

**Projekträgerschaft "Baden-Württemberg,  
Programm Lebensgrundlage Umwelt und ihre Sicherung" (BWPLUS)**

**Forschungsbericht**

**Entwicklung von Instrumenten  
zur Analyse der Umweltbelastungen  
durch Feinstäube und andere ausgewählte  
Luftverunreinigungen in Baden-Württemberg**

von

T. Pregger, R. Friedrich, A. Obermeier, B. Wickert, P. Blank, J. Theloke,  
H. Vogel, N. Riemer, B. Vogel, F. Fiedler

Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER)  
Universität Stuttgart, Heßbrühlstr. 49a, D-70565 Stuttgart

und

Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK)  
Forschungszentrum Karlsruhe, Universität Karlsruhe  
Postfach 3640, D-76021 Karlsruhe

Förderkennzeichen: PEF 297003

Dezember 1999



# Zusammenfassung

Ziel des Projektes ist es, Methoden und Modelle zur Ermittlung von Emission, Immission und Deposition von ausgewählten Luftverunreinigungen weiterzuentwickeln. Den inhaltlichen Schwerpunkt stellen aufgrund ihrer derzeitig intensiv diskutierten lufthygienischen Relevanz primäre Feinstäube und sekundäre Aerosole dar. Ausgehend von bisherigen Arbeiten zur Emissionsermittlung im Rahmen von vorangegangenen Projekten, erfolgt die Erstellung von Emissionsdatenbasen für Baden-Württemberg (Bezugsjahr 1996) für die gasförmigen Luftverunreinigungen Stickstoffoxide ( $\text{NO}_x$ ), flüchtige organische Verbindungen (NMVOC), Kohlenmonoxid (CO), Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) und Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) und die primär emittierten Feinstäube. Hierbei werden insbesondere für Feinstaub und Ammoniak neue Methoden für die Ermittlung von Jahresemissionen und deren zeitliche und räumliche Auflösung entwickelt. Die in früheren Projekten entwickelten Modellierungen der atmosphärischen Umwandlung und Verteilung gasförmiger Stoffe werden zur Simulation der Feinstaubbelastungen in Baden-Württemberg erweitert und angewendet. Hierzu erfolgt eine Implementierung des komplexen Aerosolmodells MADE in das atmosphärische Modellsystem KAMM/DRAIS. Ausgehend von disaggregierten Emissionsdaten an primären Feinstäuben und gasförmigen Aerosolvorläufern ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ) werden erste Modellrechnungen der Staubbelastungen für eine Episode in Baden-Württemberg vorgenommen. Als weiterer Arbeitspunkt werden die atmosphärischen Modellierungen für Ozon, dessen Vorläufersubstanzen ( $\text{NO}_x$ , NMVOC, CO) und  $\text{SO}_2$  weiterentwickelt und erste Modellrechnungen der Belastungen in Baden-Württemberg für längere Episoden einer winterlichen und einer sommerlichen Situation durchgeführt. Hierbei werden auch erstmals schadstoffübergreifende Simulationen der atmosphärischen Gesamtbelastung durch mehrere gasförmige Luftverunreinigungen vorgenommen. Durch diese Weiterentwicklungen der komplexen Methoden zur Berechnung der Emissionen und zur Simulation der chemischen Umwandlung und Verteilung von ausgewählten primären und sekundären Luftverunreinigungen werden wesentliche Grundlagen und Bausteine für ein Instrumentarium zur schadstoff- und sektorübergreifenden Luftreinhaltestrategie geschaffen. Die Ergebnisdarstellung dieses Endberichts beinhaltet einerseits nach Sektoren disaggregierte und zeitlich und räumlich hoch aufgelöste Emissionen der betrachteten Luftverunreinigungen in Baden-Württemberg, als auch erste Ergebnisse der erweiterten Modellierungen der Belastungen an Aerosolen, Ozon und ihren Vorläufern.

# **Development of Instruments for the Analysis of the Environmental Impacts of the Emissions of Fine Particulate Matter and Other Selected Pollutants in Baden-Wuerttemberg**

T. Pregger, R. Friedrich, A. Obermeier, B. Wickert, P. Blank, J. Theloke

Institute of Energy Economics and the Rational Use of Energy (IER), University of Stuttgart

H. Vogel, N. Riemer, B. Vogel, F. Fiedler

Institute of Meteorology and Climate Research (IMK), Karlsruhe Research Centre

## **Summary**

The objective of the project is to make essential contributions to the development resp. further development of models and methods for the simulation of emissions, ambient air concentrations and deposition of selected air pollutants. The main emphasis is put on primary fine particulate matter and secondary aerosols, following the current discussion about possible health effects of concentrations of fine particulates in ambient air. Based on previous projects for the determination of emission data, emission data bases for Baden-Wuerttemberg (year 1996) for the gaseous substances oxides of nitrogen ( $\text{NO}_x$ ), volatile organic compounds (NMVOC), carbon monoxide (CO), ammonia ( $\text{NH}_3$ ), sulphur dioxide ( $\text{SO}_2$ ) and primary emitted particulate matter are generated. For particulates and ammonia, new methods for the estimation of annual emissions and for the temporal and spatial disaggregation have to be developed. The modelling of the atmospheric transformation and dispersion of gaseous substances, which was developed in previous projects has been improved and used for the simulation of ambient air concentrations of fine particulates in Baden-Wuerttemberg. For this the complex aerosol model MADE is implemented in the atmospheric model system KAMM/DRAIS. Based on disaggregated emission data for primary fine particulates and gaseous precursors of secondary aerosols ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NH}_3$ ) first calculations of ambient air concentrations during a selected episode in Baden-Wuerttemberg are carried out. Furthermore, the atmospheric modelling of ground level ozone, its precursors ( $\text{NO}_x$ , NMVOC, CO) and  $\text{SO}_2$  is further developed. First simulations of ambient air concentrations during longer time periods of winter and summer episodes and first simultaneous simulations for different air pollutants are carried out for Baden-Wuerttemberg. This further development of complex methods for the calculation of emissions and simulation of transport and transformation of selected primary and secondary air pollutants provides essential and basic contributions for the development of an air policy instrument for the assessment of reduction strategies regarding different sources and different pollutants. The presentation of results includes emission data for different sectors and in high temporal and spatial resolution for Baden-Wuerttemberg and first results of the enhanced modelling of ambient air concentrations of aerosols, ozone and their precursors.

**INHALTSVERZEICHNIS**

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung und Zielsetzung .....</b>  | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Methodik der Ermittlung von sektoralen und zeitlich und räumlich hoch aufgelösten Emissionsdaten in Baden-Württemberg .....</b> | <b>4</b>  |
| 2.1      | Jahresemissionen an primären Stäuben.....  | 4         |
| 2.1.1    | Vorgehensweise .....   | 4         |
| 2.1.2    | Datengrundlagen .....  | 6         |
| 2.2      | Jahresemissionen an NH <sub>3</sub> .....  | 13        |
| 2.3      | Jahresemissionen an SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , NMVOC und CO .....   | 14        |
| 2.4      | Zeitliche und räumliche Auflösung von Emissionsdaten.....  | 15        |
| <b>3</b> | <b>Ergebnisse der Emissionsermittlungen.....</b>   | <b>19</b> |
| 3.1      | Primäre Stäube .....   | 19        |
| 3.1.1    | Jahresemissionen.....  | 19        |
| 3.1.2    | Hoch aufgelöste Emissionsdaten.....  | 27        |
| 3.1.3    | Interpretation und Bewertung.....  | 28        |
| 3.2      | Emissionen an Ammoniak.....  | 32        |
| 3.3      | Emissionen an Ozon- und Aerosolvorläufersubstanzen .....   | 34        |
| <b>4</b> | <b>Modellierung der Aerosolbildung und -ausbreitung mit dem Modellsystem KAMM/DRAIS.....</b>                                       | <b>40</b> |
| 4.1      | Modellierung der Sulfat-, Nitrat- und Ammoniumbildung.....   | 42        |
| 4.2      | Modellierung der Ausbreitung von Stäuben.....  | 47        |
| <b>5</b> | <b>Modellierung der Immission emittierter Spurenstoffe und deren Folgeprodukte .....</b>   | <b>49</b> |
| 5.1      | Modellierung einer winterlichen Situation.....   | 58        |
| 5.2      | Modellierung einer sommerlichen Situation .....  | 64        |
| 5.3      | Gesamtbelastung.....   | 69        |
| <b>6</b> | <b>Schlußfolgerungen und Ausblick.....</b>   | <b>72</b> |
| <b>7</b> | <b>Literatur .....</b>   | <b>75</b> |
| <b>8</b> | <b>Anhang.....</b>   | <b>78</b> |

**ABBILDUNGSVERZEICHNIS**

Abb. 2.1: Aggregierte Jahrgänge der NH<sub>3</sub>-Emissionen aus der Landwirtschaft ..... 16

Abb. 2.2: Tagesgänge der NH<sub>3</sub>-Emissionen aus der Landwirtschaft  
(WD Wirtschaftsdünger; MD Mineraldünger) ..... 17

Abb. 3.1: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM, PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> in Baden-  
Württemberg 1996 für die betrachteten Hauptsektoren ..... 19

Abb. 3.2: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 differenziert nach Subsektoren bzw. Staubentstehung ..... 20

Abb. 3.3: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 für den Sektor Verkehr ..... 22

Abb. 3.4: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 für die Sektoren Feuerungen Kraft-, Fernheizwerke und Industrie nach  
eingesetzten Energieträgern ..... 23

Abb. 3.5: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 für den Sektor Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher nach  
eingesetzten Energieträgern ..... 24

Abb. 3.6: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 für die relevantesten Produktionsprozesse ..... 25

Abb. 3.7: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg  
1996 für die relevantesten Umschlagprozesse ..... 26

Abb. 3.8: Räumliche Verteilung der PM<sub>10</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 27

Abb. 3.9: Zeitliche Verteilung der PM<sub>10</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 28

Abb. 3.10: Räumliche Verteilung der NH<sub>3</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 33

Abb. 3.11: Zeitliche Verteilung der NH<sub>3</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 34

Abb. 3.12: Räumliche Verteilung der NMVOC-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 36

Abb. 3.13: Räumliche Verteilung der NO<sub>x</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 36

Abb. 3.14: Räumliche Verteilung der SO<sub>2</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 37

Abb. 3.15: Zeitliche Verteilung der NMVOC-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 38

Abb. 3.16: Zeitliche Verteilung der NO<sub>x</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 38

Abb. 3.17: Zeitliche Verteilung der SO<sub>2</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996 ..... 39

Abb. 4.1: Das Modellsystem KAMM / DRAIS ..... 41

Abb. 4.2: Zeit-Höhenschnitt der Partikelanzahl ..... 43

Abb. 4.3: Zeit-Höhenschnitt der Nukleation ..... 44

|  |    |
|--|----|
| Abb. 4.4: Zeit-Höhenschnitt der intermodalen Koagulation.....  | 44 |
| Abb. 4.5: Zeit-Höhenschnitt der HNO <sub>3</sub> -Konzentration ohne Aerosolphase.....   | 44 |
| Abb. 4.6: Zeit-Höhenschnitt der HNO <sub>3</sub> -Konzentration mit Aerosolphase.....  | 45 |
| Abb. 4.7: Zeit-Höhenschnitt der Nitrat-Konzentration in der Aerosolphase .....   | 45 |
| Abb. 4.8: Zeitreihe der NH <sub>3</sub> -Konzentration mit (m. A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung<br>der Aerosolphase, sowie der Ammonium-Konzentration in der Aerosolphase..... | 45 |
| Abb. 4.9: Zeitreihe der HNO <sub>3</sub> -Konzentration mit (m.A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung<br>der Aerosolphase sowie der Nitrat-Konzentration in der Aerosolphase.....    | 46 |
| Abb. 4.10: Zeitreihe der HNO <sub>3</sub> -Deposition mit (m.A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung<br>der Aerosolphase .....  | 46 |
| Abb. 4.11: Zeit-Höhenschnitt der Staub-Konzentration ohne Sedimentation.....   | 48 |
| Abb. 4.12: Zeit-Höhenschnitt der Staub-Konzentration mit Sedimentation. ....   | 48 |
| Abb. 4.13: Zeit-Höhenschnitt des mittleren Durchmessers. ....  | 48 |
| Abb. 5.1: Häufigkeitsverteilung der Windrichtung für die Jahre 1979-1992.....  | 49 |
| Abb. 5.2: Häufigkeitsverteilung der Windgeschwindigkeit für die Jahre 1979-1992. ....  | 50 |
| Abb. 5.3: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.....                                    | 51 |
| Abb. 5.4: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>des Januars 1994 gemittelt. ....  | 52 |
| Abb. 5.5: Mittlere Tagesgänge der NO <sub>2</sub> -Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.....                      | 52 |
| Abb. 5.6: Mittlere Tagesgänge der CO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.....                                    | 53 |
| Abb. 5.7: Mittlere Tagesgänge der O <sub>3</sub> -Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.....                       | 53 |
| Abb. 5.8: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Mai bis August 1986-1995 gemittelt.....  | 55 |
| Abb. 5.9: Mittlere Tagesgänge der NO <sub>2</sub> -Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Mai bis August 1986-1995 gemittelt.....                            | 55 |
| Abb. 5.10: Mittlere Tagesgänge der CO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Mai-August 1986-1995 gemittelt. ....  | 56 |
| Abb. 5.11: Mittlere Tagesgänge der O <sub>3</sub> -Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage<br>der Monate Mai - August 1986-1995 gemittelt. ....                             | 56 |

|  |    |
|--|----|
| Abb. 5.12: Mittlerer Tagesgang der NO-Konzentration und die dazugehörige Standardabweichung. Die Daten wurden über alle Tage des Januars 1994 gemittelt. ....              | 57 |
| Abb. 5.13: Mittlerer Tagesgang der O <sub>3</sub> -Konzentration und die dazugehörige Standardabweichung. Die Daten wurden über alle Tage des Januars 1994 gemittelt. .... | 57 |
| Abb. 5.14: Horizontalverteilung der Windgeschwindigkeit in 18 m über Grund um 12 Uhr.  | 58 |
| Abb. 5.15: Horizontalverteilung der Tagesmitteltemperatur in 18 m über Grund für die winterliche Situation. ....   | 59 |
| Abb. 5.16: Horizontalverteilung des Tagesmittels der SO <sub>2</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....                                | 61 |
| Abb. 5.17: Horizontalverteilung des Tagesmittels der NO <sub>2</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....                                | 61 |
| Abb. 5.18: Horizontalverteilung des Tagesmittels der CO-Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....  | 62 |
| Abb. 5.19: Horizontalverteilung des Tagesmittels der O <sub>3</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....                                 | 62 |
| Abb. 5.20: Horizontalverteilung des Tagesmittels der HNO <sub>3</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....                               | 63 |
| Abb. 5.21: Horizontalverteilung des Tagesmittels der NO <sub>y</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....                                | 63 |
| Abb. 5.22: Horizontalverteilung der Tagesmitteltemperatur in 18 m über Grund für die sommerliche Situation. ....   | 64 |
| Abb. 5.23: Horizontalverteilung des Tagesmittels der SO <sub>2</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....                                | 66 |
| Abb. 5.24: Horizontalverteilung des Tagesmittels der NO <sub>2</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....                                | 66 |
| Abb. 5.25: Horizontalverteilung des Tagesmittels der O <sub>3</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....                                 | 67 |
| Abb. 5.26: Horizontalverteilung der O <sub>3</sub> -Konzentration um 15 Uhr in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....  | 67 |
| Abb. 5.27: Horizontalverteilung des Tagesmittels der HNO <sub>3</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....                               | 68 |
| Abb. 5.28: Horizontalverteilung des Tagesmittels der NO <sub>y</sub> -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation. ....                                | 68 |
| Abb. 5.29: Horizontalverteilung des Belastungsindex B in 18 m über Grund für eine winterliche Situation. ....  | 70 |



Abb. 5.30: Horizontalverteilung des Belastungsindex B in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation..... 71

**TABELLENVERZEICHNIS**

Tabelle 2.1: Zusammenstellung der Emissionsfaktoren für die Rinder- und Schweinehaltung; Angaben in kg NH<sub>3</sub> Tier<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> (ZAPF et al., 1995) ..... 13

Tabelle 3.1: Vergleich der Abschätzungen für Gesamtstaubemissionen in Baden-Württemberg mit Ergebnissen nach STLA und UMEG..... 21

Tabelle 3.2: Zusammenfassung der emissionsrelevantesten Prozesse in Baden-Württemberg, geordnet nach der abgeschätzten Feinstaubemission (PM<sub>10</sub>) 1996 .. 26

Tabelle 3.3: Vergleich der Abschätzungen für Gesamtstaub mit Emissionsfaktoransatz (EF) und Emissionserklärungen (E-ERKL) für relevante Produktionsprozesse ..... 31

Tabelle 3.4: Ergebnisse der Abschätzung der Ammoniakemissionen in Baden-Württemberg 1996 im Vergleich zu anderen Abschätzungen ..... 32

Tabelle 3.5: Ergebnisse der Emissionsabschätzungen für NMVOC, NO<sub>x</sub>, CO und SO<sub>2</sub> für Baden-Württemberg im Jahre 1996 ..... 34

Tabelle 5.1: Ausgewählte Grenzwerte zur Berechnung des Belastungsindex B ..... 69

Tabelle A.1: Einzelergebnisse der Emissionsabschätzung für die betrachteten Prozesse/Quellgruppen für primäre Stäube in Baden-Württemberg ..... 78

## **ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS**

|                   |  |
|-------------------|--|
| BImSchG           | Bundes-Immissionsschutzgesetz  |
| BImSchV           | Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes  |
| CO                | Kohlenmonoxid  |
| CTM               | Chemisches Transportmodell   |
| DRAIS             | Dreidimensionales Regionales Ausbreitungs- und Immissions-Simulationsmodell  |
| DTV               | Daily Traffic Volume   |
| E-ERKL            | Emissionserklärungen (s. UMEG, 1999a)  |
| EZMWF             | Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersagen  |
| KAMM              | Karlsruher Atmosphärisches Mesoskaliges Modell   |
| KFZ               | Kraftfahrzeug  |
| LKW               | Lastkraftwagen   |
| LNF               | Leichte Nutzfahrzeuge  |
| LTO               | Landing & Takeoff  |
| MADE              | Modales Aerosol-Dynamik Modell für Europa  |
| NH <sub>3</sub>   | Ammoniak   |
| NMVOC             | Non Methane Volatile Organic Compounds (flüchtige organische Komponenten ohne Methan)  |
| NO <sub>x</sub>   | Stickstoffoxide  |
| O <sub>3</sub>    | Ozon   |
| PAN               | Peroxyacetylnitrat   |
| PKW               | Personenkraftwagen   |
| PM                | Particulate matter, Gesamtstaub  |
| PM <sub>10</sub>  | Partikel, die einen gröbselektierenden Lufteinlaß passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 10 µm eine Abscheidewirksamkeit von 50 % aufweist.  |
| PM <sub>2,5</sub> | Partikel, die einen gröbselektierenden Lufteinlaß passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 2,5 µm eine Abscheidewirksamkeit von 50 % aufweist. |
| RADM2             | Regional Acid Deposition Model   |
| REKLIP            | Regio-Klimaprojekt   |
| SO <sub>2</sub>   | Schwefeldioxid   |
| SZ                | Sattelzugmaschinen   |
| UBA               | Umweltbundesamt, Berlin  |
| VOC               | Volatile Organic Compounds (flüchtige organische Komponenten)  |
| WZ 93             | Klassifizierung der Wirtschaftszweige (ab 1993)  |

# 1 Einleitung und Zielsetzung

Die Entwicklung von Modellinstrumentarien zur Simulation von Emission, Transmission (Transport und chemische Umwandlung) und Immission von Luftverunreinigungen ermöglicht die Untersuchung der wesentlichen Verursacherbereiche von Schadstoffemissionen und -immissionen, der Schadstoffminderungspotentiale und der Auswirkungen von Minderungsstrategien auf regionale Immissionssituationen.

In dem hier dargestellten Pilotvorhaben werden als wesentliche Grundlagen zur Entwicklung von schadstoff- und sektorübergreifenden Luftreinhaltestrategien für ausgewählte Luftverunreinigungen erforderliche Methoden und Modelle zur Ermittlung von Emission, Immission und Deposition erarbeitet bzw. erweitert sowie die hierzu notwendigen Daten beschafft. Ziel ist die Entwicklung bzw. Weiterentwicklung von Instrumentarien zur Simulation der Entstehung und Verteilung von atmosphärischen Belastungen an den derzeit stark in der Diskussion stehenden Luftverunreinigungen Feinstaub und Ozon in Baden-Württemberg.

Das Projekt erfolgt als Zusammenarbeit zwischen dem Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER) der Universität Stuttgart, in dem in den letzten Jahren zahlreiche Projekte zur Simulation hoch aufgelöster Emissionsdaten bearbeitet worden sind, und dem Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) der Universität bzw. des Forschungszentrums Karlsruhe, welches sich u.a. seit langem intensiv mit atmosphärischen Ausbreitungs- und chemischen Transportmodellen (CTM) befaßt.

Den hauptsächlichen inhaltlichen Schwerpunkt stellt das Gebiet der Feinstäube dar, deren gesundheitsschädigenden Wirkungen neueren Erkenntnissen zufolge bislang unterschätzt wurden, und für die noch keine adäquaten Simulationsmodelle (Emissionsmodelle, Chemie-Transport-Modelle) zur Verfügung stehen. Die wesentliche Motivation ergibt sich hierbei durch die im April 1999 verabschiedete 1. Tochterrichtlinie zur EU-Luftqualitäts-Rahmenrichtlinie, welche sehr niedrige Immissionsgrenzwerte u.a. für Feinstaub ( $PM_{10}$ ) festlegt. Diese ab 2005 bzw. 2010 geltenden Grenzwerte von  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bzw.  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  im Jahresmittel werden derzeit in Deutschland oftmals überschritten, weshalb es erforderlich ist, die Ursachen der Feinstaubbelastung zu identifizieren sowie Maßnahmen zur Minderung der Belastungen einzuleiten.

Aufbauend auf komplexen Methoden zur Berechnung der Emissionen "klassischer" Luftverunreinigungen (wie Schwefeldioxid ( $SO_2$ ), Stickstoffoxide ( $NO_x$ ), Kohlenmon-

oxid (CO) und flüchtige organische Komponenten ohne Methan (NMVOC)), welche vom IER in der Vergangenheit im Rahmen mehrerer Forschungsvorhaben entwickelt und angewendet wurden, wird deshalb ein Instrumentarium erarbeitet, welches die Abschätzung von sektoralen und die Berechnung von zeitlich und räumlich hoch aufgelösten Emissionsdaten der primären Feinstäube ermöglicht. Hierbei auftretende Unsicherheiten und Kenntnislücken werden ermittelt und dargestellt. Aufgrund der Beteiligung von Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) an der Bildung sekundärer Aerosole werden die Arbeiten als Erweiterung bisheriger Betrachtungen gasförmiger Luftverunreinigungen auch die Emissionen an Ammoniak mit einbeziehen. Erste Abschätzungen der Jahresemissionen dieses Gases in Baden-Württemberg wurden in der Vergangenheit schon getroffen, für eine zeitliche sowie auch eine hohe räumliche Auflösung standen ausgereifte Methoden jedoch bisher noch nicht zur Verfügung.

Am IMK erfolgt die Implementierung eines Aerosolmodells in das in der Vergangenheit erarbeitete mesoskalige Atmosphären-Modellsystem KAMM/DRAIS, welches die Simulation der Bildung von sekundären Aerosolen aus gasförmigen Vorläufersubstanzen ermöglicht. Mit Hilfe des erweiterten Modellsystems werden erste Untersuchungen der Feinstaubbelastungen in Baden-Württemberg durch primär und sekundär entstandene Anteile vorgenommen, ausgehend von den am IER erstellten hoch aufgelösten Emissionsdaten für primäre Stäube und der gasförmigen Vorläufersubstanzen  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_x$  und  $\text{SO}_2$ .

Des Weiteren erfolgt am IMK ergänzend die Weiterentwicklung der Modellierung atmosphärischer Prozesse von Photooxidantien und deren Vorläufersubstanzen ( $\text{NO}_x$ , NMVOC und CO) in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung und, im Gegensatz zu den bisher geleisteten Arbeiten in früheren PEF-Projekten, erstmals auch im Rahmen von erweiterten Untersuchungen, die Rückschlüsse auf die Gesamtbelastung während eines Jahres zulassen. Die hierzu benötigten hoch aufgelösten Emissionsdaten für die Ozon-Vorläufersubstanzen werden ebenfalls vom IER erstellt.

Insgesamt beinhaltet das Pilotvorhaben die folgenden Arbeitsschritte:

- Ermittlung der Emissionen an Feinstaub, Ammoniak und den bereits untersuchten Komponenten in Baden-Württemberg ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ , NMVOC, CO),
- Entwicklung von Methoden und Modellen zur Berechnung hoch aufgelöster Emissionsdaten für Gesamt- und Feinstaub und für  $\text{NH}_3$ ,
- Weiterentwicklung und Anwendung vorhandener Atmosphärenmodelle unter Einbeziehung von Aerosolpartikeln, insbesondere zur Simulation der Bildung von sekundären Aerosolen aus gasförmigen Vorläufersubstanzen

- Weiterentwicklung und Anwendung bisheriger Modelle zur Simulation der Ozonentstehung und -verteilung

In Kapitel 2 werden die Grundlagen der Emissionsabschätzung und -modellierung erläutert. Es erfolgt für die Ermittlung der jährlichen Emissionen der betrachteten Luftverunreinigungen jeweils die Darstellung der Vorgehensweise und der verwendeten Datengrundlagen. Anschließend wird die Methodik und Datenbasis zur Werkstellung einer zeitlichen und räumlichen Auflösung der abgeschätzten Jahresemissionsdaten erläutert.

In Kapitel 3 werden die Ergebnisse der Emissionsberechnungen anhand von Jahresemissionen der betrachteten Sektoren und zeitlich und räumlich hoch aufgelösten Emissionsdaten dargestellt. Im Anschluß an die Darstellung findet eine Ergebnisinterpretation statt und erfolgen Betrachtung der Unsicherheiten und Kenntnislücken, welche sich derzeit bei diesen Arbeitsschritten ergeben.

Kapitel 4 stellt die Methodik der Modellierung der Aerosolbildung und -ausbreitung mit dem Modellsystem KAMM/DRAIS dar und gibt Ergebnisse der Anwendung dieses Modellsystems wieder.

Anschließend erfolgt in Kapitel 5 die Modellierung der Immissionen von Aerosolen, Ozon und deren gasförmigen Vorläufersubstanzen. Hierzu werden zunächst Untersuchungen einer winterlichen und einer sommerlichen Situation vorgenommen. Darauf aufbauend werden mit Hilfe eines schadstoffübergreifenden Belastungsindex Betrachtungen der Gesamtbelastungen der Atmosphäre in Baden-Württemberg vorgenommen.

In Kapitel 6 werden die Schlußfolgerungen dieser Arbeit zusammengefaßt, Ausblicke für die Anwendung der Projektergebnisse gegeben und weiterer Forschungsbedarf innerhalb der Zielsetzung, schadstoff- und sektorübergreifende Modelle zur Emissions-, Immissions- und Depositionsbetrachtung zu entwickeln, aufgezeigt.

## **2 Methodik der Ermittlung von sektoralen und zeitlich und räumlich hoch aufgelösten Emissionsdaten in Baden-Württemberg**

### **2.1 Jahresemissionen an primären Stäuben**

Eine wesentliche Grundlage des Projektes ist die Ermittlung der jährlich emittierten Stoffmengen unter Berücksichtigung der Emittentenstruktur bzw. Emissionsursachen. Abgeschätzte Jahresemissionen werden unterteilt nach den jeweiligen Verursachergruppen als Basisdaten für die darauf aufbauenden Modellierungen verwendet. Eine Untersuchung der Emittentenstruktur auf Prozessebene liefert einen Überblick über die Emissionsrelevanz einzelner Emittentengruppen und läßt eine Identifizierung der relevanten Aktivitäten bzw. Prozesse zu. Da im Rahmen des Projektes keine eigenen Messungen von Emissionen vorgenommen werden, stellt eine systematische Zusammenstellung verfügbarer Angaben und der sie bestimmenden Parameter die Grundlage für die Ermittlung der Jahresemissionen emissionsrelevanter anthropogener Prozesse dar. Die Zusammenstellung und Analyse dieser über umfangreiche Datenrecherchen gewonnenen Informationen strebt eine möglichst vollständige Erfassung der relevanten Quellen an, jedoch bestehen bei diesen Basisdaten zum Teil noch erhebliche Kenntnislücken und Unsicherheiten.

#### **2.1.1 Vorgehensweise**

Für den Bereich der primären Stäube sind zur Abschätzung der jährlichen Emissionen in Baden-Württemberg die nachstehenden Sektoren zu berücksichtigen:

##### **Verkehr:**

- Diesel- und Ottomotoren des Straßenverkehrs
- Reifen- und Bremsenabrieb des Straßenverkehrs
- sonstiger Verkehr (Flug-, Bahn-, Schiffsverkehr)
- sonstige Verbrennungsmotoren (Motoren in der Land-, Forst-, Bauwirtschaft, Industrie, bei Freizeitaktivitäten (z. B. Gartenpflege) und beim Militär)

##### **Feuerungen (energiebedingte Emissionen):**

- Kraft- und Fernheizwerke
- Industrielle Feuerungsanlagen
- Feuerungen der Haushalte und Kleinverbraucher (einschl. Militär)

für die relevanten festen, flüssigen und gasförmigen Energieträger (einschl. Müllverbrennung)

**Produktions- und sonstige Prozesse/ Umschlag von staubenden Gütern (prozeßbedingte Emissionen):**

- Emissionen aus Produktionsprozessen in Baden-Württemberg, wie die Herstellung von

Baustoffen: Schotter, Ziegel, Zement, Kalk, Gips, Frischbeton, Keramik, Feuerfestprodukte, Glas, Glas- und Mineralfasern, Asphaltmischgut, Bitumendachbahnen u.a.

Chemieprodukten: anorganische Grundstoffe, Raffinationprodukte aus Erdöl, Chemiefasern, Kunststoffe, Farben und Lacke, Carbide, Seifen, Säuren, Gummi, Dünger

Nahrungsmitteln: geräucherte, gemahlene, geröstete Waren, Prozesse in der Landwirtschaft u.a.

Metallen: Stahl, Aluminium, EST-Guß, NE-Metallguß, FE-Legierungen, Verzinkereien, Lackierereien

Sonstigen Produkten: Spanplatten, Zellstoff, Papier, Druckwaren, Aufbereitung von Kohlen, Gewinnung v. Stein- und Siedesalz

und sonstigen Prozessen wie

Feuerwerke, Krematorien, Motorenprüfstände, Bauschutttaufbereitung, Abfallsortierung etc.

- Umschlag staubender Güter im Binnenschiff-, Eisenbahn- und LKW-Verkehr für Stoffe wie etwa Getreide und Futtermittel, Kohle, Koks, Erze, Sand, Kies und Natursteine

Nicht betrachtet werden in diesem Projekt natürliche Staubemissionen, wie etwa in Form von Blütenstaub oder Bodenerosion.

Die Abschätzung der jährlichen Staubemissionen in Baden-Württemberg erfolgt mittels Emissionsberechnungen für einzelne Prozesse bzw. Aktivitäten über den Emissionsfaktoransatz und über die Auswertung der dem Land vorliegenden Emissionserklärungen von Betreibern genehmigungsbedürftiger Feuerungs- und Produktionsanlagen in Baden-Württemberg. Diese Erklärungen wurden zuletzt im Jahre 1996 entsprechend den Vorgaben der 11. BImSchV (Emissionserklärungsverordnung) erhoben. Hierbei ist zu berücksichtigen, daß nicht für alle genehmigungsbedürftigen Anlagen nach der 4. BImSchV (Verordnung über genehmigungspflichtige Anlagen) eine Emissionserklärung erfolgen muß.

Für die Berechnung der jährlich emittierten Staubmengen relevanter Quellgruppen werden prozeßspezifische Emissionsfaktoren, Korngrößenverteilungsfaktoren und Angaben zum Umfang emissionsrelevanter Aktivitäten in Baden-Württemberg (Produktions-, Verbrauchs- und Umschlagzahlen) benötigt. Die Abschätzung erfolgt mittels Multiplikation der Emissionsfaktoren für Gesamtstaub (PM) mit der jeweils zugehörigen Aktivität und, zur Ermittlung der Feinstaubemissionen ( $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$ ), mit durchschnittlichen Feinstaubanteilen in Abgasen der betrachteten Prozesse.

Zur Auswertung der Angaben für stationäre Anlagen in den Emissionserklärungen werden die von der UMEG aufbereiteten Daten (E-ERKL, 1996) anhand der anlagen-spezifischen Nummer aus dem Anhang der 4. BImSchV und der Klassifikation der Wirtschaftszweige (WZ 93) einzelnen Verursacherbereichen zugeordnet. Es erfolgt hierbei eine Disaggregation der Emissionen auf Ebene einzelner Herstellungsprozesse. In einigen Fällen können parallele Berechnungen über den Emissionsfaktoransatz vorgenommen und die Ergebnisse mit den Angaben aus den Emissionserklärungen verglichen werden. Zur Quantifizierung der freigesetzten Feinstaubmengen werden die in den Emissionserklärungen ausgewiesenen Gesamtstaubemissionen mit über die Datenrecherche ermittelten prozeßspezifischen Feinstaubanteilen multipliziert.

### **2.1.2 Datengrundlagen**

Wesentlich für die Vorgehensweise einer Emissionsabschätzung ist die Verfügbarkeit der benötigten Daten für die relevanten Quellen bzw. Quellgruppen in einer ausreichend disaggregierten Form.

Als wesentliche Datenquellen für Emissionsfaktoren und Feinstaubanteile werden Untersuchungen vom oder im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA) und Studien der Environmental Protection Agency (EPA) in den USA herangezogen. Darüber hinaus liegen für einzelne Bereiche weitere, aktuelle Untersuchungen vor. Neben dieser recherchierten Datenbasis kann hinsichtlich der stationären Quellen auf die direkten Angaben der Gesamtstaubemissionen (PM) für einzelne Anlagen in den Emissionserklärungen zurückgegriffen werden. Die Zusammenstellung der staubrelevanten Aktivitäten basiert im wesentlichen auf den Publikationen des Statistischen Landesamtes (z. B. STLA, 1998a und 1998b) und der Auswertung von Emissionserklärungen. Des weiteren erfolgen direkte Befragungen von Fach- bzw. Industrieverbänden.



### 2.1.2.1 Verkehr

Die Berechnung der Partikelemissionen des Straßenverkehrs wird mit einer am IER erstellten Quantifizierung der Verkehrsleistung vorgenommen. Diese wurde in Form von Fahrleistungen der einzelnen Fahrzeugtypen

- Personenkraftwagen (PKW),
- Krafträder,
- leichte Nutzfahrzeuge (LNF),
- Lastkraftwagen (LKW, mit und ohne Anhänger),
- Busse und
- Sattelzüge (SZ)

über Auswertungen von Verkehrszählungen und mittels der digitalisierten Straßendatenbank des Landes ermittelt. Hierbei werden die Fahrleistungen auf allen relevanten inner- und außerörtlichen Straßenklassen berücksichtigt. Die zur Abschätzung verwendeten Emissionsfaktoren für Rußemissionen aus Dieselmotoren des Straßenverkehrs wurden vom UBA in Zusammenarbeit mit der schweizerischen INFRAS (1995) entwickelt. Bei diesen Daten ist mit zum Teil erheblichen Unsicherheiten zu rechnen. Die Partikelemissionen aus dem Betrieb von Ottomotoren im Straßenverkehr werden mit einem mittleren Emissionsfaktor nach CONCAWE (1998) abgeschätzt. Der Anteil der Feinstäube ( $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$ ) in Abgasen von Kraftfahrzeugen im Straßenverkehr wird nach UBA (1/1999) mit 100 % angenommen.

Für die Quantifizierung des Reifenabriebs im Straßenverkehr werden Emissionsfaktoren aus einer in Berlin durchgeführten Untersuchung angesetzt (GEBBE et al., 1998). Diese Daten wurden mittels Profiltiefenmessungen für unterschiedliche Fahrzeugtypen, Leistungs-, Gewichtsklassen und Antriebsarten ermittelt. Angaben zu Feinstaubanteilen des Reifenabriebs und der Straßenverkehrsemissionen an Bremsenabrieb liegen aus Untersuchungen nach RAUTERBERG-WULFF (1998) vor, welche ebenfalls in Berlin und für einzelne Straßenabschnitte bestimmt wurden. Die vorliegenden Angaben zu Bremsen- und Reifenabrieb gelten somit weitgehend für spezifische Verkehrssituationen in Berlin und können streng genommen nicht ohne weiteres auf Baden-Württemberg übertragen werden. Die Ergebnisse dieser Emissionsbetrachtungen sind somit als erste Grobabschätzungen anzusehen. Die  $PM_{2,5}$ -Anteile bei den Emissionen an Bremsen- und Reifenabrieb werden ebenfalls nach RAUTERBERG-WULFF (1998) angesetzt.

Für die Ermittlung der Emissionen des sonstigen Verkehrs werden, außer für den Flugverkehr, aktuelle Emissionsfaktoren des UBA verwendet (UBA, 9/1998a). Die

Abschätzung der Emissionen aus dem Flugverkehr wird mit einem mittleren Emissionsfaktor für Start- und Landevorgänge (LTO-Zyklen) in Deutschland nach HÜTTIG et al. (1994) vorgenommen. Die Aktivitäten in Form von Kraftstoffverbräuchen (Bezugsjahr 1995) werden hierbei für die jährlichen Flugbewegungen in Baden-Württemberg bis zu einer Höhe von 1.000 m (hauptsächlich ausgehend vom Flughafen Stuttgart) nach UMEG (1998) angesetzt. Der  $PM_{10}$ -Anteil im Sektor sonstiger Verkehr wird analog UBA (6/1998) pauschal mit 90 % und für den Flugverkehr nach TNO (1997) mit 100 % der Gesamtstaubemissionen angenommen. Eine Betrachtung der Emissionsanteile an  $PM_{2,5}$  erfolgt basierend auf Angaben nach TNO (1997).

Für die sehr heterogene Emittentengruppe der sonstigen Verbrennungsmotoren (sonstige Fahrzeuge und mobile Geräte im Offroad-Bereich) stehen nur im einzelnen gemessene Emissionsfaktoren zur Verfügung (BUWAL, 1994 und 1996). Deshalb werden mittels Brennstoffindizes nach UBA (1989) bzw. BUWAL (1994) und anhand der jährlichen Kraftstoffverbräuche für 1995 nach UMEG (1998) Grobabschätzungen vorgenommen. Der Feinstaubanteil wird ebenfalls mit 90 % der Gesamtstaubemissionen angenommen. Eine Angabe zu den  $PM_{2,5}$ -Emissionen aus diesem Bereich liegt derzeit nicht vor, es wird deshalb unter Annahme eines Anteils analog zum Betrieb von Dieselmotoren im Sektor sonstiger Verkehr nach TNO (1997) eine erste Abschätzung vorgenommen.

