

Sekundäre Bildung von Partikeln PM_{10} und Stickstoffdioxid

 Einfluss auf die Immissionsbelastung in Stuttgart
in den Jahren 2015 und 2016



Sekundäre Bildung von Partikeln PM_{10} und Stickstoffdioxid

 Einfluss auf die Immissionsbelastung in Stuttgart
in den Jahren 2015 und 2016

HERAUSGEBER	LUBW Landesanstalt für Umwelt Baden-Württemberg Postfach 100163, 76231 Karlsruhe, www.lubw.baden-wuerttemberg.de
BEARBEITUNG	Referat 33 – Luftqualität, Immissionsschutz Referat 31 – Luftreinhaltung, Regenerative Energien
DATENGRUNDLAGE	Referat 62 – Betrieb Messnetze, Zentrale Logistik Referat 64 – Labor für Luftmessungen und stofflichen Verbraucherschutz
DOKUMENTATION-NUMMER	33-03/2018
BERICHTSUMFANG	97 Seiten
STAND	Juni 2018

Nachdruck – auch auszugsweise – ist nur mit Zustimmung der LUBW unter Quellenangabe und Überlassung von Belegexemplaren gestattet.

ZUSAMMENFASSUNG	5
1 EINLEITUNG	9
2 SEKUNDÄRE PARTIKELBESTANDTEILE	11
2.1 Grundlegende Prozesse	11
2.1.1 Primäre Partikel	11
2.1.2 Sekundäre Partikel	12
2.2 Quantifizierung	15
2.2.1 Laboranalysen	15
2.2.2 Massenschließung	15
2.2.3 Bestimmung des Anteils an sekundär gebildeter Partikelmasse	17
2.3 Ergebnisse und Ursachenanalyse	18
2.3.1 Vorbemerkungen	18
2.3.2 Jahresmittel	18
2.3.3 PM ₁₀ -Überschreitungstage	28
2.4 Maßnahmen	35
2.4.1 Minderung des Ausstoßes der Primärpartikel (PM ₁₀ , PM _{2,5})	38
2.4.2 Minderung der Vorläufersubstanzen, die zur Bildung sekundären Feinstaubes führen	39
2.5 Fazit	43
3 SEKUNDÄRE BILDUNG VON STICKSTOFFDIOXID	45
3.1 Grundlegende Prozesse	45
3.1.1 Quellen von NO und NO ₂	45
3.1.2 Reaktionen von NO	46
3.2 Quantifizierung	50
3.2.1 Überblick (alle Stunden)	50
3.2.2 Überblick (NO ₂ -Überschreitungsstunden)	56
3.2.3 Eingangsdaten	63
3.2.4 Bestimmung des Anteils der sekundären Bildung	64
3.3 Ergebnisse	65
3.3.1 Ergebnisse an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	65
3.3.2 Übertrag auf den Messpunkt Stuttgart Am Neckartor	69

3.3.3	Ursachenanalyse NO ₂ incl. sekundären Prozessen und NO ₂ -Direktemissionen	71
3.4	Maßnahmen	74
3.4.1	Minderung von primär gebildeten Stickstoffoxiden	74
3.4.2	Minderung von sekundär gebildeten Stickstoffoxiden	75
3.5	Fazit	76
4	ANHANG	79
4.1	Literatur	79
4.2	Glossar	81
4.2.1	chemische Formeln und Symbole	81
4.2.2	Begriffe	82
4.3	Weitere Auswertungen zu sekundären Partikeln	83
4.3.1	Sommerhalbjahr	83
4.3.2	Winterhalbjahr	87
4.3.3	Anteile der einzelnen Quellengruppen an ausgewählten Schadstofffreisetzungen für die Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014	92
4.4	Weitere Auswertungen zu sekundärem Stickstoffdioxid	93

Zusammenfassung

Die geltenden Immissionsgrenzwerte für Partikel PM_{10} und Stickstoffdioxid werden an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor seit vielen Jahren deutlich überschritten. Die im Emissionskataster Baden-Württemberg ausgewiesenen Partikel PM_{10} -Emissionen und die darauf aufbauenden Immissionsbetrachtungen basieren derzeit ausschließlich auf primären Emissionen von Partikeln und deren Zuordnung zu bestimmten Emittenten. Der Beitrag von sekundären Partikelbestandteilen, d. h. Inhaltsstoffen, die sich in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen bilden, findet bislang keine Berücksichtigung. Auch bei den Stickstoffdioxidimmissionen spielen sekundäre Bildungsprozesse eine Rolle, da das in Rohabgasen vorhandene Stickstoffmonoxid durch oxidierende Stoffe, insbesondere Ozon, zu Stickstoffdioxid oxidiert werden kann. Sekundäre Prozesse haben deshalb auch einen Einfluss auf die gemessenen Konzentrationen an Stickstoffdioxid. Das Ministerium für Verkehr Baden-Württemberg hat die LUBW deshalb um eine fachlich fundierte Aussage zu sekundären Bildungsprozessen von Partikeln PM_{10} und Stickstoffdioxid gebeten. Der vorliegende, zweigeteilte Bericht enthält sowohl für sekundäre Partikelbestandteile als auch für sekundär gebildetes Stickstoffdioxid jeweils eine Darstellung der grundlegenden Prozesse und ihrer Quantifizierung in einer erweiterten Ursachenanalyse sowie Maßnahmen bzw. Maßnahmenstrategien zur Minderung der Immissionen des jeweiligen Luftschadstoffs.

Sekundäre Partikelbestandteile

Um den Einfluss sekundärer Prozesse auf die Partikel PM_{10} -Konzentrationen zu untersuchen, wurden in den Jahren 2015 und 2016 umfangreiche Inhaltsstoffanalysen an Partikelproben aus dem Raum Stuttgart vorgenommen. Die bezüglich der Masse wichtigsten sekundären Partikelbestandteile in Stuttgart sind Wasser, Nitrat (bildet sich aus Stickstoffoxiden, die hauptsächlich auf den Verkehr zurückzuführen sind), Sulfat (bildet sich aus Schwefeldioxid, welches wiederum hauptsächlich aus industriellen Quellen stammt), sekundäres organisches Material (bildet sich aus flüchtigen organischen Substanzen, die sowohl von biogenen als auch von anthropogenen Quellen stammen können) und Ammonium (gebildet aus Ammoniak, was vor allem aus der Landwirtschaft stammt).

Im Jahresmittel sind sekundäre Prozesse für rund 30 % der PM_{10} -Konzentration am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor verantwortlich. Dieser Anteil ist im Sommerhalbjahr etwas geringer, im Winter und an Überschreitungstagen etwas höher. Alle sekundären Partikelbestandteile stammen zu rund der Hälfte aus dem großräumigen Hintergrund. An Überschreitungstagen finden keine grundsätzlich anderen Prozesse statt, aufgrund der meteorologischen Bedingungen (schlechter Luftaustausch) werden aber erhöhte Konzentrationen aller Partikelbestandteile gefunden.

Um die Verursacher der sekundär gebildeten Partikelmasse zu identifizieren, wurden die sekundären Partikelbestandteile in einem weiteren Schritt Quellen aus dem Emissionskataster Baden-Württemberg zugeordnet. Es zeigt sich, dass die Quellengruppen „Verkehr“ und „Industrie und Gewerbe“ zusammen für rund zwei Drittel der sekundär gebildeten

Partikelmasse verantwortlich sind. Werden die auf diese Weise ermittelten Verursacher in der jährlich erstellten Analyse der Verursacher der Partikel PM_{10} -Grenzwertüberschreitung Am Neckartor (die bisher ausschließlich primäre Emissionen betrachtet) berücksichtigt, ergibt sich das in Abbildung 1-1 gezeigte Bild. Im Vergleich zur bisherigen Ursachenanalyse nimmt die Bedeutung der Emissionen aus Aufwirbelung und Abrieb ab. Im städtischen Hintergrund trifft das auch auf die Emissionen aus Kleinen und Mittleren Feuerungsanlagen zu, während die Emissionen aus Industrie und Gewerbe, der Quellengruppe „Sonstige Technische Einrichtungen, Offroad, Biogene“ und der Quellengruppe „Straßenverkehr Abgas“ im Vergleich zur bisherigen Ursachenanalyse zunehmen.

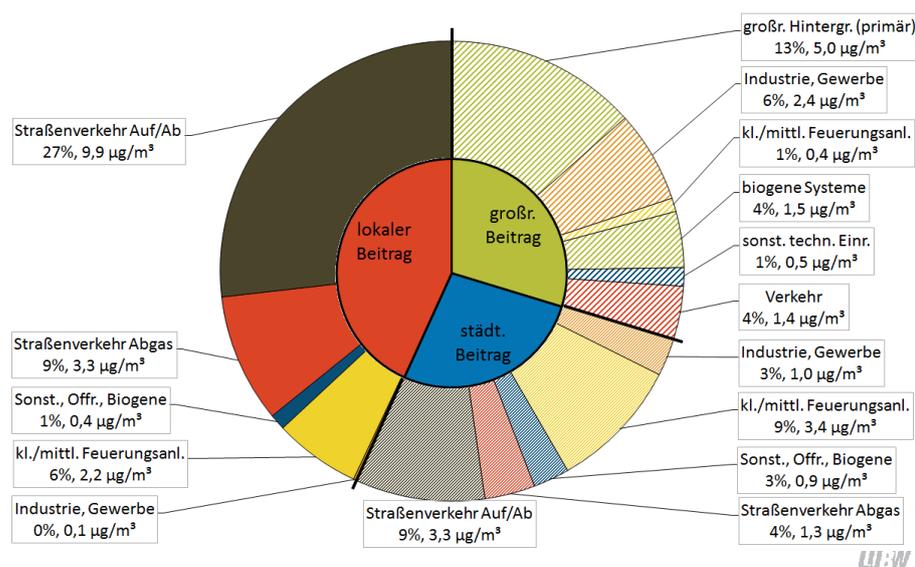


Abbildung 1-1: Ursachenanalyse für Partikel PM_{10} am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 mit Berücksichtigung der Quellen von sekundären Partikelbestandteilen

Neben Maßnahmen zur Minderung der Belastung durch Reduzierung des Ausstoßes von primären Partikeln PM_{10} wäre die Beschränkung des Einsatzes von leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen in Produkten (Farben, Lacke, Reinigungs- und Duftstoffe etc.) gerade in den Innenstädten eine zielführende Maßnahme zur Minderung der Bildung von sekundärer Partikelmasse und würde gleichzeitig auch die Ozonbildung einschränken, was einen ebenso positiven Effekt auf die sekundäre Stickstoffdioxidbildung hätte. Auch die konsequente Minderung der Vorläufersubstanzen bei Einsatzstoffen z. B. durch Nutzung von schwefelarmen/-freien Kraft- und Brennstoffen und die Minderung der Ammoniakfreisetzung aus landwirtschaftlichen Aktivitäten (Stickstoff-Düngung) sind wichtige Ansatzpunkte zur Verminderung der Bildung von sekundärer Partikelmasse. Vorläufersubstanzen entstehen auch durch unvollständige Verbrennung in Zweitaktmotoren oder auch beim Hausbrand. Die rein biogene Freisetzung von Vorläufersubstanzen zum Beispiel von Kohlenwasserstoffen aus Nadel- und Laubbäumen entzieht sich gezielten Minderungsmaßnahmen. Diese relativ kurzkettenigen Verbindungen verfügen über ein verhältnismäßig großes Ozonbildungspotential.

Sekundäres Stickstoffdioxid

Im zweiten Berichtsteil wurde untersucht, inwieweit atmosphärenchemische Prozesse, insbesondere die Oxidation von Stickstoffmonoxid durch Ozon zu Stickstoffdioxid, für hohe Stickstoffdioxidkonzentrationen verantwortlich sind. Hierfür wurde auf Messwerte der Konzentrationen von Stickstoffoxiden und Ozon aus den Jahren 2015 und 2016 zurückgegriffen. Die Auswertung erfolgte für die straßennahe Messstation Stuttgart Arnulf-Klett-Platz, da für die Messstelle Stuttgart Am Neckartor, die eine stärkere Belastung mit Stickstoffdioxid zeigt, keine Ozonwerte vorlagen.

Stickstoffdioxid wird sowohl direkt emittiert, insbesondere durch den Straßenverkehr und hier vor allem von Dieselfahrzeugen, als auch sekundär in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen gebildet. Die lokalen Direktmissionen von Stickstoffdioxid sind an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz, weitgehend unabhängig von der Jahreszeit, im Mittel für knapp 30 % der Immissionen verantwortlich. An Überschreitungsstunden liegt der Beitrag der lokalen Direktmissionen etwas höher (nahezu konstant 36 %, unabhängig von der Jahreszeit).

Bei der sekundären Bildung von Stickstoffdioxid wird Stickstoffmonoxid, das meist ebenfalls durch den Straßenverkehr emittiert wird, durch Ozon zu Stickstoffdioxid oxidiert. Dieser Prozess ist lokal an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Winter für rund 15 % und im Sommer für rund 25 % der Stickstoffdioxidimmissionen verantwortlich. An Überschreitungsstunden im Winter haben lokale sekundäre Prozesse nahezu keinen Beitrag (3 %), die Überschreitungen sind hauptsächlich auf schlechte Austauschbedingungen mit der Folge großräumig erhöhter NO_2 -Konzentrationen zurückzuführen. Während der Überschreitungsstunden im Sommer stammt der größte Beitrag zur Stickstoffdioxidkonzentration (39 %) hingegen aus der lokalen sekundären Bildung von Stickstoffdioxid.

Auf der Basis eines Vergleichs mit einer Auswertung für die hochbelastete Station München Landshuter Allee wurde abgeschätzt, dass lokale NO_2 -Direktmissionen an der Messstelle Am Neckartor für 38 % der NO_2 -Immissionen verantwortlich sind. Lokale sekundäre Prozesse tragen zu 25 % der Immissionen bei.

Die bisherige Ursachenanalyse wird auf Basis der Stickstoffoxidemissionen (Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid) erstellt. Hierdurch wird der Einfluss sekundärer Prozesse in Verkehrsnähe systematisch überschätzt. Eine durch eine detailliertere Berücksichtigung sekundärer Prozesse ergänzte, realistischere Ursachenanalyse ist in Abbildung 1-2 gezeigt. Die Unterschiede zur bisherigen Ursachenanalyse sind vernachlässigbar gering.

Eine Maßnahme zur Minderung der Belastung durch sekundär gebildetes Stickstoffdioxid wäre einerseits die Minderung der Vorläufersubstanzen, also Stickstoffmonoxid, sowie andererseits die Minderung des oxidativen Potentials der Atmosphäre. Letzteres kann durch Minderung z. B. der Ozonkonzentration erreicht werden, wobei dafür der Ausstoß der Ozon-Vorläufersubstanzen wie z. B. flüchtigen organischen Verbindungen ohne Methan (NMVOC) gesenkt werden müsste.

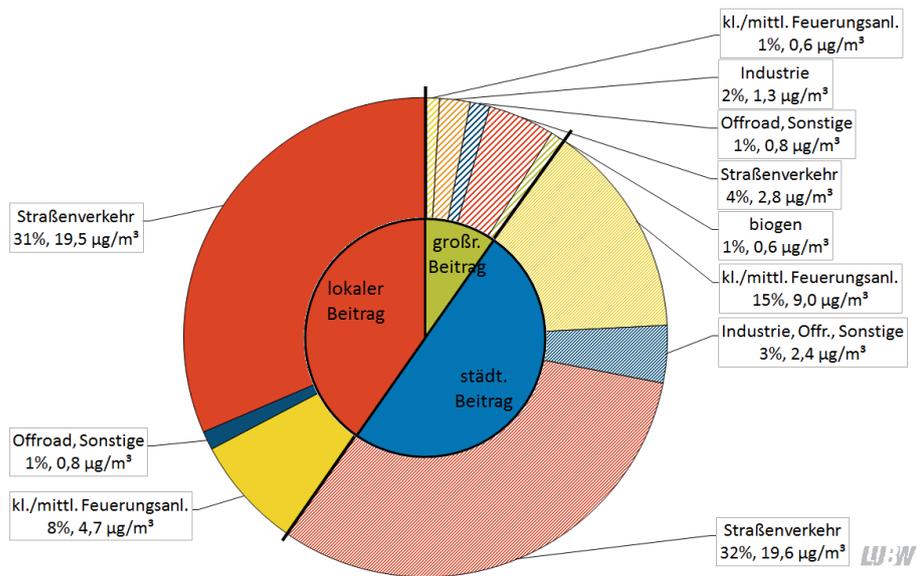


Abbildung 1-2: Ursachenanalyse für NO_2 an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 mit Berücksichtigung sekundärer Bildungsprozesse von NO_2

1 Einleitung

Derzeit basieren sowohl die im Emissionskataster Baden-Württemberg ausgewiesenen Partikel PM_{10} -Emissionen als auch Immissionsbetrachtungen auf primären Emissionen von Partikeln und deren Zuordnung zu bestimmten Emittenten. Die daraus abgeleiteten Strategien zur Minderung der Belastung mit Partikeln PM_{10} setzen deshalb – überwiegend durch die Ergreifung lokaler Maßnahmen – bisher ausschließlich bei den Emittenten primärer Partikel an. Der Beitrag von sekundären Partikelbestandteilen, d. h. Inhaltsstoffen, die sich in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen bilden, findet bislang keine Berücksichtigung. Mit dem über die Jahre beobachteten Rückgang der Messwerte stellt sich jedoch zunehmend die Frage, wie groß der Beitrag dieser Bestandteile ist und ob weitere, großräumige Maßnahmen zur Minderung der Partikelimmissionen ergriffen werden sollten.

Auch bei den Stickstoffdioxidimmissionen spielen sekundäre Bildungsprozesse eine Rolle, da das in

Rohabgasen vorhandene Stickstoffmonoxid (NO) durch oxidierende Stoffe, insbesondere Ozon, zu Stickstoffdioxid (NO_2) oxidiert werden kann. Die Höhe der an einem verkehrsnahen Messpunkt festgestellten Stickstoffdioxidkonzentration ist deshalb nicht nur von der Höhe der lokalen, d. h. verkehrsbedingten, NO_2 -Direktemissionen, sondern auch vom Ozonangebot abhängig.

Das Ministerium für Verkehr Baden-Württemberg hat die LUBW Landesanstalt für Umwelt deshalb um eine fachlich fundierte Aussage zu diesen Themenkomplexen gebeten. Der vorliegende, zweigeteilte Bericht enthält sowohl für sekundäre Partikelbestandteile als auch für sekundär gebildetes Stickstoffdioxid jeweils eine Darstellung der grundlegenden Prozesse und ihrer Quantifizierung in einer erweiterten Ursachenanalyse sowie darauf aufbauend Maßnahmen bzw. Maßnahmenstrategien zur Minderung der Immissionen des jeweiligen Luftschadstoffs.

2 Sekundäre Partikelbestandteile

2.1 Grundlegende Prozesse¹

Im Gegensatz zu eindeutig charakterisierbaren Luftschadstoffen, beispielsweise Stickstoffdioxid oder Ozon, haben atmosphärische Partikel unterschiedliche Größen und Formen und bestehen aus einer Vielzahl unterschiedlicher Substanzen. Diese Substanzen haben in der Regel wiederum unterschiedliche chemische und physikalische Eigenschaften und stammen aus unterschiedlichen Quellen. Um den Summenparameter „Partikel“ beschreiben zu können, wurden deshalb verschiedene Unterscheidungen von Partikeltypen eingeführt, darunter diejenige nach der Partikelgröße (z. B. bezeichnet PM_{10} die Masse aller Partikel mit weniger als $10\ \mu m$ Durchmesser, analog für $PM_{2,5}$ usw.; vgl. Glossar ab Seite 81) oder diejenige nach den Partikelquellen bzw. -inhaltsstoffen („Dieselruß“). Eine weitere Möglichkeit der Unterscheidung verschiedener Partikeltypen ist diejenige nach dem Bildungsweg:

- „Primäre“ Partikel werden z. B. durch mechanische Prozesse erzeugt und unmittelbar in die Atmosphäre emittiert. Beispiele sind die Aufwirbelung von Mineralstaub und die Emission von Meersalzpartikeln. Auch bei Verbrennungsprozessen entstehen primäre Partikel.
- „Sekundäre“ Partikel² bilden sich im Gegensatz dazu in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen.

Die Lebensdauer von Partikeln in der Atmosphäre ist abhängig von ihrer Größe, ihrer Zusammensetzung und den Umgebungsbedingungen und beträgt typischerweise etwa eine Woche. Partikel können deshalb auch bei moderaten Windgeschwindigkeiten

über weite Strecken transportiert werden und so zur Feinstaubbelastung (Hintergrundbelastung) an weit vom Ursprung entfernten Orten beitragen.

2.1.1 PRIMÄRE PARTIKEL

Aus anthropogenen Quellen entstehen primäre Teilchen z. B. bei Verbrennungsprozessen, vor allem als ultrafeine und feine Teilchen mit einem Durchmesser unter etwa $0,3\ \mu m$. Teilchen, die durch Abrieb oder Aufwirbelung entstehen, sind meist größer als $1-2\ \mu m$. Als natürliche Quellen kommen Pollen, Meeresschicht, Winderosion und Vulkane in Frage. Tabelle 2-1 zeigt wichtige natürliche und anthropogene (primäre) Staubquellen sowie den typischen Partikelgrößenbereich der freigesetzten Partikel dieser Emittenten [BMU 2005].

Bei primären anthropogenen Quellen entstehen die Staubteilchen unmittelbar und werden in diesen Quellen direkt freigesetzt. Hierzu zählen ortsfeste (stationäre) Quellen, unter denen Verbrennungsanlagen zur Energieversorgung (Kraftwerke und Fernheizwerke), Abfallverbrennungsanlagen, Hausbrand (Gas, Öl, Kohle und andere feste Brennstoffe), Industrieprozesse (z. B. Metall-, Stahlerzeugung, Sinteranlagen) und Schüttgutumschlag die wichtigsten sind. Mobile Quellen, wie der Straßenverkehr, sind vor allem in Ballungsgebieten die dominierende Quelle für primäre Partikel. Zu den Feinstaub- und Rußpartikeln aus dem Auspuff sind beim Straßenverkehr zusätzlich der Abrieb der Reifen, der Bremsen und der Straßenabrieb sowie der wieder aufgewirbelte Straßenstaub zu berücksichtigen. Der Schienenverkehr, die Dieselabgase der Schifffahrt und der Luftverkehr sind weitere mobile Quellen mit nennenswertem Partikelaustritt. Auch die Bodenbearbeitung in der Landwirtschaft (Feldbearbeitung) sowie Aussaat-, Dünge- bis hin zu Ernteprozessen sind potentielle Quellen für primäre Partikel.

¹ Quelle: [Seinfeld und Pandis 2016]

² Gebräuchlich ist hierfür auch die – nicht ganz korrekte – Bezeichnung „Sekundäres Aerosol“. Definitionsgemäß ist ein Aerosol eine Suspension fester oder flüssiger Partikel in einem Gas, d. h. umfasst mehr als nur die Partikelphase. Im Folgenden wird deshalb vorzugsweise der präzisere Begriff „sekundäre Partikelbestandteile“ verwendet (vgl. dazu auch die Ausführungen unter 2.1.2).

Tabelle 2-1: Staubemittenten sowie zugehörige Partikelgrößenbereiche [BMU 2005]

Quelle	Partikelgrößenbereich
Natürliche Quellen	
Bodenerosion	1 – 150 µm
Sandstürme	1 – 150 µm
Vulkanasche	0,005 – 150 µm
Maritime Partikel (Meersalz)	1 – 20 µm
Asche aus Waldbränden	0,005 – 30 µm
Biogene Stäube (Pollen, Pilzsporen, Milbenexkrementen)	2 – 50 µm
Anthropogene Quellen	
Stationäre Verbrennung (Heizung, Energieerzeugung)	0,005 – 2,5 µm
Mobile Verbrennung (Verkehr)	0,005 – 2,5 µm
Verhüttung	0,1 – 30 µm
Industrielle Prozesse (Metallverarbeitung)	0,005 – 2,5 µm
Schüttgutumschlag	10 – 150 µm
Zigarettenrauch	0,02 – 10 µm

LU:W

2.1.2 SEKUNDÄRE PARTIKEL

Sekundäre Partikelbestandteile bilden sich in der Atmosphäre über komplexe chemische Reaktionen aus reaktionsfähigen gasförmigen Vorläufersubstanzen. Dies kann auf zwei verschiedene Weisen geschehen:

- Bei der Nukleation (von lat. *nucleus*, Kern) bildet sich aus den gasförmigen Vorläufersubstanzen ein neuer, zunächst sehr kleiner Partikel (Durchmesser bis 10 nm). Diese Partikel können sehr zahlreich sein (in der Größenordnung von 100.000 Partikeln pro cm³ Luft), tragen wegen ihrer geringen Größe aber nur unwesentlich zur Partikelmasse bei.
- Bei der Kondensation wachsen die gasförmigen Vorläufersubstanzen auf bereits existierende (primäre oder sekundäre) Partikel auf, wodurch deren Größe und Masse zunehmen.

Sekundäre Prozesse führen deshalb nicht zwangsläufig zur Bildung neuer Partikel – bei beiden Bildungswegen nimmt aber die messbare Partikelmasse zu. Da sich die Immissionsgrenzwerte für Partikel PM₁₀ und PM_{2,5} auf die Partikelmasse beziehen, sind diese Prozesse auch aus Sicht der Luftreinhaltung relevant. So ist z. B. der überwiegende Teil der Partikel im Größenbereich zwischen 0,1 und 2,5 µm sekundären Ursprungs.

Die wichtigsten Vorläufersubstanzen für sekundäre Partikelbestandteile sind Schwefeloxide (SO₂, SO₃), Ammoniak (NH₃), Stickstoffoxide (NO, NO₂) und flüchtige Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NM-VOC, von engl. *non-methane volatile organic hydrocarbons*). Die aus den anorganischen Komponenten (Schwefeloxide, Stickstoffoxide und Ammoniak) gebildeten Partikel werden auch als SIA (für engl. *secondary inorganic aerosol*, sekundäres anorganisches Aerosol) bezeichnet, die aus den organischen Nichtmethan-Kohlenwasserstoffen gebildeten Partikel als SOA (für engl. *secondary organic aerosol*, sekundäres organisches Aerosol).

Die wichtigsten Reaktionspfade, die zur Bildung sekundärer Substanzen führen, sind in Abbildung 2-1 (Seite 14) gezeigt:

- Schwefeldioxid (SO₂) ist ein Gas, das im Wesentlichen aus industriellen Quellen stammt. In der Atmosphäre wird SO₂ entweder in der Gasphase oder in der atmosphärischen Flüssigphase (z. B. Wolkenröpfchen³ oder der flüssigen Phase von Partikeln) zu Schwefelsäure (H₂SO₄) oxidiert. Hierbei handelt es sich um eine starke Säure⁴, d. h. sie liegt in wässriger Lösung als Sulfat (SO₄²⁻) vor. Wenn die wässrige Phase verdunstet, verbleiben Partikel, die sekundär gebildetes Sulfat enthalten. Es gibt nahezu keine primären Quellen für Sulfat.
- Ammoniak (NH₃) ist ein Gas, das hauptsächlich aus der Landwirtschaft (Nutztierhaltung, Stickstoffdünger) stammt. NH₃ ist gut wasserlöslich und reagiert in der atmosphärischen Flüssigphase als Base, d. h. es nimmt H⁺-Ionen auf und wird dabei zum Ammoniumion (NH₄⁺). Wenn die wässrige Phase verdunstet, verbleiben Partikel, die sekundär gebildetes Ammonium enthalten.

³ Wolkenröpfchen bilden sich, indem Feinstaubpartikel in feuchter Luft Wasser aufnehmen und dabei anwachsen (sie wirken als sog. „Kondensationskeim“). Gelangt ein Wolkenröpfchen in trockene Luft, verdunstet das Wasser wieder und lässt einen oder mehrere Feinstaubpartikel zurück. Partikel machen im Laufe ihres Lebens im Schnitt mehrere dieser Kondensations-Verdunstungs-Zyklen durch.

⁴ Säuren zeichnen sich definitionsgemäß dadurch aus, dass sie H⁺-Ionen (Protonen) abgeben.

Es gibt nahezu keine primären Quellen für Ammonium.

- Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) sind Gase, die hauptsächlich aus industriellen Quellen und dem Kfz-Verkehr stammen. NO reagiert in der Atmosphäre zu NO₂ (vgl. den zweiten Berichtsteil). Dieses wird auf verschiedenen Wegen zu Salpetersäure (HNO₃) oxidiert. Hierbei handelt es sich um eine starke Säure, d. h. sie liegt in wässriger Lösung als Nitrat (NO₃⁻) vor. Wenn die wässrige Phase verdunstet, verbleiben Partikel, die sekundär gebildetes Nitrat enthalten. Es gibt nahezu keine primären Quellen für Nitrat.
- Flüchtige Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NMVOC) umfassen eine Vielzahl organischer (d. h. kohlenstoffhaltiger) Substanzen. Wichtige Vertreter sind insbesondere Isopren (C₅H₈), welches hauptsächlich von Laubbäumen emittiert wird, sowie die aus mehreren Isopreneinheiten aufgebauten Terpene, welche hauptsächlich von Nadelbäumen emittiert werden. Anthropogene Emissionen von NMVOC stammen aus dem Verkehr (NMVOC aus Tankatmung und als Zusatz zum Scheibenwaschwasser), dem Einsatz lösemittelhaltiger Produkte in Industrie, Gewerbe und Haushalten sowie der chemischen Industrie und Petrochemie. Die bio- oder anthropogen emittierten NMVOC werden durch die in der Atmosphäre vorhandenen Oxidantien (Ozon (O₃), Hydroxylradikal (HO·)) in einem mehrstufigen Prozess zu organischen Säuren (Carbonsäuren), z. B. der Oxalsäure (C₂H₂O₄), oxidiert. Diese organischen Säuren machen einen Großteil der sekundären organischen Partikelmasse (SOA) aus. Weitere sekundäre organische Stoffe sind Aldehyde, Ketone sowie hochmolekulare, huminähnliche Verbindungen (HULIS, engl. *humic-like substances*), deren Bildungsmechanismus aber noch nicht verstanden ist.
- Wasser (H₂O): Gasförmiges Wasser ist in der Atmosphäre allgegenwärtig, im Gegensatz zu kondensierten Wassertröpfchen (z. B. in Nebel oder Wolken) aber unsichtbar. Da Aerosolpartikel zahlreiche hygroskopische (d. h. feuchtigkeitsbindende) Substanzen wie Ammoniumnitrat

und -sulfat enthalten, enthalten Partikel in der Atmosphäre auch signifikante Mengen Wasser. Diese Wassermengen tragen auch zur Partikelmasse bei. Viele der zuvor genannten Reaktionen finden in der flüssigen Partikelphase statt.

Zu beachten ist, dass die zahlreichen Partikelinhaltsstoffe unterschiedliche chemische und physikalische Eigenschaften haben und sich deshalb unter verschiedenen Umgebungsbedingungen auch unterschiedlich verhalten. So ist beispielsweise Ammoniumnitrat (NH₄NO₃; ein Salz, das sich aus Ammonium und Nitrat bildet) flüchtig und geht bei Temperaturen ab ca. 20 °C merklich aus der Partikelphase in die Gasphase über, leistet dann also keinen Beitrag mehr zur PM₁₀-Masse. Demgegenüber ist Ammoniumsulfat ((NH₄)₂SO₄; ein Salz, gebildet aus Ammonium und Sulfat) nicht flüchtig und verbleibt in der Partikelphase. Auch einige organische Komponenten verdampfen bei höheren Temperaturen, während der Wassergehalt nicht nur von der Temperatur, sondern auch von der Luftfeuchtigkeit beeinflusst wird. Darüber hinaus finden insbesondere in der wässrigen Partikelphase andauernd chemische Reaktionen statt, z. B. werden bei Lichteinfluss organische Bestandteile zu (gasförmigem) CO₂ abbaut, wodurch die Partikelmasse abnimmt. Gleichzeitig wird, wie in Abbildung 2-1 schematisch dargestellt, über die Oxidation gasförmiger Vorläufersubstanzen permanent neue organische Masse gebildet. Die Zusammensetzung, Masse, Größe und Anzahl von Partikeln ist damit einer ständigen Veränderung unterworfen und die zu einem gegebenen Zeitpunkt an einem gegebenen Ort gemessene Partikelmasse bzw. -zusammensetzung das Ergebnis einer Vielzahl unterschiedlicher (und unterschiedlich schneller) Reaktionen und Umwandlungen⁵.

⁵ Die sekundäre Bildung der anorganischen Partikelbestandteile (Sulfat, Ammonium und Nitrat; SIA) sind hierbei weitgehend verstanden und können durch entsprechende Modelle adäquat beschrieben werden. Im Fall der deutlich komplexer aufgebauten organischen Komponenten (SOA) ist der Kenntnisstand weniger gut, so dass auch moderne Modelle hier noch große Unsicherheiten aufweisen.

Einen Überblick über wesentliche Einflussgrößen auf die Partikel PM₁₀-Konzentrationen gibt [LUBW 2007a].

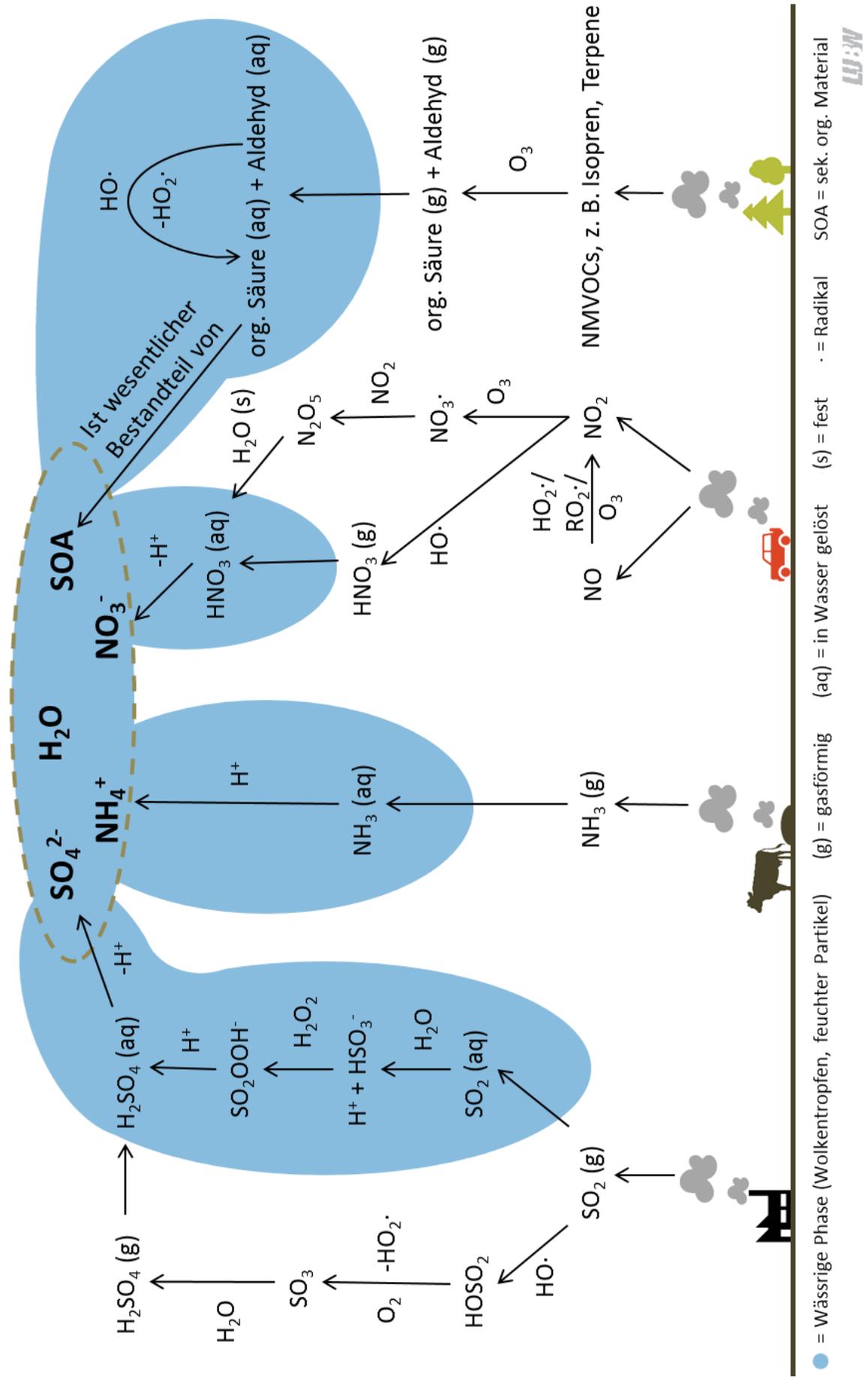


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung der Bildungswege von sekundären Partikelbestandteilen (vgl. Glossar)

Tabelle 2-2: Liste der PM₁₀-Inhaltsstoffe, deren Konzentrationen messtechnisch im Labor bestimmt wurden

Symbol	Name	Symbol	Name
Elemente (nach Aufschluss)		Kohlenstoffhaltige Substanzen	
Al	Aluminium	OC	Organischer Kohlenstoff
As	Arsen	EC	Elementarer Kohlenstoff
Ba	Barium	B[a]P	Benzo[a]pyren
Ca	Calcium	-	Levoglucosan
Cd	Cadmium	Ionen (nach wässriger Extraktion)	
Co	Cobalt	Cl ⁻	Chlorid
Cr	Chrom	NO ₃ ⁻	Nitrat
Cu	Kupfer	SO ₄ ²⁻	Sulfat
Fe	Eisen	NH ₄ ⁺	Ammonium
K	Kalium	Na ⁺	Natrium
Mg	Magnesium	K ⁺	Kalium
Mn	Mangan	Ca ²⁺	Calcium
Na	Natrium	Mg ²⁺	Magnesium
Ni	Nickel		
Pb	Blei		
Sb	Antimon		
Sn	Zinn		
V	Vanadium		
Zn	Zink		

LU:W

2.2 Quantifizierung

2.2.1 LABORANALYSEN

Die Bestimmung der Partikelmasse erfolgt an den Messstationen in Baden-Württemberg grundsätzlich mithilfe des in der 39. BImSchV [39. BImSchV] festgelegten gravimetrischen Referenzverfahrens. Die Partikel werden hierbei für 24 Stunden auf einem Filter gesammelt, dessen Gewichtszunahme anschließend im Labor für Luftmessungen und stofflichen Verbraucherschutz der LUBW bestimmt wird. Nach der Wägung stehen die Filter auch für weitere Analysen zur Verfügung. So wurden an den zur Bestimmung der Partikelmasse beprobten Filtern der Stationen

- Stuttgart Am Neckartor,
- Stuttgart Arnulf-Klett-Platz,
- Stuttgart-Bad Cannstatt und
- Gärtringen⁶

⁶ Aufgrund von Messausfällen wurden die Anforderungen der 39. BImSchV, mit den Messungen von Blei, Arsen, Cadmium und Nickel 90 % aller Tage eines Jahres messtechnisch abzudecken, in Gärtringen im Jahr 2016 nicht eingehalten (die Datenverfügbarkeit betrug nur 85 %). Es wurden deshalb keine Kenngrößen für diese Komponenten veröffentlicht. Für die vorliegen-

in den Jahren 2015 und 2016 tägliche Inhaltsstoffanalysen der gesammelten PM₁₀-Proben durchgeführt. Hierbei wurden die Konzentrationen der in Tabelle 2-2 dargestellten Substanzen bestimmt. Vergleichbare Untersuchungen wurden bereits in den Jahren 2006 und 2007 durchgeführt [LUBW 2009].

2.2.2 MASSENSCHLIEßUNG

Mit den im Labor durchgeführten Analysen konnten rund 70 % der Partikelmasse chemisch identifiziert werden. Damit war bereits ein Großteil der Inhaltsstoffe von Partikeln PM₁₀ im Raum Stuttgart bekannt. Allerdings sind nicht alle Bestandteile von Partikeln einer chemischen Analytik zugänglich. Um den Massenbeitrag dieser Bestandteile dennoch berücksichtigen zu können, wurde eine sogenannte „Massenschließung“ durchgeführt. Diese wird nachfolgend beschrieben.

Behandlung von organischem Material (OM)

Organisches Material (OM) in Partikeln besteht aus einer Vielzahl unterschiedlicher Verbindungen, z. B.

- Zucker und Anhydrozucker wie Levoglucosan,
- langkettigen aliphatischen Kohlenwasserstoffen,
- aromatischen Kohlenwasserstoffen wie Benzo[a]pyren,
- organischen Säuren und ihren Anionen wie Oxalsäure bzw. Oxalat,
- Aldehyden,
- Ketonen,
- hochmolekularen, huminähnlichen Verbindungen (HULIS) usw.

Diese Moleküle enthalten neben Kohlenstoff, dessen Masse in Form des Parameters OC (organischer Kohlenstoff) gemessen werden kann, noch weitere Elemente wie Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff usw., die zur Masse des organischen Materials (OM) beitragen. Die Massenbeiträge dieser Elemente werden in der Regel mithilfe von empirischen Faktoren aus der OC-Masse abgeschätzt. Zu beachten ist, dass der Gehalt dieser Elemente (insbesondere der Sauerstoffgehalt) bei der sukzessiven Oxidation der orga-

de Auswertung wurde die Datenverfügbarkeit aber als ausreichend eingeschätzt.

nischen Moleküle in der Atmosphäre zunimmt. Um dieser Alterung Rechnung zu tragen, werden je nach Stationstyp unterschiedliche Faktoren verwendet. Entsprechend der allgemein akzeptierten Empfehlungen von [Turpin und Lim 2001], die die in der Literatur veröffentlichten Faktoren verglichen und bewertet haben, wurden in der vorliegenden Untersuchung folgende Konversionsfaktoren verwendet:

- für Stationen im ländlichen Hintergrund: 2,2 (d. h. $OM = 2,2 \cdot OC$)
- für Stationen im städtischen Hintergrund: 1,8
- für Stationen in Verkehrsnähe: 1,4 (analog dem Vorgehen in [LUBW 2009])

Behandlung von mineralischem Material

Auch mineralisches Material besteht neben den im Labor gemessenen Elementen (vgl. Tabelle 2-2) aus weiteren Bestandteilen, die messtechnisch nicht direkt zugänglich sind, aber zur Partikelmasse beitragen. Der Massenbeitrag dieser weiteren mineralischen Bestandteile wurde, entsprechend dem Vorgehen in [LUBW 2015a], aus den gemessenen Massebeiträgen von Aluminium, Calcium und Magnesium abgeschätzt. Der Abschätzung liegen folgende Annahmen zugrunde:

- mineralisches Aluminium liegt als Aluminiumoxid (Al_2O_3) vor,
- mineralisches Calcium liegt als Calciumcarbonat ($CaCO_3$) vor,
- mineralisches Magnesium liegt als Magnesiumcarbonat ($MgCO_3$) vor,
- mineralisches Silicium liegt in Form von Alumosilikaten vor,
- in Alumosilikaten beträgt das Massenverhältnis von Al_2O_3 zu SiO_2 (Siliciumdioxid) ca. 1:3.

Anhand der unterschiedlichen Atomgewichte ergeben sich daraus folgende Umrechnungsfaktoren:

- Massenbeitrag von mineralischen Aluminiumverbindungen = $1,89 \cdot \text{Masse Aluminium}$
- Massenbeitrag von mineralischen Calciumverbindungen = $2,50 \cdot \text{Masse Calcium}$
- Massenbeitrag von mineralischen Magnesiumverbindungen = $3,47 \cdot \text{Masse Magnesium}$
- Massenbeitrag von mineralischen Siliciumverbindungen = $5,67 \cdot \text{Masse Aluminium}$.

Behandlung von sonstigen Elementen

Für die weiteren Elemente (As, Ba, Cd, Co, Cr, Cu, K, Mn, Ni, Pb, Sb, Sn, V, Zn) wurden aufgrund ihrer geringen Bedeutung keine weiteren Massenbeiträge angenommen, die Massen der Elemente selbst wurden aber berücksichtigt. Lediglich bei Eisen wurde, aufgrund seines häufigeren Vorkommens, angenommen, dass es als Eisenoxid (Fe_2O_3) vorliegt. Unter Berücksichtigung der Atomgewichte von Eisen und Sauerstoff ergibt sich damit folgender Umrechnungsfaktor: Massenbeitrag von $Fe_2O_3 = 1,43 \cdot \text{Masse Eisen}$.

Behandlung von Streusalz

Der Massenbeitrag von Streusalz (Natriumchlorid, NaCl) wurde, entsprechend dem Vorgehen in [LUBW 2016a] und [LUBW 2017a], aus dem Massebeitrag von Chlorid abgeschätzt.

Behandlung von Wasser

Wie bereits in Kap. 2.1 erwähnt, enthalten Partikel signifikante Mengen Wasser, dessen Massenbeitrag mithilfe thermodynamischer Modelle abgeschätzt werden kann. Für die vorliegende Auswertung wurde das Modell E-AIM III [Clegg et al. 1998] verwendet. Eingangsparameter für das Modell waren:

- die Konzentrationen⁷ an NH_4^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- und Cl^- sowie
- die relative Luftfeuchte zum Zeitpunkt der Wägung.

Da die Bestimmung der Partikelmasse unter Laborbedingungen erfolgte, wurden für die Bestimmung des Massenbeitrags von Wasser mithilfe von E-AIM III die bei der Wägung im Labor herrschende Luftfeuchte von konstant 47,5 % verwendet.

Ergebnis der Massenschließung

Durch die Berücksichtigung der genannten Beiträge liegt die Abweichung zwischen der bei der Wägung ermittelten Partikelmasse einerseits und der Summe der Massenbeiträge der Einzelkomponenten andererseits im Jahresmittel deutlich unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (siehe

⁷ Hygroskopische *organische* Bestandteile konnten nicht berücksichtigt werden.

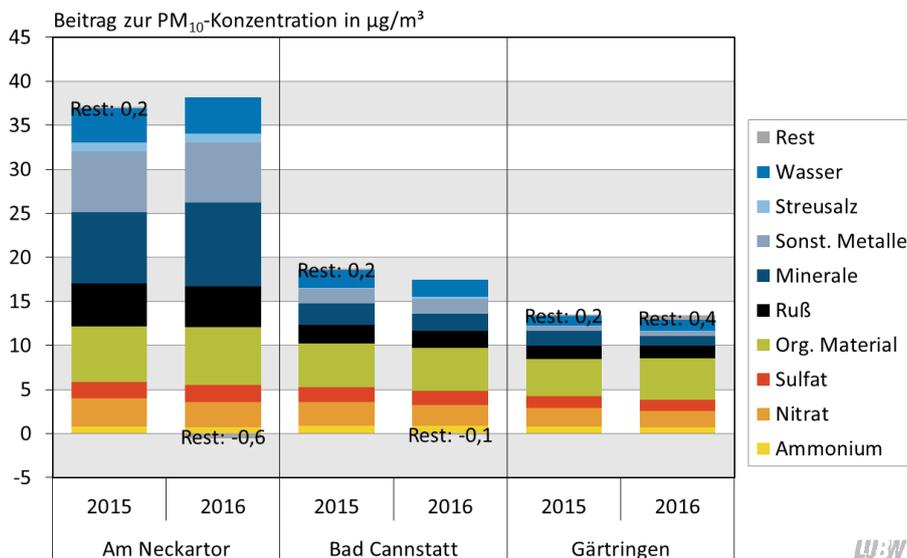


Abbildung 2-2: Ergebnis der Massenschließung

Abbildung 2-2). Es kann somit davon ausgegangen werden, dass in der vorliegenden Untersuchung alle relevanten Partikelbestandteile vollständig und korrekt erfasst wurden. Im Folgenden wird der eigentliche Untersuchungsgegenstand, die sekundären Partikelbestandteile, näher untersucht.

