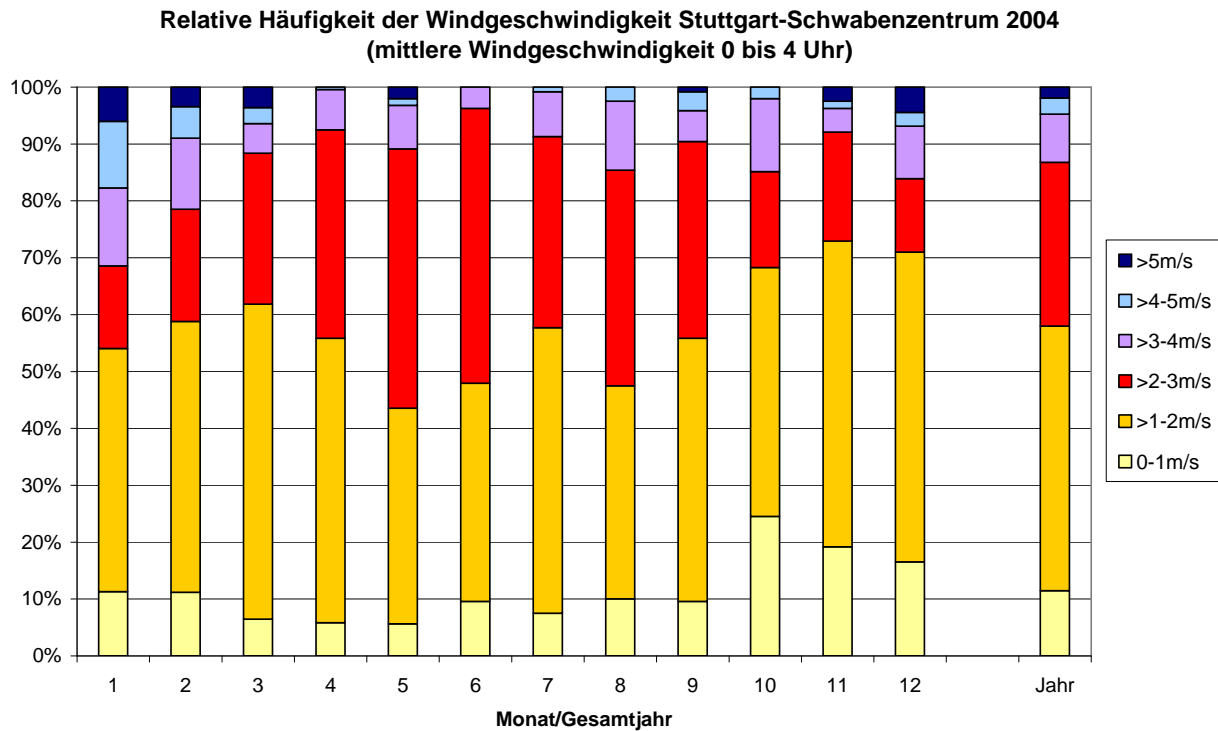


Abb.58 Relative Häufigkeit der nächtlichen Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum

Die Windgeschwindigkeitsverteilung am Tag unterscheidet sich stark von der Nacht. Sehr geringe Windgeschwindigkeiten bis 2 m/s treten nur noch mit einer Häufigkeit von 50 % auf. Dafür steigt der Anteil der Windgeschwindigkeiten > 3 m/s auf ca. 25 % gegenüber den Nachtsstunden an. Ein ausgeprägter Jahrgang der einzelnen Windgeschwindigkeitsklassen kann für die Tagstunden fast vernachlässigt werden. Einzig in den Monaten Oktober bis Dezember 2004 traten sehr geringe Windgeschwindigkeiten (< 2 m/s) mit einer etwas erhöhten Häufigkeit gegenüber den anderen Monaten auf. Sehr hohe Windgeschwindigkeiten (> 4 m/s) wurden auch tagsüber vor allem im Januar und Februar registriert.

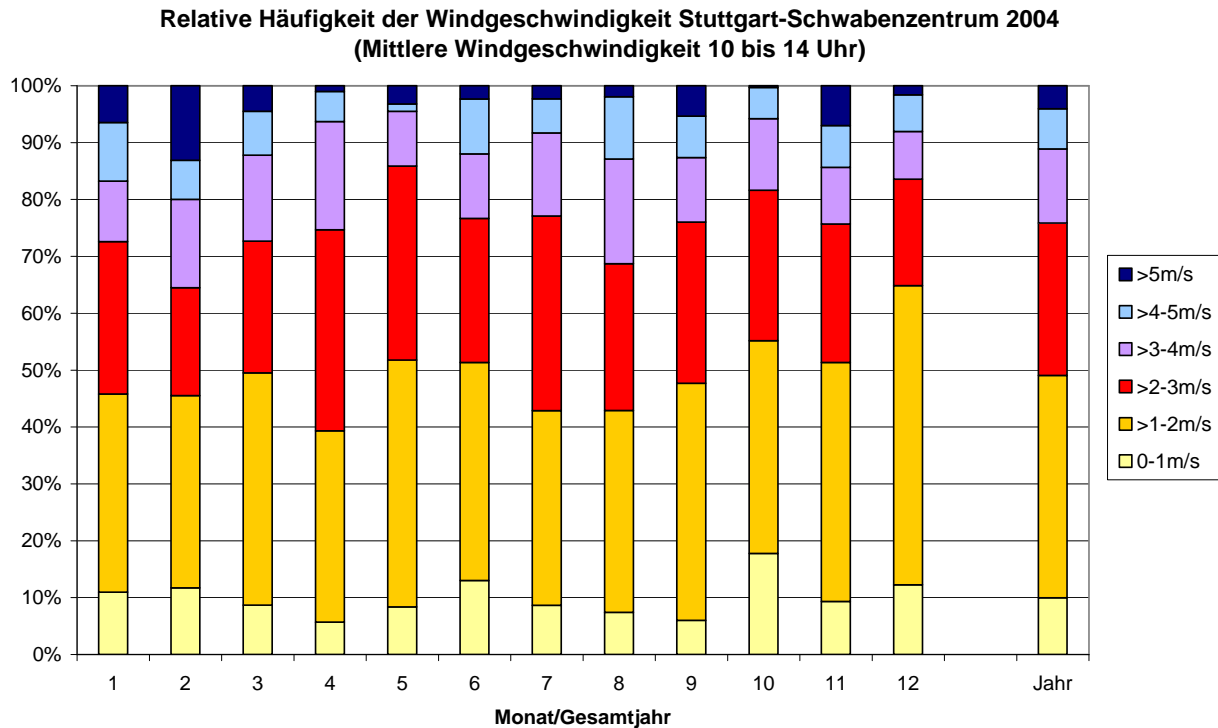


Abb.59 Relative Häufigkeit der täglichen Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum

Signifikante Unterschiede in der Windgeschwindigkeit ergeben sich für die drei Stuttgarter Stationen vor allem im Tagesverlauf (siehe Abbildung 60). Der mittlere Tagesgang der Windgeschwindigkeit hat sein Maximum am späten Nachmittag. Die Werte der Windgeschwindigkeit werden in den Nachtstunden (1 bis 4 Uhr) gemessen. An der Station Schwabenzentrum werden die Tiefstwerte der Windgeschwindigkeit mit leichter Verspätung erst gegen 7 bis 8 Uhr gemessen. Der Tagesgang der Windgeschwindigkeit ist auf die starke thermische Turbulenz in den Mittags- und Nachmittagsstunden zurückzuführen. In der Nacht ist die Turbulenz strahlungsbedingt sehr gering. Damit einher geht der nächtliche Rückgang der Windgeschwindigkeit [Helbig 1999]. Die höchste Windgeschwindigkeit wird im Tagesgang an der Station Stuttgart-Schwabenzentrum gemessen. Die Windgeschwindigkeit im Überdachniveau ist auf Grund des geringeren Reibungswiderstandes in dieser Höhe größer.

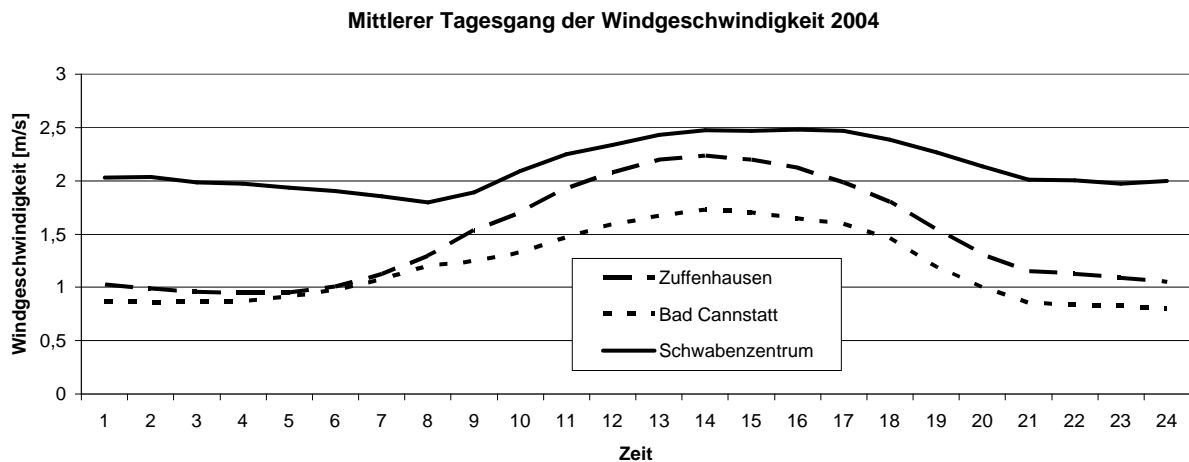


Abb.60 Mittlerer Tagesgang der Windgeschwindigkeit Stuttgart 2004

Vergleicht man die Tagesgänge der Windgeschwindigkeit der Stationen hinsichtlich der Amplituden, so ergeben sich große Amplituden für die Windgeschwindigkeit in Bodennähe

(Stuttgart-Zuffenhausen und Stuttgart Bad Cannstatt) und geringe Amplituden für die Windgeschwindigkeit im Überdachniveau der Station Stuttgart-Schwabenzentrum. Die geringe tägliche Amplitude kann für die Station Stuttgart-Schwabenzentrum ebenfalls mit dem geringen Reibungseinfluss erklärt werden.

In den folgenden drei Abbildungen wird für jede der drei Stationen der Zusammenhang zwischen der NO_x-, NO- und NO₂-Immissionskonzentration und der Windgeschwindigkeit veranschaulicht. Dazu wurden für jeden Werktag (Montag bis Freitag) Tagesmittelwerte der Immissionskonzentration und der Windgeschwindigkeit gebildet. Für den Umfang einer Klasse wurden mit 0,5 m/s kleinere Schritte als bei der Darstellung der relativen Häufigkeit gewählt. Die Tagesmittelwerte der Windgeschwindigkeit werden wie schon bei den vorhergehenden Betrachtungen in Klassen eingeteilt. Die dem Tag zugehörige Schadstoffkonzentration wird dann der entsprechenden Windgeschwindigkeitsklasse zugeordnet. Für jede Windgeschwindigkeitsklasse wurde in einem letzten Schritt wiederum ein Mittelwert aus den Tagesmittelwerten einer Klasse gebildet.

Die Abbildung 61 zeigt die Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit für die Station Stuttgart Bad Cannstatt. In Bad Cannstatt liegen die täglichen Windgeschwindigkeiten mit einer Häufigkeit von 85 % zwischen 0,5 und 2 m/s. Auf den ersten Blick kann sowohl für die NO_x-, die NO- als auch für die NO₂-Immissionskonzentration eine Abnahme des Tagesmittelwertes mit zunehmender Windgeschwindigkeit festgestellt werden. Bei Windgeschwindigkeiten von >2 bis 2,5 m/s nimmt die NO_x-Immissionskonzentration gegenüber Windgeschwindigkeiten von 0,5 bis 1 m/s um 31 % ab. Die NO-Immissionskonzentration wird innerhalb dieser Windgeschwindigkeitsbereiche um 37 % gesenkt werden.

Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen (Tagesmittelwert) von der Windgeschwindigkeit Stuttgart Bad Cannstatt 2004

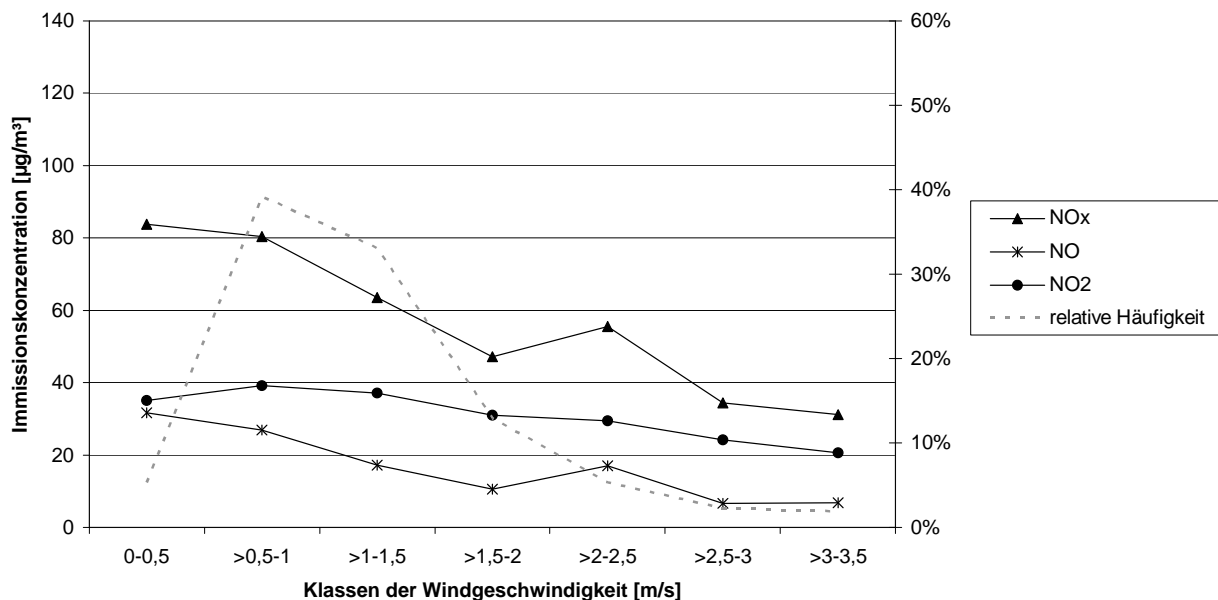


Abb.61 Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart Bad Cannstatt

An den Stationen Stuttgart-Schwabenzentrum und Stuttgart-Zuffenhausen kann für die Immissionskonzentrationen die gleiche Abhängigkeit von der Windgeschwindigkeit festgestellt werden wie in Bad Cannstatt (vgl. Abbildungen 62 und 63). Auch an diesen Station gilt: Mit zunehmender Windgeschwindigkeit sinkt die Immissionsbelastung der Stickoxide.