#### **2.1.2.2 Feuerungsprozesse (energiebedingte Emissionen)**

Für die Darstellung der Emissionssituation von Feuerungsprozessen in öffentlichen und industriellen Kraft- und Heizwerken werden die Angaben der Emissionserklärungen (Bezugsjahr 1996) ausgewertet. Bei den Industriefeuerungen sind hierbei die Emissionen der genehmigungsbedürftigen Feuerungen des Sektors Kleinverbraucher abzuziehen, da die gesamten Emissionen aus dem Sektor Kleinverbraucher über eine eigene Methodik ermittelt werden. Die Emissionen aus Prozeßfeuerungen der Industrie werden nicht als energiebedingte Emissionen geführt, sondern dem Sektor Produktionsprozesse zugeteilt. Des weiteren wird zur Berücksichtigung der nicht genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen in der Industrie ein energetischer Abgleich zwischen Energiebilanz und den Angaben aus den Emissionserklärungen zu den Brennstoffeinsätzen in Feuerungsanlagen vorgenommen. Die sich aus den Differenzen der beiden Datenquellen ergebenden fehlenden Emissionen werden mittels Emissionsfaktoren nach UBA (9/1998b) einbezogen.

Eine Abschätzung der Feinstaubemissionen erfolgt mit den derzeit vom UBA angesetzten pauschalen Feinstaubanteilen ( $PM_{10}$ ) von 95 % für Kraftwerksfeuerungen und

90 % für Industriefeuerungen (UBA, 6/1998). Diese Angaben stellen gemittelte Werte unter Berücksichtigung der in der Praxis eingesetzten Abgasreinigungssysteme dar. Da sich die Feinstaubanteile im Reingas je nach Entstaubungssystem in der Regel sehr unterscheiden, sind Abschätzungen der Feinstaubemissionen aus Feuerungsanlagen unterteilt nach der Entstaubungsart und ggf. nach Technologie- und Brennstoffspezifikationen, wünschenswert. Die derzeitige Datenlage läßt dies jedoch nur in Einzelfällen zu. Durch neuere Untersuchungen an Feuerungsanlagen, welche beispielsweise in mehreren Bundesländern geplant bzw. in der Durchführung sind, erscheinen in naher Zukunft differenziertere Abschätzungen möglich.

Für die Berechnung der Emissionen aus Feuerungsanlagen von Haushalten und Kleinverbrauchern (einschl. Militär) wird auf ein am IER entwickeltes Berechnungsmodell zurückgegriffen (BLANK et al., 1999). Als mittlere brennstoffspezifische Emissionsfaktoren für die Sektoren Haushalte und Kleinverbraucher werden Angaben des UBA (9/1998b) für die wichtigsten festen, flüssigen und gasförmigen Brennstoffe verwendet. Für die Feinstaubanteile kann derzeit wiederum nur ein pauschaler Wert von 90 % nach UBA (6/1998) angesetzt werden. Die Ermittlung der emissionsverursachenden Aktivitäten erfolgt ausgehend von der Energiebilanz Baden-Württemberg (STLA, 1998a). Hierbei ist abweichend von der amtlichen Statistik der Holzverbrauch in den Sektoren Haushalte und Kleinverbraucher aus einer an der Universität Stuttgart erstellten Abschätzung nach DREISEIDLER & BAUMBACH (1999) angesetzt worden. Die Verbrauchsangabe in der Energiebilanz liegt deutlich niedriger als das Ergebnis dieser Studie, da die Statistik nur die kommerziell gehandelte Holzmenge erfaßt.

Für den Sektor Feuerungsprozesse werden zur Abschätzung der  $PM_{2,5}$ -Emissionen  $PM_{2,5}$ -Anteile für einzelne Emittentengruppen aus den Ergebnissen einer Emissionsabschätzung für Deutschland nach TNO (1997) (Bezugsjahr 1993) angenommen.

### **2.1.2.3 Produktions- und sonstige Prozesse/Umschlag staubender Güter**

Für die emissionsrelevanten Anlagen in industriellen Produktionsprozessen liegen zumeist Angaben aus den Emissionserklärungen vor, welche die Emissionssituation für die jeweils in Baden-Württemberg insgesamt auftretende Aktivität der entsprechenden Emittentengruppen hinreichend flächendeckend darstellen. Zu diesem Bereich werden auch die als prozeßbedingt angesehenen Emissionen gerechnet, welche infolge von Brennstoffeinsätzen in den Prozeßfeuerungen der Industrie entstehen.

Bei einigen Produktionsprozessen, wie etwa der Herstellung von Ziegeln und Keramik oder bei Röstereien in der Nahrungsmittelproduktion, sind lediglich Anlagen ab

einer in der 4. BImSchV genannten Anlagenleistung genehmigungspflichtig. Hier kann eine Darstellung der Emissionssituation nur anhand der Auswertung von Emissionserklärungen eine nicht unerhebliche Unterschätzung bedeuten. In diesen Fällen werden deshalb bei Vorliegen eines plausiblen Emissionsfaktors nach UBA bzw. EPA und statistischen Aktivitätsdaten die Staubmengen über den Emissionsfaktoransatz berechnet und die Emissionserklärungen für die sektorale Abschätzung nicht herangezogen. Bei diesen Emittentengruppen sind somit auch Emissionen aus nicht genehmigungsbedürftigen Anlagen eingerechnet worden. Eine Berücksichtigung der Angaben aus den Emissionserklärungen erfolgt bei der räumlichen Auflösung der Emissionen, wobei die Angaben aus den Emissionserklärungen Punktquellen zugeordnet und die Differenzen zum Emissionsfaktoransatz als Emissionen aus Flächenquellen dargestellt werden (vgl. 2.4). Aus der Darstellung der Ergebnisse für die einzelnen Emittentengruppen in Tabelle A.1 im Anhang geht die jeweils herangezogene Datenquelle hervor.

Analog wird für den Bereich des Güterumschlags vorgegangen, da auch hier damit zu rechnen ist, daß die Angaben der Emissionserklärungen die Emissionssituation in einigen Fällen nur unvollständig beschreiben können. Emissionserklärungspflichtig sind hier generell nur Anlagen mit einer Umschlagleistung von über 200 t/Tag und bei Getreideannahmestellen von über 400 t/Tag. Für die Quantifizierung der Staubemissionen infolge des Umschlags staubender Güter werden neben Angaben aus den Emissionserklärungen im wesentlichen Emissionsfaktoren nach UBA (11/1999) verwendet und eine Abschätzung der umgeschlagenen Mengen anhand von Produktions- und Einfuhrzahlen nach STLA (1998b und 1998c) vorgenommen. Der  $PM_{10}$ -Anteil wird derzeit nach UBA (11/1999) mit im Mittel 20 % angenommen, für die Emissionen an  $PM_{2,5}$  stehen Angaben nach TNO (1997) zur Verfügung. Es wird als eine grobe Annahme jeweils von einem einfachen Umschlag der Gütermengen ausgegangen. Die jeweils verwendete Datenquelle ist in Tabelle A.1 genannt.

Eine Betrachtung der Staubemissionen von nicht emissionserklärungspflichtigen Anlagen ist in einigen Fällen derzeit nicht möglich. Insbesondere für Betriebe unter 20 Beschäftigten liegen keine aktuellen flächendeckenden Angaben zur Verfügung, da die Produktionsstatistiken des Statistischen Landesamtes diese Betriebe in der Regel nicht erfassen. Die Emissionen dieser Emittentengruppen sind somit in der nachfolgenden Abschätzung nicht mit einbezogen. Nur von einzelnen Aktivitäten in diesem Bereich wie etwa der Be- und Verarbeitung von Holz, Lackierereien in Kleinbetrieben und Steinbrüche sind nicht vernachlässigbare Emissionen zu erwarten. Neben einer Recherche nach aktuellen Aktivitätsdaten sind hier insbesondere

weitere Erkenntnisse zu den spezifischen Emissionen dieser Emittentengruppen erforderlich, um erste fundierte Abschätzungen liefern zu können. Gleiches gilt für andere Prozesse, wie etwa die Erstellung und den Abbruch von Gebäuden, nicht genehmigungsbedürftige Tierhaltungen und sonstige Prozesse in der Landwirtschaft (z. B. Bodenbearbeitungen), deren Emissionen bislang nicht abgeschätzt werden können. Hierbei handelt es sich im wesentlichen um Emittenten von mechanisch erzeugten Stäuben, die vermutlich nur eine untergeordnete Relevanz hinsichtlich der Feinstaubbelastung besitzen.

Die Angaben aus den Emissionserklärungen repräsentieren insgesamt über 90 % der ermittelten Emissionen aus dem Sektor Produktionsprozesse und 14 % beim Umschlag staubender Güter. Die  $PM_{10}$ -Anteile werden generell mit prozeßspezifischen Angaben aus der Literatur und hierbei insbesondere nach UBA (6/1998) abgeschätzt.

Bei der Gewinnung von Stein- und Siedesalz, welche nicht dem BImSchG unterliegt, wird eine Grobabschätzung der Staubemissionen mit Hilfe eines Emissionsfaktors nach UBA (6/1998) vorgenommen, welcher derzeit mit starken Unsicherheiten behaftet ist. Zudem bleibt zu klären, inwiefern diese Stäube wasserunlösliche Feinstaubanteile beinhalten und somit analog zu anderen anthropogenen Feinstaubemissionen eine hohe gesundheitliche Relevanz besitzen. Als weiterer emissionsrelevanter Prozeß wird das Abfeuern von Feuerwerken in Baden-Württemberg berücksichtigt. Eine erste Abschätzung der hieraus entstehenden Staubemissionen wird über Verwendung eines auf die Einwohnerzahl bezogenen Emissionsfaktors nach BUWAL (1995) und eines pauschalen Feinstaubanteiles für Feuerungsprozesse nach UBA (6/1998) von 90 % vorgenommen.

Bei den derzeit vom UBA angesetzten Emissionsfaktoren für stationäre Quellen handelt es sich generell um Abschätzungen unter Berücksichtigung von derzeit bestehenden Minderungsmaßnahmen in den einzelnen Sektoren. Diese Emissionsfaktoren stellen zumeist aggregierte Angaben dar, welche für einen gesamten Herstellungsprozeß anzusetzen sind und zum großen Teil auf Messungen beruhen, die in den 80er Jahren im Auftrag des UBA an einzelnen Anlagen durchgeführt und bei denen auch  $PM_{10}$ -Anteile meßtechnisch ermittelt wurden. Insbesondere die angegebenen Emissionsfaktoren für diffuse Quellen sind mit großen Unsicherheiten behaftet. Sehr lückenhaft ist auch der Kenntnisstand bezüglich der  $PM_{2,5}$ -Anteile der in Deutschland emittierten Partikeln, hierzu liegen dem UBA nur vereinzelt Meßergebnisse vor.

Ergänzend stellt die Dokumentation der EPA zu Emissionsfaktoren anthropogener Quellen (EPA, 1998) eine Zusammenstellung von Meßergebnissen aus verschiedenen, meist amerikanischen Literaturquellen zur Verfügung. Die umfangreiche EPA-

Dokumentation deckt im Vergleich zu den UBA-Angaben insbesondere den Bereich der Produktionsprozesse vollständiger ab und beinhaltet zahlreiche Detailangaben. So werden sowohl für unterschiedliche, alternative Anlagenarten und Produktionsverfahren als auch für verschiedene Entstaubungssysteme Angaben gemacht. Diese Daten sind nach Einschätzung der EPA teilweise sehr unsicher, des Weiteren ist die Übertragbarkeit der EPA-Angaben auf deutsche Verhältnisse nicht gesichert.

In vielen Fällen ermöglichen die derzeit erhältlichen Daten somit nur eine ungenügende Differenzierung nach Prozeß- bzw. Anlagenspezifikationen und vorhandenen Abgasreinigungssystemen, oder liefern keinen vollständigen und konsistenten Überblick über die in Deutschland eingesetzte Technologie. In diesen Fällen können in der Praxis auftretende Unterschiede auf Technologieebene noch nicht ausreichend berücksichtigt werden, und es muß von einer Übertragbarkeit einzelner anlagenspezifischer Emissionsfaktoren auf die entsprechenden Emittentengruppen ausgegangen werden. Abhilfe versprechen hier zahlreiche geplante oder in der Durchführung befindliche Meßprogramme mehrerer Bundesländer und des UBA an stationären Anlagen, welche sowohl zu anlagenspezifischen Emissionen als auch zu Feinstaubanteilen in nächster Zeit wesentliche neue Erkenntnisse erwarten lassen, so daß zukünftig detailliertere Abschätzungen zur Identifizierung der relevanten Verursacher und zur genaueren Quantifizierung der Emissionen möglich erscheinen.

Als Ergänzung bzw. Vergleich zu den in der Statistik genannten Produktionsmengen ausgewählter Güter nach STLA (1998b) können für zahlreiche Produktionsprozesse aus den Daten in den Emissionserklärungen Aktivitäten abgeschätzt werden. Dies erfolgt über Verknüpfung der Angaben zur Leistung, mittleren Auslastung und den jährlichen Betriebsstunden der Anlagen oder über die Angaben zu den gehandhabten Stoffen. Diese Daten sind zum Teil unvollständig, ein Nachvollziehen und Überprüfen der Richtigkeit ist in der Regel nicht möglich.

Die Rechercheergebnisse reichen gegenwärtig nicht aus, um eine Gesamtabschätzung der  $PM_{2,5}$ -Emissionen aus diesem Sektor, ausgehend von den Emissionsdaten einzelner Herstellungsprozesse, vornehmen zu können. Nach TNO (1997) lassen sich ebenfalls sektorale  $PM_{2,5}$ -Anteile der  $PM_{10}$ -Emissionen für Produktionsprozesse und den Umschlag staubender Güter ableiten, welche im folgenden für eine erste pauschale Abschätzung angesetzt werden.

## 2.2 Jahresemissionen an NH<sub>3</sub>

Anthropogene Emissionen an Ammoniak entstehen im wesentlichen im Sektor Landwirtschaft. Demgegenüber ist für die Emissionen aus industriellen Prozessen weitgehend nur eine geringe Bedeutung zu erwarten. Erste Abschätzungen der jährlichen Ammoniak-Emissionen in Baden-Württemberg finden sich in (MÜNCH et al., 1994). Für 1991 werden dabei Gesamtemissionen in Höhe von 56.650 t NH<sub>3</sub>-N (entspricht ca. 68.800 t NH<sub>3</sub>) angegeben. Auf Quellen aus dem landwirtschaftlichen Bereich, d. h. auf die Nutztierhaltung sowie den Einsatz von Wirtschaftsdünger und Mineraldünger, entfällt diesen Abschätzungen zufolge ein Anteil von insgesamt rund 80 %.

Im Vordergrund der zunächst durchzuführenden Ermittlung von NH<sub>3</sub>-Jahresemissionen aus der Landwirtschaft steht daher die Aktualisierung bzw. Neuberechnung o. g. Emissionsdaten auf der Basis neuerer Tierbestandsdaten sowie unter Einbeziehung zusätzlicher Informationen bzgl. Emissionsfaktoren und emissionsbestimmenden Parametern. Um auch die in Abschnitt 2.4 diskutierte zeitliche Disaggregation der NH<sub>3</sub>-Emissionen durchführen zu können, welche in der Untersuchung von (MÜNCH et al., 1994) nicht enthalten ist, sind zudem Modifikationen der bisher verwendeten Datengrundlage erforderlich. So sind die Emissionen bei der Stall- bzw. Weidehaltung sowie im Falle der Stallhaltung die Lagerung und die Ausbringung von Gülle bzw. Festmist jeweils getrennt zu betrachten, da diesen Emissionsursachen jeweils unterschiedliche Zeitgänge zuzuordnen sind. Eine entsprechende Zusammenstellung von Emissionsfaktoren für die emissionsseitig besonders relevante Rinder- und Schweinehaltung findet sich in (ZAPF et al., 1995) und ist in Tabelle 2.1 wiedergegeben. Altersstrukturen der Tierbestände sind hierbei bereits berücksichtigt.

Tabelle 2.1: Zusammenstellung der Emissionsfaktoren für die Rinder- und Schweinehaltung; Angaben in kg NH<sub>3</sub> Tier<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> (ZAPF et al., 1995)

| Tierart  | Haltung      | Stall | Lagerung | Ausbringung | Weide |
|----------|--------------|-------|----------|-------------|-------|
| Rinder   | Spaltenböden | 4,2   | 6,0      | 19,8        |       |
|          | Einstreu     | 6,0   | 19,8     | 4,2         | 9,7*  |
| Schweine | Spaltenböden | 1,0   | 2,0      | 2,0         |       |
|          | Einstreu     | 1,0   | 3,3      | 0,7         |       |

\* Zahlenwert bezieht sich auf eine Dauer der Weidehaltung von 6 Monaten pro Jahr

Bei der Anwendung obiger Emissionsfaktoren wird davon ausgegangen, daß 65 % der Rinder und 50 % der Schweine im Stall auf Einstreu, d. h. unter Anfall von Festmist, gehalten werden, während 35 % der Rinder und 50 % der Schweine auf Spaltenböden, d. h. unter Anfall von Gülle, gehalten werden. Ferner wird angenommen, daß rund 20 % der Rinder während der Sommermonate (Mai bis Oktober) auf der Weide gehalten werden.

Als weitere relevante  $\text{NH}_3$ -Quelle im Sektor Landwirtschaft ist die Ausbringung von Mineraldünger zu betrachten. Aus landesweiten Angaben zum Einsatz verschiedener Mineraldünger werden zunächst die Dünger-N-Mengen ermittelt, und anschließend mit Emissionsfaktoren multipliziert, welche die Freisetzungsrates als Anteil des eingesetzten Dünger-Stickstoffs angeben. Die aus (ISERMANN, 1990) abgeleiteten Emissionsfaktoren bewegen sich in vergleichbarer Größenordnung wie die in (MÜNCH et al., 1994) zusammengestellten Literaturwerte. Für Kalkammonsalpeter, NP-Dünger sowie NK/NPK-Dünger wird ein Stickstoffverlust von 2 % der eingesetzten Dünger-N-Mengen als Emission angenommen, für Ammoniumnitrat und Harnstofflösungen werden Verluste von 10 %, und für sonstige Einnährstoffdünger Stickstoffverluste von 15 % angenommen.

Neben den bereits diskutierten Ammoniak-Quellen in der Landwirtschaft werden auch die  $\text{NH}_3$ -Emissionen aus Feuerungsanlagen sowie aus Produktionsprozessen in emissionserklärungspflichtigen Anlagen in Baden-Württemberg ermittelt bzw. die in (MÜNCH et al., 1994) bereits vorhandenen Abschätzungen ergänzt und aktualisiert. Hinsichtlich nicht genehmigungsbedürftiger Feuerungen in der Industrie werden brennstoffbezogene  $\text{NH}_3$ -Emissionsfaktoren des Umweltbundesamtes (UBA, 5/1999) in den Berechnungen der Emissionen eingesetzt. Für die Feuerungsanlagen der Kleinverbraucher liegen ebenfalls brennstoffbezogene Emissionsfaktoren des UBA vor. Diese werden auch für die Abschätzung der Ammoniakemissionen aus den Haushaltsfeuerungen verwendet, da für diesen Sektor derzeit keine verwertbaren Emissionsfaktoren vorliegen. Für genehmigungsbedürftige Feuerungen und Produktionsanlagen werden vorliegende Emissionserklärungen ausgewertet (UMEG, 1999a).

### **2.3 Jahresemissionen an $\text{SO}_2$ , $\text{NO}_x$ , NMVOC und CO**

Zur Berechnung der jährlichen Emissionen an Schwefel- und Stickoxiden, Kohlenmonoxid und flüchtigen organischen Verbindungen in Baden-Württemberg werden im wesentlichen Modelle eingesetzt, wie sie bereits in früheren Vorhaben zur An-



wendung kamen. Ausführliche methodische Erläuterungen finden sich hierzu in (OBERMEIER, 1995), (SEIER, 1997) und (JOHN, 1999), eine zusammenfassende Darstellung der Berechnungsmethodik ist z. B. in (OBERMEIER et al., 1997) enthalten. Neben einer entsprechenden Aktualisierung der Eingangsdatenbasis dieser Modelle wurden teilweise auch vorliegende neuere Erkenntnisse einbezogen, so z. B. vom TÜV Rheinland überarbeitete Emissionsfaktoren für Kaltstarts im Straßenverkehr (s. SONNBORN et al., 1997), und neu ermittelte Emissionsfaktoren für Feuerungsanlagen in Haushalten und bei Kleinverbrauchern (s. PFEIFFER & BAUMBACH, 1999).

## **2.4 Zeitliche und räumliche Auflösung von Emissionsdaten**

Eine zeitliche Disaggregation von jährlichen Emissionsdaten erfolgt anhand von prozeßspezifischen Zeitkurven, welche das Emissionsverhalten der Quellen in einem betrachteten Zeitraum charakterisieren und die Darstellung von Emissionsdaten z. B. als Stundenwerte ermöglichen. Bei diesem Arbeitsschritt kann vielfach auf Berechnungsansätze und Eingangsdaten bzw. entsprechend aktualisierte Eingangsdaten zurückgegriffen werden, wie sie in früheren Arbeiten erfolgreich eingesetzt und in Abschnitt 2.3 bereits exemplarisch zitiert wurden.

Eine wesentliche Ausnahme hiervon bilden die  $\text{NH}_3$ -Quellen in der Landwirtschaft, welche in früheren Arbeiten nicht berücksichtigt wurden. Für die Emissionen an primären Staubpartikeln können im wesentlichen die Angaben zum Emissionsverhalten der Emittentengruppen bezüglich der in bisherigen Arbeiten betrachteten gasförmigen Luftverunreinigungen übernommen werden.

Gezielte Untersuchungen zur Ermittlung der zeitlichen Variabilität der  $\text{NH}_3$ -Freisetzung in den verschiedenen Bereichen der Tierhaltung, der Lagerung und Ausbringung von Wirtschaftsdünger sowie der Ausbringung von Mineraldünger werden in (ZAPF et al., 1995) durchgeführt. Zusammengestellt werden hier sowohl Jahrgänge (ausgewiesen als Monatswerte) als auch Tagesgänge (angegeben in Stundenwerten), jeweils getrennt für die einzelnen Emissionsvorgänge. Zu den wesentlichen Parametern, welche die zeitliche Variabilität der Emissionen prägen, zählen meteorologische Größen (Temperatur, Windgeschwindigkeit, Niederschlag), tageszeitliche Schwankungen der Kot- und Harnabgabe von Tieren sowie die in der Landwirtschaft üblichen Zeiten zur Ausbringung von Wirtschaftsdünger und Mineraldünger. Abgeleitet aus (ZAPF et al., 1995) verdeutlicht Abbildung 2.1 aggregierte Jahrgänge für die Haltung von Rindern und Schweinen (einschl. Lagerung und Ausbringen von Festmist bzw. Gülle) sowie für das Ausbringen von Mineraldünger.

Die im Frühjahr und Spätsommer bzw. Herbst auftretenden Spitzenwerte bei der Haltung von Rindern sind darauf zurückzuführen, daß in diesen Zeiträumen die Ausbringung des anfallenden Wirtschaftsdüngers intensiviert wird. Die im Hochsommer temperaturbedingt erhöhten Emissionen aus der eigentlichen Stallhaltung werden dadurch überlagert. Hervorgerufen durch einen gewissen Anteil an Weidehaltung bewegen sich die Emissionsmaxima in der zweiten Jahreshälfte auf etwas niedrigerem Niveau. Demgegenüber sind die Emissionsmaxima bei der Schweinehaltung im Sommer- bzw. Spätsommer höher als im Frühjahr, da Schweine nicht auf der Weide gehalten werden. Im Falle des Jahresgangs der Emissionen aus der Ausbringung von Mineraldünger kommt zum Ausdruck, daß diese weit überwiegend vor Beginn der Wachstumsperiode erfolgt. Die Tagesgänge der  $\text{NH}_3$ -Emissionen für die einzelnen Freisetzungsprozesse sind ebenfalls aus (ZAPF et al., 1995) abgeleitet und in Abbildung 2.2 wiedergegeben.

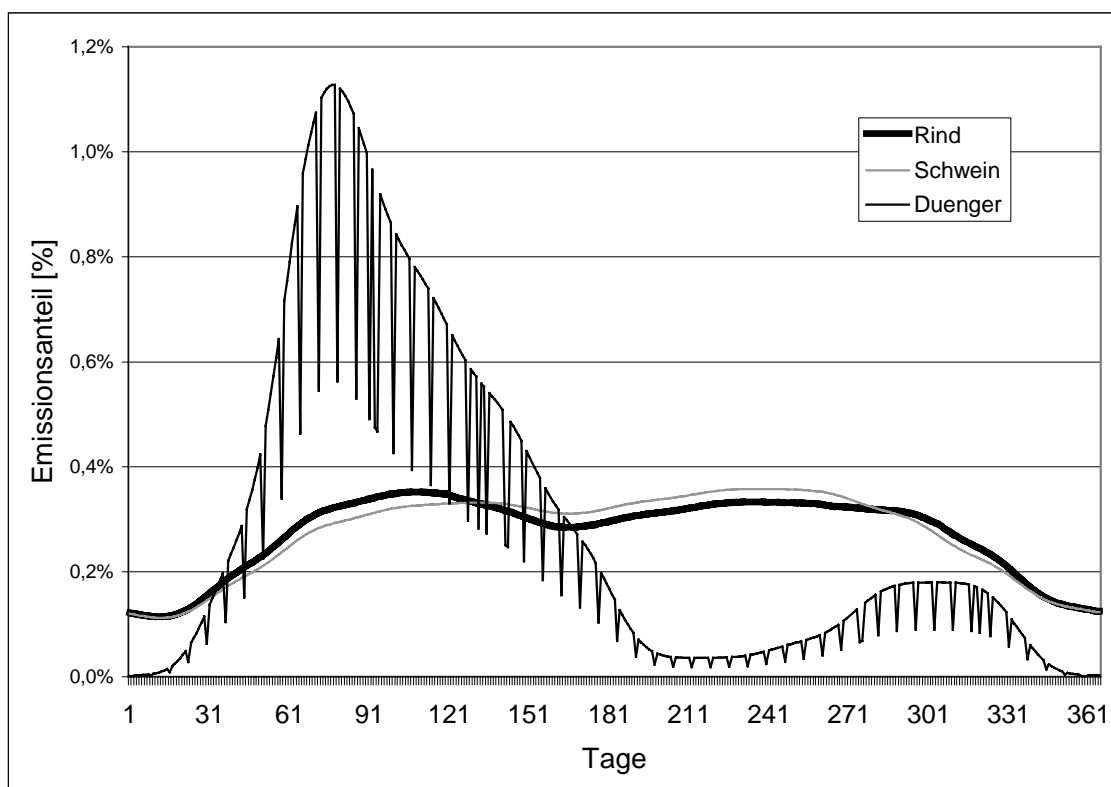


Abb. 2.1: Aggregierte Jahressgänge der  $\text{NH}_3$ -Emissionen aus der Landwirtschaft

Bei sämtlichen Prozessen werden während der Tagesstunden weitaus höhere stündliche Emissionsanteile veranschlagt als während der Nachtstunden. Lediglich die Gradienten des morgendlichen Anstiegs (insbesondere bedingt durch Temperaturanstieg bzw. Arbeitsbeginn) und abendlichen Abfalls (entsprechend Temperaturrückgang bzw. Arbeitsende) weisen je nach Quellgruppe Unterschiede auf.

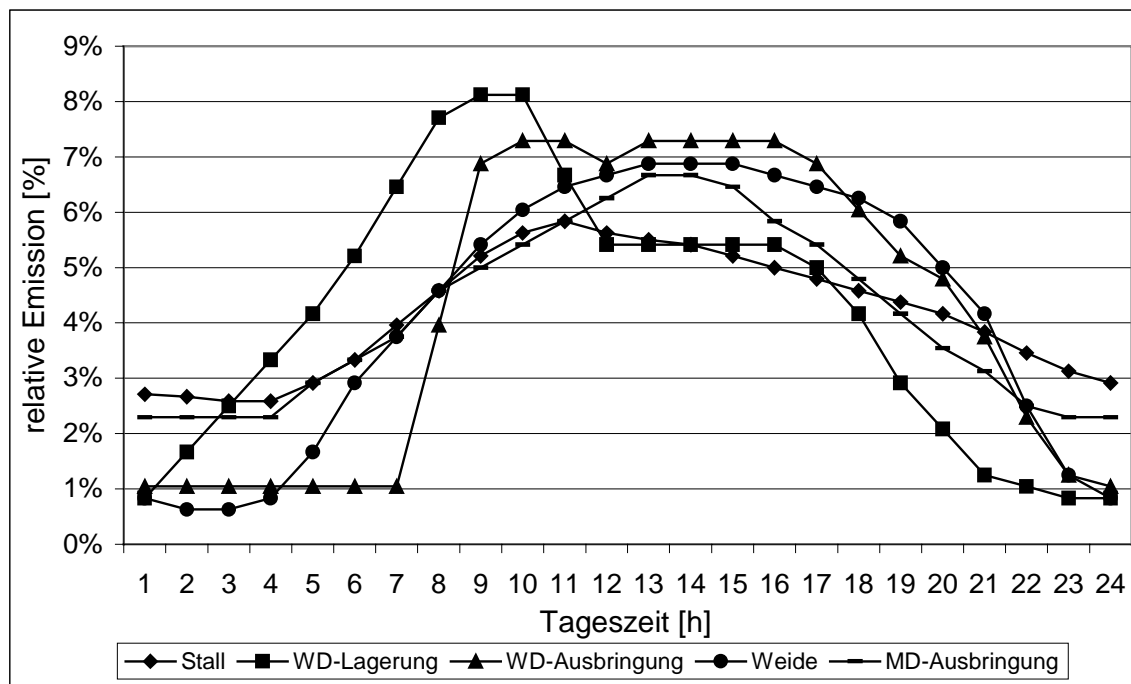


Abb. 2.2: Tagesgänge der NH<sub>3</sub>-Emissionen aus der Landwirtschaft (WD Wirtschaftsdünger; MD Mineraldünger)

Zur räumlichen Auflösung der jährlichen Emissionen erfolgen je nach Quellart (Punkt-, Linien- oder Flächenquellen) unterschiedliche Vorgehensweisen. Ziel ist die Verteilung der Emissionen auf ein die gesamte Fläche Baden-Württembergs abdeckendes Ausgabegitter in Form eines 1 x 1 km-Rasters.

Für als Punktquellen darstellbare stationäre Anlagen werden die Angaben zum Quellstandort (Gauß-Krüger-Koordinaten) aus den Emissionserklärungen verwendet und dem Ausgabegitter zugeordnet. Die Emissionen der Feuerungen in öffentlichen Kraftwerken und der hauptsächliche Teil der Emissionen aus Industriefeuerungen und Produktionsprozessen können als Punktquellen behandelt werden. Sofern bei einer Emittentengruppe nicht die gesamten Emissionen über Punktquellen darstellbar sind, wird jeweils die Differenz der über den Emissionsfaktoransatz abgeschätzten Emissionen und der summierten Emissionen der Punktquellen gebildet und als Emission von Flächenquellen betrachtet.

Als Linienquellen zu beschreiben ist der Verkehr auf Außerortsstraßen (Autobahnen, Bundes-, Landes- und Kreisstraßen). Die wesentlichen Eingangsdaten stellen die Straßendatenbank Baden-Württemberg sowie abschnittsbezogene Angaben zu den täglichen Verkehrsmengen (DTV-Mengen) dar.

Zu den Flächenquellen zählen Prozesse, welche aufgrund der Vielzahl der Einzel-emittenten nicht oder nur mit sehr hohem Aufwand den Emissionsentstehungsorten als Punkt- oder Linienquellen zugeordnet werden können, wie etwa Feuerungsprozesse der Haushalte und Kleinverbraucher, Verbrennungsmotoren im Offroad-Bereich und nicht genehmigungsbedürftige Produktions- und Umschlaganlagen. Auch die Emissionen des Sektors sonstiger Verkehr werden zum großen Teil aufgrund ihres nur geringen Anteils an den anthropogenen Emissionen der betrachteten Luftverunreinigungen als Flächenquellen behandelt, weitergehende Betrachtungen unter Einbeziehung der tatsächlichen räumlichen Verteilung der Emissionsentstehung sind für zukünftige Emissionsabschätzungen angestrebt.

Um für die Emissionen der Flächenquellen eine räumliche Verteilung auf Kreisebene zu erstellen, werden Indikatorgrößen angesetzt. Es handelt sich hierbei um verfügbare statistische Daten, welche mit dem Umfang emissionsrelevanter Aktivitäten in den einzelnen Bereichen korrelieren, wie etwa Bevölkerungszahlen, Beschäftigtenzahlen und Flächenanteile (z. B. landwirtschaftliche Nutzfläche). So werden beispielsweise für die Emissionen aus den Feuerungsanlagen der Industrie, welche sich aufgrund des energetischen Abgleichs zwischen Energiebilanz Baden-Württemberg und Emissionserklärungen ergeben und keinen Punktquellen zugeordnet werden können, branchenbezogene Beschäftigtenzahlen bzw. der Gesamtenergieverbrauch der Industrie je Kreis zur räumlichen Verteilung herangezogen. Dieses Vorgehen entspricht prinzipiell der Vorgehensweise zur räumlichen Auflösung der Emissionen von gasförmigen Verbindungen, wie sie beispielsweise in (OBERMEIER et al., 1997) vorgenommen worden ist. Für die Staubemissionen aus dem Umschlag staubender Güter in nicht genehmigungsbedürftigen Anlagen ist darüber hinaus eine Verteilung auf Kreisebene vorgenommen worden, welche ebenfalls auf branchenbezogenen Beschäftigtenzahlen basiert.

Eine weitergehende Auflösung der Emissionen aus Flächenquellen erfolgt mittels Verschneidung der Flächen der Landkreise mit den Rasterquadranten des Ausgabegitters. Hierzu werden Landnutzungsdaten analog den in der Vergangenheit vorgenommenen Arbeiten zur Erstellung hoch aufgelöster Emissionsdaten einbezogen.

Für die Regionalisierung der Ammoniakemissionen aus der Landwirtschaft wird zunächst auf kreisweise vorliegende Statistiken des Viehbestandes und der landwirtschaftlichen Nutzflächen zurückgegriffen. Die weitergehende räumliche Zuordnung zu Rasterflächen erfolgt auf der Grundlage von Landnutzungsdaten, die eine genauere Zuordnung der berechneten Emissionen auf die innerhalb der Kreise vorhandenen landwirtschaftlichen Nutzflächen ermöglichen.

## 3 Ergebnisse der Emissionsermittlungen

### 3.1 Primäre Stäube

#### 3.1.1 Jahresemissionen

Nachfolgend sind die Jahresemissionen an primären Stäuben in Baden-Württemberg im Jahr 1996 als Ergebnisse der Emissionsabschätzungen für die relevanten Emittenten bzw. Emittentengruppen dargestellt. Abbildung 3.1 gibt für die anthropogenen Hauptsektoren die summierten Emissionen an PM und  $PM_{10}$  und eine erste Abschätzung für  $PM_{2,5}$  wieder.

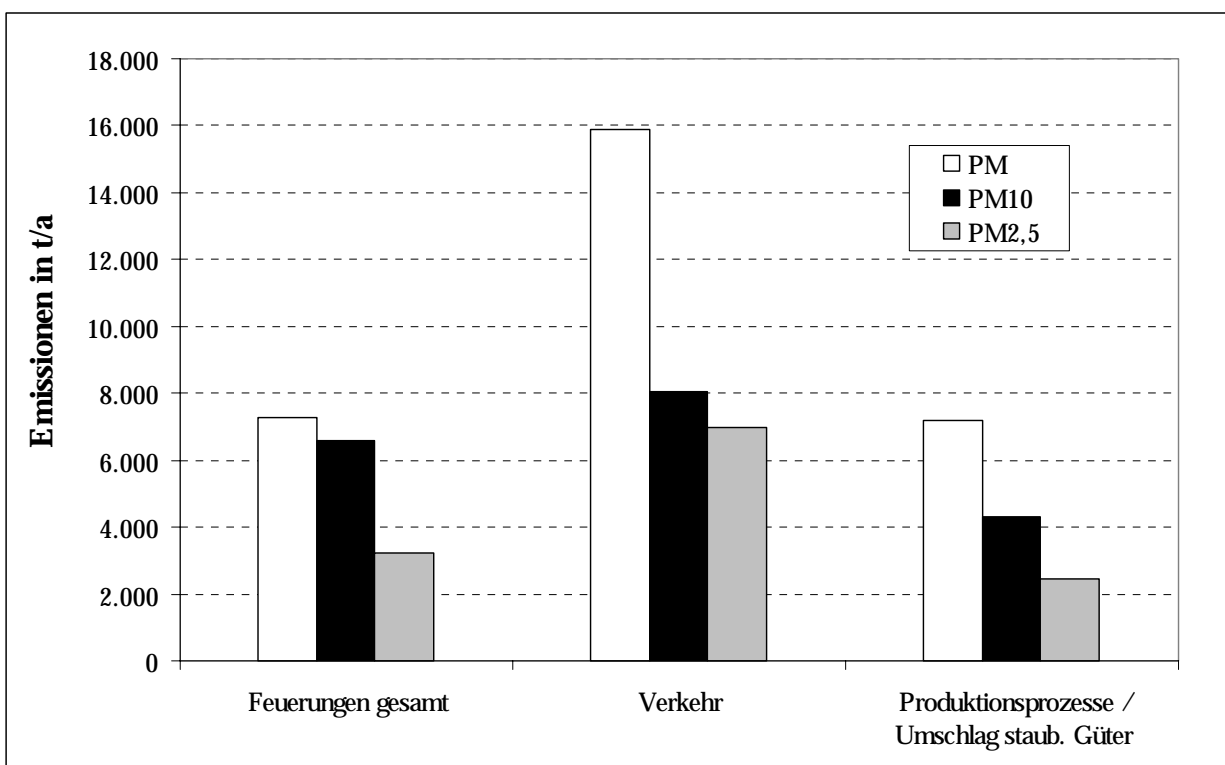


Abb. 3.1: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM,  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$  in Baden-Württemberg 1996 für die betrachteten Hauptsektoren

Bedingt durch die verschiedenen Entstehungsarten der Stäube ergeben sich für jeden Sektor unterschiedliche mittlere Feinstaubanteile an den Gesamtstaubemissionen.

Der Sektor Verkehr besitzt insgesamt die größte Relevanz, sowohl was die Emission von Gesamtstaub als auch von  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$  betrifft, gefolgt von den Feuerungsprozessen. Auch die prozeßbedingten Emissionen sind für die Belastung der Luft in Baden-Württemberg mit primären Feinstäuben bedeutend. In diesem Bereich kann es infolge einer Ausweitung der Betrachtungen auf bisher noch nicht berücksichtigte Prozesse, wie

etwa auf weitere Aktivitäten in nicht emissionserklärungspflichtigen Betrieben, zukünftig zu höheren Abschätzungsergebnissen kommen.