2.2.3 BESTIMMUNG DES ANTEILS AN SEKUNDÄR GEBILDETER PARTIKELMASSE

Wie in Kap. 2.1 dargestellt, bestehen sekundäre Partikel im Wesentlichen aus Sulfat, Ammonium und Nitrat, deren Konzentrationen direkt analytisch zugänglich waren und für die Auswertung unverändert verwendet werden konnten. Da die genannten Komponenten aufgrund ihrer Hygroskopizität auch für den Großteil des in den Partikeln vorkommenden Wassers verantwortlich sind, wurde auch die Masse des Wassers den sekundären Partikelbestandteilen zugeschlagen.

Für das organische Material, das sowohl aus primären Quellen als auch aus sekundären Prozessen stammen kann, mussten demgegenüber Annahmen bezüglich der Herkunft (primär vs. sekundär) gemacht werden. Hierzu wurde auf Untersuchungen von Partikelinhaltsstoffen in [Scheinhardt et al. 2013a], [Scheinhardt et al. 2013b], [Scheinhardt 2013c] und [Scheinhardt et al. 2014] zurückgegriffen. In den genannten Untersuchungen wurden neben den Konzentrationen an organischem Material an

neun Standorten⁸ in Deutschland auch die Konzentrationen von 34 organischen Säuren⁹ untersucht. Die genannten Analysen decken alle organischen Säuren, die einen relevanten Massenbeitrag zur Partikelkonzentration leisten, ab.

Die Messungen zeigen, dass die genannten Säuren in Verkehrsnähe und im städtischen Hintergrund etwa 20 % und im ländlichen Hintergrund rund 15 % der Masse an organischem Material ausmachen. Unter der vereinfachenden Annahme, dass

- sich die genannten 34 organischen Säuren ausschließlich sekundär gebildet haben und
- es neben diesen Säuren keine weiteren sekundären organischen Bestandteile gibt¹⁰,

⁸ Hohenpeißenberg, Melpitz, Oberbärenburg, Schauinsland, Südoldenburg (jeweils ländlicher Hintergrund), Augsburg, Dresden Winkelmannstraße, Leipzig Institut für Troposphärenforschung (jeweils städtischer Hintergrund), Leipzig Eisenbahnstraße (verkehrsnah)

⁹ Adipin-, Äpfel-, Ameisen-, Bernstein-, Brenztrauben-, Butter-, Citracon-, Citramal-, Citronen-, Croton-, 3,3-Dimethylglutar-, Dimethylmalon-, Essig-, Fumar-, Glutar-, Glycol-, Glyoxal-, 3-Hexen-, 3-Hydroxy-3-Methylglutar-, Malein-, Malon-, Mesacon-, Methylbernstein-, Methylmalon-, Milch-, Oxal-, 3-Penten-, 2-Penten-, Propion-, Tartron-, Valerian-, meso-Wein-, (D, L)-Wein- und Isovaleriansäure.

¹⁰ Der Beitrag weiterer sekundärer organischer Bestandteile wird hierbei vernachlässigt, so dass die genannten Prozentsätze als untere Grenze zu verstehen sind.

kann der gefundene Anteil von 20 % bzw. 15 % als Anteil des sekundären organischen Materials an der Masse von organischem Material interpretiert werden. In der vorliegenden Untersuchung wurde die Masse des sekundären organischen Materials deshalb auf diese Weise abgeschätzt. Der verbleibende Rest (d. h. in Verkehrsnähe und im städtischen Hintergrund 80 %, im ländlichen Hintergrund 85 %) des organischen Materials wurde als primäres organisches Material interpretiert.

2.3 Ergebnisse und Ursachenanalyse

2.3.1 VORBEMERKUNGEN

In den folgenden Unterkapiteln werden die Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ und die Bedeutung der sekundären Partikelbestandteile im Jahresmittel (Kap. 2.3.2) und an PM₁₀-Überschreitungstagen (Kap. 0) diskutiert. Im Anhang 0 (ab Seite 83) finden sich ferner Auswertungen für das Sommer- und das Winterhalbjahr. Der Aufbau der vier Unterkapitel ist jeweils weitgehend identisch. Um die Orientierung zu erleichtern und Vergleiche zwischen den einzelnen Auswertungen zu vereinfachen, findet sich in

Tabelle 2-3 eine Aufstellung der sich jeweils entsprechenden Abbildungen bzw. Tabellen.

2.3.2 JAHRESMITTEL

2.3.2.1 PARTIKEL PM₁₀

An der Messstelle Stuttgart Am Neckartor bestanden Partikel PM₁₀ im Jahresmittel überwiegend aus primären Bestandteilen wie Mineralstaub und sonstigen Metallen (Abbildung 2-3 und Tabelle 2-4). Sekundäre Partikelbestandteile machten Am Neckartor mit Beiträgen von 11 µg/m³ der PM₁₀-Konzentration knapp ein Drittel der Partikelmasse aus, im ländlichen und städtischen Hintergrund fast die Hälfte.

Vergleich mit bisherigen Messungen

Im vergangenen Jahrzehnt sind die Jahresmittelwerte der PM₁₀-Konzentrationen an der Messstelle Am Neckartor um rund 30 % zurückgegangen (PM₁₀-Jahresmittel 2006: 55 µg/m³, PM₁₀-Jahresmittel 2016: 38 µg/m³). Ein Vergleich mit Untersuchungen aus dem Jahr 2006 [LUBW 2009] zeigt, dass in diesem Zeitraum auch die Konzentrationen nahezu aller PM₁₀-Inhaltsstoffe abgenommen haben. Besonders deutlich ist der Rückgang bei der gesundheitlich

Tabelle 2-3: Übersicht über die sich jeweils entsprechenden Abbildungen und Tabellen; Entsprechungen stehen jeweils in der gleichen Zeile

	Kap. 2.3.2 (Jahresmittel)		Kap. 2.3.3 (Überschreitungstage)		Kap. 4.3.1 (Anhang) (Sommerhalbjahr)		Kap. 4.3.2 (Anhang) (Winterhalbjahr)	
	Objekt	Seite	Objekt	Seite	Objekt	Seite	Objekt	Seite
Kap. X.X.X.1 (Partikel PM₁₀)								
	Abbildung 2-3	19	Abbildung 2-13	29	Abbildung 4-1	83	Abbildung 4-7	88
	Tabelle 2-4	19	Tabelle 2-9	29	Tabelle 4-1	83	Tabelle 4-5	87
	-		Abbildung 2-14	31	Abbildung 4-2	84	Abbildung 4-8	88
	Abbildung 2-5	21	Abbildung 2-15	32				
			Abbildung 2-16	32	Abbildung 4-3	84	Abbildung 4-9	89
Kap. X.X.X.2 (sekundäre Partikelbestandteile)								
	Abbildung 2-6	22	Abbildung 2-17	33	Abbildung 4-4	85	Abbildung 4-10	89
	Tabelle 2-5	22	Tabelle 2-11	33	Tabelle 4-2	85	Tabelle 4-6	90
	Abbildung 2-7	23	Abbildung 2-18	34	Abbildung 4-5	86	Abbildung 4-11	90
Kap. X.X.X.3 (Ursachenanalyse)								
	Tabelle 2-6	23	Tabelle 2-12	34	Tabelle 4-3	86	Tabelle 4-7	90
	Tabelle 2-8	26	Tabelle 2-13	35	Tabelle 4-4	87	Tabelle 4-8	91
	Abbildung 2-8	25	Abbildung 2-19	34	Abbildung 4-6	86	Abbildung 4-12	91

LUBW

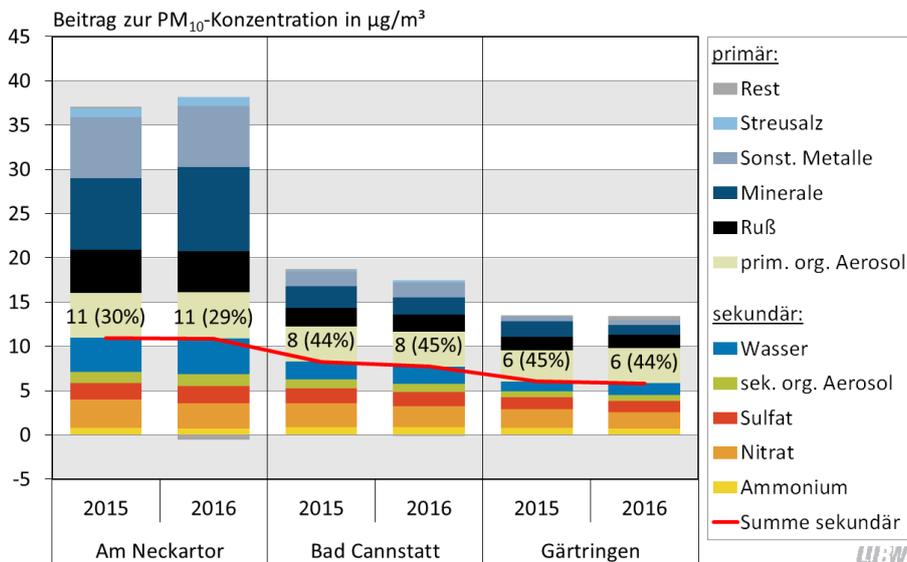


Abbildung 2-3: Zusammensetzung der Partikel PM₁₀ und Anteil sekundärer Partikelbestandteile im Jahresmittel

Tabelle 2-4: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Jahresmittel

	Zusammensetzung in µg/m ³						Zusammensetzung in %					
	Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen		Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen	
	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016
Primäre Bestandteile												
Rest	0,17	-0,59	0,16	-0,14	0,18	0,45	0 %	-2 %	1 %	-1 %	1 %	3 %
Streusalz	0,98	1,02	0,13	0,19	0,06	0,05	3 %	3 %	1 %	1 %	0 %	0 %
Sonst. Metalle	6,92	6,85	1,69	1,70	0,50	0,48	19 %	18 %	9 %	10 %	4 %	4 %
Minerale	8,13	9,53	2,44	1,96	1,74	1,14	22 %	25 %	13 %	11 %	13 %	9 %
Ruß	4,88	4,62	2,10	1,89	1,50	1,44	13 %	12 %	11 %	11 %	11 %	11 %
prim. org. Material	5,06	5,24	3,93	3,96	3,53	4,01	14 %	14 %	21 %	23 %	26 %	30 %
Sekundäre Bestandteile												
Wasser	3,86	4,06	2,00	1,93	1,13	1,32	10 %	11 %	11 %	11 %	8 %	10 %
sek. org. Material	1,27	1,31	0,98	0,99	0,62	0,71	3 %	3 %	5 %	6 %	5 %	5 %
Sulfat	1,82	1,93	1,69	1,55	1,42	1,21	5 %	5 %	9 %	9 %	11 %	9 %
Nitrat	3,22	2,91	2,68	2,41	2,06	1,85	9 %	8 %	14 %	14 %	15 %	14 %
Ammonium	0,78	0,68	0,92	0,85	0,80	0,73	2 %	2 %	5 %	5 %	6 %	5 %
Summen												
Summe sekundär	10,94	10,89	8,28	7,73	6,04	5,83	30 %	29 %	44 %	45 %	45 %	44 %
Summe gesamt	37,08	37,56	18,74	17,30	13,54	13,40	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %

LU:W

bedenklichen Komponente Ruß, dessen Jahresmittelwerte um rund 65 % abgenommen haben (Ruß-Jahresmittel 2006: 13,3 µg/m³, Ruß-Jahresmittel 2016: 4,6 µg/m³). Damit ist auch der relative Massenbeitrag von Ruß zurückgegangen: im Jahr 2006 waren 26 % der PM₁₀-Masse auf Ruß zurückzuführen, im Jahr 2016 nur noch 12 %. Die Minderung der Rußkonzentrationen ist ein Ergebnis emissionsmindernder Maßnahmen, insbesondere der Einführung von Dieselrußpartikelfiltern.

Der Beitrag sekundärer Partikelbestandteile (Ammonium, Nitrat, Sulfat sowie der sekundäre Teil des organischen Materials; Wasser wurde in [LUBW 2009] nicht betrachtet) ist an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im vergangenen Jahrzehnt von 12,4 µg/m³ (23 % der PM₁₀-Masse) auf 6,8 µg/m³ (18 % der PM₁₀-Masse) zurückgegangen. Die Konzentrationen sekundärer PM₁₀-Bestandteile haben sich im genannten Zeitraum also fast halbiert. Auch hier kann ein Zusammenhang mit Maßnahmen zur Minderung der Emissionen von Partikel-Vorläuferstoffen gesehen werden. Diese Minderungen

waren aber weniger deutlich als bei Ruß, so dass der relative Beitrag sekundärer Bestandteile zur PM₁₀-Masse sich Am Neckartor nur um 5 Prozentpunkte verringert hat.

Insgesamt ist die Bedeutung sekundärer Partikelbestandteile trotz rückläufiger PM₁₀-Immissionen in den vergangenen Jahren nicht größer geworden.

Herkunftsanalyse

Um die geographische Herkunft der einzelnen Partikelbestandteile beleuchten zu können, wurde das in Abbildung 2-4 schematisch dargestellte Vorgehen in Anlehnung an [Lenschow et al. 2001] gewählt. Hierbei wurde durch Differenzbildung der Beitrag einzelner Quellregionen festgestellt:

- die Differenz zwischen der Konzentration in Verkehrsnähe und der Konzentration im städtischen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag lokaler Emissionen,
- die Differenz zwischen der Konzentration im städtischen Hintergrund und der Konzentration im ländlichen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag städtischer Emissionen und

- die Konzentration im ländlichen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag großräumiger Emissionen.

In Abbildung 2-5 ist die entsprechende Auswertung sowohl für die primären als auch für die sekundären Partikel PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor gezeigt. Man erkennt, dass in den Jahren 2015 und 2016 jeweils ein Großteil des Gesamt-PM₁₀ aus lokalen Quellen stammt. Dies gilt insbesondere für die (primären) Beiträge von Streusalz, den sonstigen Metallen, Mineralstaub und Ruß. Primäres organisches Material stammt demgegenüber größtenteils aus dem ländlichen Hintergrund, ebenso wie ein großer Teil der als sekundär identifizierten Substanzen. Auf diese wird im folgenden Unterkapitel genauer eingegangen.

2.3.2.2 SEKUNDÄRE PARTIKELBESTANDTEILE

In den Jahren 2015 und 2016 stammte der größte Beitrag zur sekundär gebildeten Partikelmasse Am Neckartor jeweils von Wasser (Abbildung 2-6 und Tabelle 2-5). Fast die Hälfte der Wassermasse stammt aus der unmittelbaren Umgebung des Messorts, der Rest verteilt sich nahezu gleichmäßig auf städtische und großräumige Beiträge. Der zweitgröß-

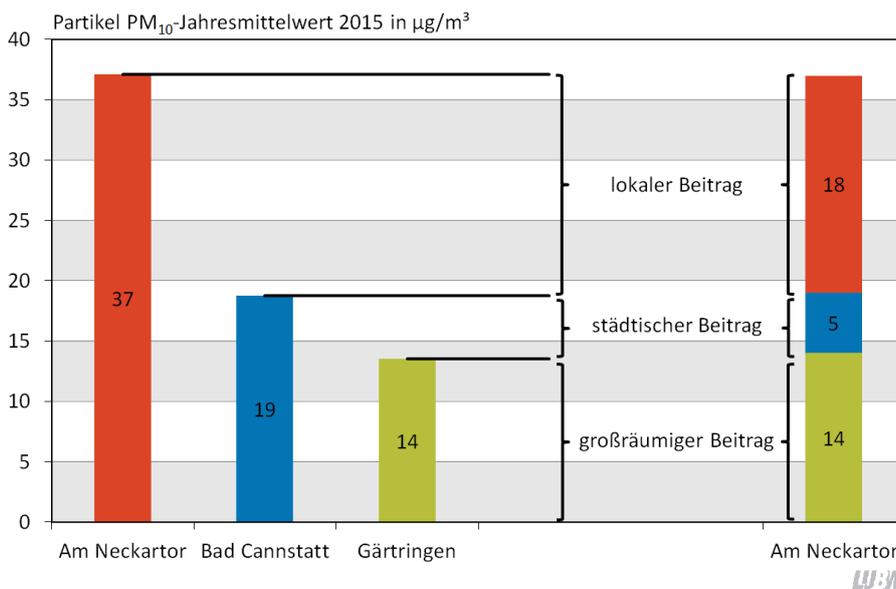


Abbildung 2-4: Schematische Darstellung des Vorgehens zur Herkunftsanalyse von Partikeln PM₁₀ und ihren Inhaltsstoffen am Beispiel des Jahres 2015¹¹

¹¹ Zu beachten ist, dass zur Ermittlung des großräumigen und des städtischen Hintergrundes in der Ursachenanalyse aus [LUBW 2016b] etwas anders vorgegangen wurde als in der vorliegenden Auswertung, weshalb sich die Zahlenwerte leicht unterscheiden.

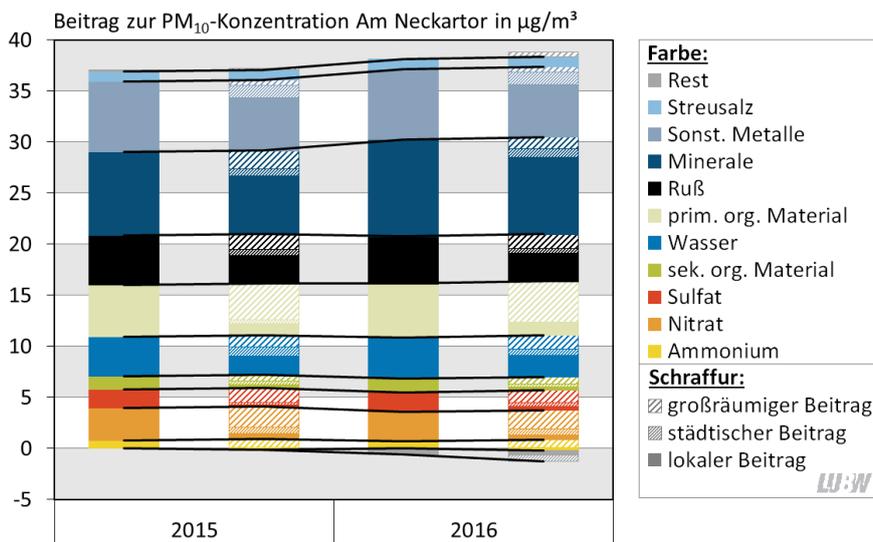


Abbildung 2-5: Zusammensetzung von Partikeln PM_{10} (jeweils linke Säule) und geographische Herkunft der einzelnen Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016; die Linien dienen der Orientierung

te Beitrag zur sekundären Partikelmasse kam von Nitrat, das zu nahezu zwei Dritteln aus dem großräumigen Hintergrund stammt. Sulfat bildete den drittgrößten Beitrag zur sekundären Partikelmasse und stammt zu mehr als zwei Dritteln ebenfalls aus dem großräumigen Hintergrund. Sekundäres organisches Material trug gut 10 % zur sekundären Partikelmasse bei und stammte zu etwa der Hälfte aus dem großräumigen Hintergrund. Der kleinste Beitrag zur sekundären Partikelmasse stammt von Ammonium. Hier zeigte sich, dass der lokale Beitrag in beiden Jahren formal negativ war, d. h. in Verkehrsnähe wurde – trotz beachtlicher lokaler Ammoniakemissionen aus dem Verkehr – weniger Ammonium gefunden als im städtischen Hintergrund. Offenbar ist die Bildung von Ammoniumsalzen nicht schnell genug, so dass sich die lokalen Ammoniakemissionen nicht in einem lokalen Zusatzbeitrag der Ammoniumkonzentration niederschlagen. Dass lokal sogar weniger Ammonium gefunden wurde als im städtischen Hintergrund, könnte auf einen thermischen Effekt zurückzuführen sein, da

- sich das Gleichgewicht zwischen partikulärem Ammoniumnitrat und den gasförmigen Vorläufersubstanzen (Ammoniak und Salpetersäure) bei steigenden Temperaturen (ab ca. 20 °C) zunehmend auf der Seite der Vorläufersubstanzen verschiebt und

- die Temperatur Am Neckartor im Jahresmittel 2016¹² um 0,60 °C über derjenigen in Stuttgart-Bad Cannstatt lag¹³ und
- das aufgrund der höheren Temperatur Am Neckartor verstärkte ‚Verdampfen‘ von Ammonium, wie beschrieben, nicht durch lokale Quellen kompensiert werden kann (im Gegensatz zu seinem Gegenion Nitrat, dessen Verdampfung offensichtlich durch eine lokale Neubildung überkompensiert wird).

Insgesamt war die Am Neckartor gefundene Masse an Ammonium im Jahr 2015 um 16 % und im Jahr 2016 um 20 % niedriger als die im städtischen Hintergrund an der Station Bad Cannstatt gefundene Masse. Das im städtischen Hintergrund gefundene Ammonium stammte mit Beiträgen von 88 % (2015) bzw. 86 % (2016) wiederum hauptsächlich aus dem großräumigen Hintergrund.

Insgesamt zeigt sich, dass in den Jahren 2015 und 2016 mehr als die Hälfte der sekundären Partikelmasse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor aus dem ländlichen Hintergrund stammte (Abbildung 2-7).

¹² Im Jahr 2015 fanden Am Neckartor keine ganzjährigen Messungen der Temperatur statt.

¹³ Der Grund für den beobachteten Temperaturunterschied ist vermutlich auf den städtischen Wärmeineffekt zurückzuführen, der in Stuttgart aufgrund der Kessellage noch verstärkt wird.

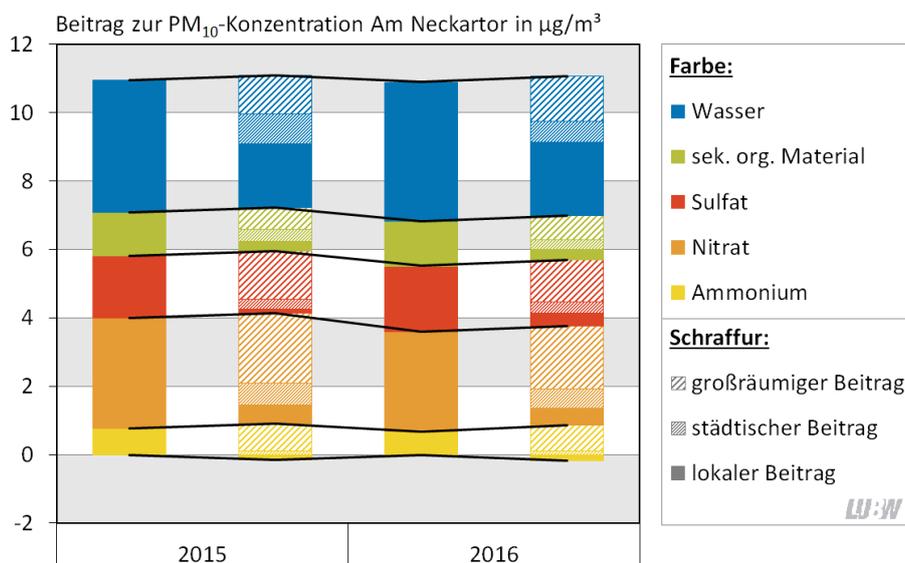


Abbildung 2-6: Zusammensetzung von sekundärem PM₁₀ (jeweils linke Säule) und geographische Herkunft der sekundären Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016; die Linien dienen der Orientierung

Tabelle 2-5: Geographische Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016

	2015				2016			
	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %
Wasser								
Gesamt	3,86	35 %			4,06	37 %		
Großr.			1,13	29 %			1,32	33 %
Städt.			0,88	23 %			0,60	15 %
Lokal			1,86	48 %			2,14	53 %
Sek. OM								
Gesamt	1,27	12 %			1,31	12 %		
Großr.			0,62	49 %			0,71	54 %
Städt.			0,36	28 %			0,28	21 %
Lokal			0,28	22 %			0,32	24 %
Sulfat								
Gesamt	1,82	17 %			1,93	18 %		
Großr.			1,42	78 %			1,21	63 %
Städt.			0,26	14 %			0,33	17 %
Lokal			0,13	7 %			0,38	20 %
Nitrat								
Gesamt	3,22	29 %			2,91	27 %		
Großr.			2,06	64 %			1,85	64 %
Städt.			0,62	19 %			0,56	19 %
Lokal			0,53	17 %			0,50	17 %
Ammonium								
Gesamt	0,78	7 %			0,68	6 %		
Großr.			0,80	-			0,73	-
Städt.			0,11	-			0,12	-
Lokal			-0,14	-			-0,17	-
Summe	10,94	100 %	10,94		10,89	100 %	10,89	

LU:W

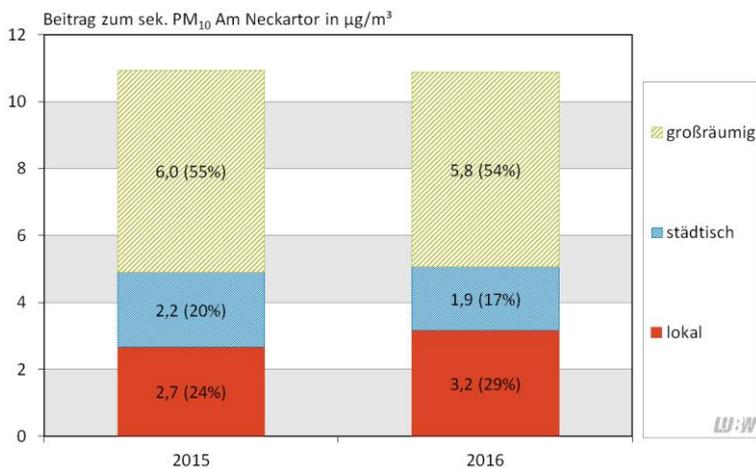


Abbildung 2-7: Zusammenfassung der geographischen Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016

2.3.2.3 URSACHENANALYSE SEKUNDÄRER PARTIKELBESTANDTEILE

Um die Quellen für die sekundären Partikelbestandteile nicht nur geographisch, sondern auch bezüglich der Verursacher identifizieren zu können, wurden die im vorangegangenen Unterkapitel beschriebenen Einzelbeiträge der *Immissionen* (auf der Basis der in Kapitel 2.1 dargestellten grundlegenden Prozesse) plausiblen *Emissionen* aus dem Emissionskataster 2014 [LUBW 2017b] zugeordnet. Dem liegen folgende Annahmen zugrunde:

- Sekundäres organisches Material bildet sich aus den Emissionen von Nichtmethan-Kohlenwasserstoffen (NMVOC),
- Sulfat bildet sich aus den Emissionen von Schwefeldioxid (SO₂),
- Nitrat bildet sich aus den Emissionen von Stickstoffoxiden (NO_x),
- Ammonium bildet sich aus den Emissionen von Ammoniak (NH₃).

Für Wasser, das ja einen beachtlichen Beitrag zur PM₁₀-Masse liefert, gestaltet sich die Quellzuordnung schwieriger, da das Modell E-AIM III die sich in den Partikeln einstellende Masse Wasser als *Gesamtmasse* berechnet. Es erfolgt keine Aufschlüsselung danach, welcher hygroscopische Inhaltsstoff für welchen Teil-Massenbeitrag von Wasser verantwortlich ist. Da für eine detaillierte Verursacheranalyse aber genau diese Information wichtig ist, wurden am Beispiel des Messpunktes Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016 weitere Modellläufe zur

Ermittlung der Wassermasse durchgeführt. In jedem Modelllauf wurden die Konzentrationen aller Inhaltsstoffe bis auf einen auf Null gesetzt und auf diese Weise die Beiträge von Ammonium, Nitrat und Sulfat zur Wasser-Gesamtmasse berechnet. Streusalz war nur für geringe Mengen Wasser verantwortlich und wurde deshalb nicht weiter berücksichtigt.

Die Summe der so ermittelten Einzelbeiträge korreliert zwar weitgehend mit der berechneten Gesamtmasse an Wasser ($R^2 = 0,6 - 0,7$), liegt im Mittel aber 60 % - 80 % über dieser. Der Grund ist, dass bei dieser sukzessiven Ermittlung der einzelnen Massenbeiträge die Wechselwirkungen der einzelnen Inhaltsstoffe miteinander unterschlagen werden. Dennoch erlaubt das Verfahren zumindest eine überschlägige Zuordnung von Wasser zu einzelnen Substanzen und deren Quellen. So ist im Jahresmittel beispielsweise gut die Hälfte des Wassers auf Nitrat zurückzuführen (Tabelle 2-6). Wasser wurde den einzelnen Inhaltsstoffen deshalb entsprechend den in Tabelle 2-6 gezeigten Verhältnissen zugeordnet.

Tabelle 2-6: Abgeschätzte Anteile unterschiedlicher Verursacher am Wassergehalt von Partikeln PM₁₀ Am Neckartor im Jahresmittel

	Beitrag von Ammonium	Beitrag von Nitrat	Beitrag von Sulfat
2015	10 %	56 %	34 %
2016	9 %	53 %	38 %

LUBW

Bezüglich der geographischen Verteilung der Quellen wurden folgende Annahmen getroffen:

- Der Immissionsbeitrag des ländlichen Hintergrundes resultiert aus den Emissionen im ganzen Landesgebiet¹⁴ (entsprechend den Angaben im Emissionskataster Baden-Württemberg 2014, [LUBW 2017b]).
- Der Immissionsbeitrag des städtischen Hintergrundes in Stuttgart resultiert aus den Emissionen im Stadtgebiet Stuttgart (entsprechend den Angaben im Emissionskataster Baden-Württemberg 2014, [LUBW 2017b]).
- Der lokale Emissionsbeitrag resultiert aus den lokalen Emissionen¹⁵. Diese können dem Emissionskataster Baden-Württemberg 2014 nicht ohne weiteres entnommen werden. Für die Emissionen von NMVOCs, SO₂ und NH₃ wurde deshalb auf Daten aus dem Emissionskataster 2012 [LUBW 2015b] zurückgegriffen, die für Stuttgart in einer Rasterung von 500x500 m² vorliegen. Für NO_x liegen bereits Emissionsdaten aus dem Emissionskataster Baden-Württemberg 2014 in einer Auflösung von 300 x 300 m² vor, so dass diese verwendet wurden. Das bei der Ermittlung der lokalen NO_x-Emissionen herangezogene Gebiet um den Messpunkt Am

¹⁴ Da Partikel Lebenszeiten im Bereich einer Woche haben und damit auch unter normalen Windbedingungen über Tausende Kilometer transportiert werden können, ist die Annahme, die im ländlichen Hintergrund Baden-Württembergs aufgefundenen Partikel seien (ausschließlich) auf Emissionen in Baden-Württemberg zurückzuführen, eine starke Vereinfachung. Für eine detailliertere Herkunftsanalyse müssten auch Emissionen jenseits der Landesgrenze Baden-Württembergs Berücksichtigung finden. In diesem Fall müssten dann aber auch die chemischen und physikalischen Prozesse, denen die Emissionen auf ihrem räumlich und zeitlich langen Weg nach Baden-Württemberg unterworfen sind, berücksichtigt werden. Chemie-Transport-Modelle wie REM-CALGRID, CHIMERE oder LOTOS-EUROS sind in der Lage, derartige Berechnungen durchzuführen, in der vorliegenden Auswertung wurde aber auf eine Anwendung derartiger Modelle verzichtet.

¹⁵ Diese Annahme entspricht dem Vorgehen in der Ursachenanalyse [LUBW 2016b]. Für eine belastbarere Aussage über die Verursacher des großräumigen, des städtischen und des lokalen Immissionsbeitrages sind, wie erwähnt, Modellierungen mit Chemie-Transport-Modellen erforderlich, um die Kinetik der chemischen Reaktionen angemessen zu berücksichtigen.

Neckartor entspricht demjenigen, das in [LUBW 2016b] verwendet wurde.

Das Vorgehen ist in Tabelle 2-7 verdeutlicht. Beispielsweise wurde der für das Jahr 2015 ermittelte Immissionsbeitrag des großräumigen Hintergrundes zu den Immissionen an Sulfat (und zugeordnetem Wasser) in Höhe von 1,81 µg/m³ den SO₂-Emissionen in Baden-Württemberg zugeordnet. Von diesen Emissionen sind 94 % auf die Quellengruppe „Industrie und Gewerbe“ zurückzuführen. Daraus kann vereinfachend abgeschätzt werden, dass diese Quellengruppe auch für 94 % des Immissionsbeitrages, d. h. 1,70 µg/m³, verantwortlich ist¹⁶. Die auf diese Weise ermittelten Beiträge der einzelnen Quellengruppen finden sich in Tabelle 2-8.

Eine Zusammenfassung der Ergebnisse aus Tabelle 2-8 ist in Abbildung 2-8 (links) gezeigt. Man erkennt, dass sowohl die großräumigen als auch die städtischen und lokalen Beiträge jeweils auf mehrere Quellengruppen zurückzuführen sind und keine Quellengruppe dominiert. Biogene Quellen sind, wenig überraschend, nahezu ausschließlich im ländlichen Hintergrund relevant. Für den lokalen Immissionsbeitrag sind nahezu ausschließlich die Quellengruppen „Verkehr“ und „kleine und mittlere Feuerungsanlagen“ verantwortlich.

Werden die Beiträge der einzelnen Quellengruppen ohne Berücksichtigung ihrer geographischen Herkunft addiert (Abbildung 2-8 rechts), zeigt sich, dass der größte Beitrag zu den Immissionen sekundärer Partikelbestandteile von der Quellengruppe „Verkehr“ stammt. Diese ist Am Neckartor für 35 % der Immissionen an sekundärem Aerosol verantwortlich, gefolgt von der Quellengruppe „Industrie und Gewerbe“ mit einem Beitrag von fast 30 %. Die nächstwichtigste Quellengruppe sind biogene Systeme und die kleinen und mittleren Feuerungsanlagen.

¹⁶ Auch dies ist eine Vereinfachung, die die geographische Verteilung der Quellen innerhalb Baden-Württembergs nicht berücksichtigt.

Tabelle 2-7: Zuordnung der ermittelten Immissionsbeiträge Am Neckartor (linke Spalten) zu den Emissionen laut Emissionskataster 2014

	Immissionsbeitrag in $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Zuordnung zu Emissionen von		Emissionen in t/a					Relativer Emissionsanteil				
	2015	2016	Substanz	in (Ort)	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr
Sekundäres organisches Material														
Großr.	0,62	0,71	NMVOC	BW	83.778	3.522	30.149	29.091	16.234	51 %	2 %	19 %	18 %	10 %
Städt.	0,36	0,28	NMVOC	Stuttgart	265	129	1.079	1.594	816	7 %	3 %	28 %	41 %	21 %
Lokal	0,28	0,32	NMVOC	lokal	0	0,8569	0,0022	5,0618	6,101	0 %	7 %	0 %	42 %	51 %
Sulfat (und zugeordnetes Wasser)														
Großr.	1,81	1,72	SO ₂	BW	0	628	13.596	42	178	0 %	4 %	94 %	0 %	1 %
Städt.	0,56	0,56	SO ₂	Stuttgart	0	21	172	0	4	0 %	11 %	87 %	0 %	2 %
Lokal	0,77	1,19	SO ₂	lokal	0	0,1139	0	0,0003	0,0255	0 %	82 %	0 %	0 %	18 %
Nitrat (und zugeordnetes Wasser)														
Großr.	2,69	2,55	NO _x	BW	10.931	10.964	23.974	15.423	52.494	10 %	10 %	21 %	14 %	46 %
Städt.	1,11	0,88	NO _x	Stuttgart	18	431	410	370	1.504	1 %	16 %	15 %	14 %	55 %
Lokal	1,57	1,62	NO _x	lokal	0	0,387	0	0,117	6,098	0 %	6 %	0 %	2 %	92 %
Ammonium (und zugeordnetes Wasser)														
Großr.	0,92	0,86	NH ₃	BW	54.831	0	371	4	2.205	96 %	0 %	1 %	0 %	4 %
Städt.	0,20	0,18	NH ₃	Stuttgart	205	0	1	0	80	72 %	0 %	0 %	0 %	28 %
Lokal	0,05	0,03	NH ₃	lokal	0,2654	0	0	0,0001	0,6577	29 %	0 %	0 %	0 %	71 %

Summe 10,94 10,89

NMVOC = Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe
 SO₂ = Schwefeldioxid
 NO_x = Stickstoffoxide
 NH₃ = Ammoniak
 BW = Baden-Württemberg

biog. Syst. = biogene Systeme
 KMF = kleine und mittlere Feuerungsanlagen
 luG = Industrie und Gewerbe
 STE = sonstige technische Einrichtungen
 Offr. = Offroad

LU:W

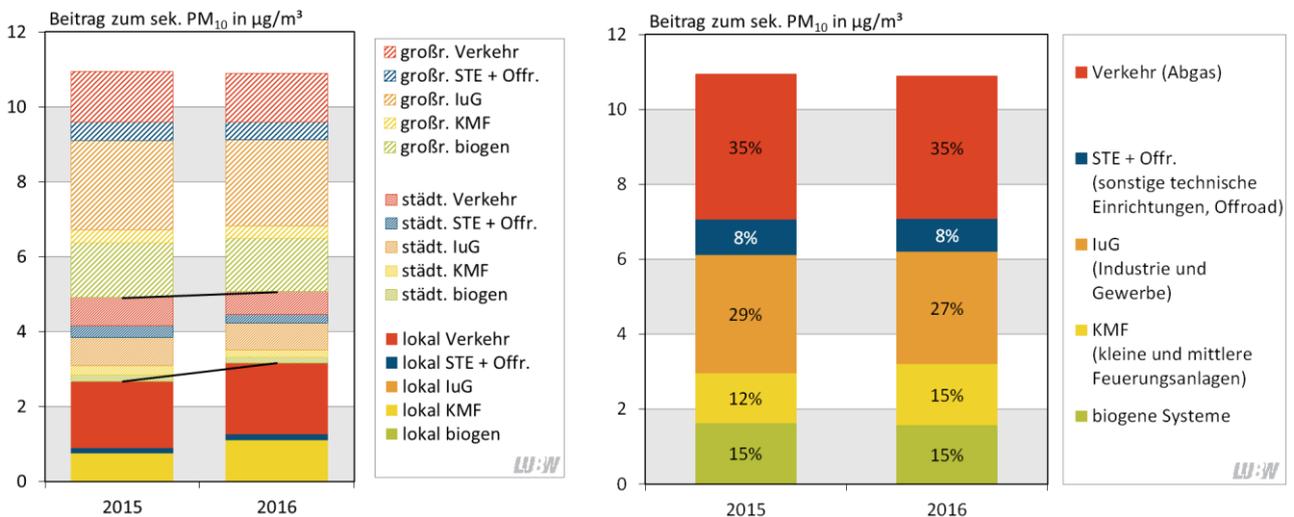


Abbildung 2-8: Zusammenfassung der Ergebnisse aus Tabelle 2-8: Überblick über geographische Herkunft und Quellgruppe (links), Überblick über die Quellgruppen (rechts)

Tabelle 2-8: Ermittelte Beiträge der Quellengruppen zu den Immissionen von sekundärer Partikelmasse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor in den Jahren 2015 und 2016

	Immissionsbeiträge 2015 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$						Immissionsbeiträge 2016 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$					
	gesamt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr	gesamt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr
Sekundäres organisches Material												
Großr.	0,62	0,32	0,01	0,12	0,11	0,06	0,71	0,36	0,02	0,13	0,13	0,07
Städt.	0,36	0,02	0,01	0,10	0,15	0,08	0,28	0,02	0,01	0,08	0,12	0,06
Lokal	0,28	0,00	0,02	0,00	0,12	0,14	0,32	0,00	0,02	0,00	0,14	0,16
Sulfat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	1,81	0,00	0,08	1,70	0,01	0,02	1,72	0,00	0,07	1,61	0,00	0,02
Städt.	0,56	0,00	0,06	0,49	0,00	0,01	0,56	0,00	0,06	0,49	0,00	0,01
Lokal	0,77	0,00	0,62	0,00	0,00	0,14	1,19	0,00	0,97	0,00	0,00	0,22
Nitrat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	2,69	0,26	0,26	0,57	0,36	1,24	2,55	0,24	0,25	0,54	0,35	1,18
Städt.	1,11	0,01	0,18	0,17	0,15	0,61	0,88	0,01	0,14	0,13	0,12	0,48
Lokal	1,57	0,00	0,09	0,00	0,03	1,45	1,62	0,00	0,10	0,00	0,03	1,50
Ammonium (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	0,92	0,88	0,00	0,01	0,00	0,04	0,86	0,82	0,00	0,01	0,00	0,03
Städt.	0,20	0,15	0,00	0,00	0,00	0,06	0,18	0,13	0,00	0,00	0,00	0,05
Lokal	0,05	0,01	0,00	0,00	0,00	0,03	0,03	0,01	0,00	0,00	0,00	0,02
Summe	10,94	1,65	1,33	3,15	0,93	3,88	10,89	1,59	1,63	2,99	0,88	3,80

biog. Syst. = biogene Systeme
 luG = Industrie und Gewerbe
 KMF = kleine und mittlere Feuerungsanlagen
 STE = sonstige technische Einrichtungen
 Offr. = Offroad

2.3.2.4 URSACHENANALYSE PM₁₀ INCL. SEKUNDÄRER PARTIKELBESTANDTEILE

Wird an einem Messpunkt ein Immissionsgrenzwert der 39. BImSchV [39. BImSchV] überschritten, so ist für den betroffenen Schadstoff eine Ursachenanalyse durchzuführen. Am Messpunkt Stuttgart Am

Neckartor wird deshalb jährlich eine Ursachenanalyse für Partikel PM₁₀ durchgeführt, z. B. in [LUBW 2016b] (Abbildung 2-9). Hierbei wurden bisher ausschließlich primäre Emissionen berücksichtigt, da diese für den Großteil der PM₁₀-Immissionen verantwortlich sind.

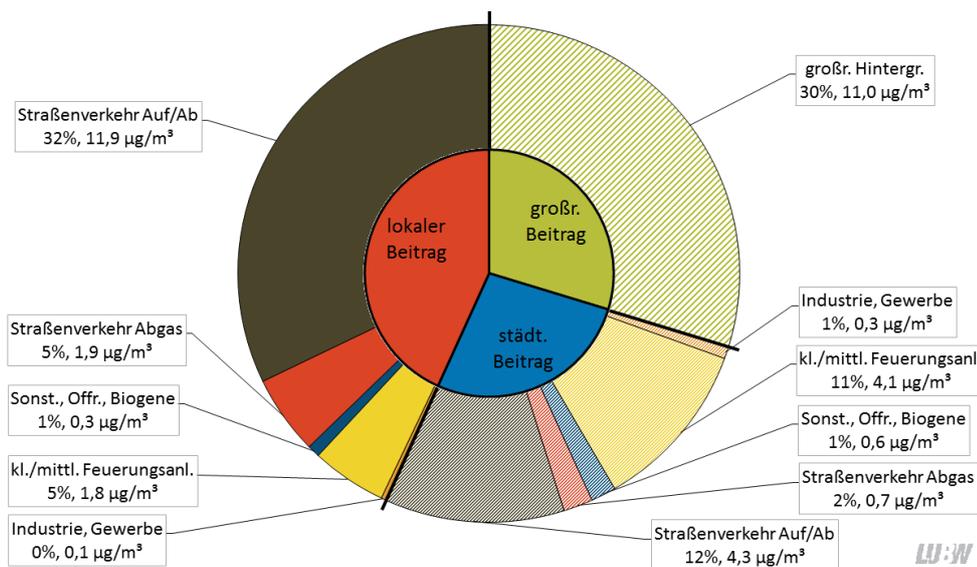


Abbildung 2-9: Ursachenanalyse für Partikel PM₁₀ am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 [LUBW 2016b]

Wenn bei der Ursachenanalyse die in den vorigen Unterkapiteln ermittelten Massenbeiträge von sekundären Partikelbestandteilen (insgesamt $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$, davon $6,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im großräumigen Hintergrund, $2,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im städtischen Hintergrund und $2,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$

lokal, vgl. Abbildung 2-7; Abweichungen sind run- dungsbedingt), berücksichtigt, so reduzieren sich die anteiligen Beiträge der primären Quellen entsprechend (Abbildung 2-10).

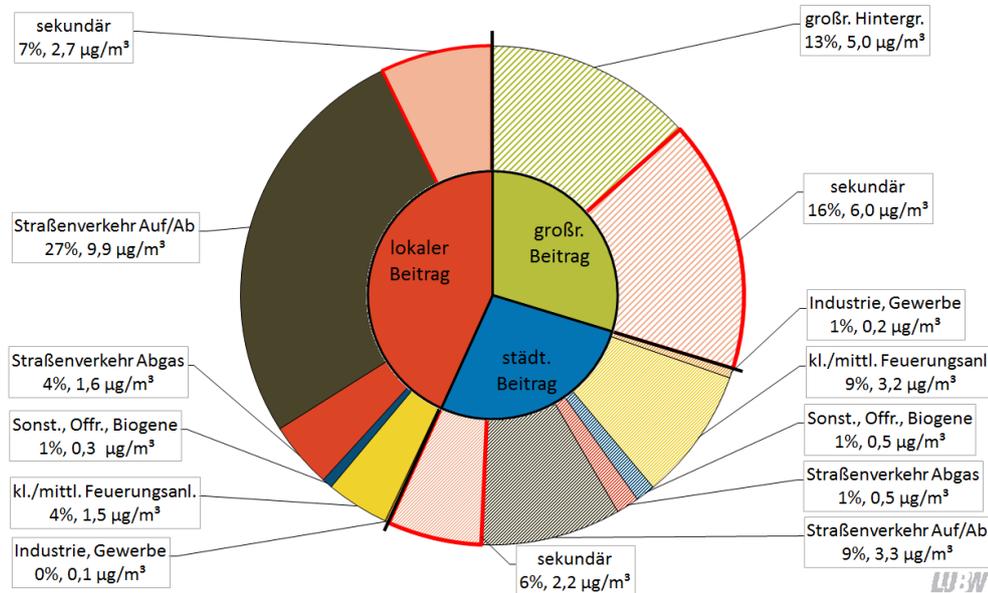


Abbildung 2-10: Ursachenanalyse für Partikel PM_{10} am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 mit Berücksichtigung der Massenbeiträge von sekundären Partikelbestandteilen

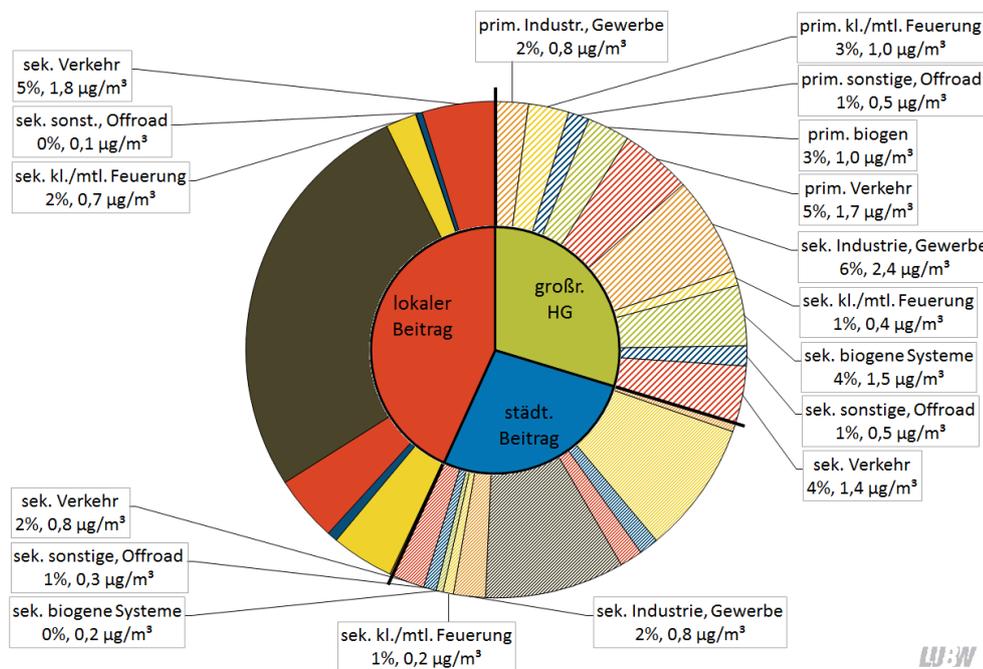


Abbildung 2-11: Ursachenanalyse für Partikel PM_{10} am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 mit Berücksichtigung der Quellen von sekundären Partikelbestandteilen; die Zahlenwerte der primären Quellen haben sich gegenüber der Abbildung 2-10 nicht geändert

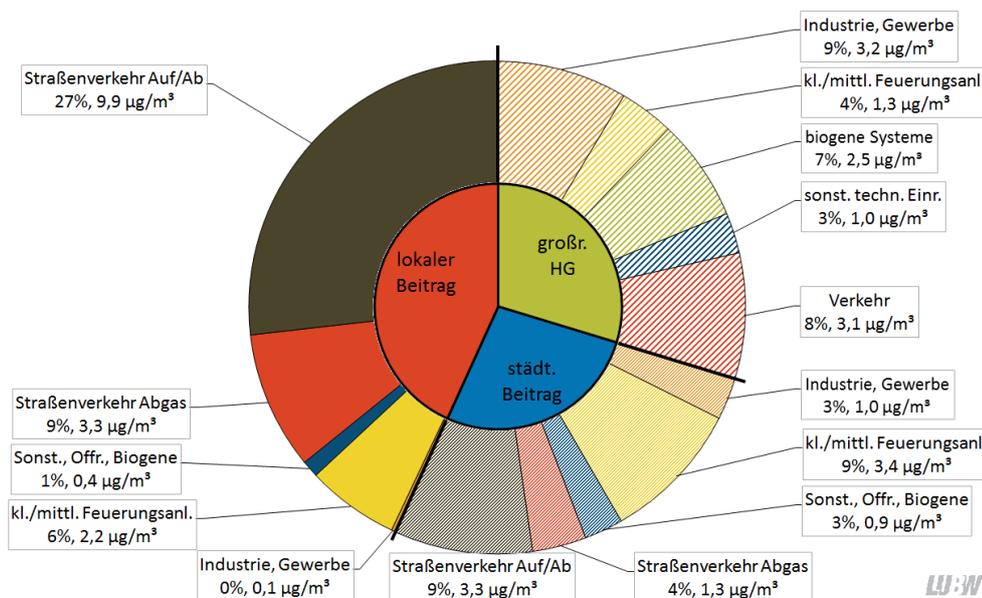


Abbildung 2-12: Zusammengefasste Ursachenanalyse für Partikel PM₁₀ am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 mit Berücksichtigung der Quellen von sekundären Partikelbestandteilen

In Abbildung 2-11 ist eine um die Quellen von sekundären Partikelbestandteilen (vgl. Kap. 2.3.2.3, insbesondere Abbildung 2-8 links) ergänzte Ursachenanalyse dargestellt. Der Vollständigkeit halber wurde auch für den primären Beitrag des großräumigen Hintergrundes eine Quellzuordnung durchgeführt. Hierbei wurden die Immissionen entsprechend der landesweiten PM₁₀-Emissionen einzelnen Quellengruppen des Emissionskatasters zugeschrieben (vgl. dazu Fußnote 14).