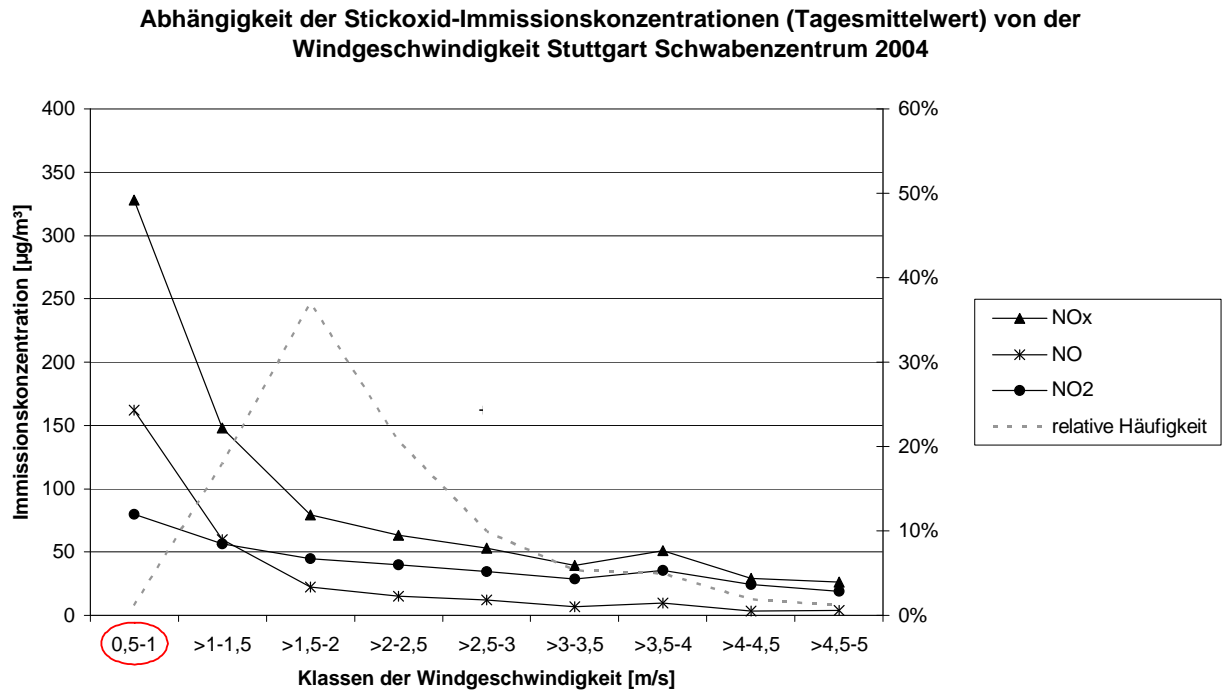


Abb.62 Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart-Schwabenzentrum

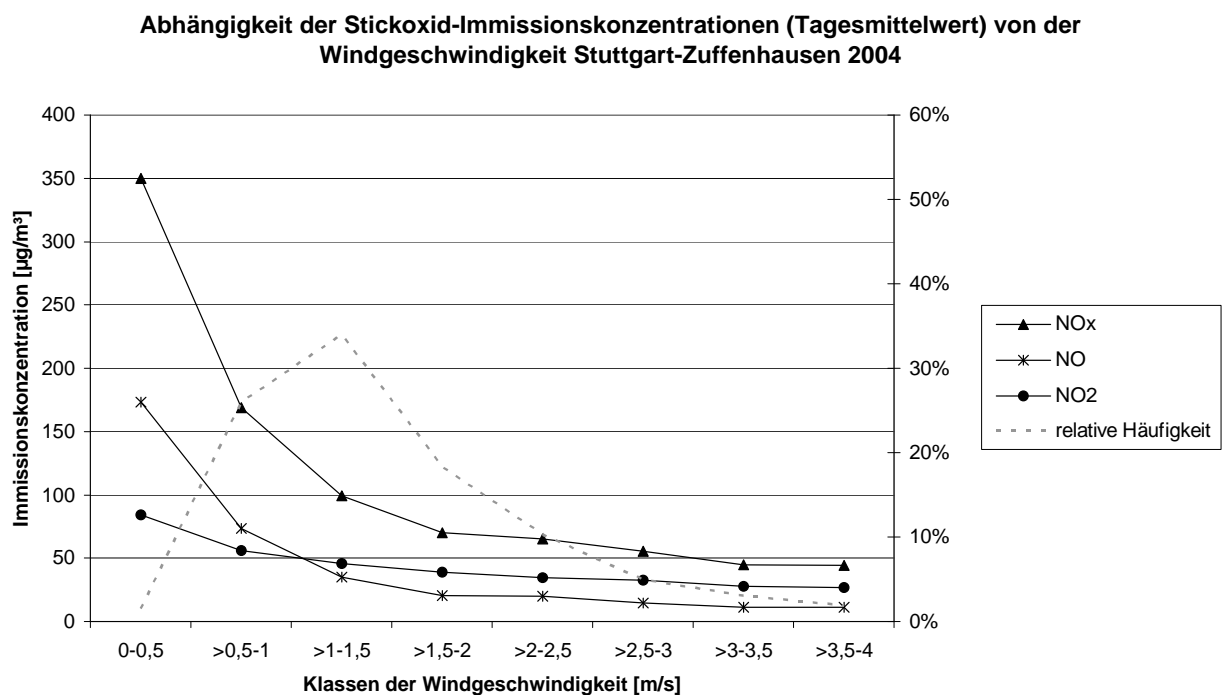


Abb.63 Abhängigkeit der Stickoxid-Tagesmittelwerte von der Windgeschwindigkeit Stuttgart-Zuffenhausen

Oke beschreibt diesen Zusammenhang folgendermaßen: „Je höher die Windgeschwindigkeit umso größer ist das Luftvolumen, welches an dem Emittenten pro Zeiteinheit vorbeizieht und umso kleiner ist die Konzentration eines Stoffes pro Volumeneinheit“. Die Verdünnung der

Schadstoffkonzentration durch eine vorwärts gerichtete Strömung ist abhängig von der Windgeschwindigkeit. Höhere Windgeschwindigkeiten bedeuten gleichfalls höhere Turbulenz, wobei mit der Turbulenz Fluktuationen in der Ausbreitungsrichtung wie auch in der Geschwindigkeit der Ausbreitung verbunden sind [Oke 1995].

Die Schwankungsbreiten bezüglich des mittleren Klassenwertes aus den Tagesmittelwerten einer Klasse sind sehr groß. Eine Erhöhung der Windgeschwindigkeit führt zu einer Reduktion der sehr hohen und hohen Tagesmittelwerte der jeweiligen Luftschadstoffkonzentration. Die Reduktion der hohen Tagesmittelwerte führt somit zur Reduktion des Klassenmittelwertes.

Die Tabelle 8 veranschaulicht die Abnahme der Stickoxid-Immissionskonzentrationen mit zunehmender Windgeschwindigkeit noch einmal in Zahlen. Die mittlere Abnahme der NO₂-Immissionskonzentration mit steigender Windgeschwindigkeit ist geringer als bei NO oder NO_x. Dies kann an allen drei Messstationen festgestellt werden.

Tab.8 Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit

| | Mittlerer Tagesmittelwert (Montag bis Freitag) | | | | | | | |
|---|---|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| | Wind | 0-0,5 | 0,5-1 | 1-1,5 | 1,5-2 | 2-2,5 | 2,5-3 | 3-3,5 |
| Stuttgart Zuffenhausen | NO _x | 350 | 169 | 99 | 70 | 65 | 55 | 45 |
| | NO | 173 | 73 | 35 | 20 | 20 | 15 | 11 |
| | NO ₂ | 84 | 56 | 46 | 39 | 35 | 33 | 28 |
| Stuttgart Bad Cannstatt | NO _x | 84 | 80 | 63 | 47 | 55 | 34 | 31 |
| | NO | 32 | 27 | 17 | 11 | 17 | 7 | 7 |
| | NO ₂ | 35 | 39 | 37 | 31 | 29 | 24 | 21 |
| Stuttgart Schwabenzentrum | NO _x | | 328 | 148 | 79 | 63 | 53 | 39 |
| | NO | | 162 | 60 | 22 | 15 | 12 | 7 |
| | NO ₂ | | 80 | 56 | 45 | 40 | 35 | 29 |
| Reduktion der mittleren Schadstoffbelastung in % (Montag bis Freitag) im Vergleich zu Tagen mit Kalme (Wind mit 0-0,5 m/s, für Schwabenzentrum Wind mit 0,5-1 m/s) | | | | | | | | |
| Stuttgart Zuffenhausen | NO _x | | -52 | -72 | -80 | -81 | -84 | -87 |
| | NO | | -58 | -80 | -88 | -88 | -91 | -94 |
| | NO ₂ | | -33 | -45 | -54 | -58 | -61 | -67 |
| Stuttgart Bad Cannstatt | NO _x | | -5 | -25 | -44 | -35 | -60 | -63 |
| | NO | | -16 | -47 | -66 | -47 | -78 | -78 |
| | NO ₂ | | +11 | +6 | -11 | -17 | -31 | -40 |
| Stuttgart Schwabenzentrum | NO _x | | | -55 | -76 | -81 | -84 | -88 |
| | NO | | | -63 | -86 | -91 | -93 | -96 |
| | NO ₂ | | | -30 | -44 | -50 | -56 | -64 |

Über alle Windgeschwindigkeitsklassen ist eine Abnahme der Luftschadstoffkonzentration feststellbar, wobei ab Windgeschwindigkeiten von > 2 m/s die Abnahme zur vorangehenden Klasse immer geringer ausfällt. Damit scheidet eine lineare Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit aus. Die Abhängigkeit kann durch eine potenzielle Kurve besser beschrieben werden. Eine Ausnahme bildet die Station Stuttgart Bad Cannstatt. Die Abhängigkeit von der Windgeschwindigkeit wird an dieser Station am besten durch eine Gerade (lineare Abhängigkeit) beschrieben.

Tab.9 Lineare und potenzielle Abhängigkeit der Stickoxid-Immissionskonzentrationen von der Windgeschwindigkeit 2004

| Luftmessstation | R ² (Stickoxid-Immissionskonzentration und Windgeschwindigkeit) | | |
|---------------------------|--|------|-----------------|
| | NO _x | NO | NO ₂ |
| Stuttgart Bad Cannstatt | 0,92 | 0,84 | 0,85 |
| Stuttgart Zuffenhausen | 0,99 | 0,99 | 0,99 |
| Stuttgart Schwabenzentrum | 0,97 | 0,96 | 0,91 |

Die Reduktion der Immissionskonzentration ist an der Station Stuttgart Bad Cannstatt bei gleichen Windgeschwindigkeitsklassen geringer als an der Station Stuttgart-Zuffenhausen oder Stuttgart-Schwabenzentrum. Je höher also die Station mit Stickoxiden belastet ist, umso größer ist der Einfluss der Windgeschwindigkeit bezüglich einer Reduktion der Immissionskonzentration. Bei hohen Windgeschwindigkeiten von > 2 m/s können für die Stationen Zuffenhausen und Schwabenzentrum Reduktionen der Stickoxid-Tagesmittelwerte von über 50 % bei NO₂ und ca. 90 % bei NO erreicht werden. Für die NO_x-Immissionskonzentration liegen die möglichen Reduktionen bei > 80 %.

7.3.2 Windrichtung

Neben der Windgeschwindigkeit bestimmt auch die Windrichtung die Höhe der Immissionskonzentration. Die Windrichtung gibt an, aus welcher Richtung die Luftmassen an die Station herantransportiert werden. Sie ist somit entscheidend für die Vorbelastung der Luft mit Schadstoffen. Beispielsweise ist die Vorbelastung der Luft bei Transport aus der Richtung einer Straße größer als die Vorbelastung der Luft aus einem nahe gelegenen Park.

Für die Stadt Stuttgart kann keine einheitliche Hauptwindrichtung für das gesamte Stadtgebiet angegeben werden (vgl. Abbildung 44). Das zeigen auch die Windrosen für die Stationen Stuttgart-Zuffenhausen und Stuttgart Bad Cannstatt (siehe Abbildung 64). An beiden Messstationen ist eine andere Hauptwindrichtung erkennbar. Während der Wind an der Messstation Stuttgart-Zuffenhausen hauptsächlich aus Südwest bis West weht, wird in Bad Cannstatt mit 15 %-iger Häufigkeit Südwind und mit ähnlich großer Wahrscheinlichkeit Nordwind registriert (Abbildung 64 oben rechts). In den unteren Abbildungen sind die mittleren Windgeschwindigkeiten nach den Windrichtungssektoren dargestellt. Sowohl an der Station Zuffenhausen als auch an der Station Bad Cannstatt sind die höchsten Windgeschwindigkeiten mit Wind aus südwestlicher bis nordwestlicher Richtung verbunden. Die höchsten mittleren Windgeschwindigkeiten von bis zu 2 m/s werden an beiden Stationen bei einer Windrichtung von 240° gemessen.

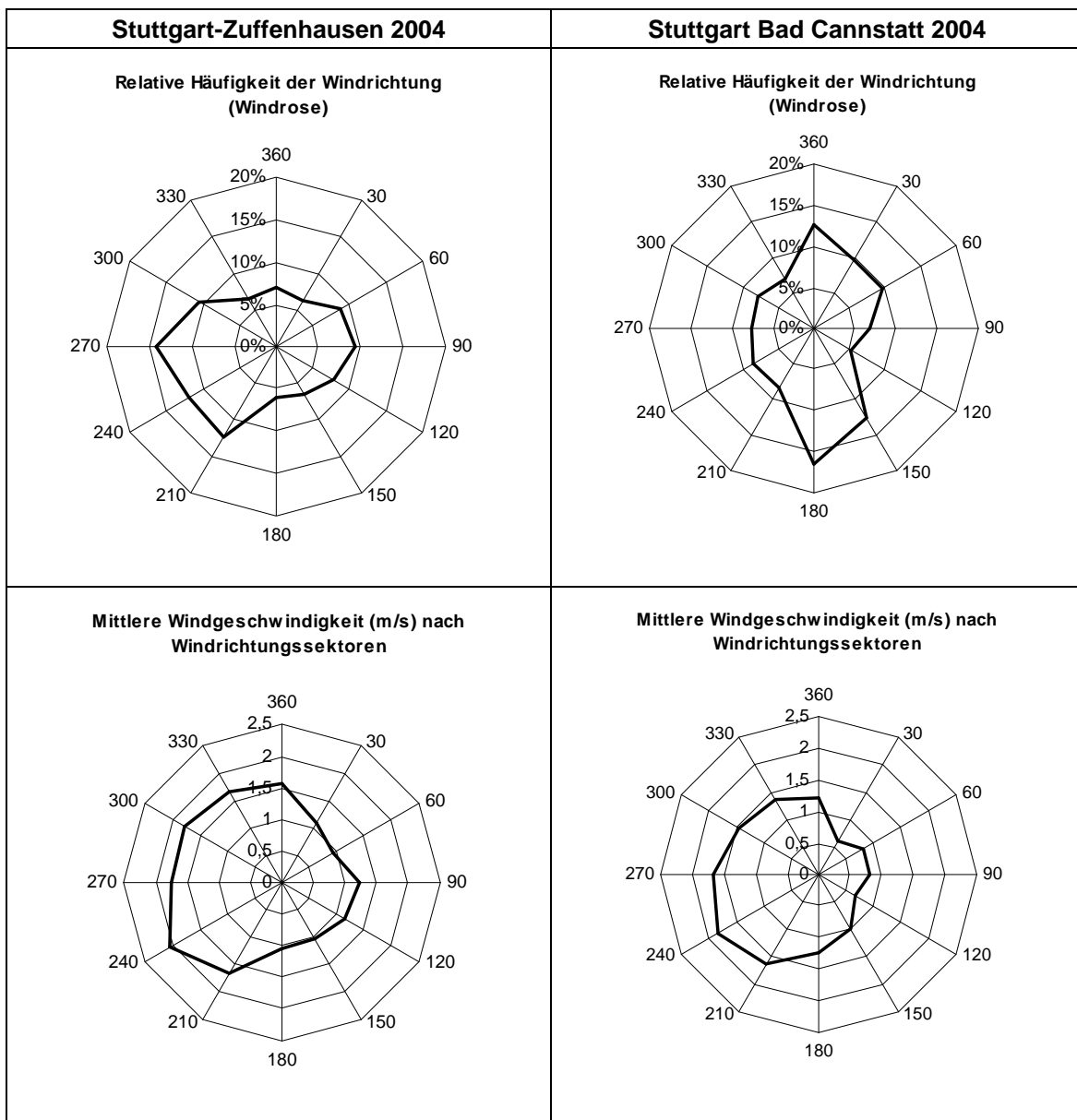


Abb.64 Windrosen Stuttgart Bad Cannstatt und Zuffenhausen 2004

Für die Immissionskonzentration an der Messstation ist nun die Vorbelastung der Luft aus den unterschiedlichen Windrichtungssektoren ausschlaggebend. Die windrichtungsabhängige Konzentrationsverteilung von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid ist für beide Stationen und das Jahr 2004 in Abbildung 65 veranschaulicht. An der Station Stuttgart-Zuffenhausen werden hohe NO-Immissionskonzentrationen bis 60 µg/m³ hauptsächlich bei Windrichtungen aus Nordost bis Südost gemessen. Gleiches gilt für den Luftschadstoff Stickstoffdioxid. Die höchsten NO₂-Immissionskonzentrationen werden bei Wind aus Nordost bis Süd registriert. Die windrichtungsabhängige Konzentrationsverteilung in Zuffenhausen lässt sich sehr gut mit der Lage der Messstation beschreiben. Die Messstation Zuffenhausen liegt im Kreuzungsbereich zweier Straßen. In nordwestlicher bis südöstlicher Richtung führt in einigen Metern Entfernung die stark befahrene Bundesstraße 10 vorbei. Bei Wind aus Nord und West werden die geringsten Immissionskonzentrationen gemessen. Aus dieser Richtung wird zwar vorbelastete Luft der Bundesstraße herangetragen. Jedoch ist dieser Wind mit einer hohen Windgeschwindigkeit verbunden, der bei der etwas weiteren Entfernung zu einer guten Verdünnung und damit Herabsetzung der Immissionskonzentration geführt hat. Bei dem weniger häufigen Ostwind werden die Abgase der Ludwigsburger Straße direkt an die

Messstelle herantransportiert. Die geringen Windgeschwindigkeiten bei Wind aus Ostrichtung sorgen für eine geringere Durchmischung und Verdünnung.