Insgesamt errechnet sich für Baden-Württemberg für die betrachteten Sektoren eine Jahresemission an Gesamtstaub von etwa 30,3 kt/a und an  $PM_{10}$  von 19 kt/a. Der Feinstaubanteil an der Gesamtstaubemission liegt im Mittel bei etwa 62 %. Die pauschale Abschätzung der Emissionen an  $PM_{2,5}$  ergibt für Baden-Württemberg eine Jahresmenge von etwa 12,7 kt/a, entsprechend 42 % des emittierten Gesamtstaubes.

Abbildung 3.2 gibt zur näheren Identifizierung der emissionsrelevanten Bereiche die Ergebnisse hinsichtlich Gesamtstaub (PM) und  $PM_{10}$  für alle Sektoren nach Verursacherbereichen bzw. der Staubentstehung differenziert und nach  $PM_{10}$  sortiert wieder.

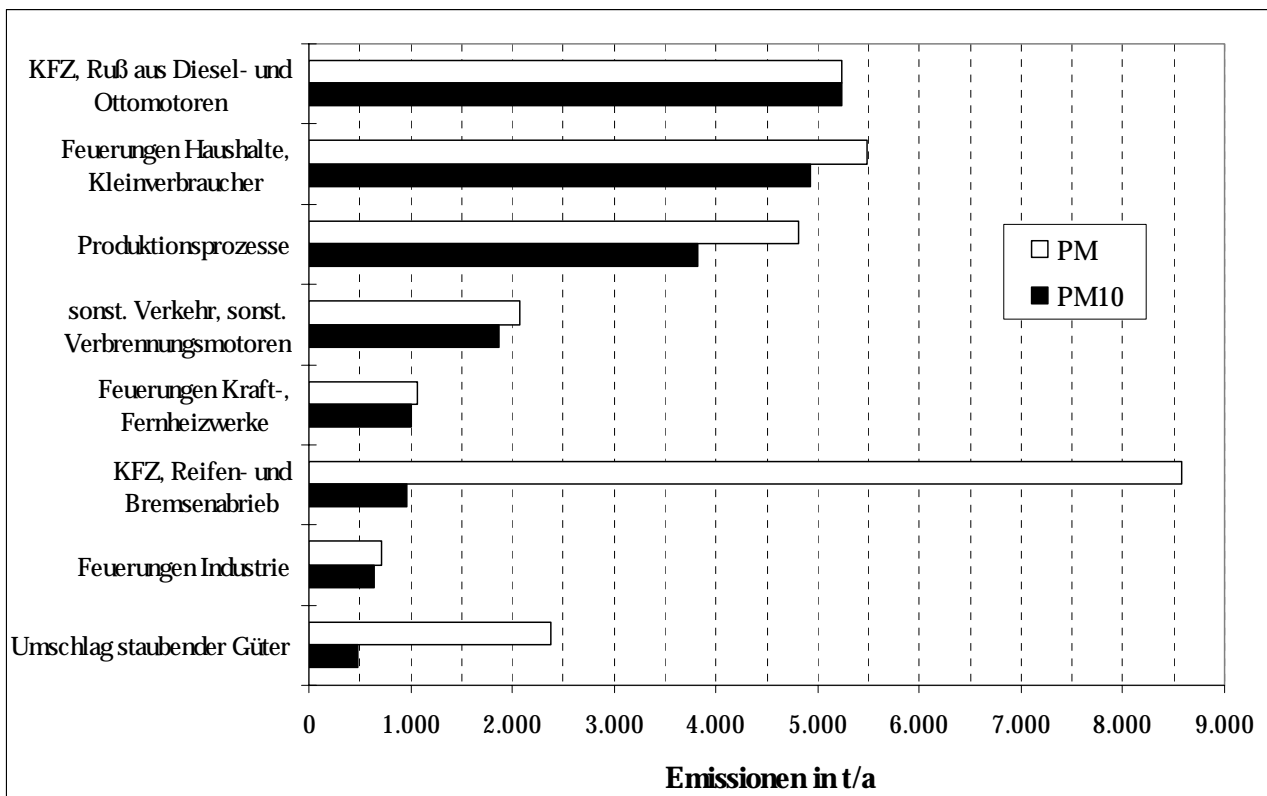


Abb. 3.2: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und  $PM_{10}$  in Baden-Württemberg 1996 differenziert nach Subsektoren bzw. Staubentstehung

Es wird hierbei deutlich, daß vor allem die Sektoren Straßenverkehr, Produktionsprozesse und Feuerungen von Haushalten und Kleinverbrauchern die hauptsächlichen Staubemittenten darstellen. Bedingt durch die mittlerweile hohen technischen Standards in der Abgasreinigung im Bereich der Kraftwerks- und Industriefeuerungen zählen diese Feuerungsprozesse insgesamt, trotz der erheblichen Aktivität, nicht mehr zu den mengenmäßig relevantesten Feinstaubemittenten. Eine weitergehende Differenzierung der Ergebnisse läßt aber auch in diesem Bereich für den Einsatz von bestimmten Energieträ-

gern besonders relevante Emittentengruppen feststellen (vgl. Abbildung 3.4). Auch der Umschlag staubender Güter besitzt nach der teilweisen Überarbeitung der bisher für Deutschland allgemein angenommenen Emissionsfaktoren durch das UBA eine weitaus geringere Relevanz als bislang angenommen. Da die vom UBA durchgeführte Überarbeitung derzeit noch nicht abgeschlossen ist, stellen die hier vorgenommenen Abschätzungen zur Emissionssituation des Schüttgutumschlags vorläufige Angaben dar.

In der nachfolgenden Tabelle ist eine Gegenüberstellung der Ergebnisse dieser Arbeit für Gesamtstaub mit Abschätzungen der Emissionssituation nach STLA (1997 und 1998d) und UMEG (1998 und 1999) wiedergegeben.

Tabelle 3.1: Vergleich der Abschätzungen für Gesamtstaubemissionen in Baden-Württemberg mit Ergebnissen nach STLA und UMEG

|   | <b>Ergebnisse<br/>für 1996, t/a</b> | <b>STLA, 1998<br/>für 1995, t/a</b> | <b>UMEG, 1998<br/>für 1995, t/a</b> |
|---|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| Straßenverkehr Dieselmotoren              | 5.194                               | 5.290                               | 4.826                               |
| Straßenverkehr Ottomotoren                | 46                                  | -                                   | -                                   |
| Straßenverkehr Reifen-, Bremsenabrieb     | 8.579                               | -                                   | -                                   |
| Sonstiger Verkehr (Bahn-, Schiff-, Flug-) | 516                                 | 1.055                               | 475                                 |
| Sonstige Verbrennungsmotoren              | 1.560                               | 1.059                               | 2.164                               |
| Feuerungen Kraft-/Fernheizwerke           | 1.060                               | 1.132                               | 1.101 <sup>3</sup>                  |
| Feuerungen Industrie                      | 714 <sup>1</sup>                    | 1.774                               | -                                   |
| Feuerungen Haushalte, Kleinverbraucher    | 5.484                               | 2.863                               | 1.786                               |
| Produktions- und sonstige Prozesse        | 4.813                               | 3.170 <sup>2</sup>                  | 6.120 <sup>4</sup>                  |
| Schüttgutumschlag                         | 2.372                               | -                                   | -                                   |
| <b>Summe</b>                              | <b>30.338</b>                       | <b>16.342</b>                       | <b>16.472</b>                       |

<sup>1</sup> nur energiebedingte Emissionen aus Industriefeuerungen (ohne Prozeßfeuerungen)

<sup>2</sup> für 1994, ausgewählte Produktionsprozesse (Eisen und Stahl, Gießereien, Verzinkereien, Chemische Industrie, Nahrungsmittelindustrie, Spanplattenherstellung) nach STLA (1997)

<sup>3</sup> für 1996, nach UMEG (1999)

<sup>4</sup> für 1996, inkl. Feuerungsanlagen Industrie, nicht genehmigungsbedürftige Anlagen im Gewerbe, genehmigungsbedürftiger Schüttgutumschlag, nach UMEG (1999)

Insgesamt ergibt sich aus der im Rahmen dieses Projektes vorgenommenen Abschätzung eine weitaus höhere Emission an Gesamtstaub als von STLA und UMEG angegeben werden, was im wesentlichen auf eine Ausweitung der bisherigen Betrachtungen um emissionsrelevante Bereiche wie den Umschlag staubender Güter und Emissionen durch Reifen- und Bremsenabrieb im Straßenverkehr zurückzuführen ist. Des weiteren ergibt die Abschätzung der Emissionen aus Feuerungsanlagen der Haushalte und Kleinverbraucher unter Verwendung des geschätzten Holzverbrauches in Baden-Württemberg nach DREISEIDLER & BAUMBACH (1999) eine weitaus höhere Staubemission als die Vergleichsschätzungen. Die unterschiedlichen Angaben bezüglich der Feuerungsanlagen in

der Industrie sind darauf zurückzuführen, daß im Gegensatz zu STLA und UMEG in dieser Arbeit eine Trennung in energiebedingte und prozeßbedingte Emissionen vorgenommen worden ist, d. h. daß im Sektor Produktionsprozesse die Emissionen aus den Prozeßfeuerungsanlagen der Industrie erfaßt werden.

In den folgenden Abbildungen werden die Ergebnisse für die einzelnen Bereiche nach Quellgruppen unterschieden und nach ihrer Feinstaubrelevanz geordnet wiedergegeben. In der Tabelle A.1 im Anhang sind die abgeschätzten Emissionen der Quellen/Quellgruppen im einzelnen wiedergegeben. Abbildung 3.3 stellt für den Sektor Verkehr die differenzierten Ergebnisse der Emissionsabschätzung dar.

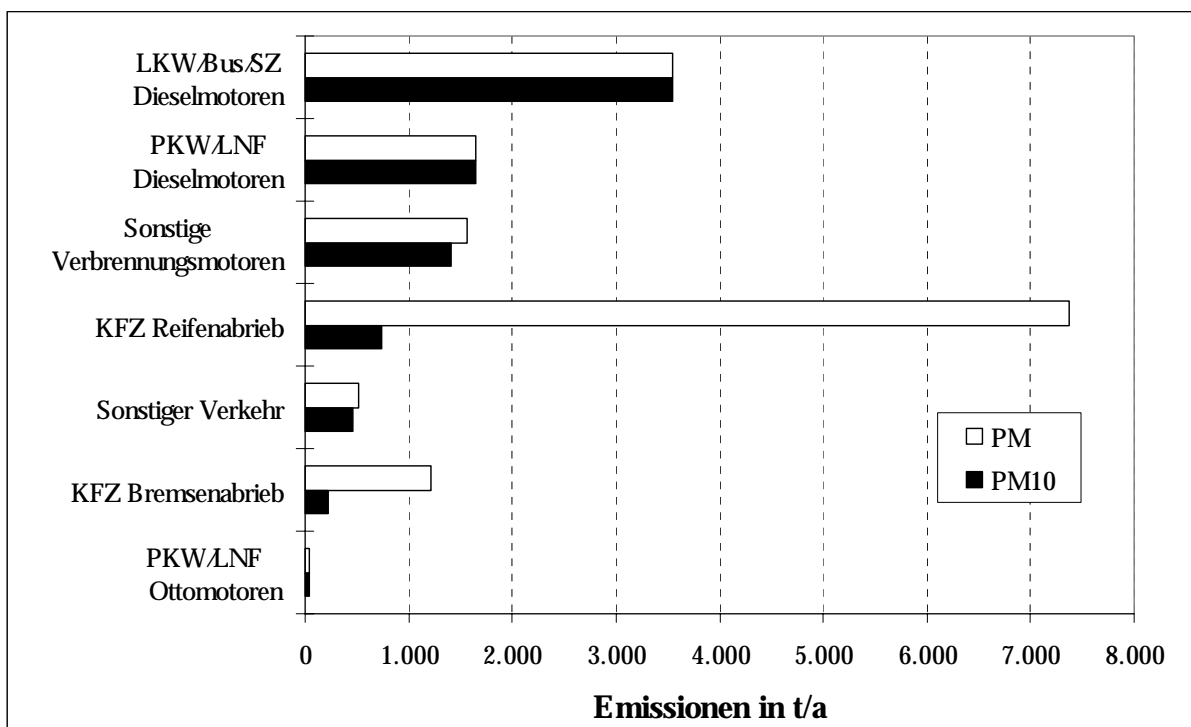


Abb. 3.3: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg 1996 für den Sektor Verkehr

Die Gesamtstaubemissionen durch den Sektor Verkehr werden im wesentlichen vom Reifenabrieb und den Dieselrußemissionen des Straßenverkehrs verursacht. Bedingt durch die Annahme eines Feinstaubanteils von 100 % beim Dieselruß und von nur etwa 10 % beim Reifenabrieb ergibt sich für die Dieselmotoren im Straßenverkehr ein Anteil an den Feinstaubemissionen des gesamten Sektors Verkehr von etwa 64 %. Hierbei dominieren die Emissionen der Lastkraftwagen. Wesentliche Beiträge liefern des weiteren sonstige Verbrennungsmotoren der Land-, Forst- und Bauwirtschaft, der Industrie und des Militärs im Offroad-Bereich. In diesem Bereich werden vor allem durch den Betrieb von landwirtschaftlichen Geräten/Fahrzeugen und Baumaschinen Partikel freigesetzt. Die



Partikelemissionen aus dem Betrieb von Ottomotoren im Straßenverkehr sind mengenmäßig vernachlässigbar.

Abbildung 3.4 gibt für den Bereich der Feuerungen in Kraft- und Fernheizwerken und der Industriefeuerungen die Ergebnisse unterteilt nach den Energieträgereinsätzen wieder.

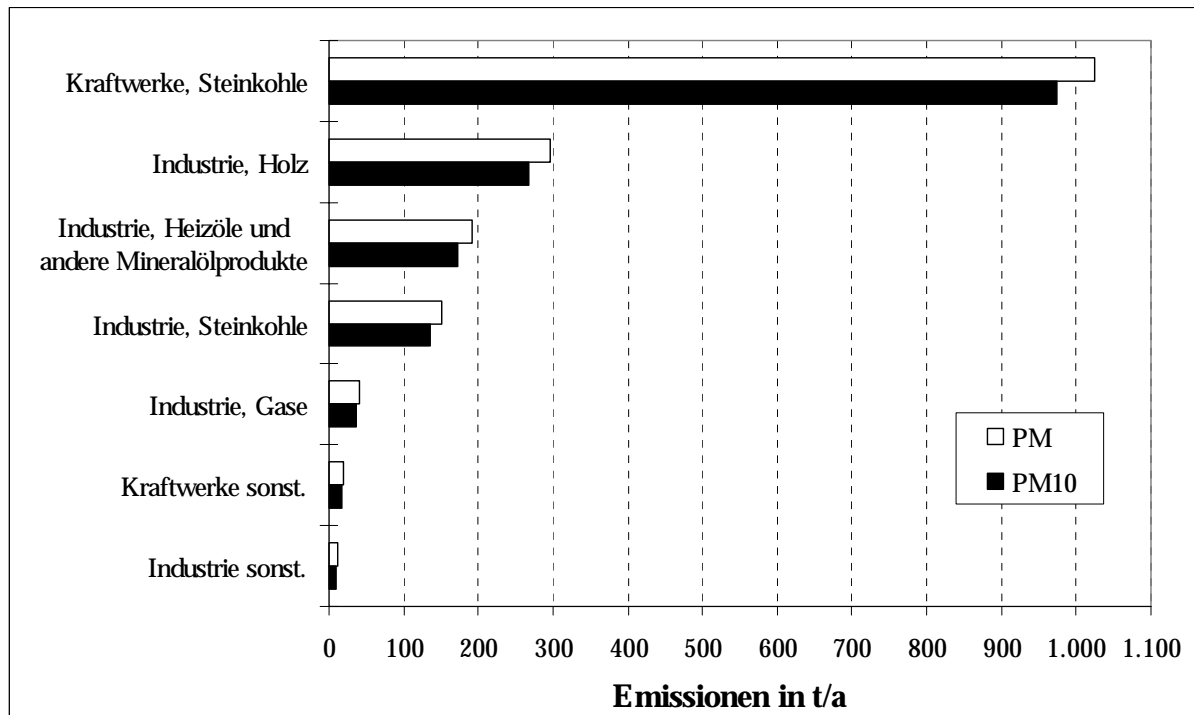
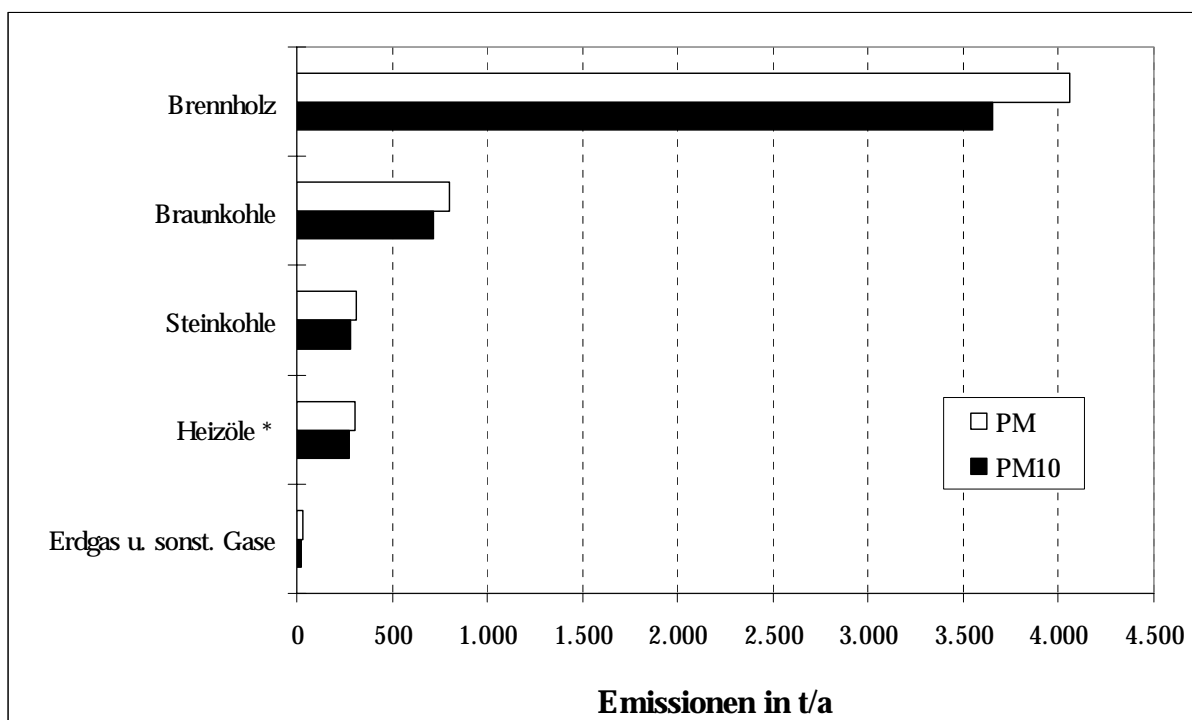


Abb. 3.4: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg 1996 für die Sektoren Feuerungen Kraft-, Fernheizwerke und Industrie nach eingesetzten Energieträgern

In öffentlichen Kraftwerken stellt Steinkohle den hauptsächlich eingesetzten Brennstoff dar. Da außerdem im Vergleich zu gasförmigen und flüssigen Brennstoffen die spezifischen Emissionsmengen deutlich höher sind, werden die Staubemissionen der dargestellten Feuerungsprozesse maßgeblich vom Steinkohleneinsatz verursacht. Weitere relevante Beiträge resultieren aus der Verfeuerung von Holz und Mineralölprodukten in Industriefeuerungen. Der Einsatz von Gasen als Brennstoffe in Kraftwerken und der Industrie erzeugt naturgemäß nur geringe Staubemissionen. Darüber hinaus läßt sich aus den Emissionserklärungen für die Müllverbrennung in Kraftwerken und in der Industrie eine Staubemission von etwa 16 t/a angeben. In Abbildung 3.5 sind für die Feuerungen von Haushalten und Kleinverbrauchern die Emissionen nach den eingesetzten Energieträgern differenziert dargestellt.



\* Anteil Emissionen durch Verfeuerung von Heizöl EL ca. 94 %

Abb. 3.5: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg 1996 für den Sektor Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher nach eingesetzten Energieträgern

Es zeigt sich in diesem Bereich deutlich die Dominanz der Staubemissionen infolge der Verfeuerung fester Brennstoffe und insbesondere von Holz. Der Einsatz von gasförmigen Brennstoffen verursacht auch bei den Feuerungsanlagen von Haushalten und Kleinverbrauchern mengenmäßig nur geringe Staubbefreiungen. Für die Verwendung von Heizölen (überwiegend Heizöl EL) errechnet sich eine nicht zu vernachlässigende Emission, welche deutlich über der aus dem Heizöleinsatz in Kraftwerken und der Industrie resultierenden Menge liegt.

Die Feuerungsanlagen der Kleinverbraucher sind für etwa 20 % der Stäube aus diesem Sektor sowohl aus der Verfeuerung von Holz als auch insgesamt verantwortlich. Die Feuerungsanlagen des Subsektors Militär besitzen einen Anteil an den Emissionen der Kleinverbraucher von unter einem Prozent.

Die nachstehende Abbildung gibt die Emissionen der relevantesten staubemittierenden Produktionsprozesse wieder. Als hinsichtlich ihrer Feinstaubemissionen weitaus bedeutendste Prozesse in Baden-Württemberg stellen sich die Produktion von Schotter und die Herstellung von Zement dar. Die acht dargestellten Produktionsprozesse verursachen etwa 3,3 kt/a PM und 2,7 kt/a PM<sub>10</sub>, entsprechend etwa 80 % der gesamten Staubbefreiung aus diesem Sektor. Bei den sonstigen Prozessen werden u. a. auch die Emissionen von

Feuerwerken in Baden-Württemberg betrachtet. In der aktuellen Abschätzung wird eine Freisetzung von etwa 364 t/a PM und 328 t/a PM<sub>10</sub> ermittelt.

Des weiteren läßt sich für die Gewinnung von Steinsalz mit dem Emissionsfaktor nach UBA (6/1998) eine Staubemission von etwa 300 t/a PM bzw. 240 t/a PM<sub>10</sub> abschätzen. Diese Angaben beruhen jedoch auf sehr unsicheren Basisdaten, so daß hier zu einer fundierteren Darstellung der Emissionssituation weitergehende Betrachtungen und gegebenenfalls meßtechnische Untersuchungen der entstehenden Abgasströme bei der Steinsalzgewinnung erforderlich sind.

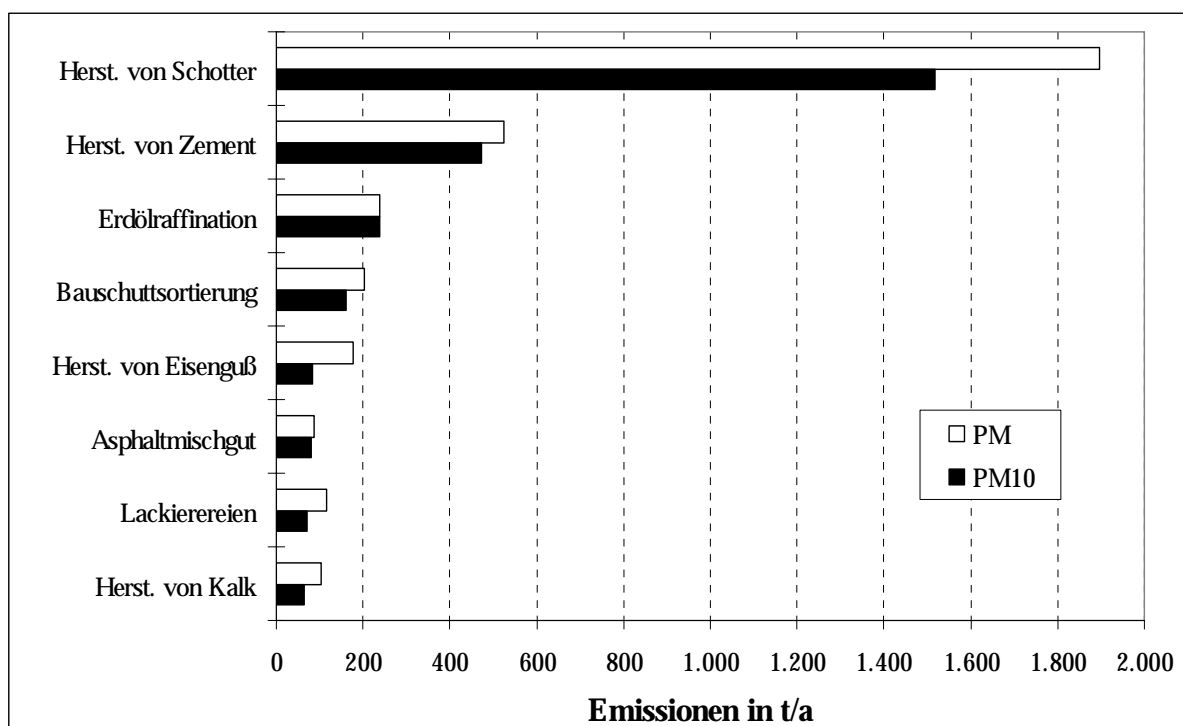


Abb. 3.6: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg 1996 für die Produktionsprozesse mit besonderer Relevanz

Die folgende Abbildung gibt die Ergebnisse der vorläufigen Emissionsabschätzungen für Umschlagprozesse unterteilt nach den betrachteten staubenden Gütern bzw. Güterklassen wieder. Im wesentlichen entstehen die Staubemissionen in diesem Bereich aufgrund des Umschlags von Sand, Kies, Getreide und Futtermitteln. Von den Gesamtemissionen lassen sich etwa 14 % anhand der Emissionserklärungen darstellen. Emissionen aus Umschlagprozessen, welche die Beschickung von Produktionsanlagen oder der Förderung und Verladung von Produkten auf den Firmengeländen darstellen, werden in der Regel den jeweiligen Produktionsprozessen und nicht dem Umschlag zugerechnet.

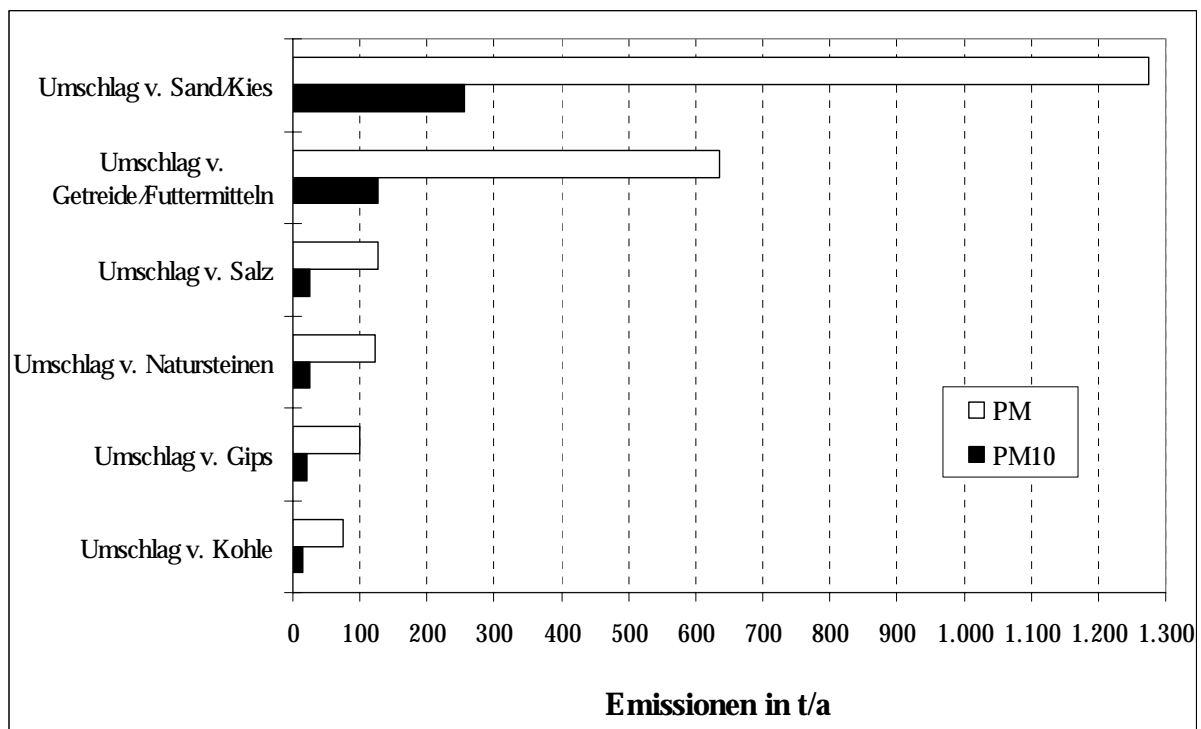


Abb. 3.7: Ergebnisse der Emissionsabschätzung für PM und PM<sub>10</sub> in Baden-Württemberg 1996 für die relevantesten Umschlagprozesse

In der folgenden Tabelle sind die für die Staubemissionen in Baden-Württemberg maßgeblichen Prozesse sektorübergreifend wiedergegeben und anhand ihrer Feinstaubrelevanz geordnet. Die genannten verursachenden Emittentengruppen sind für über 90 % der gesamten anthropogenen Feinstaubfreisetzungen im Jahre 1996 verantwortlich.

Tabelle 3.2: Zusammenfassung der emissionsrelevantesten Prozesse in Baden-Württemberg, geordnet nach der abgeschätzten Feinstaubemission (PM<sub>10</sub>) 1996

| Emittentengruppe                          | PM in t/a | PM <sub>10</sub> in t/a |
|---|-----------|-------------------------|
| Straßenverkehr Dieselmotoren LKW          | 3.541     | 3.541                   |
| Feuerungen Haushalte mit Brennholz        | 3.147     | 2.832                   |
| Straßenverkehr Dieselmotoren PKW/Kombi    | 1.653     | 1.653                   |
| Herstellung von Schotter aus Natursteinen | 1.898     | 1.519                   |
| Sonstige Verbrennungsmotoren (Offroad)    | 1.560     | 1.404                   |
| Feuerungen Kraftwerke mit Steinkohle      | 1.016     | 966                     |
| Feuerungen Kleinverbraucher mit Brennholz | 909       | 818                     |
| Straßenverkehr Reifenabrieb               | 7.368     | 737                     |
| Feuerungen Haushalte mit Braunkohle       | 796       | 717                     |
| Herstellung von Zement                    | 526       | 473                     |
| Abbrennen von Feuerwerken                 | 364       | 328                     |
| Feuerungen Haushalte mit Steinkohle       | 311       | 280                     |
| Schiffsverkehr (Dieselmotoren)            | 309       | 278                     |

| Emittentengruppe                        | PM in t/a | PM <sub>10</sub> in t/a |
|---|-----------|-------------------------|
| Feuerungen Industrie mit Holz           | 296       | 267                     |
| Umschlag von Sand und Kies              | 1.276     | 255                     |
| Erdölraffination                        | 239       | 239                     |
| Gewinnung von Steinsalz                 | 297 *     | 238 *                   |
| Feuerungen Haushalte mit Heizölen       | 199       | 179                     |
| Feuerungen Industrie mit Heizölen       | 191       | 172                     |
| Bauschuttsortierung                     | 201       | 161                     |
| Bahnverkehr (Dieseltraktion)            | 178       | 160                     |
| Feuerungen Industrie mit Steinkohle     | 150       | 135                     |
| Umschlag von Getreide und Futtermitteln | 635       | 127                     |

\* sehr unsichere Datenlage

### 3.1.2 Hoch aufgelöste Emissionsdaten

Nachfolgend werden ausgewählte Ergebnisse der Emissionsmodellierung für Feinstaub (PM<sub>10</sub>) wiedergegeben. In Abbildung 3.8 sind die Emissionen Baden-Württembergs in räumlicher Auflösung in einem 1 x 1 km-Raster dargestellt. Die räumlichen Belastungsschwerpunkte zeigen sich erwartungsgemäß in stark besiedelten Gebieten (stationäre Quellen) und entlang wichtiger Fernverkehrsverbindungen (Dieselruß aus KFZ). Relevante Punktquellen sind über ganz Baden-Württemberg verteilt als Belastungsspitzen erkennbar.

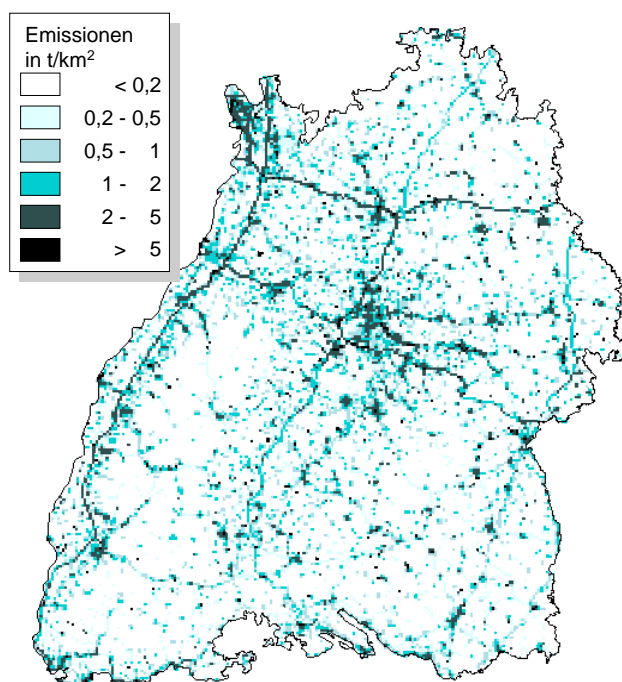


Abb. 3.8: Räumliche Verteilung der PM<sub>10</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

Die nachstehende Abbildung gibt den Jahresverlauf der Feinstaubemissionen in Baden-Württemberg wieder. Die jahreszeitlichen Schwankungen der Gesamtemissionen ergeben sich im wesentlichen durch die Feuerungsprozesse zu Heizzwecken, wie beispielsweise in Haushalten und bei Kleinverbrauchern. Bei den Emissionen des Verkehrs, der Kraftwerke und der meisten übrigen stationären Quellen ergeben sich keine sichtbaren jahreszeitlichen Schwankungen, jedoch zeigt sich ein deutlicher Wochengang infolge der starken Aktivitätsunterschiede zwischen Berufstätigkeit und Wochenende. Hier nehmen in der Regel die Emissionen am Wochenende stark ab, während sich bei den Heizaktivitäten keine wesentlichen Veränderungen zeigen. Beim Straßenverkehr werden hier die starken Emissionsanteile des LKW-Verkehrs deutlich, der am Wochenende weitaus stärker abnimmt als der PKW-Verkehr.

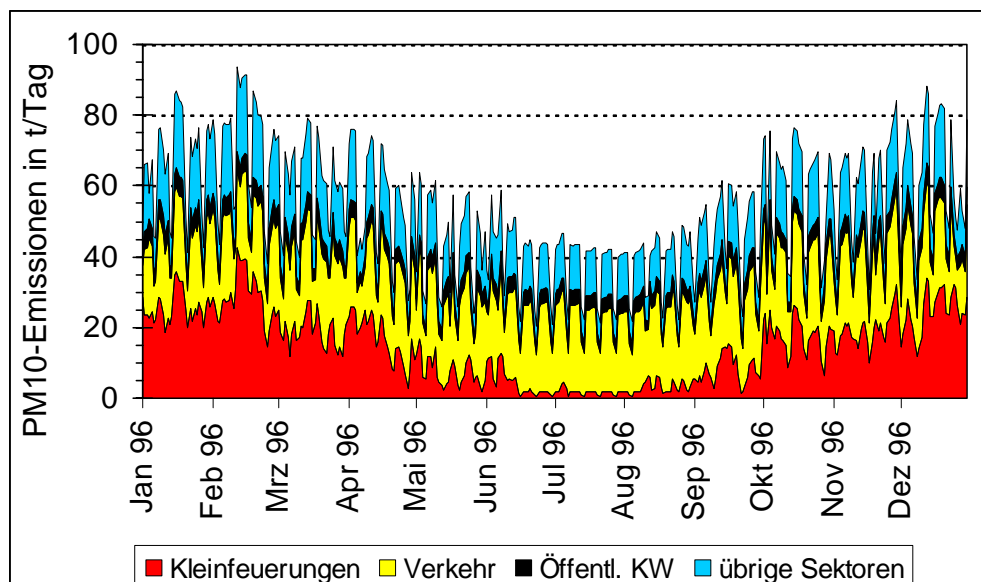


Abb. 3.9: Zeitliche Verteilung der  $PM_{10}$ -Emissionen in Baden-Württemberg 1996

### 3.1.3 Interpretation und Bewertung

#### 3.1.3.1 Relevante Bereiche und Emissionsverteilung

Als besonders relevant einzuschätzende Emissionsquellen für Feinstäube werden der Betrieb von Dieselmotoren im Straßenverkehr und von sonstigen Verbrennungsmotoren im Offroad-Bereich, die Verfeuerung von Holz in Haushalten und die Herstellung von Schotter identifiziert. Darüber hinaus sind auch weiteren Feuerungsprozessen mit festen Brennstoffen in Kraftwerken, Industrie, Haushalten und Kleinverbrauchern, der Freisetzung von Reifen- und Bremsenabrieb im Straßenverkehr und weiteren Produktionsprozessen wie der Herstellung von Zement relevante Beiträge an den Feinstaubemissionen in Baden-Württemberg zuzuschreiben (s. Tabelle A-1 im Anhang). Die derzeitigen vorläufigen

Emissionsdaten für den Umschlag staubender Güter zeigen insgesamt eine weitaus geringere Relevanz als bislang angenommen. Die Emissionen für diesen Bereich werden in absehbarer Zeit auf Basis der überarbeitenden Emissionsfaktoren des UBA berechnet werden können. Hierbei ist auch von einer Erweiterung des Spektrums der betrachteten staubenden Güter auszugehen. Die in dieser Arbeit genannten Emissionen stellen somit vorläufige Angaben dar.

Die räumlichen Belastungsschwerpunkte ergeben sich in stark besiedelten Gebieten und entlang bedeutender Fernverkehrsstraßen. Eine Darstellung der zeitlichen Variabilität der Feinstaubemissionen liefert im Wochengang Belastungsspitzen während der Werktage und im jahreszeitlichen Gang während der Wintermonate, im wesentlichen bedingt durch die Feuerungen von Haushalten und Kleinverbrauchern.