In Abbildung 2-12 ist eine zusammengefasste Ursachenanalyse gezeigt, bei der primäre und sekundäre Quellen zusammengefasst wurden. Im Vergleich zur bisherigen Ursachenanalyse (Abbildung 2-9) fällt auf, dass nun auch Quellen im großräumigen Hintergrund identifiziert wurden. Im städtischen Beitrag nimmt die Bedeutung der Quellengruppen „Industrie und Gewerbe“, „sonstige technische Einrichtungen, Offroad, biogene Systeme“ und „Straßenverkehr Abgas“ zu. Dennoch bleiben die Quellengruppen „kleine und mittlere Feuerungsanlagen“ und „Straßenverkehr Aufwirbelung/Abrieb“ die wichtigsten Quellen im städtischen Bereich. Auch lokal nimmt der Beitrag der Quellengruppe „Straßenverkehr Aufwirbelung/Abrieb“ ab, bleibt aber wichtigste lokale Quelle. Der lokale Beitrag der Quellengruppen „kleine und mittlere Feuerungsanlagen“ und

„sonstige technische Einrichtungen, Offroad, biogene Systeme“ nimmt leicht zu.

2.3.3 PM₁₀-ÜBERSCHREITUNGSTAGE

2.3.3.1 PARTIKEL PM₁₀

Als „Überschreitungstag“ werden im Folgenden alle Tage bezeichnet, an denen der Immissionsgrenzwert für den Tagesmittelwert der Partikel PM₁₀-Konzentration in Höhe von 50 µg/m³ an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor überschritten wurde. Im Jahr 2015 waren das 72 Tage, im darauffolgenden Jahr 63. Ein Teil dieser Tage wurde aus den in Tabelle 2-10 genannten Gründen nicht berücksichtigt, so dass 63 bzw. 55 Tage ausgewertet werden konnten. Die überwiegende Mehrheit der Überschreitungstage fiel auf das Winterhalbjahr.

Die Zusammensetzung der Partikel an den berücksichtigten Überschreitungstagen der Jahre 2015 und 2016 ist in Abbildung 2-13 und Tabelle 2-9 gezeigt¹⁷. Der Anteil der sekundären Partikelbestandteile an der PM₁₀-Masse lag Am Neckartor an Überschreitungstagen bei 35 % und damit höher als im Jahresmittel (30 % bzw. 29 %) und in vergleichbarer

¹⁷ Zu beachten ist, dass die PM₁₀-Masse an Überschreitungstagen durch die Massenschließung leicht überschätzt wird, woraus ein formal negativer Rest resultiert. Da die Abweichungen aber gering sind, werden die Daten trotzdem verwendet.

Höhe wie im Winterhalbjahr (34 %, vgl. Anhang 4.3.2). Auch an den Stationen im städtischen und ländlichen Hintergrund wurden an Überschreitungstagen erhöhte Anteile sekundärer Partikelbestandteile festgestellt. Gründe hierfür sind der an den (meist winterlichen) Überschreitungstagen verminderte

Übergang von Ammoniumnitrat in die Gasphase sowie die an Überschreitungstagen großräumig erschwerten Austauschbedingungen. Dennoch werden die Immissionen aber auch an Überschreitungstagen durch primäre Partikelinhaltsstoffe dominiert.

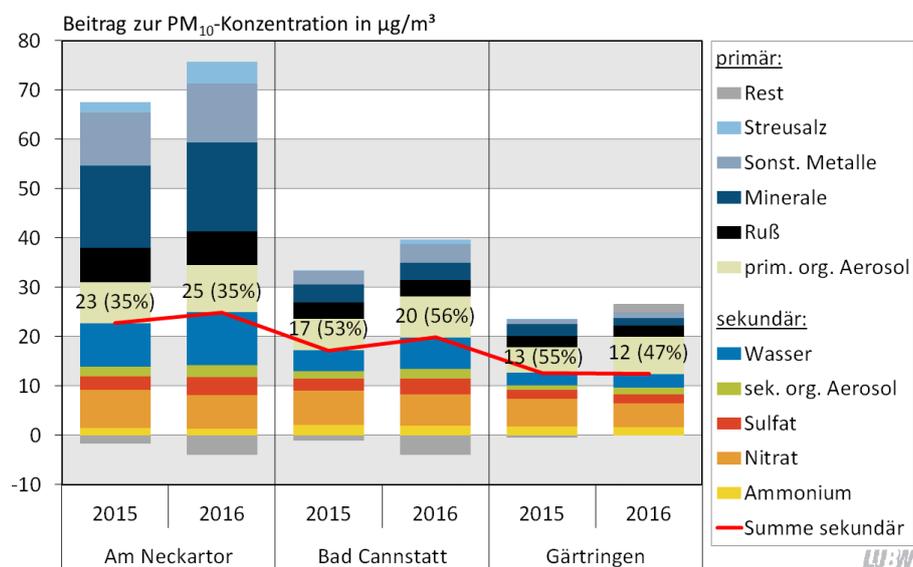


Abbildung 2-13: Zusammensetzung von Partikel PM₁₀ und Anteil sekundärer Partikelbestandteile an Tagen, an denen der Immissionsgrenzwert für den Tagesmittelwert in Höhe von 50 µg/m³ an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor überschritten wurde (PM₁₀-Überschreitungstag)

Tabelle 2-9: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ an Überschreitungstagen

	Zusammensetzung in µg/m³						Zusammensetzung in %					
	Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen		Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen	
	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016
Primäre Bestandteile												
Rest	-1,73	-3,96	-1,13	-3,95	-0,54	1,58	-3 %	-6 %	-4 %	-11 %	-2 %	6 %
Streusalz	2,13	4,39	0,05	0,90	0,03	0,13	3 %	6 %	0 %	3 %	0 %	0 %
Sonst. Metalle	10,69	11,86	2,70	3,83	0,85	1,19	16 %	17 %	8 %	11 %	4 %	4 %
Minerale	16,70	18,07	3,75	3,48	2,38	1,47	25 %	25 %	12 %	10 %	10 %	6 %
Ruß	7,01	6,83	3,27	3,22	2,27	2,28	11 %	10 %	10 %	9 %	10 %	9 %
prim. org. Material	8,24	9,61	6,37	8,33	5,25	7,55	13 %	13 %	20 %	23 %	23 %	28 %
Sek. Bestandteile												
Wasser	8,83	10,79	4,17	6,39	2,45	2,73	13 %	15 %	13 %	18 %	11 %	10 %
sek. org. Material	2,06	2,40	1,59	2,08	0,93	1,33	3 %	3 %	5 %	6 %	4 %	5 %
Sulfat	2,59	3,58	2,36	3,07	1,92	1,92	4 %	5 %	7 %	9 %	8 %	7 %
Nitrat	7,75	6,77	7,04	6,44	5,53	4,85	12 %	9 %	22 %	18 %	24 %	18 %
Ammonium	1,55	1,39	2,09	1,92	1,82	1,60	2 %	2 %	6 %	5 %	8 %	6 %
Summen												
Summe sekundär	22,77	24,94	17,25	19,90	12,64	12,43	35 %	35 %	53 %	56 %	55 %	47 %
Summe gesamt	65,82	71,73	32,25	35,70	22,88	26,63	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %

Tabelle 2-10: Übersicht über berücksichtigte und nicht berücksichtigte Überschreitungstage

2015						2016									
Datum	berück- sichtigt	nicht berück- sichtigt	Grund	Datum	berück- sichtigt	nicht berück- sichtigt	Grund	Datum	berück- sichtigt	nicht berück- sichtigt	Grund				
01.01.	✓	✓	1)	24.03.	✓			01.01.	✓						
15.01.	✓			25.03.	✓			18.01.		✓	3)				
19.01.	✓			08.04.	✓			19.01.	✓						
21.01.	✓			09.04.	✓			20.01.	✓						
22.01.	✓			10.04.	✓			21.01.	✓						
03.02.	✓	✓	2)	16.04.	✓			22.01.	✓						
04.02.	✓	✓	2)	01.07.	✓			25.01.	✓	✓	4)				
06.02.	✓			03.07.	✓			26.01.	✓						
07.02.	✓			13.10.	✓			27.01.	✓						
10.02.	✓			20.10.	✓			05.02.	✓						
11.02.	✓			21.10.	✓			06.02.	✓						
12.02.	✓			26.10.	✓			18.02.	✓						
13.02.	✓			28.10.	✓			22.02.	✓	✓	3)				
14.02.	✓			04.11.	✓			26.02.	✓						
15.02.	✓			05.11.	✓			27.02.	✓						
16.02.	✓			06.11.	✓			29.02.	✓						
17.02.	✓			12.11.	✓			01.03.	✓						
18.02.	✓			24.11.	✓	✓	2)	08.03.	✓						
19.02.	✓			27.11.	✓			09.03.	✓						
20.02.	✓			02.12.	✓			10.03.	✓	✓	1)				
25.02.	✓	✓	2)	03.12.	✓			11.03.	✓						
26.02.	✓			04.12.	✓			15.03.	✓						
06.03.	✓			05.12.	✓			16.03.	✓						
07.03.	✓			07.12.	✓			17.03.	✓						
09.03.	✓			08.12.	✓	✓	1)	18.03.	✓						
10.03.	✓			09.12.	✓			19.03.	✓						
12.03.	✓			10.12.	✓	✓	1)	02.04.		✓	3)				
13.03.	✓			11.12.	✓			03.04.	✓	✓	3)				
14.03.	✓			14.12.	✓	✓	1)	11.04.	✓						
16.03.	✓			15.12.	✓			14.04.	✓						
17.03.	✓			17.12.	✓			22.04.	✓						
18.03.	✓			18.12.	✓			10.05.	✓						
19.03.	✓			19.12.	✓			13.09.	✓						
20.03.	✓			20.12.	✓			14.09.	✓						
21.03.	✓			28.12.	✓	✓	1)	27.10.	✓						
23.03.	✓			29.12.	✓			28.10.	✓						
Anzahl	<i>(siehe Fortsetzung rechts)</i>						72	63	9	<i>(siehe Fortsetzung rechts)</i>			63	55	8

1) es liegen keine Analysen für die ländliche Hintergrundstation vor
 2) keine Überschreitung im Sinne der 39.BImSchV, siehe [LUBW 2016a]
 3) keine Überschreitung im Sinne der 39.BImSchV, siehe [LUBW 2017a]
 4) es liegen keine Analysen für die städtische Hintergrundstation vor

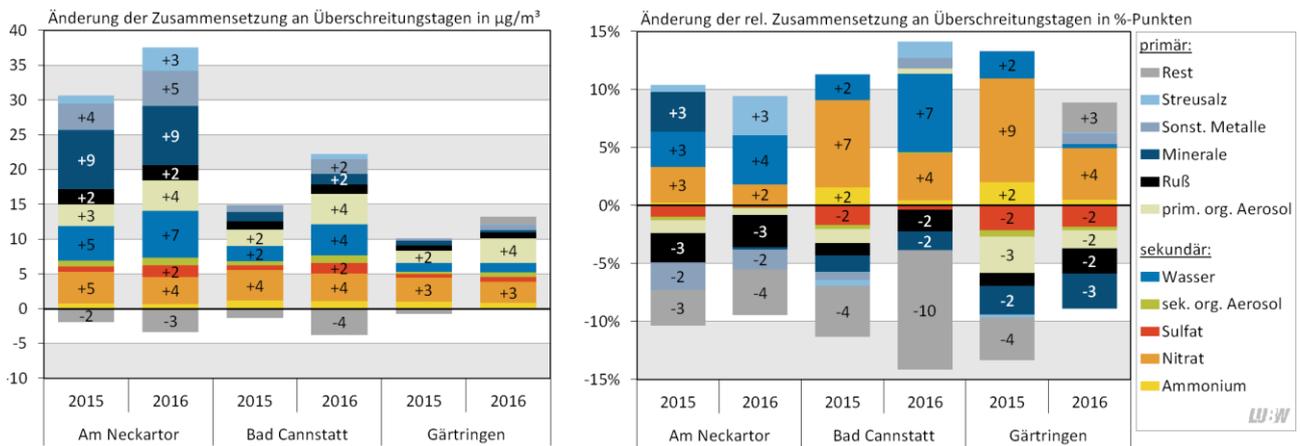


Abbildung 2-14: Änderung der absoluten (links) und relativen (rechts) Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ an Überschreitungstagen im Vergleich zum Jahresmittel; mit Zahlenwert ausgewiesen sind alle Änderungen über 2 µg/m³ bzw. über 2 Prozentpunkten

Um die Zusammensetzung der Partikel an Überschreitungstagen besser mit derjenigen im Jahresmittel vergleichen zu können, wurde sowohl für die absoluten Konzentrationen als auch für die relativen Zusammensetzungen jeweils die Differenz zwischen den Werten an Überschreitungstagen und im Jahresmittel berechnet. Das Ergebnis dieser Differenzbildungen ist in Abbildung 2-14 gezeigt. Man erkennt, dass die absoluten Konzentrationen aller PM₁₀-Inhaltsstoffe an Überschreitungstagen deutlich höher sind als im Jahresmittel (Abbildung 2-14 links). Dies gilt für alle untersuchten Messstellen. Der in Abbildung 2-14 rechts gezeigte Vergleich verdeutlicht, dass an Überschreitungstagen insbesondere der relative Anteil von Nitrat und Wasser erhöht ist, während die relative Bedeutung von Ruß und dem sekundär gebildeten Sulfat zurückgeht. Die absoluten Konzentrationen dieser beiden Komponenten sind aber an Überschreitungstagen höher als im Jahresmittel, so dass der Bedeutungsverlust tatsächlich nur ein relativer und kein absoluter ist. Dieser Effekt tritt nicht nur Am Neckartor, sondern großflächig, d. h. auch im städtischen und ländlichen Hintergrund, auf.

Um zu untersuchen, ob dieser Effekt ein Charakteristikum der Überschreitungstage ist oder ob er darauf zurückzuführen ist, dass die Mehrzahl der Überschreitungstage im Winterhalbjahr auftritt, ist in Abbildung 2-15 ein Vergleich zwischen Überschreitungstagen und dem Winterhalbjahr gezeigt. Man erkennt, dass die Konzentrationen aller Komponenten an den Überschreitungstagen nochmals deutlich

höher sind als im Winterhalbjahr. Relativ gesehen nehmen Am Neckartor insbesondere die Beiträge von Mineralstaub und Wasser zu¹⁸. Eine detailliertere Darstellung der Verhältnisse im Winterhalbjahr findet sich im Anhang 4.3.2 (Seite 87).

Die Herkunftsanalyse nach [Lenschow et al. 2001] ist in Abbildung 2-16 gezeigt. Ähnlich wie im Jahresmittel stammt auch an Überschreitungstagen ein Großteil der Partikelmasse Am Neckartor aus lokalen Quellen.

¹⁸ Im Jahr 2016 zeigten sich darüber hinaus auch erhöhte absolute und relative Beiträge von Streusalz, weshalb an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen sei, dass Überschreitungstage, die auf den Einsatz von Streusalz zurückzuführen sind, von der vorliegenden Auswertung ausgenommen wurden. An den verbleibenden Überschreitungstagen war Streusalz im Mittel zwar in relevanten Mengen vorhanden, aber nicht ursächlich für die Grenzwertüberschreitung.

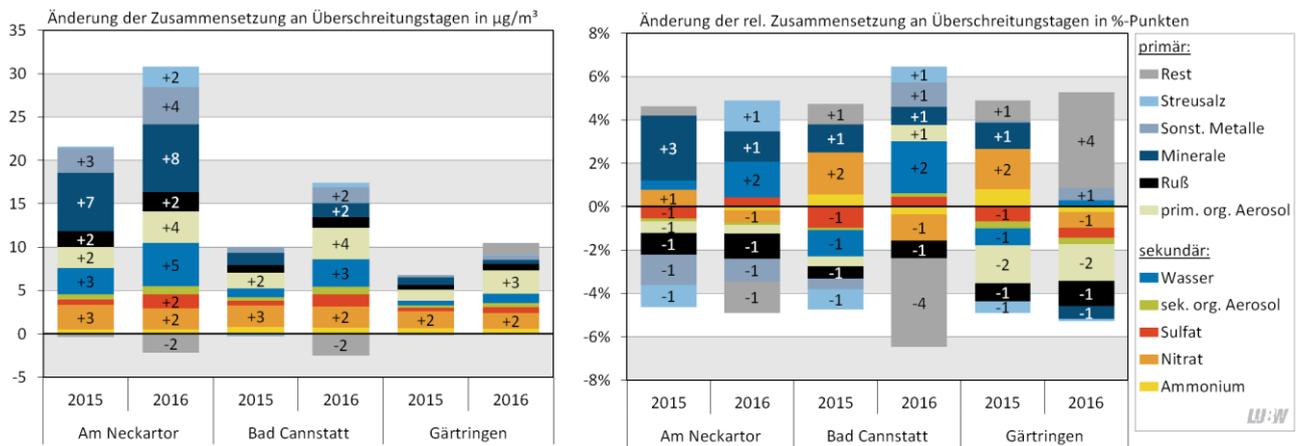


Abbildung 2-15: Änderung der absoluten (links) und relativen (rechts) Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ an Überschreitungstagen im Vergleich zum Winterhalbjahr; mit Zahlenwert ausgewiesen sind alle Änderungen über 2 µg/m³ bzw. über 0 Prozentpunkten

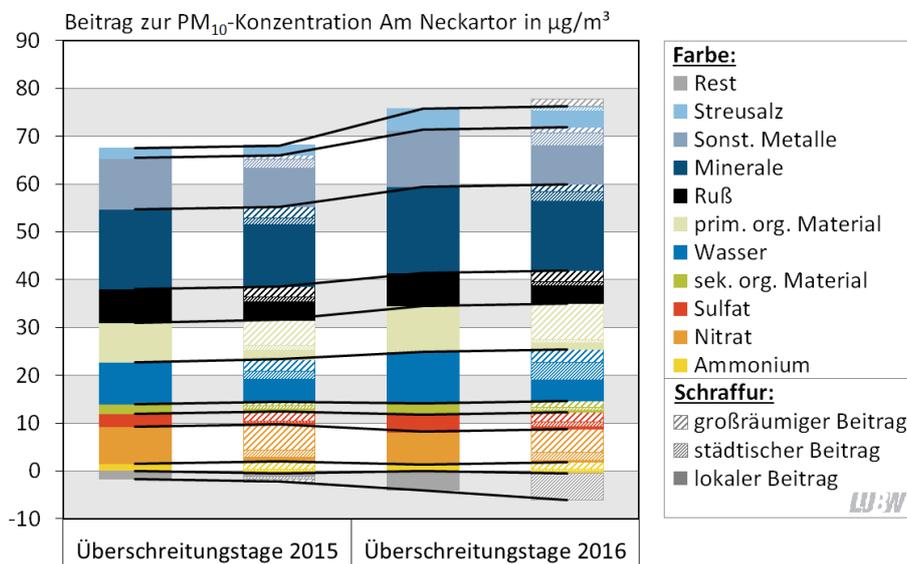


Abbildung 2-16: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der einzelnen Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor an PM₁₀-Überschreitungstagen; die Linien dienen der Orientierung

2.3.3.2 SEKUNDÄRE PARTIKELBESTANDTEILE

Bei der geographischen Herkunft der sekundären Partikelbestandteile (Abbildung 2-17 und Tabelle 2-11) fällt auf, dass Nitrat an Überschreitungstagen zu über 70 % aus dem ländlichen Hintergrund stammt, während dieser Anteil im Jahresmittel bei nur 64 % lag (im Sommerhalbjahr: 42 %, vgl. Anhang 4.3.1). Das deutet darauf hin, dass der Übergang von Nitraten in die Gasphase an den (meist winterlichen) Überschreitungstagen im Vergleich zum Jahresmittel erschwert ist, so dass sich diese Substanzen bei erschwerten Austauschbedingungen

großräumig in der Atmosphäre anreichern. Ansonsten sind die Unterschiede zwischen Überschreitungstagen und dem Jahresmittel gering, woraus geschlossen werden kann, dass die Überschreitungstage nicht auf eine einzige Substanz bzw. eine einzige Quelle zurückzuführen sind.

Abbildung 2-18 zeigt, dass die sekundären Partikelbestandteile an den Überschreitungstagen überwiegend aus dem großräumigen Hintergrund stammen. Die Unterschiede zum Jahresmittel sind aber, wie bereits beschrieben, marginal.

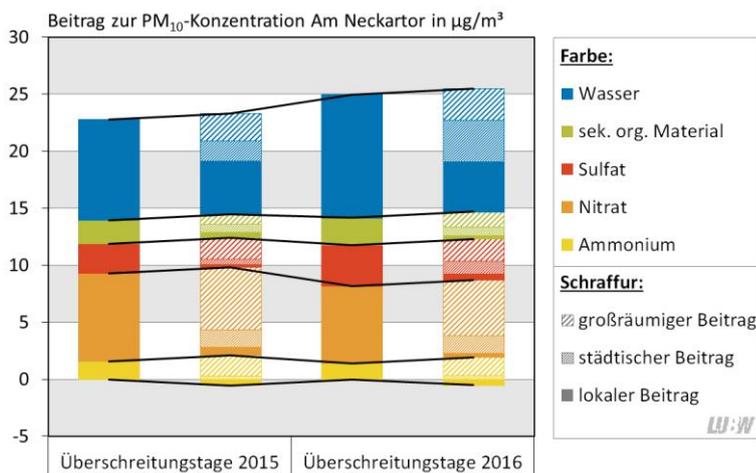


Abbildung 2-17: Zusammensetzung von sekundärem PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der sekundären Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor an PM₁₀-Überschreitungstagen; die Linien dienen der Orientierung

Tabelle 2-11: Geographische Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor an PM₁₀-Überschreitungstagen

	2015				2016			
	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %
Wasser								
Gesamt	8,83	39 %			10,79	43 %		
Ländl.			2,45	28 %			2,73	25 %
Städt.			1,73	20 %			3,66	34 %
Lokal			4,65	53 %			4,40	41 %
Sek. OM								
Gesamt	2,06	9 %			2,40	10 %		
Ländl.			0,93	45 %			1,33	55 %
Städt.			0,67	32 %			0,75	31 %
Lokal			0,47	23 %			0,32	13 %
Sulfat								
Gesamt	2,59	11 %			3,58	14 %		
Ländl.			1,92	74 %			1,92	54 %
Städt.			0,44	17 %			1,15	32 %
Lokal			0,24	9 %			0,51	14 %
Nitrat								
Gesamt	7,75	34 %			6,77	27 %		
Ländl.			5,53	71 %			4,85	72 %
Städt.			1,51	19 %			1,58	23 %
Lokal			0,71	9 %			0,34	5 %
Ammonium								
Gesamt	1,55	7 %			1,39	6 %		
Ländl.			1,82	-			1,60	-
Städt.			0,27	-			0,32	-
Lokal			-0,54	-			-0,53	-
Summe	22,77	100 %	22,77		24,94	100 %	24,94	

LU:W

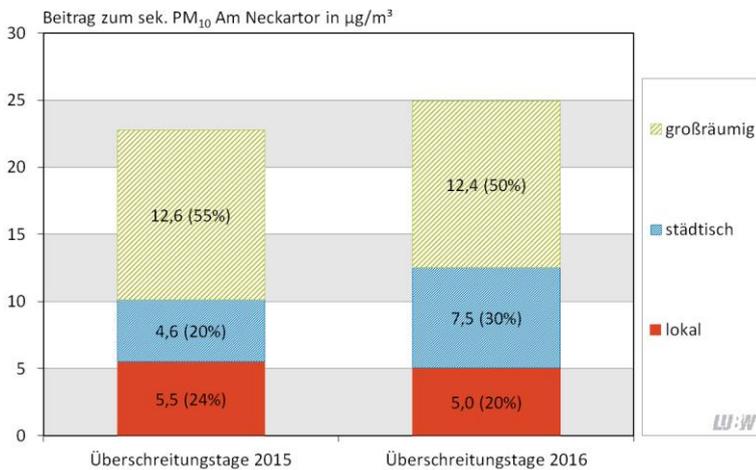


Abbildung 2-18: Zusammenfassung der geographischen Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor an PM₁₀-Überschreitungstagen; Abweichungen sind rundungsbedingt

2.3.3.3 URSACHENANALYSE SEKUNDÄRER PARTIKEL-BESTANDTEILE

Analog dem Vorgehen bei den Partikel PM₁₀-Jahresmittelwerten wurde auch für die Überschreitungstage eine Quellzuordnung auf Basis des Emissionskatalogers vorgenommen. Hierbei wurde implizit davon ausgegangen, dass die Emissionen keinerlei saisonalen Schwankungen unterliegen, was eine weitere grobe Vereinfachung darstellt. Für Wasser wurden die in Tabelle 2-12 dargestellte Verteilung angenommen. Sie wurden, wie in Kap. 2.3.2.3 (Seite 23) dargestellt, mithilfe des Modells E-AIM III abgeschätzt.

Bei den Ergebnissen der Ursachenanalyse in Abbildung 2-19 und Tabelle 2-13 zeigt sich, dass die Ver-

Tabelle 2-12: Abgeschätzte Anteile unterschiedlicher Verursacher am Wassergehalt von Partikeln PM₁₀ Am Neckartor an Überschreitungstagen

	Beitrag von Ammonium	Beitrag von Nitrat	Beitrag von Sulfat
2015	10 %	66 %	24 %
2016	9 %	58 %	33 %

LUBW

teilung der Quellen an Überschreitungstagen nahezu identisch zur Verteilung im Jahresmittel ist. An Überschreitungstagen finden somit keine grundsätzlich anderen Prozesse statt als an üblichen (Winter-)Tagen, die meteorologischen Bedingungen führen aber zu einer schwächeren Verdünnung der Partikel.

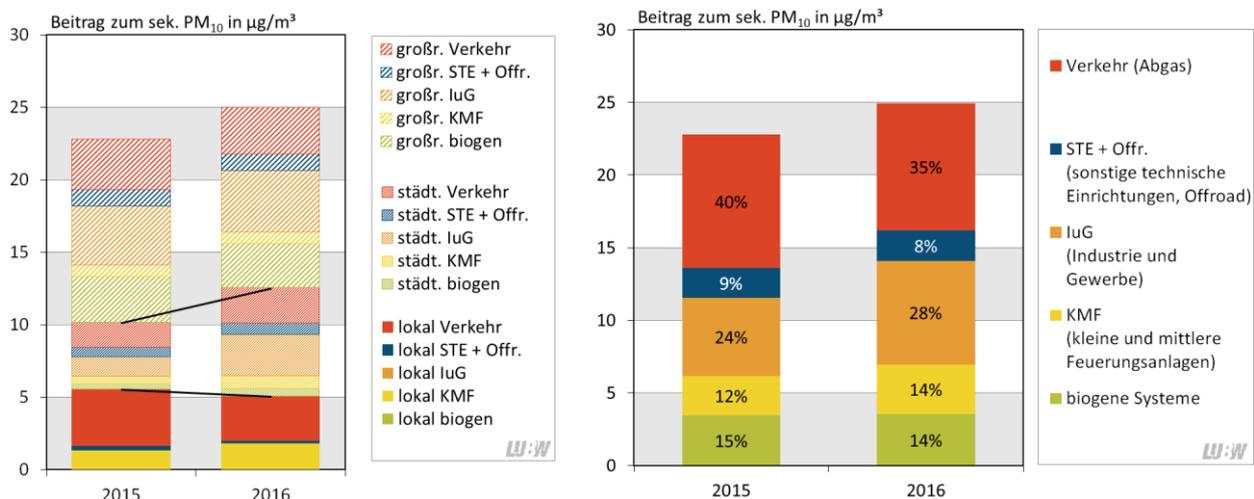


Abbildung 2-19: Zusammenfassung der Ergebnisse aus Tabelle 2-13: Überblick über geographische Herkunft und Quellgruppe (links), Überblick über die Quellgruppen (rechts)

Tabelle 2-13: Ermittelte Beiträge der Quellengruppen zu den Immissionen von sekundärer Partikelmasse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor an PM₁₀-Überschreitungstagen

	Immissionsbeiträge 2015 in µg/m ³						Immissionsbeiträge 2016 in µg/m ³					
	ge-samt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Ver-kehr	ge-samt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Ver-kehr
Sekundäres organisches Material												
Großr.	0,93	0,48	0,02	0,17	0,17	0,09	1,33	0,69	0,03	0,25	0,24	0,13
Städt.	0,67	0,05	0,02	0,19	0,27	0,14	0,75	0,05	0,02	0,21	0,31	0,16
Lokal	0,47	0,00	0,03	0,00	0,20	0,24	0,32	0,00	0,02	0,00	0,14	0,16
Sulfat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	2,51	0,00	0,11	2,36	0,01	0,03	2,83	0,00	0,12	2,66	0,01	0,03
Städt.	0,85	0,00	0,09	0,74	0,00	0,02	2,37	0,00	0,25	2,07	0,00	0,05
Lokal	1,35	0,00	1,10	0,00	0,00	0,25	1,98	0,00	1,61	0,00	0,00	0,36
Nitrat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	7,14	0,69	0,69	1,50	0,97	3,29	6,43	0,62	0,62	1,35	0,87	2,96
Städt.	2,65	0,02	0,42	0,40	0,36	1,46	3,70	0,02	0,58	0,55	0,50	2,03
Lokal	3,78	0,00	0,22	0,00	0,07	3,49	2,88	0,00	0,17	0,00	0,05	2,66
Ammonium (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	2,06	1,97	0,00	0,01	0,00	0,08	1,84	1,76	0,00	0,01	0,00	0,07
Städt.	0,44	0,32	0,00	0,00	0,00	0,12	0,65	0,47	0,00	0,00	0,00	0,18
Lokal	-0,08	-0,02	0,00	0,00	0,00	-0,05	-0,13	-0,04	0,00	0,00	0,00	-0,09
Summe	22,77	3,49	2,71	5,38	2,04	9,16	24,94	3,57	3,43	7,11	2,12	8,71
biog. Syst. = biogene Systeme luG = Industrie und Gewerbe KMF = kleine und mittlere Feuerungsanlagen STE = sonstige technische Einrichtungen Offr. = Offroad												

LU:W

2.4 Maßnahmen

In Abbildung 2-20 bis Abbildung 2-25 sind die Anteile der einzelnen Quellengruppen an den Freisetzungsgewichten ausgewählter Luftschadstoffe in Baden-Württemberg im Bezugsjahr 2014 gezeigt [LUBW 2017b]. Die direkten Emissionen von Stäuben, insbesondere PM₁₀ (Abbildung 2-20) und PM_{2,5} (Abbildung 2-21), werden in Baden-Württemberg von vielen Quellen, vor allem anthropogen durch den Straßenverkehr und durch Kleine und Mittlere Feuerungsanlagen verursacht. Für die Feinstäube sind die Emissionen aus dem Einsatz von Festbrennstoffen im Bereich der Kleinen und Mittleren Feuerungsanlagen verantwortlich. Die Emissionen bei den Stickstoffoxiden (NO_x) sind in Baden-Württemberg durch den Straßenverkehr geprägt, daneben spielen auch die Industriebranchen Wärmeerzeugung/Energie sowie Bau/Steine/Erden eine wichtige Rolle (Abbildung 2-22).

Ammoniak (NH₃) wird in Baden-Württemberg hauptsächlich durch die Landwirtschaft und hier insbesondere durch die Tierhaltung und den Wirtschaftsdüngeraustrag (Gülle, Festmist) freigesetzt (Abbildung 2-23). Bei den flüchtigen organischen

Verbindungen ohne Methan (NMVOC) sind im Sommer die natürlichen Emissionen von Terpenen und Isopren aus Wäldern bedeutsam. Daneben sind ganzjährig die Anteile aus dem Straßenverkehr, den Geräten, Maschinen und Fahrzeugen (Sonstige Technische Einrichtungen) sowie dem Einsatz von Produkten mit organischen Lösemitteln in den Haushalten und im Gewerbe maßgeblich an der NMVOC-Freisetzung beteiligt (Abbildung 2-24). Schwefeldioxid (SO₂) wird vornehmlich aus der Anlagengruppe 1 des Anhangs zur 4. BImSchV im Bereich Wärmeerzeugung und Energie aus dem Schwefelgehalt der Brennstoffe freigesetzt. Andere Quellengruppen spielen seit Einführung schwefelarmer- bzw. schwefelfreier Kraftstoffe keine Rolle mehr (Abbildung 2-25).

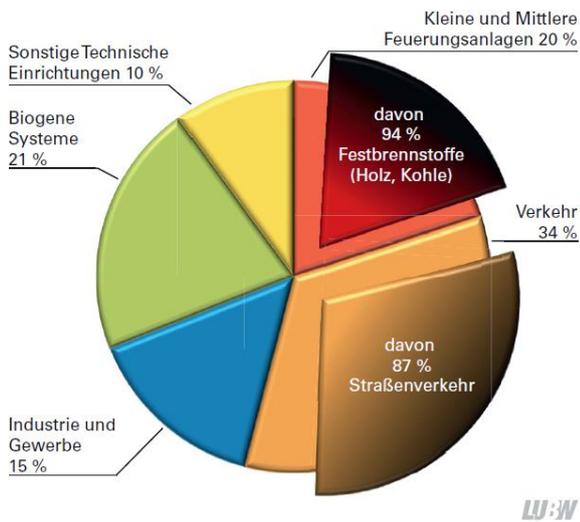


Abbildung 2-20: Verteilung der PM₁₀-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

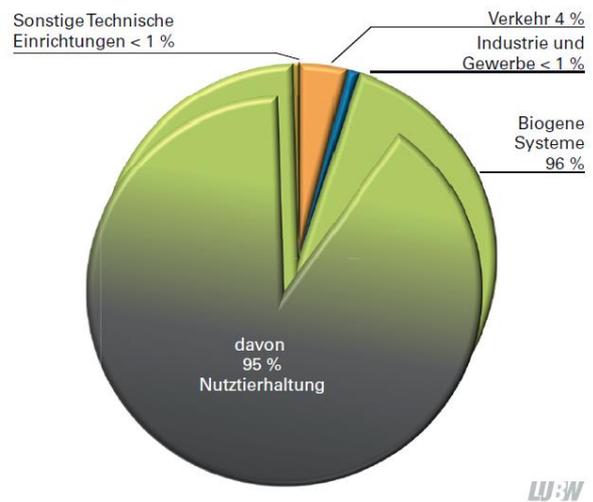


Abbildung 2-23: Verteilung der NH₃-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

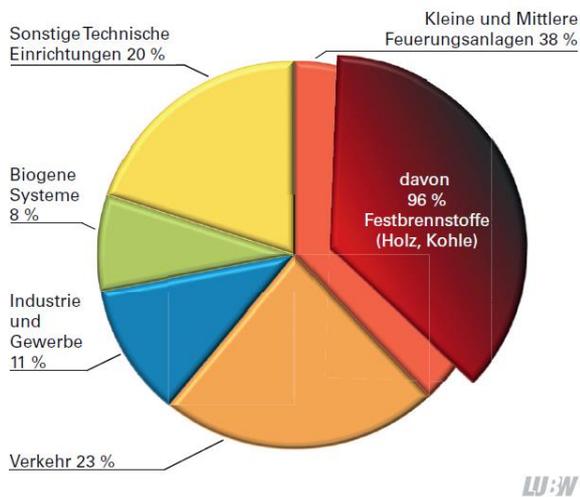


Abbildung 2-21: Verteilung der PM_{2.5}-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

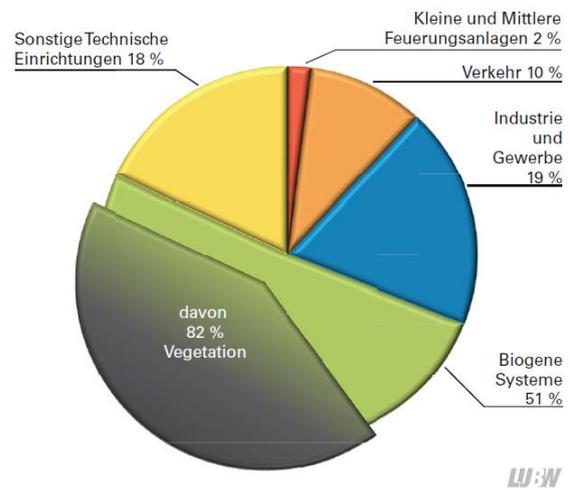


Abbildung 2-24: Verteilung der NMVOC-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

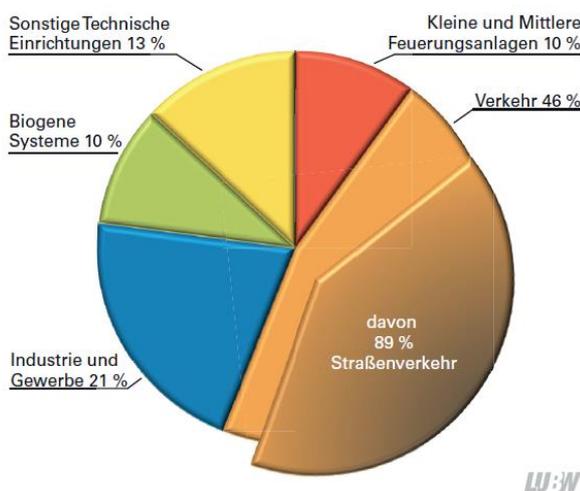


Abbildung 2-22: Verteilung der NO_x-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

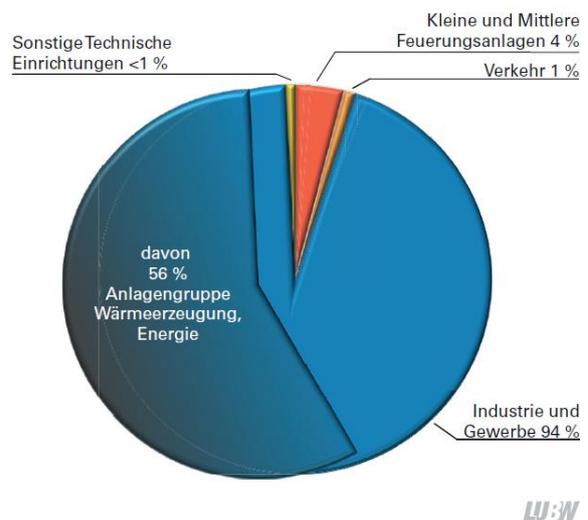


Abbildung 2-25: Verteilung der SO₂-Emissionen auf Quellengruppen in Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b]

Im Vergleich zu den Verhältnissen in Baden-Württemberg zeigen sich bei den Primäremissionen in der Stadt Stuttgart teils deutliche Verschiebungen bei den Anteilen der einzelnen Quellengruppen an den Schadstofffreisetzungen. Abbildung 2-26 zeigt die PM₁₀-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart im Jahr 2014 [LUBW 2017b]. Der Verkehr hat mit einem Anteil von 55 % an den PM₁₀-Emissionen den dominierenden Part, während diese Quellengruppe landesweit auf etwa 34 % kommt (Abbildung 2-20). Industrie und Gewerbe haben mit 6 % in Stuttgart einen deutlich geringeren Anteil als im Land mit 15 %.

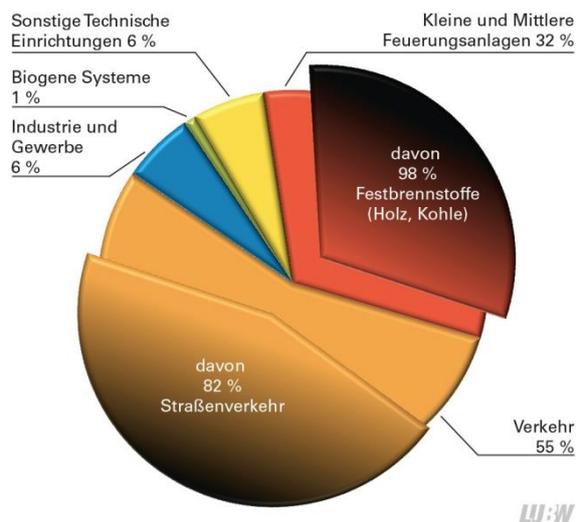


Abbildung 2-26: PM₁₀-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart 2014

Ein ähnliches Bild zeigen die NO_x-Emissionen in Abbildung 2-27. Auch hier ist der Anteil des Verkehrs im Stadtkreis Stuttgart mit 55 % deutlich höher als im Land (Abbildung 2-22), während die Quellengruppe Industrie und Gewerbe in Stuttgart einen deutlich geringeren Anteil am Primärausstoß an NO_x hat.

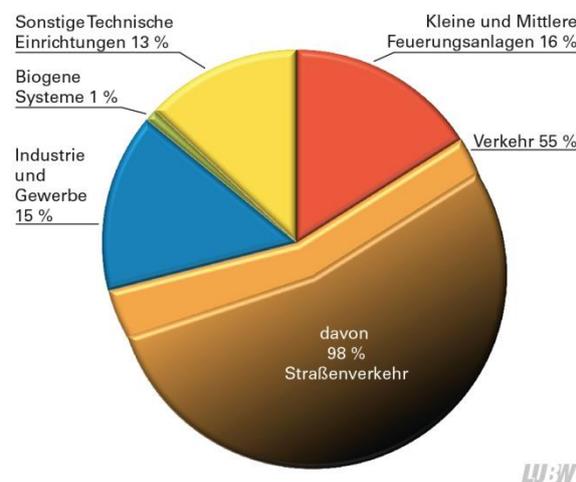


Abbildung 2-27: NO_x-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart 2014

Abbildung 2-28 zeigt die Anteile der relevanten Quellengruppen an den Ammoniak-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart. Die Quellengruppe Verkehr hat in Stuttgart mit etwa 28 % Anteil an den NH₃-Emissionen einen signifikant höheren Anteil als im Land (Abbildung 2-23), eine Folge der geringeren landwirtschaftlichen (Biogenen) Ammoniakfreisetzungen im Stadtkreis. In Abbildung 2-29 sind die Anteile der Quellengruppen in Stuttgart an den Primäremissionen an Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffen NMVOC dargestellt. Erwartungsgemäß sind die Anteile der Biogenen Systeme im Stadtkreis Stuttgart deutlich niedriger als im gesamten Land Baden-Württemberg (7 % gegenüber 52 %). Demgegenüber sind die Anteile der Sonstigen Technischen Einrichtungen im Stadtkreis mit 41 % deutlich erhöht gegenüber den Anteilen dieser Quellengruppe in Baden-Württemberg mit 18 %. Bei den Schwefeldioxid-Emissionen zeigen die Quellengruppen im Stadtkreis Stuttgart und im Land eine ähnliche Verteilung, wobei die

Kleinfeuerungsanlagen in Stuttgart einen höheren Anteil haben als in Baden-Württemberg (11 % in Stuttgart gegenüber 4 % in Baden-Württemberg).

Zum Vergleich sind im Anhang 4.3.3 (Seite 92) die Anteile der einzelnen Quellengruppen an ausgewählten Schadstofffreisetzungen für die Gemeinde Gärtlingen im Jahr 2014 dargestellt [LUBW 2017b].

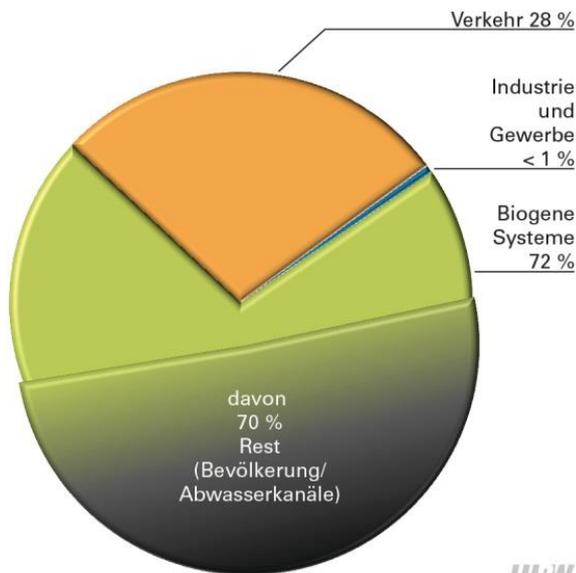


Abbildung 2-28: NH₃-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart 2014

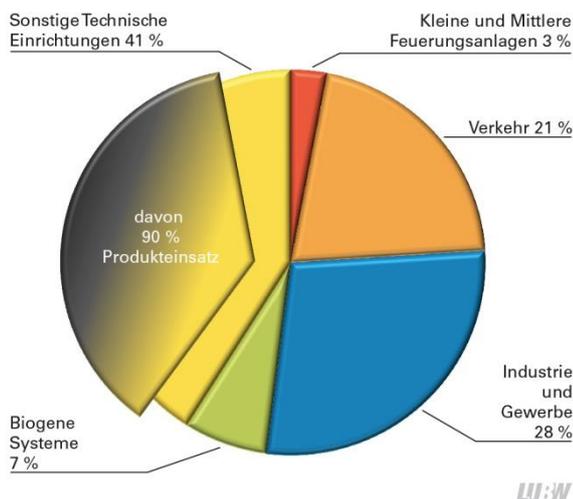


Abbildung 2-29: Emission der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe NMVOC im Stadtkreis Stuttgart 2014

2.4.1 MINDERUNG DES AUSSTOßES DER PRIMÄRPARTIKEL (PM₁₀, PM_{2,5})

Der Ausstoß von Primärpartikeln ist für rund 70 % der Feinstaubimmissionen Am Neckartor verantwortlich (siehe Kapitel 0 ab Seite 17). Er kann insbesondere durch konsequentes Ausschöpfen der Potenziale aus den besten verfügbaren Technologien für die immissionsschutzrechtlich relevanten Industrie- und Gewerbebetriebe, aber auch durch Fortschritte bei der Emissionsreduzierung von Verkehrsträgern gemindert werden. Insbesondere bedeutet dies, die Vorgaben des Gesetzgebers umzusetzen (BImSchG/BImSchV, TA-Luft, EU-Verordnungen (LCPD, IED, Fahrzeug-EURO-Normen u. a.)) und

zu überwachen. So führt z. B. der Einsatz von Rußfiltern bei Dieselmotoren zu einer deutlichen Abnahme der Partikel-Direktemissionen (Abgasemissionen) dieser Fahrzeuge. In den Luftreinhalteplänen sind diese Maßnahmen beschrieben und werden im Rahmen der Umsetzung entsprechend berücksichtigt [LRP BW].