An der Station Bad Cannstatt werden die höchsten Luftbelastungen mit Stickoxiden bei Wind aus südlicher oder nördlicher Richtung gemessen. Die Hauptwindrichtung folgt ebenfalls dieser Nord-Süd-Achse, da von der Messstelle aus westlich gelegen die Gnesener Straße verläuft. Die hohen Immissionskonzentrationen treten somit immer dann auf, wenn stark belastete Luft von der Gnesener Straße an die Messstelle herangeführt wird.

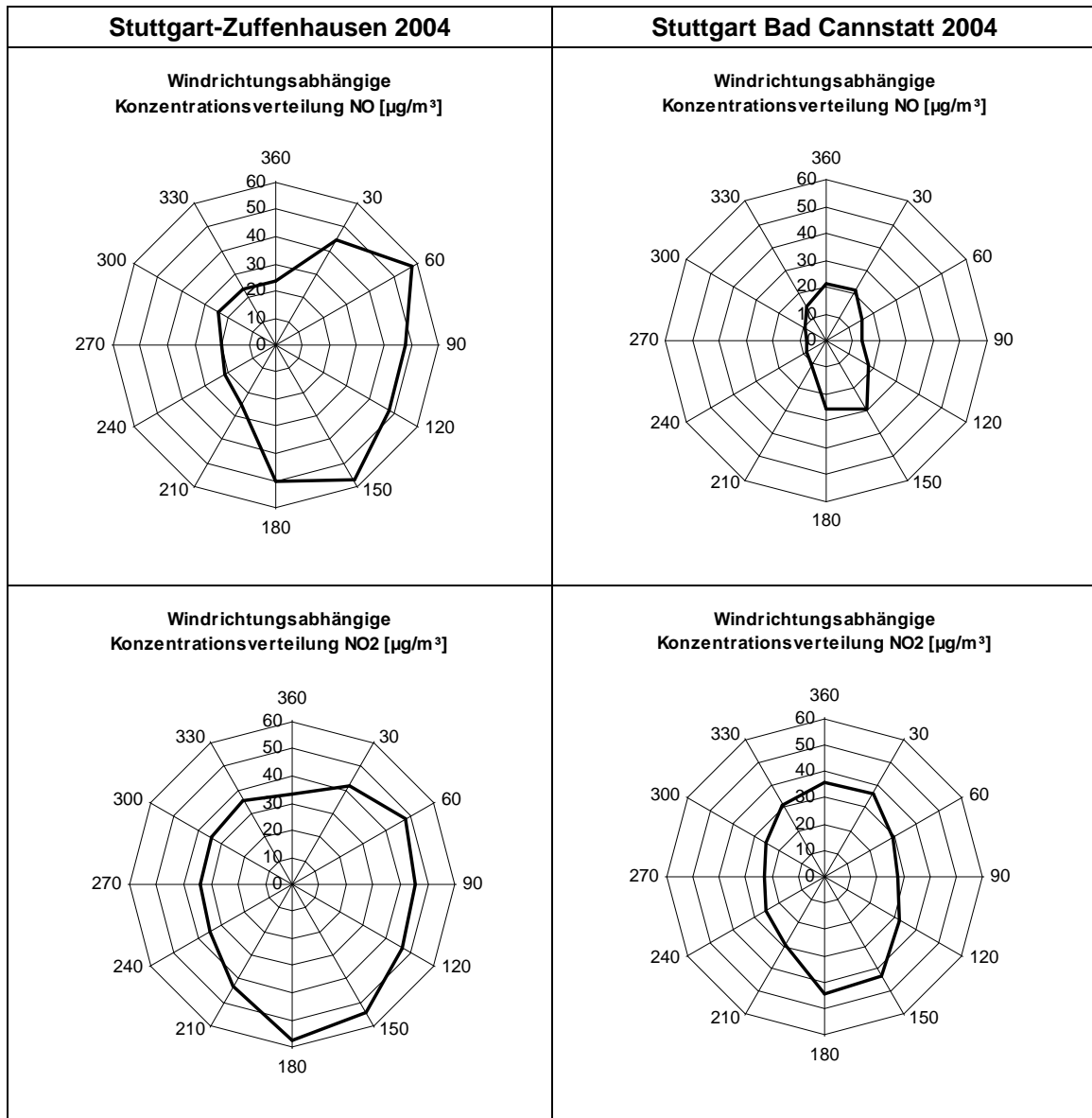


Abb.65 Schadstoffwindrosen NO und NO₂ Stuttgart Bad Cannstatt und Zuffenhausen 2004

7.4 Zusammenfassung

Aus den Untersuchungen im Kapitel 7 lassen sich allgemein gültige Aussagen bezüglich der Luftbelastung mit Stickoxiden unter bestimmten Ausbreitungsbedingungen formulieren.

- Betrachten wir die Wirkung der meteorologischen Parameter, die die Ausbreitungsbedingungen der Luftschadstoffe charakterisieren, so fällt auf, dass gute bis sehr gute Ausbreitungsbedingungen wesentlich zur Reduktion der Stickoxide im Stadtgebiet Stuttgart beitragen. Ein wichtiger Parameter zur Charakterisierung der vertikalen Ausbreitungsbedingungen ist die Mischungsschichthöhe. Sie begrenzt das Volumen, auf welches sich die emittierten Luftschadstoffe maximal ausbreiten können. Zwischen Mischungsschichthöhe und Immissionskonzentration wurde folgender Zusammenhang gefunden: Je höher die tägliche Mischungsschichthöhe umso geringer ist die NO_x- und NO-Immissionskonzentration (Tagesmittelwert) bei gleichem täglichem Ausstoß an Stickoxid-Emissionen. Für die NO₂-Immissionskonzentration kann eine gegenüber NO_x und NO geringere Reduktion mit zunehmender Mischungsschichthöhe für die zwei Stationen Zuffenhausen und Bad Cannstatt festgestellt werden. Die hoch belasteten Verkehrsmessstationen zeigen demgegenüber einen leichten Anstieg oder eine Konstanz der NO₂-Immissionskonzentration mit zunehmender Mischungsschichthöhe. Dies kann mit der vermehrten Einmischung von Ozon aus den höheren Luftschichten begründet werden. In der Folge kommt es an den Verkehrsmessstationen zur Bildung von NO₂.
- Neben den vertikalen Ausbreitungsbedingungen bestimmt der Wind, insbesondere die Windgeschwindigkeit, die Immissionskonzentration der Stickoxide an den Messstellen. Dabei ist der Wind wesentlich wirkungsvoller bezüglich der Reduktion der städtischen Luftbelastung. Der Wind transportiert, vermischt und verdünnt die Luftschadstoffe durch turbulente Diffusion. In diesem Zusammenhang gilt: Je höher die Windgeschwindigkeit, desto geringer ist die an den Stationen gemessene Belastung mit Stickoxiden (NO_x, NO und NO₂) bei ansonsten gleichem Emissionsausstoß. Hohe Reduktionen der Luftbelastung werden bereits bei geringer Erhöhung der Windgeschwindigkeit festgestellt. Bei Windgeschwindigkeiten über 2 m/s können die Stickoxide gegenüber windschwachen Tagen um bis zu 50 bis 80 % gesenkt werden.
- In Stuttgart werden schlechte Ausbreitungs- und Transportbedingungen vor allem im Winterhalbjahr beobachtet. Neben einer sehr stabilen Schichtung und geringen Mischungsschichthöhen treten auch vermehrt Schwachwindsituationen vor allem während des Tages auf. Unter diesen Bedingungen reichern sich am Boden emittierte Luftschadstoffe an und führen an den Verkehrsmessstellen und an der Hintergrundmessstation zu hohen Luftbelastungen. In dieser Konstellation kann es zur Überschreitung der in der 22. BImSchV geforderten Grenzwerte (1h-Grenzwert) kommen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die vorherrschende Witterung sowohl eine Erhöhung als auch eine Verringerung der Immissionskonzentration bei gleicher Emissionsrate bewirken kann. Vor allem in den Wintermonaten sind die hohen Luftbelastungen in Städten auf die schlechten Ausbreitungs- und Transportbedingungen zurückzuführen. Da das Wettergeschehen nicht immer zu einer gewünschten Entlastung der städtischen Schadstoffbelastung beitragen kann, ist es unerlässlich die begonnen Maßnahmen zur Emissionsreduktion fortzuführen und auszuweiten. Maßnahmen zur Immissionsreduktion in den Städten und Kommunen könnten in Zukunft besser den jahreszeitabhängigen Transport- und Ausbreitungsbedingungen angepasst werden. Bemühungen dieser Art wurden hinsichtlich der Reduktion der Feinstaubbelastung bereits in einigen Städten und Kommunen Österreichs praktiziert. In den Städten Graz und Klagenfurt wurden finanzielle Anreize zur Nutzung des Öffentlichen Personennahverkehrs (ÖPNV) im Winterhalbjahr 2005 (verbilligte Verbundtickets und kostenlose SMS-Tickets) erstmals erprobt.

8 Diskussion und Ausblick

Zum Abschluss soll die Entwicklung der Abgasemissionen des Straßenverkehrs in Bezug auf NO_x und NO_2 betrachtet werden. Einiges deutet daraufhin, dass sich unterschiedliche Entwicklungstendenzen bezüglich der Stickoxidemissionen teilweise auch entgegen den Prognosen vollzogen haben. Dabei soll kurz diskutiert werden, ob mögliche Veränderungen im Verkehrssektor die steigende NO_2 -Immissionskonzentration an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz erklären können. Zuallerletzt wird diskutiert wie zukünftige Maßnahmen zur Verbesserung der Luftreinhalte bezüglich Stickstoffdioxid, auf der Grundlage der Ergebnisse dieser Diplomarbeit, aussehen könnten.

Neuste Ergebnisse und Studien bezüglich der Emissionsentwicklung

Für die Beurteilung der Wirkung getroffener gesetzgeberischer Maßnahmen zur Begrenzung der Kfz-Emissionen braucht der Gesetzgeber detaillierte Angaben zur Schadstoffmenge, die ein Auto je nach Verkehrssituation, Motorenkonzept und Alter ausstößt. Um die Abgasbelastungen des Straßenverkehrs für verschiedene Schadstoffe berechnen zu können, benötigt man so genannte Emissionsfaktoren.

Zur Ermittlung der durchschnittlichen Emissionsfaktoren wird eine Differenzierung des Straßenverkehrs nach Fahrzeugschichten benötigt, da nicht für jedes am Straßenverkehr teilnehmende Fahrzeug Emissionen gemessen werden können. Eine Fahrzeugschicht beschreibt dabei eine Gruppe von Fahrzeugen mit vergleichbarem Emissionsverhalten. Es wird beispielsweise zwischen Antriebsarten (Diesel, Otto etc.), Abgasgesetzgebungsstufen (z.B. Euro 2) und Hubraumklassen (z.B. < 1,4 l) unterschieden [IFEU 2004].

Zur Ermittlung der Emissionsfaktoren werden aufwendige Abgasuntersuchungen durchgeführt. Die gesammelten Emissionsdaten wurden erstmals 1995 in einer abgestimmten Datenbank für Emissionsfaktoren, dem so genannten „Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs“ (HBEFA) Version 1.1, vom Umweltbundesamt herausgegeben. Seitdem wurde das Handbuch in zwei weiteren Versionen (Version 1.2 aus dem Jahr 1999 und Version 2.1 aus dem Jahr 2004) den neuen Entwicklungen in der Abgasgesetzgebung und Emissionsmessung angepasst. Dabei ergaben sich für Pkw und Lkw in der Version 2.1 eine Reihe von Veränderungen gegenüber den älteren Versionen des Handbuchs.

Die Emissionsfaktoren für Stickoxide – bis zu Fahrzeugen der Grenzwertstufe Euro 1 – sind in beiden Handbuchversionen nahezu identisch. Für diese Fahrzeuge lagen die ja umfangreichen Messungen schon zum Entstehungszeitpunkt des Handbuchs 1.2 vor [IFEU 2004]. Für Dieselfahrzeuge der Grenzwertstufe Euro 2, 3 und 4 kam es zu einer Erhöhung der NO_x -Emissionsfaktoren um 25 bis 36% gegenüber dem Handbuch Version 1.2. Diese Veränderung konnte durch die Berücksichtigung von Messungen gegenüber der bisherigen Abschätzung von Minderungsfaktoren erkannt werden. Bei den Annahmen des Handbuchs 2.1 würden die NO_x -Emissionen der Dieselfahrzeuge Euro 2 sogar über dem Ausstoß an Stickoxiden bei Dieselfahrzeugen der Eurostufe 1 liegen. Erst ab der Eurostufe 3 wäre demnach eine Reduktion der NO_x -Emissionen gegenüber der Eurostufe 1 erkennbar. Neben diesen fahrzeugspezifischen Änderungen gibt es in der neusten Handbuchversion 2.1 Änderungen bezüglich der Altersverteilung und der Fahrleistungsanteile bestimmter Fahrzeugschichten [IFEU 2004].

Um die zukünftige Entwicklung der NO_2 -Immissionen besser vorhersagen zu können, ist es notwendig neben der Entwicklung der NO_x -Emissionen auch die Entwicklung der NO_2 -Emissionen zu kennen. Bisher gab es jedoch nur vereinzelt Prüfstandsmessungen die NO und NO_2 getrennt im Abgas erfasst haben. Gesicherte Informationen über den durchschnittlichen NO_2 -Anteil im Abgas und daraus abgeleitete Emissionsfaktoren der einzelnen Fahrzeugschichten gibt es nicht. Das Institut für Energie- und Umweltforschung (IFEU) in Heidelberg hat in einer Kurzstudie den aktuellen Stand des Wissens zum Anteil des NO_2 an den Stickoxidemissionen im Abgas zusammengestellt.

Bis vor einigen Jahren ging die überwiegende Mehrheit der Fachleute von einem sehr geringen Anteil von ca. 5 % Stickstoffdioxid an den Stickoxidemissionen der Fahrzeuge aus [siehe IVU

2005 und Carslaw 2004]. Neuere Studien wie die des IFEU Institutes zeigen ein davon abweichendes Bild. So konnten aus dieser Studie erste allgemeine Aussagen abgeleitet werden.