#### **3.1.3.2 Unsicherheiten und Kenntnislücken**

Die über Literaturrecherchen zugänglichen Basisdaten zur Ermittlung von sektoralen Jahresemissionen sind mit zahlreichen Lücken und Unsicherheiten behaftet. So sind in vielen Veröffentlichungen keine detaillierten Spezifikationen der untersuchten Prozesse und Anlagen und keine Fehlerbetrachtungen bei den Emissionsmessungen gegeben. Die Übertragbarkeit der von der EPA und in sonstigen, im Ausland erstellten Studien angegebenen Daten auf deutsche Verhältnisse ist weitgehend unklar und kann hier im Detail nicht überprüft werden. Für in Deutschland erhobene Emissionsfaktoren wurde bislang keine differenzierte und systematisierte Bewertung entwickelt, quantitative Aussagen zu den Unsicherheiten der Emissionsabschätzungen können deshalb derzeit nicht getroffen werden. Für zukünftige Emissionsabschätzungen ist insbesondere eine weitergehende Differenzierung der Basisdaten nach Prozeß- bzw. Anlagenspezifikationen und vorhandenen Entstaubungssystemen anzustreben. Die Voraussetzungen hierzu in Form von entsprechend differenzierten Untersuchungsergebnissen sind jedoch zum großen Teil noch nicht gegeben.

Die vom UBA bislang ermittelten Emissionsfaktoren und Feinstaubanteile stellen teilweise grobe Abschätzungen dar, welche auf Grundlage weniger Messungen aus den frühen 80er Jahren angesetzt wurden. Vor allem hinsichtlich der Emissionen an  $PM_{2,5}$  sind kaum Daten vorhanden. Die Überprüfung der aktuellen Emissionssituation ist insbesondere aufgrund weitergehender Minderungsmaßnahmen in der Praxis zumindest für die besonders emissionsrelevanten Bereiche notwendig, weshalb in mehreren Bundesländern und beim UBA zahlreiche Meßprogramme, vor allem an stationären Anlagen, geplant oder in der Durchführung sind. Ergänzende oder zumindest orientierende Emissionsmessungen sind auch

insbesondere im Hinblick auf Korngrößenverteilungen und diffuse Emissionsvorgänge notwendig.

Zudem geben die verfügbaren Daten aus Emissionsmessungen bislang nicht das gesamte Spektrum anthropogener Staub- bzw. Feinstaubemissionen wieder. Bereiche, welche vermutlich eine Emissionsrelevanz besitzen, und für die derzeit keine Angaben zur Emissionssituation getroffen werden können, sind im wesentlichen

- Bauprozesse zur Erstellung, Instandhaltung und zum Abbruch von Gebäuden,
- Prozesse in der Landwirtschaft (z. B. Bodenbearbeitung),
- nicht genehmigungsbedürftige Tierhaltungen,
- weitere Aktivitäten von nicht genehmigungsbedürftigen Betrieben wie etwa zur Be- und Verarbeitung von Schnittholz, Lackierereien, Steinbrüche.

Des Weiteren gibt es noch keine fundierte Untersuchung zur Ermittlung des Anteils der Wiederaufwirbelung (Resuspension) von Straßenstaub infolge von Verkehrsbewegungen an den Staubbelastungen in Baden-Württemberg. Diese Stäube stellen zwar keine primären Emissionen dar, werden aber durch anthropogene Aktivitäten ausgelöst und können analog zu den anderen anthropogenen Emissionen durch Maßnahmen gemindert werden.

Ein Vergleich der Angaben aus Emissionserklärungen mit den über Emissionsfaktoren berechneten Emissionen zeigt bei einigen Produktionsprozessen und beim Umschlag staubender Güter zum Teil starke Differenzen, wobei die Angaben aus den Emissionserklärungen zumeist deutlich niedriger liegen als die Ergebnisse der Berechnung. Für die in Abbildung 3.6 dargestellten Produktionsprozesse sind in der Tabelle 3.3 beispielhaft die Abschätzungen den Angaben aus den Emissionserklärungen gegenübergestellt. Es ergibt sich im Mittel ein Unterschied in den Ergebnissen um den Faktor 3,5. Entsprechend der im Kapitel 2.1.2.3 dargestellten Vorgehensweise werden bei den genannten Prozessen für die sektorale Emissionsermittlung jeweils die Angaben der Emissionserklärungen herangezogen. Bezüglich der Feuerungen stimmen die sektoralen Ergebnisse aus Berechnung und Emissionserklärungen weitaus besser überein.



Tabelle 3.3: Vergleich der Abschätzungen für Gesamtstaub mit Emissionsfaktoransatz (EF) und Emissionserklärungen (E-ERKL) für relevante Produktionsprozesse

| <b>Prozeß</b>       | <b>PM nach EF* in t/a</b> | <b>PM nach E-ERKL in t/a</b> |
|---------------------|---------------------------|------------------------------|
| Herst. von Schotter | 6.532                     | 1.898                        |
| Herst. von Zement   | 1.711                     | 526                          |
| Erdölraffination    | 1.174                     | 239                          |
| Herst. von Eisenguß | 915                       | 178                          |
| Asphaltmischgut     | 39                        | 86                           |
| Herst. von Kalk     | 123                       | 104                          |

\* Emissionsfaktoren nach UBA (6/1998)

Die Abweichungen sind zum einen auf die Unsicherheiten bei den angesetzten Emissionsfaktoren zurückzuführen, die in einigen Fällen, beispielsweise aufgrund weitergehender Minderungsmaßnahmen in der Praxis, eine Überschätzung der derzeitigen Emissionen liefern können. Zum anderen bleibt zu prüfen, inwieweit die Emissionen der erklärungs-pflichtigen Anlagen die Emissionssituation des gesamten Herstellungsprozesses wiedergeben. Hier kann aufgrund von diffusen Emissionen und ggf. von Aktivitäten von nicht erklärungs-pflichtigen Anlagen und Prozessen im Rahmen eines Herstellungsverfahrens bei einer Emissionsermittlung allein auf Basis der Emissionserklärungen eine Unterschätzung entstehen. Bei der Herstellung von Schotter beispielsweise sind in den Emissionserklärungen keine Angaben zu Steinbrüchen, Klassieranlagen von Sand und Kies und mobilen Aufbereitungsanlagen von Abbruchmaterial enthalten. Bei den anderen in Tabelle 3.3 genannten Prozessen sind außer den Asphaltmischanlagen alle existierenden Anlagen emissionserklärungs-pflichtig. Eine weitere Ursache der Abweichungen können fehlerhafte oder unvollständige Angaben in den Emissionserklärungen darstellen. Die von den Betreibern in Emissionserklärungen angegebenen Emissionen können in der Regel nicht nachvollzogen und somit ggf. fehlerhafte Angaben im Rahmen dieses Projektes nicht korrigiert werden.

Insgesamt ergibt sich die Notwendigkeit, die bestehenden Emissionsabschätzungen weiter zu verbessern, um insbesondere bei den relevanten Bereichen genauere und detailliertere Daten ermitteln zu können, sowohl hinsichtlich der Emissionen an Gesamtstaub als auch der Feinstaubanteile. Die Verminderung der Unsicherheiten und Kenntnislücken und die Bestimmung von fundierteren Daten ist eine Voraussetzung für belastbare Betrachtungen von Minderungspotentialen in den einzelnen Sektoren, welche eine wesentliche Grundlage zur Entwicklung von Minderungsstrategien darstellen. Im Rahmen von zukünftigen Arbeiten wird hierzu auch die Abschätzung der Emissionen auf Technologieebene und differenziert nach dem Stand der Technik in der Abluftreinigung bzw. der

Emissionsprävention anzustreben sein. Als eine bedeutende Grundlage hierzu sind in naher Zukunft neue Meßdaten aus Meßprogrammen mehrerer Bundesländer und des UBA zu erwarten, welche für emissionsrelevante Feuerungs- und Produktionsanlagen in Deutschland wesentliche neue Erkenntnisse liefern sollen.

### 3.2 Emissionen an Ammoniak

Für die Emissionen an Ammoniak aus Baden-Württemberg errechnet sich insgesamt ein Wert von etwa 59 kt im Jahre 1996. Die nachfolgende Tabelle gibt dieses Ergebnis nach Quellgruppen unterteilt im Vergleich zur Abschätzungen für das Jahr 1991 nach MÜNCH et al. (1994) wieder. Die Ammoniakemissionen infolge des menschlichen Stoffwechsels betragen nach MÜNCH et al. (1994) etwa 9.020 t/a und sind in der nachfolgenden Tabelle nicht berücksichtigt worden.

Tabelle 3.4: Ergebnisse der Abschätzung der Ammoniakemissionen in Baden-Württemberg 1996 im Vergleich zu anderen Abschätzungen

|   | <b>Ergebnisse<br/>für 1996 in t/a</b> | <b>MÜNCH et al. (1994)<br/>für 1991 in t/a</b> |
|---|---------------------------------------|--|
| Summe Nutztierhaltung und Ausbringen von Wirtschaftsdünger                                  | 52.745                                | 47.901   |
| Davon Rinder- und Kuhhaltung  | 39.933                                | 33.418   |
| Schweinehaltung   | 11.425                                | 11.754   |
| Geflügelhaltung   | 426                                   | 1.337  |
| Schafhaltung  | 961                                   | 671  |
| Ausbringen von Mineraldünger  | 4.058                                 | 5.515  |
| Emissionserklärungspflichtige Anlagen (Kraftwerke, Feuerungen Industrie, Industrieprozesse) | 120 *                                 | 4.297  |
| Verkehr   | 1.348                                 | 1.348  |
| Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher   | 720                                   | 704  |
| <b>Summe</b>  | <b>58.991</b>                         | <b>68.800</b>                                  |

\* Angaben aus den Emissionserklärungen

Gegenüber den Abschätzungen von 1991 ergeben sich sowohl in der Nutztierhaltung und der Düngerausbringung als auch bei den industriellen Prozessen geringere Emissionen, so daß sich insgesamt eine um 14 % geringere Ammoniakmenge für Baden-Württemberg errechnet.

Die aus emissionserklärungspflichtigen Anlagen emittierten Ammoniakmengen sind laut den Emissionserklärungen vernachlässigbar. Die Auswertung ergibt für 1996 eine Emis-

on von etwa 390 t/a, wovon über 70 % aus genehmigungspflichtigen Hühner- und Mastschweinehaltungen stammen. Somit werden die Emissionen der emissionserklärungs-  
pflichtigen Industrieanlagen mit lediglich etwa 120 t/a angegeben, die u.a. aus SCR-  
Anlagen zur Minderung der Stickoxidemissionen stammen.

Die nachfolgende Abbildung zeigt die räumliche Verteilung der Ammoniakemissionen in Baden-Württemberg. Es zeigen sich kaum punktuelle Belastungsspitzen, bedingt durch die jeweilige Intensität der landwirtschaftlichen Nutzung herrschen flächige Belastungszonen vor. Die räumlichen Belastungsschwerpunkte liegen hauptsächlich im östlichen Teil Baden-Württembergs, vor allem in Oberschwaben und der Hohenlohe.

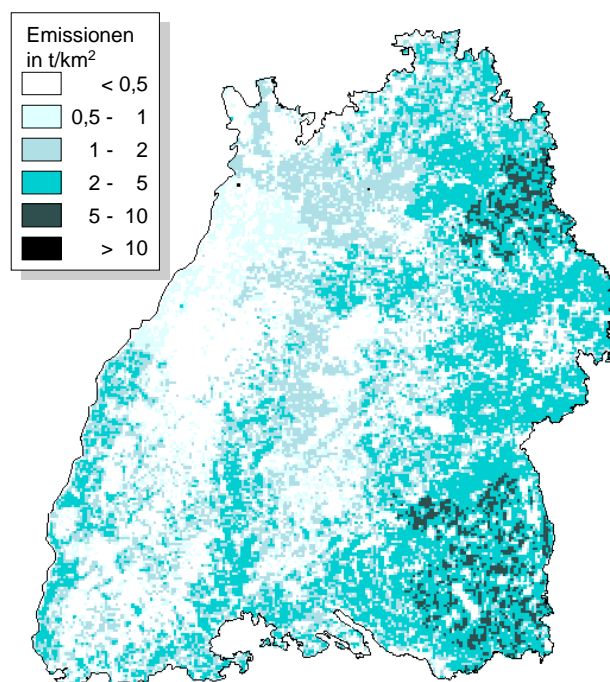
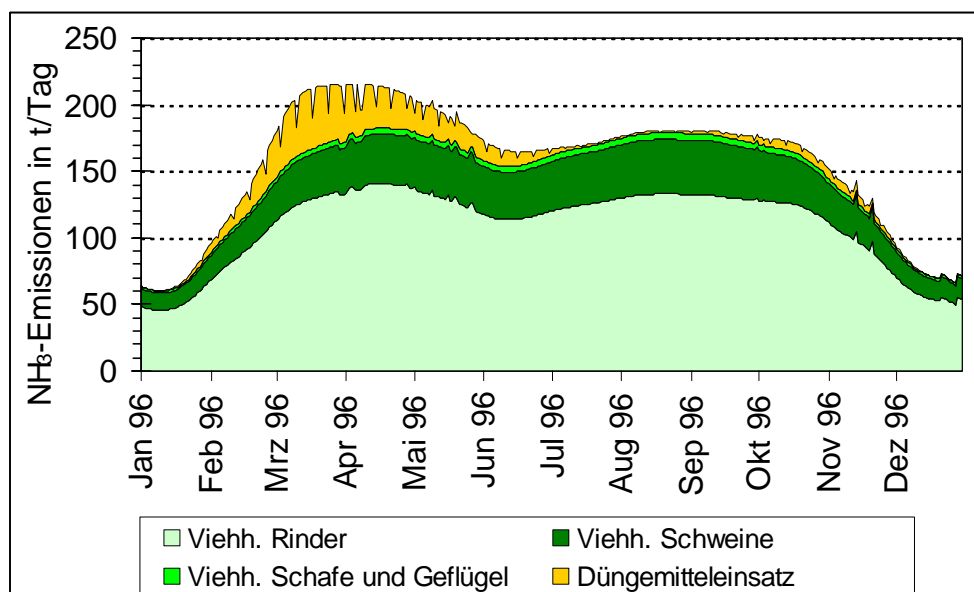


Abb. 3.10: Räumliche Verteilung der NH<sub>3</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

Eine Darstellung der Jahrgänge der Emissionsanteile der NH<sub>3</sub>-Emissionen aus der Landwirtschaft wurde bereits exemplarisch in Kapitel 2.4 wiedergegeben. Die dort in der Abbildung 2.1 gezeigte Verteilung spiegelt sich in der nachfolgenden Abbildung 3.11 der zeitlichen Verteilung der absoluten Emissionsbeiträge für die einzelnen Quellgruppen wider. Aufgrund des hohen Emissionsanteils der Landwirtschaft ist der Jahresgang der gesamten Emissionen durch die jahreszeitliche Abhängigkeit der landwirtschaftlichen Prozesse und die Temperaturabhängigkeit der mikrobiellen Zersetzungsprozesse bestimmt, so daß auf eine Darstellung der übrigen Emissionsquellen verzichtet wird. Nur für die Ausbringung von Düngemitteln ergibt sich ein Wochengang der Emissionen mit einer Abnahme der Emissionen am Wochenende.

Abb. 3.11: Zeitliche Verteilung der NH<sub>3</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

### 3.3 Emissionen an Ozon- und Aerosolvorläufersubstanzen

Für die Emissionen an Ozon- und Aerosolvorläufersubstanzen in Baden-Württemberg im Jahr 1996 ergeben sich die in der nachfolgenden Tabelle wiedergegebenen Mengen.

Tabelle 3.5: Ergebnisse der Emissionsabschätzungen für NMVOC, NO<sub>x</sub>, CO und SO<sub>2</sub> für Baden-Württemberg im Jahre 1996

|  | Ergebnisse für 1996<br>in t/a |
|--|-------------------------------|
| NMVOC Straßenverkehr   | 79.254                        |
| NMVOC Sonstiger Verkehr                                      | 6.519                         |
| NMVOC Lösemittelanwendung in industriellen Prozessen         | 118.039                       |
| NMVOC Lösemittelanwendung in Haushalten                      | 19.966                        |
| NMVOC Industrie- und Kleinf Feuerungen                       | 17.487                        |
| NMVOC Übrige Sektoren  | 10.481                        |
| <b>NMVOC Summe</b>   | <b>251.746</b>                |
| NO <sub>x</sub> Straßenverkehr                               | 124.215                       |
| NO <sub>x</sub> sonstiger Verkehr                            | 25.101                        |
| NO <sub>x</sub> nicht emissionserklärungspflichtige Prozesse | 3.653                         |
| NO <sub>x</sub> emissionserklärungspflichtige Prozesse       | 33.980                        |
| NO <sub>x</sub> Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher    | 16.268                        |
| <b>NO<sub>x</sub> Summe</b>                                  | <b>203.217</b>                |

|  | <b>Ergebnisse für 1996<br/>in t/a</b> |
|--|---------------------------------------|
| CO Straßenverkehr  | 523.719                               |
| CO sonstiger Verkehr   | 21.534                                |
| CO emissionserklärungspflichtige Prozesse                    | 25.569                                |
| CO nicht emissionserklärungspflichtige Prozesse              | 773                                   |
| CO Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher                 | 95.881                                |
| <b>CO Summe</b>  | <b>667.466</b>                        |
| SO <sub>2</sub> Straßenverkehr                               | 5.179                                 |
| SO <sub>2</sub> sonstiger Verkehr                            | 1.215                                 |
| SO <sub>2</sub> emissionserklärungspflichtige Prozesse       | 29.667                                |
| SO <sub>2</sub> nicht emissionserklärungspflichtige Prozesse | 4.524                                 |
| SO <sub>2</sub> Feuerungen Haushalte und Kleinverbraucher    | 10.628                                |
| <b>SO<sub>2</sub> Summe</b>                                  | <b>51.213</b>                         |

Als wesentliche Quellgruppen ergeben sich bei den NMVOC-Emissionen der Verkehr und die Anwendung von Lösemitteln in Industrie und Gewerbe. Die Emissionen an NO<sub>x</sub> werden zu weit über 50 % durch den Verkehr verursacht. Auch bei den CO-Emissionen ist der Straßenverkehr dominierend, relevante Emissionen entstehen darüber hinaus bei den Feuerungsprozessen der Haushalte und Kleinverbraucher. Die SO<sub>2</sub>-Emissionen sind in den letzten Jahren deutlich zurückgegangen, insbesondere aufgrund der Verminderung des Schwefelgehaltes in Dieselmotoren und Heizölen. Die Emissionen aus Feuerungs- und Produktionsprozessen sind hier weiterhin bedeutend, wobei insbesondere die emissionserklärungspflichtigen Feuerungsanlagen emissionsrelevant sind.

Der zeitliche Verlauf und die räumliche Verteilung der Emissionen von gasförmigen Vorläufern von Ozon bzw. Aerosolen in Baden-Württemberg wurde bereits in verschiedenen früheren Arbeiten, so z. B. in (OBERMEIER et al., 1995) ausführlich dargestellt und diskutiert. Die dort aufgeführten Ergebnisse bezogen sich jedoch stets auf jährliche Emissionen sowie auf Emissionen während ausgewählter mehrtägiger Sommerepisoden.

In den Abbildungen 3.12 bis 3.14 sind aktualisierte Ergebnisse der räumlichen Verteilung der NMVOC-, NO<sub>x</sub>- und SO<sub>2</sub>-Emissionen für das Jahr 1996 wiedergegeben. Auf eine Darstellung der CO-Emissionen wird verzichtet.

Die räumlich disaggregierten NMVOC-Emissionen zeigen Belastungsschwerpunkte hauptsächlich in besiedelten Gebieten mit ausgeprägten industriellen und gewerblichen Nutzungen. Die Emissionen des Verkehrs treten nicht entsprechend der linienförmigen Emissionsentstehungsorte hervor, da es sich hier größtenteils nicht um Abgasemissionen, sondern um Verdunstungsemissionen aus den vorhandenen KFZ handelt, welche zumeist innerorts in die Atmosphäre gelangen.

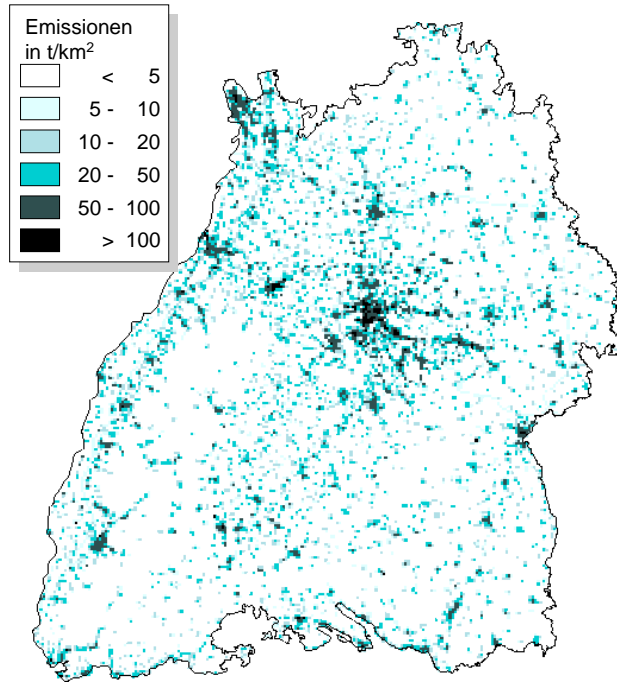


Abb. 3.12: Räumliche Verteilung der NMVOC-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

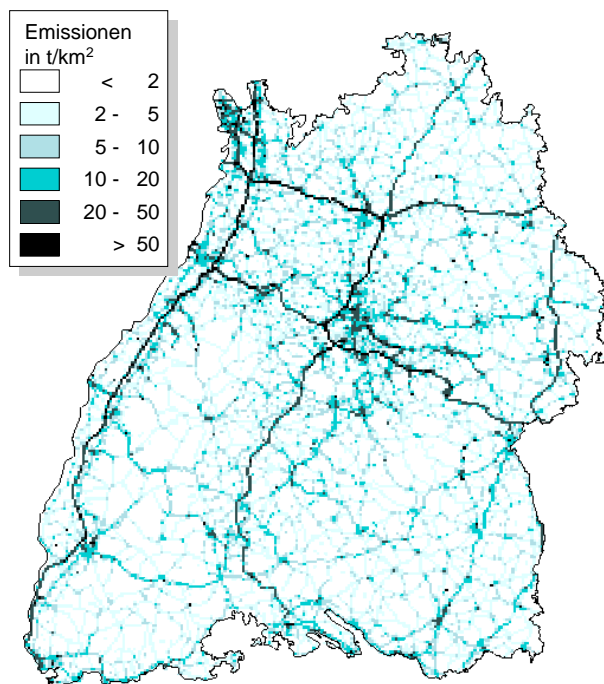


Abb. 3.13: Räumliche Verteilung der NO<sub>x</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

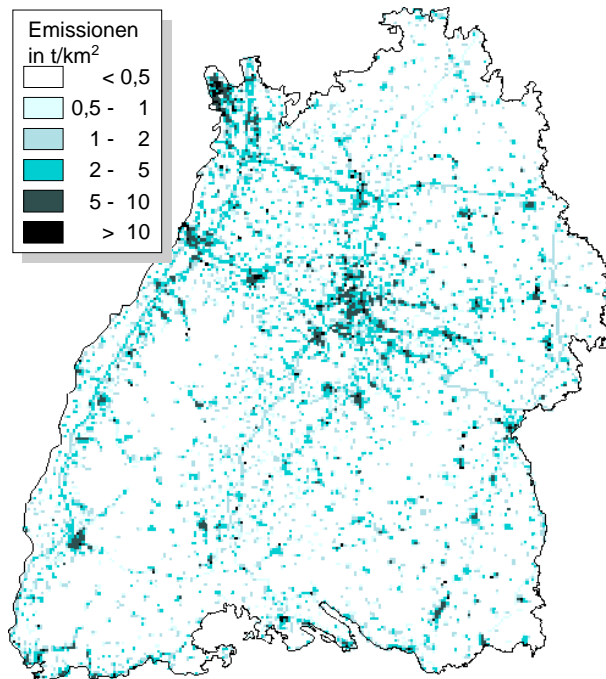


Abb. 3.14: Räumliche Verteilung der  $\text{SO}_2$ -Emissionen in Baden-Württemberg 1996

Bei  $\text{NO}_x$  zeigt sich die Bedeutung des Straßenverkehrs als Verursachergruppe in der Abbildung der Hauptverkehrsstraßen auf dem Gitterraster. In diesen Bereichen errechnen sich z.T. Emissionen von über  $50 \text{ t/km}^2$ . Weitere Belastungsspitzen entstehen durch Konzentrationen von Feuerungsanlagen in städtischen Siedlungsgebieten und stark emittierenden Großfeuerungsanlagen, welche als Punktquellen sichtbar werden. Bezüglich  $\text{SO}_2$  ergeben sich die räumlichen Belastungsschwerpunkte hauptsächlich in den stark besiedelten Gebieten mit industrieller Aktivität.

Um längerfristige Aussagen über die Belastung bzw. Immissionsberechnungen bezüglich der sekundären Luftverunreinigungen Ozon und Aerosole vornehmen zu können, werden im Rahmen des hier vorgestellten Projektes zeitlich disaggregierte Emissionsberechnungen für ein ganzes Jahr durchgeführt. Bezüglich Ozon wurden bislang nur während ausgewählter Sommerepisoden Betrachtungen vorgenommen. Abbildungen 3.15 bis 3.17 zeigen die zeitliche Variabilität der Tagessummenwerte der NMVOC-,  $\text{NO}_x$ - und  $\text{SO}_2$ -Emissionen in Baden-Württemberg während eines Jahres.

Bei den NMVOC-Emissionen ergeben sich kaum jahreszeitliche Schwankungen. Ein wesentlicher Quellsektor stellt der Lösemiteleinsatz in industriellen Prozessen dar. In diesem Bereich und auch beim Verkehr zeigen sich im Wochengang deutliche Emissionsrückgänge am Wochenende. Der Emissionsrückgang beim Verkehr ist jedoch hinsichtlich NMVOC weitaus geringer als bei  $\text{PM}_{10}$ , da bei den organischen Komponenten die Emissionen nicht vom LKW-Verkehr dominiert werden und an den Wochenenden die Aktivität der PKW geringer abnimmt als bei den LKW.

Bei den  $\text{NO}_x$ -Emissionen dominiert der Verkehr als Verursachergruppe. Auch hier zeigen sich die deutlichen Emissionsrückgänge an den Wochenenden, wobei sich analog zu den Staubemissionen der Einfluß des LKW-Verkehrs wiederum stärker zeigt als bei den NMVOC-Emissionen. Die jahreszeitlichen Schwankungen ergeben sich im wesentlichen durch den Betrieb von Feuerungsanlagen in Haushalten und bei Kleinverbrauchern.

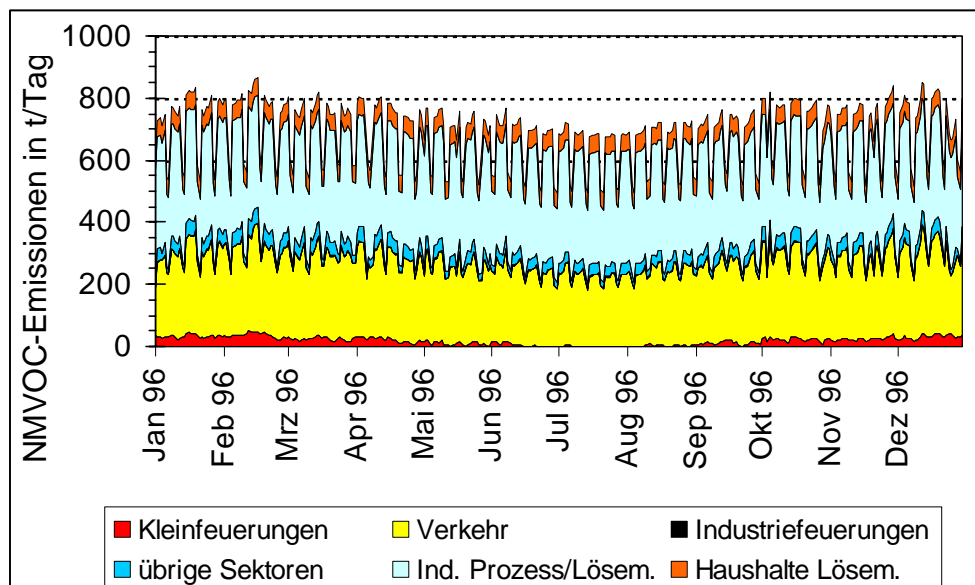


Abb. 3.15: Zeitliche Verteilung der NMVOC-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

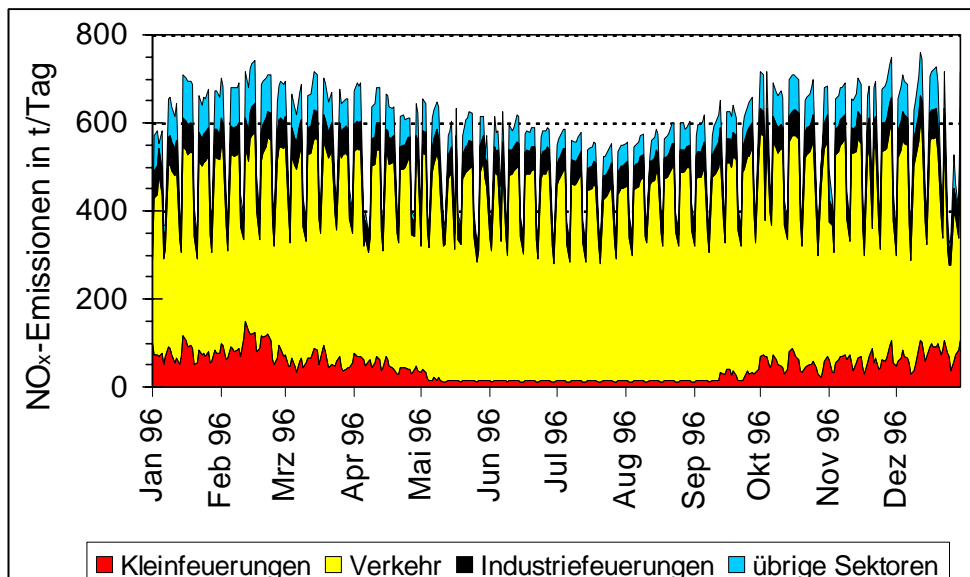


Abb. 3.16: Zeitliche Verteilung der  $\text{NO}_x$ -Emissionen in Baden-Württemberg 1996

Auch bei der zeitlichen Verteilung der  $\text{SO}_2$ -Emissionen werden die Hauptemittenten Industrie und Feuerungen der Haushalte und Kleinverbraucher deutlich.



Eine jahreszeitliche Schwankungen ergibt sich insbesondere aufgrund der Heizaktivitäten der Haushalte und Kleinverbraucher. Der Wochengang ist bedingt durch Änderungen der Aktivitäten in industriellen Produktionsprozessen und beim LKW-Verkehr am Wochenende.

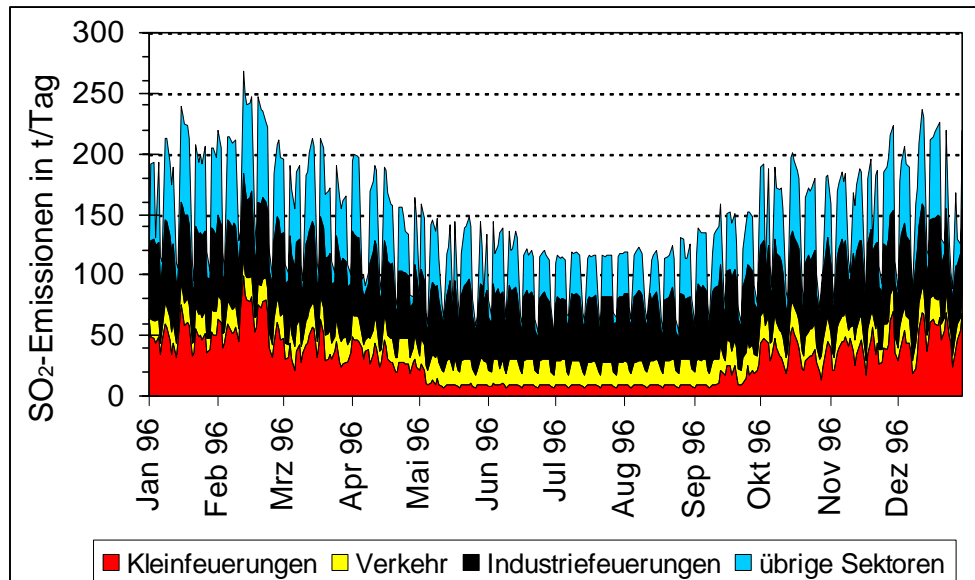


Abb. 3.17: Zeitliche Verteilung der SO<sub>2</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1996

## 4 Modellierung der Aerosolbildung und -ausbreitung mit dem Modellsystem KAMM/DRAIS

Neben der Bestimmung der Emissionen partikelförmiger Luftbeimengungen ist auch die Behandlung der für diese Stoffgruppe relevanten physikalischen und chemischen Prozesse in numerischen Modellen Gegenstand der aktuellen Forschung.

In der Vergangenheit wurde am Institut für Meteorologie und Klimaforschung ein mesoskaliges Modellsystem (ADRIAN & FIEDLER, 1991; VOGEL et al., 1995) zur Bestimmung der räumlichen und zeitlichen Verteilung von gasförmigen Luftbeimengungen entwickelt. Hauptbestandteile dieses in Abb. 4.1 dargestellten Modellsystems sind das nichthydrostatische Atmosphärenmodell KAMM sowie das Transportmodell DRAIS. Letzteres wurde zur Beschreibung der chemischen Umwandlungen um den Gasphasenmechanismus RADM2 erweitert, wobei hinsichtlich der PAN-Chemie Modifikationen durchgeführt wurden, sowie einige Geschwindigkeitskonstanten aktualisiert wurden. Das gesamte Modellsystem läuft im gekoppelten Modus, d. h. zu jedem Zeitschritt des Atmosphärenmodells werden auch die zeitlichen Änderungen der Konzentrationen im Ausbreitungsteil bestimmt. Zusätzlich dazu werden die u.a. von der aktuellen Temperatur und Einstrahlung abhängigen biogenen Emissionen direkt vom Modell berechnet.

Um auch die zeitlichen und räumlichen Verteilungen von partikelförmigen Luftbeimengungen berechnen zu können, war es erforderlich das Modellsystem um eine weitere Komponente zu erweitern, die eine adäquate Behandlung von Aerosolen gestattet.

Bei diesem Modul handelt es sich um das Aerosolmodell MADE (Modales Aerosoldynamikmodell für Europa), das von ACKERMANN et al. (1998) entwickelt wurde und das im Rahmen der Modellierungsarbeiten mit dem EURAD-Modellsystem zur Anwendung kam. Das Modell ist eine Weiterentwicklung des „Modal Aerosol Dynamic Models“ (WHITBY, 1991, BINKOWSKI & SHANKAR, 1995) und stellt einen Kompromiß dar, um auf der einen Seite die in der Atmosphäre ablaufenden Prozesse hinreichend genau zu beschreiben, auf der anderen Seite den notwendigen Rechenaufwand im Rahmen zu halten, damit das Verfahren in einem dreidimensionalen Ausbreitungsmodell noch sinnvoll angewendet werden kann.

Neben der chemischen Zusammensetzung der Partikel ist insbesondere auch die Größenverteilung der Aerosole von Bedeutung. In dem Modell MADE wird die Größenverteilung der Partikel durch zwei sich überlappende und miteinander wechselwirkende Moden repräsentiert (Aitkenmode, Akkumulationsmode). Innerhalb dieser Moden wird eine lognormale Verteilung der Partikel angenommen. Die vollständige Beschreibung der Ver-

teilung erfordert die Berechnung von drei Momenten. Bei den im folgenden beschriebenen Simulationen werden die Standardabweichungen der Verteilungen als konstant angenommen. Somit werden im Modell die prognostischen Gleichungen für das nullte und das dritte Moment gelöst.

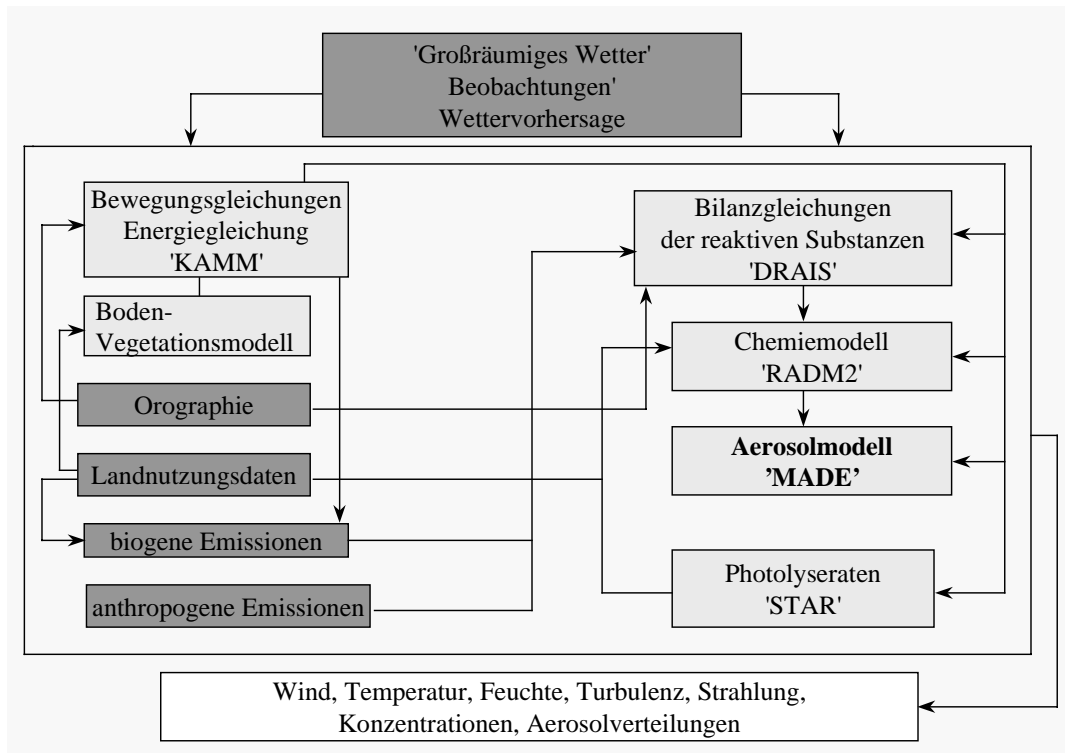


Abb. 4.1: Das Modellsystem KAMM / DRAIS

Diese Verteilungen können in der Atmosphäre durch Koagulation und Kondensation modifiziert werden. Beide Prozesse werden in dem Modell in parametrisierter Form beschrieben. Außer durch direkte Emission können neue Partikel durch Nukleation entstehen. In der jetzigen Version wird eine Partikelneubildung nur aus Schwefelsäuredampf berücksichtigt. Bei der chemischen Zusammensetzung der Aerosole wird eine interne Mischung angenommen, d. h. alle Partikel enthalten mehrere Substanzen, wobei die Aerosolchemie bisher in Form des Systems Sulfat-Nitrat-Ammonium und Wasser berücksichtigt wird. Neben den aerosoldynamischen Prozessen wird die Verteilung der Aerosole in der Atmosphäre auch durch den Transport und die Deposition als wichtige Senke, beeinflusst. Das Verhalten von Partikeln, deren mittlerer Durchmesser größer  $1\ \mu\text{m}$  ist, wird durch einen dritten mit den beiden anderen nicht in Wechselwirkung tretenden sogenannten Grobpartikel-Mode beschrieben.