Weitergehende Minderungsmaßnahmen für primäre Staubemissionen, die teilweise noch in der Erprobung sind bzw. deren Wirkung noch untersucht wird, wären z. B.:

- Reinigung (Kehren) des Straßenbelags in kurzen Intervallen zur Minderung der Wiederaufwirbelung des Straßenstaubs
- Nutzung von abriebfesten Materialien (Wolframcarbid- oder generell Keramik-Bremsscheiben) zur Minderung des Feinstaubes aus Abriebvorgängen [VDI 2017]
- Einsatz von abriebarmen Reifen (unter Berücksichtigung von Sicherheits-, Lärm- und Kraftstoffverbrauchsaspekten)
- Einsatz abriebfester Straßenbeläge (unter Berücksichtigung von Lärmaspekten, z. B. „Flüsterasphalt“)
- Aufbringen von Bindemitteln auf die Fahrbahn zur Immobilisierung von Stäuben auf der Oberfläche und damit zur Reduzierung der Wiederaufwirbelung („Feinstaubkleber“ z. B. Calcium-Aluminium-Acetat)
- Einbau von Filtersystemen in bestehende Holzfeuerungsanlagen [LV KFA]
- Einsatz von Filtersystemen bei Baumaschinen [LV Bau]
- Umstieg von Zweitaktmotoren auf moderne Viertaktmotoren oder Elektroantriebe im Bereich Sonstige Technische Einrichtungen (Hobby, Garten, Industriemaschinen, z. B. Gabelstapler)
- In Erprobung befinden sich seit 2017 an Standorten in Stuttgart und Reutlingen sogenannte „Mooswände“ zur Feinstaubminderung.

Als nicht-technische Minderungsmaßnahmen kommen darüber hinaus in Frage:

- Information der Betreiber von Holzfeuerungen (Einzelraumfeuerungsanlagen und Kesselanla-

gen) zur schadstoffarmen Verbrennung über Schornsteinfeger oder durch Broschüren/Flyer [LUBW Holz] oder durch Umsetzung der Landesverordnung Kleinf Feuerungen [LV KFA] (Verbrennungsverbote)

- Informationen zur Minderung der primären Staubemissionen aus Bodenbearbeitung, Ernte, Düngung etc. im landwirtschaftlichen Umfeld (sog. „pfluglose“ Bodenbearbeitung) [ITADA 2017]

Sogenannter Grobstaub (Partikel größer als PM_{10}) kann auch durch physikalisch-mechanische Vorgänge zu Feinstaub zerkleinert werden, z. B. durch Fahrzeugbewegungen oder Frost-Tau-Zyklen. Insgesamt ist dieser Prozesspfad jedoch wenig relevant.

2.4.2 MINDERUNG DER VORLÄUFERSUBSTANZEN, DIE ZUR BILDUNG SEKUNDÄREN FEINSTAUBS FÜHREN

In Abbildung 2-11 (S. 27) sind u. A. die Quellen von sekundären PM_{10} -Bestandteilen für den Messpunkt Stuttgart Am Neckartor für das Bezugsjahr 2015 für den großräumigen Hintergrund, für den städtischen Beitrag und für den lokalen Beitrag dargestellt. Zweckmäßigerweise werden in diesem Kapitel mögliche Maßnahmen, die über die sekundäre Partikelmasse die Belastungen am Messpunkt reduzieren können, in regional wirkende Maßnahmen, in Maßnahmen, die das gesamte Stadtgebiet (bzw. für Stuttgart die Kessellage) umfassen und in Maßnahmen, die ihre Wirkung im Umfeld der Messstelle, also lokal in unmittelbarer Umgebung des Messpunkts wirken, unterschieden. Dabei sind die Abgrenzungen durchgängig. Maßnahmen, die großräumig wirken, haben auch Auswirkungen auf die städtischen Emittenten sowie auf die lokalen Gegebenheiten, soweit die Quellengruppen in diesen räumlichen Bereichen ebenfalls vorhanden bzw. relevant sind. Beispiel wären hier der Verkehr oder die Kleinen und Mittleren Feuerungsanlagen, die auf allen Skalenebenen durch entsprechend großräumig umgesetzte Maßnahmen erreicht werden, während die Landwirtschaft auf der lokalen Skala bzw. in der Stuttgarter Stadtmitte kaum eine Rolle spielt.

Großräumige Verhältnisse

Abbildung 2-30 zeigt die Anteile der einzelnen Quellengruppen an der sekundären Partikelmasse für den großräumigen Hintergrund am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor 2015, wie sie sich aus Tabelle 2-8 (Seite 26) ergeben. Der großräumige Hintergrund hat an den PM_{10} -Belastungen am Messort Stuttgart Am

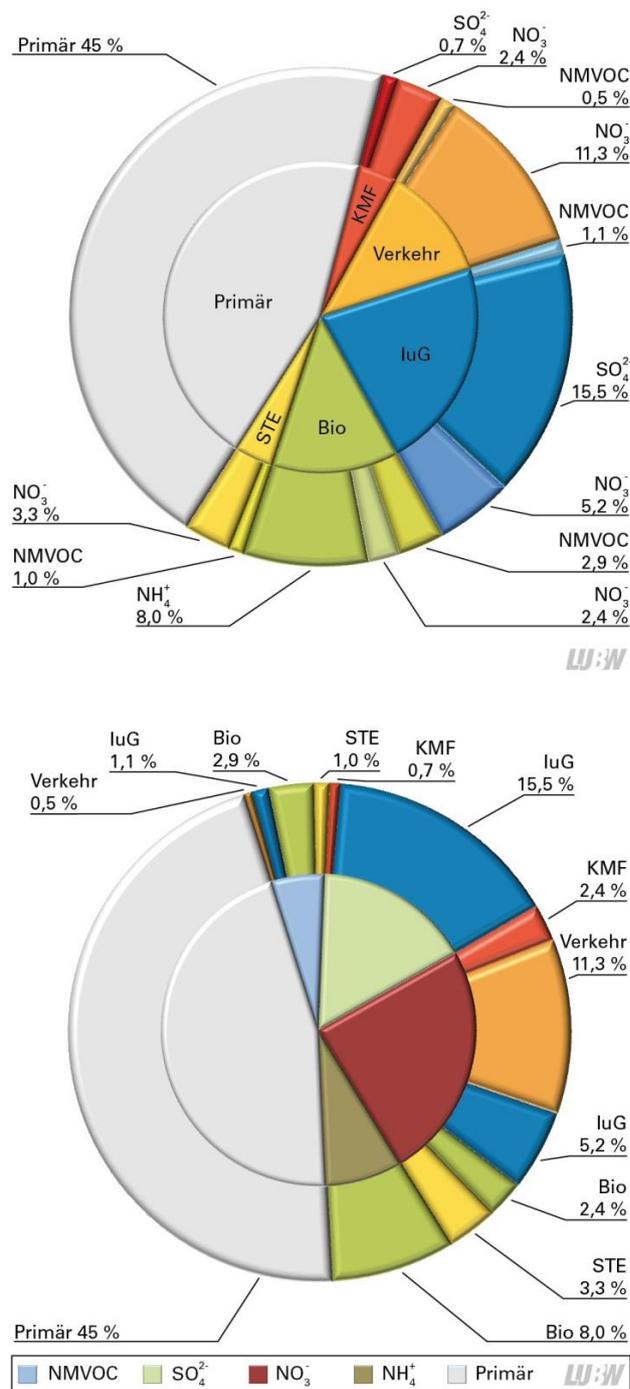


Abbildung 2-30: Zusammensetzung bzw. Herkunft des großräumigen Hintergrundes der PM_{10} -Konzentration an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor 2015; Anteile kleiner 0,5 % sind nicht dargestellt

Neckartor im Jahr 2015 einen Anteil von 30 %. Im oberen Teil der Abbildung sind die Anteile der Quellengruppen dargestellt, aufgeschlüsselt nach den einzelnen Komponenten. Der untere Teil der Abbildung zeigt die Anteile der einzelnen Komponenten und innerhalb dieser dann die Quellengruppe.

Die Quellengruppe Industrie und Gewerbe (IuG) hat mit einem Anteil von etwa 22 % an der sekundären Partikelmasse den größten Anteil an den PM₁₀-Belastungen des großräumigen Hintergrunds, gefolgt von den Biogenen Quellen (Bio) und dem Verkehr. Die PM₁₀-Primäremissionen haben einen Anteil von zusammen 45 % am großräumigen Hintergrund. Innerhalb der Quellengruppe Industrie und Gewerbe sind die Schwefeldioxid-Freisetzungen und die daraus entstehenden Sulfataerosole zu 15,5 % an den großräumigen PM₁₀-Belastungen am Messpunkt verantwortlich. Die sekundäre Partikelmasse aus den Biogenen Quellen hat einen Anteil von 13,3 % an den großräumigen PM₁₀-Belastungen an diesem Messpunkt. Insbesondere die Ammoniakemissionen, aus denen sich dann Ammonium (NH₄⁺) bildet, weisen mit einem Anteil von 8,0 % einen größeren Beitrag an den PM₁₀-Gesamtbelastungen auf. Hauptmittend ist hier die Landwirtschaft und insbesondere die Tierhaltung mit dem dort anfallenden Ammoniak aus Fest- und Flüssigmist sowie die NH₃-Verluste aus der Mineraldüngerausbringung. Die NMVOC-Freisetzungen aus den Biogenen Quellen mit einem Anteil von 2,9 % kommen hauptsächlich aus der Vegetation (natürlich oder aus dem Pflanzenbau) und entziehen sich geeigneten Maßnahmen. Desgleichen sind die Stickstoffoxidemissionen aus Biogenen Quellen, die in Form von NO erfolgen, mit 2,4 % von untergeordneter Bedeutung.

Der Verkehr ist mit einem Anteil von 12,4 % die drittstärkste Quelle für sekundäre Partikelmasse bei den großräumigen PM₁₀-Belastungen und hier sind insbesondere die Stickstoffoxidemissionen mit einem Anteil von 11,3 % zu nennen, die in der Atmosphäre dann zu Nitrat weiterreagieren.

Die Kleinen und Mittleren Feuerungsanlagen (KMF) und die Quellengruppe Sonstige Technische Einrich-

tungen (STE) weisen jeweils nur eine untergeordnete Bedeutung auf.

Städtischer Beitrag

Abbildung 2-31 zeigt die Anteile der einzelnen Quellengruppen an der sekundären Partikelmasse des städtischen Beitrags am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor 2015, wie sie sich aus Tabelle 2-8 (S. 26)

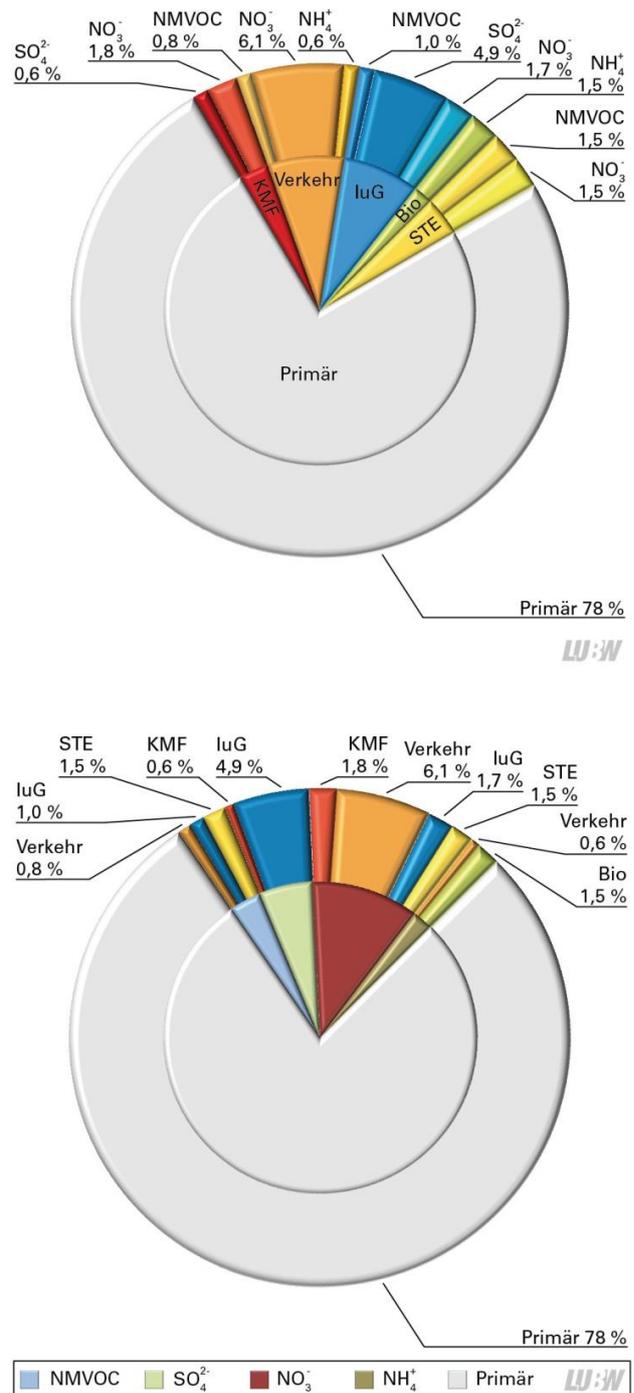


Abbildung 2-31: Zusammensetzung bzw. Herkunft des städtischen Beitrages zur PM₁₀-Konzentration an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor 2015; Anteile kleiner 0,5 % sind nicht dargestellt

ergeben. Der städtische Beitrag hat an den PM₁₀-Belastungen am Messort Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 einen Anteil von 27 %. Im oberen Teil der Abbildung sind wieder die Anteile der Quellengruppen dargestellt, aufgeschlüsselt nach den einzelnen Komponenten. Der untere Teil der Abbildung zeigt die Anteile der einzelnen Komponenten und innerhalb dieser dann die Quellengruppe.

Der Beitrag der sekundären Partikelmasse zu den PM₁₀-Belastungen des städtischen Hintergrunds beträgt etwa 22 %. Die Primäremissionen weisen mit 78 % einen deutlich größeren Beitrag im städtischen im Vergleich zum großräumigen Hintergrund auf. Maßnahmen gegen die Bildung sekundärer Partikelmasse als PM₁₀-Vorläufersubstanzen im städtischen Raum zeigen damit ein geringeres Reduzierungspotenzial. Im städtischen Hintergrund hat die Quellengruppe Industrie und Gewerbe sowie die Quellengruppe Verkehr mit jeweils 7,6 % Anteil den höchsten Wert, gefolgt von Sonstigen Technischen Einrichtungen (3,0 %) und den Kleinen und Mittleren Feuerungen (2,5 %). Ähnlich wie beim großräumigen Hintergrund sind es vor allem die industriellen Schwefeldioxidemissionen und die daraus entstehenden Sulfataerosole als PM₁₀-Vorläufer (4,9 %), die relevant sind, sowie beim Verkehr die Stickstoffoxidemissionen mit einem Anteil von 6,1 %, die in der Atmosphäre dann zu Nitrat (NO₃⁻) weiterreagieren. Die anderen Quellengruppen haben nur einen untergeordneten Anteil an der sekundären Partikelmasse auf dieser räumlichen Skala.

Lokaler Beitrag

Abbildung 2-32 zeigt die Anteile der einzelnen Quellengruppen an der sekundären Partikelmasse für den lokalen Beitrag am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015, wie sie sich aus Tabelle 2-8 ergeben. Der lokale Beitrag hat an den PM₁₀-Belastungen am Messort Stuttgart Am Neckartor im Jahr 2015 einen Anteil von 43 %. Im oberen Teil der Abbildung sind die Anteile der Quellengruppen dargestellt, aufgeschlüsselt nach den einzelnen Komponenten, der untere Teil zeigt die Anteile der einzelnen Komponenten und innerhalb dieser dann die Quellengruppe.

Der Beitrag der sekundären Partikelmasse an den lokalen PM₁₀-Belastungen beträgt nur etwa 17 %. Die lokalen Primäremissionen weisen mit 83 % einen noch größeren Beitrag als beim städtischen Beitrag auf. Auf der lokalen Ebene weist lediglich die Quellengruppe Verkehr mit einem Anteil von 11,0 % einen größeren Anteil an der sekundären Partikel-

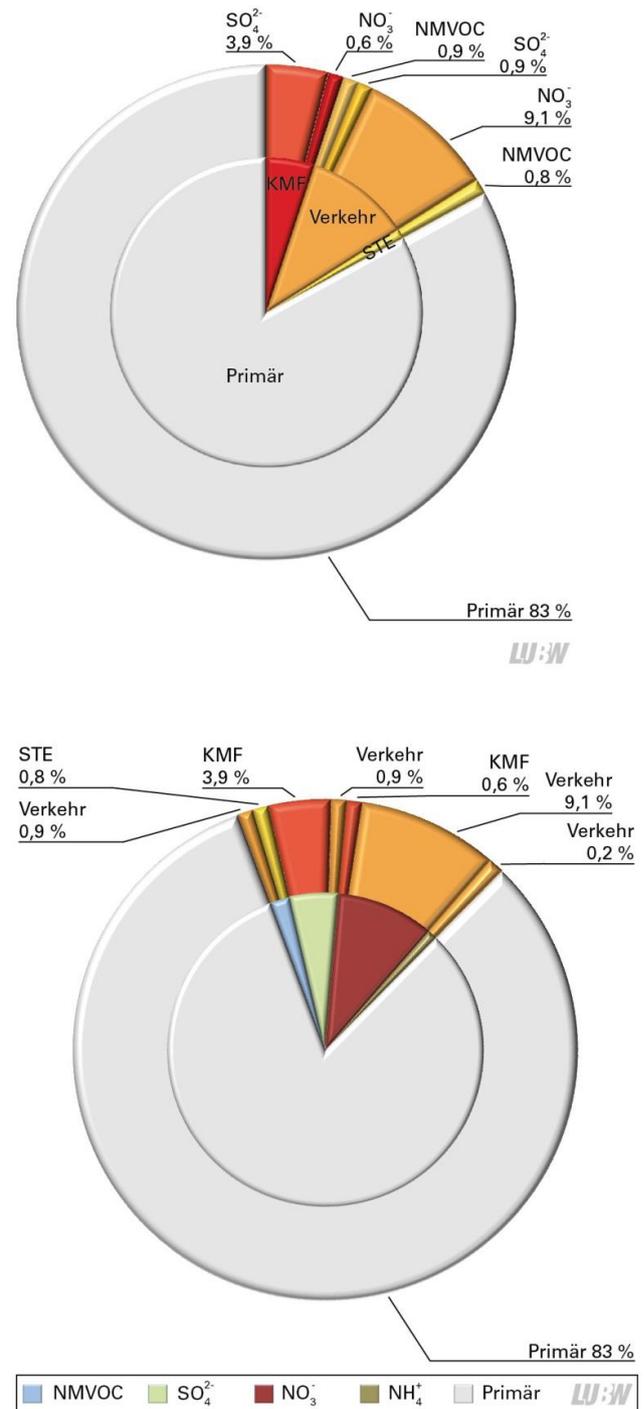


Abbildung 2-32: Zusammensetzung bzw. Herkunft des lokalen Beitrages zur PM₁₀-Konzentration an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor 2015; Anteile kleiner 0,5 % sind nicht dargestellt

masse für PM₁₀ auf. Die Quellengruppe Kleine und Mittlere Feuerungsanlagen (KMF) als zweitwichtigste Quelle hat über die sekundäre Partikelmasse lediglich einen Anteil von 4,6 % an den lokalen PM₁₀-Belastungen. Beim Beitrag des Verkehrs überwiegen mit 9,1 % die Stickstoffoxidemissionen, die sich dann zum Nitrat (NO₃⁻) und damit zu einer PM₁₀-Komponente umwandeln. Bei den Kleinen und Mittleren Feuerungsanlagen sind es vorwiegend die Schwefeldioxidemissionen (3,9 %) und die daraus resultierenden Sulfataerosole.

Maßnahmendiskussion

Zunächst wäre die konsequente Minderung durch Ausschöpfen der Potenziale bei den Primäremissionen eine zielführende Maßnahme. Infrage kommt zusätzlich:

- Minderung der Vorläufersubstanzen bei Einsatzstoffen: Nutzung schwefelarmer Kraft- und Brennstoffe, Einsatz lösemittelarmer (NMVOC) Farben und Lacke (31. BImSchV), Vermeidung der Nutzung von leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen in sonstigen Produkten (Reinigungsmittel, Waschmittel, Duftstoffe z. B. in Kosmetika etc.), Minderung des Einsatzes lösemittelhaltiger Enteisungsmittel und von NMVOC-haltigen Scheibenreinigern. Minderung der Freisetzung von NMVOC bei der Kraftstoffverteilung (Bertankung) und von Methan/NMVOC bei der Gasverteilung.
- Minderung der Ammoniakfreisetzung aus der landwirtschaftlichen Düngung. Aus landwirtschaftlichen Quellen wie z. B. den Tierhaltungsanlagen wird emittiertes Ammoniak überwiegend quellennah im Umkreis weniger Kilometer deponiert. Dabei wird der größte Teil als trockene Deposition (bis zu 44 %) in die umliegenden Ökosysteme eingetragen, ein geringer Teil über die Niederschläge (ca. 6 %). Dadurch ergibt sich ein zeitlich und räumlich stark differierender Ammoniaketrageintrag. Die verbleibende Hälfte des emittierten Ammoniaks reagiert in der Atmosphäre zu Ammonium [LUBW 2008] und wirkt damit als Vorläufer sekundär gebildeter Partikelmasse. Eine Minderung kann z. B. durch angepasste Ausbringung von Wirtschaftsdüngern

(Schleppschläuche) oder auch angemessene Tierzahlen pro Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche erreicht werden.

- Minderung der Vorläufer bei den Sonstigen Technischen Einrichtungen (Umstieg von Zweitaktmotoren auf moderne Viertaktmotoren oder Elektroantriebe z. B. bei Rasenmähern, Motorsägen etc.).
- Minderung der Vorläuferkomponenten durch gezielte und zeitlich begrenzte Verbote der Nutzung von Kleinf Feuerungsanlagen mit Holzbrennstoffen (NMVOC- und CO-Minderung) z. B. Luftqualitätsverordnung Kleinf Feuerungen Stuttgart etc. [LV KFA]
- Minderungsmaßnahmen in Industrie und Gewerbe (BImSchV, TA-Luft) durch Grenzwertsetzung und -überwachung.
- Minderung der NO_x-Emissionen als Vorläufer von Nitrat (Kapitel 3.4, Seite 74).

Die Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen ohne Methan (NMVOC) aus anthropogenen Quellen entstehen durch unvollständig ablaufende Verbrennungsvorgänge, insbesondere in Industrie und Gewerbe, bei den Sonstigen Technischen Einrichtungen und in Kraftfahrzeugen oder auch untergeordnet im Hausbrand (Abbildung 2-24). Aus dem Verkehr stammen neben den Abgasemissionen noch weitere Emissionen durch Verdunstung am Fahrzeug aufgrund der Tankbelüftung und von Undichtigkeiten (Einspritzanlage, Vergaser) sowie der Verteilung des leichtflüchtigen Ottokraftstoffes (Lagerung, Umschlag und Bertankung).

Die biogenen NMVOC-Emissionen umfassen eine Vielzahl von Stoffen: Koniferen (Nadelbäume) emittieren z. B. vor allem Terpene (typischer Nadelwaldgeruch an warmen Sommertagen, ganzjährig), Isopren entsteht vornehmlich bei der Assimilation von Laubbäumen (Sommermonate). Diese biogen emittierten relativ kurzkettigen NMVOC-Komponenten zeigen unter troposphärischen Bedingungen eine überdurchschnittliche Reaktivität und haben daher einen wesentlich größeren Einfluss auf die Ozonbildung als es ihrem Beitrag zu den gesamten NMVOC-Emissionen entspricht. Die Gesamtmenge

der Emissionen ist daher trotzdem bedeutsam im Hinblick auf die Rolle der flüchtigen organischen Verbindungen als Vorläufer sekundärer Luftverunreinigungen.

Der Anteil der NMVOC-Emissionen aus der Verwendung von Lösemitteln oder lösemittelhaltigen Produkten (Lacke, Reinigungs- und Entfettungsmittel, Klebstoffe, Druckfarben etc.) ist ebenfalls ein wichtiger Eintragspfad. Lösemittel finden sich in vielen Produkten, die in Industrie, Gewerbe und Haushalten Verwendung finden, wie in Farben und Lacken, Klebstoffen, Abbeizern, Druckfarben, Reinigungsmitteln usw. Im industriellen Bereich werden Lösemittel in vielen verschiedenen Branchen eingesetzt. Von Bedeutung für die Entstehung von NMVOC-Emissionen sind insbesondere Lackier-, Druck- und Kaschieranlagen sowie industrielle Reinigungsprozesse. Beim Straßenverkehr kommen Kohlenwasserstoffe (NMVOC) durch die Verdampfung von Kraftstoffen aus dem Tank und dem Kraftstoffsystem sowie in geringem Umfang auch aus dem Auspuff vor allem bei Ottomotoren sowie durch den Einsatz von Enteisungsmitteln oder Additiven zum Scheibenwischwasser. Auch aus Tankstellen werden bei den Betankungsvorgängen leichtflüchtige Benzindämpfe an die Atmosphäre abgegeben, obwohl in diesem Bereich durch die Einführung von Rückführungssystemen und Gaspendelungsanlagen für die Kraftstoffdämpfe in den letzten Jahren bereits erhebliche Einsparpotentiale realisiert wurden.

Daneben sind die NMVOC-Emissionen von motorisierten Zweirädern und mobilen Geräten (Rasenmäher, Kettensägen, Tätigkeiten im Heimwerker- und Hobbybereich) der Quellengruppe Sonstige Technische Einrichtungen von Bedeutung. Bei den Kohlenwasserstoffemissionen dieser Quellen handelt es sich um eine Vielzahl von Stoffen und Stoffgruppen, die jeweils im Einzelnen zwar nur relativ geringen Mengen aufweisen, als Summe jedoch einen relevanten Anteil an den NMVOC-Gesamtemissionen innehaben.

2.5 Fazit

Sekundäre Partikel werden in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen gebildet. Die bezüglich der Masse wichtigsten Vorläufersubstanzen sind Wasser, Nitrat (bildet sich aus Stickstoffoxiden, die hauptsächlich auf den Verkehr zurückzuführen sind), Sulfat (bildet sich aus Schwefeldioxid, welches wiederum hauptsächlich aus industriellen Quellen stammt), sekundäres organisches Material (bildet sich aus flüchtigen organischen Substanzen, die sowohl von biogenen als auch von anthropogenen Quellen stammen können) und Ammonium (bildet sich aus Ammoniak, was vor allem aus der Landwirtschaft stammt).

Im Jahresmittel sind sekundäre Prozesse für rund 30 % der PM_{10} -Konzentration am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor verantwortlich. Dieser Anteil ist im Sommerhalbjahr etwas geringer, im Winter und an Überschreitungstagen etwas höher. Alle sekundären Partikelbestandteile stammen zu rund der Hälfte aus dem großräumigen Hintergrund. An Überschreitungstagen finden keine grundsätzlich anderen Prozesse statt, aufgrund der meteorologischen Bedingungen (schlechter Luftaustausch) werden aber erhöhte Konzentrationen aller Partikelbestandteile gefunden.

Bezüglich der Quellen dominieren die Quellengruppen „Verkehr“ und „Industrie und Gewerbe“, die zusammen für rund zwei Drittel der sekundär gebildeten Partikelmasse verantwortlich sind.

Maßnahmen, um die Belastung durch sekundäre Partikelbestandteile zu mindern, setzen bei der Reduzierung des Ausstoßes der Vorläufersubstanzen an. Insbesondere Stickstoffoxide (NO , NO_2) als Nitrat-Vorläufer und Schwefeldioxid (SO_2) als Sulfat-Vorläufer sind wichtige Komponenten, die aus Verkehr und Industrie und Gewerbe freigesetzt werden. Ammoniakemissionen aus der Landwirtschaft sind auch ein Ansatzpunkt zur Minderung der Vorläufersubstanzen. Sie spielen jedoch eine untergeordnete Rolle. Die Quellen liegen in der Regel in größerer Entfernung zu den innerstädtischen Belastungszentren. Auch die Beschränkung des Einsatzes von

leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen in Produkten (Farben, Lacke, Reinigungs- und Duftstoffe etc.) gerade in den Innenstädten wäre eine weitere zielführende Maßnahme zur Minderung der Bildung sekundärer Partikelmasse. Eine konsequente Minderung der Vorläufersubstanzen bei Einsatzstoffen z. B. durch Nutzung von schwefelarmen/-freien Kraft- und Brennstoffen wäre ein wichtiger Ansatzpunkt zur Verminderung der Bildung von sekundärer Partikelmasse. Vorläufersubstanzen entstehen auch durch unvollständige Verbrennung in Zweitaktmoto-

ren oder auch beim Hausbrand. Die rein biogene Freisetzung von Vorläufersubstanzen zum Beispiel von Kohlenwasserstoffen aus Nadel- und Laubbäumen entzieht sich gezielten Minderungsmaßnahmen. Diese relativ kurzkettenigen Verbindungen verfügen über ein verhältnismäßig großes Ozonbildungspotential. Die Reduktion der Freisetzung von Stickstoffoxiden als Vorläufer von Nitraten oder die Minderung der Schwefelfreisetzung als Vorläufer von Sulfaten sind jedoch die wichtigsten Stellschrauben um die Bildung sekundärer Partikelmasse zu reduzieren.

3 Sekundäre Bildung von Stickstoffdioxid

In diesem Kapitel soll untersucht werden, inwieweit atmosphärenchemische Prozesse, insbesondere die Oxidation von Stickstoffmonoxid durch Ozon zu Stickstoffdioxid, für hohe Stickstoffdioxidkonzentrationen an verkehrsnahen Standorten verantwortlich sind.

3.1 Grundlegende Prozesse

Bei den Stickstoffoxiden werden im Wesentlichen die Verbindungen Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) unterschieden¹⁹. Sie werden zusammengefasst als Stickstoffoxide (NO_x) subsummiert. Die Darstellung der NO_x-Konzentrationen erfolgt in der Regel als NO₂, wobei den unterschiedlichen Molmassen von NO und NO₂ Rechnung getragen wird.

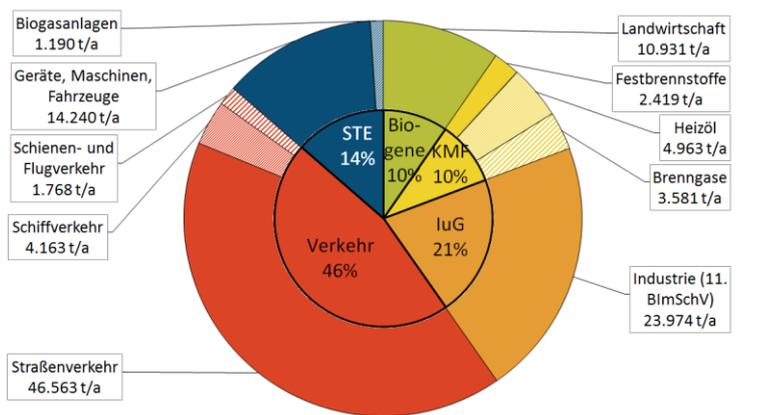
3.1.1 QUELLEN VON NO UND NO₂

Stickstoffoxide (oft auch als „Stickoxide“ abgekürzt) bilden sich bei fast allen Verbrennungsprozessen als unerwünschte Nebenprodukte. Man unterscheidet dabei drei Bildungswege: Die Bildung von Stickstoffoxiden bei der Verbrennung aus Stickstoffverbindungen im Brennstoff (Brennstoff-NO_x), die Bildung aus dem Stickstoff der Verbrennungsluft (thermisches NO_x) und sogenanntes promptes Stickstoffoxid (promptes NO_x), welches sich durch Reaktion von Brennstoffradikalen mit dem in der Verbrennungsluft enthaltenen Stickstoff²⁰ bildet.

¹⁹ Auch Distickstoffmonoxid (N₂O, Lachgas) ist ein Stickstoffoxid. N₂O ist aufgrund seiner langen Verweilzeit in der Atmosphäre und seines Absorptionsspektrums ein klimarelevantes Spurengas mit hohem Treibhausgaspotential. Es wird sowohl durch (natürliche) mikrobiologische Prozesse in Böden als auch aus anthropogenen Quellen (z. B. durch katalytische Reduktion von Stickstoffoxiden) gebildet. Aufgrund seiner chemischen Stabilität ist es jedoch von der Luftchemie der anderen Stickstoffoxide weitgehend entkoppelt und besitzt in Bodennähe nur geringe luftchemische Bedeutung.

²⁰ Luft besteht im Mittel aus rund 78 Vol.-% Stickstoff (N₂) und 21 Vol.-% Sauerstoff (O₂).

- Brennstoff-NO_x entsteht aus dem im flüssigen oder festen Brennstoff (z. B. Heizöl, Kohle etc.) gebundenen Anteil an (i. d. R. organischem) Stickstoff. Die Oxidation von Brennstoffstickstoff erfolgt im Vergleich zur thermischen NO_x-Bildung bereits bei niedrigeren Temperaturen (ab etwa 800 °C), dabei wird nur ein Teil des im Brennstoff gebundenen Stickstoffes oxidiert. Je mehr gebundener Stickstoff im Brennstoff vorhanden ist, umso höher ist die tatsächliche NO_x-Emission. Der Stickstoffgehalt in Heizöl EL bewirkt einen Anteil von 5-25 % an der Gesamt-NO_x-Emission eines Ölbrenners und darf somit nicht vernachlässigt werden. Die Entstehung von Brennstoff-NO_x, z. B. bei Heizölanlagen, kann nur durch die Verwendung von stickstoffarmen Heizölqualitäten reduziert werden. Der Stickstoffgehalt ist noch kein genormter Bestandteil von Heizöl EL und stellt somit eine unbekannte Größe mit erheblichem Einfluss auf die Gesamt-NO_x-Emission von Ölfeuerungsanlagen dar [BDH 2016]. Bei Brennstoffen ohne molekular gebundenen Stickstoff (z. B. Erdgas) entsteht kein Brennstoff-NO_x.
- Thermisches NO_x entsteht aus dem molekularen Stickstoff (N₂) der Verbrennungsluft in der Flamme durch Oxidation bei Temperaturen über > 1.000 °C, wobei als weitere Reaktionspartner die Radikale HO· oder HO₂· anzusehen sind. Höhere Temperaturen in der Flamme erhöhen dabei die Bildung des thermischen NO. So wird in modernen hochverdichteten Dieselmotoren durch die höheren Verbrennungstemperaturen deutlich mehr Stickstoffmonoxid gebildet als in vergleichbaren Benzinmotoren, welche ein geringeres Temperaturniveau im Zylinder aufweisen. Gleiches gilt auch für Erdgasfeuerungen, die höhere spezifische NO-Emissionen aufweisen als z. B. Holzfeuerungen mit niedrigeren Verbrennungstemperaturen.
- Wesentlicher Einflussfaktor für die Bildung von promptem NO_x sind die entstehenden Kohlen-



STE = sonst. techn. Einrichtungen iuG = Industrie und Gewerbe KMF = kl./mittl. Feuerungsanlagen **LUBW**

Abbildung 3-1: Quellen von NO_x in Baden-Württemberg im Jahr 2014 [LUBW 2017b]; Mit „Industrie (11. BImSchV)“ sind Anlagen gemeint, die gemäß der 11. BImSchV eine Emissionserklärung abgeben müssen

wasserstoff-Radikale, die als Zwischenprodukte der Verbrennung kohlenstoffhaltiger fossiler Brennstoffe vorliegen. Deren Bildungsmechanismen sind komplex und bisher noch nicht vollständig verstanden. Statt der Umsetzung zu N₂ führt die Reaktion der Brennstoffradikale (CH_n·) mit N₂ wieder zur Bildung von NO_x („Fenimore-Mechanismus“). Promptes NO_x entsteht in sehr schnellen Bildungsreaktionen in vergleichbar geringen Mengen. Seine Bildung ist im Vergleich zum thermischen NO_x kaum temperaturabhängig, wenngleich der Anteil mit steigender Temperatur zunimmt.

Die mit dem Abgas emittierte Menge an Stickstoffoxiden hängt somit nicht nur von der im Brennstoff vorhandenen Menge an stickstoffhaltigen Komponenten ab, sondern vor allem von den Verbrennungsbedingungen selbst. Letztere entscheiden, wie viel des mit der Luft zugeführten Stickstoffes zusätzlich oxidiert wird. Auch die Zusammensetzung der Stickstoffoxide (d. h. das Verhältnis von NO zu NO₂) kann sich in Abhängigkeit der Verbrennungsbedingungen deutlich unterscheiden. Bei Ottomotoren („Benzinern“) bestehen die NO_x-Emissionen beispielsweise hauptsächlich aus NO, während bei Dieselmotoren oft auch signifikante Mengen NO₂ emittiert werden. Wie im folgenden Kap. 3.1 dargestellt, finden sowohl im warmen als auch im kalten Abgas diverse Reaktionen statt, bei denen sich NO und NO₂ ineinander umwandeln.

Die Abbildung 3-1 zeigt die Anteile der einzelnen Quellengruppen an den Stickstoffoxidemissionen (NO₂ und NO, gerechnet als NO₂) in Baden-Württemberg für das Bezugsjahr 2014. Der Verkehr sowie industrielle und gewerbliche Quellen sind für etwa zwei Drittel der NO_x-Emissionen verantwortlich. Biogene NO_x-Emissionen stammen überwiegend aus überdüngten Böden (durch N-Mineral- und durch Wirtschaftsdünger) aus der Landwirtschaft (Nitrifikation). Diese sind jedoch in der Gesamtschau von eher untergeordneter Bedeutung.

3.1.2 REAKTIONEN VON NO²¹

Stickstoffoxide aus Verbrennungsvorgängen werden überwiegend als Stickstoffmonoxid (NO) emittiert. Dieses besteht aus einem Stickstoff- (N) und einem Sauerstoffatom (O). Zur Bildung chemischer Bindungen trägt das Stickstoffatom grundsätzlich fünf, das Sauerstoffatom grundsätzlich sechs Elektronen bei. Die resultierende Verbindung NO enthält somit insgesamt elf (potentielle) Bindungselektronen, d. h. eine ungerade Anzahl. Somit liegen nicht alle Elektronen in der energiegünstigen (d. h. stabilen) Form eines „Elektronenpaares“ vor, sondern es verbleibt ein einzelnes, ungepaartes Elektron. Verbindungen mit ungepaarten Elektronen werden „Radikale“ genannt und zeichnen sich durch eine hohe Reaktionsbereitschaft aus. Auch NO ist bestrebt, chemische Reaktionen einzugehen, um das ungepaarte Elektron in ein Elektronenpaar zu überführen.

²¹ Quelle: [Seinfeld und Pandis 2016]

Neben NO finden sich in der Erdatmosphäre noch weitere reaktive Substanzen, beispielsweise die nachfolgend aufgeführten oxidierenden Spezies, die sich unter dem Einfluss von Sonnenlicht ($h\nu$) bilden:

- das Hydroxylradikal ($\text{HO}\cdot$),
- das Hydroperoxylradikal ($\text{HO}_2\cdot$),
- diverse Alkylperoxylradikale ($\text{RO}_2\cdot$ mit R = organischer, d. h. kohlenstoffhaltiger, Rest),
- Ozon (O_3).

Diese reaktiven Moleküle können mit dem ebenfalls wenig stabilen NO chemische Reaktionen eingehen, um stabilere Endprodukte zu bilden. Bezogen auf NO sind die wichtigsten dieser Reaktionen²²:

- $\text{NO} + \text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}\cdot$ R1
- $\text{NO} + \text{RO}_2\cdot \rightarrow \text{NO}_2 + \text{RO}\cdot$ R2
(R bezeichnet hier einen beliebigen Molekülrest)
- $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ R3

Bei den Reaktionen R1 bis R3 wird NO zu NO_2 oxidiert. Da für NO_2 verbindliche Immissionsgrenzwerte existieren, sind diese Reaktionen auch aus Sicht der Luftreinhaltung relevant. In den folgenden Abschnitten wird betrachtet, woher die mit NO reagierenden Stoffe stammen.

Bildung von HO_2 und RO_2

Die mit NO reagierenden Peroxylradikale $\text{HO}_2\cdot$ und $\text{RO}_2\cdot$ werden gebildet, da sich in der Atmosphäre immer, vor allem bei Sonnenschein, geringe Spuren an $\text{HO}\cdot$ -Radikalen finden²³. Die $\text{HO}\cdot$ -Radikale reagieren mit flüchtigen organischen Substanzen (engl. *volatile organic compounds*, VOC). Quellen für VOCs sind vor allem pflanzliche und tierische biogene Systeme, dazu gehört auch die Landwirtschaft. Die häufigste dieser Substanzen ist Methan (CH_4):

- $\text{CH}_4 + \text{HO}\cdot \rightarrow \text{H}_3\text{C}\cdot + \text{H}_2\text{O}$ R4

²² Die Oxidation von NO durch Luftsauerstoff oder Sauerstoffatome zu NO_2 ist bei atmosphärischen Konzentrationen vernachlässigbar.

²³ Diese bilden sich unter Lichteinfluss: in ländlichen Gebieten aus Ozon, in städtischen Gebieten aus salpetriger Säure (HONO bzw. HNO_2).

Das entstehende Methylradikal ($\text{H}_3\text{C}\cdot$) reagiert sofort mit dem Luftsauerstoff zu einem Methylperoxylradikal:

- $\text{H}_3\text{C}\cdot + \text{O}_2 \rightarrow \text{H}_3\text{CO}_2\cdot$ R5

Hierbei handelt es sich um einen Spezialfall der Alkylperoxylradikale, die gemäß R2 mit NO zu NO_2 reagieren. Das Vorhandensein eines Methanmoleküls hat damit also zur Bildung eines zusätzlichen NO_2 -Moleküls geführt. Die Reaktionskaskade ist an dieser Stelle aber noch nicht zu Ende, da in R2 neben NO_2 auch das instabile $\text{H}_3\text{CO}\cdot$ (als Spezialfall von $\text{RO}\cdot$) entstanden ist. Dieses reagiert folgendermaßen weiter:

- $\text{H}_3\text{CO}\cdot + \text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{CO} + \text{HO}_2\cdot$ R6
(H_2CO = Formaldehyd)
- $\text{H}_2\text{CO} + h\nu \rightarrow \text{HCO}\cdot + \text{H}\cdot$ R7
($h\nu$ = Sonnenlicht)
- $\text{H}\cdot + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2\cdot$ R8
- $\text{HCO}\cdot + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2\cdot + \text{CO}$ R9
- Gesamt: $\text{H}_3\text{CO}\cdot + 3 \text{O}_2 + h\nu \rightarrow \text{CO} + 3 \text{HO}_2\cdot$ R10

Durch die Reaktionen R6 bis R9 wurden also drei $\text{HO}_2\cdot$ -Radikale gebildet, die gemäß R1 wiederum zur Oxidation von drei NO-Molekülen zu NO_2 führen. Insgesamt hat das Vorhandensein eines Methanmoleküls damit also – über die beschriebenen Zwischenstufen – die Bildung von vier NO_2 -Molekülen nach sich gezogen²⁴.

²⁴ In Reaktion R9 bzw. R10 ist außerdem ein CO-Molekül (Kohlenmonoxid) entstanden. CO kann daneben auch als Nebenprodukt von Verbrennungsprozessen entstehen. Je nach Randbedingungen kann die Oxidation von CO unterschiedliche Folgen haben; in städtischer (NO-reicher, O_3 -armer) Umgebung entsteht über $\text{CO} + 2 \text{O}_2 + h\nu \rightarrow \text{CO}_2 + \text{O}_3$ ein Ozonmolekül, was gemäß R3 ein weiteres NO_2 produziert. In ländlicher (NO-armer und O_3 -reicher) Umgebung wird hingegen ein Ozonmolekül abgebaut: $\text{CO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{CO}_2 + \text{O}_2$. Dieser Abbau von Ozon führt dazu, dass weniger NO zu NO_2 oxidiert wird. Ob durch ein Methanmolekül nun drei, vier oder fünf NO_2 -Moleküle gebildet werden, ist im Rahmen einer qualitativen Bewertung vorerst unwesentlich, wichtig ist, dass es ein Vielfaches der Methan- bzw. VOC-Konzentration ist.

Bildung von Ozon

Ein weiterer wichtiger Reaktionspartner für die Oxidation von NO zu NO₂ ist Ozon. Im Gegensatz zu NO und NO₂ wird Ozon nicht direkt aus natürlichen oder anthropogenen (d. h. menschlichen) Quellen emittiert, sondern bildet sich erst in der Atmosphäre. Ursprung der Reaktion sind NO₂-Moleküle, die unter Sonnenlicht²⁵ aufgespalten werden:



Das dabei freigesetzte Sauerstoffatom (O) stabilisiert sich rasch mit den in der Atmosphäre in großer Menge vorhandenen Sauerstoffmolekülen (O₂). Hierbei wird Ozon (O₃) gebildet:



(M bezeichnet hier einen Stoßpartner, der an der Reaktion zwar chemisch nicht beteiligt, für ihr Zustandekommen aber erforderlich ist.)

Ozon bildet sich also immer dann, wenn energiereiche Strahlung auf NO₂-reiche Luft trifft. Die NO₂-Konzentration hängt, wie im vorigen Unterkapitel dargestellt, wiederum von der VOC-Konzentration ab. Aufgrund der großen Anzahl von in der Atmosphäre vorhandenen Substanzen und deren vielfältigen Reaktionsmöglichkeiten ist es oft nicht ohne weiteres möglich, die sich unter bestimmten Bedingungen einstellenden Konzentrationen einzuschätzen. Es wurden deshalb Modelle entwickelt, um die sich bei unterschiedlichen NO_x- und VOC-Konzentrationen einstellende Ozonkonzentration zu berechnen (Abbildung 3-3)²⁶.

²⁵ Genauer: bei Wellenlängen ≤ 410 nm (d. h. blau-violettes Licht und UV-Licht)

²⁶ Gezeigt ist ein Beispiel aus Atlanta (USA) aus dem Jahr 1990. Je nachdem, welche spezifischen Einzelsubstanzen an einem bestimmten Ort vorhanden sind, kann sich der Zusammenhang etwas anders darstellen, die grundlegenden Mechanismen sind aber jeweils die gleichen. Derartige Modellrechnungen können auch Aufschlüsse über zu ergreifende Maßnahmen geben, insbesondere darüber, ob eher die NO_x-Konzentrationen oder die VOC-Konzentrationen gemindert werden sollten. Sollen beispielsweise die Ozonkonzentrationen an der Station Schwäbische Alb gemindert werden, wäre eine Minderung der NO_x-Kon-

Übersicht und Vergleich der NO₂-Bildungsreaktionen

Die vorangegangenen Abschnitte haben gezeigt, dass in der Atmosphäre ständig eine Vielzahl sich gegenseitig beeinflussender Reaktionen mit zahlreichen, zum Teil sehr kurzlebigen, Zwischenprodukten ablaufen. Für die nachfolgenden Auswertungen wesentlich ist, dass die ozonbildenden, NO₂-abbauenden Reaktionen R11 und R12 die freiwillig ablaufenden, NO₂-aufbauenden Reaktionen R1, R2 und R3 rückgängig machen, d. h. durch den Einfluss von Licht werden die energiereichen Ausgangsprodukte wiederhergestellt. Der sich dadurch einstellende Zyklus ist in Abbildung 3-2 grafisch dargestellt.