- Diesel-Pkw haben für vergleichbare Fahrzyklen und Messbedingungen einen höheren Anteil von Stickstoffdioxid an den NO_x -Emissionen als Otto-Pkw. Die Spannweite liegt für den NO_2 -Anteil der Diesel-Pkw zwischen 22 und 75 %. Die Emissionen für Innerortsfahrzyklen liegen niedriger als für den Außerortsbereich bzw. für gemischte Zyklen
- Die Bandbreite des NO_2/NO_x -Verhältnisses liegt bei Otto-Pkw höher als bei Diesel-Pkw
- Otto-Pkw können in verschiedenen Fahrsituationen Anteile von NO_2 an den Stickoxiden von über 20% haben [IFEU 2004b]

Als mögliche Ursache für die veränderten NO_2 -Anteile im Abgas der Diesel- aber auch Otto-Pkw werden insbesondere Emissionsminderungstechniken zur Abgasmachbehandlung (z.B. Oxidationskatalysator bei Diesel-Pkw, CRT-Filter bei Bussen) vermutet. Die Kalifornische Umweltbehörde CARB hat unter anderem zu diesem Sachverhalt ein Forschungsprojekt zur Emissionsmessung bei Bussen ins Leben gerufen. Ziel war es detaillierte Emissionsdaten der in Kalifornien in Verkehr befindlichen Busse bezüglich verschiedener Fahrzyklen und Emissionsminderungstechniken zu erhalten. Untersucht wurden Erdgasbetriebene und Dieseltriebene Busse. Unter den Dieseltriebenen Bussen wurden zwei Busse gleicher Bauart und Motorausstattung aber unterschiedlicher Emissionsminderungstechnik getestet. Ein Bus wurde mit einem handelsüblichen Oxidationskatalysator ausgestattet der andere wurde mit einem CRT-Filter zur Reduktion der Partikel und Feinpartikel ausgerüstet. Bei einem NO_x -Ausstoß auf gleich hohem Niveau konnte für den mit einem CRT-Filter ausgerüsteten Bus ein erhöhtes NO_2/NO_x -Verhältnis im Abgas für alle Fahrzyklen festgestellt werden. Dabei lag das NO_2/NO_x -Verhältnis bei annähernd 40 bis 50 %. Ausführlichere Informationen zu dieser Studie finden Sie bei Ayala 2001 und Ayala 2002.

Die Entwicklung der NO_2 -Immissionskonzentration an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz konnte nicht ausschließlich der steigenden Ozon-Immissionskonzentration zugeordnet werden. Vielmehr zeichneten sich Veränderungen im Tages-, Wochen- und Jahrgang ab, die auf einen erhöhten Einfluss des Verkehrssektors schließen lassen. Die Luftgütemessstation Stuttgart Arnulf-Klett-Platz liegt direkt an einer vierspurigen beidseitig befahrenen Straße sowie in direkter Nähe zu einer Bushaltestelle. Die Recherchen ergaben, dass für die Stadt Stuttgart keine abweichende Entwicklung der Fahrleistung oder Zusammensetzung der Fahrzeugflotte gegenüber Deutschland oder Baden-Württemberg angenommen werden kann. Hinsichtlich des Verkehrssektors liegt die Aufmerksamkeit jetzt beim Öffentlichen Personennahverkehr, insbesondere bei der Entwicklung der Stuttgarter Busflotte. Nach Auskunft der Stuttgarter Straßenbahn AG (SSB AG) begann man 1996 mit der Nachrüstung von Oxidationskatalysatoren in Bussen mit der Grenzwertstufe Euro 2. Ab 1998 wurden auch ältere Busse, der Eurostufe 1 mit Oxidationskatalysatoren ausgestattet. Partikelfilter kamen seit 1996 vor allem in sehr alten Bussen der Eurostufe 1 zum Einsatz. 1999 wurden erstmals 2 Busse mit CRT-Filter nachgerüstet. Danach stieg die Zahl der nachgerüsteten Busse mit CRT-Filter kontinuierlich auf 99 Busse im Jahr 2005 an. Für den Einsatz bestimmter schadstoffarmer Busse auf festgelegten Routen gibt es nach Auskunft der SSB AG keine speziellen Regelungen. So verkehren besonders schadstoffarme Busse sowohl in der Stuttgarter Innenstadt als auch in den Randlagen und umgebenden Siedlungen. Für die Haltestelle Arnulf-Klett-Platz gibt es somit keine eindeutigen Angaben ob ausschließlich oder überwiegend Busse mit CRT-Filter an dieser Haltestelle verkehren. Sicher ist, dass die Haltestelle bei ihrer geringen Entfernung zur Luftgütemessstation und den längeren Standzeiten der Busse mit laufendem Motor einen signifikanten Einfluss hat. Für einen möglichen Zusammenhang zwischen dem Anstieg der mit CRT-Filter nachgerüsteten Busse und dem Anstieg der NO_2 -Immissionskonzentration an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz spricht der Zeitpunkt. So wurde ein Anstieg der NO_2 -Immissionskonzentration an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz

erstmalig 2001/02 festgestellt, genau zu dem Zeitpunkt als die Nachrüstung von Dieselmotoren mit CRT-Filter in Stuttgart weiter vorangetrieben wurde. Jedoch fehlen für diese Annahme noch die notwendigen Daten und Untersuchungen.

Modellierung der NO₂-Immissionskonzentration

In den letzten zwei Jahren haben sich mehrere nationale und internationale Forschungsgruppen mit der Modellierung der NO₂-Immissionskonzentration befasst. Für drei aktuelle Studien (IVU Umwelt GmbH, AVISO und Carslaw) werden die Modellergebnisse, im Hinblick auf veränderte NO₂/NO_x-Emissionen und ihren Einfluss auf die NO₂-Immissionskonzentration, kurz dargestellt.

Die IVU Umwelt GmbH wählte für Ihre Modellrechnungen eine Kombination zweier Modelle. Erstens das RCG Modell für die Abschätzung der Vorbelastung (Überdachniveau) und das CPB Modell für die Straßenraum-Immissionen. Mit Hilfe beider Modelle wurden die Luftschadstoff-Immissionen (Jahresmittelwert) der Friedberger Landstraße in Frankfurt am Main simuliert. Der Basislauf wurde mit 8,66% primärer NO₂-Emission durchgeführt. In den zu untersuchenden Szenarien wurde bei unveränderter Ozonkonzentration und gleich bleibender NO_x Konzentration aus dem Verkehr der Prozentsatz an NO₂ Direktmissionen variiert. Die an der Friedberger Landstraße gemessene NO₂-Konzentration konnte bei einem NO₂-Anteil von 15 % an den gesamten NO_x-Emissionen modelliert werden.

Die Modellierungen von Aviso beziehen sich auf die B10 in Karlsruhe. In der Studie wurde die Wirkung einer Veränderung des primären NO₂-Anteils an den Kfz-Abgasen auf die berechnete Tagesmittelwertkonzentration von NO₂ untersucht. Weiterhin wurde der Einfluss einer Änderung der Ozonkonzentration im Hintergrund auf die chemische NO₂-Bildung untersucht. Beide Änderungen haben einen signifikanten Einfluss auf die NO₂-Konzentration, wie mit den modellierten Daten nachgewiesen wurde. Der gemessene Tagesmittelwert von 97,5 µg/m³ konnte erst bei einer 5fachen primären NO₂-Emission (24 %) modelliert werden.

Die Forschungsgruppe um Carslaw und Beevers modellierte die Wirkung veränderter primärer NO₂-Emissionen auf den NO₂-Jahresmittelwert an der Marylebone road in London. Um für diese Station den Einfluss primärer NO₂-Emissionen auf die NO₂-Immissionskonzentration abzuschätzen, wurden verschiedene Hintergrundmessstationen in London ausgewertet. Der Jahresmittelwert von 97,2 µg/m³ konnte für die Marylebone road bei einem Anteil der primären NO₂-Emissionen von 13 % bei Dieselfahrzeugen und 0,6 % bei Benziner modelliert werden.

Tab 10 Ergebnisse der Modellstudien zur Berechnung der NO₂-Immissionskonzentration

| Station | NO ₂ -Direktemission [%] | NO ₂ -Direktemission [µg/m ³] | NO ₂ Hintergrund und Ozonchemie [µg/m ³] | NO ₂ -Immissionskonzentration [µg/m ³] |
|---|-------------------------------------|--|---|---|
| Frankfurt, Friedberger Landstraße (IVU Umwelt GmbH) | 5% | 2,96 | 56,24 | 59,2 |
| | 15% | 10,5 | 59,5 | 70 (gemessen) |
| London, Marylebone road (Carslaw und Beevers) | 5% Diesel und 5% Benzin | 15,1 | 65,7 | 80,8 |
| | 12,7% Diesel und 0,6% Benzin | 26,2 | 63,1 | 89,3 (gemessen) |
| Karlsruhe, B10 (Aviso) | 5% | 3,75 | 71,25 | 75 |
| | 24% | 23,4 | 74,1 | 97,5 (gemessen) |

Die drei Studien stimmen somit in ihrem Ergebnis überein, dass die an den Luftgütemessstellen beobachteten NO₂-Immissionskonzentrationen nur mit einem deutlich höheren NO₂-Anteil (> 5 %) im Abgas modellierbar sind. Dabei schwankt der Anteil der primären NO₂-Emissionen zwischen 15 bis 24 %.

Berücksichtigung der Ergebnisse bei der Luftreinhalteplanung

Die UMEG hat in ihrem Bericht „Ursachenanalyse der NO₂-Luftbelastung im Rahmen der Luftreinhalteplanung in Baden-Württemberg“ den Straßenverkehr als Hauptverursacher der lokalen und regionalen NO₂-Belastung eingestuft. Die hohe bis sehr hohe NO₂-Immissionskonzentration ist an den Verkehrsmessstationen fast ausschließlich auf den lokalen Beitrag zurückzuführen. Stickoxidquellen aus Industrie und Gewerbe haben an der lokalen Belastung einen vernachlässigbaren Anteil. Am NO₂-Hintergrundniveau hat der Straßenverkehr einen Anteil von ca. 20 bis 25 %. Deshalb sollte die Luftreinhalteplanung für den Luftschadstoff NO₂ noch stärker auf Maßnahmen im Verkehrssektor setzen.

Die Entwicklung der NO₂-Immissionskonzentration an den Verkehrsmessstellen zeigt, dass die Überschreitung des Jahresmittelgrenzwertes zu den dringend zu lösenden Problemen der Luftreinhaltung gehört. Während ein leicht sinkender Trend die Möglichkeit zur Einhaltung des gesetzlich vorgeschriebenen NO₂-Jahresmittelgrenzwertes ab dem Jahr 2010 noch offen lässt, besteht für die Straßenstationen in Stuttgart und Karlsruhe kaum eine realistische Chance den Grenzwert ab 2010 einzuhalten.

Das Beispiel Mannheim zeigt sehr deutlich, welche Minderungen der Luftschadstoffbelastung insbesondere der NO₂-Immissionskonzentration bei Maßnahmen zur Verkehrsreduktion möglich sind. Der drastische Rückgang der täglichen Verkehrsstärke bewirkte gleichfalls einen Rückgang der lokalen NO₂-Zusatzbelastung, so dass der NO₂-Jahresmittelwert 2004 nur knapp den ab 2010 einzuhaltenden NO₂-Grenzwert überschritten hat. Verkehrsregulierende Maßnahmen wie City-Maut, Fahrverbote, Tempolimit und Sperrungen ganzer Straßen könnten für einzelne städtische Bereiche eine Verkehrsberuhigung bringen und zu einer Reduktion der Luftbelastung führen. Diese Maßnahmen sind jedoch kritisch zu bewerten, da sie für andere Regionen oder Stadtteile meist mit einem Anstieg des Verkehrsaufkommens und damit der Schadstoffbelastung verbunden sind. Es findet somit nur eine Verlagerung der Luftbelastung aber keine wirkliche Entlastung statt.

Kritisch für die Einhaltung des Grenzwertes erscheinen vor allem das steigende Verkehrsaufkommen und der wachsende Anteil von Dieselfahrzeugen an der Fahrzeugflotte. Diese nicht unbedeutenden Änderungen lassen den für die Zukunft prognostizierten Rückgang der Stickoxid-Emissionen wesentlich geringer ausfallen als bisher erwartet. Um dem entgegen zu wirken sollten technische Maßnahmen zur Verbesserung der Abgasnachbehandlung, finanzielle Anreize zur Nachrüstung alter Fahrzeuge mit Katalysatoren und die Förderung emissionsarmer Antriebsarten und des ÖPNV im Vordergrund stehen. Diese Maßnahmen sind, auch bei steigendem Verkehrsaufkommen, prinzipiell geeignet zur Verbesserung der Luftqualität beizutragen.

In diesem Zusammenhang soll noch einmal die Verwendung von Russpartikelfiltern, insbesondere CRT-Filtern, im Zusammenhang mit NO₂ angesprochen werden. Generell sollte auch bei einer möglichen Erhöhung des NO₂-Anteils im Abgas durch den Einbau eines Partikelfilters nicht auf eine Verwendung dieser Filter verzichtet werden. Partikelfilter vermindern die im Abgasstrom enthaltenen Partikel, Stäube und Russteilchen um 90 %. Damit tragen sie ganz wesentlich zur Verminderung der Feinstaubbelastung bei. Eine Diskussion über weitere Abgasnachbehandlungssysteme, insbesondere zur Reduktion der Stickoxid-Emissionen, sollte jedoch vorangebracht werden.

Neue technische Konzepte zu alternativen Treibstoffen und Antriebstechniken könnten auf lange Sicht nicht nur eine größere Unabhängigkeit vom Öl- und Gasmarkt bringen sondern auch eine Verbesserung der Luftqualität. Daneben könnten der Ausbau und die Förderung des ÖPNV, bei weiter ansteigenden Ölpreisen, zu einer vermehrten privaten oder beruflichen Nutzung des Streckennetzes führen. All diese Maßnahmen bewirken nicht nur eine Reduktion der Luftbelastung mit Stickoxiden und Feinstaub, auch die Luftbelastung durch den sekundären Luftschadstoff Ozon kann mit Hilfe dieser Maßnahmen vermindert werden.

Literaturverzeichnis

- Atkinson R. et al. (2004): Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry: Volume I – gas phase reactions of O_x, HO_x, NO_x and SO_x species. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **4**, 1461–1738.
- Aviso (2005): Modellrechnungen und Auswertungen zu Messungen an der B10 Karlsruhe. Endbericht, Aachen.
- Ayala A. et al. (2001): ARB's Study of Emissions from "Late model" Diesel and CNG heavy-duty Transit Buses. Presentation to South Coast Air Quality Management District, URL: http://www.eere.energy.gov/vehiclesandfuels/pdfs/deer_2002/session5/2002_deer_ayala.pdf, 14.2.2006.
- Ayala A. et al. (2002): Diesel and CNG Heavy-duty Transit Bus Emissions over Multiple Driving Schedules: Regulated Pollutants and Project Overview. URL: <http://www.arb.ca.gov/research/cng-diesel/sae02.pdf>. 14.2.2006
- Beevers S.D. und Carslaw D.C. (2005): The impact of congestion charging on vehicle emissions in London. *Atmospheric Environment*, **39** (1), 1-5.
- Bendix J. (2004): *Geländeklimatologie: Studienbücher zur Geographie*. Gebrüder Bornträger Verlagsbuchhandlung, Berlin.
- Bösinger R., Bächlin W. und Haupt S. (2005): Aktualisierung des NO-NO₂-Umwandlungsmodells für die Anwendung bei Immissionsprognosen für bodennahe Stickoxidfreisetzung. Ingenieurbüro Lohmeyer, Karlsruhe.
- Brasseur G.P. et al. (2003): *Atmospheric Chemistry in a Changing World*. Springer Verlag, Berlin.
- Carslaw D.C. (2005): Evidence of an increasing NO₂/NO_x emissions ratio from road traffic emissions. *Atmospheric Environment*, **39** (26), 4793 - 4802.
- Carslaw D.C. und Beevers S.D (2005): Development of an urban inventory for road transport emissions of NO₂ and comparison with estimates derived from ambient measurements. *Atmospheric Environment*, **39** (11), 2049-2059.
- Carslaw D.C. und Beevers S.D (2005): Estimations of road vehicle primary NO₂ exhaust emission fractions using monitoring data in London. *Atmospheric Environment*, **39** (1), 167 - 177.
- Carslaw D.C. und Beevers S.D (2004): New Directions: Should road vehicle emissions legislation consider primary NO₂. *Atmospheric Environment*, **38** (8), 1233 - 1234.
- Crutzen P.J. (1998): How the atmosphere keeps itself clean and how this is affected by human activities. *Pure & Applied Chemistry*, **70** (7), 1319-1326.
- Guderian R. (2000): *Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie - Band 1A: Atmosphäre*. Springer Verlag, Berlin.
- Folker M. (2001): Bestimmung der Reaktionswahrscheinlichkeit von N₂O₅ an troposphärisch relevanten Aerosolen. Inaugural-Dissertation der mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität zu Köln, Köln.
- Helbig A. et al. (1999): *Stadtklima und Luftreinhaltung*. Springer Verlag, 2. Auflage, Berlin.
- Holst T, Rost J. und Mayer H. (2005): Analyse meteorologischer Einflussgrößen auf regionale und lokale Muster von Schwebstaub (PM₁₀) und Stickstoffoxid-Immissionen (NO, NO₂). Abschlussbericht, Meteorologisches Institut der Universität Freiburg, Freiburg.