## 4.1 Modellierung der Sulfat-, Nitrat- und Ammoniumbildung

In einem ersten Schritt wurde dieses Modul in eine eindimensionale Version des Modellsystems KAMM/DRAIS implementiert. Somit ist die Aerosoldynamik direkt mit den Transport- und chemischen Umwandlungsvorgängen gekoppelt, und es können damit die stattfindenden Wechselwirkungen beschrieben und untersucht werden. Bei einer ersten Anwendung wurden mit dem gesamten Modellsystems Simulationen durchgeführt, bei denen neben den Emissionen für  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$  und  $\text{VOC}$  erstmals auch Werte für  $\text{NH}_3$ , den mittleren Verhältnissen von Baden-Württemberg entsprechend (s. Kap. 3), vorgegeben wurden. Bei dieser Simulation werden keine Partikel direkt in die Atmosphäre emittiert, Sekundärbildung findet jedoch statt. Anschließend wurde die Simulation wiederholt, wobei die Aerosolphase unberücksichtigt blieb. Diese Untersuchung sollte zur Beantwortung der folgenden Fragen dienen:

- **Welche Rückkopplungen existieren zwischen Partikel- und Gasphase?**
- **Welche Beiträge liefern die einzelnen Prozesse (Nukleation, Kondensation, Koagulation, Diffusion) zur räumlichen und zeitlichen Aerosolverteilung?**
- **In welcher Weise wird der Stickstoffeintrag in den Boden durch das Aerosol modifiziert?**

Die Abbildung 4.2 zeigt einen Zeit-Höhenschnitt der Gesamtpartikelanzahl für den Simulationszeitraum von zwei Tagen. Am ersten Simulationstag findet man die höchsten Konzentrationen von Partikeln aufgrund der stabilen Schichtung der Atmosphäre in den untersten Schichten. Nach Ausbildung der konvektiven Grenzschicht im Tagesverlauf kommt es zur verstärkten turbulenten Durchmischung. In den Mittagsstunden findet man die höchste Partikelanzahl in den oberen Schichten der Grenzschicht. Im weiteren Verlauf ändert sich die vertikale Verteilung nur wenig, wobei die Anzahl abnimmt. In den Abbildungen 4.3 und 4.4 sind die zeitlichen Änderungen durch Nukleation und Koagulation dargestellt. Dadurch wird deutlich, daß das Maximum in der Partikelanzahl in den Mittagsstunden aufgrund von Nukleation auftritt, d. h. in diesen Schichten erfüllen Temperatur, relative Feuchte und die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration die Nukleationsbedingung, wobei derzeit im Modell eine Parametrisierung für die Nukleation von WEXLER et al. (1994) implementiert ist. Die dort entstandenen Partikel werden durch turbulente Diffusion über die gesamte Grenzschicht durchmischt, wobei durch Koagulation die Anzahl im weiteren Tagesverlauf abnimmt. Die intermodale Koagulation ist dabei der effektivere Prozeß.

Um die Rückkopplung der Aerosolphase auf die Gasphase zu untersuchen, wurde die Simulation wiederholt, ohne Berücksichtigung der Aerosolprozesse. Dabei ergaben sich

für Substanzen wie Ozon keine bemerkenswerten Unterschiede, während die Substanzen, die direkt bei der Aerosolbildung beteiligt sind, durchaus beeinflusst werden. In Abbildung 4.5 ist ein Zeit-Höhenschnitt der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration ohne Berücksichtigung der Aerosolphase dargestellt, die Abbildung 4.6 zeigt das entsprechende mit Berücksichtigung der Aerosolphase. Zusätzlich dazu zeigt Abbildung 4.7 die Nitratkonzentration in der Aerosolphase. Es zeigt sich, daß die größten Unterschiede in der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration am oberen Rand der Grenzschicht und in den Morgenstunden des 2. Simulationstages direkt in Bodennähe auftreten. Zur Verdeutlichung der Verhältnisse in den unteren Schichten zeigen die Abbildungen 4.8 und 4.9 die Zeitreihen der  $\text{NH}_3$ - und  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen in der Gasphase mit und ohne Berücksichtigung der Aerosolphase sowie die entsprechenden Zeitreihen der Nitrat- und Ammoniumkonzentrationen im Aerosol. Im Gegensatz zu den Verhältnissen in der höheren Schichten der konvektiven Grenzschicht kommt es in Bodennähe vor allem in den frühen Morgenstunden zur Aerosolbildung. Zu diesen Zeiten nehmen die Emissionen bereits zu, die Atmosphäre ist aber noch stabil geschichtet, und es kommt infolgedessen zu einer Anreicherung der Substanzen und zur Aerosolbildung in diesem Bereich. Im weiteren Tagesverlauf sorgt zunehmende vertikale Durchmischung und abnehmende relative Feuchte und damit verbundenes Verdampfen von Ammoniumnitrat zu einem deutlichen Rückgang der dargestellten Konzentrationen.

Vergleicht man neben den Konzentrationsverhältnissen auch die deponierte  $\text{HNO}_3$ -Menge, so wird deutlich, daß aufgrund der geringeren Depositionsgeschwindigkeit der Aerosole die Verweilzeit von Nitrat in der Atmosphäre länger wird und es somit über größere Distanzen transportiert werden kann.

In einem nächsten Schritt werden dreidimensionale Simulationen für horizontal homogenes Gelände durchgeführt, um die räumliche Emissionsstruktur berücksichtigen zu können.

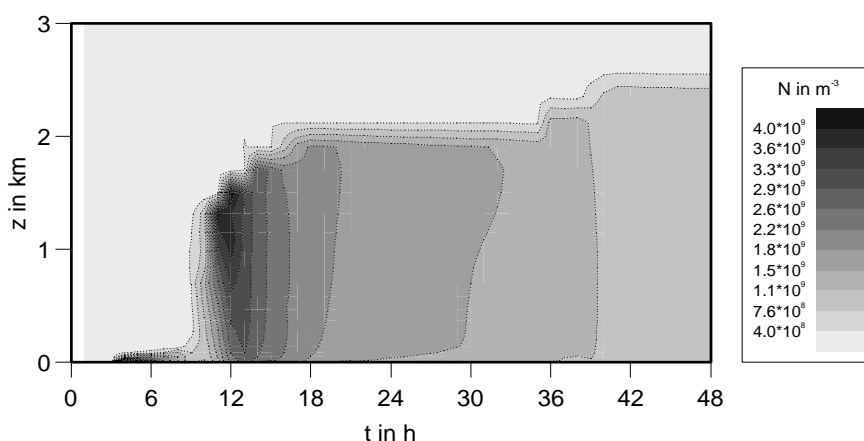


Abb. 4.2: Zeit-Höhenschnitt der Partikelanzahl

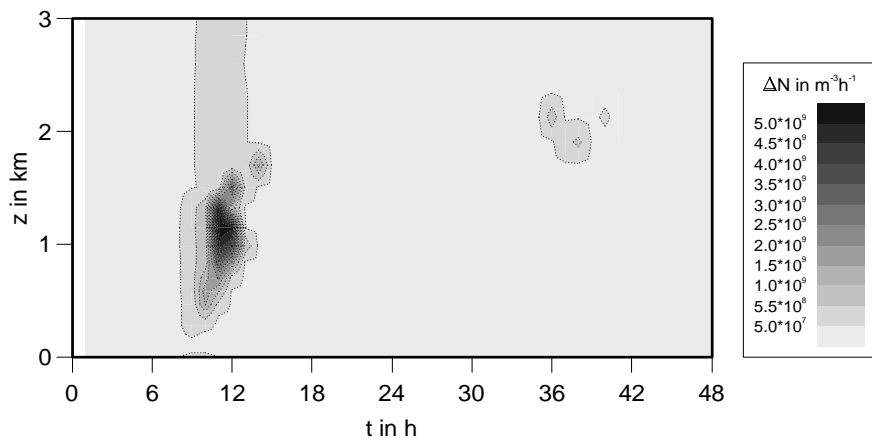


Abb. 4.3: Zeit-Höhenschnitt der Nukleation

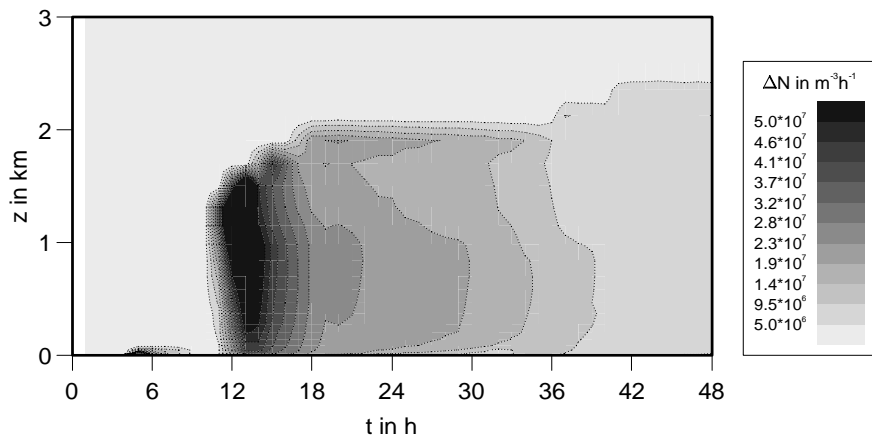


Abb. 4.4: Zeit-Höhenschnitt der intermodalen Koagulation

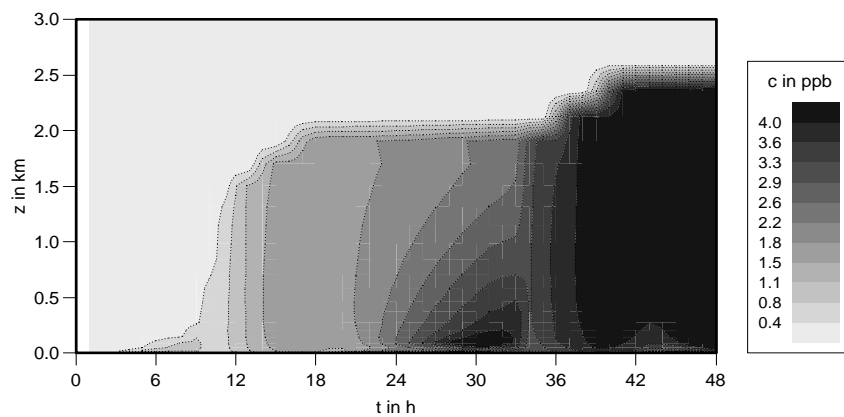


Abb. 4.5: Zeit-Höhenschnitt der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration ohne Aerosolphase

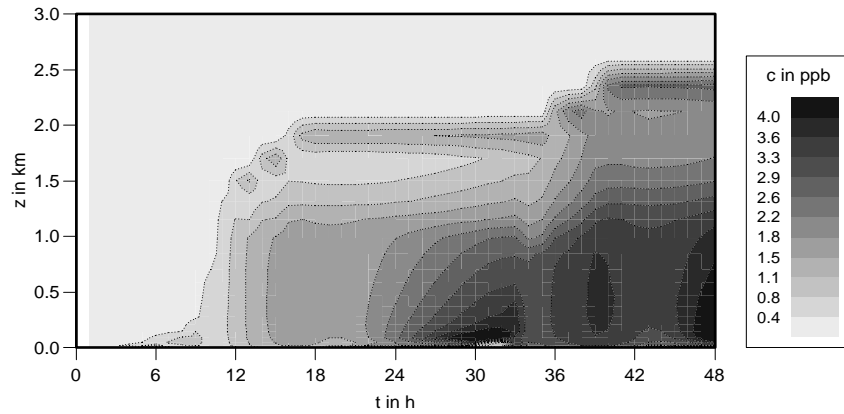


Abb. 4.6: Zeit-Höhenchnitt der HNO<sub>3</sub>-Konzentration mit Aerosolphase

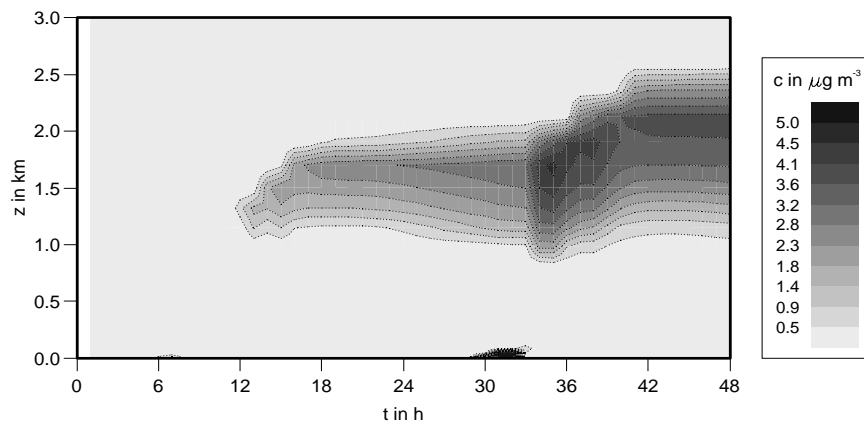


Abb. 4.7: Zeit-Höhenchnitt der Nitrat-Konzentration in der Aerosolphase

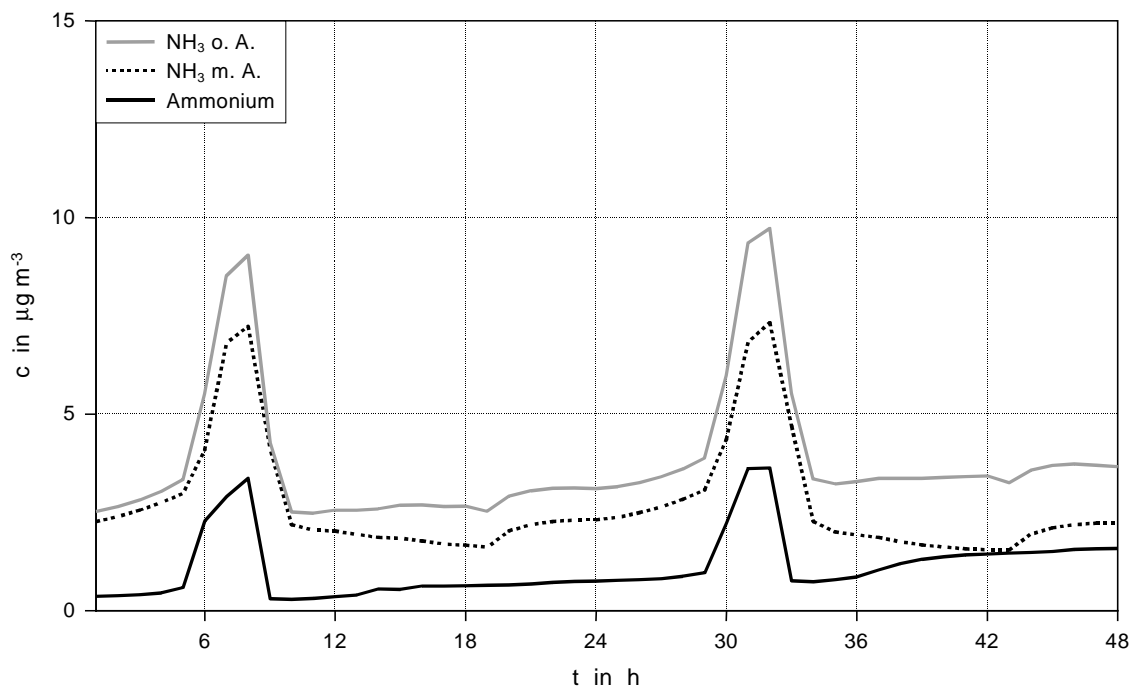


Abb. 4.8: Zeitreihe der NH<sub>3</sub>-Konzentration mit (m. A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung der Aerosolphase, sowie der Ammonium-Konzentration in der Aerosolphase

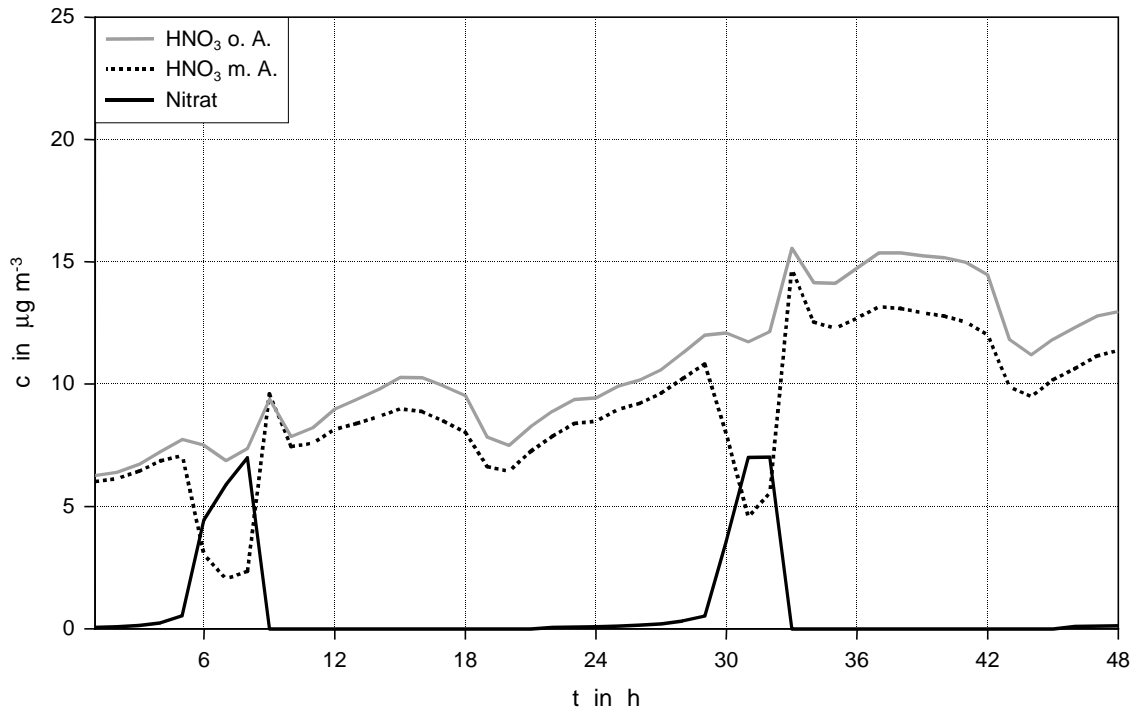


Abb. 4.9: Zeitreihe der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration mit (m.A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung der Aerosolphase sowie der Nitrat-Konzentration in der Aerosolphase.

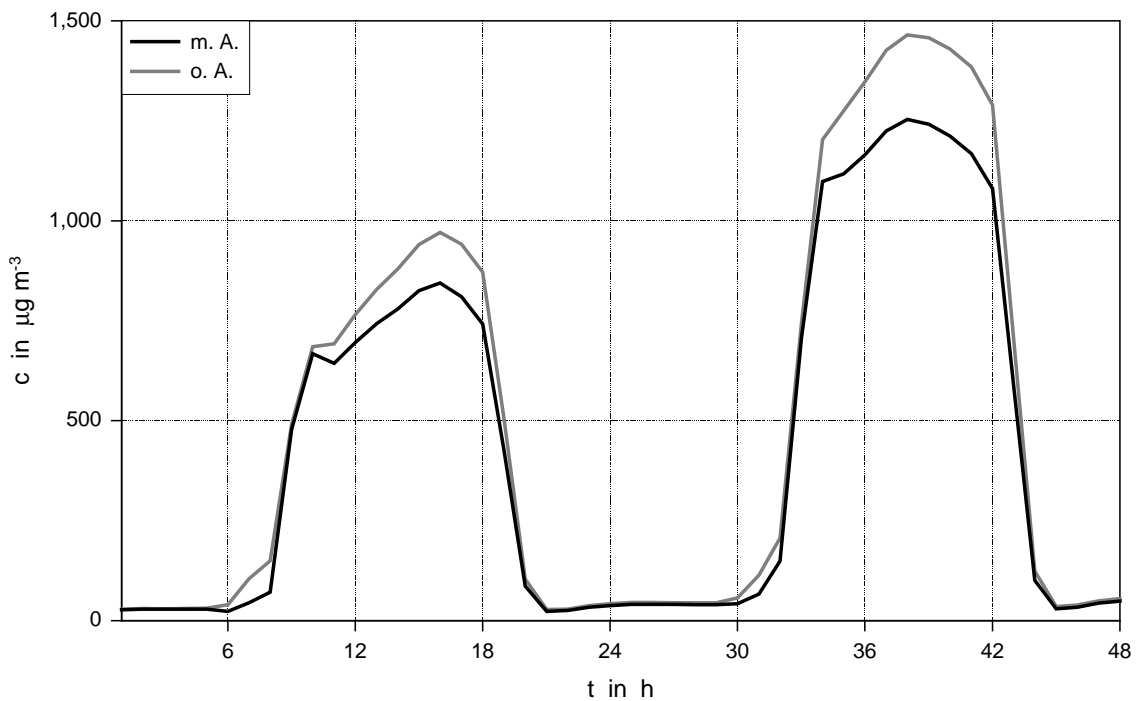


Abb. 4.10: Zeitreihe der  $\text{HNO}_3$ -Deposition mit (m.A.) und ohne (o.A.) Berücksichtigung der Aerosolphase



## 4.2 Modellierung der Ausbreitung von Stäuben

Bei den bisher durchgeführten Simulationen wurde ausschließlich das Verhalten von sekundär gebildeten Aerosolen untersucht. Es werden jedoch in nicht zu vernachlässigendem Maße auch Partikel sowohl biogen wie auch anthropogen direkt in die Atmosphäre emittiert. Das Verhalten dieser Aerosole wird im folgenden untersucht, wobei diese aufgrund ihres mittleren Durchmessers dem sogenannten Grobaerosolmode zugeordnet werden und somit in keiner Wechselwirkung mit den bisher betrachteten sekundär gebildeten Aerosolen stehen. Auch chemische Umwandlungen sowie Koagulations- und Kondensationsprozesse werden vernachlässigt. Es werden lediglich turbulente Diffusion, Deposition und Sedimentation berücksichtigt. Die anthropogenen Emissionen entsprechen wiederum mittleren Verhältnissen von Baden-Württemberg, und es werden ebenfalls wie bei den zuvor durchgeführten Simulationen horizontal homogene Verhältnisse vorausgesetzt. Der zeitliche Verlauf der Staubemissionen ist in Kapitel 3 detailliert beschrieben. Biogene Emissionen werden zunächst nicht berücksichtigt.

Die Abbildung 4.11 zeigt einen Zeit-Höhenschnitt der Staubkonzentration ohne Berücksichtigung der Ablagerung durch Sedimentation. Erwartungsgemäß findet man die höchsten Konzentrationen in den Morgenstunden in Freisetzungshöhe. Bei Einsetzen der Ausbildung der konvektiven Grenzschicht werden auch die größeren Partikel über die gesamte Grenzschicht gleichmäßig verteilt. Wird jedoch die Sedimentation berücksichtigt ergibt sich die in Abbildung 4.12 aufgetragene Verteilung. Zum einen sind die auftretenden Konzentrationswerte deutlich niedriger, zum anderen bildet sich jetzt auch in den oberen Schichten der konvektiven Grenzschicht ein Profil mit der Höhe aus. Dieses ist dadurch begründet, daß vor allem die Partikel mit einem höheren Durchmesser sedimentiert werden, die massenmässig den Hauptanteil der Verteilung ausmachen. Zur Verdeutlichung ist in Abbildung 4.13 ein Zeit-Höhenschnitt des mittleren Durchmessers dargestellt. Insbesondere in den Nacht- und Morgenstunden nimmt der mittlere Durchmesser der Aerosole mit zunehmender Höhe ab.

Ebenso wie bei der Simulation sekundär gebildeter Aerosole werden im folgenden Simulationen durchgeführt, bei denen auch horizontale Inhomogenitäten berücksichtigt werden.

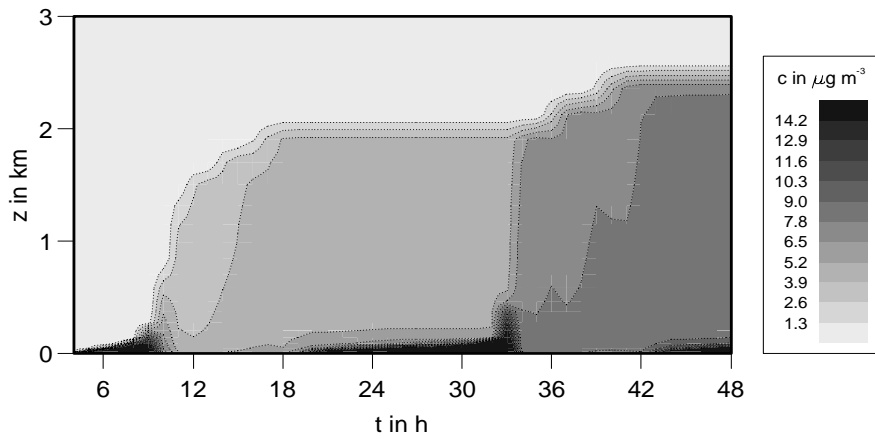


Abb. 4.11: Zeit-Höhenschnitt der Staub-Konzentration ohne Sedimentation.

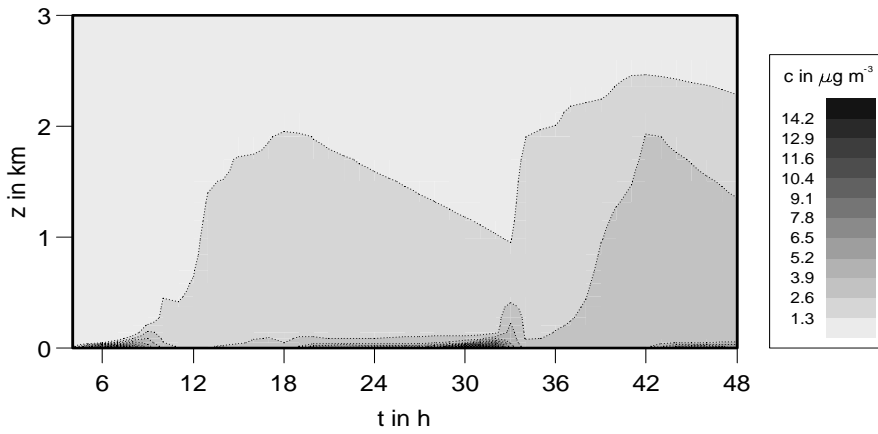


Abb. 4.12: Zeit-Höhenschnitt der Staub-Konzentration mit Sedimentation.

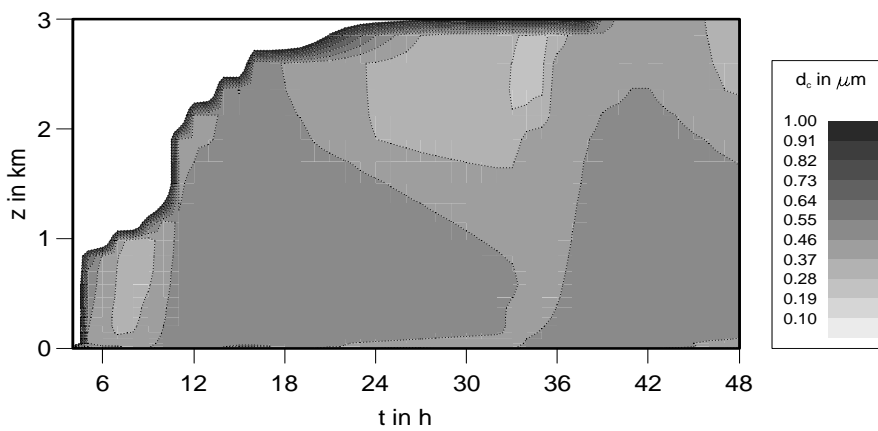


Abb. 4.13: Zeit-Höhenschnitt des mittleren Durchmessers.

## 5 Modellierung der Immission emittierter Spurenstoffe und deren Folgeprodukte

Neben der Berechnung der Bildung und Ausbreitung partikelförmiger Luftbeimengungen wurden dreidimensionale Simulationen zur Berechnung der Verteilung gasförmiger Luftbeimengungen durchgeführt. Aufbauend auf frühere Arbeiten (OBERMEIER et al., 1997, VOGEL et al., 1999a, VOGEL et al., 1999b) wurde das Augenmerk nicht nur auf die Belastung durch hohe Ozonkonzentrationen, sondern mehr auf eine Gesamtschadstoffbelastung gelegt. In einem ersten Schritt wurde der Frage nachgegangen, ob es möglich ist, die mittleren Verhältnisse eines Monats, einer Jahreszeit oder eines gesamten Jahres durch die Simulation einzelner ausgewählter Episoden nachzuvollziehen.

Zunächst wurden die mittleren meteorologischen Bedingungen für die einzelnen Jahreszeiten untersucht. Eine Analyse der Daten des EZMWF (Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersagen) ergibt für die Größen Windrichtung und Windgeschwindigkeit die in den Abbildungen 5.1 und 5.2 dargestellten Verhältnisse. Hierbei wurden Häufigkeitsverteilungen der EZMWF-Daten (10-Tage-Mittel) des 850 hPA Niveaus für den Zeitraum von 1979 und 1992 jeweils für die Jahreszeiten erstellt (BISCHOFF-GAUSS, 1999).

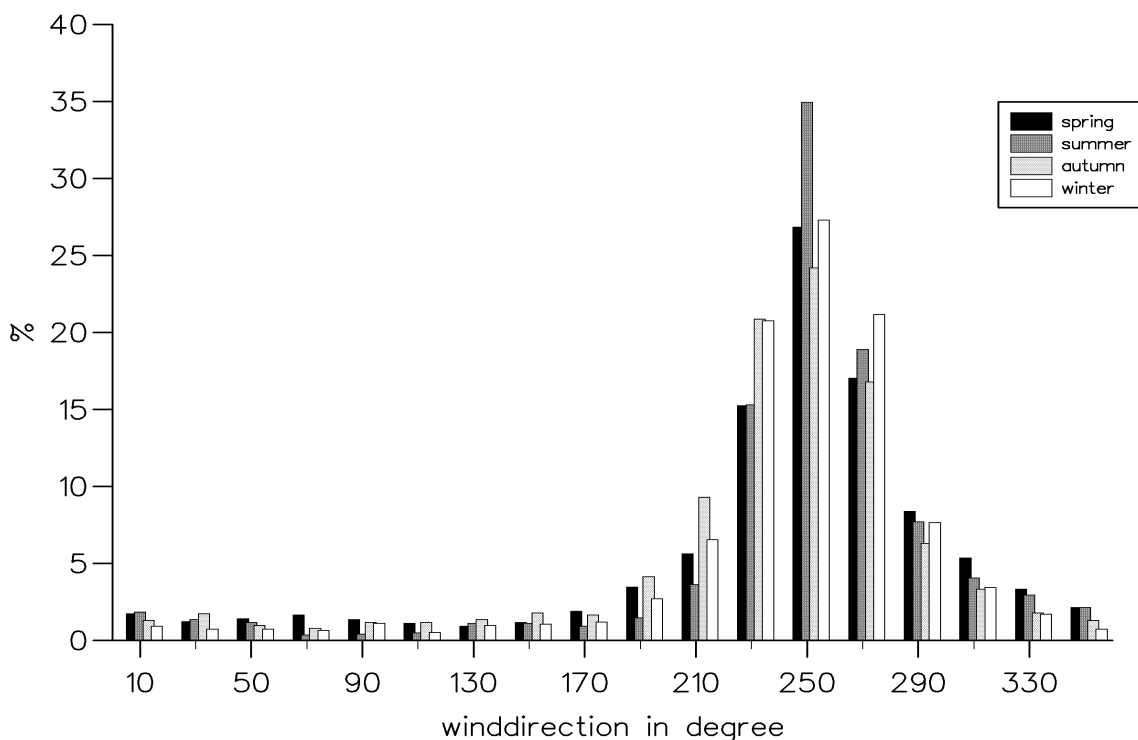


Abb. 5.1: Häufigkeitsverteilung der Windrichtung für die Jahre 1979-1992.

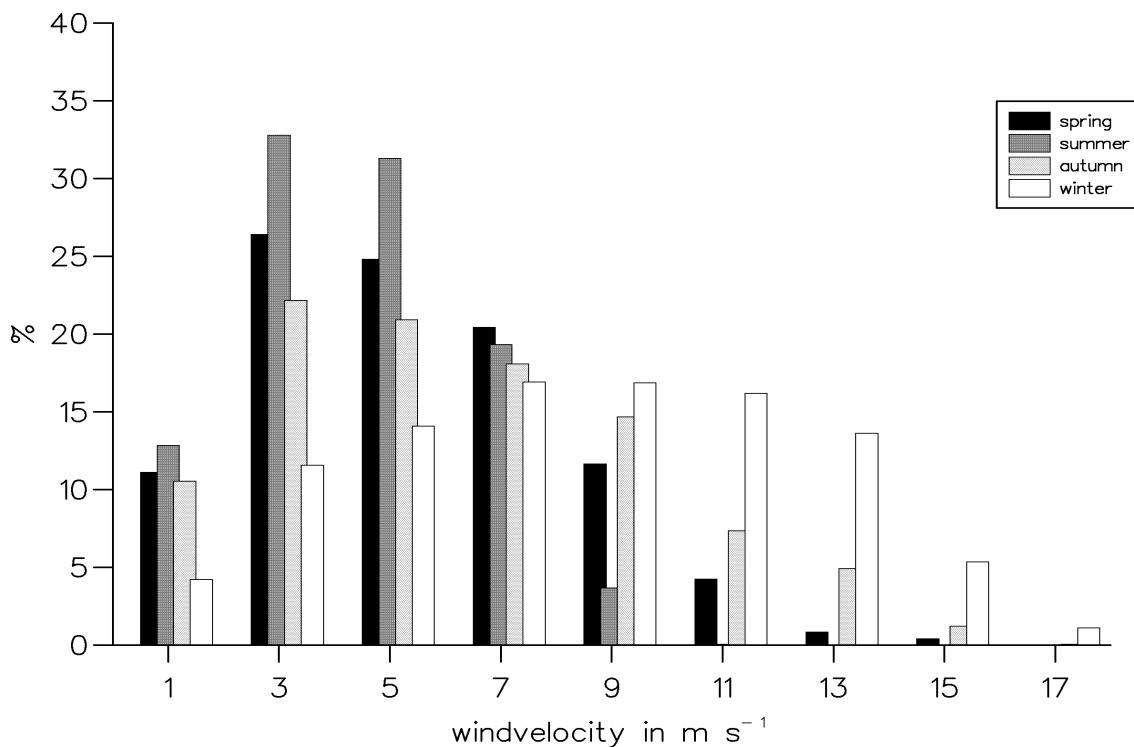


Abb. 5.2: Häufigkeitsverteilung der Windgeschwindigkeit für die Jahre 1979-1992.

Im gesamten Jahr dominieren eindeutig die Winde aus westlichen Richtungen, wobei das Maximum am markantesten im Sommer ist. Die Windgeschwindigkeit zeigt dagegen ein etwas anderes Verhalten. Im Sommer findet man das Maximum bei relativ niedrigen Windgeschwindigkeiten und auch im Frühjahr und Herbst liegen die häufigsten Werte zwischen 3 und 5 m s<sup>-1</sup>. Dagegen ist im Winter die Verteilung wesentlich homogener, mit einem Maximum im Bereich von 9 m s<sup>-1</sup>.

Um einen Hinweis über die mittlere Schadstoffbelastung im Jahresverlauf zu bekommen, wurden zunächst die routinemäßig an den Stationen der Landesanstalt für Umweltschutz erhobenen Daten untersucht. Betrachtet man die Tagesgänge der NO-Konzentration für verschiedene Stationen in Baden-Württemberg gemittelt über die Wintermonate (D-J-F) der Jahre 1986-1995, so erhält man die in Abbildung 5.3 dargestellten Verhältnisse. Stationen, die sich in größerer Quellentfernung befinden, wie z. B. Schwarzwald-Süd und auch Freudenstadt, weisen nur eine sehr geringe Belastung durch NO auf. Hier liegen die Konzentrationen während des gesamten Tages unterhalb von 10 ppb. Während man in Freudenstadt noch schwach den typischen Tagesgang mit leichten Maxima in den Morgen- und Abendstunden erkennen kann, bedingt durch den Tagesgang der Emissionen und den Schichtungsverhältnissen in der Atmosphäre, treten an der Station Schwarzwald-Süd die höchsten Konzentrationen in den Mittagsstunden auf.

In dieser Zeit liegt die Station innerhalb der Mischungsschicht. Betrachtet man die zeitlichen Verläufe für Stationen, die sich mehr in Quellnähe befinden, erkennt man zwar den gewohnten zeitlichen Verlauf mit höheren Konzentrationen in den Morgen- und Abendstunden, jedoch ist die Amplitude im Vergleich mit den Sommermonaten (Abb. 5.8) deutlich geringer. In der Nacht treten im Mittel erheblich höhere Konzentrationen auf. Vergleicht man die mittleren zeitlichen Verläufe mit denen, in die nur die Daten für den Januar des Referenzjahres 1994 (Abb. 5.4) eingeflossen sind, findet man keine markanten qualitativen Unterschiede. Die mittleren Konzentrationen im Januar 1994 erreichen jedoch nur 50 % des Niveaus, welches im Mittel in den Wintermonaten der Jahre 86 bis 95 erreicht wurde.

Ein sehr ähnliches Verhalten zeigen die mittleren Tagesgänge der  $\text{NO}_2$ - (Abb. 5.5) und der CO-Konzentrationen (Abb. 5.6). Auch bei diesen Substanzen findet man in den Wintermonaten einen sehr schwach ausgeprägten Tagesgang, im Gegensatz zum NO aber an allen Stationen. Das Konzentrationsniveau für  $\text{NO}_2$  ist dabei in einer ähnlichen Größenordnung wie in den Sommermonaten, das von CO etwas höher (Abb. 5.9-5.10).