Für die Bewertung, welche der Reaktionen R1, R2 und R3 für die Oxidation von NO am wichtigsten ist, müssen zwei Aspekte betrachtet werden: einerseits die Reaktivität des Reaktionspartners und andererseits dessen Häufigkeit (Konzentration) in der Atmosphäre. So sind die Reaktionen R1 und R2 zwar deutlich schneller als Reaktion R3, haben aufgrund der sehr geringen Konzentrationen von RO₂· und

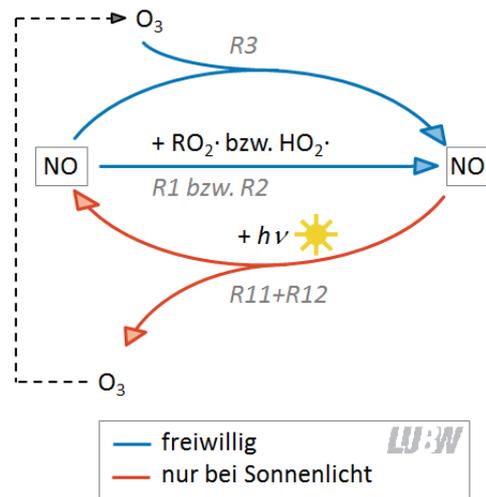


Abbildung 3-2: Vereinfachte Darstellung der wesentlichen Reaktionen von NO und NO₂

zentrationen wirkungsvoller als eine Minderung der VOC-Konzentrationen. An der Messstelle Stuttgart Am Neckartor hingegen könnte eine Minderung der NO_x-Konzentrationen unter bestimmten Umständen auch zu einem Anstieg der Ozonkonzentration führen – hier wäre die Minderung der VOC-Konzentrationen die zielführendere Maßnahme.

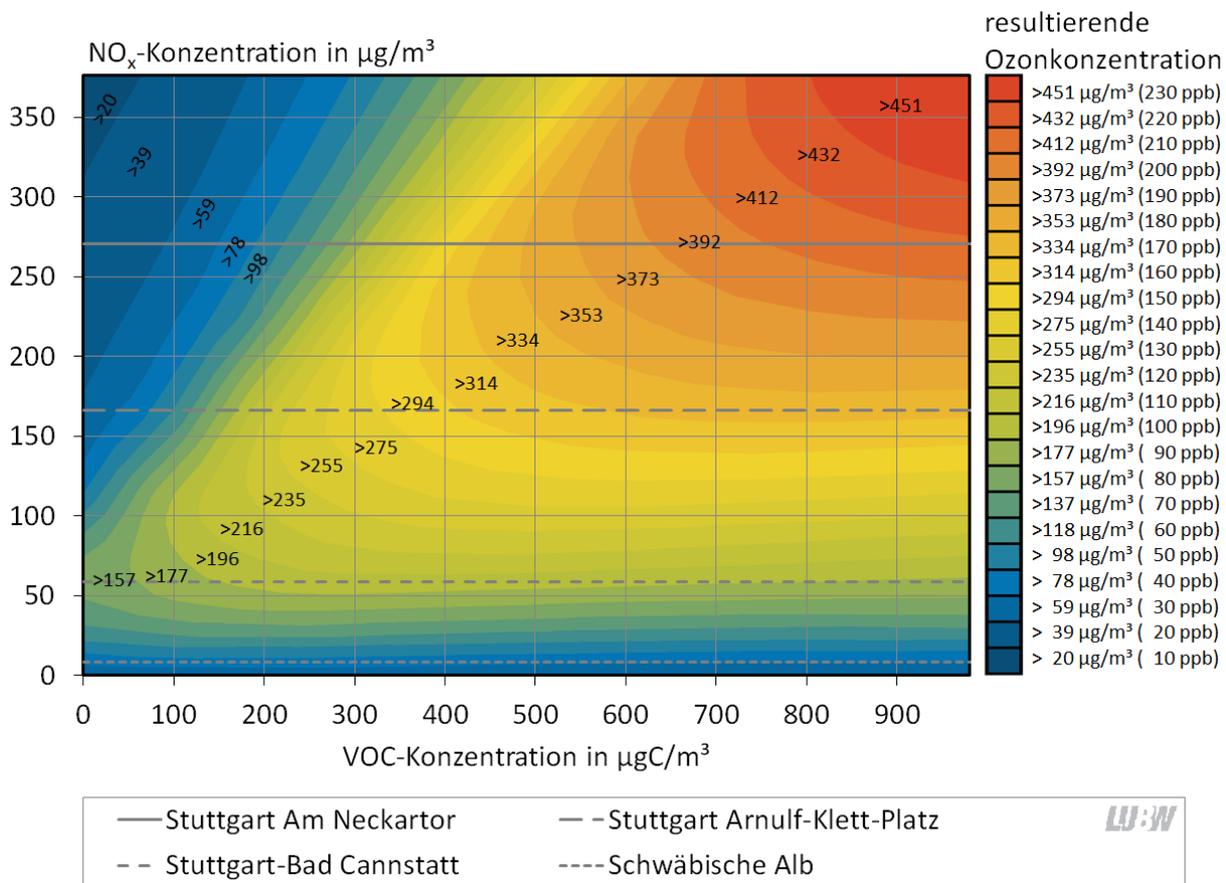


Abbildung 3-3: Darstellung der sich einstellenden Ozonkonzentration bei gegebener NO_x- und VOC-Konzentration; erstellt nach [Jeffries und Crouse 1990]; zur Illustration sind die NO_x-Jahresmittelwerte ausgewählter Stationen in Baden-Württemberg im Jahr 2016 eingezeichnet (Messwerte für VOC liegen nicht vor)

HO₂; aber nur wenig Bedeutung. Im Allgemeinen ist die Reaktion von NO mit Ozon (R3) der wichtigste Abbaupfad von NO²⁷. Diese Reaktion ist aus lufthygienischer Sicht gleich in zweierlei Hinsicht relevant:

- Die Reaktion führt zum lokalen Abbau von Ozon. Dies ist der Grund dafür, dass in unmittelbarer Verkehrsnähe nur sehr geringe Ozonkonzentrationen gemessen werden²⁸.

Die Reaktion führt zu einer schnelleren Bildung von NO₂. Dies führt wiederum dazu, dass an verkehrsnahen Standorten bei hohen Ozonkonzentrationen tendenziell höhere NO₂-Konzentrationen (und geringere

NO-Konzentrationen) gemessen werden als bei niedrigeren Ozonkonzentrationen.

Insgesamt sind zur Beschreibung der sekundären Bildung von NO₂ damit die Reaktionen R3, R11 und R12 relevant. Dies entspricht auch dem in der VDI-Richtlinie 3783 Blatt 19 („Reaktionsmechanismus zur Bestimmung der Stickstoffdioxid-Konzentration“, April 2017) beschriebenen „einfachen“ Ansatz (der „erweiterte“ Mechanismus umfasst weitere 29 Reaktionen).

Zu beachten ist, dass sich die NO_x-Konzentration bei der sekundären Bildung von NO₂ nicht ändert, es erhöht sich lediglich der Anteil an NO₂. Ein Indikator für sekundäre Prozesse ist deshalb das NO₂/NO_x-Verhältnis (vgl. Beispiel in Abbildung 3-4).

²⁷ Bei einer Ozonkonzentration von 100 µg/m³ beträgt die Lebensdauer eines NO-Moleküls etwa 42 Sekunden.

²⁸ NO wirkt demnach zwar lokal ozonabbauend, wird bei der Reaktion aber zu NO₂ oxidiert. Dieses ist, wie oben gezeigt wurde, wiederum ozonaufbauend. Insgesamt (d. h. weiträumig) führen die NO-Emissionen somit ebenfalls zur Bildung von Ozon.

3.2 Quantifizierung

Wie die überblickshafte Darstellung der Reaktionen im vorigen Unterkapitel zeigt, sind zahlreiche atmosphärenchemische Substanzen und Prozesse in die NO_x - und Ozonchemie verwickelt. Eine detaillierte Untersuchung des Einflusses sekundärer Reaktionen auf die Konzentration von NO_2 würde die Anwendung eines Modells erfordern, das sowohl die chemischen Reaktionen als auch die auftretenden Transportprozesse (NO_x aus den Städten in ländliche Gebiete, O_3 aus den ländlichen Gebieten zurück in die Stadt) adäquat beschreibt. Eingangsgrößen eines solchen Modells wären neben meteorologischen Daten auch Informationen zu den VOC-Konzentrationen. Aufgrund der Tatsache, dass solche Daten für Baden-Württemberg nicht vorliegen und angesichts des Aufwandes einer solchen Modellierung wird im Folgenden auf eine einfachere Schätzmethode zurückgegriffen.

3.2.1 ÜBERBLICK (ALLE STUNDEN)

Um vor der eigentlichen Auswertung und Ursachenanalyse einen Überblick über die in diesem Zusammenhang relevanten Daten und die daraus ableitbaren Informationen zu bekommen, werden zunächst

- die Verläufe der Konzentrationen von NO_x , NO_2 , NO und Ozon sowie,
- als Indikator für sekundäre Prozesse, der Verlauf des NO_2/NO_x -Verhältnisses

an den Messstellen

- Stuttgart Am Neckartor (verkehrsnahe),
- Stuttgart Arnulf-Klett-Platz (verkehrsnahe),
- Stuttgart-Bad Cannstatt (städtischer Hintergrund) und
- Gärtringen (ländlicher Hintergrund)

systematisch betrachtet. Auf der Basis dieser Konzentrationsverläufe sowie berechneter Konzentrationsverhältnisse²⁹ erfolgt eine stichpunktartige Zusammenfassung der wesentlichen Erkenntnisse. Wie bereits in der Auswertung zu sekundären Partikeln wird auch im Folgenden zwischen Sommerhalbjahr

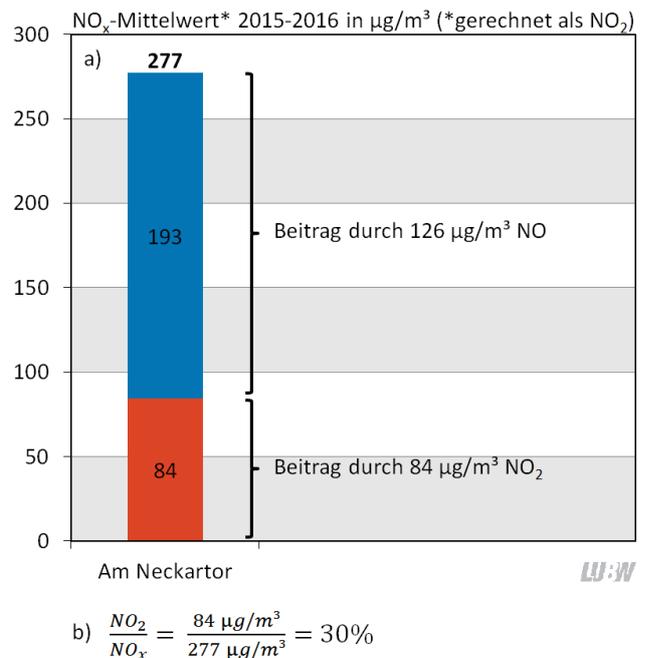


Abbildung 3-4: a) Zusammenhang zwischen NO , NO_2 und NO_x am Beispiel von Messwerten Am Neckartor; b) Berechnung des NO_2/NO_x -Verhältnisses

(d. h. 01.04. – 30.09. eines Kalenderjahres) und Winterhalbjahr (d. h. 01.01. – 31.03. und 01.10. – 31.12. eines Kalenderjahres) unterschieden.

Im Anhang 4.4 (ab Seite 93) finden sich darüber hinaus noch Langzeitreihen der NO_x -, NO_2 -, NO - und Ozon-Konzentration sowie des NO_2/NO_x -Verhältnisses seit 1990 im Raum Stuttgart.

²⁹ Die Angabe der Konzentrationsverhältnisse erfolgt gerundet auf zwei signifikante Stellen.

Stickstoffoxide (NO_x)

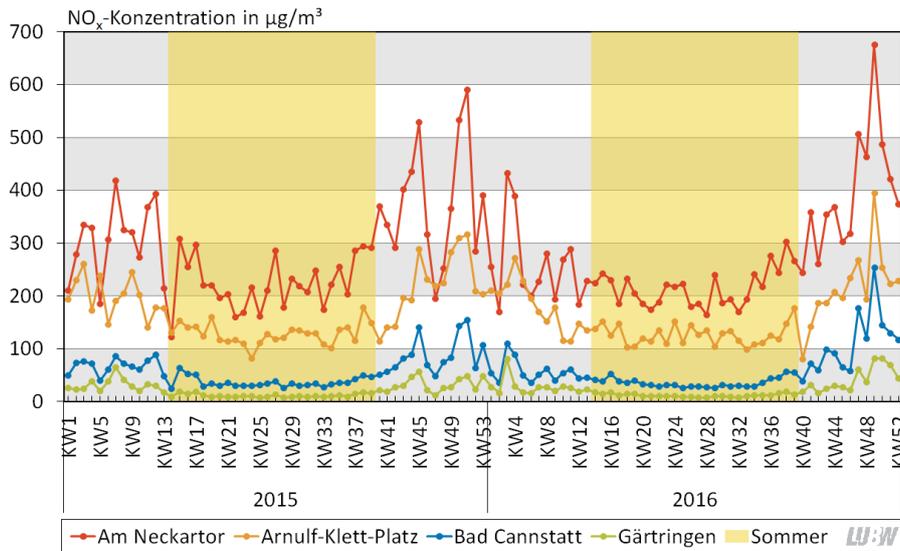


Abbildung 3-5: Wochenmittelwerte der NO_x-Konzentrationen im Raum Stuttgart

Tabelle 3-1: Mittelwerte der NO_x-Konzentrationen in µg/m³

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	277	222	333	285	228	342	270	215	324
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	165	126	205	169	126	212	161	125	197
Stuttgart-Bad Cannstatt	58	36	80	58	36	78	59	35	83
Gärtringen	22	12	33	21	11	32	23	12	34

LUBW

Tabelle 3-2: Verhältnisse der NO_x-Konzentrationen (Vergleich Winter-Sommer) (Mittel 2015-2016)

	NO _x Winter / NO _x Sommer
Stuttgart Am Neckartor	1,5
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,6
Stuttgart-Bad Cannstatt	2,2
Gärtringen	2,8

LUBW

Tabelle 3-3: Verhältnisse der NO_x-Konzentrationen (Stationsvergleich) (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	4,7	6,2	4,1
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	2,8	3,5	2,5
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	12	19	10
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	7,4	11	6,2

LUBW

Fazit (aus Abbildung 3-5, Tabelle 3-1, Tabelle 3-2 und Tabelle 3-3):

- Die NO_x-Konzentrationen sind im Winter höher (Tabelle 3-2).
- Die NO_x-Konzentrationen sind in Verkehrsnähe höher (Tabelle 3-3).
- Im Sommer ist die räumliche Verteilung inhomogener (Tabelle 3-3), als Grund kommt insbe-

sondere die Meteorologie (z. B. größere Mischungsvolumina) in Frage.

- Der Jahresgang ist an den Hintergrundstationen ausgeprägter als in unmittelbarer Verkehrsnähe (Tabelle 3-2).
- Ein Einfluss der Ozonchemie kann beim Summenparameter NO_x naturgemäß nicht festgestellt werden.

Stickstoffdioxid (NO₂)

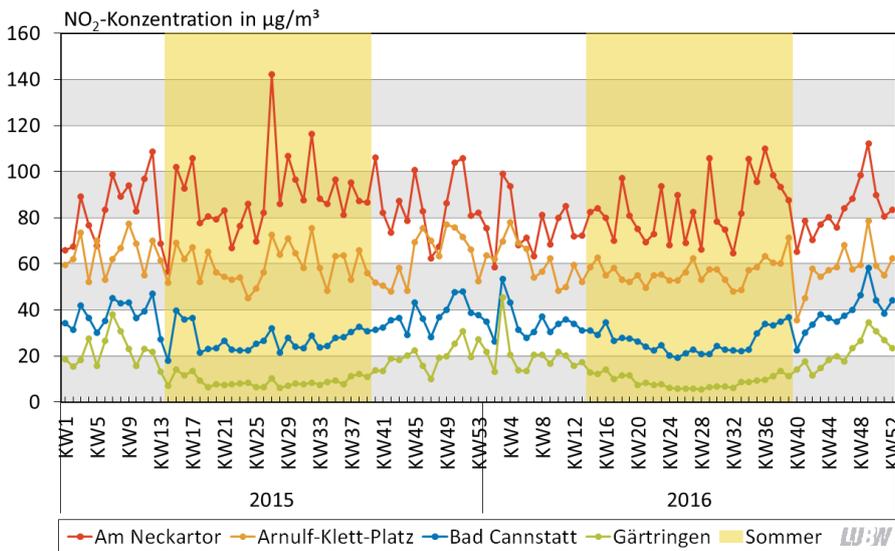


Abbildung 3-6: Wochenmittelwerte der NO₂-Konzentrationen im Raum Stuttgart

Tabelle 3-4: Mittelwerte der NO₂-Konzentrationen in µg/m³

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	84	87	82	87	90	85	82	84	80
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	60	58	62	62	59	64	58	56	59
Stuttgart-Bad Cannstatt	32	27	37	32	27	38	31	26	37
Gärtringen	15	9	21	15	9	21	15	9	21

LU:W

Tabelle 3-5: Verhältnisse der NO₂-Konzentrationen (Vergleich Winter-Sommer) (Mittel 2015-2016)

	NO ₂ Winter / NO ₂ Sommer
Stuttgart Am Neckartor	0,95
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,1
Stuttgart-Bad Cannstatt	1,4
Gärtringen	2,3

LU:W

Tabelle 3-6: Verhältnisse der NO₂-Konzentrationen (Stationsvergleich) (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	2,6	3,3	2,2
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,9	2,2	1,7
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	5,7	9,6	4,0
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	4,0	6,4	3,0

LU:W

Fazit (aus Abbildung 3-6, Tabelle 3-4, Tabelle 3-5 und Tabelle 3-6):

- Die Befunde ähneln denen bei NO_x. Auffällig ist aber, dass die NO₂-Konzentrationen sowohl zeitlich (Tabelle 3-5) als auch räumlich (Tabelle

3-6) deutlich weniger variabel sind als die NO_x-Konzentrationen. Damit ist zu erwarten, dass die NO-Konzentration eine sehr starke Variabilität aufweist, die sich dann im Summenparameter „NO_x“ niederschlägt.

Stickstoffmonoxid (NO)

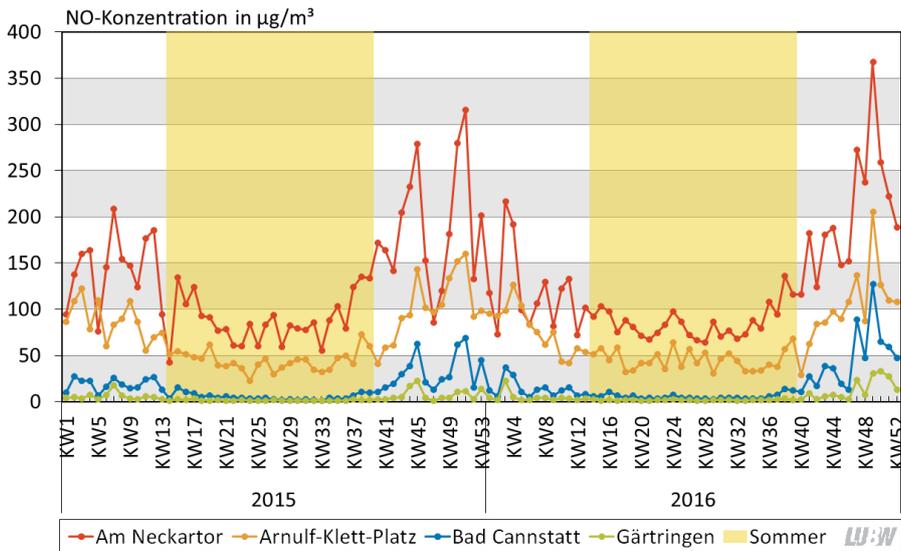


Abbildung 3-7: Wochenmittelwerte der NO-Konzentrationen im Raum Stuttgart

Tabelle 3-7: Mittelwerte der NO-Konzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	126	88	164	129	90	168	123	86	160
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	69	44	93	70	44	96	68	45	90
Stuttgart-Bad Cannstatt	17	5	28	16	5	26	18	6	30
Gärtringen	5	2	8	4	1	7	5	2	9

LUBW

Tabelle 3-8: Verhältnisse der NO-Konzentrationen (Vergleich Winter-Sommer) (Mittel 2015-2016)

	NO Winter / NO Sommer
Stuttgart Am Neckartor	1,9
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	2,1
Stuttgart-Bad Cannstatt	5,2
Gärtringen	4,6

LUBW

Tabelle 3-9: Verhältnisse der NO-Konzentrationen (Stationsvergleich) (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	7,6	16	5,9
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	4,1	8,2	3,3
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	27	53	21
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	15	27	12

LUBW

Fazit (aus Abbildung 3-7, Tabelle 3-7, Tabelle 3-8 und Tabelle 3-9):

- An den Hintergrundstationen zeigt sich ein ausgeprägter Jahresgang, bei dem im Sommer nahezu kein NO vorhanden ist (Tabelle 3-8). Hier ist möglicherweise erstmals ein Einfluss sekundärer Prozesse sichtbar.
- Die NO-Konzentrationen sind in Verkehrsnähe deutlich höher als an den Hintergrundstationen. Vor allem im Sommer kommt NO nahezu ausschließlich in unmittelbarer Quellnähe vor (Tabelle 3-9).
- Die NO-Konzentration ist somit räumlich und zeitlich deutlich variabler als diejenige von NO_2 .

NO₂/NO_x-Verhältnis

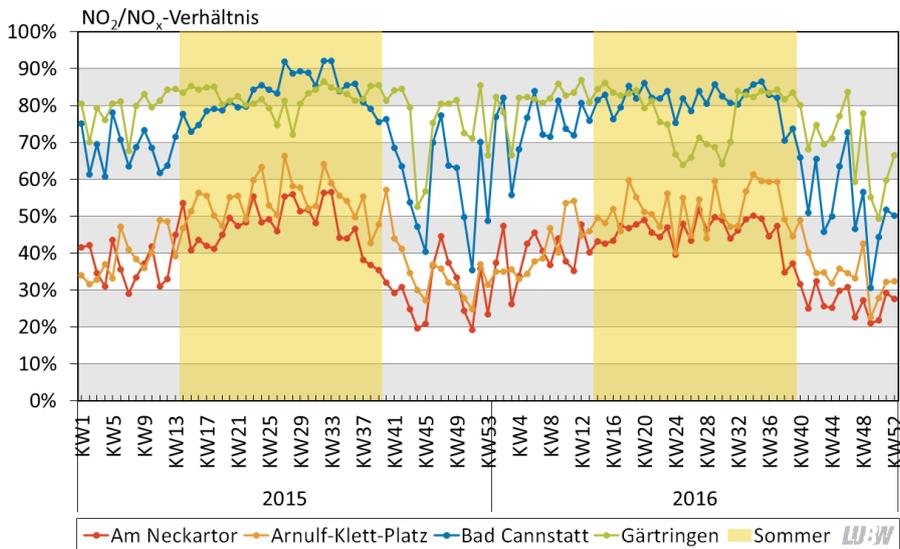


Abbildung 3-8: Wochenmittelwerte des NO₂/NO_x-Verhältnisses im Raum Stuttgart

Tabelle 3-10: Mittelwerte des NO₂/NO_x-Verhältnisses

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	40 %	46 %	33 %	40 %	47 %	33 %	39 %	46 %	33 %
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	45 %	53 %	37 %	46 %	55 %	37 %	45 %	52 %	38 %
Stuttgart-Bad Cannstatt	73 %	82 %	64 %	73 %	83 %	63 %	73 %	81 %	64 %
Gärtringen	78 %	80 %	76 %	80 %	82 %	77 %	76 %	78 %	75 %

LU:W

Fazit (aus Abbildung 3-8 und Tabelle 3-10):

- Das NO₂/NO_x-Verhältnis ist an den Hintergrundstationen höher als in Verkehrsnähe (Tabelle 3-10). Das ist ein Indiz dafür, dass dort Luftmassen mit in der Atmosphäre gealtertem Abgas vorherrschen. In unmittelbarer Quellnähe ist das Verhältnis noch kleiner.
- Das NO₂/NO_x-Verhältnis ist im Sommer höher (Tabelle 3-10). Das ist ein Indiz dafür, dass im Sommer ein erhöhtes Angebot an Oxidantien (d. h. Ozon) herrscht, die zu einer schnelleren Alterung des Abgases führen.

Ozon

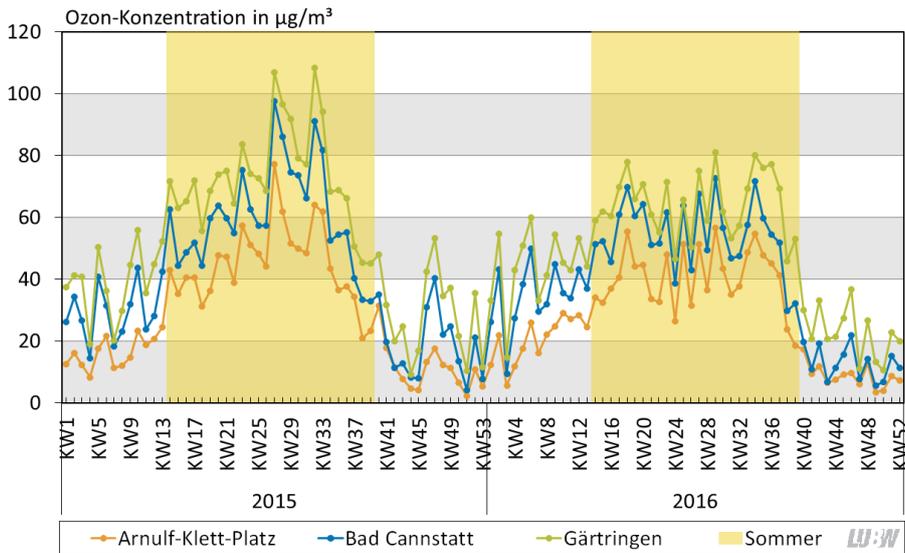


Abbildung 3-9: Wochenmittelwerte der Ozon-Konzentrationen im Raum Stuttgart

Tabelle 3-11: Mittelwerte der Ozon-Konzentrationen in µg/m³

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	28	43	14	29	45	14	27	40	15
Stuttgart-Bad Cannstatt	41	57	24	42	60	24	39	54	24
Gärtringen	51	69	34	54	73	34	49	64	33

- = keine Daten

LUBW

Tabelle 3-12: Verhältnisse der Ozon-Konzentrationen (Vergleich Winter-Sommer) (Mittel 2015-2016)

	Ozon Winter / Ozon Sommer
Stuttgart Am Neckartor	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	0,33
Stuttgart-Bad Cannstatt	0,42
Gärtringen	0,49

- = keine Daten

LUBW

Tabelle 3-13: Verhältnisse der Ozon-Konzentrationen (Stationsvergleich) (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	0,70	0,75	0,59
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	0,56	0,62	0,42

- = keine Daten

LUBW

Fazit (aus Abbildung 3-9, Tabelle 3-11, Tabelle 3-12 und Tabelle 3-13):

- Die Ozon-Konzentrationen sind im Sommer höher als im Winter (Tabelle 3-12).
- In unmittelbarer Verkehrsnähe werden niedrigere Ozon-Konzentrationen gefunden als an den

Hintergrundstationen. Das ist ein Beleg dafür, dass das Ozon durch die lokalen NO-Emissionen abgebaut wird. Diese Differenz wird in Kapitel 3.3 genauer untersucht.

Zusammenfassung

Eine erste Erklärung für die beobachteten Konzentrationsverläufe könnte in etwa folgendermaßen lauten:

- NO wird in Verkehrsnähe über das Jahr hinweg annähernd konstant emittiert. Im Sommer ist die Konzentration an verkehrsnahen Standorten aufgrund von zwei Effekten niedriger als im Winter:
 - der Meteorologie (bessere Durchmischung aufgrund größerer Mischungsschichthöhe) und
 - dem Abbau von NO durch das im Sommer in größerer Menge zur Verfügung stehende Ozon. Dieser Abbau führt dazu, dass das NO auf dem Weg vom Auspuff zur Station schon teilweise zu NO₂ oxidiert wurde.
- NO₂ wird in Verkehrsnähe ebenfalls annähernd konstant emittiert. Im Sommer gleichen sich die beiden oben genannten Effekte aber weitgehend aus: Die Meteorologie führt zu niedrigeren, der zusätzliche Beitrag durch die Ozonchemie hingegen zu höheren Konzentrationen, so dass die NO₂-Konzentration über das Jahr nur eine relativ geringe Variabilität zeigt.
- Das in Verkehrsnähe emittierte Abgas wird auch in den städtischen Hintergrund transportiert. Dabei erfolgt sowohl eine Verdünnung als auch eine weitere Alterung (d. h. Oxidation von NO zu NO₂). NO zeigt im städtischen Hintergrund deshalb einen Jahresgang, der (auf niedrigerem Niveau) noch ausgeprägter als in unmittelbarer Verkehrsnähe ist.

Bezüglich NO₂ gleichen sich die genannten Effekte weitgehend aus, so dass die saisonalen Unterschiede der NO₂-Konzentrationen im städtischen Hintergrund relativ gering sind (durch den größeren Einfluss der Meteorologie aber größer als in unmittelbarer Verkehrsnähe).

Bezüglich NO hingegen verstärken sich die genannten Effekte, weswegen die saisonalen Unterschiede der NO-Konzentrationen im städtischen Hintergrund deutlich größer sind als in Verkehrsnähe.

3.2.2 ÜBERBLICK (NO₂-ÜBERSCHREITUNGSSTUNDEN)

Vorbemerkungen

An der Messstelle Stuttgart Am Neckartor lag der Stundenmittelwert der NO₂-Konzentration im Jahr 2015 an 61 Stunden über 200 µg/m³, im Jahr 2016 an 35 Stunden. Nach der 39. BImSchV sind pro Kalenderjahr maximal 18 dieser „Überschreitungsstunden“ zulässig. Um zu untersuchen, ob sekundäre Bildungsprozesse zu den Überschreitungsstunden beigetragen haben, werden diese im Folgenden analog dem vorangegangenen Unterkapitel dargestellt.

Auftreten von Überschreitungsstunden

Stunden, in denen der Mittelwert der NO₂-Konzentration Am Neckartor über 200 µg/m³ lag, traten vorzugsweise im (Spät-)Sommer (Juli, August, September) auf (Abbildung 3-10a). Auch im Winter (Dezember, Januar) gab es einige Überschreitungsstunden. In den Übergangsjahreszeiten (April, Mai, Oktober) gab es keine Überschreitungsstunden. Das deutet darauf hin, dass Überschreitungsstunden nur bei außergewöhnlichen meteorologischen Bedingungen zustandekommen.

Überschreitungsstunden traten ferner vor allem an Wochentagen (vorzugsweise am Donnerstag) auf (Abbildung 3-10b). Nur sechs der 96 Überschreitungsstunden fielen auf ein Wochenende. Das deutet darauf hin, dass Überschreitungsstunden nur bei einer hohen Verkehrsbelastung zustande kommen.

Die 96 Überschreitungsstunden traten an insgesamt 37 Tagen auf. An zwölf dieser Tage trat nur eine Überschreitungsstunde auf, Tage mit mehr Überschreitungsstunden werden zunehmend seltener (Abbildung 3-10c). Maximal wurden acht Überschreitungsstunden pro Tag festgestellt. An Tagen, an denen eine Überschreitungsstunde auftrat, wurden im Durchschnitt 2,6 Überschreitungsstunden registriert (Median: 2,0). Es handelt sich an diesen Tagen also im Schnitt nicht um einmalige Ereignisse, sondern um mehrstündige Episoden, wobei die Wahrscheinlichkeit sehr langer Episoden gering ist.

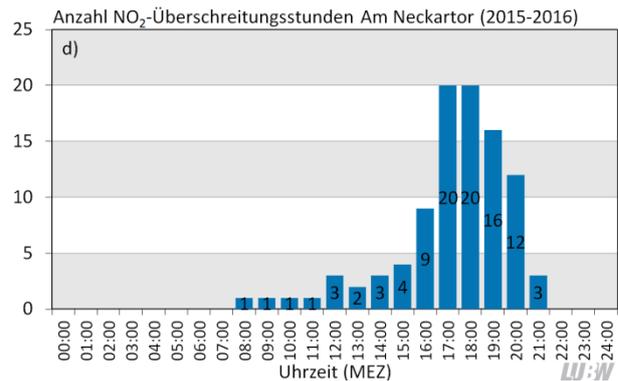
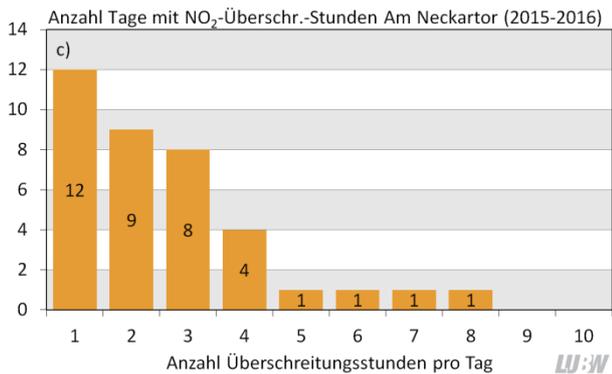
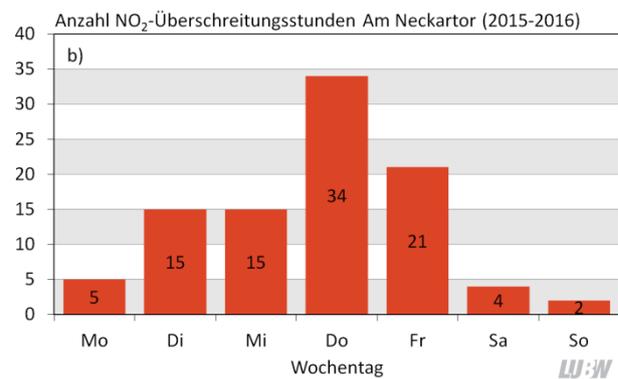
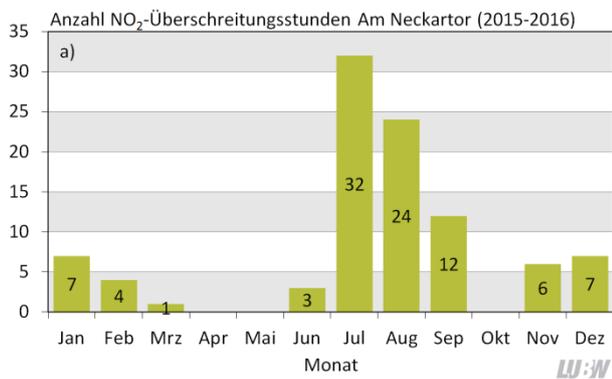


Abbildung 3-10: Auftreten der NO₂-Überschreitungsstunden a) nach Monat und b) nach Wochentag, c) Anzahl der Überschreitungsstunden pro Tag, d) Überschreitungsstunden nach Uhrzeit.

Überschreitungsstunden traten überwiegend am späten Nachmittag (17:00 Uhr – 18:00 Uhr MEZ) auf (Abbildung 3-10d). Nur vier der 96 Überschreitungsstunden traten vormittags auf, nachts (nach 22:00 Uhr MEZ) wurden keine Überschreitungsstunden mehr festgestellt.

Meteorologische Charakterisierung

Überschreitungsstunden unterscheiden sich bezüglich der meteorologischen Parameter (gemessen an der Station Stuttgart-Bad Cannstatt) deutlich von den übrigen Stunden eines Jahres (Tabelle 3-14).

Überschreitungsstunden im Sommerhalbjahr zeichnen sich durch außergewöhnlich hohe Temperaturen aus. Die Lufttemperatur lag an sommerlichen Überschreitungsstunden bei 32 °C und damit um 14 °C höher als die mittlere Temperatur im Sommerhalbjahr. Auch Überschreitungsstunden im Winter treten tendenziell bei Temperaturen auf, die höher als üblich liegen, der Unterschied ist jedoch weniger ausgeprägt als im Sommerhalbjahr (Tabelle 3-14).

Ferner sind die an der Station Stuttgart-Bad Cannstatt erhobenen Windgeschwindigkeiten während der Überschreitungsstunden deutlich geringer als im Mittel. An Überschreitungsstunden im Sommerhalbjahr sind die Windgeschwindigkeiten 16 % niedriger als in dieser Jahreszeit üblich, im Winterhalbjahr beträgt die Abnahme sogar 36 %. In beiden Jahreszeiten treten Überschreitungsstunden demnach vor allem bei windarmen Wetterlagen auf.

Der Luftdruck an Überschreitungsstunden ist demgegenüber nahezu der gleiche wie an den übrigen Stunden, so dass diese Messgröße keinen relevanten Einfluss auf die NO₂-Konzentrationen hat.

Tabelle 3-14. Überblick über meteorologische Parameter an der Station Stuttgart-Bad Cannstatt (Mittel 2015-2016)

	Sommer		Winter	
	Mittel	Überschreitungsstunden	Mittel	Überschreitungsstunden
Lufttemperatur	18 °C	32 °C	6 °C	9 °C
Windgeschwindigkeit	0,88 m/s	0,74 m/s	1,09 m/s	0,70 m/s
Luftdruck	989 hPa	988 hPa	991 hPa	993 hPa

Stickstoffoxide (NO_x)

Tabelle 3-15: Mittelwerte der NO_x-Konzentrationen in µg/m³ an Überschreitungsstunden Am Neckartor

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	646	435	1271	604	406	1197	720	486	1396
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	235	106	603	222	120	511	257	81	768
Stuttgart-Bad Cannstatt	82	21	250	67	22	185	108	19	365
Gärtringen	24	8	67	22	8	62	26	9	75

LUBW

Tabelle 3-16: Verhältnisse der NO_x-Konzentrationen an Überschreitungsstunden Am Neckartor zur mittleren NO_x-Konzentration (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	2,3	2,0	3,8
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,4	0,84	2,9
Stuttgart-Bad Cannstatt	1,4	0,58	3,1
Gärtringen	1,1	0,72	2,0

LUBW

Tabelle 3-17: Verhältnisse der NO_x-Konzentrationen (Stationsvergleich) an Überschreitungsstunden Am Neckartor (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	7,9	21	5,1
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	2,9	5,1	2,4
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	27	52	19
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	10	13	9,1

LUBW

Fazit (aus Tabelle 3-15, Tabelle 3-16 und Tabelle 3-17):

- Im Winter sind die NO_x-Konzentrationen an Überschreitungsstunden deutlich höher als an den übrigen Stunden (Tabelle 3-16). Das gilt sowohl in Verkehrsnähe (wo der Effekt zu erwarten war) als auch im Hintergrund, was ein Hinweis auf eine horizontale, großräumige Verteilung der Schadstoffbelastung ist.
- An der Messstelle Stuttgart Am Neckartor sind die NO_x-Konzentrationen, wie erwartet, auch an sommerlichen Überschreitungsstunden höher als üblich (Tabelle 3-16). An allen anderen Messstellen liegen die NO_x-Konzentrationen an sommerlichen Überschreitungsstunden hingegen *niedriger* als an den übrigen Stunden. Dieses unterschiedliche Verhalten ist ein Hinweis darauf, dass die Atmosphäre bei sommerlichen Überschreitungsstunden besonders schlecht horizontal durchmischt ist. Die schlechte horizontale Durchmischung ist angesichts der bereits diskutierten besonders niedrigen Windgeschwindigkeiten während sommerlicher Überschreitungsstunden plausibel. Im Gegensatz zum Winterhalbjahr treten windarme, stagnierende Bedingungen im Sommerhalbjahr aber nicht im Zu-

- sammenhang mit Inversionswetterlagen auf – der vertikale Austausch der Luftmassen ist deshalb während der sommerlichen Überschreitungsstunden weiterhin möglich, so dass es während sommerlicher Überschreitungsstunden im Gegensatz zum Winter *nicht* zu einer großräumigen Anreicherung der Schadstoffbelastung kommt. Bemerkenswert ist, dass sich die Station Arnulf-Klett-Platz während der sommerlichen Überschreitungsstunden eher wie eine Hintergrundstation (d. h. mit niedrigeren NO_x-Konzentrationen als üblich) verhält.
- An Überschreitungsstunden im Sommer ist außerdem das Konzentrationsverhältnis zwischen den verkehrsnahen Stationen und den Hintergrundstationen (Tabelle 3-17) größer als an den übrigen Stunden (Tabelle 3-3). Das bedeutet, dass die NO_x-Konzentrationen an sommerlichen Überschreitungsstunden vergleichsweise heterogen verteilt sind. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass die Atmosphäre an sommerlichen Überschreitungsstunden, wie bereits beim vorigen Punkt festgestellt, schlecht horizontal und gut vertikal durchmischt ist. NO_x-Konzentrationsspitzen treten deshalb nur lokal, d. h. in Quellnähe, auf.

Stickstoffdioxid (NO₂)

Tabelle 3-18: Mittelwerte der NO₂-Konzentrationen in µg/m³ an Überschreitungsstunden Am Neckartor

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	224	223	224	223	222	225	225	226	222
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	91	77	130	95	85	125	83	63	138
Stuttgart-Bad Cannstatt	36	20	80	35	21	75	36	18	89
Gärtringen	17	7	43	17	7	46	15	7	37

LU:W

Tabelle 3-19: Verhältnisse der NO₂-Konzentrationen an Überschreitungsstunden Am Neckartor zur mittleren NO₂-Konzentration (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	2,6	2,6	2,7
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,5	1,3	2,1
Stuttgart-Bad Cannstatt	1,1	0,75	2,2
Gärtringen	1,1	0,80	2,1

LU:W

Tabelle 3-20: Verhältnisse der NO₂-Konzentrationen (Stationsvergleich) an Überschreitungsstunden Am Neckartor (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	6,3	11	2,8
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	2,5	3,8	1,6
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	13	31	5,2
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	5,5	11	3,0

LU:W

Fazit (aus Tabelle 3-18, Tabelle 3-19 und Tabelle 3-20):

- An Überschreitungsstunden Am Neckartor sind die NO₂-Konzentrationen auch am Arnulf-Klett-Platz erhöht (Tabelle 3-19). Dies gilt sowohl für Überschreitungsstunden im Sommer als auch für solche im Winter und ist ein Hinweis darauf, dass das Auftreten von NO₂-Konzentrationspitzen Am Neckartor kein kleinräumiges Phänomen ist, sondern – wenn auch weniger ausgeprägt – auch am Arnulf-Klett-Platz beobachtet werden kann. Auffällig ist aber, dass am Arnulf-Klett-Platz der Anstieg der NO₂-Konzentration während der Überschreitungsstunden deutlich weniger stark ist (1,3) als Am Neckartor (2,6). Auch hier macht sich damit die bereits bei NO_x diskutierte räumliche Heterogenisierung der Schadstoffbelastung während sommerlicher Überschreitungsstunden bemerkbar.
- Auch an den Hintergrundstationen ist die NO₂-Konzentration an Überschreitungsstunden im Winter höher als im Jahresmittel (Tabelle 3-19). Im Sommer hingegen sind die NO₂-Konzentrationen an den Hintergrundstationen an Überschreitungsstunden 20 % bis 25 % geringer als üblich. Das bestätigt nochmals die bereits diskutierten Erklärungsansätze.
- Auch bei NO₂ zeigt sich, dass hohe Konzentrationen im Sommer kleinräumiger sind als im Winter (d. h. das Konzentrationsverhältnis zwischen verkehrsnaher Station und Hintergrundstation ist groß; Tabelle 3-20). Der Konzentrationsgradient zwischen quellenahen Standorten und Hintergrundstationen ist an Überschreitungsstunden außerdem größer als an normalen Stunden (Tabelle 3-20, verglichen mit Tabelle 3-6).

Stickstoffmonoxid (NO)

Tabelle 3-21: Mittelwerte der NO-Konzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Überschreitungsstunden Am Neckartor

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	276	138	682	248	120	633	323	170	766
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	94	19	309	83	23	251	114	11	411
Stuttgart-Bad Cannstatt	29	1	111	19	1	72	47	1	180
Gärtringen	5	1	15	3	1	10	7	1	25

LUBW

Tabelle 3-22: Verhältnisse der NO-Konzentrationen an Überschreitungsstunden Am Neckartor zur mittleren NO-Konzentration (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	2,2	1,6	4,2
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	1,4	0,42	3,3
Stuttgart-Bad Cannstatt	1,8	0,13	4,0
Gärtringen	1,0	0,42	2,0

LUBW

Tabelle 3-23: Verhältnisse der NO-Konzentrationen (Stationsvergleich) an Überschreitungsstunden Am Neckartor (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	9,4	200	6,2
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	3,2	27,7	2,8
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	61	200	44
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	21	27	20

LUBW

Fazit (aus Tabelle 3-21, Tabelle 3-22 und Tabelle 3-23):

- An allen Stationen findet sich an Überschreitungsstunden im Winter mehr NO als üblich (Tabelle 3-22) – diese Überschreitungsstunden sind somit höchstwahrscheinlich auf erschwerte Austauschbedingungen, insbesondere eine niedrige Mischungsschichthöhe und niedrige Windgeschwindigkeiten, die zu großräumigen Konzentrationsanstiegen führen, zurückzuführen.
- An Überschreitungsstunden im Sommer hingegen verhalten sich die Stationen, wie bereits bei NO_x beobachtet, unterschiedlich: während Am Neckartor 1,6-mal mehr NO vorhanden ist, sind die NO-Konzentrationen an den anderen Stationen niedriger als im Sommer üblich (Tabelle 3-22). Ferner ist die Abnahme der NO-Konzentration stärker als diejenige der NO_x -Konzentration (vgl. Tabelle 3-16). Das deutet darauf hin, dass NO unter diesen Bedingungen anderweitig

abgebaut wird. Eine Erklärung ist insbesondere die Oxidation durch Ozon zu NO_2 .

Am Neckartor hingegen sind die NO-Konzentrationen an sommerlichen Überschreitungsstunden *erhöht* (wenn auch weniger stark als die NO_x -Konzentration). Die an Überschreitungsstunden festgestellten hohen NO_2 -Konzentrationen können demnach nicht durch einen verstärkten Abbau von NO verursacht werden – der Grund für die hohen NO_2 -Konzentrationen ist also die niedrige Windgeschwindigkeit in Kombination mit starken lokalen Stickstoffoxidemissionen. Hierbei ist zu beachten, dass die niedrigen Windgeschwindigkeiten nicht nur den (horizontalen) Abtransport der lokalen Schadstoffbelastung verhindern, sondern gleichzeitig auch den Nachschub an Ozon verringern, so dass das an Überschreitungsstunden im Umfeld der Messstelle Am Neckartor reichlich vorhandene NO nicht in größerem Ausmaß zu NO_2 oxidiert wird.