- IFEU (2004): Auswirkungen neuer Erkenntnisse auf die Berechnungen der Partikel- und NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs. Kurzstudie im Auftrag des Ministeriums für Umwelt und Verkehr des Landes Baden-Württembergs.
- IFEU (2004b): Screening aktueller Kfz-Abgasmessungen im Hinblick auf den Anteil von NO₂ an den NO_x-Emissionen. Kurzstudie im Auftrag des Ministeriums für Umwelt und Verkehr des Landes Baden-Württembergs.
- IVU (2005): Ursachenanalyse für den Anstieg der NO₂-Immissionen an verkehrsnahen Messstellen. Abschlussbericht, Sexau.
- Jacobsen M. Z. (2002): Atmospheric Pollution History, Science and Regulation, University Press Cambridge.
- Konrad S. (2000): Untersuchungen zur Radikalchemie in der Abluffahne von Berlin – ein Beitrag zum Feldexperiment BERLIOZ. Dissertation, Fachbereich 9 Naturwissenschaften der Bergischen Universität Gesamthochschule Wuppertal, Wuppertal.
- LFU Bayern (2004): Bodennahes Ozon. URL: http://www.bayern.de/lfu/umwberat/data/klima/ozon_2004.pdf, 8.12.2005.
- Liljequist G.H. (1979): Allgemeine Meteorologie. Verlag Friedrich Vieweg und Sohn, 2. Auflage, Braunschweig, Wiebaden.
- Mayer H. und Koppe C. (2001) Langzeitentwicklung von Luftverunreinigungen an ausgewählten Luftmessstationen in Baden-Württemberg: Teil II Trendanalysen für NO, NO₂ und NO/NO₂ im Zeitraum 1980 bis 2000. URL: <http://www.mif.uni-freiburg.de/berichte/AbschlussberichtNONO2 BadWue.pdf>, 06.02.2006.
- Oke T.R. (1995): Boundary Layer Climates. Taylor and Francis, 2. Auflage, London.
- Platt U. et al. (2003/04): Physik der Atmosphäre II. Script des Institutes für Umweltphysik, Universität Heidelberg. URL: <http://www.iup.uni-heidelberg.de/institut/studium/lehre/Atmosphaerenphysik/script2/intro.pdf>, 05.12.2005.
- Rabl P. & Scholz W. (2005): Wechselbeziehungen zwischen Stickstoffoxid- und Ozon-Immissionen – Datenanalysen aus Baden-Württemberg und Bayern 1990-2003. Immissionsschutz, 1.
- Schurath U. (1987): Chemical Processes in the Atmosphere. In: Sandroni S. Regional and long-range Transport of Air Pollution. Published for the commission of the European Communities, Elsevier, Amsterdam.
- Seinfeld J.H. und Pandis S.N (1998): Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. John Wiley and Sons, Inc. New York.
- Sentuc F.N. (2004): Der Einfluss lokaler Verkehrsemissionen auf die Immissionssituation im Großraum Köln: Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Köln.
- Solberg S. et al. (2004) EMEP Assessment Report: Chapter 6: Ozone. URL: <http://www.emep.int/>, 23.08.2005.
- Spangl W et al. (2005): Fachgrundlagen für eine Statuserhebung zur NO₂-Belastung an der Messstelle Wien-Hietzinger Kai, Publikation des Umweltbundesamtes im Auftrag der Wiener Landesregierung. URL: <http://www.wien.gv.at/umweltschutz/pool/pdf/hietzing.pdf>, 24.1.2006
- UMEG (2005): Ursachenanalyse für NO₂ im Rahmen der Erarbeitung von Luftreihalte- und Aktionsplänen in Baden-Württemberg nach § 47 BImSchG für das Jahr 2004.

Endbericht, Karlsruhe, URL: <http://www.umeg.de/berichte/index.html>, 21.12.2004.

Wickert B. (2001): Berechnung anthropogener Emissionen in Deutschland für Ozonsimulationen Modellentwicklung und Sensitivitätsstudien. Doktorarbeit der Fakultät Energietechnik der Universität Stuttgart. URL: http://deposit.ddb.de/cgi-bin/dokserv?idn=962912778&dok_var=d1&dok_ext=pdf&filename=962912778.pdf. 24.1. 2006.

Weiterführende Literatur:

Atkinson R. (1998): Gas-phase degradation of organic compounds in the troposphere. *Pure & Applied Chemistry*, **70** (7), 1327-1334.

Atkinson R. (1998): Product studies of gas-phase reactions of organic compounds. *Pure & Applied Chemistry*, **70** (7), 1335-1343.

Beirle S., Platt U., Wenig M. und Wagner T. (2003): Weekly cycle of NO₂ by GOME measurements: a signature of anthropogenic sources. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **3**, 2225–2232.

Friedeburg C. et al. (2005): Multi-axis-DOAS measurements of NO₂ during the BAB II motorway emission campaign. *Atmospheric Environment*, **39** (5), 977-985.

Jenkin M.E. (2004): Analysis of sources and partitioning of oxidant in the UK—Part 1: the NO_x-dependence of annual mean concentrations of nitrogen dioxide and ozone. *Atmospheric Environment*, **38** (30), 5117-5129.

Jenkin M.E. (2004): Analysis of sources and partitioning of oxidant in the UK—Part 2: contributions of nitrogen dioxide emissions and background ozone at a kerbside location in London. *Atmospheric Environment*, **38** (30), 5131-5138.

Jiang G. und Fast J.D. (2004): Modeling the effects of VOC and NO_x emission sources on ozone formation in Houston during the TexAQ_S 2000 field campaign. *Atmospheric Environment*, **38** (30), 5071-5085.

Jianhui B. et al (2005): An empirical correlation between surface O₃ and its factors. *Atmospheric Environment*, **39** (25), 4419-4423.

Kleinmann L.I. (2005): The dependence of tropospheric ozone production rate on ozone precursors. *Atmospheric Environment*, **39** (3), 575-586.

Latham S. et al. (2001): Assessment of primary NO₂-Emissions, Hydrocarbon speciation and particulate sizing on a range of road vehicles. Project report: PR/SE/353/2001.

Laxen, D. und Wilson P. (2002): A New Approach to Deriving NO₂ from NO_x for Air Quality Assessment of Roads. AQC Air Quality Consultants, Bristol.

Manschreck K., Gilge S., Plass-Duelmer C., Fricke W. und Berresheim H. (2004): Assessment of the applicability of NO-NO₂-O₃ photostationary state to long-term measurements at the Hohenpeissenberg GAW Station, Germany. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **4**, 1265–1277.

Monks P.S. (2004): Attenuation of spectral actinic flux and photolysis frequencies at the surface through homogenous cloud fields. *Journal of Geophysical Research*, **109**, D17206.

Poppel van M. und Lenaers G. (2005): Real life evaluation of the emission reduction potential of a city bus retrofitted with a continuous regenerating trap. *Atmospheric Environment*, **39** (13), 2451-2457.

- Pundt I. et al. (2005): Measurements of trace gas distributions using Long-path DOAS-Tomography during the motorway campaign BAB II: experimental setup and results for NO₂. *Atmospheric Environment*, **39** (5), 967-975.
- Schaub D. et al. (2005): A transboundary transport episode of nitrogen dioxide as observed from GOME and its impact in the Alpine region. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 23-37.
- Schönwiese C.D. (2000): *Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler*. Gebrüder Bornträger Verlagsbuchhandlung, 3. Auflage, Berlin.
- Tsai M.Y. und Chen K.S. (2004): Measurements and three-dimensional modeling of air pollutant dispersion in an Urban Street Canyon. *Atmospheric Environment*, **38** (35), 5911-5924.
- Vukovich F.M. und Scaborough J. (2005): Aspects of ozone transport, mixing, and chemistry in the greater Maryland area. *Atmospheric Environment*, **39** (37), 7008-7019.
- Wotowa G. et al. (2000): Verkehrsbedingte Stickoxid-Belastung im Inntal: Einfluss meteorologischer und topographischer Faktoren. Endbericht zum Projekt Nr. 6983: "Analyse der Schadstoffbelastung im Inntal", Wien.
- Xie X. (2005): Impact of building configuration on air quality in street canyon. *Atmospheric Environment*, **39** (25), 4519-4530.

Gesetzestexte:

- BImSchG (Fassung vom 26. September 2002): Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge.
22. BImSchV (Fassung vom 11. September 2002): Zweiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundesimmissionsschutzgesetzes: Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft.
- Richtlinie 1999/30/EG (Fassung vom 22.4.1999): Richtlinie über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft.
- Richtlinie 2000/69/EG (Fassung vom 16.11.2000): Richtlinie über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft.
- Richtlinie 2002/3/EG (Fassung vom 12. 2. 2002): Richtlinie über den Ozongehalt der Luft.
- Richtlinie 2004/107/EG (Fassung vom 15. 12. 2004): Richtlinie über Grenzwerte für Nickel, Cadmium, Arsen und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe.

Internetseiten:

www.stadtklima-stuttgart.de

Anhang A



Abb.66 Luftmessnetz Baden-Württemberg [Quelle UMEG]

| Straßenstation Freiburg (DEBW097) | |
|--|--|
| Rechtswert | 3414460 |
| Hochwert | 5318435 |
| Höhe über NN | 260 m |
| Messhöhe über Grund | 2,5 m |
| Lage der Messstelle | Ebene, Innenstadt |
| Messstellenumgebung | vorherrschende Windrichtung SSW, Strömungshindernisse W-N (Abstand 10 m und Höhe 20 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | große und breite Straße mit hoher Verkehrsdichte (DTV: 41000) |
| Gebietsnutzung | Industrie, Handel, Gewerbe und Wohnen |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Industrie 1 km, Gewerbe 500 m, Verkehrswege 4 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , CO, C _m H _n , Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | keine |

| Straßenstation Mannheim (DEBW098) | |
|--|--|
| Rechtswert | 3461750 |
| Hochwert | 5484100 |
| Höhe über NN | 95 m |
| Messhöhe über Grund | 2,5 m |
| Lage der Messstelle | Ebene, Innenstadt |
| Messstellenumgebung | Strömungshindernisse S (Abstand 2 m und Höhe 15 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | große und breite Straße mit hoher Verkehrsdichte (DTV: 53000) |
| Gebietsnutzung | Handel, Gewerbe und Wohnen |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Industrie 1 km, Verkehrswege 1 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , CO, C _m H _n , Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | keine |

| Straßenstation Karlsruhe (DEBW080)- Karlsruhe Reinhold-Frank-Straße | |
|--|---|
| Rechtswert | 3455225 |
| Hochwert | 5430250 |
| Höhe über NN | 115 m |
| Messhöhe über Grund | 2,5 m |
| Lage der Messstelle | Ebene, Innenstadt |
| Messstellenumgebung | Strömungshindernisse W-O (Abstand 7 m und Höhe 12 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | Straßenschlucht mit hoher Verkehrsdichte (DTV: 27400) |
| Gebietsnutzung | Handel, Gewerbe und Wohnen |

| | |
|---|--|
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Verkehrswege 1 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , CO, C _m H _n , Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | keine |

| Straßenstation Stuttgart (DEBW099) - Stuttgart Arnulf-Klett-Platz | |
|--|--|
| Rechtswert | 3513250 |
| Hochwert | 5405160 |
| Höhe über NN | 245 m |
| Messhöhe über Grund | 2,5 m |
| Lage der Messstelle | Becken, Innenstadt |
| Messstellenumgebung | Strömungshindernisse S-SW (Abstand 40 m und Höhe 20 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | große und breite Straße mit hoher Verkehrsdichte (DTV: 65000) |
| Gebietsnutzung | Handel, Gewerbe, Wohnen und Erholung |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Verkehrswege 5 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , CO, C _m H _n , Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | keine |

| Station Stuttgart Bad Cannstatt (DEBW013) | |
|--|--|
| Rechtswert | 3516950 |
| Hochwert | 5407950 |
| Höhe über NN | 235 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |
| Lage der Messstelle | Hügel, Stadtrand |
| Messstellenumgebung | Vorherrschende Windrichtung SSO |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | schmale Straße mit geringer Verkehrsdichte |
| Gebietsnutzung | Handel, Gewerbe, Wohnen und Erholung |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Verkehrswege 300 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | durchschnittlich |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, O ₃ , C _m H _n , Schwebstaub, Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftfeuchte, Globalstrahlung |

| Station Mannheim Süd (DEBW007) | |
|---------------------------------------|---------|
| Rechtswert | 3465660 |
| Hochwert | 5477375 |
| Höhe über NN | 95 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |

| | |
|--|--|
| Lage der Messstelle | Ebene, Innenstadt |
| Messstellenumgebung | Strömungshindernisse N, O und S (Abstand 45 m und Höhe 25 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | große und breite Straße mit geringer Verkehrsdichte |
| Gebietsnutzung | Industrie, Handel, Gewerbe und Wohnen |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Industrie 200 m, Verkehrswege 700 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | durchschnittlich |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, O ₃ , C _m H _n , Schwebstaub, Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftfeuchte, Globalstrahlung, Luftdruck |

| Station Karlsruhe Nordwest (DEBW081) | |
|--|--|
| Rechtswert | 3453575 |
| Hochwert | 5433600 |
| Höhe über NN | 110 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |
| Lage der Messstelle | Ebene, Stadtrand |
| Messstellenumgebung | Vorherrschende Windrichtung SW |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | große und breite Straße mit hoher Verkehrsdichte (DTV: 31000) |
| Gebietsnutzung | Industrie, Handel, Gewerbe, Wohnen und Landwirtschaft |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Industrie 500 m, Verkehrswege 40 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | durchschnittlich |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | vorstädtisches Gebiet, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, CO ₂ , O ₃ , C _m H _n , Schwebstaub, Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftfeuchte, Globalstrahlung, Luftdruck |

| Station Freiburg Mitte (DEBW084) | |
|--|---|
| Rechtswert | 3412900 |
| Hochwert | 5318815 |
| Höhe über NN | 240 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |
| Lage der Messstelle | Ebene, Stadtrand |
| Messstellenumgebung | Vorherrschende Windrichtung SSW, Strömungshindernisse SO (Abstand 45 m und Höhe 20 m) |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | schmale Straße mit geringer Verkehrsdichte |
| Gebietsnutzung | Handel, Gewerbe und Wohnen |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Verkehrswege 750 m |
| Einstufung der Immissionsbelastung | durchschnittlich |

| | |
|---|--|
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | städtisches Gebiet, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, O ₃ , C _m H _n , Schwebstaub, Ruß, sonstige Luftverunreinigungen |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftfeuchte, Globalstrahlung |

| Station Welzheimer Wald (DEBW030) | |
|---|---|
| Rechtswert | 3542100 |
| Hochwert | 5416500 |
| Höhe über NN | 500 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |
| Lage der Messstelle | Hügel, Wald |
| Messstellenumgebung | Vorherrschende Windrichtung S |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | schmale Straße mit sehr geringer Verkehrsdichte |
| Gebietsnutzung | Erholung, Forstwirtschaft und Landwirtschaft |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | Industrie 3 km |
| Einstufung der Immissionsbelastung | niedrig |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | ländliches Gebiet, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , O ₃ |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Luftfeuchte |

| Station Schwarzwald Süd (DEBW031) | |
|---|--|
| Rechtswert | 3407525 |
| Hochwert | 5297430 |
| Höhe über NN | 920 m |
| Messhöhe über Grund | 3,5 m |
| Lage der Messstelle | Hang, Wald |
| Messstellenumgebung | Vorherrschende Windrichtung WSW |
| Straßentyp und Verkehrsdichte in Messstellennähe | keine |
| Gebietsnutzung | Erholung und Forstwirtschaft |
| Abstand zu relevanten Emissionsquellen | keine |
| Einstufung der Immissionsbelastung | niedrig |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | Ländlich, regional, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, CO ₂ , O ₃ , C _m H _n |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftdruck, Luftfeuchte, Globalstrahlung |