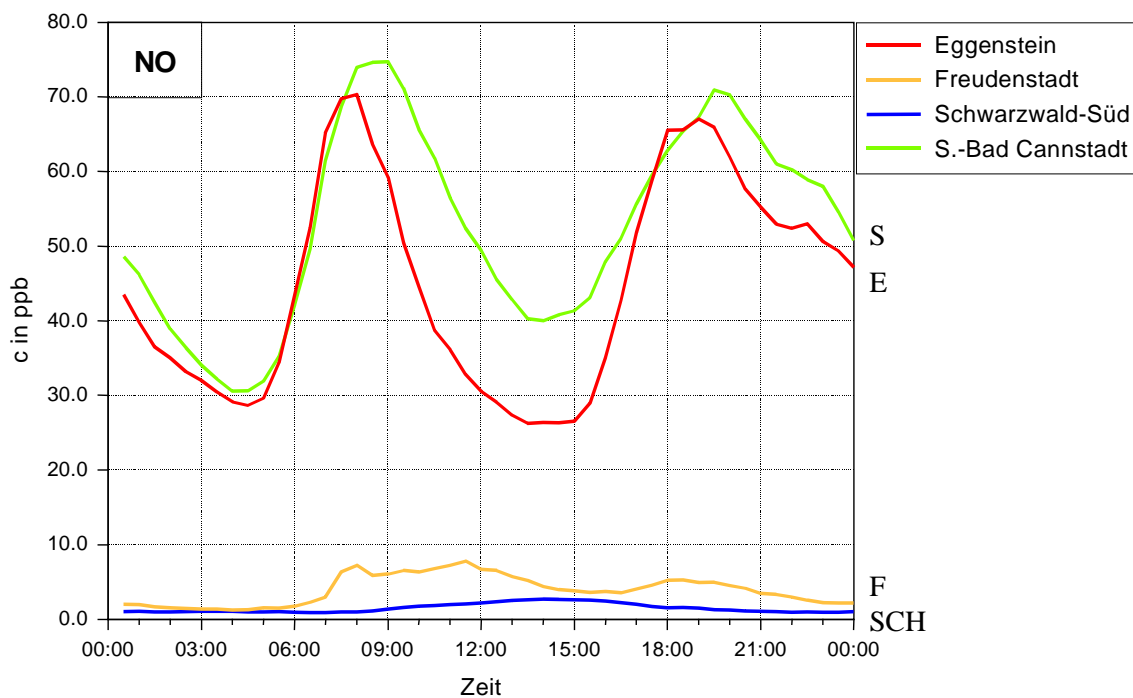


Abb. 5.3: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.

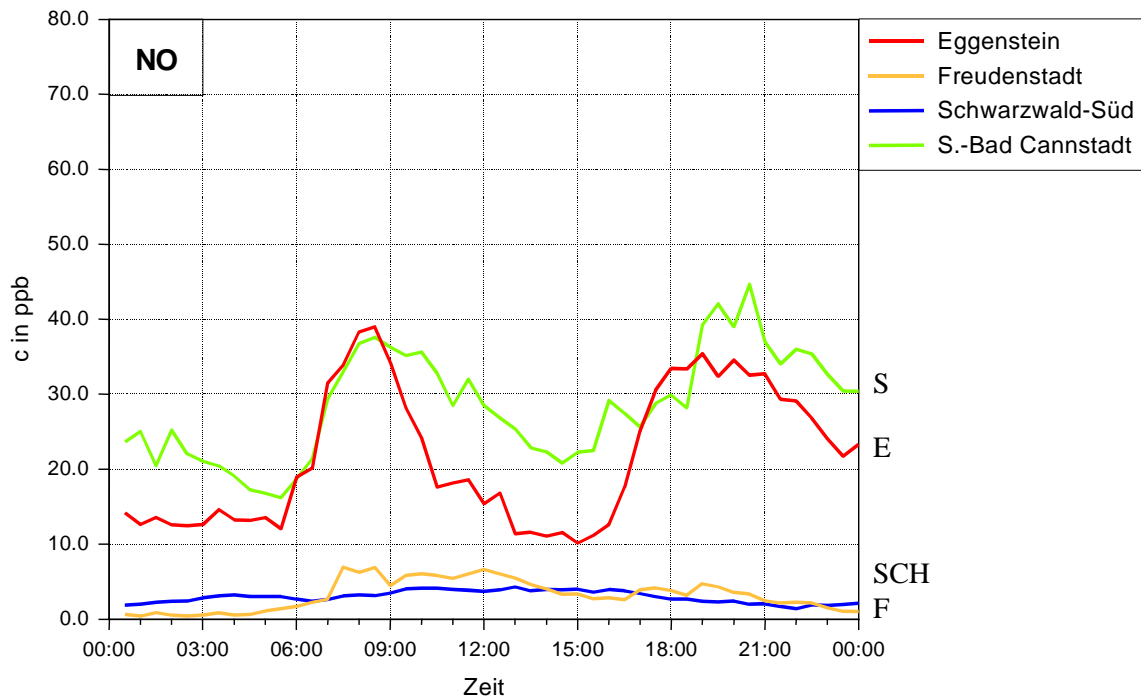


Abb. 5.4: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage des Januars 1994 gemittelt.

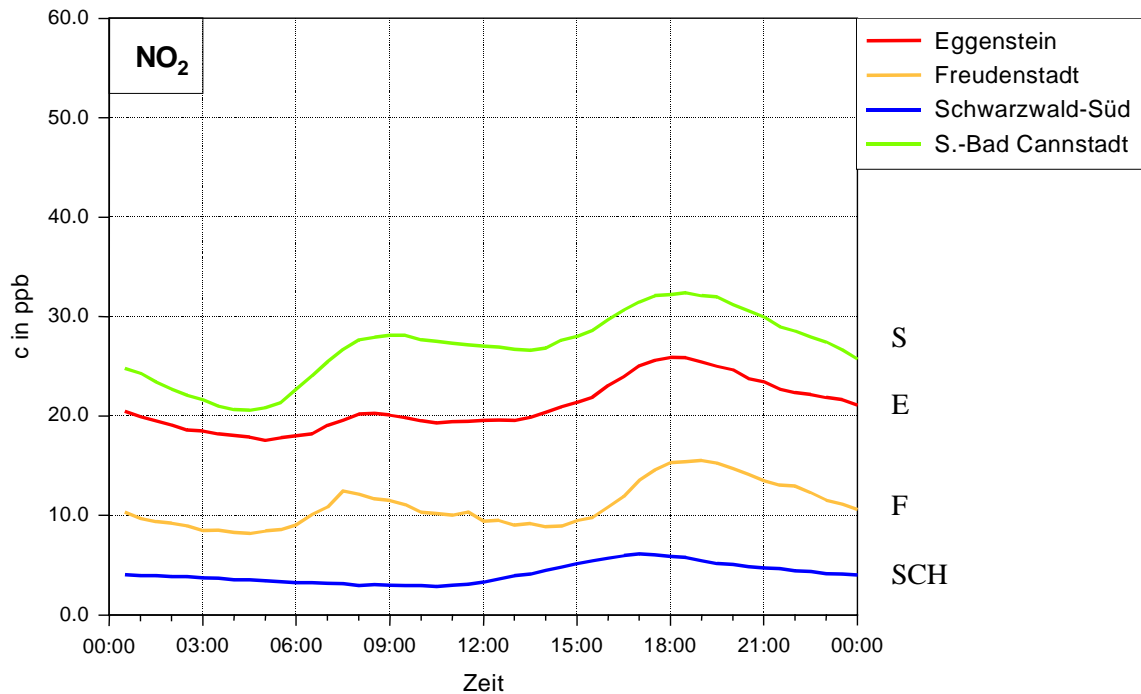


Abb. 5.5: Mittlere Tagesgänge der NO<sub>2</sub>-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.

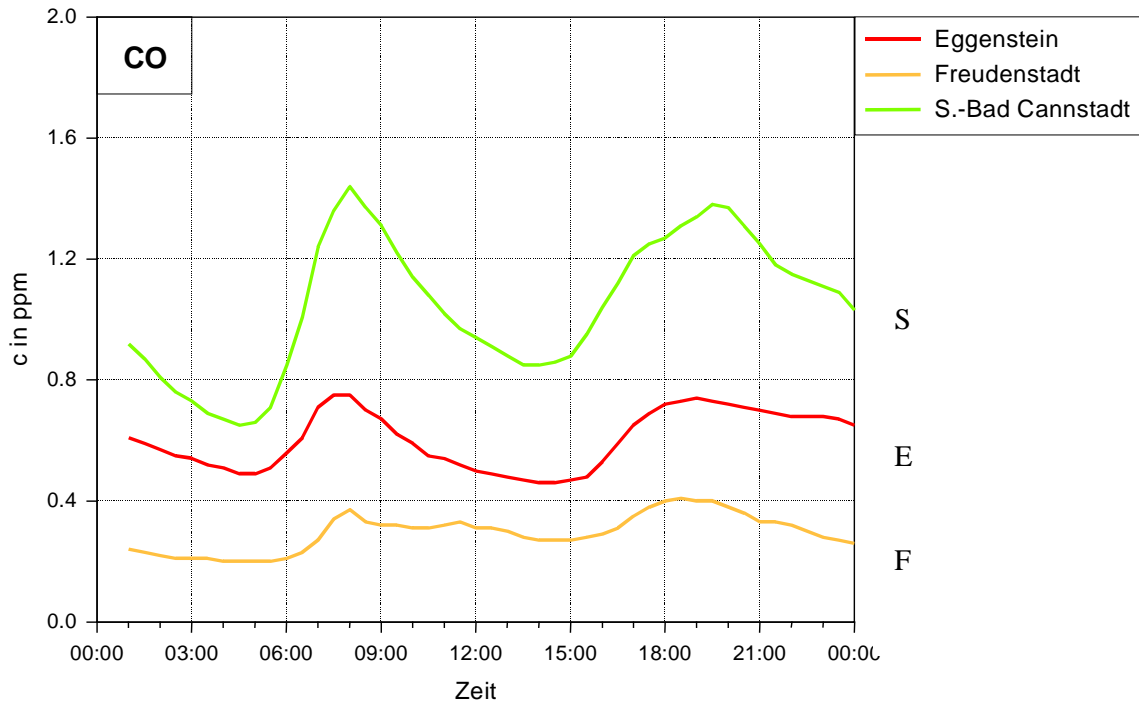


Abb. 5.6: Mittlere Tagesgänge der CO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.

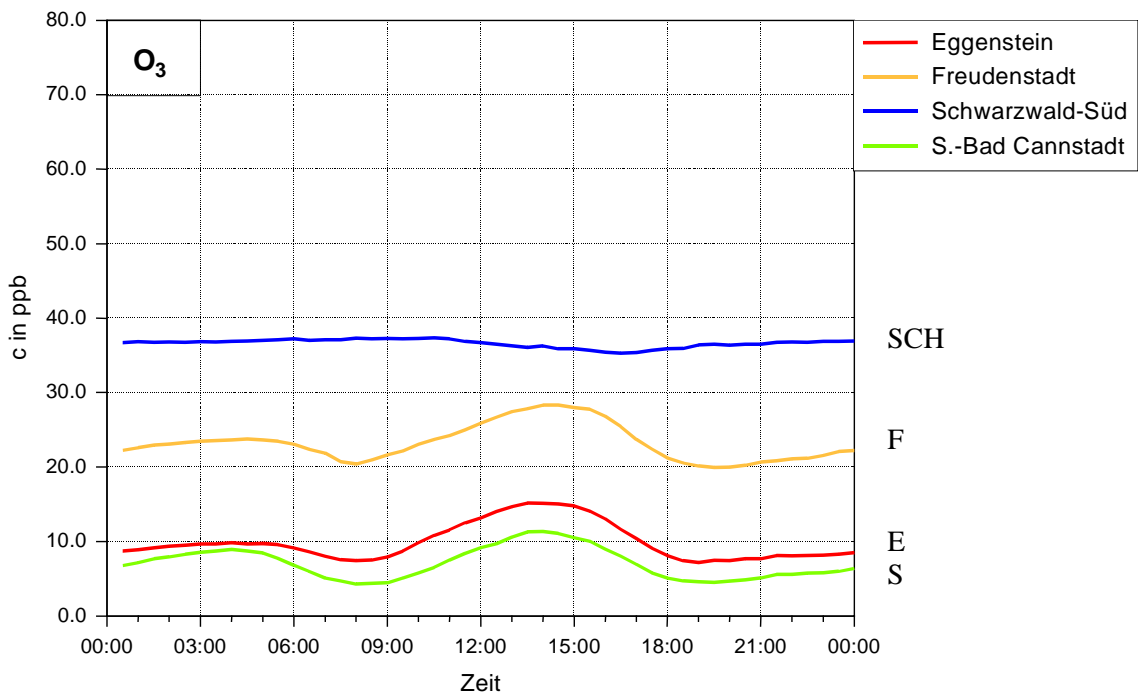


Abb. 5.7: Mittlere Tagesgänge der O<sub>3</sub>-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Dezember bis Februar 1986-1995 gemittelt.

Eine Substanz, deren Konzentrationen während des Winters weniger bedenklich erscheinen, ist das Ozon. Wie erwartet zeigt sich, daß die mittleren Konzentrationen wie in Abb. 5.7 dargestellt, auf einem sehr niedrigen Niveau liegen. Auffallend ist,

daß an der Station Schwarzwald-Süd ein nahezu konstanter Verlauf auftritt. Die niedrigsten Konzentrationen treten sogar während der Mittagsstunden auf. Die anderen Stationen weisen noch einen Tagesgang auf, wobei der Unterschied zwischen Minimum und Maximum im Bereich von 5 ppb liegt. In den Nachtstunden gehen die Werte nicht auf Null zurück, sondern liegen je nach Lage der Station etwa bei 10 ppb.

Zum Vergleich sind in den Abbildungen 5.8 - 5.11 die entsprechenden mittleren Tagesgänge für die Monate Mai - August dargestellt. Wie schon erwähnt sind die Maximalwerte der NO-Konzentration im Sommer niedriger und auch während der Mittagsstunden liegen die Werte unter denen im Winter. Ursachen hierfür sind zum einen die stärkere turbulente Durchmischung sowie die Reaktion mit Ozon. Die stärker ausgeprägte Amplitude ist auch bei NO<sub>2</sub> und CO sichtbar. Die Konzentrationen von CO sind im Vergleich zum Winter deutlich geringer, was durch die niedrigeren Emissionen im Sommer bedingt ist. Erwartungsgemäß findet man beim Ozon im Sommer deutlich höhere Konzentrationen. Auch an der Station Schwarzwald-Süd treten jetzt die Maximalwerte während der Tagstunden auf.

Die bisher beschriebenen zeitlichen Konzentrationsverläufe zeigen das im Mittel gefundene Verhalten. Betrachtet man aber einzelne Zeitabschnitte, so weichen die Tagesgänge für die verschiedenen Stoffe doch deutlich davon ab. In den Abbildungen 5.12 und 5.13 ist jeweils für NO und Ozon der mittlere Tagesgang sowie die dazugehörige Standardabweichung für den Januar 1994 an der Station Eggenstein dargestellt. Es ist offensichtlich, daß die Streuung der Werte fast während des gesamten Tages größer ist, als die Tagesamplitude selbst. Dieser Sachverhalt erschwert daher, die mittlere Belastung durch die unterschiedlichen Luftverunreinigungen durch wenige Simulationen ausgewählter Bedingungen bestimmen zu können. Es ist erforderlich eine Reihe von Simulationen für die verschiedenen meteorologischen Bedingungen durchzuführen, um durch Mittelung dieser Ergebnisse zu einer Aussage der mittleren Belastung zu kommen. Eine solch große Anzahl von Simulationen konnte jedoch wegen der begrenzten Laufzeit des Vorhabens nicht durchgeführt werden. Um solche Simulationen durchführen zu können, wäre es auch erforderlich, neben den meteorologischen Verhältnissen, genaue Angabe über die Emissionssituation zu haben. Es ist leicht vorstellbar, daß sich die Emissionsverhältnisse für einen Januartag mit starkem Schneefall oder Glatteis und Temperaturen unter Null Grad deutlich von denen eines Januartages mit positiven Temperaturen und ohne Niederschlag unterscheiden. Die Bestimmung solcher detaillierter Datensätze war jedoch während der Projektlaufzeit nicht möglich. Deshalb wurden jeweils für eine Wintersituation



und eine Sommersituation Simulationen durchgeführt. Dabei wurden meteorologischen Bedingungen so gewählt, daß jeweils hohe Belastungen zu erwarten waren.

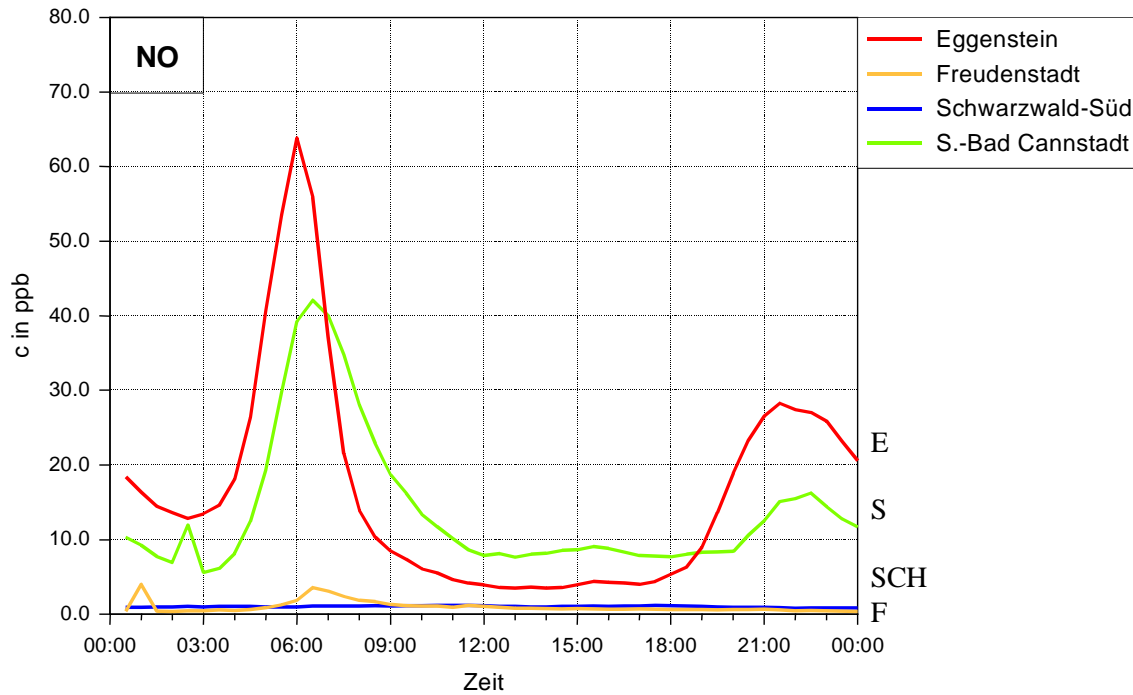


Abb. 5.8: Mittlere Tagesgänge der NO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Mai bis August 1986-1995 gemittelt.

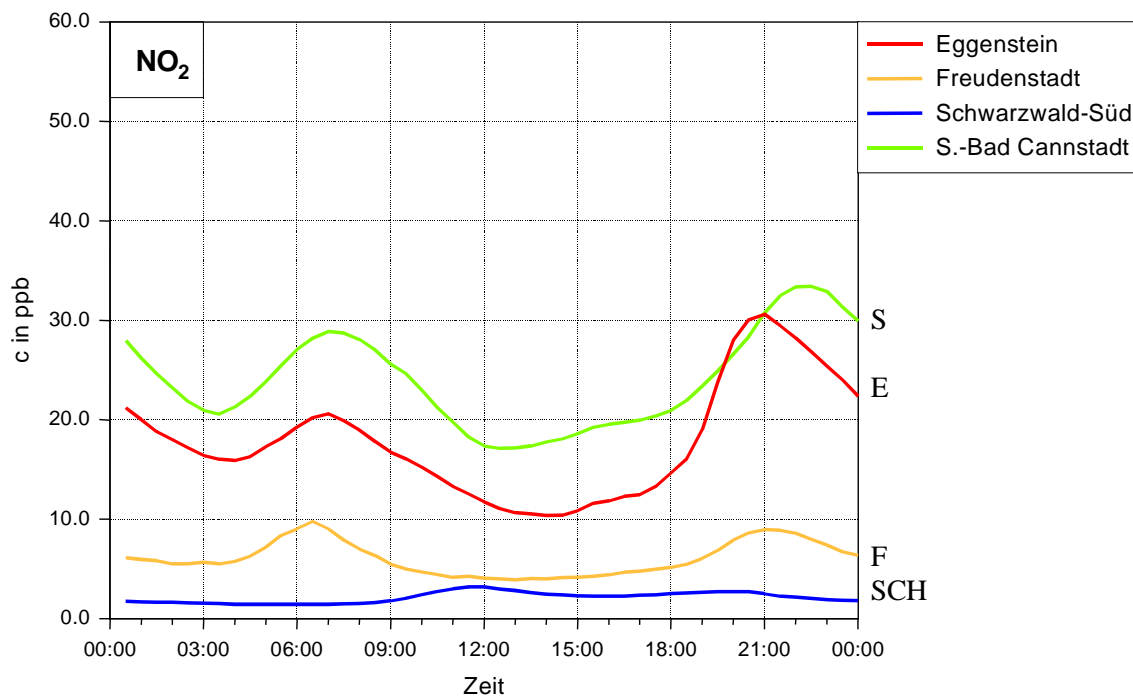


Abb. 5.9: Mittlere Tagesgänge der NO<sub>2</sub>-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Mai bis August 1986-1995 gemittelt.

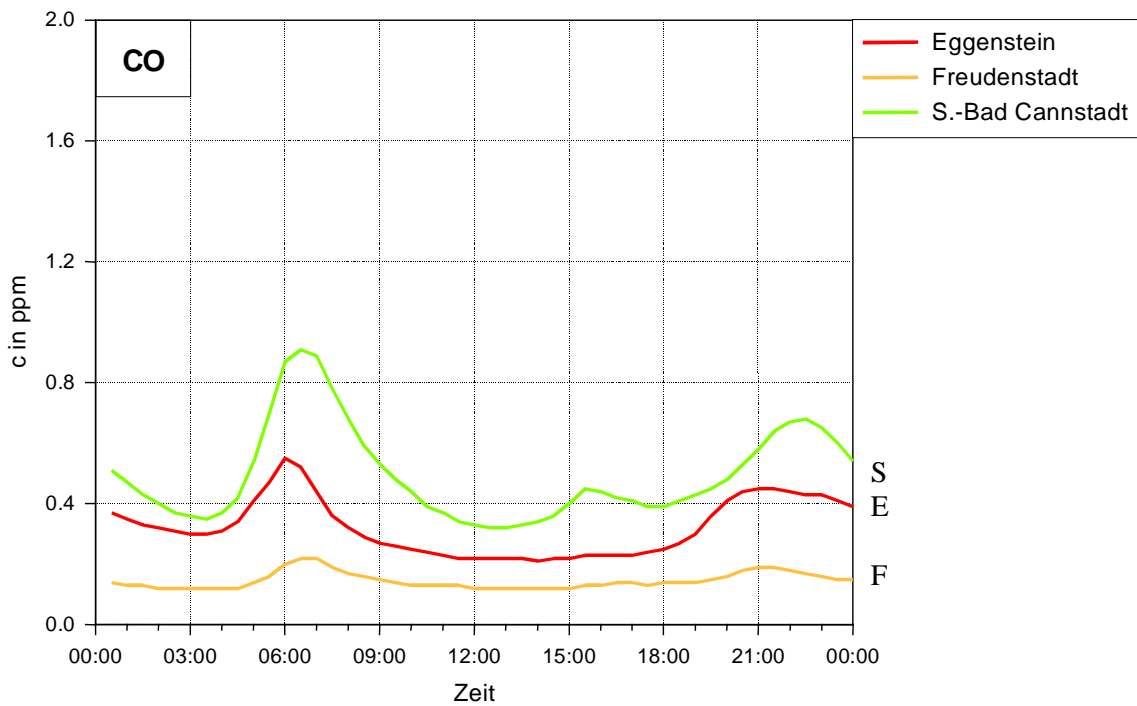


Abb. 5.10: Mittlere Tagesgänge der CO-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Mai-August 1986-1995 gemittelt.

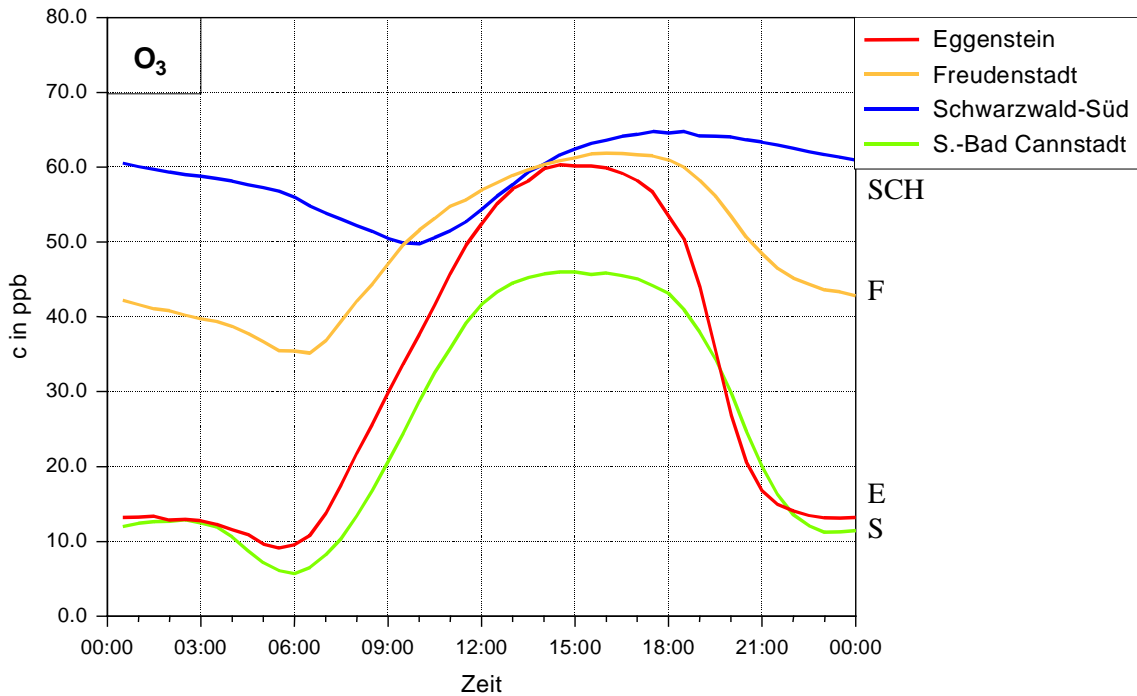


Abb. 5.11: Mittlere Tagesgänge der O<sub>3</sub>-Konzentration. Die Daten wurden über alle Tage der Monate Mai - August 1986-1995 gemittelt.

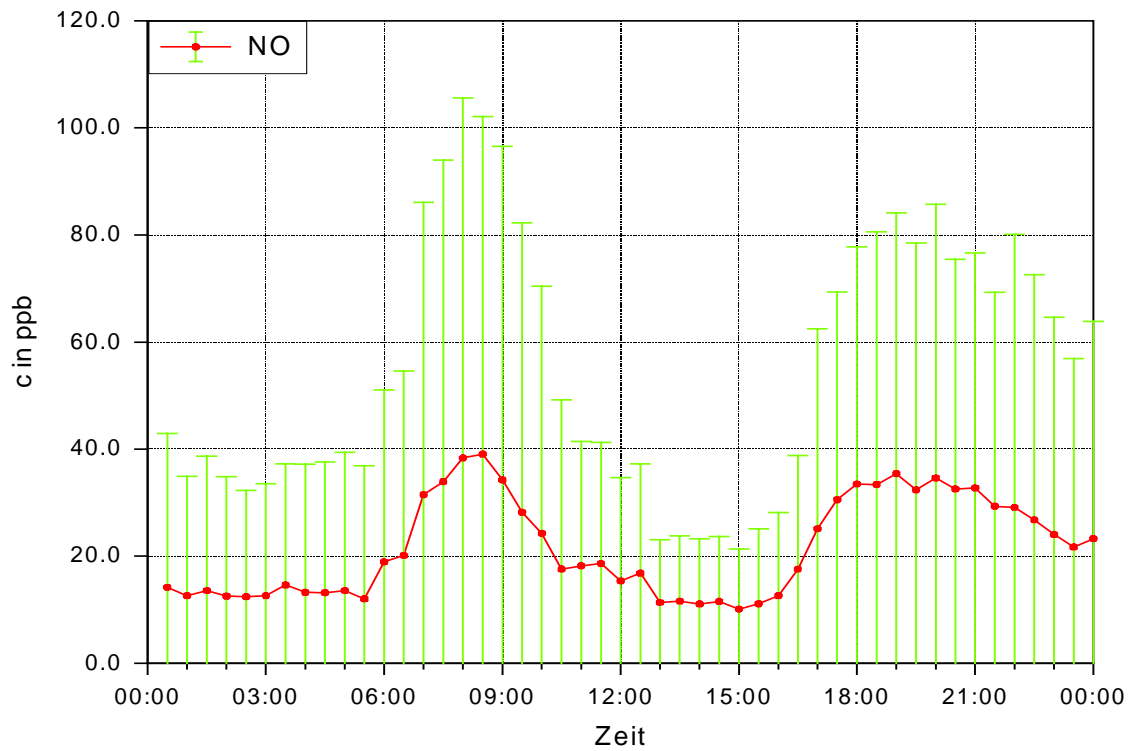


Abb. 5.12: Mittlerer Tagesgang der NO-Konzentration und die dazugehörige Standardabweichung, über alle Tage des Januars 1994 gemittelt.

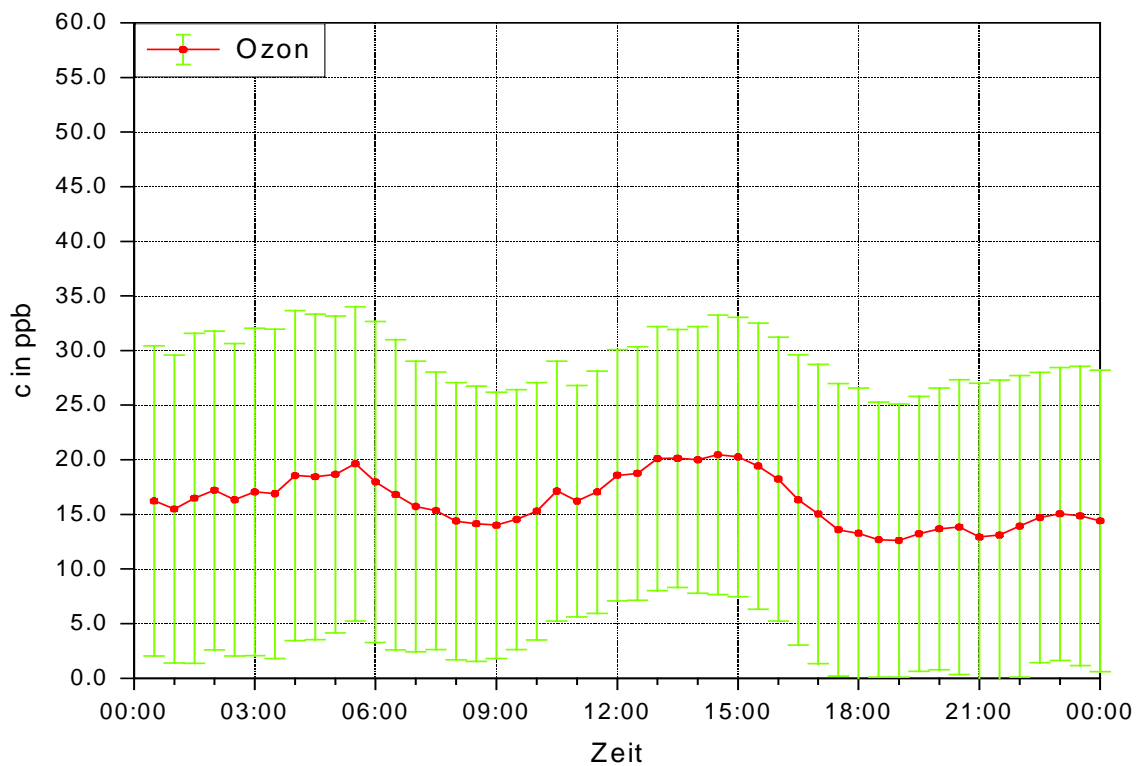


Abb. 5.13: Mittlerer Tagesgang der O<sub>3</sub>-Konzentration und die dazugehörige Standardabweichung, über alle Tage des Jan. 1994 gemittelt.

## 5.1 Modellierung einer winterlichen Situation

Im Gegensatz zu den Sommermonaten, während denen das Hauptproblem hohe Ozonkonzentrationen sind, spielen im Winter die Konzentrationen der primär emittierten Substanzen wie z. B. Stickoxide und Schwefeldioxid die größere Rolle hinsichtlich der Schadstoffbelastung. Basierend auf der Analyse der Daten des EZMWF wurde für die Simulation einer winterlichen Situation eine geostrophische Anströmung aus südwestlicher Richtung mit  $4 \text{ m s}^{-1}$  vorgegeben. Die weiteren Daten (wie z. B. Bodentemperatur, Temperaturprofile) zur Initialisierung wurden der REKLIP-Datenbank (ZIMMERMANN, 1999) entnommen. Das Simulationsgebiet entspricht im wesentlichen dem Gebiet von Baden-Württemberg. Die horizontale Maschenweite beträgt 4 km, in vertikaler Richtung variiert sie zwischen 20 m in Bodennähe und 500 m am oberen Modellrand in 8 km Höhe. Die Emissionen wurden wie in Kapitel 4.3 beschrieben, für den 10.01.1994 bestimmt.

Abbildung 5.14 zeigt exemplarisch das Windfeld in 18 m über Grund mittags um 12 Uhr. Zu diesem Zeitpunkt überwiegen im Oberrheingraben südliche Windrichtungen aufgrund der Kanalisierung. An den Hängen des Schwarzwald, der Vogesen und der Schwäbischen Alb sind Hangaufwinde erkennbar.

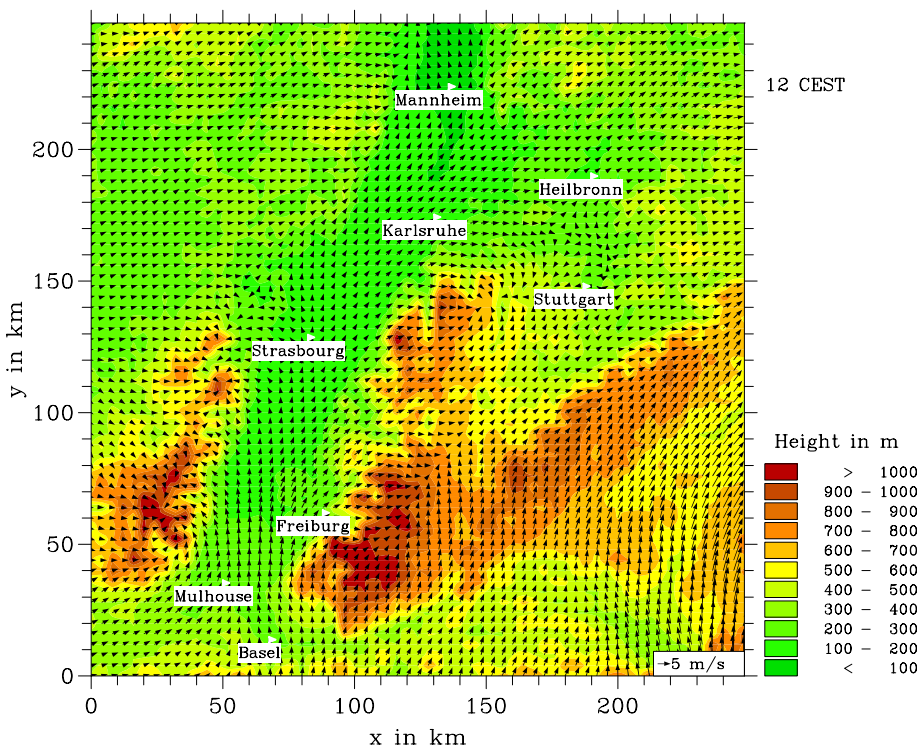


Abb. 5.14: Horizontalverteilung der Windgeschwindigkeit in 18 m über Grund um 12 Uhr.

Im nördlichen Teil des Simulationsgebietes dominieren Winde aus südwestlicher

Richtung wobei die Windgeschwindigkeit größtenteils sehr gering ist. Die Abbildung 5.15 zeigt die Horizontalverteilung der über den gesamten Simulationszeitraum gemittelten Temperatur in der gleichen Höhe. Die niedrigsten Temperaturen treten erwartungsgemäß im Bereich des Feldberg im Schwarzwald auf, während im nördlichen Rheintal die Tagesmitteltemperatur um etwa 6 Grad höher ist.

Die Konzentrationsverteilungen, die sich bei diesen meteorologischen Verhältnissen einstellen, zeigen die folgenden Darstellungen. In Abbildung 5.16 ist die horizontale Verteilung der Tagesmittelkonzentration von  $\text{SO}_2$  dargestellt. Trotz der deutlich zurückgegangenen Emissionen treten im Winter bei niedrigen Windgeschwindigkeiten sehr hohe Konzentrationen von  $\text{SO}_2$  im Tagesmittel auf. Stark belastete Gebiete sind im Umfeld der größeren Städte zu finden. Aufgrund der Strömungsverhältnisse werden die emittierten Substanzen im Rheingraben nach Norden transportiert, wobei es zu einer Überlagerung der verschiedenen Abluffahnen kommt.

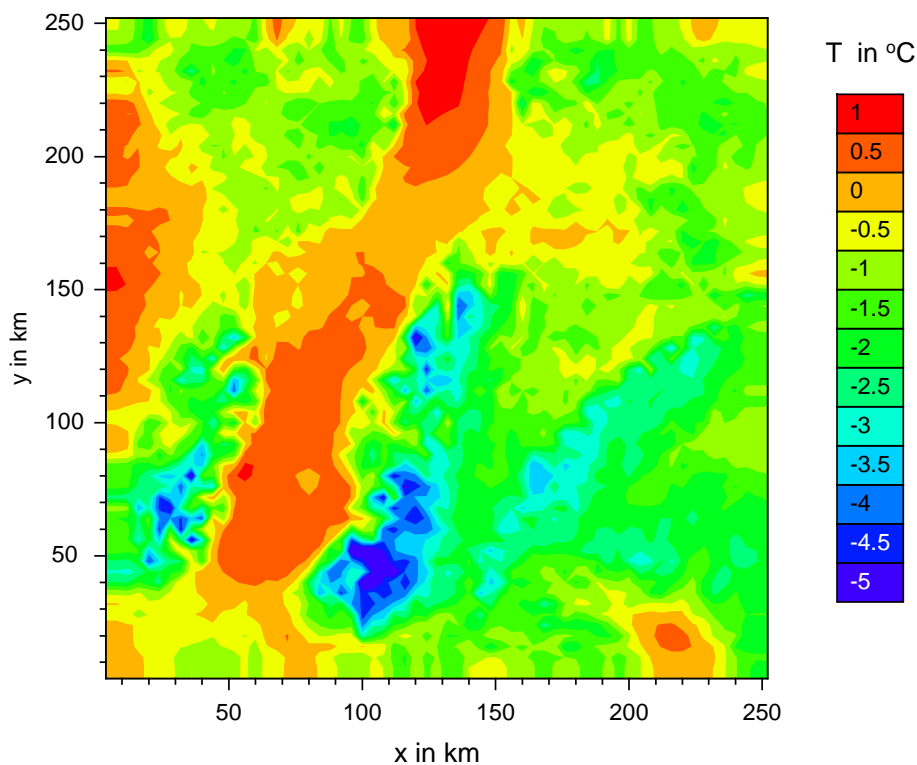


Abb. 5.15: Horizontalverteilung der Tagesmitteltemperatur in 18 m über Grund für die winterliche Situation.