NO₂/NO_x-Verhältnis

Tabelle 3-24: Mittelwerte des NO₂/NO_x-Verhältnisses an Überschreitungsstunden Am Neckartor

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	44 %	53 %	18 %	47 %	56 %	20 %	39 %	47 %	16 %
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	63 %	76 %	26 %	62 %	73 %	30 %	64 %	80 %	19 %
Stuttgart-Bad Cannstatt	81 %	94 %	45 %	85 %	96 %	55 %	75 %	92 %	26 %
Gärtringen	82 %	84 %	75 %	84 %	86 %	80 %	77 %	81 %	67 %

LU:W

Tabelle 3-25: Differenz zwischen dem NO₂/NO_x-Verhältnis an Überschreitungsstunden Am Neckartor und dem mittleren NO₂/NO_x-Verhältnis (Mittel 2015-2016) in Prozentpunkten

	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	+4	+6	-15
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	+18	+23	-11
Stuttgart-Bad Cannstatt	+8	+12	-19
Gärtringen	+4	+4	-1

LU:W

Fazit (aus Tabelle 3-24 und Tabelle 3-25):

- An Überschreitungsstunden im Winter ist das NO₂/NO_x-Verhältnis an allen Stationen niedriger als an üblichen Stunden (Tabelle 3-25).
- An Überschreitungsstunden im Sommer sind höhere NO₂/NO_x-Verhältnisse zu finden als an üblichen Stunden (Tabelle 3-25). Dies ist ein Hinweis auf eine unter diesen Bedingungen schneller stattfindende Oxidation von NO zu NO₂. Der Einfluss dieser sekundären Bildung von NO₂ ist am Arnulf-Klett-Platz (plus 23 Prozentpunkte) stärker ausgeprägt als an den übrigen Stationen – am Arnulf-Klett-Platz stehen offenbar beide Reaktionspartner (NO und Ozon)

ständig in ausreichender Menge zur Verfügung und haben genügend Zeit für die Reaktion zu NO₂. Am Neckartor ist der Beitrag der Ozonchemie geringer, möglicherweise, weil Ozon (angesichts der geringen Windgeschwindigkeiten) nicht in der erforderlichen Geschwindigkeit herantransportiert wird, um den Oxidationsgrad der hohen lokalen Stickstoffoxidemissionen in größerem Ausmaß beeinflussen zu können. An den Hintergrundstationen, an denen bereits an normalen Stunden ein Großteil des NO_x als NO₂ vorliegt, ist der Einfluss sekundärer NO₂-Bildungsprozesse ebenfalls vergleichsweise gering.

Ozon

Tabelle 3-26: Mittelwerte der Ozon-Konzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Überschreitungsstunden Am Neckartor

	Jahre 2015-2016			Jahr 2015			Jahr 2016		
	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	83	110	4	85	114	5	78	104	3
Stuttgart-Bad Cannstatt	107	141	8	114	150	11	94	126	2
Gärtringen	118	152	21	124	161	21	108	137	22

- = keine Daten

LUBW

Tabelle 3-27: Verhältnisse der Ozon-Konzentrationen an Überschreitungsstunden Am Neckartor zur mittleren Ozon-Konzentration (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	2,9	2,6	0,28
Stuttgart-Bad Cannstatt	2,6	2,5	0,32
Gärtringen	2,3	2,2	0,63

- = keine Daten

LUBW

Tabelle 3-28: Verhältnisse der Ozon-Konzentrationen (Stationsvergleich) an Überschreitungsstunden Am Neckartor (Mittel 2015-2016)

	Mittel	Sommer	Winter
Verhältnis ... zu Bad Cannstatt			
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	0,77	0,78	0,50
Verhältnis ... zu Gärtringen			
Stuttgart Am Neckartor	-	-	-
Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	0,70	0,72	0,18

- = keine Daten

LUBW

Fazit (aus Tabelle 3-26, Tabelle 3-27 und Tabelle 3-28):

- Während Überschreitungsstunden im Sommer gibt es mehr Ozon als üblich, während Über-

schreitungsstunden im Winter weniger (Tabelle 3-27).

- Die Ozonkonzentrationen sind in Verkehrsnähe geringer als im städtischen Hintergrund (Tabelle 3-28).

Zusammenfassung

Eine erste Erklärung für die beobachteten Konzentrationen während der NO_2 -Überschreitungsstunden könnte in etwa folgendermaßen lauten:

- Überschreitungsstunden im Winter treten vor allem bei Inversionswetterlagen auf. Hierbei ist der vertikale Luftaustausch eingeschränkt, so dass sich Luftschadstoffe vorzugsweise horizontal ausbreiten. Demzufolge sind die NO_x -, NO - und NO_2 -Konzentrationen sowohl in Verkehrsnähe als auch im städtischen und ländlichen Hintergrund höher als im Mittel. Unter diesen Bedingungen sind die Ozonkonzentrationen vernachlässigbar gering und das NO_2/NO_x -Verhältnis geringer als im Mittel. An den Hintergrundstationen ist der Anteil von NO_2 an NO_x erwartungsgemäß höher als in unmittelbarer Verkehrsnähe.
- Überschreitungsstunden im Sommer zeichnen sich durch hohe Ozonkonzentrationen, hohe Temperaturen und niedrige Windgeschwindigkeiten aus:
 - Am hochbelasteten Messpunkt Stuttgart Am Neckartor sind die Konzentrationen von NO_x , NO und NO_2 während sommerlicher Überschreitungsstunden erhöht. Der Grund für die genannten Beobachtungen ist in einem aufgrund der geringen Windgeschwindigkeiten verringerten horizontalen Abtransport der Luftschadstoffe zu sehen. Das NO_2/NO_x -Verhältnis liegt nur geringfügig höher als im Sommer üblich. Damit scheint die sekundäre Bildung von NO_2 Am Neckartor zwar vorhanden, aber nur von geringer Bedeutung zu sein.
 - Am weniger stark belasteten, aber ebenfalls verkehrsnahen Messpunkt Arnulf-Klett-Platz sind die NO_x - und die NO -Konzentration während sommerlicher Überschreitungsstunden geringer als üblich. Demnach ist der horizontale Transport von Luftschadstoffen zu diesem Messpunkt an Überschreitungsstunden offenbar eingeschränkt. Die NO_2 -Konzentration ist hingegen, ebenso wie das NO_2/NO_x -Verhältnis, erhöht. Demnach werden am Arnulf-Klett-Platz während sommer-

licher Überschreitungsstunden also deutlich gealterte Abgase gefunden, d. h. das Abgas altert auf dem Weg vom Auspuff zur Station schneller als üblich. Dies kann zum einen auf die höheren Ozonkonzentrationen und zum anderen auf die wegen des langsamen horizontalen Transports verlängerten Reaktionszeiten zurückzuführen sein. Der Beitrag sekundärer NO_2 -Bildungsprozesse ist am Arnulf-Klett-Platz offenbar höher als Am Neckartor.

- Im städtischen und im ländlichen Hintergrund sind die Konzentrationen von NO_x , NO und NO_2 während sommerlicher Überschreitungsstunden geringer als üblich, woraus geschlossen werden kann, dass – angesichts einer guten vertikalen Durchmischung der Atmosphäre – der horizontale Transport von Luftschadstoffen von den Quellen in den Hintergrund unter diesen Bedingungen eingeschränkt ist. Das NO_2/NO_x -Verhältnis ist an Überschreitungsstunden höher als üblich, was auf eine erhöhte Bedeutung der sekundären Bildung von NO_2 während dieser Stunden hinweist.

Insgesamt ergeben die gemessenen Konzentrationsverläufe somit ein plausibles Bild, belegen jedoch auch die Unterschiede zwischen den beiden verkehrsnahen Stationen Am Neckartor und Arnulf-Klett-Platz. Im Folgenden wird beschrieben, wie der Beitrag der sekundären Bildung von NO_2 durch Ozon quantifiziert werden kann.

3.2.3 EINGANGSDATEN

Eingangsdaten der Abschätzung sind die Stundenmittelwerte der NO_2 - und Ozonkonzentrationen an den Luftmessstationen Gärtringen (ländlicher Hintergrund), Stuttgart-Bad Cannstatt (städtischer Hintergrund) und Stuttgart Arnulf-Klett-Platz (verkehrsnah). Für die Spotmessstelle Stuttgart Am Neckartor konnte keine Auswertung vorgenommen werden, da hier keine Messungen der Ozonkonzentration durchgeführt werden, so dass diese für die Abschätzung zwingend benötigte Eingangsgröße nicht vorlag.

Um einen konsistenten Datensatz zu haben, wurden nur Stunden ausgewertet, für die alle benötigten Da-

ten vollständig vorlagen³⁰. Dadurch ergeben sich z. T. Abweichungen zu den in den vorigen Unterkapiteln bzw. in anderen Berichten veröffentlichten Kenngrößen.

3.2.4 BESTIMMUNG DES ANTEILS DER SEKUNDÄREN BILDUNG

Der Beitrag der sekundären Bildung von NO₂ aufgrund der Oxidation von NO durch Ozon kann abgeschätzt werden, indem zunächst die geographische Herkunft des in Verkehrsnähe gemessenen NO₂ ermittelt wird. Hierzu wurde in Anlehnung an [Lenschow et al. 2001] und in Analogie zum Vorgehen bei den sekundären Partikeln (Kap. 2.3) durch Differenzbildung der Beitrag unterschiedlicher Quellregionen festgestellt (vgl. Abbildung 3-11a)³¹:

- die Differenz zwischen der Konzentration in Verkehrsnähe und der Konzentration im städtischen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag lokaler Emissionen,
- die Differenz zwischen der Konzentration im städtischen Hintergrund und der Konzentration im ländlichen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag städtischer Emissionen und
- die Konzentration im ländlichen Hintergrund entspricht dabei dem Beitrag großräumiger Emissionen.

Die auf diese Weise ermittelten lokalen und städtischen Zusatzbeiträge zur NO₂-Konzentration haben zwei Ursachen:

- lokale bzw. städtische NO₂-Emissionen, insbesondere aufgrund der NO₂-Direktemissionen von Kraftfahrzeugen und
- die lokale bzw. städtische sekundäre Bildung von NO₂ (aus NO-Emissionen, wenn das emittierte NO durch die Anwesenheit von Ozon zu NO₂ oxidiert wird).

Der Beitrag der letztgenannten, sekundären Bildung von NO₂ kann einfach überschlägig quantifiziert werden, da für jedes auf diese Weise entstandene NO₂-Molekül ein Ozonmolekül abgebaut worden ist (vgl. R3 auf Seite 47)³². Die Anzahl der lokal bzw. im städtischen Hintergrund verschwundenen Ozonmoleküle wiederum ergibt sich aus der Differenz der Ozon-Konzentrationen zwischen dem verkehrsnahen Standort, dem städtischen Hintergrund und dem ländlichen Hintergrund (Abbildung 3-11b). Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Molekülmassen von Ozon (48 g/mol) und NO₂ (46 g/mol) kann hieraus der sekundäre lokale NO₂-Beitrag sowie der sekundäre städtische Beitrag berechnet werden (Abbildung 3-11c). Die verbleibenden lokalen und städtischen Zusatzbeiträge zur NO₂-Konzentration entsprechen dann den lokalen bzw. städtischen NO₂-Direktemissionen (Abbildung 3-11d).

Das hier vorgestellte Vorgehen entspricht grundsätzlich dem Vorgehen in [LUBW 2007b] und [LfU 2015] und ist damit ein erprobtes Verfahren. Zu beachten ist aber, dass die Abschätzung in den genannten Vorgängerstudien ausschließlich für die lokalen Beiträge durchgeführt wurde, während der Ansatz in der vorliegenden Auswertung auch auf den städtischen Hintergrund angewandt wurde. Hierbei zeigte sich, dass der Ansatz im städtischen Hintergrund insbesondere im Sommerhalbjahr phasenweise an seine Grenzen stößt und physikalisch nicht mehr erklärbar negative Beiträge liefert. Als Gründe hierfür sind zum einen die im Sommer komplexere Reaktionsdynamik in Kombination mit den im städtischen Hintergrund (wegen des größeren Abstandes zu den Quellen) naturgemäß längeren Reaktionszeiten anzunehmen, die durch den gewählten Ansatz nicht mehr beschrieben werden können. Zum anderen ist der städtische Beitrag zu den NO₂-Immissionen gerade während sommerlicher Überschreitungsstunden sehr gering (vgl. Kapitel 3.2.2 ab S. 56), so dass sich kleine Messungenauigkeiten hier deutlicher niederschlagen. Wohl wissend um diese

³⁰ Messausfälle sind z. B. auf Wartungen oder Gerätefehler zurückzuführen.

³¹ Dieser Ansatz ist eine Näherung, die den Hintergrund als konstant ansieht. Dadurch wird die Wirkung lokaler Emissionen auf den Hintergrund vernachlässigt.

³² Zur Vereinfachung werden die Reaktionen R1 (Bildung von NO₂ aus NO und RO₂) und R2 (Bildung von NO₂ aus NO und HO₂) hier nicht berücksichtigt.

Ein-

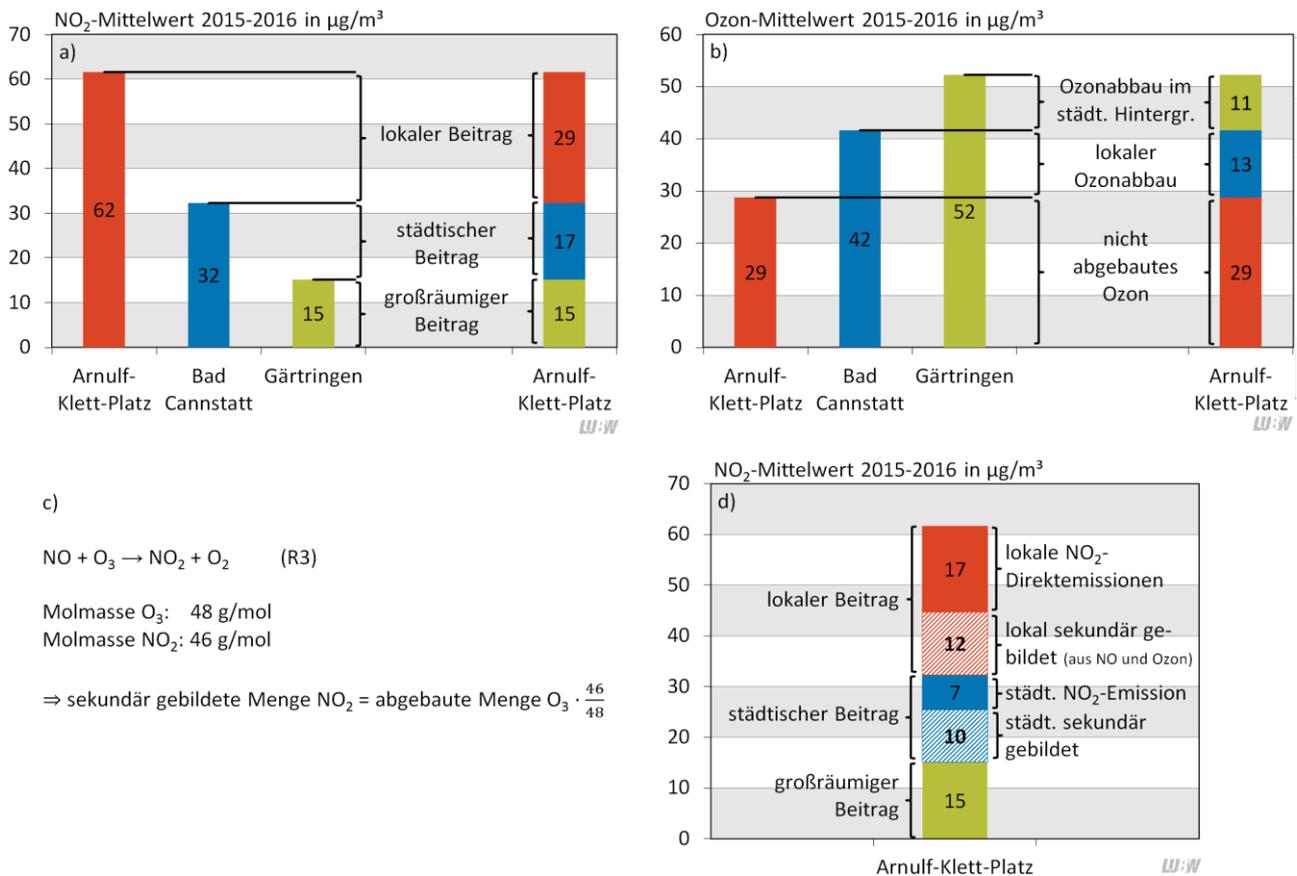


Abbildung 3-11: Vorgehen bei der Ermittlung der Beitrags der sekundären Bildung von NO₂ durch Ozon (O₃): a) Ermittlung des lokalen, des städtischen und des großräumigen Beitrages zu den NO₂-Konzentrationen; b) Ermittlung des lokalen und des städtischen Abbaus von Ozon; c) Berechnung der sekundär gebildeten Menge NO₂ aus der abgebauten Ozonmenge; d) Ermittlung der lokalen NO₂-Direktemissionen unter Zuhilfenahme der Informationen aus a) und c)

schränkung wird die sekundäre Bildung von NO₂ im städtischen Hintergrund im Folgenden, soweit die Ergebnisse plausibel erscheinen und interpretierbar sind, dennoch dargestellt, um den Beitrag sekundärer Bildungsprozesse im städtischen Hintergrund wenigstens näherungsweise quantifizieren zu können. Es sei aber auf die erhöhte Unsicherheit dieser Abschätzung hingewiesen. Unabhängig davon ist die Qualität der Abschätzung der *lokalen* sekundären Bildung als gut einzuschätzen. Die Ergebnisse der Quantifizierung finden sich im folgenden Kapitel.

3.3 Ergebnisse

3.3.1 ERGEBNISSE AN DER STATION STUTT GART

ARNULF-KLETT-PLATZ

Alle Stunden

Die Ergebnisse der Auswertung sind in Abbildung 3-12 als Tagesgang und in Abbildung 3-13 als Jah-

resgang (auf Basis von Kalenderwochen) gezeigt³³. Qualitativ zeigt sich, dass die sekundäre Bildung von NO₂ im Winter zwar weniger bedeutend ist als im Sommer, grundsätzlich aber auch in der kalten Jahreszeit relevant ist. Bei den Tagesgängen in Abbildung 3-12 ist zu erkennen, dass die lokale sekundäre Bildung von NO₂ mit dem Sonnenaufgang eintritt, ein Maximum am Nachmittag zeigt und in der Nacht wieder zurückgeht. Die lokalen primären Emissionen zeigen hingegen einen Tagesgang, in dem die Hauptverkehrszeiten gut erkennbar sind. Im städtischen Hintergrund ist der Beitrag der sekundären Bildung von NO₂ über den Tag weitgehend konstant.

³³ In Abbildung 3-12 fällt auf, dass sich bei der Berechnung der Beiträge im städtischen Hintergrund im Sommerhalbjahr z. T. formal negative primäre Emissionen ergeben; vgl. dazu die Ausführungen im vorigen Kapitel.

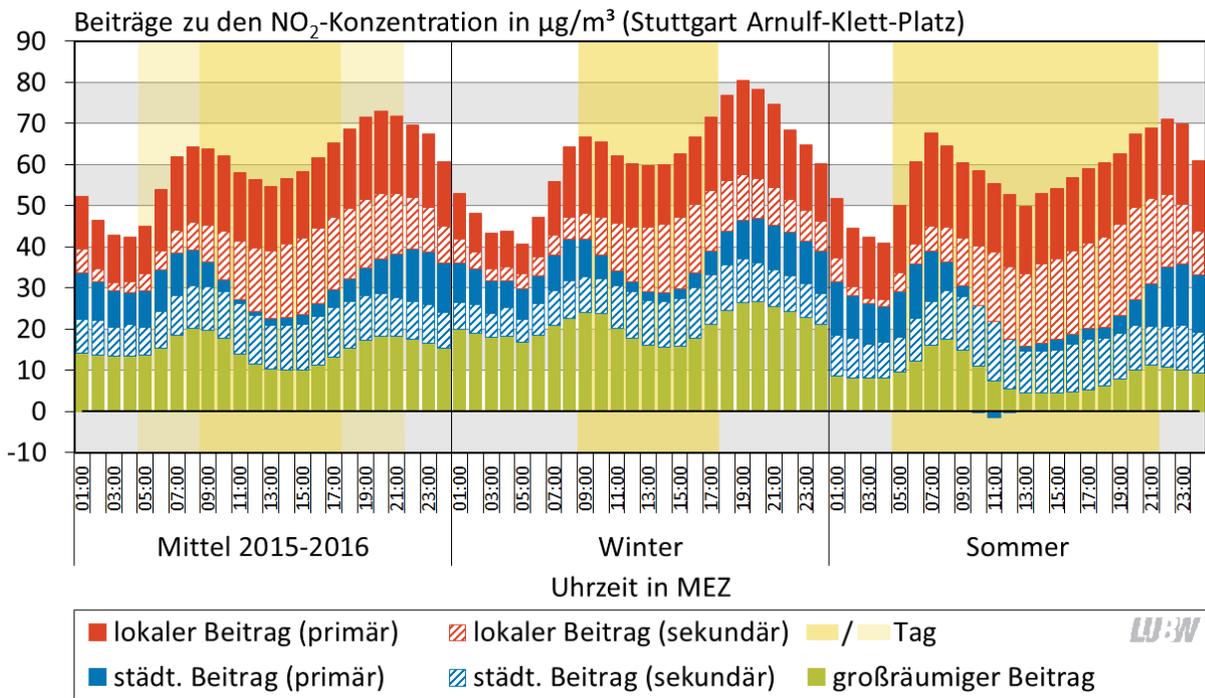


Abbildung 3-12: Tagesgänge der Beiträge zu den NO₂-Konzentrationen an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz

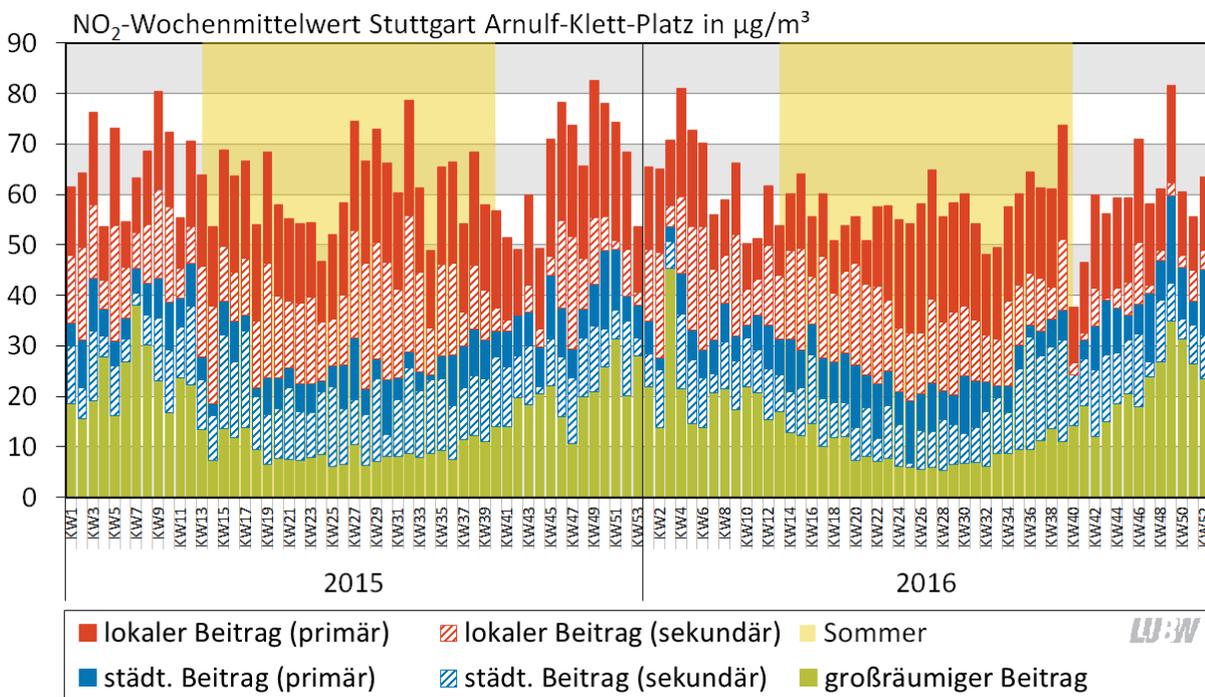


Abbildung 3-13: Jahresgang der Beiträge zu den NO₂-Konzentrationen an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz (auf der Basis von Kalenderwochen)

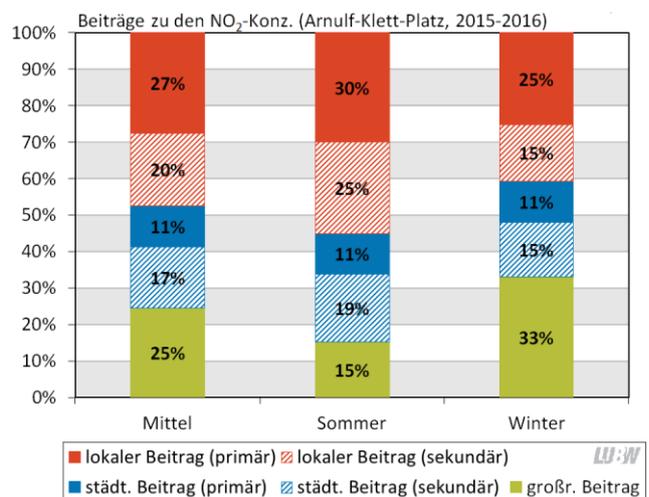
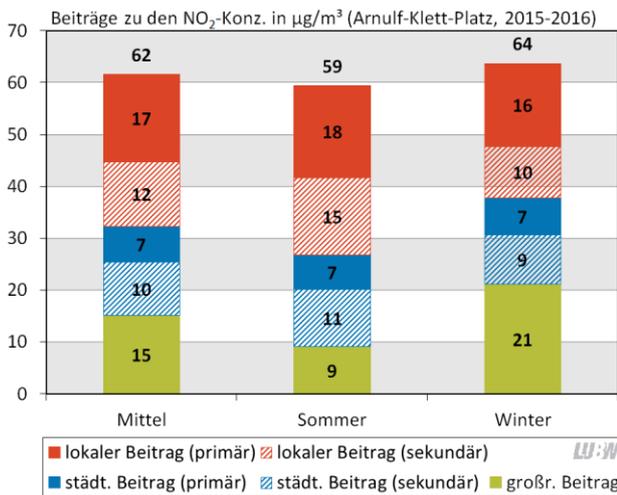


Abbildung 3-14: Aggregierte Beiträge zu den NO₂-Konzentrationen an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz (links absolut, rechts relativ)

Die aggregierten Kenngrößen in Abbildung 3-14 belegen, dass in den Sommermonaten im Schnitt 25 % der gemessenen NO₂-Konzentration (15 µg/m³) auf lokale sekundäre Bildungsprozesse zurückzuführen sind. Sekundäre Bildungsprozesse im städtischen Hintergrund tragen zu weiteren 19 % zur gemessenen NO₂-Konzentration bei, so dass sekundäre Bildungsprozesse insgesamt einen Anteil von 44 % an den am Arnulf-Klett-Platz gemessenen NO₂-Immissionen haben. Im Winterhalbjahr ist der Beitrag sekundärer Prozesse sowohl lokal als auch im städtischen Hintergrund geringer, hier sind insgesamt nur noch 30 % der NO₂-Immissionen auf sekundäre Prozesse zurückzuführen. Im Mittel tragen sekundäre Bildungsprozesse am Arnulf-Klett-Platz zu 37 % der NO₂-Konzentrationen bei, das entspricht rund 22 µg/m³. Die NO₂-Direktemissionen zeigen demgegenüber nur sehr geringe jahreszeitliche Schwankungen, was angesichts der weitgehend konstanten Verkehrsmengen plausibel ist. Sie tragen im Mittel zu etwa 27 % der NO₂-Immissionen bei.

NO₂-Überschreitungsstunden

In Abbildung 3-15 sind die Beiträge zu den NO₂-Immissionen am Arnulf-Klett-Platz während der Überschreitungsstunden Am Neckartor dargestellt. Der städtische Beitrag konnte hier nicht weiter nach primären oder sekundären Beiträgen differenziert werden (vgl. Ausführungen in Kapitel 3.2.4). In der Abbildung ist zu erkennen, dass der großräumige und

der städtische Beitrag während der sommerlichen Überschreitungsstunden nur geringe Beiträge leisten. Die Immissionsbelastung am Arnulf-Klett-Platz ist überwiegend auf lokale Direktemissionen und lokale sekundäre Prozesse zurückzuführen.

Aggregierte Kenngrößen sind in Abbildung 3-16 gezeigt. Während der NO₂-Überschreitungsstunden Am Neckartor ist an der Station Arnulf-Klett-Platz ein höherer absoluter und relativer Beitrag von NO₂-Direktemissionen als üblich zu beobachten. Auffällig ist die äußerst geringe Schwankungsbreite des relativen Beitrags der NO₂-Direktemissionen (Abbildung 3-16 rechts) – diese Quelle für NO₂ ist immer vorhanden und weitgehend unabhängig von Randbedingungen wie Meteorologie und Jahreszeit.

Der Beitrag sekundärer NO₂-Bildungsprozesse hängt demgegenüber sehr stark von der Jahreszeit ab – während der Überschreitungsstunden im Winter spielen sie praktisch keine Rolle, hier stammt das gemessene NO₂ fast ausschließlich aus den NO₂-Direktemissionen sowie dem städtischen und ländlichen Beitrag. Die NO₂-Konzentrationen sind unter diesen Bedingungen, wie bereits festgestellt, auch im städtischen Hintergrund stark erhöht.

An Überschreitungsstunden im Sommer hingegen spielt der städtische Hintergrund nur eine untergeordnete Rolle. Mit Beiträgen von 39 % bzw. 30 µg/m³ dominieren hier lokale sekundäre Bil-

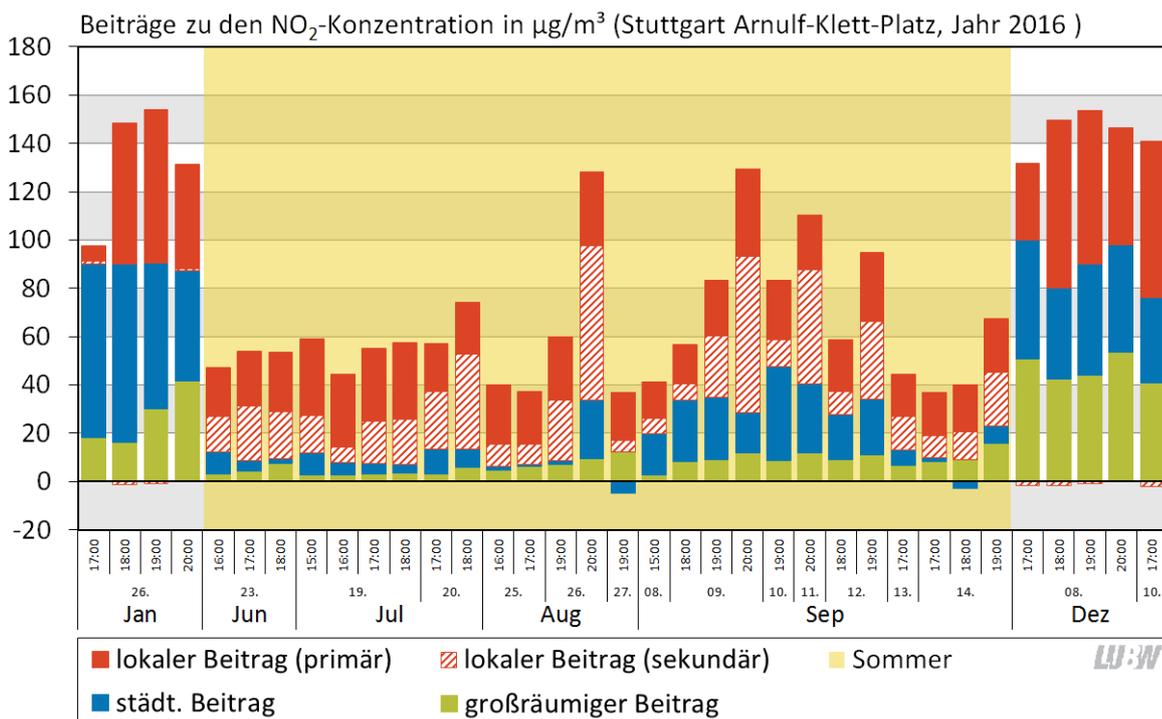
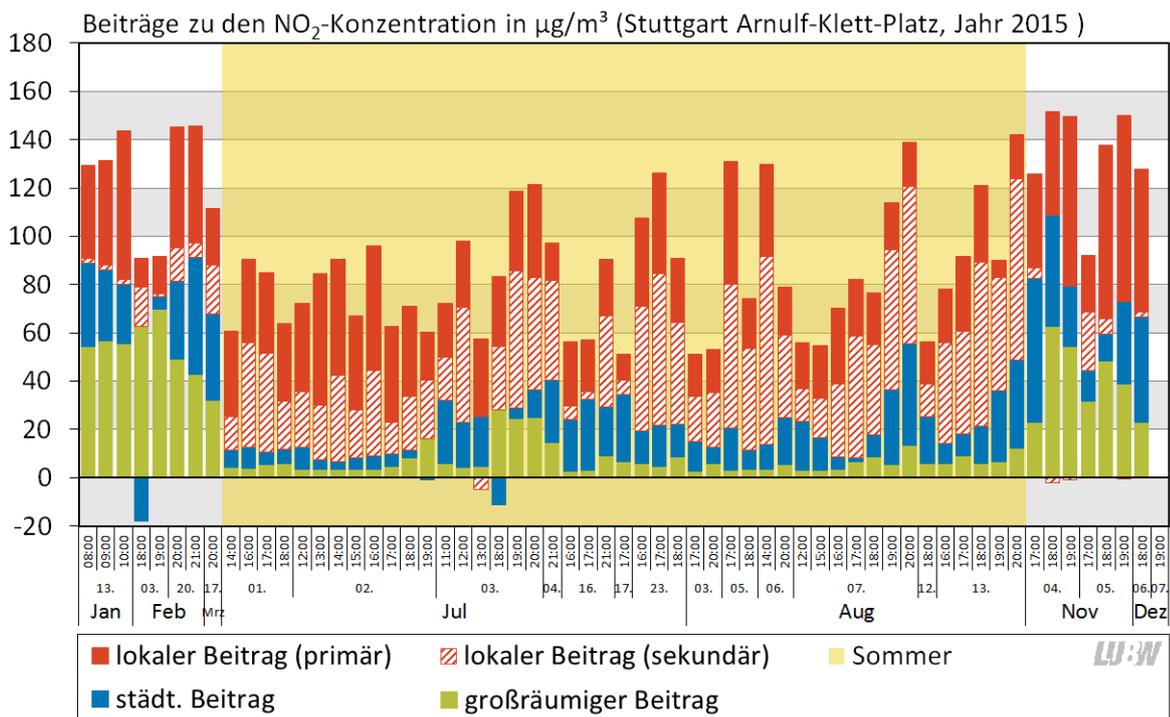


Abbildung 3-15: Beiträge zu den NO₂-Konzentrationen an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz während NO₂-Überschreitungsstunden Am Neckartor (oben im Jahr 2015, unten im Jahr 2016)

dungsprozesse (Abbildung 3-16). Sekundäre Prozesse sind während der Überschreitungsstunden somit noch wichtiger als die lokalen NO₂-Direktemissionen. Vergleichbare Ergebnisse wurden auch in Bayern gefunden [LFU 2017]. Zu beachten ist, dass dieser lokale sekundäre Anteil der NO₂-Immissionen wiederum zwei Ursachen hat: den lokalen, verkehrs-

bedingten NO-Emissionen (ohne die keine Oxidation zu NO₂ stattfinden könnte) und dem Vorhandensein von Ozon, welches, wie in Kap. 3.1 gezeigt, wiederum durch gealterte Emissionen des Verkehrs gebildet wird. Auch für diesen Anteil der NO₂-Immissionen ist demnach der Verkehr der wichtigste Verursacher.

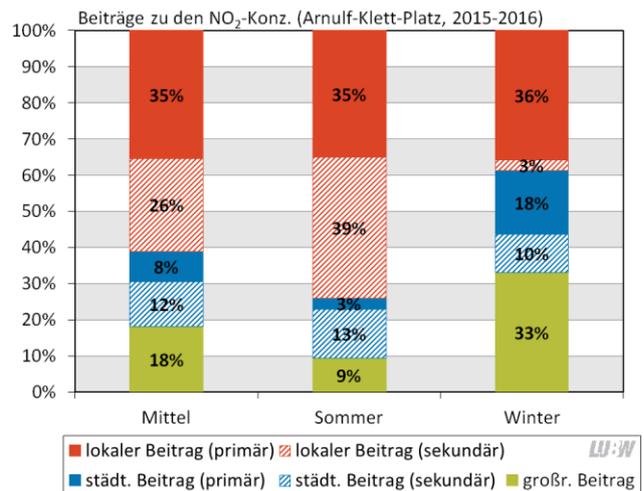
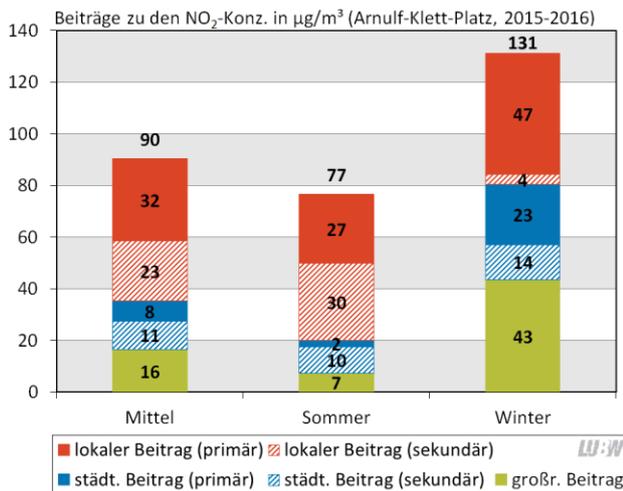


Abbildung 3-16: Aggregierte Beiträge zu den NO₂-Konzentrationen an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz während NO₂-Überschreitungsstunden Am Neckartor (links absolut, rechts relativ)

Tabelle 3-29: Übersicht über die drei Messpunkte Stuttgart Am Neckartor, Stuttgart Arnulf-Klett-Platz und München Landshuter Allee

	Stuttgart Am Neckartor	Stuttgart Arnulf-Klett-Platz	München Landshuter Allee
Distanz zum Messpunkt Neckartor (Luftlinie)	-	0,9 km	190 km
(offizieller) NO ₂ -Jahresmittelwert 2015 in µg/m ³	87	62	83*
DTV (Kfz/Tag)	66.000	54.600	129.800**
Anteil sNfz	2,8 %	4,1 %	6,8 %**

* Wert von 2014 ** [RvO 2015]

DTV = durchschnittliche tägliche Verkehrsstärke sNfz = schwere Nutzfahrzeuge

LU:W

3.3.2 ÜBERTRAG AUF DEN MESSPUNKT STUTTGART AM NECKARTOR

Jahreswerte

Da an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor keine Messungen der Ozonkonzentration durchgeführt werden, kann der Anteil sekundärer Bildungsprozesse an den gemessenen NO₂-Immissionen mit dem beschriebenen Verfahren hier nicht abgeschätzt werden. Für eine entsprechende Abschätzung muss stattdessen auf Untersuchungen an Standorten zurückgegriffen werden, für die der Beitrag der sekundären Bildung von NO₂ bereits ermittelt wurde. Dies ist zum einen für die benachbarte, aber weniger belastete Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz der Fall, zum anderen für die weiter entfernte, aber ähnlich hoch belastete Station München Landshuter Allee [LfU 2015]. In Tabelle 3-29 finden sich detailliertere Informationen zu allen drei Messpunkten.

Der abgeschätzte Beitrag der sekundären NO₂-Bildung an den beiden Vergleichsstationen ist in Abbildung 3-17 gezeigt. Es zeigt sich, dass der Anteil des

primären lokalen Beitrages (d. h. der verkehrsbedingten NO₂-Direktemissionen) in der Landshuter Allee im Jahresmittel fast die Hälfte (45 %, 37 µg/m³) der NO₂-Belastung verursacht [LfU 2015]. Am Stuttgarter Arnulf-Klett-Platz war dieser Anteil mit 27 % bzw. 17 µg/m³ deutlich geringer. Auch der Beitrag der sekundären lokalen NO₂-Bildung ist in der Landshuter Allee größer als am Arnulf-Klett-Platz. Die Hintergrundbelastung ist hingegen in München deutlich geringer als in Stuttgart³⁴.

Auffällig ist, dass der lokale NO₂-Beitrag sowohl am Arnulf-Klett-Platz als auch in der Landshuter Allee zu jeweils fast genau 60 % auf NO₂-Direktemissionen und zu rund 40 % auf sekundäre Prozesse zurückzuführen ist (Arnulf-Klett-Platz: 59 % : 41 %, Landshuter Allee: 61 % : 39 %). Dies ist um-

³⁴ Der Ozonabbau im städtischen Hintergrund sowie der großräumige Beitrag wurden in München nicht untersucht.

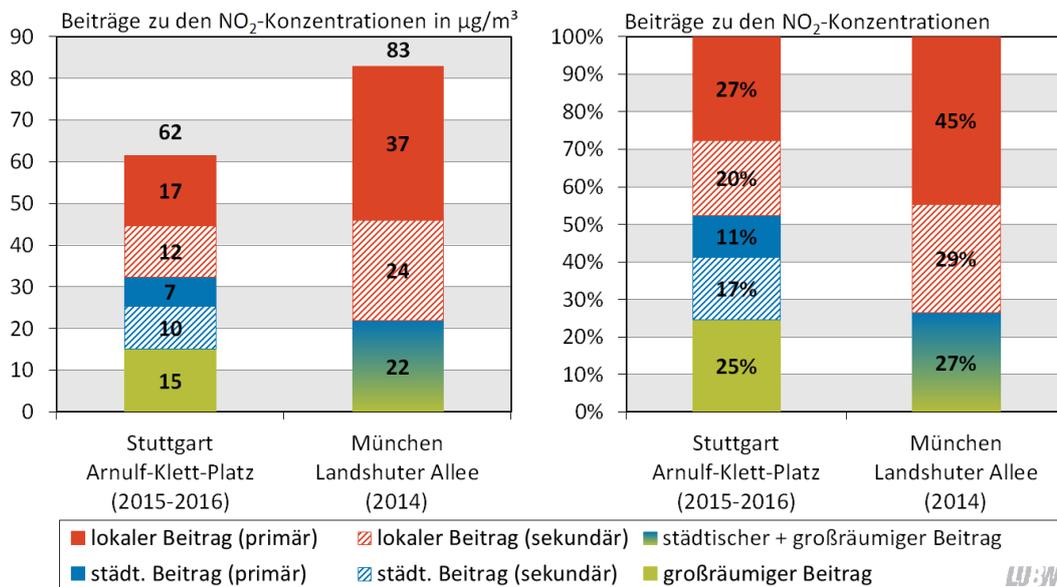


Abbildung 3-17: Vergleich der Ergebnisse aus Stuttgart und München (links absolut, rechts relativ)

so bemerkenswerter, als sich die Stationen, wie in Tabelle 3-29 gezeigt, hinsichtlich der Verkehrsbelastung und der geographischen Lage deutlich voneinander unterscheiden. Wenn man davon ausgeht, dass sich der lokale NO₂-Beitrag auch am Messpunkt Am Neckartor nach diesem 60:40-Verhältnis aufteilt³⁵ und ferner davon ausgeht, dass der städtische und der großräumige Beitrag Am Neckartor ebenso groß sind wie am Arnulf-Klett-Platz, ergibt sich die in Abbildung 3-18 gezeigte Verteilung³⁶. Demnach sind im Mittel 38 % bzw. 33 µg/m³ der NO₂-Immissionsbelastung Am Neckartor auf lokale NO₂-Direkt-emissionen zurückzuführen, während die lokale sekundäre NO₂-Bildung 25 % bzw. 22 µg/m³ der Immissionen beiträgt. Wie groß der Beitrag sekundärer NO₂-Bildungsprozesse Am Neckartor im Jahresverlauf (Sommer-/Winterhalbjahr) ist, kann aufgrund der Datenlage nicht abgeschätzt werden.

NO₂-Überschreitungsstunden

Überschreitungsstunden wurden an der Station München Landshuter Allee bisher nur episodisch untersucht [LfU 2017]. Dabei wurde festgestellt, dass der Beitrag der sekundären lokalen Bildung von

NO₂ während sommerlicher, ozonreicher Überschreitungsstunden phasenweise über 100 µg/m³ NO₂ bzw. über 50 % der NO₂-Immissionen liegen kann. Der Beitrag sekundärer Bildungsprozesse ist dann größer als der Beitrag lokaler Direktemissionen. Dies deckt sich mit den am Arnulf-Klett-Platz gemachten Erkenntnissen, wonach während der Überschreitungsstunden 53 % des lokalen Immissionsbeitrages auf sekundäre Bildungsprozesse zurückzuführen sind.

Die Auswertungen in Kapitel 3.2.1 (S. 50) und 3.2.2 (S. 56) haben ergeben, dass das NO₂/NO_x-Verhältnis während sommerlicher Überschreitungsstunden am Arnulf-Klett-Platz deutlich erhöht ist, Am Neckartor hingegen nahezu unverändert. Sekundäre Prozesse würden zu einem Anstieg dieses Verhältnisses führen, so dass gefolgert werden kann, dass diese Prozesse Am Neckartor weniger wichtig sind als am Arnulf-Klett-Platz. Der Grund ist, dass an der Messstelle Am Neckartor zwar ein großes Reservoir an NO als Ausgangsstoff für sekundäre Bildungsprozesse zur Verfügung steht, die Oxidation aber offenbar durch die nur begrenzt zur Verfügung stehende Menge Ozon limitiert wird. Wenn man im Sinne einer Maximalabschätzung davon ausgeht, dass der lokale NO₂-Beitrag am Messpunkt Am Neckartor während sommerlicher Überschreitungsstunden zu maximal der Hälfte auf sekundäre Bildungsprozesse

³⁵ Es kann keine Aussage darüber getroffen werden, wie realistisch diese Annahme ist.

³⁶ Abweichungen zu den in anderen Berichten veröffentlichten offiziellen Jahreskenngrößen ergeben sich aus den in Kapitel 3.2.3 genannten Gründen.

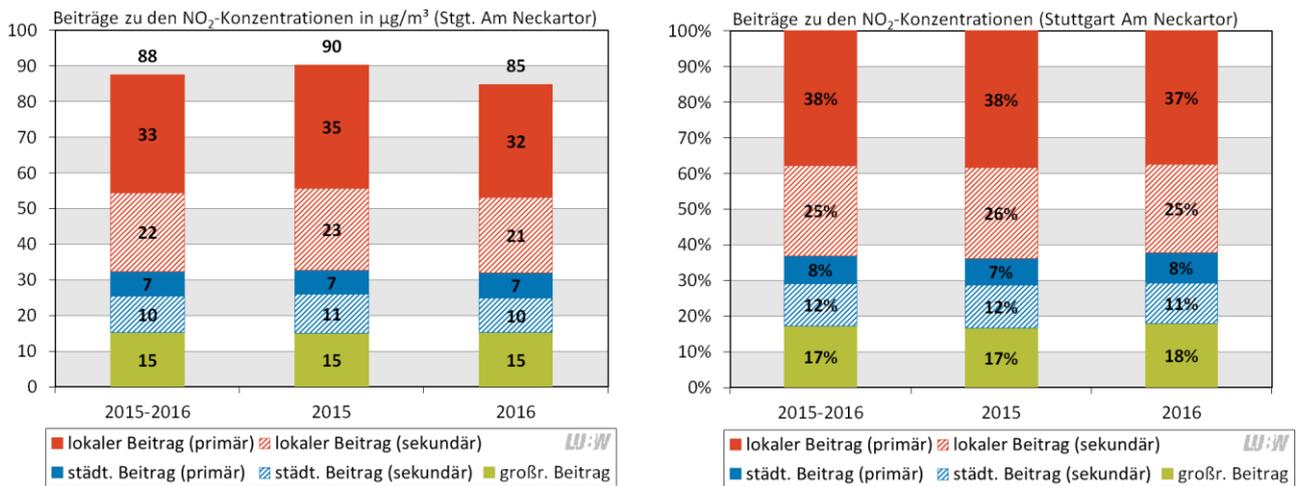


Abbildung 3-18: Abschätzung des Beitrags sekundärer NO₂-Bildungsprozesse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Jahresmittel (links absolut, rechts relativ)

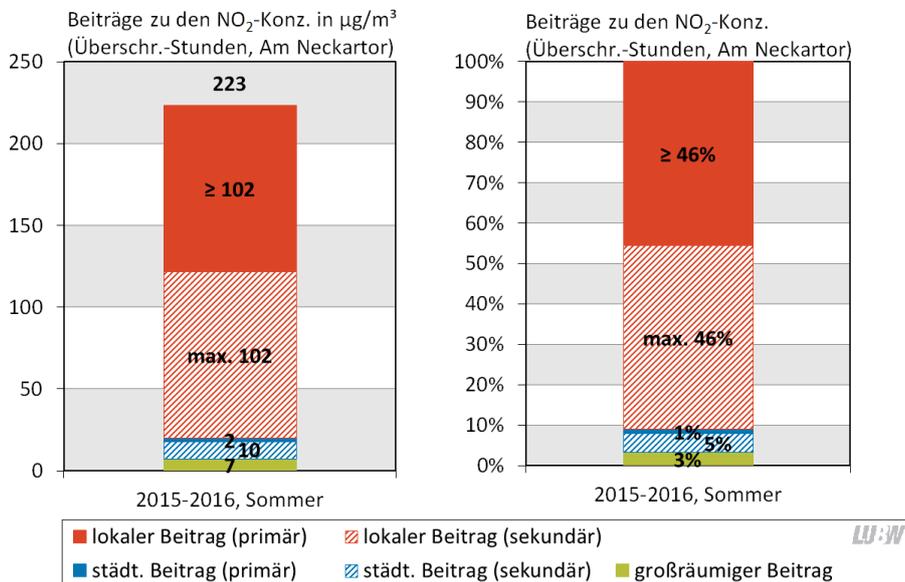


Abbildung 3-19: Maximalabschätzung des Beitrags sekundärer NO₂-Bildungsprozesse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor während sommerlicher Überschreitungsstunden (links absolut, rechts relativ)

zurückzuführen ist, ergibt sich die in Abbildung 3-19 gezeigte Verteilung. Demnach sind während sommerlicher Überschreitungsstunden höchstens 46 % bzw. 102 µg/m³ der NO₂-Immissionsbelastung Am Neckartor auf lokale sekundäre Bildungsprozesse zurückzuführen. Über die tatsächliche Höhe der Beiträge kann keine Aussage gemacht werden.