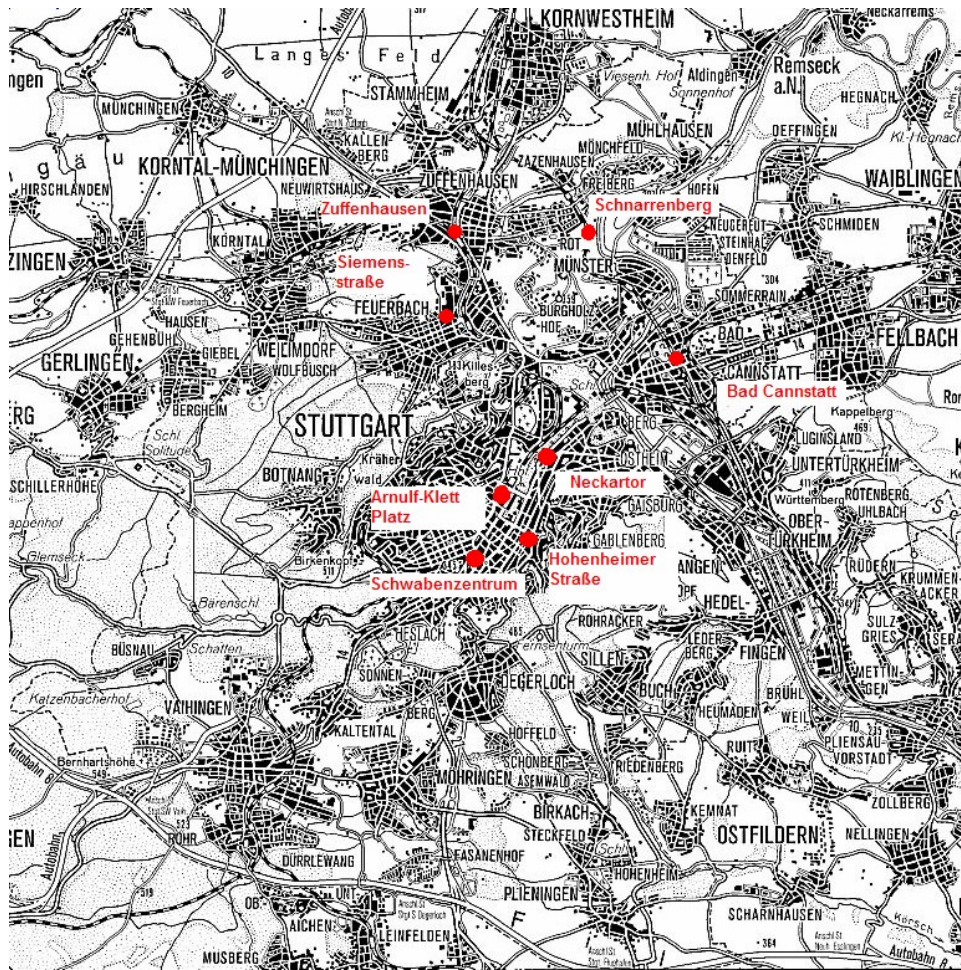


Abb.67 Luftmessstationen in Stuttgart

Für die Messstelle Stuttgart-Paulinenstraße stehen keine Angaben zur Verfügung.

| Station Stuttgart Neckartor | |
|---|---|
| Rechtswert | 3514138 |
| Hochwert | 5405657 |
| Höhe über NN | 235 m |
| Lage der Messstelle | Straße |
| Einstufung der Immissionsbelastung | sehr hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | Stadt, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , PM ₁₀ |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur |

| Station Stuttgart Siemensstraße | |
|---|---|
| Rechtswert | 3512950 |
| Hochwert | 5408195 |
| Höhe über NN | 296 m |
| Lage der Messstelle | Straße |
| Einstufung der Immissionsbelastung | sehr hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | Stadt, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , PM ₁₀ |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur |

| Station Stuttgart Hohenheimer Straße | |
|---|--|
| Rechtswert | 3513640 |
| Hochwert | 5403477 |
| Höhe über NN | 307 m |
| Lage der Messstelle | Straße |
| Einstufung der Immissionsbelastung | sehr hoch |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | Stadt, Verkehr |
| Gemessene Luftverunreinigungen | NO, NO ₂ , PM ₁₀ |
| Gemessene meteorologische Größen | keine |

| Station Schwabenzentrum | |
|---|--|
| Rechtswert | 3513640 |
| Hochwert | 5403477 |
| Höhe über NN | 250 m |
| Lage der Messstelle | Messung erfolgt 25 m über Grund |
| Einstufung der Immissionsbelastung | mittel bis gering |
| Klassifizierung der Messstelle nach Eol | Stadt, Hintergrund |
| Gemessene Luftverunreinigungen | SO ₂ , NO, NO ₂ , CO, O ₃ , PM ₁₀ |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftdruck, Luftfeuchte, Globalstrahlung, Strahlungsbilanz, UV-A und UV-B |

| Klimastation Schnarrenberg | |
|-----------------------------------|---|
| Rechtswert | 3514800 |
| Hochwert | 5410250 |
| Höhe über NN | 315 m |
| Gemessene meteorologische Größen | Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur, Niederschlag, Luftdruck, Luftfeuchte, Globalstrahlung, Radiosondenaufstiege |

Anhang B

Tab.11 Lücken in den Originalzeitreihen von NO (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die Verkehrsmessstationen

| Jahr | Stuttgart-Straße | Karlsruhe-Straße | Mannheim-Straße | Freiburg-Straße |
|------|------------------|------------------|-----------------|-----------------|
| 1995 | 3,8 % | 8,2 % | 8,2 % | 3,3 % |
| 1996 | 4,8 % | 6,7 % | 5,3 % | 4,5 % |
| 1997 | 3,4 % | 6,9 % | 3,6 % | 2,9 % |
| 1998 | 4,3 % | 2,8 % | 4,9 % | 2,8 % |
| 1999 | 3,4 % | 3,2 % | 2,5 % | 4,3 % |
| 2000 | 5,4 % | 4,1 % | 5,1 % | 6,5 % |
| 2001 | 3,2 % | 2,7 % | 2,6 % | 2,7 % |
| 2002 | 2,9 % | 2,5 % | 5,7 % | 3,4 % |
| 2003 | 2,8 % | 2,6 % | 10,7 % | 3,5 % |
| 2004 | 1,2 % | 1,1 % | 1,3 % | 1,7 % |

Tab.12 Lücken in den Originalzeitreihen von NO (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die städtischen Hintergrundmessstellen

| Jahr | Stuttgart Cannstatt | Bad Nordwest | Karlsruhe- Nordwest | Mannheim-Süd | Freiburg-Mitte |
|------|------------------------|-----------------|------------------------|--------------|----------------|
| 1995 | 5,7 % | | 7,2 % | 6,3 % | 8,7 % |
| 1996 | 6,6 % | | 10,8 % | 4,2 % | 6,5 % |
| 1997 | 3,2 % | | 4,3 % | 7,2 % | 3,0 % |
| 1998 | 3,4 % | | 5,6 % | 4,8 % | 3,2 % |
| 1999 | 2,6 % | | 4,7 % | 3,7 % | 2,7 % |
| 2000 | 4,1 % | | 3,3 % | 3,0 % | 3,9 % |
| 2001 | 4,7 % | | 6,7 % | 3,1 % | 3,9 % |
| 2002 | 6,5 % | | 4,3 % | 2,7 % | 4,1 % |
| 2003 | 4,3 % | | 3,1 % | 2,6 % | 5,1 % |
| 2004 | 1,5 % | | 3,1 % | 1,3 % | 2,3 % |

Tab.13 Lücken in den Originalzeitreihen von NO₂ (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die Verkehrsmessstationen

| Jahr | Stuttgart-Straße | Karlsruhe-Straße | Mannheim-Straße | Freiburg-Straße |
|------|------------------|------------------|-----------------|-----------------|
| 1995 | 3,8 % | 8,3 % | 6,8 % | 3,3 % |
| 1996 | 4,8 % | 6,7 % | 5,3 % | 4,5 % |
| 1997 | 3,4 % | 6,9 % | 3,6 % | 2,9 % |
| 1998 | 4,3 % | 2,8 % | 4,9 % | 2,8 % |
| 1999 | 3,4 % | 3,3 % | 2,5 % | 4,4 % |
| 2000 | 5,5 % | 4,1 % | 5,1 % | 6,5 % |
| 2001 | 3,2 % | 2,7 % | 2,6 % | 2,7 % |
| 2002 | 2,9 % | 2,5 % | 5,7 % | 3,4 % |
| 2003 | 2,8 % | 2,6 % | 10,6 % | 3,5 % |
| 2004 | 1,2 % | 1,1 % | 1,3 % | 1,7 % |

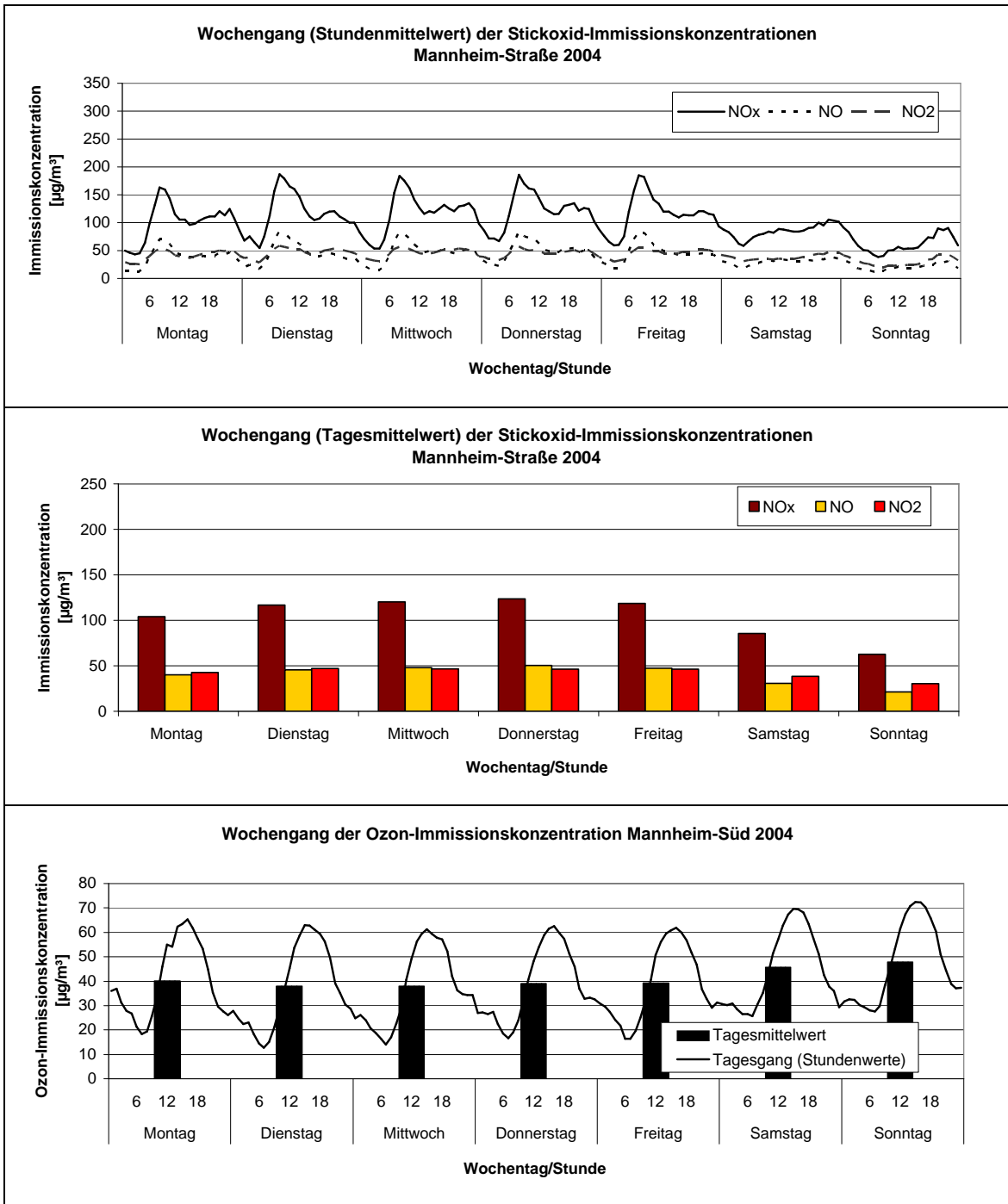
Tab.14 Lücken in den Originalzeitreihen von NO₂ (Halbstundenmittelwerte) angegeben in % der Halbstundenintervalle pro Jahr für die städtischen Hintergrundmessstellen

| Jahr | Stuttgart Cannstatt | Bad Nordwest | Karlsruhe- Nordwest | Mannheim-Süd | Freiburg-Mitte |
|------|------------------------|-----------------|------------------------|--------------|----------------|
| 1995 | 5,7 % | | 7,2 % | 6,3 % | 8,7 % |
| 1996 | 6,6 % | | 10,8 % | 4,2 % | 6,5 % |
| 1997 | 3,2 % | | 4,3 % | 7,2 % | 3,0 % |
| 1998 | 3,4 % | | 5,6 % | 4,8 % | 3,2 % |
| 1999 | 2,6 % | | 4,8 % | 3,7 % | 2,7 % |
| 2000 | 4,1 % | | 3,3 % | 3,0 % | 3,9 % |
| 2001 | 4,7 % | | 6,7 % | 3,1 % | 3,9 % |
| 2002 | 6,5 % | | 4,3 % | 2,7 % | 4,3 % |
| 2003 | 4,3 % | | 3,1 % | 2,6 % | 5,1 % |
| 2004 | 1,5 % | | 3,1 % | 1,3 % | 2,3 % |

Tab.15 Anzahl der Radiosondenaufstiege in Stuttgart Schnarrenberg 2004

| Monat | Vorhandene Datensätze | Max. mögliche Datensätze | Vorhandene Datensätze % |
|--------------|------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|
| Januar | 61 | 62 | 98% |
| Februar | 57 | 58 | 98% |
| März | 61 | 62 | 98% |
| April | 59 | 60 | 98% |
| Mai | 58 | 62 | 94% |
| Juni | 59 | 60 | 98% |
| Juli | 49 | 62 | 79% |
| August | 52 | 62 | 84% |
| September | 60 | 60 | 100% |
| Oktober | 61 | 62 | 98% |
| November | 58 | 60 | 97% |
| Dezember | 61 | 62 | 98% |