Auch im nördlichen Teil von Baden-Württemberg treten vergleichsweise hohe Konzentrationen auf. Die im Raum Saarbrücken freigesetzten Substanzen werden nach Nordwesten transportiert, während die Abluffahnen von Stuttgart, Karlsruhe und insbesondere Mannheim eine stärkere nördliche Komponente aufweisen, so daß es auch hier zu einer Überlagerung und damit verbundenen höheren Belastung kommt.

Sehr niedrige Konzentrationen findet man dagegen im Schwarzwald und den Vogesen. Die Abbildungen 5.17 und 5.18 zeigen die Horizontalverteilungen der Tagesmittelkonzentration für  $\text{NO}_2$  und  $\text{CO}$ . Bei diesen Stoffen treten die Gebiete mit hoher Schadstoffbelastung noch prägnanter hervor. Beide Substanzen werden auch in hohen Mengen vom Kraftfahrzeugverkehr emittiert. Da die Hauptverkehrsverbindungen wie z. B. die A5 im Rheintal, entlang der Täler verlaufen, kommt es in den Gebieten zu einer zusätzlichen Belastung durch die Emissionen des Verkehrs.

Die bisher untersuchten Substanzen werden alle direkt in die Atmosphäre emittiert. Infolge der in der Atmosphäre ablaufenden Reaktionsvorgänge können jedoch weitere Substanzen gebildet bzw. wie z. B. Ozon, zusätzlich gebildet werden, die aber ebenfalls zur Schadstoffbelastung beitragen. Im Winter stellen die Ozonkonzentrationen kein Problem dar, der Vollständigkeit halber ist dennoch in Abbildung 5.19 die entsprechende Horizontalverteilung dargestellt. In den Tälern und somit auch meistens Hauptemissionsgebiete sind die mittleren Konzentrationen sehr gering. Hier überwiegt die Reaktion von Ozon mit  $\text{NO}$  und da auch nur wenig Ozon von oben nachgemischt werden kann, sind die Werte im Tagesmittel im Bereich von 15 ppb. Anders ist die Situation im Bereich des Schwarzwaldes, der Vogesen und der Schwäbischen Alb. Hier liegen die Konzentrationen im Mittel bei 40 ppb. Dieses Verhalten ist auch in der Darstellung der mittleren Tagesgänge (Abb. 5.7) zu sehen.

$\text{HNO}_3$ , eine Substanz, die bei der Stickstoffbilanzierung eine Rolle spielt, ist in Abbildung 5.20 dargestellt.  $\text{HNO}_3$  ist das Produkt der Reaktion von  $\text{NO}_2$  und  $\text{OH}$  und ist die Hauptsenke für Stickoxide, wobei die Lebenszeit in der atmosphärischen Grenzschicht davon abhängt, ob es in der Gasphase verbleibt oder heterogene Reaktionen eingeht. Letztere wurden bei den hier durchgeführten Simulationen nicht berücksichtigt. Die horizontale Verteilung im Untersuchungsgebiet unterscheidet sich von den primär emittierten Substanzen insofern, daß die höheren Konzentrationen nicht in den Tallagen auftreten, die Maxima befinden sich in einer gewissen Entfernung, da  $\text{HNO}_3$  erst gebildet wird.

Um eine Aussage hinsichtlich der Stickoxidbelastung treffen zu können, zeigt Abbildung 5.21 die entsprechende Horizontalverteilung für die  $\text{NO}_y$ -Konzentration, d. h. die Summe aller reaktiven Stickstoffsubstanzen ( $\text{NO}_y = \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{HNO}_3 + \text{PAN} + \text{HNO}_2, \dots$ ). Es zeigt sich, daß bei der betrachteten winterlichen Situation mit niedrigen Windgeschwindigkeiten die Schadstoffbelastung insbesondere im Lee von Saarbrücken und im nördlichen Teil von Baden-Württemberg besonders hoch ist. Die Ursache für letzteres liegt darin begründet, daß die im Rheintal emittierten Substanzen in nördliche Richtung transportiert werden. Während des Transports finden zum einen

chemische Umwandlungen statt, es werden Stoffe wie  $\text{HNO}_3$  gebildet. Zum anderen kommen die Emissionen weiterer Quellgebiete hinzu und eine Überlagerung von Abluffahnen mit der Folge besonders hoher  $\text{NO}_y$ -Konzentrationen entsteht.

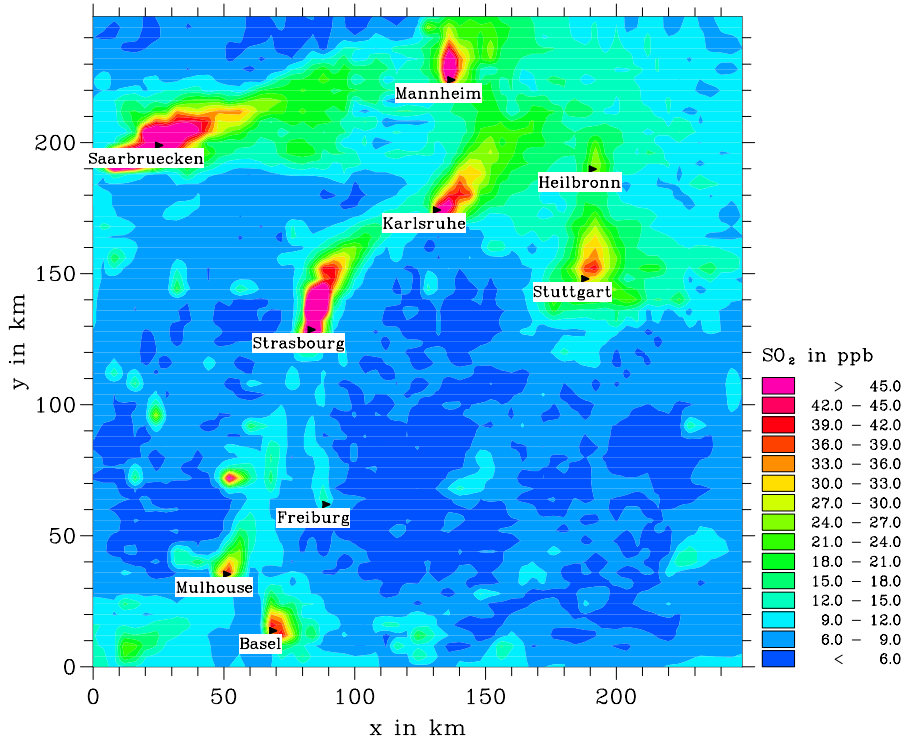


Abb. 5.16: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{SO}_2$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.

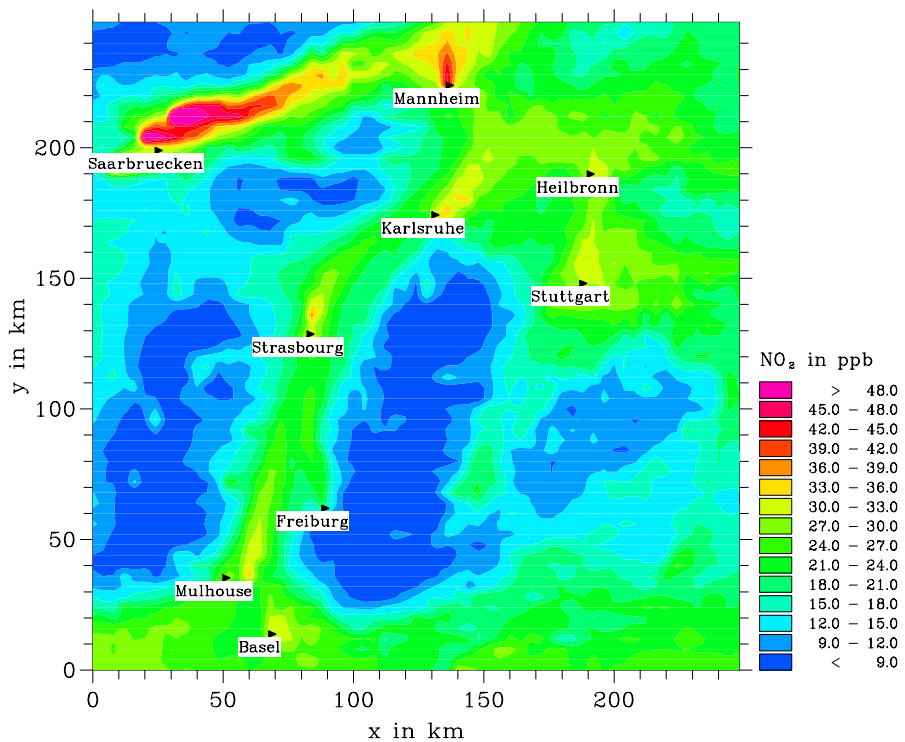


Abb. 5.17: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{NO}_2$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.

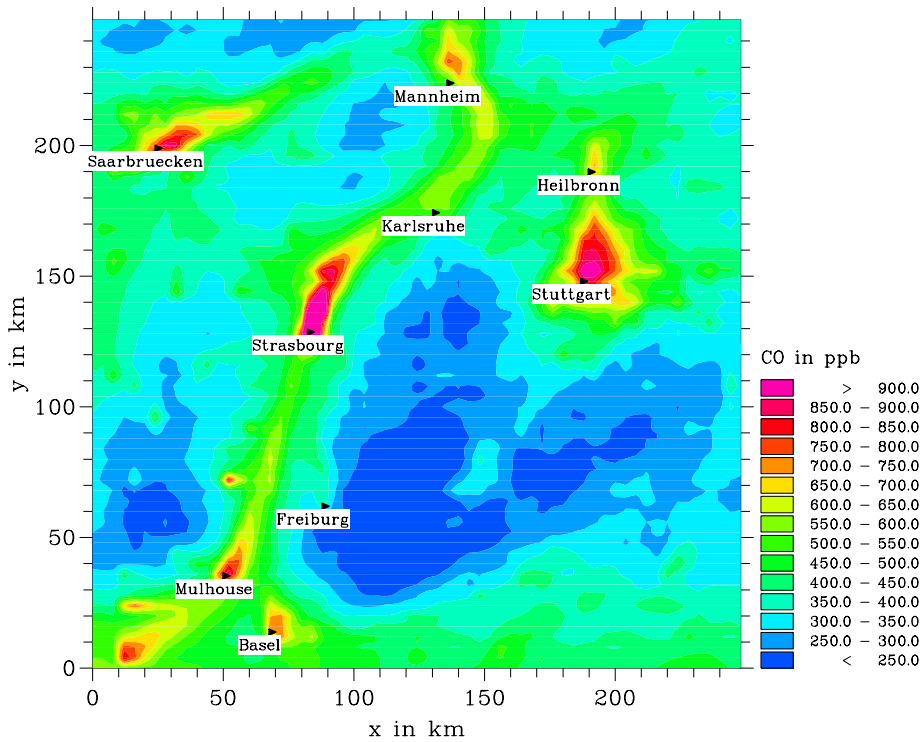


Abb. 5.18: Horizontalverteilung des Tagesmittels der CO-Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.

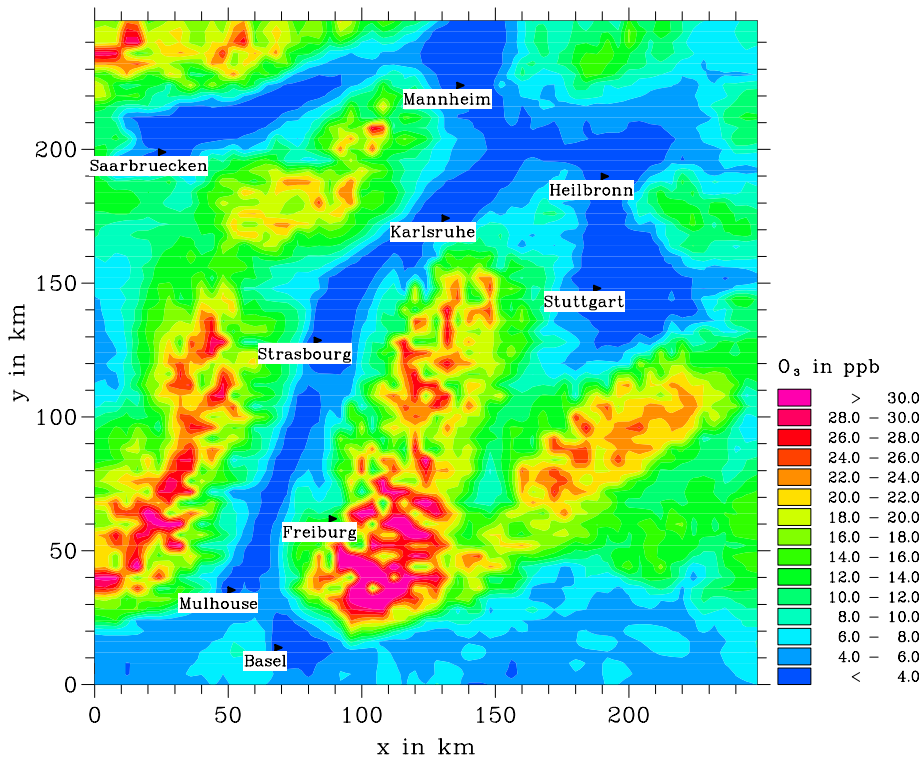


Abb. 5.19: Horizontalverteilung des Tagesmittels der O<sub>3</sub>-Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.



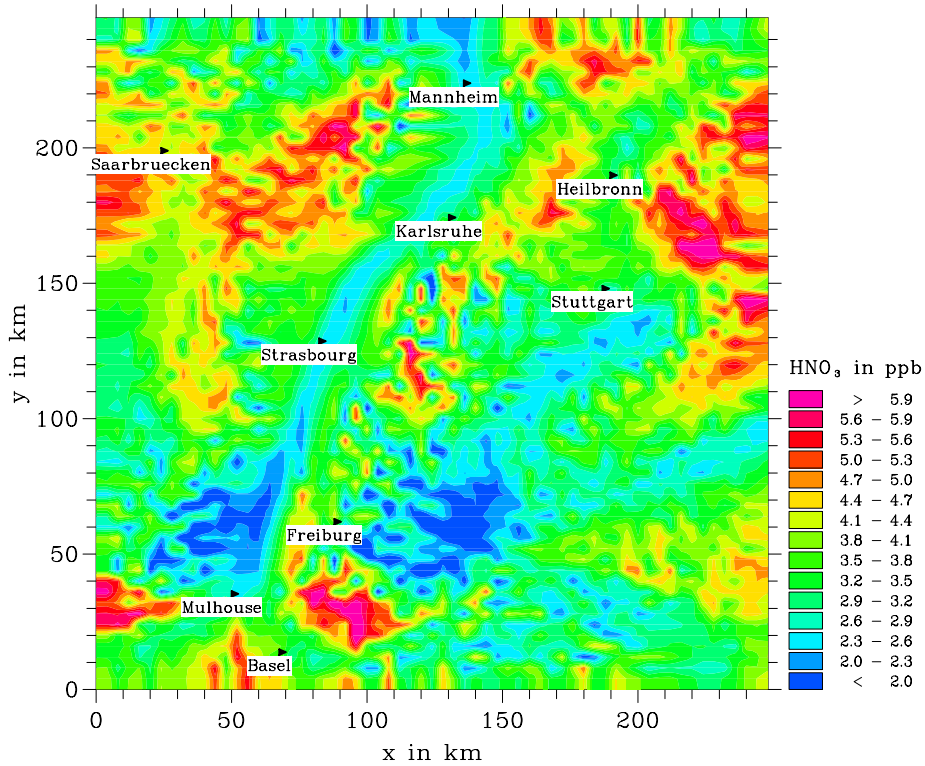


Abb. 5.20: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.

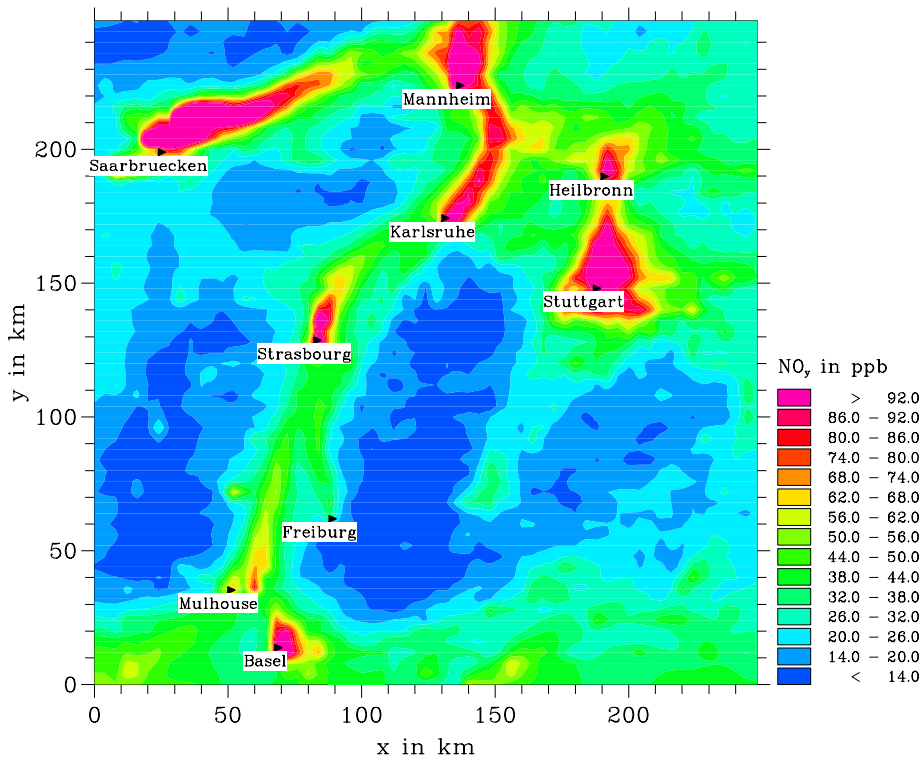


Abb. 5.21: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{NO}_y$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.

## 5.2 Modellierung einer sommerlichen Situation

Im Gegensatz zu den Wintermonaten sind die Konzentrationen von Substanzen wie  $\text{SO}_2$  aufgrund der niedrigeren Emissionen im Sommer weniger besorgniserregend. Eine größere Rolle spielt dagegen die Belastung durch hohe Ozonkonzentrationen. Ausgehend von den Analysen des EZMWF wurde eine Simulation unter Vorgabe einer geostrophischen Anströmung von  $4 \text{ m s}^{-1}$  aus westlicher Richtung durchgeführt. Die Abbildung 5.22 zeigt die berechnete Horizontalverteilung der Tagesmitteltemperatur in Bodennähe. Ähnlich wie bei der Simulation der winterlichen Situation findet man die höchsten Temperaturen im Rheintal im Norden des Simulationsgebietes. Hier liegen im Mittel die Temperaturen bei  $27 \text{ }^\circ\text{C}$ . Bei diesen Bedingungen werden Kohlenwasserstoffe zusätzlich zu den anthropogenen Emissionen zu einem erheblichen Anteil auch biogen emittiert (VOGEL et al., 1995; OBERMEIER et al., 1995). Um die starke Temperaturabhängigkeit dieser Emissionen richtig zu beschreiben, werden diese mit dem Modellsystem ebenso wie die biogenen  $\text{NO}_x$ -Emissionen direkt berechnet (OBERMEIER et al., 1997).

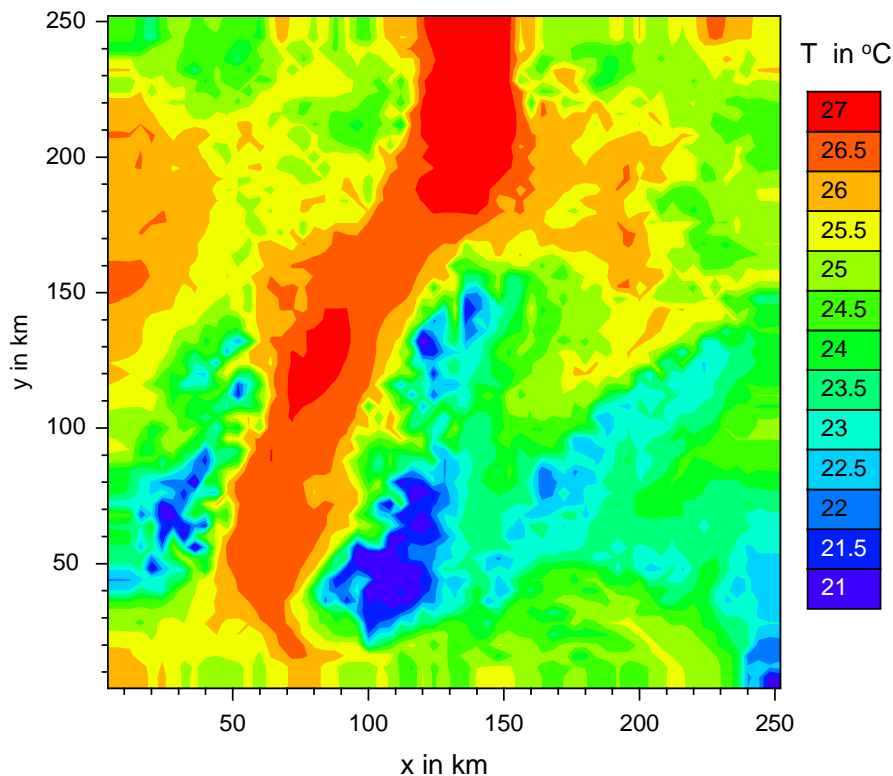


Abb. 5.22: Horizontalverteilung der Tagesmitteltemperatur in 18 m über Grund für die sommerliche Situation.

Analog zu Kapitel 4.1 zeigen die Abbildungen 5.23-5.25 und 5.27-5.28 die Horizontalverteilungen der Tagesmittelkonzentrationen für  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{HNO}_3$  und  $\text{NO}_y$  in

18 m über Grund. Wie erwartet liegen die Konzentrationsniveaus der direkt emittierten Substanzen im Sommer deutlich unter den Werten im Winter. In der  $\text{SO}_2$ -Verteilung treten nur die Emissionsgebiete selbst mit etwas erhöhten Konzentrationen hervor.  $\text{NO}_x$  und CO (hier nicht dargestellt) werden überwiegend vom Straßenverkehr emittiert, daher treten weiterhin großflächig höhere Konzentrationen auf.

Vergleicht man die Verhältnisse für Ozon, erscheinen zunächst die Unterschiede zwischen Winter und Sommer nicht übermäßig groß. Ebenso wie im Winter sind die mittleren Konzentrationen in den höher gelegenen Gebieten größer als in den Tallagen. Allerdings liegen die Maximalwerte bei 70 ppb und auch im Rheintal selbst werden noch 50 ppb erreicht. Die Ursachen hierfür sind, wie auch schon die mittleren Tagesgänge (Abb. 5.11) gezeigt haben, daß die Amplituden an den höher gelegenen Stationen kleiner sind als an denen in Tallagen. In den Nachtstunden nimmt die Ozonkonzentration zum einen aufgrund der Deposition ab. In den Tälern ist die Schichtung sehr stabil, es findet daher kaum ein turbulenter vertikaler Transport von oben nach unten statt. Infolgedessen gehen die Werte auf nahezu Null zurück. An den höher gelegenen Stationen dagegen wird aufgrund der intensiveren Turbulenz immer Ozon aus den oberen Schichten nach unten gemischt (UHRNER, 1997). Zusätzlich zu diesem Prozeß sorgt die Reaktion von Ozon mit NO in den Emissionsgebieten zu einem Rückgang der Konzentration. Betrachtet man die Verhältnisse am Nachmittag, wie in Abbildung 5.26 dargestellt, ergibt sich ein anderes Bild. Zu diesem Zeitpunkt treten die höchsten Konzentrationen mit Werten über 100 ppb bei dieser großräumigen Anströmung im Rheintal, insbesondere im Bereich von Straßburg, und im Lee von Stuttgart auf. Im Gegensatz zu primär emittierten Substanzen differieren bei Ozon die Gebiete mit Spitzenkonzentrationen und Gebiete mit hoher mittlerer Belastung.

Abbildung 5.27 zeigt die Verteilung der mittleren  $\text{HNO}_3$ -Konzentration. Wie schon beschrieben, ebenfalls eine in der Atmosphäre sekundär gebildete Substanz. Die Verteilung unterscheidet sich deutlich von den winterlichen Verhältnissen. Aufgrund der erhöhten photochemischen Aktivität in der Atmosphäre sind zum einen die Maximalkonzentrationen höher, zum anderen treten jetzt die höchsten Konzentrationen in den Abluftfahnen der Hauptemissionsgebiete auf. Einen Eindruck über die Gesamtbelastung durch Stickoxide vermittelt die in Abbildung 5.28 dargestellte  $\text{NO}_y$ -Verteilung. Sie weist große Ähnlichkeiten mit dem Ergebnis für die winterliche Situation auf. Im Tagesmittel dominieren, im Gegensatz zu einer Verteilung, wie sie zum Zeitpunkt des Ozonmaximums vorliegt, die primär emittierten Stoffe NO und

NO<sub>2</sub>. Die Umwandlungsraten sind jedoch im Sommer höher, so daß das Konzentrationsniveau insgesamt doch unter dem des Winters liegt.

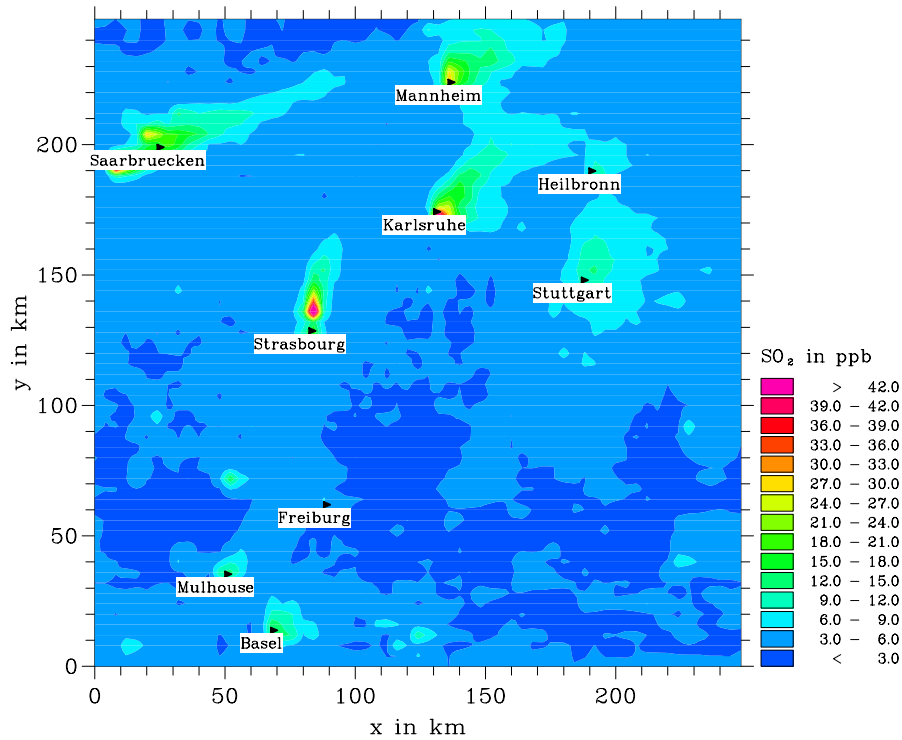


Abb. 5.23: Horizontalverteilung des Tagesmittels der SO<sub>2</sub>-Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

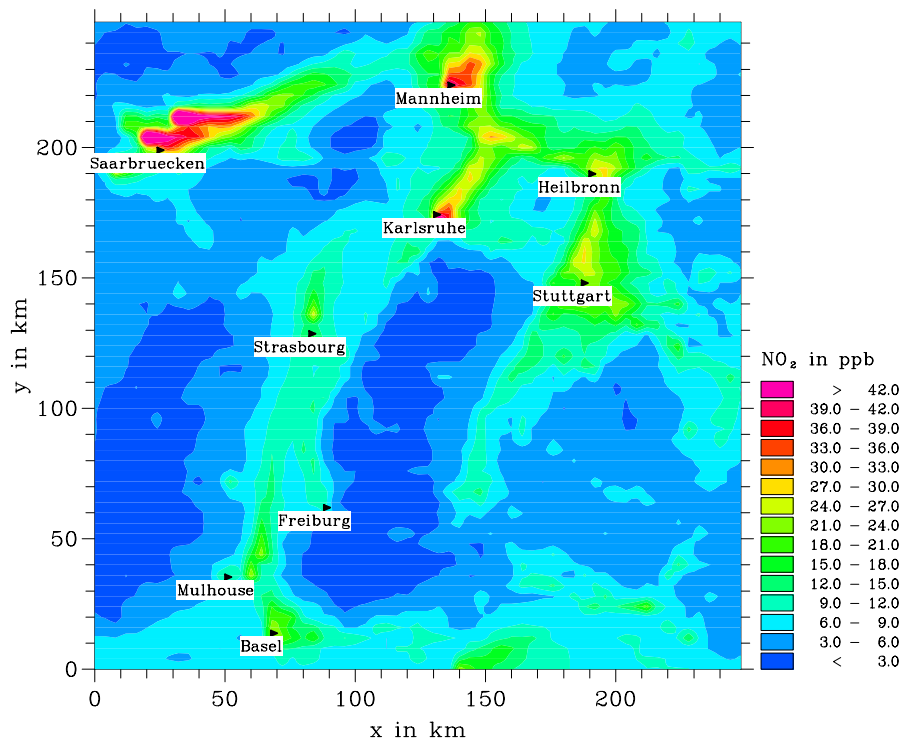


Abb. 5.24: Horizontalverteilung des Tagesmittels der NO<sub>2</sub>-Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

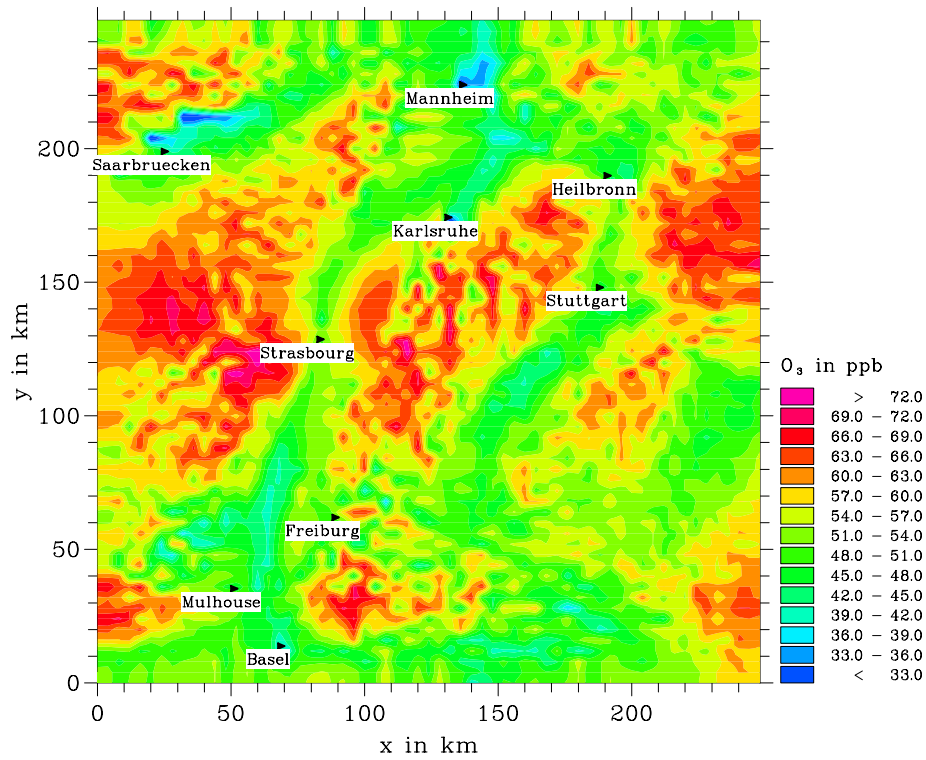


Abb. 5.25: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $O_3$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

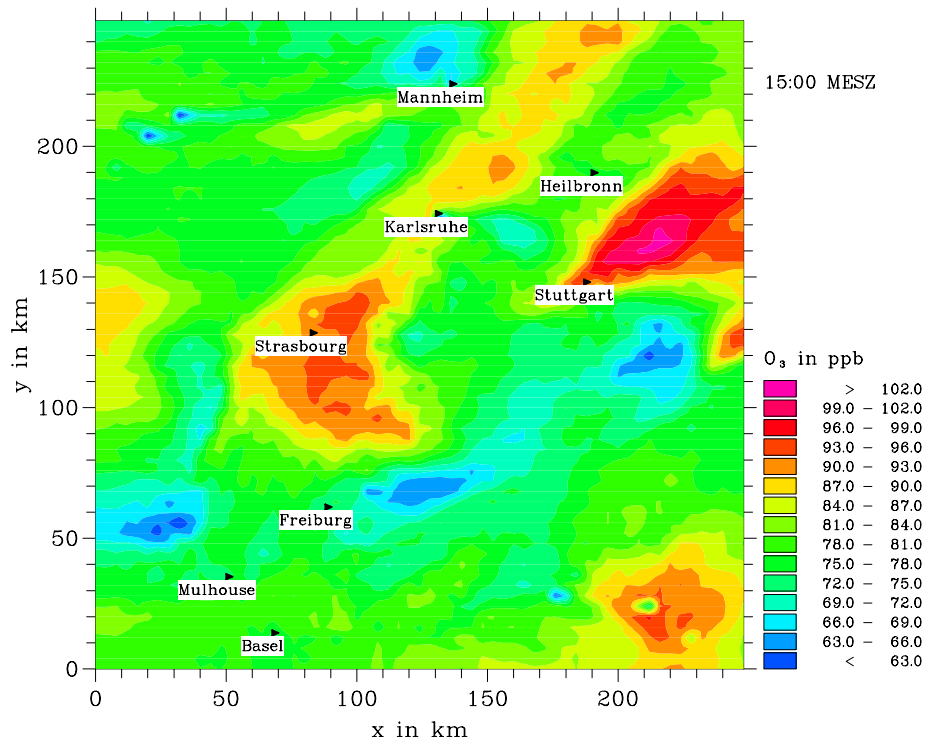


Abb. 5.26: Horizontalverteilung der  $O_3$ -Konzentration um 15 Uhr in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

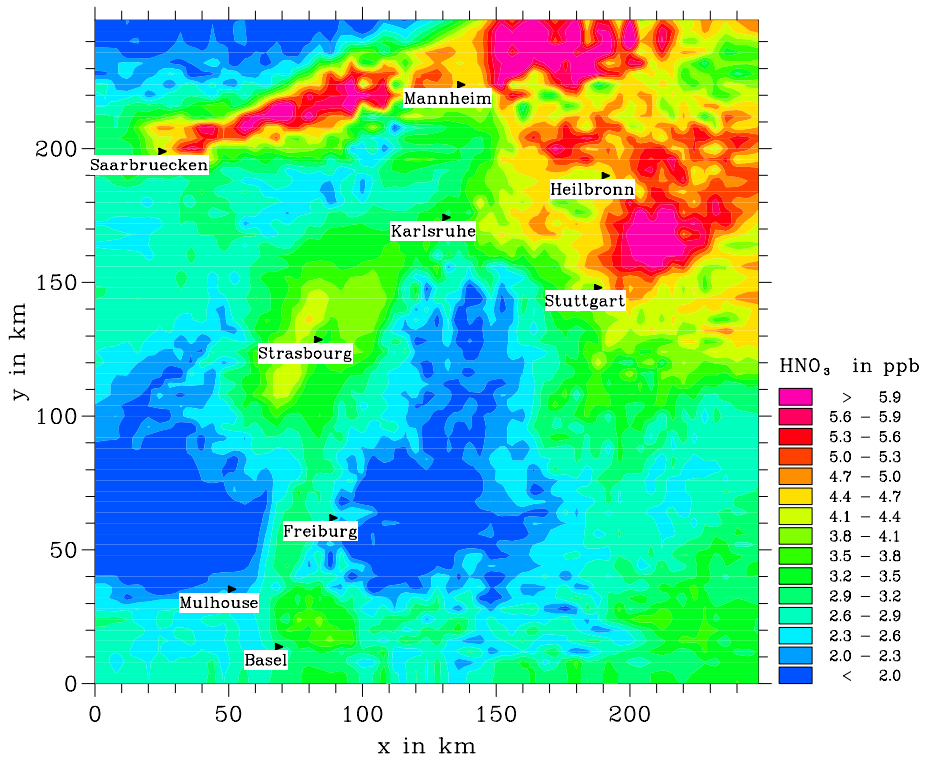


Abb. 5.27: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

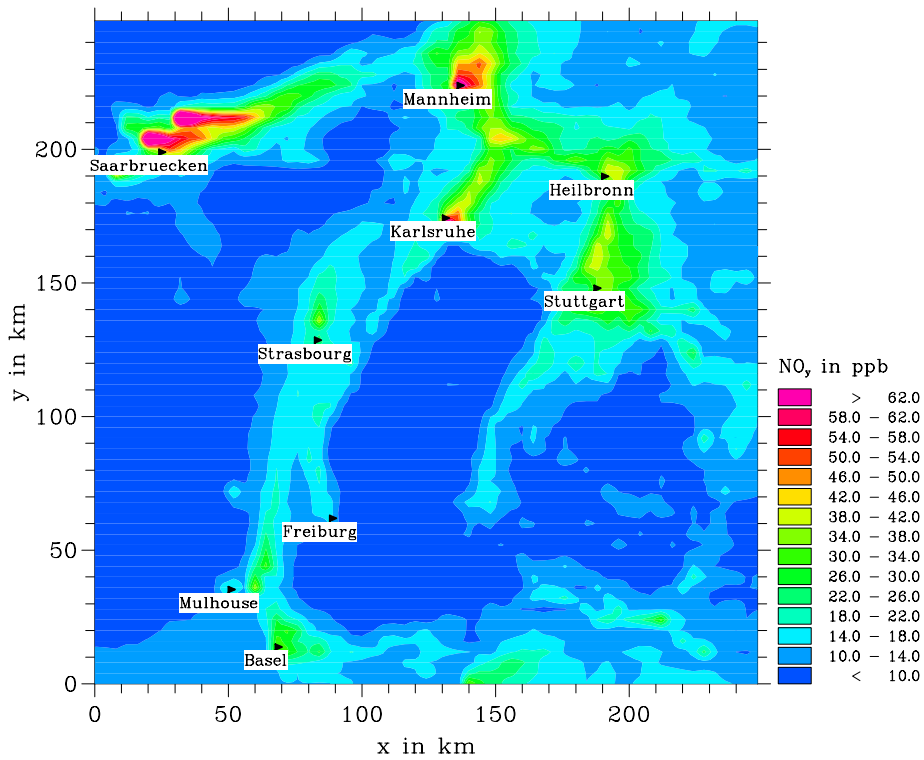


Abb. 5.28: Horizontalverteilung des Tagesmittels der  $\text{NO}_y$ -Konzentration in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

### 5.3 Gesamtbelastung

Die zuvor dargelegten Untersuchungen konzentrierten sich auf die Belastung durch einzelne Substanzen. Um eine Aussage hinsichtlich der Gesamtbelastung eines Gebietes bei den untersuchten meteorologischen Bedingungen machen zu können, wurde folgende Vorgehensweise gewählt. Es wurde ein Belastungsindex B definiert, der wie folgt bestimmt wird:

$$B = \frac{\overline{SO_2}}{SO_{2g}} + \frac{\overline{NO}}{NO_g} + \frac{\overline{NO_2}}{NO_{2g}} + \frac{\overline{CO}}{CO_g} + \frac{\overline{O_3}}{O_{3g}} \quad (5.1)$$

Die mit einem Querstrich gekennzeichneten Größen sind jeweils die Tagesmittelwerte, die mit dem Index g gekennzeichneten, sind die in Tabelle 5.1 aufgelisteten Grenzwerte.