3.3.3 URSACHENANALYSE NO₂ INCL. SEKUNDÄREN PROZESSEN UND NO₂-DIREKTEMISSIONEN

Die LUBW erstellt jährlich Ursachenanalysen für Messpunkte, an denen Luftqualitätsgrenzwerte überschritten werden (siehe z. B. [LUBW 2016b]). Bei den Ursachenanalysen für den Luftschadstoff NO₂

werden, ähnlich wie in der vorliegenden Auswertung, lokale, städtische und großräumige Einflüsse mithilfe des Lenschow-Ansatzes unterschieden (Abbildung 3-20)³⁷. Für jeden dieser Beiträge werden dann die relevanten Verursacher bzw. Verursachergruppen auf Basis der im Emissionskataster Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b] hinterlegten NO_x-Emissionen bestimmt. Hierin sind sowohl NO₂- als auch NO-Emissionen enthalten.

³⁷ Zu beachten ist, dass zur Ermittlung des großräumigen und des städtischen Hintergrundes in der Ursachenanalyse (Abbildung 3-20) etwas anders vorgegangen wurde als in der vorliegenden Auswertung, weshalb sich die Zahlenwerte leicht unterscheiden.

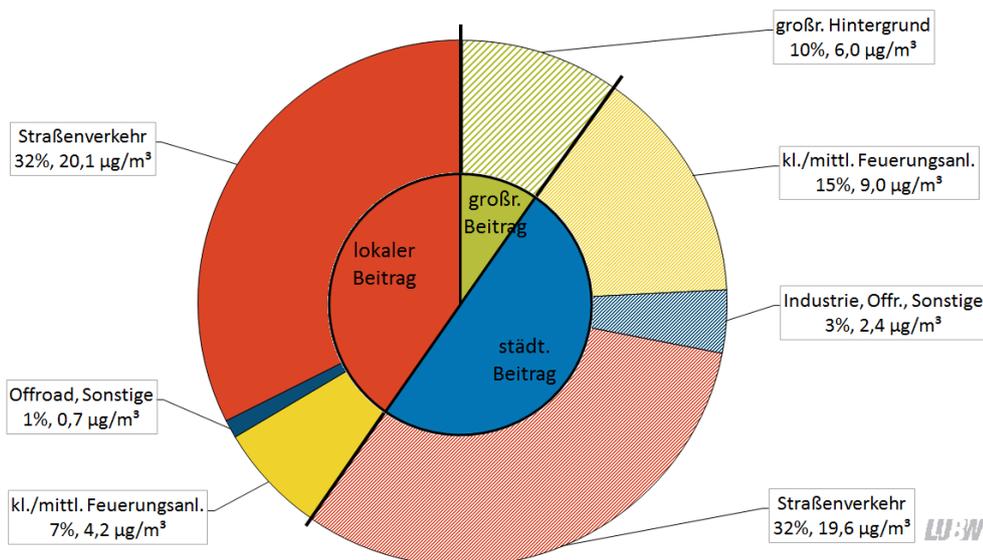


Abbildung 3-20: Ursachenanalyse für NO_2 an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 [LUBW 2016b]

Durch die Berücksichtigung der NO -Emissionen wird in der bisherigen Ursachenanalyse [LUBW 2016b] implizit angenommen, dass die emittierten NO -Moleküle während des Transports von der Quelle zur Messstation vollständig zu NO_2 oxidiert werden. Dies ist im großräumigen und im städtischen Hintergrund in erster Näherung richtig, wie die hohen NO_2/NO_x -Verhältnisse an diesen Stationen bestätigen (vgl. Seite 54). An verkehrsnahen Standorten ist aufgrund des geringen Abstandes zwischen Quelle und Messstation jedoch noch nicht jedes NO -Molekül tatsächlich zu NO_2 oxidiert worden (vgl.

Seite 54), d. h. in Verkehrsnähe überschätzt das bisherige Vorgehen systematisch den Einfluss sekundärer Prozesse. Für eine Weiterentwicklung der Ursachenanalyse ist deshalb insbesondere der lokale Beitrag zur NO_2 -Immission neu zu bewerten.

Im ersten Schritt wurde dabei zunächst ermittelt, welcher Anteil des lokalen Immissionsbeitrages auf primäre NO_2 -Direktemissionen und welcher Anteil auf sekundäre Prozesse zurückzuführen ist (Abbildung 3-21). Hierzu wurde auf die zuvor gezeigten Untersuchungen zurückgegriffen, die zeigen,

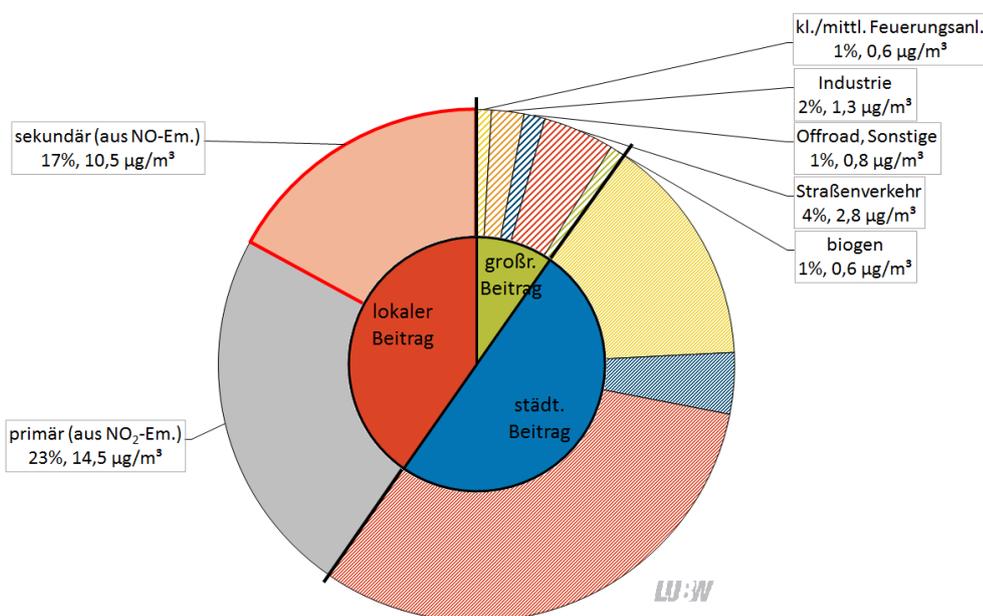


Abbildung 3-21: Ursachenanalyse für NO_2 an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 mit Unterscheidung primärer lokaler Emissionen und sekundärer lokaler Prozesse; die Zahlenwerte im städtischen Beitrag haben sich gegenüber der vorigen Abbildung nicht geändert

dass an der Messstation Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 rund 42 % des lokalen Immissionsbeitrages auf sekundäre Prozesse zurückzuführen waren. Der Vollständigkeit halber wurde auch für den primären Beitrag des großräumigen Hintergrundes eine Quellzuordnung entsprechend der landesweiten NO_x-Emissionen durchgeführt.

Im nächsten Schritt wurde der lokale primäre Immissionsbeitrag den lokalen NO₂-Emissionen zugeordnet, während der lokale sekundäre Immissionsbeitrag

den lokalen NO-Emissionen zugeordnet wurde. Bezüglich der Emissionen des Straßenverkehrs konnten die lokalen NO₂- und NO-Emissionen aus einer Sonderauswertung des Emissionskatasters Baden-Württemberg 2014 [LUBW 2017b] ermittelt werden. Bezüglich der Emissionen der anderen Quellgruppen wurde pauschal davon ausgegangen, dass 30 % ihrer NO_x-Emissionen als NO₂ und die restlichen 70 % als NO erfolgen. Das Ergebnis der Aufteilung ist in Abbildung 3-22 gezeigt.

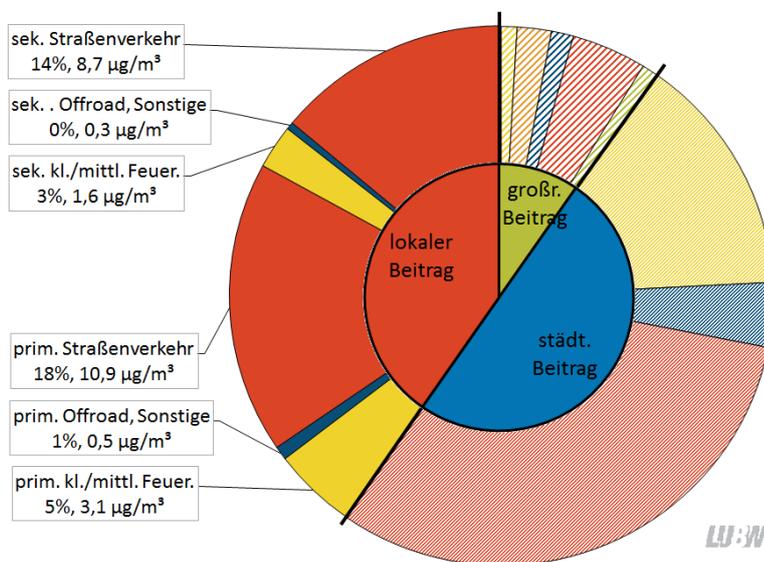


Abbildung 3-22: Ursachenanalyse für NO₂ an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 mit Zuordnung der primären und sekundären Beiträge zu den entsprechenden Quellgruppen; die Zahlenwerte im städtischen und im großräumigen Beitrag haben sich gegenüber der vorigen Abbildung nicht geändert

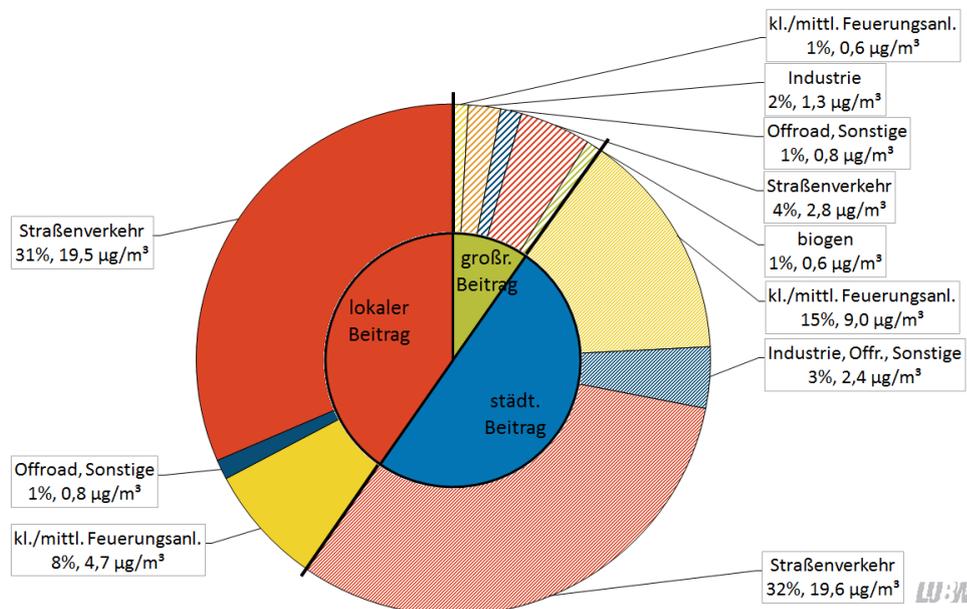


Abbildung 3-23: Zusammengefasste Ursachenanalyse für NO₂ am Messpunkt Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Jahr 2015 mit Berücksichtigung der Quellen von sekundären Partikelbestandteilen

In Abbildung 3-23 ist eine zusammengefasste Ursachenanalyse gezeigt, bei der primäre und sekundäre lokale Quellen zusammengefasst wurden. Die Unterschiede zur bisherigen Ursachenanalyse (Abbildung 3-20) sind vernachlässigbar gering.

Zukünftige Entwicklung

Der lokale Beitrag zu den NO₂-Immissionen wird durch die Emissionen aus dem Straßenverkehr, insbesondere den Diesel-Pkw, dominiert. Das Emissionsverhalten von Diesel-Pkw hat sich in der Vergangenheit sowohl in Bezug auf die NO_x- als auch in Bezug auf die NO₂-Emissionen deutlich geändert (Abbildung 3-24). Diesel-Pkw der Normstufen Euro 6dTEMP und Euro 6d zeigen sowohl niedrigere NO- als auch niedrigere NO₂-Emissionen als ältere Diesel-Pkw. Angesichts der absehbaren Zunahme des Anteils dieser Fahrzeuge an der Kfz-Flotte ist damit zu rechnen, dass zukünftig sowohl der Beitrag lokaler NO₂-Emissionen als auch der Beitrag der lokalen sekundären Bildung von NO₂ zurückgehen wird (vgl. Abbildung 3-22).

3.4 Maßnahmen

3.4.1 MINDERUNG VON PRIMÄR GEBILDETEN STICKSTOFFOXIDEN

Stickstoffoxide (NO_x) entstehen nahezu ausschließlich bei Verbrennungsvorgängen in stationären Anlagen (z. B. Kraftwerke) und mobilen Motoren durch Oxidation des im Brennstoff und der Verbrennungsluft enthaltenen Stickstoffes. Sie werden überwiegend als Stickstoffmonoxid (NO) emittiert und anschließend in der Atmosphäre zu Stickstoffdioxid (NO₂) oxidiert. Im Straßenverkehrsbereich (im direkten Nahbereich der Quelle) nahm der direkt gebildete Anteil an NO₂ im Abgas durch bei den Dieselfahrzeugen eingesetzte Oxidations-Katalysatoren (Oxi-Kat) ab etwa dem Jahr 2000 deutlich zu, geht inzwischen aber wieder zurück (vgl. Anhang 4.4 ab Seite 93 sowie [LUBW 2015c] und [LUBW 2017c]). Aktuelle Motorgenerationen zeigen hingegen wieder eine Abnahme der NO₂-Direktemissionen (Abbildung 3-24). Ein relativ geringer prozessbedingter Anteil an den NO₂-Freisetzungen ist vornehmlich dem Bereich Chemie (Salpetersäureherstellung und -verwendung, Düngemittelherstellung etc.) zuzuordnen.

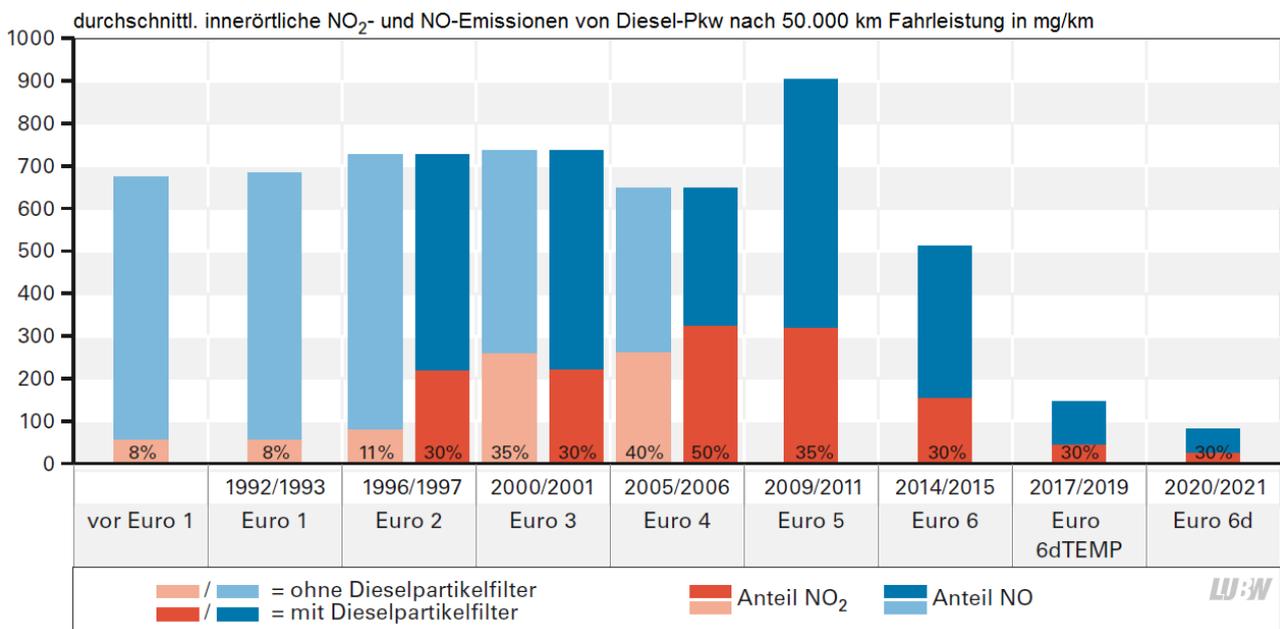


Abbildung 3-24: Entwicklung der innerörtlichen Stickstoffoxidemissionen von Diesel-Pkw nach 50.000 km Fahrleistung, unterschieden nach NO und NO₂ [HBEFA 3.3]; Flotte Deutschland, Durchschnittsverkehr, Durchschnittssteigung; der Anteil der NO₂-Emissionen an den gesamten NO_x-Emissionen ist jeweils als Prozentwert angegeben; Grafik entnommen aus [LUBW 2017c]

Entscheidend für das Ausmaß der Bildung von Stickstoffoxiden sind die thermodynamischen Verbrennungsbedingungen, insbesondere Druck, Temperatur, Verweilzeit und Luftüberschuss. Diese variieren in den einzelnen Verursachersektoren stark. Primärseitige Emissionsminderungsmaßnahmen zielen dabei auf eine Optimierung der Verbrennungsbedingungen zur NO_x -Minderung (low- NO_x -Brenner, Flammenkühlung, Abgasrezirkulationssysteme etc.). Diese Maßnahmen können jedoch im Gegenzug die Konzentration weiterer Abgaskomponenten (Kohlenmonoxid, unverbrannte Kohlenwasserstoffe etc.) oder auch den energetischen Wirkungsgrad der Verbrennung negativ beeinflussen.

Bei Verbrennungsprozessen (Kraftwerke, Heizwerke/Heizanlagen) gibt es verschiedene Möglichkeiten der NO_x -Minderung:

- Primärmaßnahmen betreffen den Feuerungsprozess und verhindern die Entstehung von NO_x . Dazu gehören Luftstufung, Brennstoffstufung, interne Abgasrückführung, externe Abgasrückführung, Primäradditivierung sowie Quenchen (Eindüsung von Wasser zur Temperaturminderung).
- Sekundärmaßnahmen mindern das NO_x im Abgas (End-of-Pipe-Verfahren) z. B. durch katalytische (SCR-) oder nicht-katalytische (SNCR-) Verfahren durch Reduktion der Stickstoffoxide zu elementarem Stickstoff.

Die entstehenden Stickstoffoxide im Kraftwerks- bzw. Großfeuerungsbereich lassen sich sekundärseitig durch eine Nachbehandlung der Abgase (sogenannte DENOX-Anlagen) vermindern.

Auch für die Abgase von Kraftfahrzeugen kommt die katalytische Abgasreinigung zum Einsatz. Hauptprodukte der dargestellten Reduktionsmaßnahmen sind elementarer Stickstoff, wie er zu ca. 78 Vol.-% in der Luft vorkommt, sowie Wasser. Als Nebenreaktionen können geringe Mengen an Lachgas (N_2O) entstehen. Außerdem können sowohl bei den katalytischen als auch bei den nichtkatalytischen Sekundärmaßnahmen geringe Mengen an Ammoniak entweichen (NH_3 -Schlupf). Dieses kann in der At-

mosphäre langsam zu NO_x umgesetzt werden oder zur sekundären Partikelmasse beitragen.

3.4.2 MINDERUNG VON SEKUNDÄR GEBILDETEN STICKSTOFFOXIDEN

Eine Maßnahme zur Minderung der Belastung durch sekundäres Stickstoffdioxid wäre die Minderung der Stickstoffmonoxid-Emissionen selbst sowie die Minderung oxidativ wirkender Komponenten in der Atmosphäre, die das Stickstoffmonoxid erst in Stickstoffdioxid umwandeln. Als wichtigstes bodennahes Photooxidans wäre dies das Ozon, welches sich selbst aus Vorläufersubstanzen erst bildet (vgl. Kapitel 3.1).

Ozon und andere Photooxidantien entstehen als Sekundärverbindungen aus Stickstoffoxiden (NO_x), flüchtigen organischen Verbindungen (NMVOC und Methan (CH_4)), ggf. Kohlenmonoxid (CO) und unter dem Einfluss von Sonnenlicht (UV-Strahlung). Diese Ozonvorläufer stammen sowohl aus natürlichen (biogenen, z. B. Terpene und Isopren aus der Vegetation) als auch aus anthropogenen Quellen. In Baden-Württemberg liegen die natürlichen gegenüber den anthropogenen NMVOC-Emissionen im Jahresmittel zwar auf ähnlichem Niveau, während sommerlicher Ozonepisoden können natürliche Quellen aber in erheblichem Maße zu den NMVOC-Gesamtemissionen beitragen. Die NMVOC-Emissionen der Nadelwälder als einem der wichtigsten biogenen Eintragspfade folgen der bodennahen Lufttemperatur nach einem Exponentialgesetz, d. h. die Emissionen steigen überproportional zum Anstieg der Lufttemperatur. Abbildung 2-22 (Seite 36) und Abbildung 2-27 (Seite 37) in Kapitel 2 zeigen die Verteilung der NO_x -Emissionen in Baden-Württemberg und im Stadtkreis Stuttgart, Abbildung 2-24 (Seite 36) und Abbildung 2-29 (S. 38) die NMVOC-Emissionen in den jeweiligen räumlichen Auflösungen.

Abbildung 3-25 zeigt die Methanemissionen für Baden-Württemberg 2014, Abbildung 3-26 die Methan-Emissionen für den Stadtkreis Stuttgart im gleichen Jahr [LUBW 2017b].

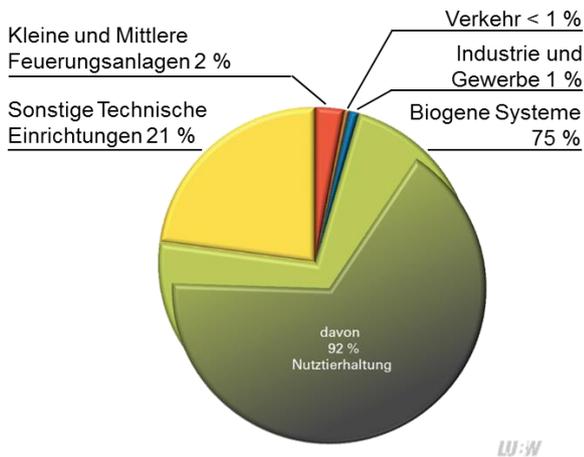


Abbildung 3-25: Methan-Emissionen in Baden-Württemberg im Jahr 2014

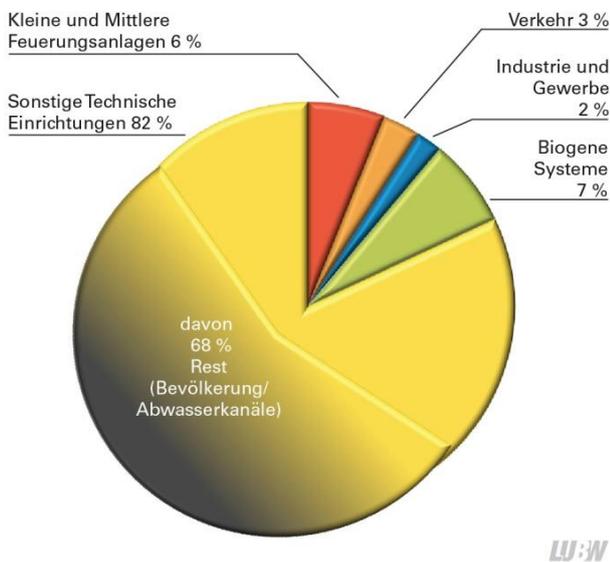


Abbildung 3-26: Methan-Emissionen im Stadtkreis Stuttgart im Jahr 2014

Neben dem aus lokalen und regionalen NO_x - und NMVOC-Quellen photochemisch gebildeten Ozon trägt auch das nordhemisphärische Hintergrund-Ozon zu den bodennahen Ozon-Konzentrationen bei. Der nordhemisphärische Hintergrund besteht neben einem stratosphärischen Anteil (eingemischt über Tropopausenbrüche) vor allem aus dem photochemisch innerhalb der Troposphäre aus den Emissionen der Ozonvorläuferstoffe in Nordamerika, Asien und Europa gebildeten Ozon. Auch dieses Ozon kann in bodennahe Luftschichten eingemischt werden bzw. wird direkt in Bodennähe gebildet. Die Ozonbeiträge aus diesen Regionen sowie die globale Entwicklung der Emissionen der Ozonvorläuferstoffe sind noch mit erheblichen Unsicherheiten behaf-

tet. Als weitere Quelle für Ozon sind Blitze zu nennen, deren Beitrag zur Ozonkonzentration in der Atmosphäre jedoch nicht bekannt ist.

Abbau in der Atmosphäre

Die Lebensdauer von Stickstoffoxiden beträgt in Bodennähe etwa einen Tag; in einigen Kilometern Höhe dauert der Abbau bereits mehrere Wochen.

Durch den Zusatz von Titandioxid (Anatas) zu (Sicht-)Beton, Straßenbelag oder Fassadenfarben können Stickstoffoxide katalytisch mittels UV-Licht (Sonne) in Nitrate umgewandelt werden (Photokatalyse), welche dann bei Regen abgespült werden. Prinzipiell ist eine NO_2 -Minderungswirkung durch Photokatalyse gegeben. Auf Basis verschiedener Studien erscheint die Möglichkeit einer NO_x -Minderung von bis zu 2 % wahrscheinlich. Dem gegenüber stehen die zusätzlichen Baukosten sowie die nur auf den unmittelbaren Einflussbereich der Maßnahme begrenzte Minderung. Somit kann eine großflächige NO_x -Minderung mit Hilfe der Photokatalyse nicht erzielt werden. Zudem muss berücksichtigt werden, dass durch den Einsatz eines Photokatalysators die Bildung von z. B. Formaldehyd begünstigt wird [Kleffmann 2016]. Auch durch Adsorption an mit Metalloxiden modifizierter Aktivkohle können Stickstoffoxide teilweise in Stickstoff umgewandelt werden.

3.5 Fazit

Stickstoffdioxid wird sowohl direkt emittiert, insbesondere durch den Straßenverkehr und hier vor allem von Dieselfahrzeugen, als auch sekundär in der Atmosphäre aus gasförmigen Vorläufersubstanzen gebildet. Die lokalen Direktmissionen von Stickstoffdioxid sind an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz, weitgehend unabhängig von der Jahreszeit, im Mittel für knapp 30 % der Immissionen verantwortlich. An Überschreitungsstunden liegt der Beitrag der lokalen Direktmissionen etwas höher (nahezu konstant 36 %, unabhängig von der Jahreszeit).

Bei der sekundären Bildung von Stickstoffdioxid wird Stickstoffmonoxid, das meist ebenfalls durch den Straßenverkehr emittiert wird, durch Ozon zu

Stickstoffdioxid oxidiert. Dieser Prozess ist lokal an der Station Stuttgart Arnulf-Klett-Platz im Winter für rund 15 % und im Sommer für rund 25 % der Stickstoffdioxidimmissionen verantwortlich. An Überschreitungsstunden im Winter haben lokale sekundäre Prozesse nahezu keinen Beitrag (3 %), die Überschreitungen sind hauptsächlich auf schlechte Austauschbedingungen mit der Folge großräumig erhöhter NO₂-Konzentrationen zurückzuführen. Während der Überschreitungsstunden im Sommer stammt der größte Beitrag zur Stickstoffdioxidkonzentration (39 %) hingegen aus der lokalen sekundären Bildung von Stickstoffdioxid.

Auf der Basis eines Vergleichs mit einer Auswertung für die hochbelastete Station München Landshuter Allee wurde abgeschätzt, dass lokale NO₂-Direktmissionen an der Messstelle Am Neckartor für 38 % der NO₂-Immissionen verantwortlich sind.

Lokale sekundäre Prozesse tragen zu 25 % der Immissionen bei.

Die bisherige Ursachenanalyse [LUBW 2016b] wird auf Basis der Stickstoffoxidemissionen (Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid) erstellt. Hierdurch wird der Einfluss sekundärer Prozesse in Verkehrsnähe geringfügig überschätzt.

Maßnahmen, um die Belastung durch sekundäres Stickstoffdioxid zu mindern, sind die Minderung der Vorläufersubstanzen, also des NO, sowie die Minderung des oxidativen Potentials der Atmosphäre. Letzteres kann durch Minderung z. B. der Ozonkonzentration erreicht werden, wobei dafür die Ozon-Vorläufersubstanzen wie z. B. die Nichtmethan-Kohlenwasserstoffen (NMVOC) in der Atmosphäre gemindert werden müssen [UM 1995a, UM 1995b].

4 Anhang

4.1 Literatur

[1. BImSchV]: Erste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über kleine und mittlere Feuerungsanlagen – 1. BImSchV) 26. Januar 2010 (BGBl. I S. 38), die zuletzt durch Artikel 16 Absatz 4 des Gesetzes vom 10. März 2017 (BGBl. I S. 420) geändert worden ist.

[39. BImSchV]: Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen – 39. BImSchV) vom 2. August 2010 (BGBl. I S. 1065), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 10. Oktober 2016 (BGBl. I S. 2244) geändert worden ist.

[BDH 2016]: Bundesverband der deutschen Heizungsindustrie: Informationsblatt 66 – NO_x-Emission bei Feuerungsanlagen – Entstehung, Reduktionsmöglichkeiten, Messtechnik und aktuelle Grenzwerte, Köln, 2016, http://www.bdh-koeln.de/fileadmin/user_upload/Publikationen/Infoblaetter/Infoblatt_Nr_66_NOx-Emission_Feuerungsanlagen.pdf.

[BMU 2005]: U. Lahl, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Feinstaub – eine gesundheitspolitische Herausforderung, Vortrag auf dem 46. Kongress der Deutschen Gesellschaft für Pneumologie, 17. März 2005, Berlin.

[Clegg et al. 1998]: S. L. Clegg, P. Brimblecombe, A. S. Wexler: A thermodynamic model of the system H⁺ - NH₄⁺ - Na⁺ - SO₄²⁻ - NO₃⁻ - Cl⁻ - H₂O at 298.15 K, Journal of Physical Chemistry A 102, 1998, S. 2155 - 2171, <http://www.aim.env.uea.ac.uk/aim/model3/model3a.php>.

[ITADA 2017]: Institut Transfrontalier d'Application et de Développement Agronomique (Grenzüberschreitendes Institut zur rentablen umweltgerechten Landbewirtschaftung)

[Kleffmann 2016]: J. Kleffmann, H. Hermann, C. George: Verbessert Photokatalyse die Luftqualität? Nachrichten aus der Chemie [64], Juni 2016.

[Lenschow et al. 2001]: P. Lenschow, H. J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J. D. Preuss, W. Reichenbacher: Some ideas about the sources of PM₁₀, Atmospheric Environment 35(1), 2001, S. 23 – 33, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00122-4](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00122-4).

[LfU 2015]: Bayerisches Landesamt für Umwelt (LfU): Untersuchung der räumlichen Verteilung der NO_x-Belastung im Umfeld von vorhandenen, hochbelasteten Luftmessstationen, Augsburg, 2015, http://www.bestellen.bayern.de/shoplink/lfu_luft_00192.htm.

[LfU 2017]: Bayerisches Landesamt für Umwelt (LfU): Luftreinhalteplanung – Maßnahmen gegen Feinstaub und Stickstoffoxide, Tagungsband, Augsburg, 2017, http://www.bestellen.bayern.de/shoplink/lfu_luft_00199.htm.

[LRP BW]: Luftreinhaltepläne der Regierungspräsidien von Baden-Württemberg, <https://rp.baden-wuerttemberg.de/Seiten/Startseite.aspx>.

[LUBW 2007a]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Einflussgrößen auf die zeitliche und räumliche Struktur der Feinstaubkonzentrationen, Karlsruhe, 2007.

[LUBW 2007b]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg [Hrsg.]: Auswirkungen zukünftiger NO_x- und NO₂-Emissionen des Kfz-Verkehrs auf die Luftqualität in hoch belasteten Straßen in Baden-Württemberg, Karlsruhe, 2007.

[LUBW 2008]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Ammoniak in der Umwelt – Messprogramme und Messergebnisse 2003-2007, Karlsruhe, 2008.

[LUBW 2009]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Untersuchung von massenrelevanten Inhaltsstoffen in Feinstaub PM₁₀ an drei Messstationen in Baden-Württemberg in den Jahren 2006 und 2007, Karlsruhe, 2009, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/207409>.

[LUBW 2010]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Entwicklung der Stickstoffoxidkonzentrationen in Baden-Württemberg von 1989 bis 2009, Karlsruhe, 2010, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/73507>.

[LUBW 2015a]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Untersuchung erhöhter Partikel PM₁₀-Immissionen im Stadtzentrum von Stuttgart – Ergebnisse 2014, Karlsruhe, 2015, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/254611>.

[LUBW 2015b]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Luftschadstoff-Emissionskataster Baden-Württemberg 2012, Karlsruhe, 2015, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/249686>.

[LUBW 2015c]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Modellierung verkehrsbedingter Immissionen – Anforderungen an die Eingangsdaten – Grundlage HBEFA 3.1 (aktualisiert auf HBEFA 3.2), Leitfaden, April 2015, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/77522>.

[LUBW 2016a]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Beiträge von Streusalz und natürlichen Quellen zu den Partikel PM₁₀-Immissionen in Baden-Württemberg – Kurzbericht für das Jahr 2015, Karlsruhe,

2016, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/262088>.

[LUBW 2016b]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Luftreinhaltepläne für Baden-Württemberg – Grundlagenband 2015, Karlsruhe, 2016, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/265221>.

[LUBW 2017a]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Beiträge von Streusalz und natürlichen Quellen zu den Partikel PM₁₀-Immissionen in Baden-Württemberg – Kurzbericht für das Jahr 2016, Karlsruhe, 2017, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/268348>.

[LUBW 2017b]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Luftschadstoff-Emissionskataster Baden-Württemberg 2014, Karlsruhe, 2017, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/267731>.

[LUBW 2017c]: LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg: Ergebnisse der Spotmessungen Baden-Württemberg 2016, Karlsruhe, 2017, <http://www4.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/273283>.

[LUBW Holz]: Broschüren Heizen mit Holz – „Was Sie beim Kauf und Einsatz von Kamin- und Einzelöfen wissen sollten“, „Was Sie beim Kauf und dem Betrieb von Kesselanlagen wissen sollten“, <https://www.lubw.baden-wuerttemberg.de/betrieblicher-umweltschutz/heizen-mit-holz>.

[LV Bau]: Verordnung der Landesregierung zur Verbesserung der Luftqualität in Gebieten mit hoher Luftschadstoffbelastung (Luftqualitätsverordnung-Baumaschinen) vom 15. Dezember 2015 (GBl. Nr. 25, S. 1249).

[LV KFA]: Verordnung der Landesregierung über Betriebsbeschränkungen für kleine Feuerungsanlagen (Luftqualitätsverordnung - Kleinf Feuerungsanlagen) vom 31. Januar 2017 (GBl. Nr. 2, S. 56).

[Jeffries und Crouse 1990]: H. E. Jeffries, R. Crouse: Scientific and Technical Issues Related to the Application of Incremental Reactivity, Chapel Hill, 1990.

[Scheinhardt et al. 2013a]: S. Scheinhardt, K. Müller, G. Spindler, H. Herrmann: Complexation of trace metals in size-segregated aerosol particles at nine sites in Germany, Atmospheric Environment 74, 2013, S. 102 – 109, <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.03.023>.

[Scheinhardt et al. 2013b]: S. Scheinhardt, G. Spindler, S. Leise, K. Müller, Y. Iinuma, F. Zimmermann, J. Matschullat, H. Herrmann: Comprehensive chemical characterisation of size-segregated PM₁₀ in Dresden and estimation of changes due to global warming, Atmospheric Environment 75, 2013, S. 365 – 373, <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.04.059>.

[Scheinhardt 2013c]: S. Scheinhardt: Größenaufgelöste Charakterisierung von Aerosolpartikeln in Deutschland: Einfluss klimatischer Änderungen und Bildung von Metallkomplexen, Dissertation, Universität Leipzig, 2013.

[Scheinhardt et al. 2014]: S. Scheinhardt, D. van Pinxteren, K. Müller, G. Spindler, H. Herrmann: Hydroxymethanesulfonic acid in size-segregated aerosol particles at nine sites in Germany, Atmospheric Chemistry and Physics 14, 2014, S. 4531 – 4538, www.atmos-chem-phys.net/14/4531/2014/.

[RvO 2015]: Regierung von Oberbayern: Luftreinhalteplan für die Stadt München – 6. Fortschreibung, München, Dezember 2015, <https://www.muenchen.de/rathaus/dam/jcr:c54209c6-7488-4fd1-9d17-02715c47cff3/6.%20Fortschreibung%20des%20Luftreinhalteplans.pdf>

[Seinfeld und Pandis 2016]: J. H. Seinfeld, S. N. Pandis: Atmospheric Chemistry and Physics – From Air Pollution to Climate Change, John Wiley & Sons Inc., 3. Auflage, Hoboken/New Jersey/USA, 2016.

[Turpin und Lim 2001]: B. J. Turpin, H. J. Lim: Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: Revisiting common assumptions for estimating organic mass, Aerosol Science and Technology 35(1), 2001, S. 602 – 610, <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/02786820119445>.

[UM 1995a]: Umweltministerium Baden-Württemberg: Ozonversuch Neckarsulm/Heilbronn – Dokumentation über die Vorbereitung und Durchführung des Versuchs, Stuttgart, 1995.

[UM 1995b]: Umweltministerium Baden-Württemberg: Ozonversuch Neckarsulm/Heilbronn – Wissenschaftliche Auswertungen, Stuttgart, 1995.

[VDI 2017]: Verein Deutscher Ingenieure: Schub für die Bremsenentwicklung, VDI-Nachrichten vom 22.12.2017, Nr.51/52, Seite 15.

4.2 Glossar

4.2.1 CHEMISCHE FORMELN UND SYMBOLE

HO•: Hydroxylradikal (ein Molekül bzw. Radikal, bestehend aus einem Wasserstoff- und einem Sauerstoffatom)

HO₂•: Hydroperoxylradikal (ein Molekül bzw. Radikal, bestehend aus einem Wasserstoffatom und zwei Sauerstoffatomen)

H₂O: Wasser (ein Molekül, bestehend aus zwei Wasserstoffatomen und einem Sauerstoffatom)

hν: Licht (bzw. Photon)

NO: Stickstoffmonoxid (ein Molekül bzw. Radikal, bestehend aus einem Stickstoff- und einem Sauerstoffatom)

NO₂: Stickstoffdioxid (ein Molekül bzw. Radikal, bestehend aus einem Stickstoffatom und zwei Sauerstoffatomen)

O₂: Sauerstoff (ein Molekül, bestehend aus zwei Sauerstoffatomen); einer der Hauptbestandteile von Luft

O₃: Ozon (Molekül, bestehend aus drei Sauerstoffatomen)

SO₂: Schwefeldioxid (ein Molekül, bestehend aus einem Schwefelatom und zwei Sauerstoffatomen)

SO₃: Schwefeltrioxid (ein Molekül, bestehend aus einem Schwefelatom und drei Sauerstoffatomen)

4.2.2 BEGRIFFE

Atom: chemisch nicht weiter teilbarer Baustein der Materie. Ein Atom besteht aus einem Atomkern, der von einer Hülle aus Elektronen umgeben ist. Jedes Atom gehört zu einem bestimmten chemischen Element.

Atomkern: Der Atomkern bestimmt durch seine Ladung die Struktur der ihn umgebenden Elektronenhülle und beeinflusst dadurch deren chemische Eigenschaften. Siehe auch Element.

Elektron: Baustein eines Atoms. Elektronen sind für nahezu alle chemischen Reaktionen und Eigenschaften verantwortlich. Elektronen können von einem Atom auf ein anderes übertragen werden.

Element: Alle Atomkerne eines chemischen Elements haben die gleiche Ladung und damit auch einen vergleichbaren Aufbau der Elektronenhülle, d. h. sie verhalten sich chemisch gleich. Alle bekannten Elemente sind im Periodensystem der Elemente dargestellt.

IuG: Industrie und Gewerbe

KMF: Kleine und Mittlere Feuerungsanlagen (Feuerungsanlagen, die der 1. BImSchV [1. BImSchV] unterliegen)

MEZ: Mitteleuropäische Zeit

Molekül: Zusammenschluss mehrerer Atome

NMVOCs: flüchtige organische Nichtmethankohlenwasserstoffe (engl. *non-methane volatile organic compounds*)

OC: Organischer Kohlenstoff

OM: Organisches Material

Organische Säure: *im Kontext dieses Berichts:* Molekül, das eine COOH-Gruppe trägt (d. h. eine Atomgruppe bestehend aus einem Kohlenstoff-, zwei Sauerstoff- und einem Wasserstoffatom)

PM₁₀: Partikel, die einen gröbselektierenden Luftreinlass passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 10 Mikrometern einen Abscheidegrad von 50 % aufweist.

PM_{2,5}: Partikel, die einen gröbselektierenden Luftreinlass passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 2,5 Mikrometern einen Abscheidegrad von 50 % aufweist.

Radikal: Atom oder Molekül mit einem oder mehreren ungepaarten Elektronen

SIA: sekundäres anorganisches Aerosol (engl. *secondary inorganic aerosol*)

SOA: sekundäres organisches Aerosol (engl. *secondary organic aerosol*)

STE: Sonstige Technische Einrichtungen

VOCs: flüchtige organische Kohlenwasserstoffe (engl. *volatile organic compounds*)

4.3 Weitere Auswertungen zu sekundären Partikeln

Als Ergänzung zum Hauptteil des Berichts werden im Folgenden zusätzliche Auswertungen für das Sommer- und das Winterhalbjahr vorgestellt.

4.3.1 SOMMERHALBJAHR

4.3.1.1 PARTIKEL PM₁₀

Die Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Sommerhalbjahr (d. h. 01.04. - 30.09. eines Kalenderjahres) ist in Abbildung 4-1 und Tabelle 4-1 gezeigt.

Grundsätzlich ähnelt die Partikelzusammensetzung im Sommer derjenigen im Jahresmittel, der Anteil von sekundären Partikeln war aber sowohl absolut als auch relativ niedriger als im Jahresmittel.

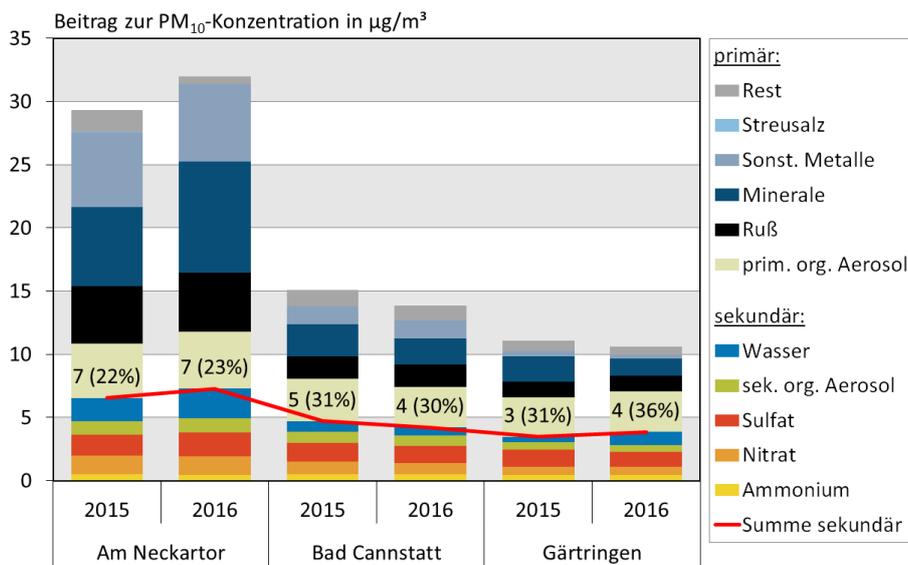


Abbildung 4-1: Zusammensetzung von Partikel PM₁₀ und Anteil sekundärer Partikelbestandteile im Sommerhalbjahr

Tabelle 4-1: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Sommerhalbjahr

	Zusammensetzung in µg/m ³						Zusammensetzung in %					
	Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen		Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen	
	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016
Primäre Bestandteile												
Rest	1,75	0,59	1,27	1,17	0,84	0,66	6 %	2 %	8 %	8 %	8 %	6 %
Streusalz	0,03	0,01	0,02	0,01	0,01	0,01	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
Sonst. Metalle	5,93	6,11	1,40	1,41	0,41	0,32	20 %	19 %	9 %	10 %	4 %	3 %
Minerale	6,22	8,80	2,55	2,07	1,98	1,30	21 %	28 %	17 %	15 %	18 %	12 %
Ruß	4,56	4,64	1,80	1,73	1,27	1,30	16 %	15 %	12 %	13 %	11 %	12 %
prim. org. Material	4,28	4,52	3,34	3,23	3,09	3,16	15 %	14 %	22 %	23 %	28 %	30 %
Sek. Bestandteile												
Wasser	1,87	2,34	0,87	0,64	0,45	1,04	6 %	7 %	6 %	5 %	4 %	10 %
sek. org. Material	1,07	1,13	0,83	0,81	0,55	0,56	4 %	4 %	6 %	6 %	5 %	5 %
Sulfat	1,64	1,88	1,52	1,40	1,38	1,19	6 %	6 %	10 %	10 %	12 %	11 %
Nitrat	1,49	1,49	0,97	0,85	0,62	0,63	5 %	5 %	6 %	6 %	6 %	6 %
Ammonium	0,49	0,46	0,53	0,52	0,48	0,46	2 %	1 %	3 %	4 %	4 %	4 %
Summen												
Summe sekundär	6,56	7,29	4,72	4,22	3,48	3,87	22 %	23 %	31 %	30 %	31 %	36 %
Summe gesamt	29,35	31,96	15,09	13,84	11,08	10,62	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %

LU:W

Um die Zusammensetzung der Partikel im Sommerhalbjahr besser mit derjenigen im Jahresmittel vergleichen zu können, wurde sowohl für die absoluten Konzentrationen als auch für die relativen Zusammensetzungen jeweils die Differenz zwischen dem Sommerhalbjahr und dem Jahresmittel berechnet. Das Ergebnis dieser Differenzbildungen ist in Abbildung 4-2 gezeigt. Man erkennt, dass die absoluten Konzentrationen aller PM₁₀-Inhaltsstoffe im Sommerhalbjahr geringer sind als im Jahresmittel. Bezüglich der relativen Zusammensetzung fällt auf, dass an allen Messstellen insbesondere die relativen

Beiträge von Nitrat und Wasser niedriger sind. Der Grund hierfür dürfte die bereits erwähnte erhöhte Flüchtigkeit von Ammoniumnitrat bei steigenden Temperaturen sein. Demgegenüber ist im Sommerhalbjahr vor allem an den Hintergrundstationen der relative Beitrag von mineralischen Partikeln höher als im Jahresmittel, was auf eine im Sommer erhöhte Trockenheit zurückzuführen sein kann, die die Bildung von Mineralstaub begünstigt. Beide Effekte führen dazu, dass der Anteil der sekundären Inhaltsstoffe an der PM₁₀-Masse im Sommer geringer ist als im Jahresmittel.