Anhang C



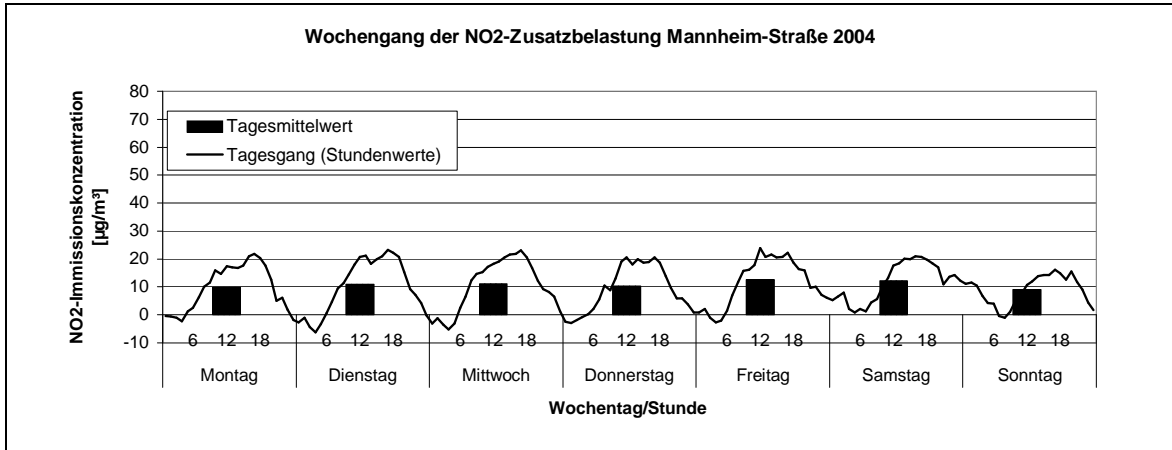
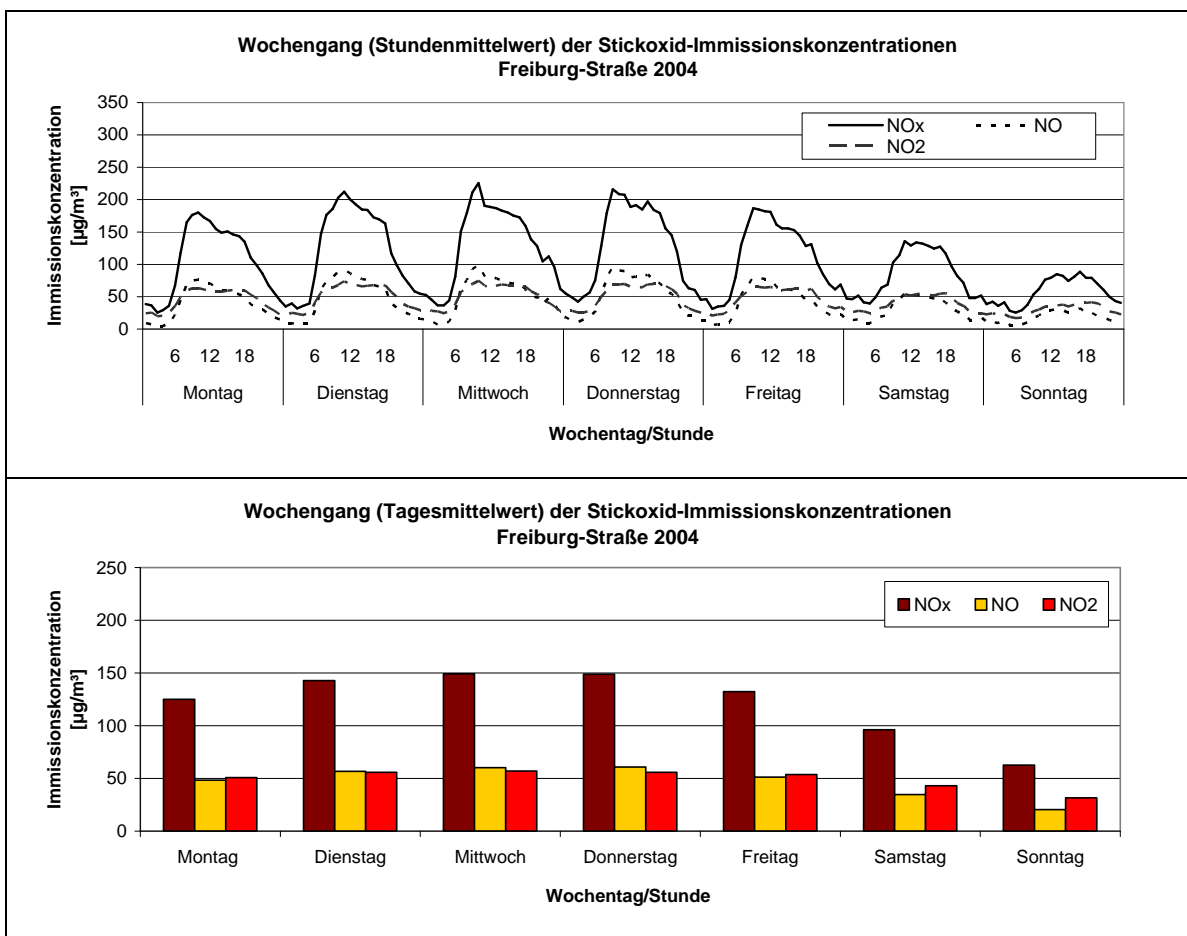


Abb.68 Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004



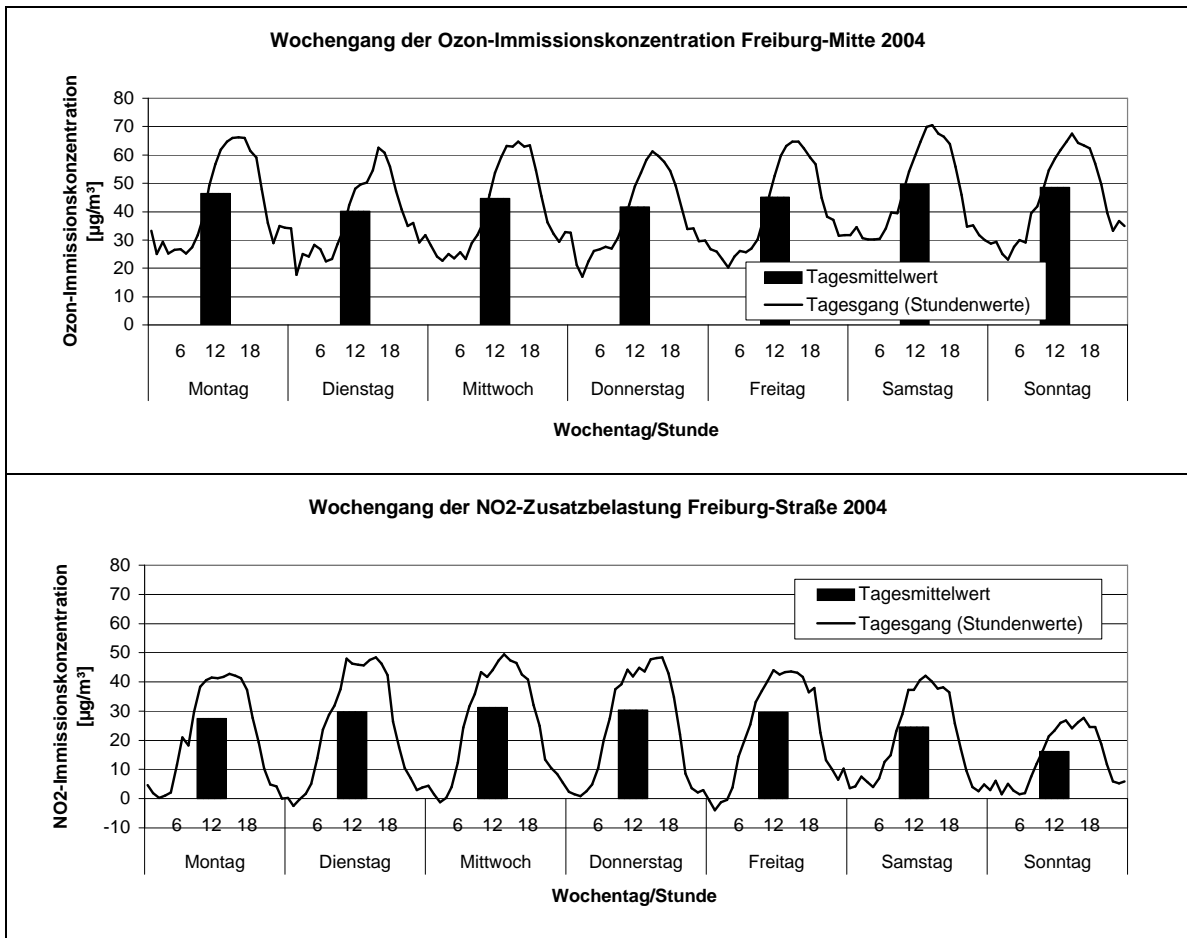
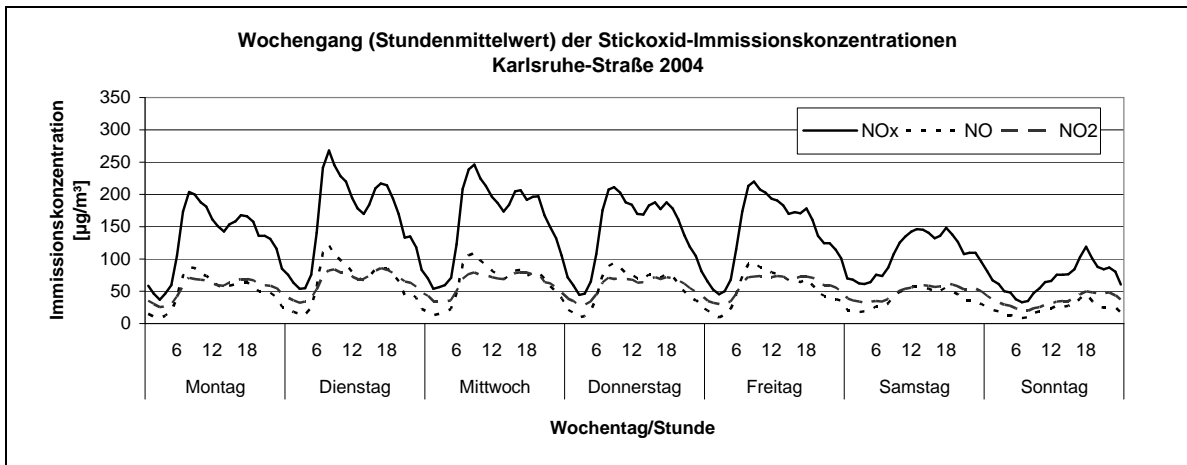