Tabelle 5.1: Ausgewählte Grenzwerte zur Berechnung des Belastungsindex B

| Substanz        | Immissionswert         | Bezug                                      |
|-----------------|------------------------|--|
| SO <sub>2</sub> | 125 µg m <sup>-3</sup> | Tagesmittelwert (WHO)                      |
| NO              | 500 µg m <sup>-3</sup> | Tagesmittelwert (VDI-Richtlinie 2310)      |
| NO <sub>2</sub> | 100 µg m <sup>-3</sup> | Tagesmittelwert (VDI-Richtlinie 2310)      |
| CO              | 10 mg m <sup>-3</sup>  | 24-Stundenmittelwert (VDI-Richtlinie 2310) |
| O <sub>3</sub>  | 110 µg m <sup>-3</sup> | 8-Stundenmittelwert (22. BImSchV)          |

Die Abbildungen 5.29 und 5.30 zeigen die Horizontalverteilungen des sich daraus ergebenden Index B jeweils für die winterliche und sommerliche Situation. Für die winterliche Situation erkennt man, daß zwar vor allem die Ballungsgebiete eine hohe Belastung aufweisen, wobei die höchsten Werte im Straßburger und Saarbrücker Raum auftreten, große Gebiete jedoch eine sehr geringe Belastung zeigen. Im Winter wird die Belastung vor allem durch SO<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub> hervorgerufen, wobei aber die jeweiligen Grenzwerte nicht überschritten werden. Auffallend ist wiederum, daß die Belastung im nordöstlichen Teil des Untersuchungsgebietes höher ist als im restlichen Teil. Die Ursache hierfür liegt wie zuvor schon beschrieben in der Überlagerung der Abluffahnen aus den verschiedenen Ballungsgebieten. Im Sommer sind NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> die Substanzen, die den Hauptanteil des Index B liefern, wobei insbesondere Ozon dafür verantwortlich ist, daß der Wert im gesamten Gebiet höher ist, als der entsprechende im Winter.

Es gilt aber auch für die untersuchte sommerliche Situation, daß vor allem das Gebiet nordöstlich von Karlsruhe und Stuttgart stärker belastet ist. Im Falle einer großräumigen Anströmung wird das sicherlich weniger der Fall sein, wie aber die Auswertung der synoptischen Daten gezeigt hat, überwiegen während des gesamten Jahres Anströmungen aus westlicher Richtung. Obwohl die hier dargestellten Untersuchungen auf Sommer und Winter beschränkt waren, liefern sie wichtige Hinweise zur Gesamtbelastung der Region. Es konnte zum einen aufgezeigt werden, inwieweit der Transport über größere Distanzen zu einer Belastung in einem bestimmten Gebiet beiträgt, und zum anderen auch, wie durch topographische Gegebenheiten bedingte Strömungsverhältnisse hohe Konzentration von Schadstoffen zur Folge haben, und zwar dadurch, daß es zur Überlagerung verschiedener Abluftfahnen kommt.

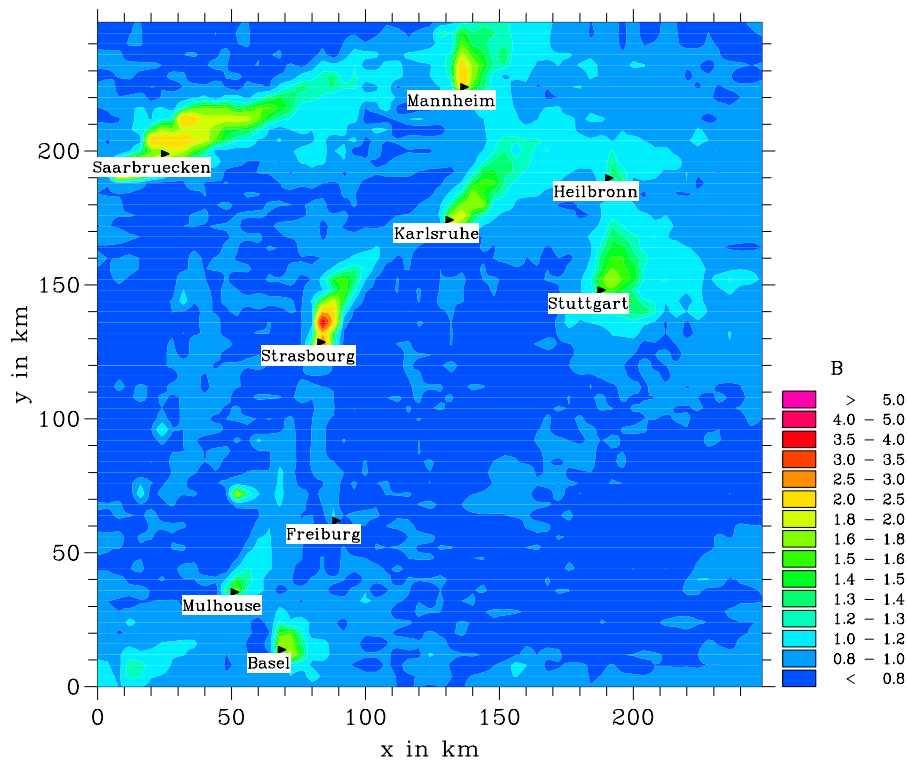


Abb. 5.29: Horizontalverteilung des Belastungsindex B in 18 m über Grund für eine winterliche Situation.



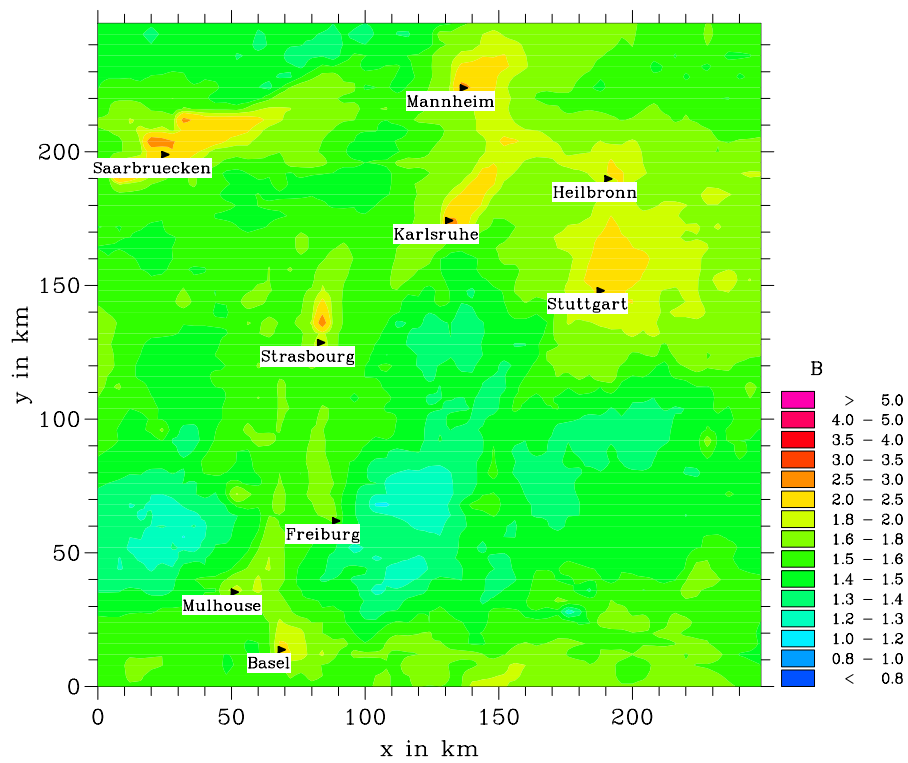


Abb. 5.30: Horizontalverteilung des Belastungsindex B in 18 m über Grund für eine sommerliche Situation.

## 6 Schlußfolgerungen und Ausblick

Eine wesentliche Grundlage für die Entwicklung von Luftreinhaltestrategien ist die Erarbeitung und Bereitstellung von Informationen über die Emissionsquellen und deren Emissionen. Es werden daher im Rahmen dieses Projektes Emissionsdatenbasen für Baden-Württemberg hinsichtlich der Luftverunreinigungen Stäube (PM, PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub>), Ammoniak (NH<sub>3</sub>), organische Verbindungen (NMVOC), Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>), Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) und Kohlenmonoxid (CO) erstellt.

Die Abschätzung der sektoralen Jahresemissionen läßt eine Identifizierung der wesentlichen anthropogenen Emissionsquellen zu. Für Feinstäube sind dies insbesondere der Dieselmotoren aus dem Straßenverkehr und der Verbrennungsmotoren im Offroad-Bereich, der Einsatz von festen Brennstoffen in Kraft- und Fernheizwerken, Haushalten und bei Kleinverbrauchern und die Herstellung von Schotter aus Natursteinen. Es werden für Baden-Württemberg insgesamt jährliche Emissionen an Gesamtstaub von etwa 30 kt/a und an PM<sub>10</sub> von 19 kt/a errechnet. Der PM<sub>10</sub>-Anteil an der Gesamtstaubemission liegt im Mittel bei etwa 62 %. Die pauschale Abschätzung der Emissionen an PM<sub>2,5</sub> ergibt für Baden-Württemberg eine Jahresmenge von etwa 13 kt/a, entsprechend 42 % des Gesamtstaubes.

Die Basisdaten zur Ermittlung der sektoralen Jahresemissionen an Feinstaub sind in vielen Fällen und insbesondere bei den stationären und diffusen Quellen mit Unsicherheiten und Lücken behaftet, so daß dort derzeit nur Grobabschätzungen vorgenommen werden können. Um zukünftige Emissionsabschätzungen zu verbessern und zu verfeinern ist die Ermittlung von differenzierten anlagen- bzw. prozeßspezifischen Emissionsfaktoren Voraussetzung, ebenso wie eine detailliertere Bestandsaufnahme der Emittentenstruktur sowie der Art und des Umfangs vorhandener Minderungsmaßnahmen bei den als besonders relevant erachteten Quellgruppen. Hierdurch können sowohl genauere Ergebnisse bei der Quantifizierung der Emissionen erzielt als auch eine differenziertere Feststellung der emissionsrelevanten Aktivitäten in Baden-Württemberg erreicht werden.

Eine solche Betrachtung auf Technologieebene ist auch Voraussetzung für die Quantifizierung von Minderungspotentialen in den untersuchten Bereichen. Diesbezüglich weitergehende Untersuchungen der Emissionssituation in Baden-Württemberg sind hinsichtlich primärer Feinstaubpartikel im Rahmen eines geplanten Forschungsvorhabens vorgesehen. Durch die in einigen Bundesländern und vom UBA geplanten bzw. in der Durchführung befindlichen Emissionsmeßprogramme an relevanten Feuerungs- und Produktionsanlagen sind hierzu in absehbarer Zeit wesentliche neue Erkenntnisse zu erwarten.

Zu einer differenzierteren Betrachtung und Bewertung der Emissionssituation sind zudem umfangreiche Untersuchungen der Korngrößenverteilungen der emittierten Stäube notwendig. Aufgrund der derzeitigen Diskussion der Wirkung von Feinstäuben  $< 2,5 \mu\text{m}$  bzw.  $< 1 \mu\text{m}$  und von Feinststäuben  $< 0,1 \mu\text{m}$  sind detaillierte Angaben zu den Emissionen und hauptsächlichen Emittenten dieser Staubfraktionen wünschenswert, um effektive Maßnahmen der Luftreinhaltung zur Minderung des Schädigungspotentiales infolge von Feinstaubemissionen gezielt identifizieren zu können.

Beim Straßenverkehr kann mit der Einführung der EURO 3- und EURO 4-Grenzwerte ab 2000 bzw. 2005 für neu zugelassene KFZ zukünftig von einer Verbesserung der Emissionssituation ausgegangen werden. Bezüglich der Stäube ergibt sich zum Beispiel bei dieselbetriebenen PKW eine Verminderung des auf den EU/ECE-Fahrzyklus bezogenen Staubemissionsfaktors bei der entsprechenden Grenzwertstufe von derzeit im Mittel etwa  $75 \text{ mg/km}$  auf  $50 \text{ mg/km}$  ab dem Jahr 2000 und  $25 \text{ mg/km}$  ab 2005.

Hinsichtlich  $\text{NH}_3$  werden ebenfalls Abschätzungen zu den Jahresemissionen und eine räumliche und zeitliche Auflösung dieser Emissionsdaten vorgenommen. Landwirtschaftliche Prozesse stellen hier mit einem Emissionsanteil von etwa 96 % die hauptsächlichen Quellen dar, weshalb entsprechend der räumlichen Verteilung der landwirtschaftlichen Nutzflächen die Verteilung der Emissionen geprägt ist. Insgesamt errechnet sich für Baden-Württemberg eine Gesamtemission von etwa 59 kt im Jahr 1996. Die zeitliche Auflösung der Emissionsdaten liefert Belastungsschwerpunkte einerseits im Frühjahr (Düngerausbringung) und während der warmen Jahreszeit (Temperaturabhängigkeit der mikrobiologischen Zersetzungsprozesse). Auch hier sind zukünftig weitergehende Betrachtungen zur Erstellung einer detaillierteren Datenbasis erforderlich, um gezielt Vorschläge für effiziente Minderungsmaßnahmen entwickeln zu können.

Auch für die gasförmigen Verbindungen NMVOC,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$  und CO werden aktualisierte, sektoral, räumlich und zeitlich hoch aufgelöste Emissionsdaten für das Jahr 1996 errechnet. Hieraus können ebenfalls die wesentlichen Verursacherbereiche identifiziert und räumliche und zeitliche Belastungsschwerpunkte dargestellt werden. Bei den NMVOC ergibt sich eine Gesamtemission von 251 kt mit den Hauptquellen Lösemittelanwendung in industriellen Prozessen (47 %) und Straßenverkehr (31 %). Bezüglich  $\text{NO}_x$  errechnen sich jährliche Emissionen von 203 kt, welche zu über 60 % aus dem Straßenverkehr resultieren. Die  $\text{SO}_2$ -Emissionen liegen bei etwa 51 kt, die hauptsächlichen Verursacher stellen hier emissionserklärungspflichtige Feuerungs- und Produktionsprozesse (58 %) und die Feuerungen von Haushalten und Kleinverbrauchern (21 %) dar. Für die Emissionen an CO ergibt sich eine jährliche Gesamtemission von etwa 667 kt, wobei der weitaus größte Anteil (78 %) durch den Straßenverkehr verursacht wird. Die hoch aufgelösten Emissionsda-

ten werden analog der Staub- und Ammoniakemissionen den atmosphärischen Modellierungen mit Hilfe des Modellsystems KAMM/DRAIS zur Verfügung gestellt.

Im Rahmen dieses Projektes wurde das dreidimensionale nichthydrostatische Modellsystem KAMM/DRAIS um das Aerosolmodul MADE zur Beschreibung der Aerosolprozesse erweitert. Es wurden erste Untersuchungen zur Bildung und Ausbreitung sekundärer Aerosole, ihrer Wechselwirkung mit der Gasphase, ihres Einflusses auf den Stickstoffeintrag in den Boden sowie zur Ausbreitung von partikelförmigen Emissionen durchgeführt. Es steht somit ein Modellsystem zur Verfügung, das sowohl für die gasförmigen Luftbeimengungen als auch für die Aerosole die in der Atmosphäre ablaufenden Prozesse ausreichend genau beschreibt, so daß die Belastung durch primäre und sekundäre Partikel in Abhängigkeit ihrer Größe im regionalen Bereich berechnet werden kann.

Es wurden Simulationen durchgeführt, die zum Ziel hatten, eine Gesamtbelastung für verschiedene Jahreszeiten zu bestimmen. Hierfür wurde ein Index definiert, um die Belastung durch die Kombination verschiedener Luftverunreinigungen berücksichtigen zu können. Die Ergebnisse zeigen, daß bei den vorherrschenden südwestlichen Windrichtungen der nördliche Teil Baden-Württembergs sowohl im Winter wie auch im Sommer am stärksten belastet ist. Die Ursache hierfür ist, daß sich aufgrund der vorliegenden Strömungsverhältnisse die Abluffahnen der verschiedenen Ballungsgebiete wie z. B. Straßburg, Karlsruhe, Saarbrücken und Mannheim, überlagern und sich mit den Emissionen aus dem Raum Stuttgart und Heilbronn vermischen. Insgesamt ergeben die Betrachtungen des Belastungsindex im Winter geringere Belastungen, welche hauptsächlich durch  $\text{SO}_2$  und  $\text{NO}_2$  entstehen. Die Grenzwerte der betrachteten Luftverunreinigungen werden nicht überschritten. Im Sommer ergeben sich insgesamt höhere Belastungswerte, vor allem infolge der entstehenden  $\text{O}_3$ -Konzentrationen, aber auch durch die Konzentrationen an  $\text{NO}_2$ .

Insgesamt liefert dieses Projekt damit wesentliche Beiträge zur Entwicklung bzw. Weiterentwicklung von schadstoff- und sektorübergreifenden Methoden und Modellen zur Ermittlung von Emission, Immission und Deposition von bedeutenden Luftverunreinigungen. Schadstoff- und sektorübergreifende Betrachtungen sind zur Untersuchung der Entstehung und Verteilung von Ozon- und Aerosolbelastungen deshalb notwendig, weil einerseits diese Luftverunreinigungen sekundär bzw. teilweise sekundär aus mehreren Vorläufersubstanzen entstehen und zum anderen vielfältige Emissionsquellen zur Erarbeitung effizienter Luftreinhaltestrategien betrachtet werden müssen. Unsicherheiten und Kenntnislücken, welche einen weiteren Forschungsbedarf begründen, werden aufgezeigt, um zukünftig auf diesen Projektergebnissen aufbauend Basisdaten liefern zu können, welche beispielsweise für die Quantifizierung von Minderungspotentialen und Bewertung von Minderungsstrategien wesentliche Grundlagen darstellen.

## 7 Literatur

- ACKERMANN, I., H. HASS, M. MEMMESHEIMER, A. EBEL, F. S. BINKOWSKI, U. SHANKAR, 1998: Modal aerosol dynamic model for Europe: development and first applications, *Atmos. Environ.*, 17, 2981-2999
- ADRIAN, G., FIEDLER, F., 1991: Simulation of unstationary wind and temperature fields over complex terrain and comparison with observation, *Beitr. Phys. Atmos.* 64, 27-48.
- BINKOWSKI, F.S., SHANKAR, U., 1995: The regional particulate matter model, 1. Model description and preliminary results, *J. Geophys. Res.*, 100, 26191-26209
- BISCHOFF-GAUSS, I., 1999, persönliche Mitteilungen
- BLANK, P., OBERMEIER, A., FRIEDRICH, R., DREISEIDLER, A., PFEIFFER, F., BAUMBACH, G., 1999: Erstellung eines Emissionskatasters für Feuerungsanlagen in Haushalt und Kleinverbrauch, UBA-Forschungsbericht 104 02 830
- BUWAL, 1995: Emissionsfaktoren für stationäre Quellen, Ausg. 1995, Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern
- CONCAWE, 1998: A study of the number, size and mass of exhaust particles emitted from european diesel and gasoline vehicles under steady-state and european driving cycle conditions, report no. 98/51, Concauwe, Brüssel
- DREISEIDLER, A., BAUMBACH, G., 1999: Erfassung des energetisch genutzten Holzverbrauchs, Teilprojekt zum UBA-Forschungsbericht 104 02 830 „Erstellung eines Emissionskatasters für Feuerungsanlagen in Haushalt und Kleinverbrauch“
- EPA, 1998: Environmental Protection Agency (ed.): Compilation of Air Pollutant Emission Factors AP-42, Fifth Edition, Vol. I: Stationary Point and Area Sources (Stand: Sept. 1998)
- GEBBE et al., 1998: Quantifizierung des Reifenabriebs von Kraftfahrzeugen in Berlin, ISS-Fahrzeugtechnik, TU Berlin, im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie Berlin
- HÜTTIG et al., 1994: Kenntnisstand über die Bewertung der Schadstoffemissionen im Flughafenbereich, Institut für Luft- und Raumfahrt, TU Berlin, Forschungsbericht i. A. des Bundesministers f. Verkehr
- INFRAS, 1995: Handbuch für Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Infrass AG Bern, im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA) und des Bundesamtes für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL)
- ISERMANN, K., 1990: Ammoniakemissionen der Landwirtschaft als Bestandteil ihrer Stoffbilanz und Lösungsansätze zur Minderung. In: Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL), Verein Deutscher Ingenieure (VDI) (Hrsg.): Ammoniak in der Umwelt. Gemeinsames Symposium, 10.-12. Okt. 1990, Braunschweig-Völkenrode
- JOHN, C., 1999: Emissionen von Luftverunreinigungen aus dem Straßenverkehr in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung - Untersuchung von Emissionsszenarien am Beispiel Baden-Württembergs. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Forschungsberichte IER (ISSN 0938-1228), Band 58, Stuttgart, 1999
- MÜNCH, J., AXENFELD, F., GIESELER, G., JOHNSSEN, D., MEINL, H., 1994: Minderung der Emissionen von Ammoniak, Fluorwasserstoff und Chlorwasserstoff in Baden-Württemberg - Themenbereich Ammoniak. Dornier GmbH Regional und Umweltplanung, Friedrichshafen

- OBERMEIER, A., FRIEDRICH, R., JOHN, C., SEIER, J., VOGEL, H., FIEDLER, F., VOGEL, B., 1995: Photosmog- Möglichkeiten und Strategien zur Verminderung des bodennahen Ozons. ecomed Verlagsgesellschaft, Landsberg
- OBERMEIER, A., 1995: Ermittlung und Analyse von Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen in Baden-Württemberg. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Forschungsberichte IER (ISSN 0938-1228), Bd. 19, Stuttgart 1995
- OBERMEIER, A., FRIEDRICH, R., JOHN, C., SEIER, J., VOGEL, H., FIEDLER, F., VOGEL, B., 1997: Ozonproblematik im südlichen Oberrheingraben: Emissionen, Minderungsszenarien und Immissionen. FZKA-PEF 162
- PFEIFFER, F., BAUMBACH, G., 1999: Ermittlung von Emissionsfaktoren für die Sektoren Haushalte und Kleinverbraucher, Teilprojekt zum UBA-Forschungsbericht 104 02 830 „Erstellung eines Emissionskatasters für Feuerungsanlagen in Haushalt und Kleinverbrauch“
- RAUTERBERG-WULFF, A., 1998: Beitrag des Reifen- und Bremsenabriebs zur Rußimmission an Straßen, Dissertation am Fachgebiet Luftreinhaltung der TU Berlin 1998
- SEIER, J., 1997: Luftschadstoffemissionen aus Feuerungsanlagen. Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6062 (ISSN 0947-8620), Karlsruhe 1998
- SONNBORN, K., HASSEL, D., WEBER, F., 1997: Einfluß der Kaltstarttemperatur auf das Emissionsverhalten von Pkw. TÜV Rheinland. Im Auftrag des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie. Förderschwerpunkt Troposphärenforschung (TFS) Leitthema 2, Projekt A.2. Köln, 1997.
- STLA, 1997: Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: Emissionen von Schwefeldioxid, Stickoxid, Kohlenmonoxid und Staub in Baden-Württemberg 1994, Statistische Berichte, Stuttgart
- STLA, 1998a: Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: Die Energiewirtschaft in BW 1996, Produzierendes Gewerbe, Statistische Berichte, Stuttgart
- STLA, 1998b: Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: Produktion ausgewählter Erzeugnisse des Verarbeitenden Gewerbes in BW, Statistische Berichte, Stuttgart
- STLA, 1998c: Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: Der Außenhandel 1996, Statistik von Baden-Württemberg, Band 529, 1998
- STLA, 1998d: Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: Emissionen von Schwefeldioxid, Stickoxid, Kohlenmonoxid und Staub in Baden-Württemberg 1995, Statistische Berichte, Stuttgart
- STOCKWELL, W. R., P.MIDDLETON, J. S. CHANG, 1990: The Second Generation Regional Acid Deposition Model Chemical Mechanism for Regional Air Quality Modeling, J. Geophys. Res., 95, D10, 16343-16367
- TNO, 1997: Particulate matter emissions ( $PM_{10}$  -  $PM_{2.5}$  -  $PM_{0.1}$ ) in Europe in 1990 and 1993, TNO Inst. of Environm. Sciences, Energy Res. a. Process Innovation, Apeldoorn (NL) 1997
- UBA, 1989: Luftreinhaltung '88, Umweltbundesamt (Hrsg.), Berlin
- UBA, 6/1998: Umweltbundesamt, Berlin: Schriftliche Mitteilung von Hr. Remus vom 25.06.1998, UBA III 2.5
- UBA, 9/1998a: Umweltbundesamt, Berlin: Schriftliche Mitteilung von Hr. Gohlisch vom 11.09.1998, UBA I 2.1
- UBA, 9/1998b: Umweltbundesamt, Berlin: Schriftliche Mitteilung von Hr. Nöcker vom 01.09.1998, UBA II 4.6

- UBA, 1/1999: Umweltbundesamt, Berlin, schriftliche Mitteilung von Hr. Tappe vom 29.01.1999, UBA I 2.4
- UBA, 5/1999: Umweltbundesamt, Berlin, schriftliche Mitteilung von Hr. Nöcker vom 05.05.1999, UBA II 4.6
- UBA, 11/1999: Umweltbundesamt, Berlin, schriftliche Mitteilung von Hr. Remus vom 02.11.1999, Einladung zum UBA-Fachgespräch ‚Untersuchungen zu Feinstaubemissionen‘ UBA II 4.6
- UHRNER, U., 1997: Physikalische Ursachen für regionale Unterschiede in der nächtlichen Ozonverteilung, Diplomarbeit, Inst. Meteorol. Klimaforsch., Universität Karlsruhe / Forschungszentrum Karlsruhe
- UMEG, 1998: Emissionskataster Baden-Württemberg 1995, UMEG Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH im Auftrag des Ministeriums für Umwelt und Verkehr BW, Karlsruhe
- UMEG, 1999a: Datenbasis für emissionserklärungspflichtige Anlagen Baden-Württemberg 1996, Lieferung 2/1999 der UMEG Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH, Karlsruhe
- UMEG, 1999b: Emissionskataster Baden-Württemberg 1996, Quellengruppe Industrie, Emissionserklärungspflichtige Anlagen, UMEG Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH i.A. des Ministeriums für Umwelt und Verkehr BW, Karlsruhe
- VOGEL, B., FIEDLER F., VOGEL, H., 1995: The Influence of Biogenic VOC Emissions in the State of Baden-Württemberg on the Ozone Concentration during Episodes of High Air Temperatures. *J. Geophys. Res.* 100, 22907-22928
- VOGEL, B., RIEMER, N., VOGEL, H., FIEDLER, F., 1999a: Findings on  $\text{NO}_y$  as an Indicator for Ozone Sensitivity based on Different Numerical Simulations, *J. Geophys. Res.*, 3605-3620
- VOGEL, H., FIEDLER, F. VOGEL, B. HAMMER, M.-U., 1999b: Ozone Abatement Strategies for the Upper Rhine Valley - Part II: Impacts of Changing Emission Situations on Ozone Concentrations, in : P.M. Borrell, P. Borrell, (eds), *Proc. EUROTRAC Symp 98. Computational Mechanics Publ., Southampton*, 321-325
- WEXLER, A.S., F.W. LURMAN, J.H. SEINFELD, 1994: Modeling urban and regional aerosols, I. Model development. *Atmos. Environ.* 28, 531-546
- WHITBY, E.R., P.H. MCMURRY, U. SHANKAR, F. S. BINKOWSKI, F.S., 1991: Modal Aerosol Dynamics Modeling. Rep. 600/3-91/020, *Atmos. Res. and Exposure Assess. Lab., US. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C.*
- ZAPF, R., DÖHLER, H., GRIMM, E., 1995: Abschätzung von Emissionsfaktoren und der zeitlichen Variabilität der  $\text{NH}_3$ -Verluste bei der landwirtschaftlichen Tier- und Pflanzenproduktion. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL), Darmstadt, 1995
- ZIMMERMANN, H., 1999: Kontakt [zdb@imk.fzk.de](mailto:zdb@imk.fzk.de)

## 8 Anhang

Tabelle A.1: Einzelergebnisse der Emissionsabschätzung für die betrachteten Prozesse/Quellgruppen für primäre Stäube in Baden-Württemberg

| Nr.                                       | Emissionen in t/a                 | Quelle Emission/<br>Emissionsfaktor | PM t/a | PM <sub>10</sub> t/a |
|---|-----------------------------------|-------------------------------------|--------|----------------------|
| <b>Verkehr</b>                            |                                   |                                     |        |                      |
| 1   | Straßenverkehr Dieselmotoren LKW  | INFRAS 1995                         | 3.541  | 3.541                |
| 2   | Straßenverkehr Dieselmotoren PKW  | INFRAS 1995                         | 1.653  | 1.653                |
| 3   | Straßenverkehr Ottomotoren        | CONCAWE 1998                        | 46     | 46                   |
| 4   | Straßenverkehr Reifenabrieb       | GEBBE et al. 1998                   | 7.368  | 737                  |
| 5   | Straßenverkehr Bremsenabrieb      | RAUTERBERG-WULFF 1998               | 1.211  | 222                  |
| 6   | Schiffsverkehr Dieselmotoren      | UBA 9/1998a                         | 309    | 278                  |
| 7   | Bahnverkehr Dieseltraktion        | UBA 9/1998a                         | 178    | 160                  |
| 8   | Flugverkehr (zivil)               | HÜTTIG et al. 1994                  | 5      | 5                    |
| 9   | Flugverkehr (militärisch)         | HÜTTIG et al. 1994                  | 24     | 24                   |
| 10  | Sonst. Verbrennungsmotoren        | UBA 1989, BUWAL 1994                | 1.560  | 1.404                |
| <b>Feuerungsprozesse</b>                  |                                   |                                     |        |                      |
| 11  | Feuerungen Kraftwerke             | E-ERKL 1996                         | 1.044  | 991                  |
| 12  | Feuerungen Industrie              | E-ERKL 1996                         | 714    | 643                  |
| 13  | Feuerungen Kleinverbraucher       | UBA 9/1998b                         | 1.022  | 920                  |
| 14  | Feuerungen Haushalte              | UBA 9/1998b                         | 4.462  | 4.016                |
| 15  | Müll-/Klärschlammverbrennung      | UBA 9/1998b/EPA 1998                | 16     | 16                   |
| <b>Produktions- und sonstige Prozesse</b> |                                   |                                     |        |                      |
| 16  | Feuerwerke                        | BUWAL 1995                          | 364    | 328                  |
| 17  | Krematorien                       | E-ERKL 1996                         | 12     | 11                   |
| 18  | Motorenprüfstände                 | E-ERKL 1996                         | 18     | 11                   |
| 19  | Aufbereitung von Kohlen           | UBA 6/1998                          | 1,7    | 0,5                  |
| 20  | Raffination von Erdöl             | E-ERKL 1996                         | 239    | 239                  |
| 21  | Herst. v. Stahl                   | E-ERKL 1996                         | 14     | 13                   |
| 22  | Eisengießereien                   | E-ERKL 1996                         | 178    | 82                   |
| 23  | Herst. v. FE-Legierungen          | E-ERKL 1996                         | 6,1    | 1,8                  |
| 24  | Herst. v. Aluminium               | E-ERKL 1996                         | 7,1    | 6,7                  |
| 25  | NE-Metall-Gießereien              | E-ERKL 1996                         | 74     | 45                   |
| 26  | Verzinkereien                     | E-ERKL 1996                         | 3,7    | 1,1                  |
| 27  | Herst. v. Zement                  | E-ERKL 1996                         | 526    | 473                  |
| 28  | Herst. v. Kalk                    | E-ERKL 1996                         | 104    | 63                   |
| 29  | Herst. v. Gips                    | E-ERKL 1996                         | 46     | 28                   |
| 30  | Herst. v. Frischbeton             | E-ERKL 1996                         | 23     | 9,4                  |
| 31  | Herst. v. Ziegel                  | UBA 6/1998                          | 65     | 59                   |
| 32  | Herst. v. Blähton                 | E-ERKL 1996                         | 35     | 24                   |
| 33  | Herst. v. Keramik                 | EPA 1998                            | 14     | 13                   |
| 34  | Herst. v. Feuerfestprodukten      | UBA 6/1998                          | 9,3    | 8,4                  |
| 35  | Herst. v. Glas                    | E-ERKL 1996                         | 14     | 12                   |
| 36  | Herst. v. Glas- und Mineralfasern | E-ERKL 1996                         | 28     | 17                   |
| 37  | Herst. v. Schotter (Natursteinen) | E-ERKL 1996                         | 1.898  | 1.519                |
| 38  | Asphaltmischanlagen               | E-ERKL 1996                         | 86     | 81                   |
| 39  | Herst. v. Bitumendachbahnen       | E-ERKL 1996                         | 3,9    | 2,4                  |
| 40  | Herst. v. Carbiden etc.           | E-ERKL 1996                         | 0,7    | 0,7                  |



| Nr.  | Emissionen in t/a                                       | Quelle Emission/<br>Emissionsfaktor | PM in t/a | PM <sub>10</sub> in t/a |
|--|---|-------------------------------------|-----------|-------------------------|
| <b>Zu Produktions- und sonstige Prozesse</b> |   |                                     |           |                         |
| 41   | Herst. v. Seifen  | E-ERKL 1996                         | 0,4       | 0,4                     |
| 42   | Herst. v. Polyesterfasern                               | E-ERKL 1996                         | 1,9       | 1,8                     |
| 43   | Herst. v. Polyacrylfasern                               | E-ERKL 1996                         | 0,3       | 0,3                     |
| 44   | Herst. v. Polyamidfasern                                | E-ERKL 1996                         | 4,2       | 4,1                     |
| 45   | Herst. v. zellulos. Fasern                              | E-ERKL 1996                         | 4,6       | 4,6                     |
| 46   | Vulkanisation, Gummiverarbeitung                        | E-ERKL 1996                         | 3,4       | 2,1                     |
| 47   | Herst. v. Farben und Lacken                             | E-ERKL 1996                         | 5,4       | 3,3                     |
| 48   | Lackierereien   | E-ERKL 1996                         | 117       | 71                      |
| 49   | Rotationsdruckanlagen                                   | E-ERKL 1996                         | 2,5       | 1,5                     |
| 50   | Herst. v. Dünger  | E-ERKL 1996                         | 1,1       | 0,9                     |
| 51   | Herst. v. Fluorwasserstoff                              | EPA 1998                            | 1,2       | 0,7                     |
| 52   | Herst. v. sonst. chem. Produkten                        | E-ERKL 1996                         | 38        | 23                      |
| 53   | Gewinnung v. Stein- und Siedesalz                       | UBA 6/1998                          | 297 *     | 238 *                   |
| 54   | Herst. v. Spanplatten                                   | E-ERKL 1996                         | 28        | 23                      |
| 55   | Herst. v. Zellstoff                                     | E-ERKL 1996                         | 17        | 13                      |
| 56   | Herst. v. Papier  | E-ERKL 1996                         | 39        | 24                      |
| 57   | Räuchereien   | E-ERKL 1996                         | 51        | 51                      |
| 58   | Ernten von Getreide                                     | EPA 1998                            | 1,6       | 0,5                     |
| 59   | Grastrocknung   | E-ERKL 1996                         | 39        | 24                      |
| 60   | Röstereien (Kaffee etc.)                                | EPA 1998                            | 7,3       | 4,4                     |
| 61   | Herst. v. Bier  | E-ERKL 1996                         | 18        | 11                      |
| 62   | Herst. v. Zucker  | E-ERKL 1996                         | 6,1       | 4,9                     |
| 63   | Mahlen und Aufbereiten v. Getreide<br>und Futtermitteln | E-ERKL 1996                         | 27        | 17                      |
| 64   | Herst. v. Malz  | E-ERKL 1996                         | 8,9       | 5,4                     |
| 65   | Herst. v. Pflanzenölen                                  | E-ERKL 1996                         | 43        | 26                      |
| 66   | sonst. Nahrungsmittelproduktion                         | E-ERKL 1996                         | 2,3       | 1,4                     |
| 67   | Bauschutttaufbereitung                                  | E-ERKL 1996                         | 201       | 161                     |
| 68   | sonst. Abfallsortieranlagen                             | E-ERKL 1996                         | 27        | 22                      |
| 69   | sonst. genehm.-bedürftige Anlagen                       | E-ERKL 1996                         | 49        | 30                      |
| <b>Umschlag staubender Güter</b>             |   |                                     |           |                         |
| 70   | Umschlag v. Getreide/Futtermitteln                      | UBA 11/1999                         | 635       | 127                     |
| 71   | Umschlag v. Düngemitteln                                | UBA 11/1999                         | 18        | 3,6                     |
| 72   | Umschlag v. Kohle                                       | E-ERKL 1996                         | 75        | 15                      |
| 73   | Umschlag v. Koks  | E-ERKL 1996                         | 11        | 2,2                     |
| 74   | Umschlag v. Erz   | UBA 11/1999                         | 4,4       | 0,9                     |
| 75   | Umschlag v. Sand/Kies                                   | UBA 11/1999                         | 1.276     | 255                     |
| 76   | Umschlag v. Natursteinen                                | UBA 11/1998                         | 123       | 25                      |
| 77   | Umschlag v. Zement                                      | E-ERKL 1996                         | 2,0       | 0,4                     |
| 78   | Umschlag v. Gips  | UBA 11/1999                         | 99        | 20                      |
| 79   | Umschlag v. Salz  | E-ERKL 1996                         | 126       | 25                      |
| 80   | Umschlag v. Flugasche                                   | E-ERKL 1996                         | 0,7       | 0,2                     |
| 81   | Umschlag v. sonstigem                                   | E-ERKL 1996                         | 2,2       | 0,5                     |

\* sehr unsichere Datenlage