Abb.69 Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004



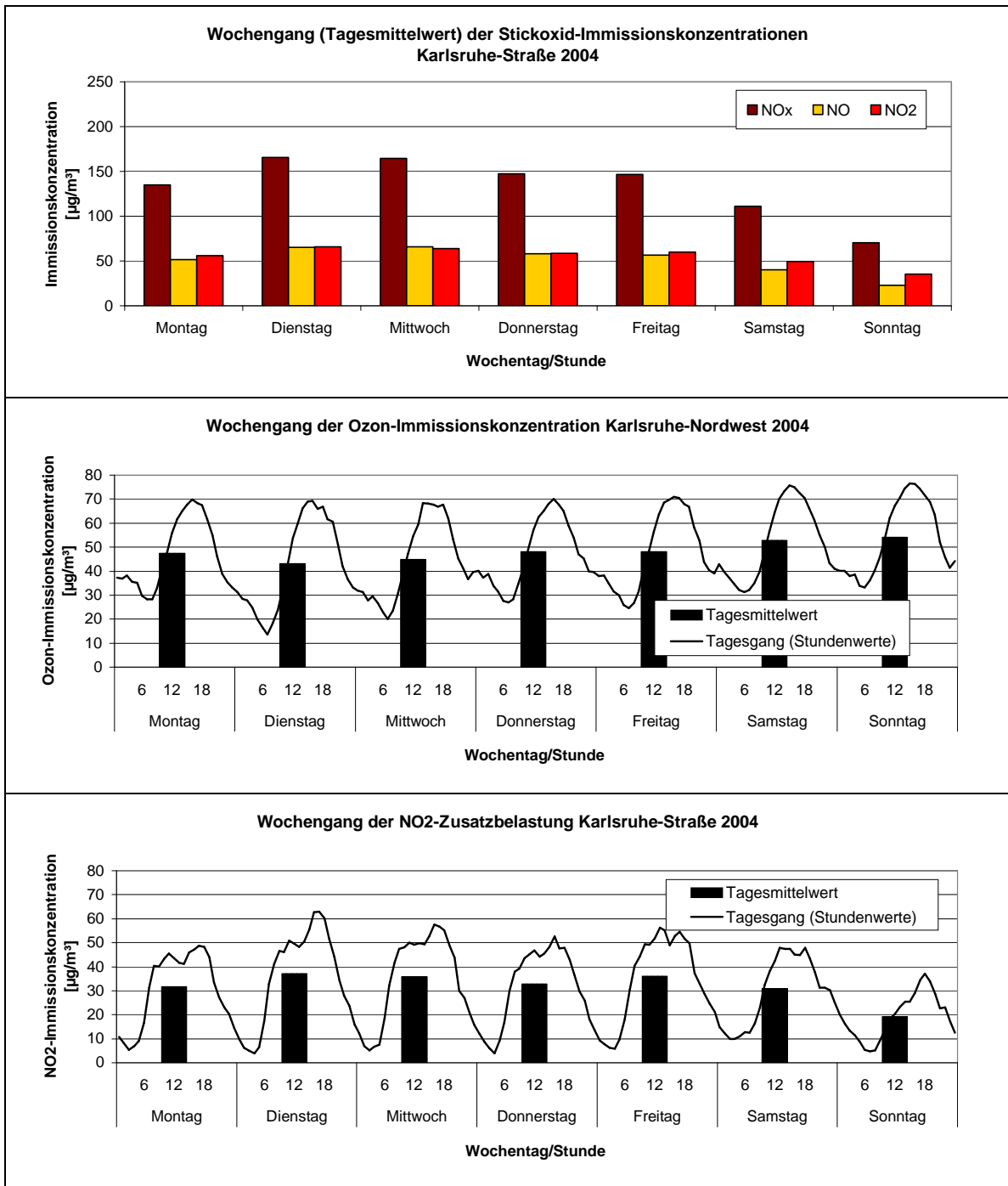


Abb.70 Wochengang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004

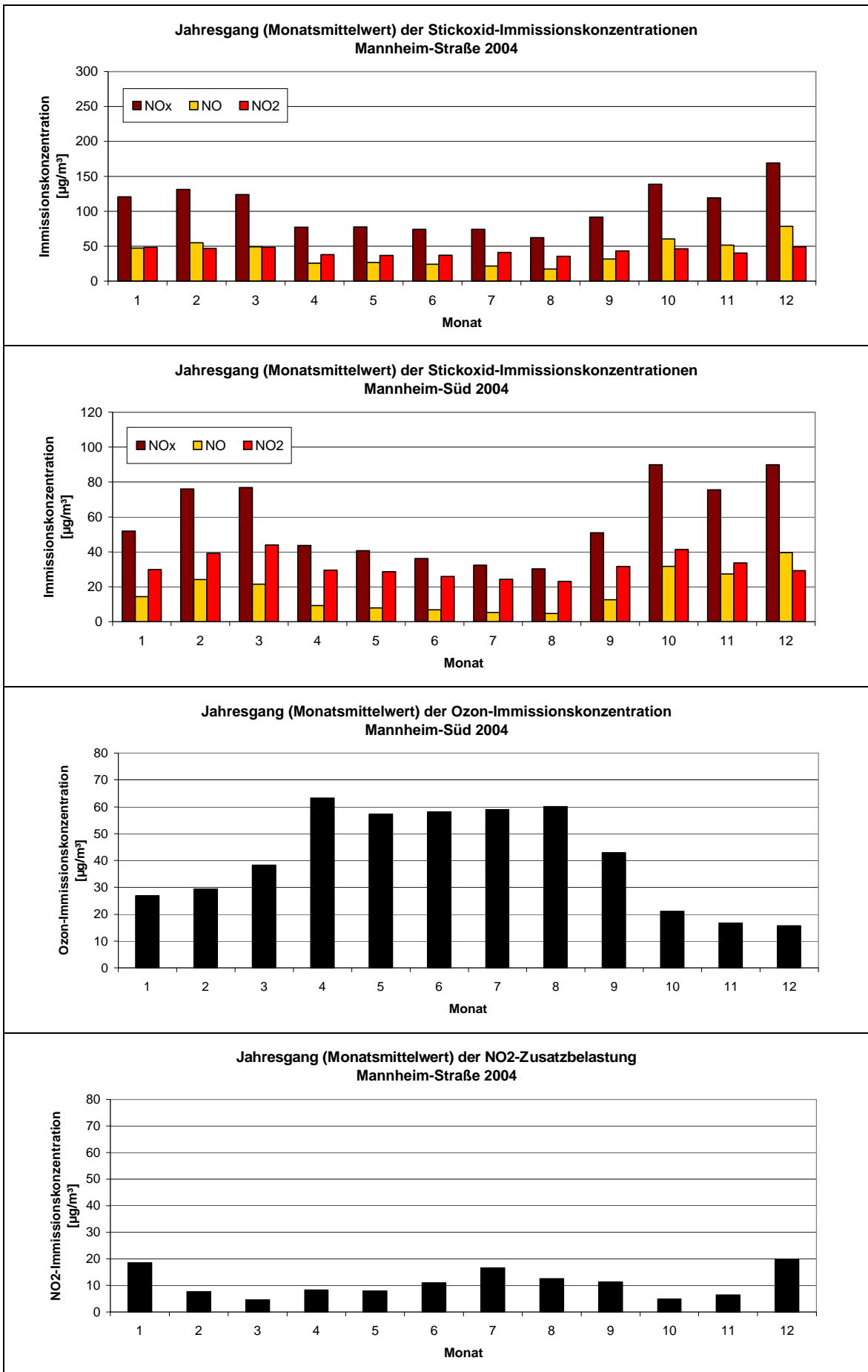
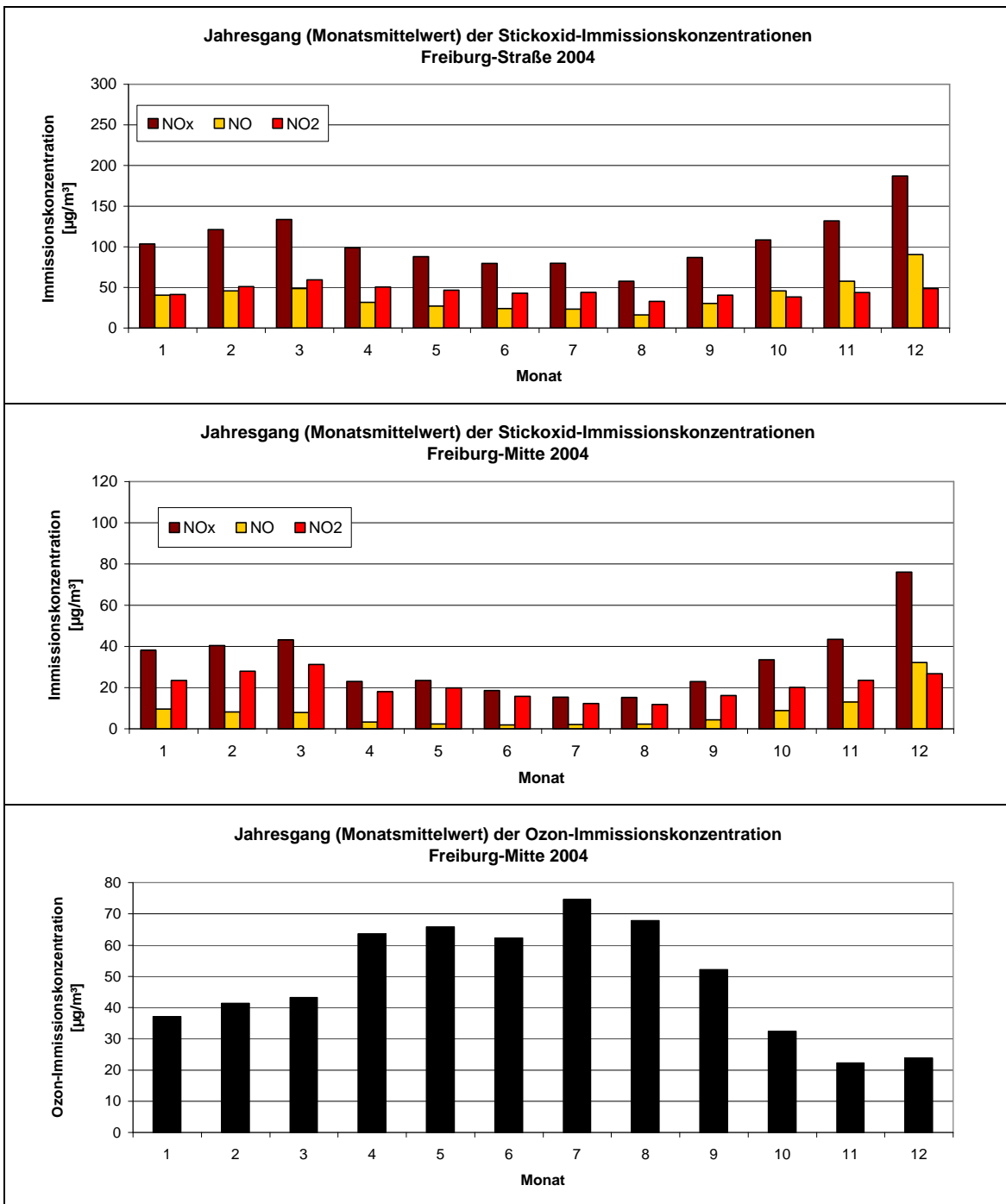


Abb.71 Jahrgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Mannheim 2004



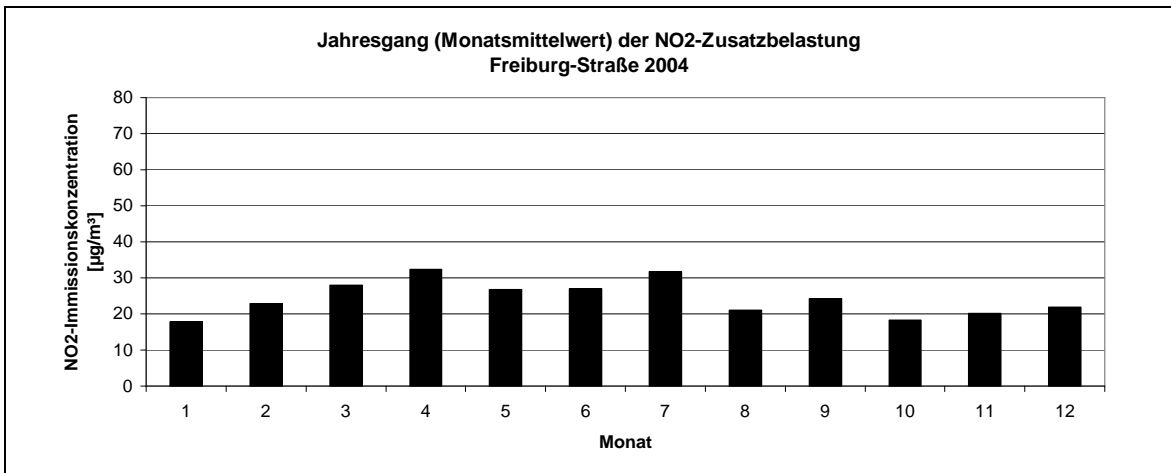
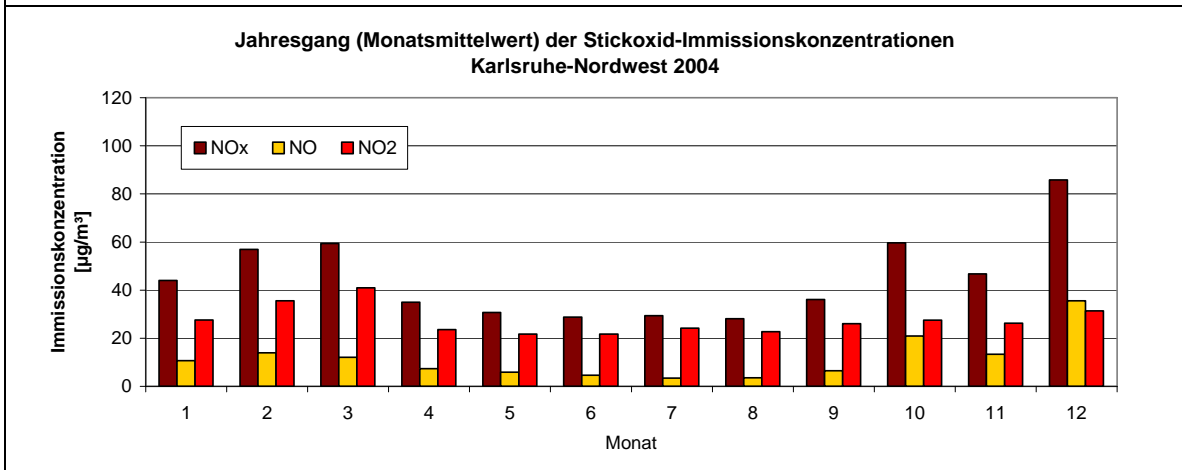
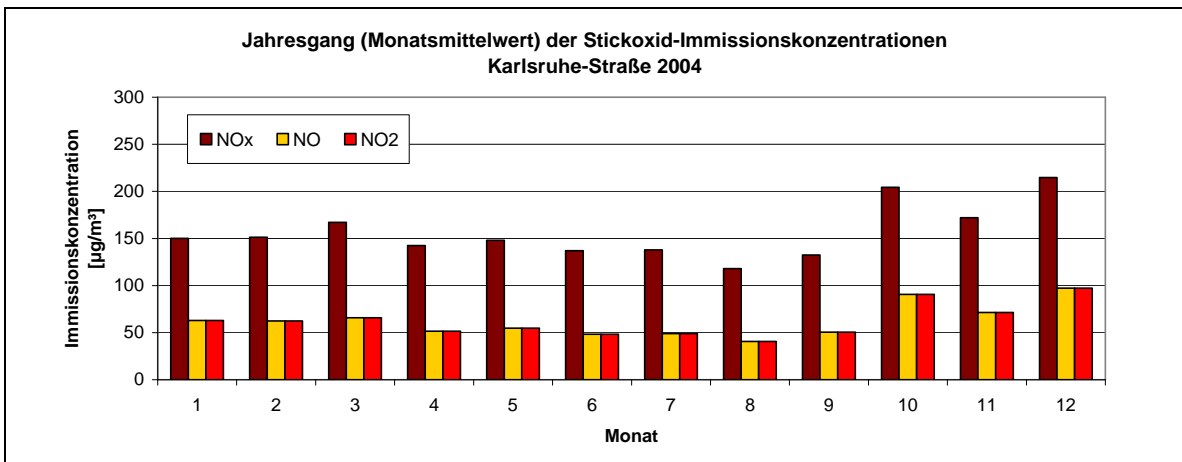


Abb.72 Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Freiburg 2004



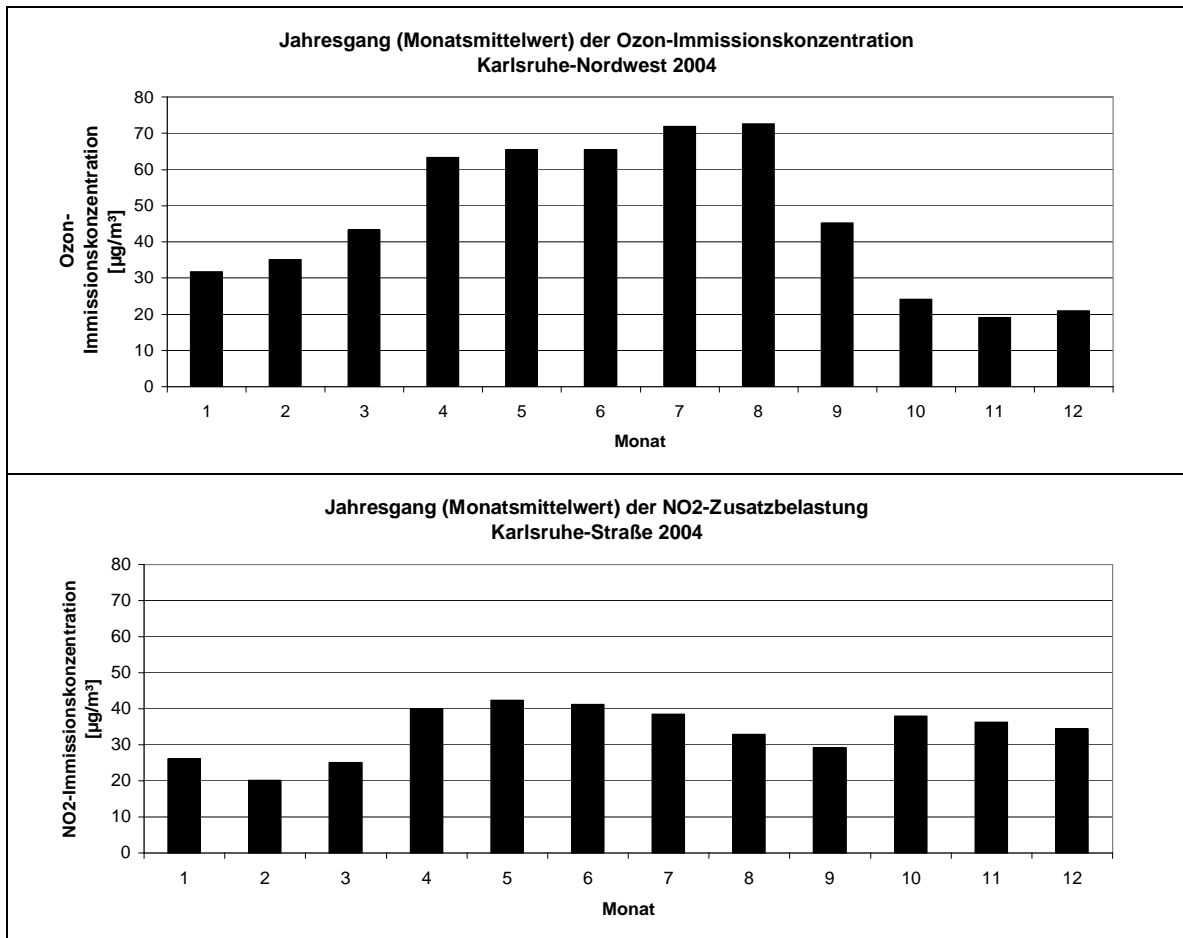


Abb.73 Jahresgang der Stickoxid- und Ozon-Immissionskonzentration Karlsruhe 2004

Erklärung zur Diplomarbeit

Hiermit erkläre ich, dass ich die Diplomarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt und die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken als solche kenntlich gemacht habe. Die Diplomarbeit habe ich bisher keinem anderen Prüfungsamt in gleicher oder vergleichbarer Form vorgelegt. Sie wurde bisher auch nicht veröffentlicht.

Ort, Datum

Unterschrift

This document was created with Win2PDF available at <http://www.win2pdf.com>.
The unregistered version of Win2PDF is for evaluation or non-commercial use only.
This page will not be added after purchasing Win2PDF.