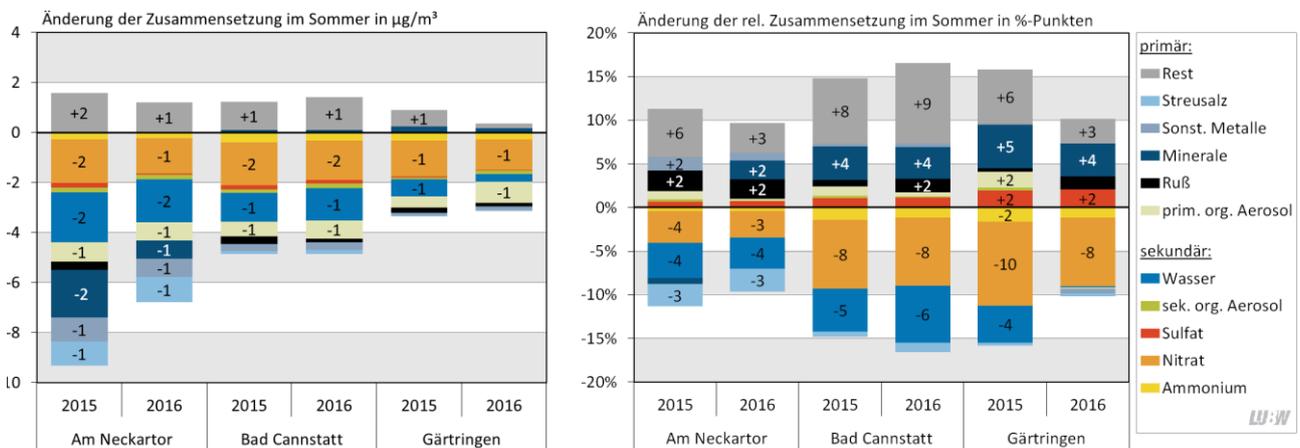


Abbildung 4-2: Änderung der absoluten (links) und relativen (rechts) Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Sommerhalbjahr im Vergleich zum Jahresmittel; mit Zahlenwert ausgewiesen sind alle Änderungen über 1 µg/m³ bzw. über 1 Prozentpunkt

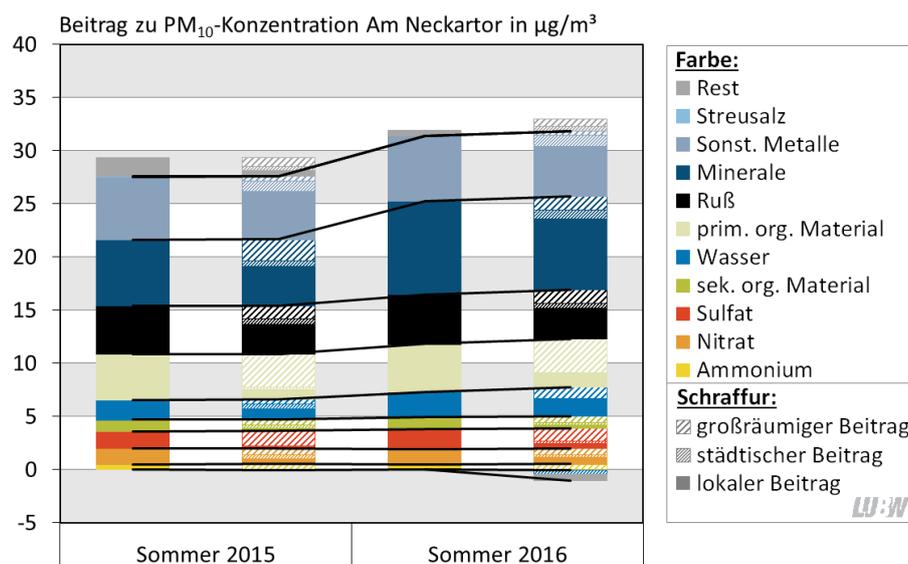


Abbildung 4-3: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der einzelnen Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Sommerhalbjahr; die Linien dienen der Orientierung

Die Herkunftsanalyse nach [Lenschow et al 2001] ist in Abbildung 4-3 gezeigt. Ähnlich wie im Jahresmittel stammt auch im Sommerhalbjahr ein Großteil der Partikelmasse Am Neckartor aus lokalen Quellen. Die sekundären Partikelbestandteile werden im folgenden Unterkapitel betrachtet.

4.3.1.2 SEKUNDÄRE PARTIKELBESTANDTEILE

Die Zusammensetzung und die geographische Herkunft der sekundären Partikelbestandteile waren im Sommerhalbjahr nicht wesentlich anders als im Jahresmittel, siehe Abbildung 4-4 und Tabelle 4-2. Auffällig ist aber, wie bereits erwähnt, die geringere Bedeutung von Nitrat im Sommer.

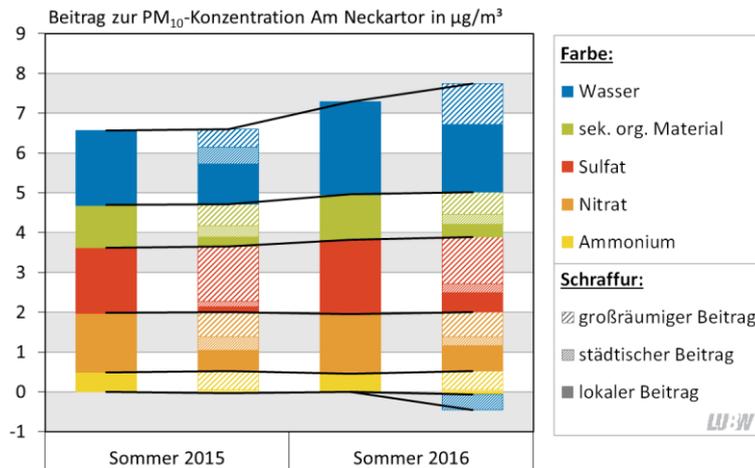


Abbildung 4-4: Zusammensetzung von sekundärem PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der sekundären Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Sommerhalbjahr; die Linien dienen der Orientierung

Tabelle 4-2: Geographische Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Sommerhalbjahr

	2015				2016			
	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %
Wasser								
Gesamt	1,87	29 %			2,34	32 %		
Ländl.			0,45	24 %			1,04	44 %
Städt.			0,42	22 %			-0,39	-17 %
Lokal			1,00	54 %			1,69	73 %
Sek. OM								
Gesamt	1,07	16 %			1,13	15 %		
Ländl.			0,55	51 %			0,56	49 %
Städt.			0,29	27 %			0,25	22 %
Lokal			0,24	22 %			0,32	29 %
Sulfat								
Gesamt	1,64	25 %			1,88	26 %		
Ländl.			1,38	84 %			1,19	63 %
Städt.			0,14	8 %			0,21	11 %
Lokal			0,12	7 %			0,48	26 %
Nitrat								
Gesamt	1,49	23 %			1,49	20 %		
Ländl.			0,62	42 %			0,63	42 %
Städt.			0,35	23 %			0,22	15 %
Lokal			0,51	35 %			0,64	43 %
Ammonium								
Gesamt	0,49	8 %			0,46	6 %		
Ländl.			0,48	-			0,46	-
Städt.			0,05	-			0,06	-
Lokal			-0,03	-			-0,06	-
Summe	6,56	100 %	6,56		7,29	100 %	7,29	

LU:W

Die absoluten Immissionsbeiträge aller Regionen gehen im Sommer zurück (Tabelle 4-2). Auf einer relativen Skala ist vor allem der Einfluss von Emissionen aus dem städtischen Hintergrund im Sommer etwas geringer als im Jahresmittel (Abbildung 4-5). Dementsprechend nimmt der Anteil der lokalen Emissionen zu.

Gewerbe“ im Sommerhalbjahr einen etwas größeren relativen Anteil an den Immissionen hat als im Jahresmittel, während der Quellengruppe „Verkehr“ im Sommerhalbjahr weniger Bedeutung zukommt. Die relative Bedeutung der anderen Quellengruppen ist im Sommerhalbjahr nahezu gleich groß wie im Jahresmittel.

4.3.1.3 URSACHENANALYSE SEKUNDÄRER PARTIKELBESTANDTEILE

Für die Ursachenanalyse wurden die Immissionen von Wasser den in Tabelle 4-3 dargestellten Substanzen zugeordnet. Das Ergebnis der Ursachenanalyse ist in Tabelle 4-4 und Abbildung 4-6 gezeigt. Auffällig ist, dass die Quellengruppe „Industrie und

Tabelle 4-3: Abgeschätzte Anteile unterschiedlicher Verursacher am Wassergehalt von Partikeln PM₁₀ Am Neckartor im Sommerhalbjahr

	Beitrag von Ammonium	Beitrag von Nitrat	Beitrag von Sulfat
2015	10 %	41 %	49 %
2016	9 %	38 %	53 %

LUBW

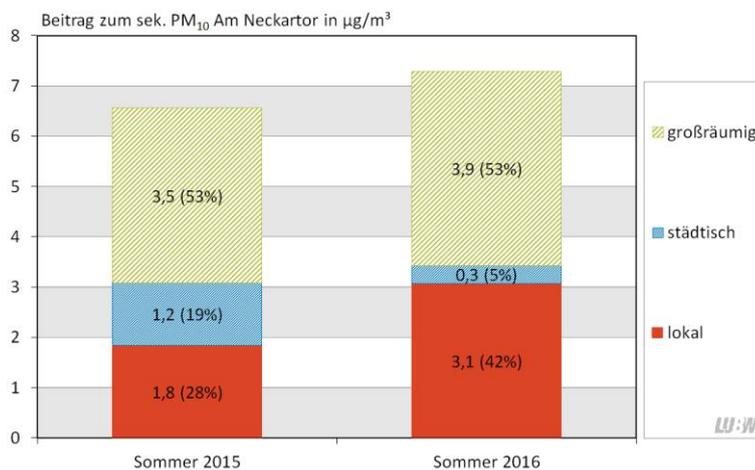


Abbildung 4-5: Zusammenfassung der geographischen Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Sommerhalbjahr

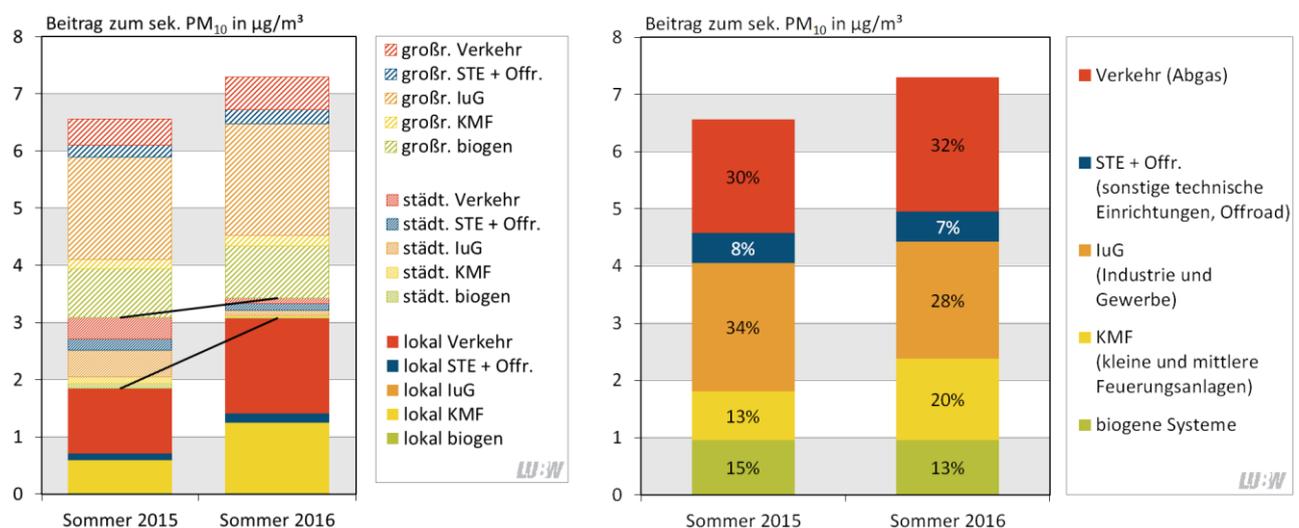


Abbildung 4-6: Zusammenfassung der Ergebnisse aus Tabelle 4-4: Überblick über geographische Herkunft und Quellgruppe (links), Überblick über die Quellgruppen (rechts)

Tabelle 4-4: Ermittelte Beiträge der Quellengruppen zu den Immissionen von sekundärer Partikelmasse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Sommerhalbjahr

	Immissionsbeiträge 2015 in µg/m³						Immissionsbeiträge 2016 in µg/m³					
	ge-samt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Ver-kehr	ge-samt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Ver-kehr
Sekundäres organisches Material												
Großr.	0,55	0,28	0,01	0,10	0,10	0,05	0,56	0,29	0,01	0,10	0,10	0,06
Städt.	0,29	0,02	0,01	0,08	0,12	0,06	0,25	0,02	0,01	0,07	0,10	0,05
Lokal	0,24	0,00	0,02	0,00	0,10	0,12	0,32	0,00	0,02	0,00	0,14	0,16
Sulfat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	1,60	0,00	0,07	1,51	0,00	0,02	1,73	0,00	0,08	1,63	0,01	0,02
Städt.	0,34	0,00	0,04	0,30	0,00	0,01	0,01	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00
Lokal	0,61	0,00	0,50	0,00	0,00	0,11	1,37	0,00	1,12	0,00	0,00	0,25
Nitrat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	0,81	0,08	0,08	0,17	0,11	0,37	1,03	0,10	0,10	0,22	0,14	0,47
Städt.	0,52	0,00	0,08	0,08	0,07	0,29	0,07	0,00	0,01	0,01	0,01	0,04
Lokal	0,92	0,00	0,05	0,00	0,02	0,85	1,29	0,00	0,08	0,00	0,02	1,19
Ammonium (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	0,52	0,50	0,00	0,00	0,00	0,02	0,55	0,53	0,00	0,00	0,00	0,02
Städt.	0,09	0,07	0,00	0,00	0,00	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01
Lokal	0,07	0,02	0,00	0,00	0,00	0,05	0,09	0,03	0,00	0,00	0,00	0,06
Summe	6,56	0,97	0,86	2,24	0,52	1,98	7,29	0,98	1,43	2,04	0,52	2,34
biog. Syst. = biogene Systeme luG = Industrie und Gewerbe KMF = kleine und mittlere Feuerungsanlagen STE = sonstige technische Einrichtungen Offr. = Offroad												

LU:W

4.3.2 WINTERHALBJAHR

4.3.2.1 PARTIKEL PM₁₀

Die Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Winterhalbjahr (d. h. 01.01. - 31.03. und 01.10. - 31.12. eines Kalenderjahres) ist in Abbildung 4-7 und Ta-

belle 4-5 gezeigt. Der Anteil von sekundären Partikelbestandteilen ist sowohl absolut als auch relativ höher als im Jahresmittel.

Tabelle 4-5: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Winterhalbjahr

	Zusammensetzung in µg/m³						Zusammensetzung in %					
	Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen		Am Neckartor		Bad Cannstatt		Gärtringen	
	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016	2015	2016
Primäre Bestandteile												
Rest	-1,37	-1,76	-1,00	-1,46	-0,54	0,24	-3 %	-4 %	-4 %	-7 %	-3 %	2 %
Streusalz	1,90	2,02	0,24	0,38	0,11	0,10	4 %	5 %	1 %	2 %	1 %	1 %
Sonst. Metalle	7,86	7,58	2,00	1,99	0,59	0,63	18 %	18 %	9 %	10 %	4 %	4 %
Minerale	9,97	10,26	2,33	1,86	1,49	0,99	22 %	24 %	10 %	9 %	9 %	6 %
Ruß	5,19	4,61	2,41	2,05	1,74	1,57	12 %	11 %	11 %	10 %	11 %	10 %
prim. org. Material	5,82	5,95	4,56	4,69	4,00	4,85	13 %	14 %	20 %	23 %	25 %	30 %
Sek. Bestandteile												
Wasser	5,79	5,78	3,20	3,22	1,86	1,61	13 %	13 %	14 %	16 %	11 %	10 %
sek. org. Material	1,45	1,49	1,14	1,17	0,71	0,86	3 %	3 %	5 %	6 %	4 %	5 %
Sulfat	1,99	1,97	1,87	1,70	1,47	1,24	4 %	5 %	8 %	8 %	9 %	8 %
Nitrat	4,90	4,32	4,49	4,00	3,61	3,07	11 %	10 %	20 %	19 %	22 %	19 %
Ammonium	1,05	0,90	1,33	1,19	1,16	1,01	2 %	2 %	6 %	6 %	7 %	6 %
Summen												
Summe sekundär	15,18	14,47	12,02	11,28	8,80	7,78	34 %	34 %	53 %	54 %	54 %	48 %
Summe gesamt	44,55	43,13	22,56	20,79	16,19	16,16	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %

LU:W

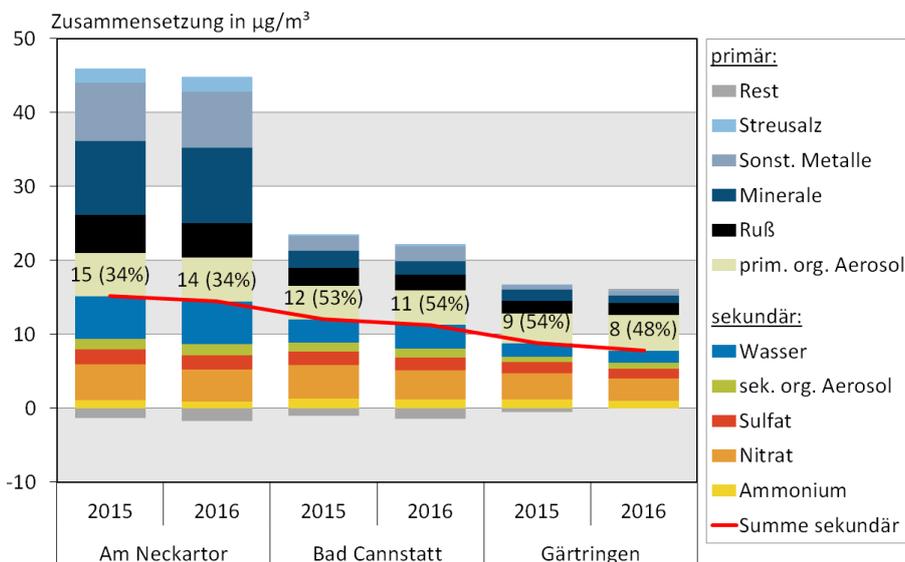


Abbildung 4-7: Zusammensetzung von Partikel PM₁₀ und Anteil sekundärer Partikelbestandteile im Winterhalbjahr

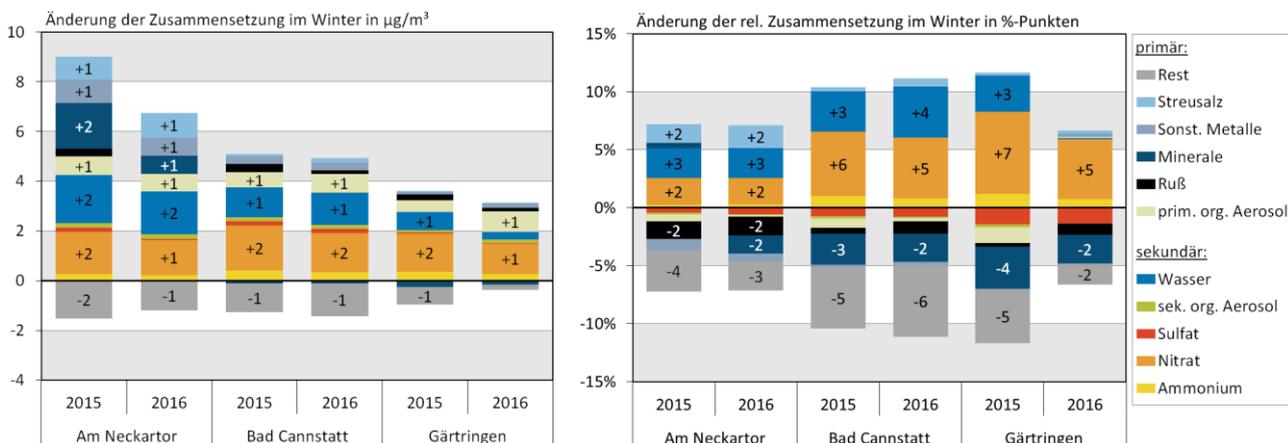


Abbildung 4-8: Änderung der absoluten (links) und relativen (rechts) Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ im Winterhalbjahr im Vergleich zum Jahresmittel; mit Zahlenwert ausgewiesen sind alle Änderungen über 1 µg/m³ bzw. über 1 Prozentpunkt

Die Konzentrationen von PM₁₀ und allen PM₁₀-Inhaltsstoffen sind im Winterhalbjahr an allen untersuchten Messstellen höher als im Jahresmittel (Abbildung 4-8 links)³⁸. Wie bereits bei der Diskussion der Überschreitungstage zeigt sich auch im Winterhalbjahre, dass auf einer relativen Skala insbesondere die Beiträge von Nitrat und Wasser zunehmen (Abbildung 4-8 rechts), wodurch die relativen Beiträge von Mineralstaub, Ruß und Sulfat trotz steigender absoluter Konzentrationen abnehmen.

Wie bereits bei den anderen Mittelungszeiträumen festgestellt, stammt auch im Winterhalbjahr der Großteil der lokalen PM₁₀-Belastung von lokalen Verursachern (Abbildung 4-9).

³⁸ Die einzige Ausnahme ist Mineralstaub im städtischen und ländlichen Hintergrund, vgl. Kap. 2.3.3.1. Zu beachten ist ferner, dass die PM₁₀-Masse im Winterhalbjahr durch die Massenschließung leicht überschätzt wird, woraus ein formal negativer Rest resultiert. Da die Abweichungen aber gering sind, werden die Daten trotzdem verwendet.

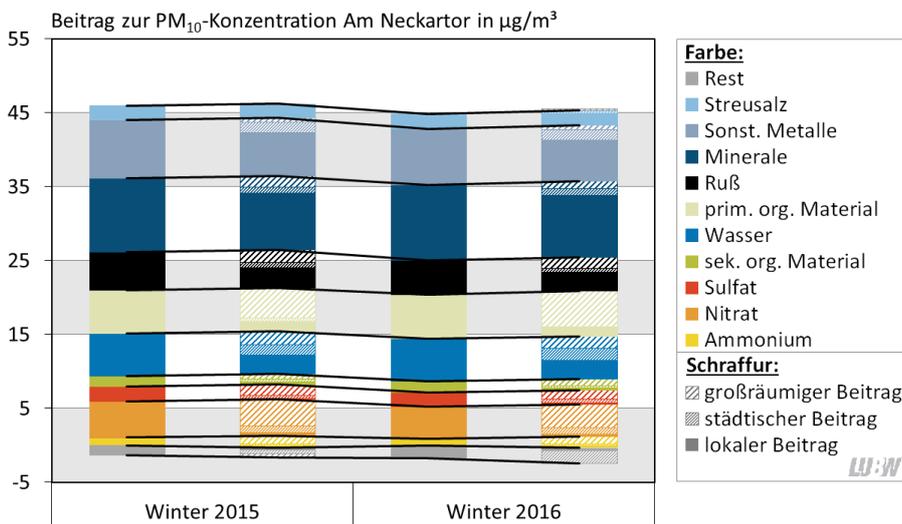


Abbildung 4-9: Zusammensetzung von Partikeln PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der einzelnen Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Winterhalbjahr; die Linien dienen der Orientierung

4.3.2.2 SEKUNDÄRE PARTIKELBESTANDTEILE

Bei der geographischen Herkunft der sekundären Partikelbestandteile fällt auf, dass Nitrat im Winterhalbjahr zu über 70 % aus dem ländlichen Hintergrund stammt, während dieser Anteil im Sommerhalbjahr bei nur 42 % lag. Durch den im Winter erschwerten Übergang von Nitratsalzen in die Gasphase reichert sich dieses im Winter also großräumig an, so dass im Winter auch entfernte Emittenten zu lokal erhöhten PM₁₀-Konzentrationen beitragen können. In der Folge nimmt im Winter auch die Bedeutung des ländlichen Hintergrundes leicht zu (58 % bzw. 54 %

im Winter, verglichen mit 53 % bzw. 53 % im Sommer; Abbildung 4-11).

Die Unterschiede zwischen dem Winterhalbjahr und Überschreitungstagen sind gering, auffällig sind allenfalls die an Überschreitungstagen nochmals erhöhten Konzentrationen. An Überschreitungstagen scheinen somit – abgesehen von einem durch die meteorologische Situation verursachten Konzentrationseffekt – keine grundsätzlich anderen Prozesse stattzufinden als an üblichen Wintertagen.

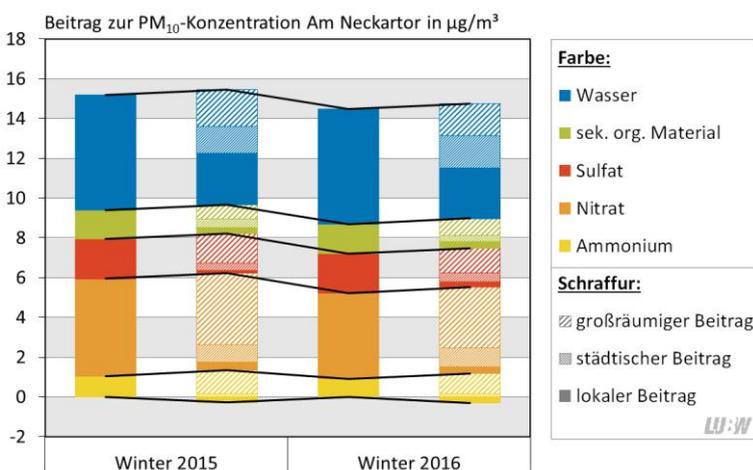


Abbildung 4-10: Zusammensetzung von sekundärem PM₁₀ (jeweils links Säule) und geographische Herkunft der sekundären Inhaltsstoffe (jeweils rechte Säule) an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Winterhalbjahr; die Linien dienen der Orientierung

Tabelle 4-6: Geographische Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Winterhalbjahr

	2015				2016			
	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %	Beitrag in µg/m ³	Beitrag in %	Herkunft in µg/m ³	Herkunft in %
Wasser								
Gesamt	5,79	38 %			5,78	40 %		
Ländl.			1,86	32 %			1,61	28 %
Städt.			1,34	23 %			1,61	28 %
Lokal			2,59	45 %			2,56	44 %
Sek. OM								
Gesamt	1,45	10 %			1,49	10 %		
Ländl.			0,71	49 %			0,86	58 %
Städt.			0,43	30 %			0,32	21 %
Lokal			0,31	22 %			0,31	21 %
Sulfat								
Gesamt	1,99	13 %			1,97	14 %		
Ländl.			1,47	74 %			1,24	63 %
Städt.			0,40	20 %			0,46	23 %
Lokal			0,12	6 %			0,27	14 %
Nitrat								
Gesamt	4,90	32 %			4,32	30 %		
Ländl.			3,61	74 %			3,07	71 %
Städt.			0,88	18 %			0,93	21 %
Lokal			0,41	8 %			0,33	8 %
Ammonium								
Gesamt	1,05	7 %			0,90	6 %		
Ländl.			1,16	-			1,01	-
Städt.			0,18	-			0,18	-
Lokal			-0,28	-			-0,29	-
Summe	15,18	100 %	15,18		14,47	100 %	14,47	

LU:W

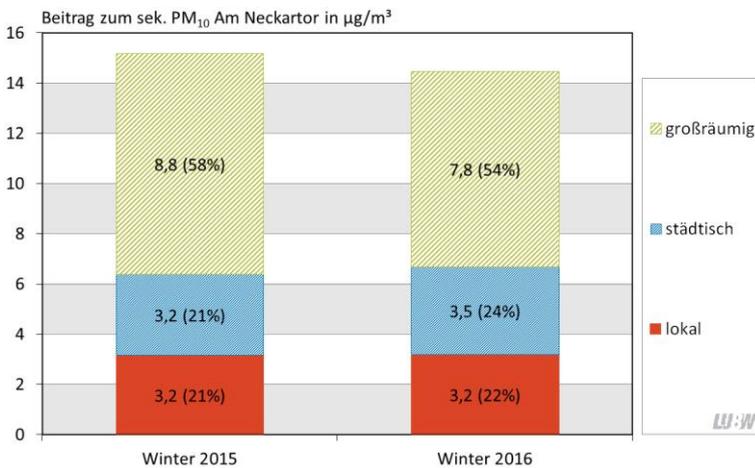


Abbildung 4-11: Zusammenfassung der geographischen Herkunft der sekundären PM₁₀-Inhaltsstoffe an der Messstelle Stuttgart Am Neckartor im Winterhalbjahr

4.3.2.3 URSACHENANALYSE SEKUNDÄRER PARTIKEL-BESTANDTEILE

Für die Ursachenanalyse wurden die Immissionen von Wasser den in Tabelle 4-7 dargestellten Substanzen zugeordnet.

Tabelle 4-7: Abgeschätzte Anteile unterschiedlicher Verursacher am Wassergehalt von Partikeln PM₁₀ Am Neckartor im Winterhalbjahr

	Beitrag von Ammonium	Beitrag von Nitrat	Beitrag von Sulfat
2015	10 %	62 %	28 %
2016	10 %	60 %	30 %

LU:W

Bei den Ergebnissen der Ursachenanalyse in Abbildung 4-12 und Tabelle 4-8 zeigt sich, entsprechend den im Sommerhalbjahr gemachten Beobachtungen, dass die Quellengruppe „Verkehr“ im Winter relativ

gesehen wichtiger ist als im Sommer. Ferner ist die Bedeutung der Quellengruppe „Industrie und Gewerbe“ im Winterhalbjahr etwas geringer.

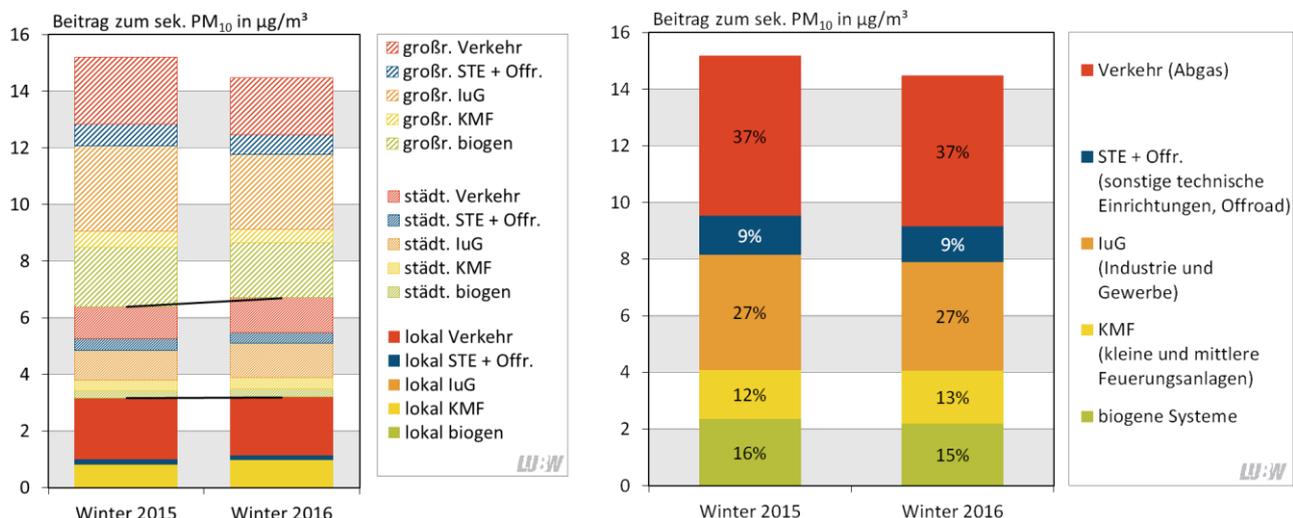


Abbildung 4-12: Zusammenfassung der Ergebnisse aus Tabelle 4-8: Überblick über geographische Herkunft und Quellgruppe (links), Überblick über die Quellgruppen (rechts)

Tabelle 4-8: Ermittelte Beiträge der Quellengruppen zu den Immissionen von sekundärer Partikelmasse am Messpunkt Stuttgart Am Neckartor im Winterhalbjahr

	Immissionsbeiträge 2015 in µg/m ³						Immissionsbeiträge 2016 in µg/m ³					
	gesamt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr	gesamt	biog. Syst.	KMF	luG	STE, Offr.	Verkehr
Sekundäres organisches Material												
Großr.	0,71	0,36	0,02	0,13	0,13	0,07	0,86	0,44	0,02	0,16	0,15	0,09
Städt.	0,43	0,03	0,01	0,12	0,18	0,09	0,32	0,02	0,01	0,09	0,13	0,07
Lokal	0,31	0,00	0,02	0,00	0,13	0,16	0,31	0,00	0,02	0,00	0,13	0,16
Sulfat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	1,98	0,00	0,09	1,87	0,01	0,02	1,72	0,00	0,07	1,62	0,01	0,02
Städt.	0,77	0,00	0,08	0,67	0,00	0,02	0,94	0,00	0,10	0,82	0,00	0,02
Lokal	0,84	0,00	0,68	0,00	0,00	0,15	1,04	0,00	0,85	0,00	0,00	0,19
Nitrat (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	4,76	0,46	0,46	1,00	0,65	2,20	4,04	0,39	0,39	0,85	0,55	1,86
Städt.	1,71	0,01	0,27	0,26	0,23	0,94	1,90	0,01	0,30	0,29	0,26	1,05
Lokal	2,02	0,00	0,12	0,00	0,04	1,87	1,87	0,00	0,11	0,00	0,03	1,73
Ammonium (und zugeordnetes Wasser)												
Großr.	1,35	1,29	0,00	0,01	0,00	0,05	1,16	1,11	0,00	0,01	0,00	0,04
Städt.	0,31	0,22	0,00	0,00	0,00	0,09	0,34	0,24	0,00	0,00	0,00	0,09
Lokal	-0,02	-0,01	0,00	0,00	0,00	-0,01	-0,04	-0,01	0,00	0,00	0,00	-0,03
Summe	15,18	2,37	1,75	4,06	1,36	5,65	14,47	2,20	1,87	3,83	1,26	5,29

biog. Syst. = biogene Systeme
luG = Industrie und Gewerbe
KMF = kleine und mittlere Feuerungsanlagen
STE = sonstige technische Einrichtungen
Offr. = Offroad

4.3.3 ANTEILE DER EINZELNEN QUELLENGRUPPEN AN AUSGEWÄHLTEN SCHADSTOFFFREISETZUNGEN FÜR DIE GEMEINDE GÄRTRINGEN IM JAHR 2014

Die Abbildung 4-13 bis Abbildung 4-16 zeigen die Anteile der einzelnen Quellengruppen an ausgewählten Schadstofffreisetzungen für die Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014 [LUBW 2017b].

ten Schadstofffreisetzungen für die Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014 [LUBW 2017b].

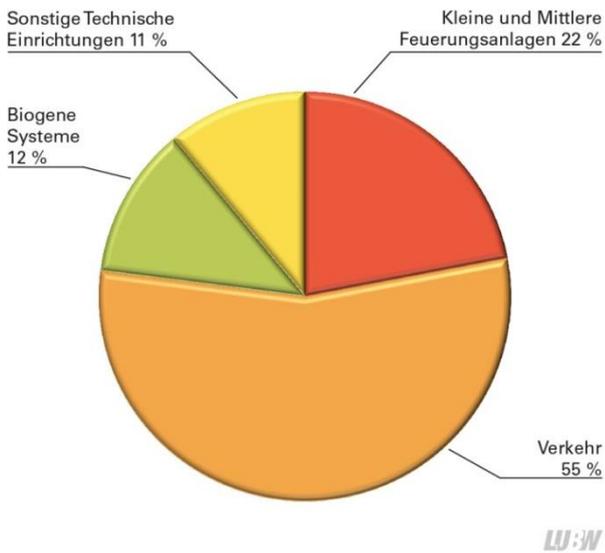


Abbildung 4-13: PM₁₀-Emissionen in der Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014

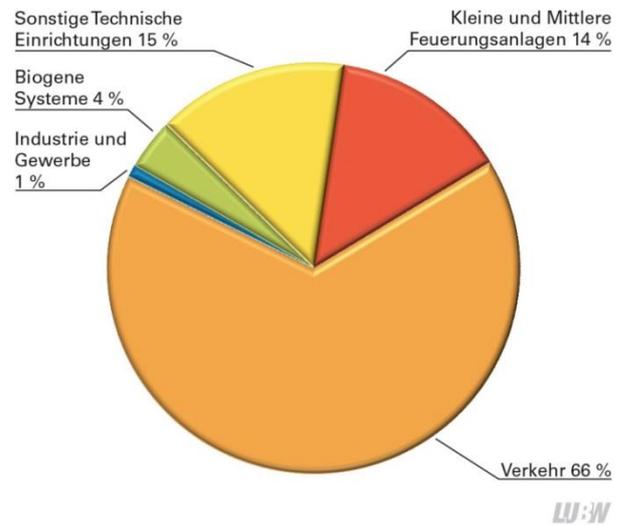


Abbildung 4-14: NO_x-Emissionen in der Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014

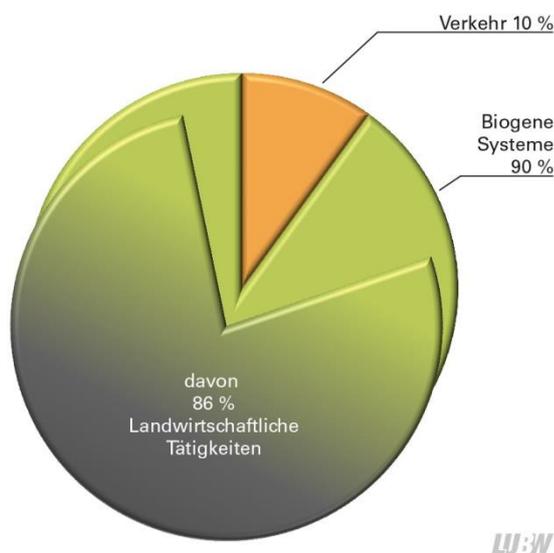


Abbildung 4-15: NH₃-Emissionen in der Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014

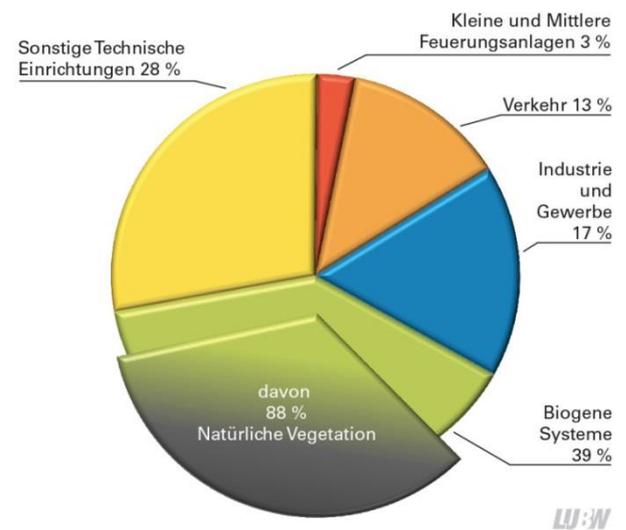


Abbildung 4-16: NMVOC-Emissionen in der Gemeinde Gärtringen im Jahr 2014

4.4 Weitere Auswertungen zu sekundärem Stickstoffdioxid

4.4.1 LANGZEITREIHEN

Stickstoffoxide (NO_x)

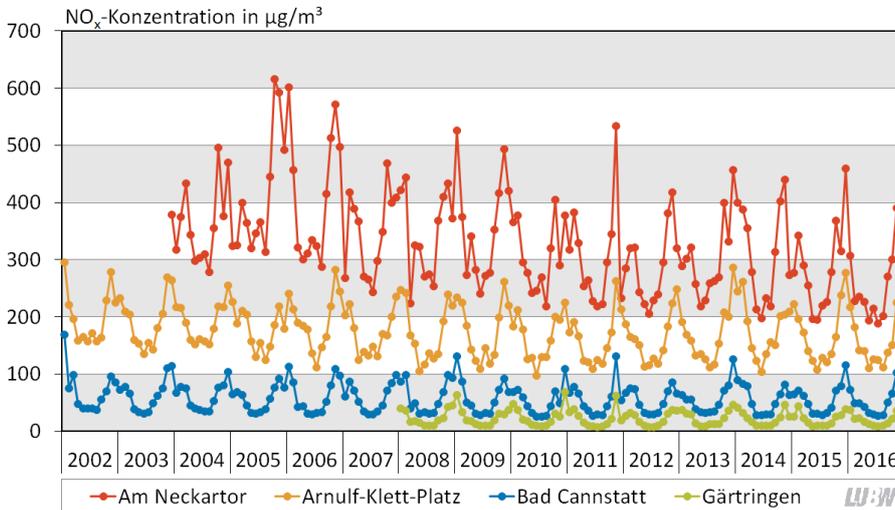


Abbildung 4-17: Monatsmittelwerte der NO_x -Konzentration im Raum Stuttgart in den vergangenen 15 Jahren

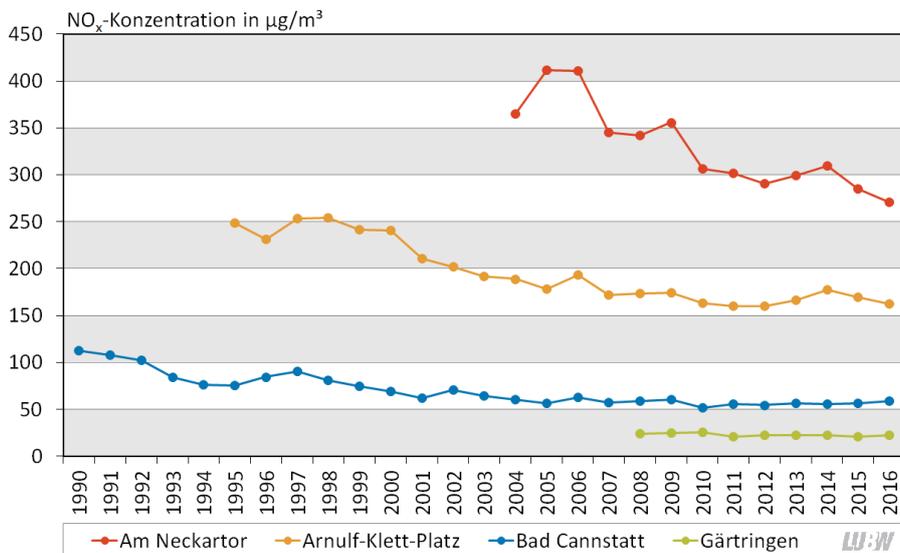


Abbildung 4-18: Jahresmittelwerte der NO_x -Konzentration im Raum Stuttgart seit 1990

Fazit:

- Die NO_x -Konzentrationen zeigen einen Jahresgang (Abbildung 4-17).
- Die NO_x -Konzentrationen sind in Verkehrsnähe rückläufig, im städtischen und ländlichen Hintergrund stagnierend (Abbildung 4-18).

Stickstoffdioxid (NO₂)

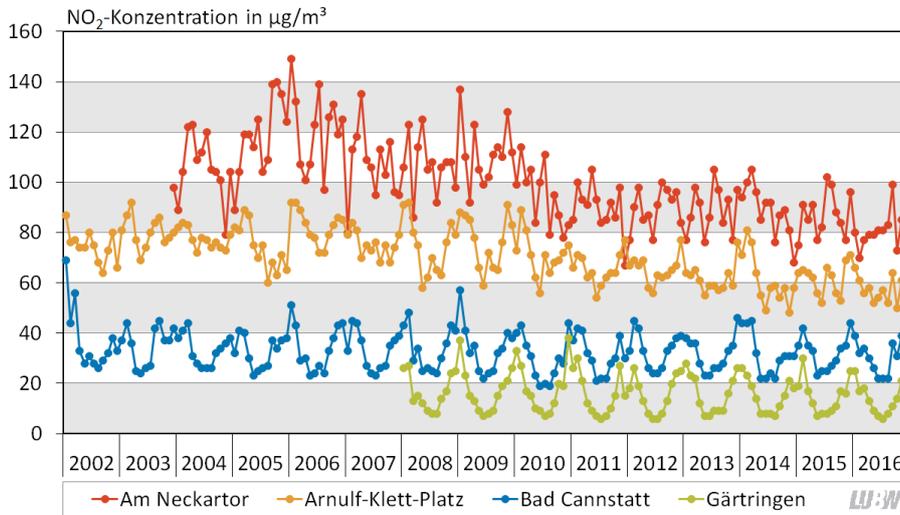


Abbildung 4-19: Monatsmittelwerte der NO₂-Konzentration im Raum Stuttgart

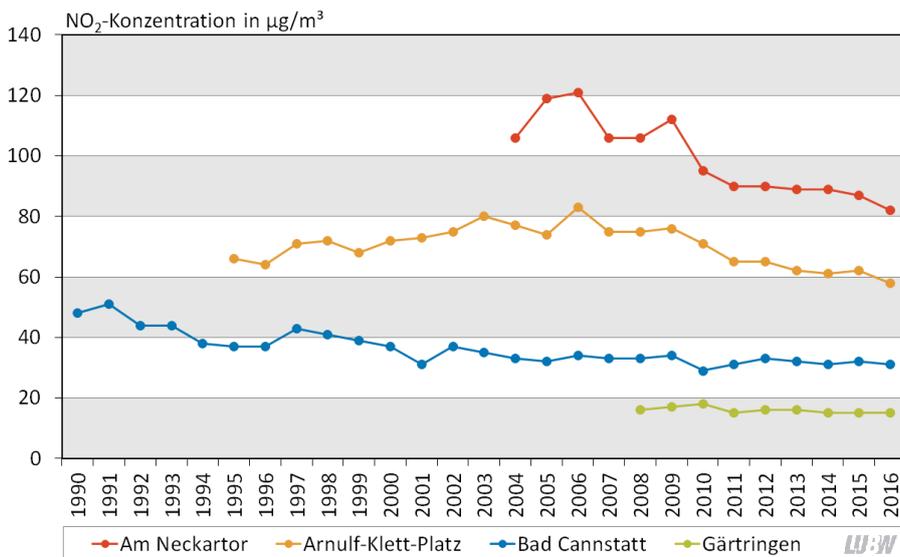


Abbildung 4-20: Jahresmittelwerte der NO₂-Konzentration im Raum Stuttgart

Fazit:

- Die NO₂-Konzentrationen zeigen nur im städtischen und ländlichen Hintergrund einen Jahresgang (Abbildung 4-19).
- Die NO₂-Konzentrationen sind in Verkehrsnähe rückläufig, im städtischen und ländlichen Hintergrund stagnierend (Abbildung 4-20).

Stickstoffmonoxid (NO)

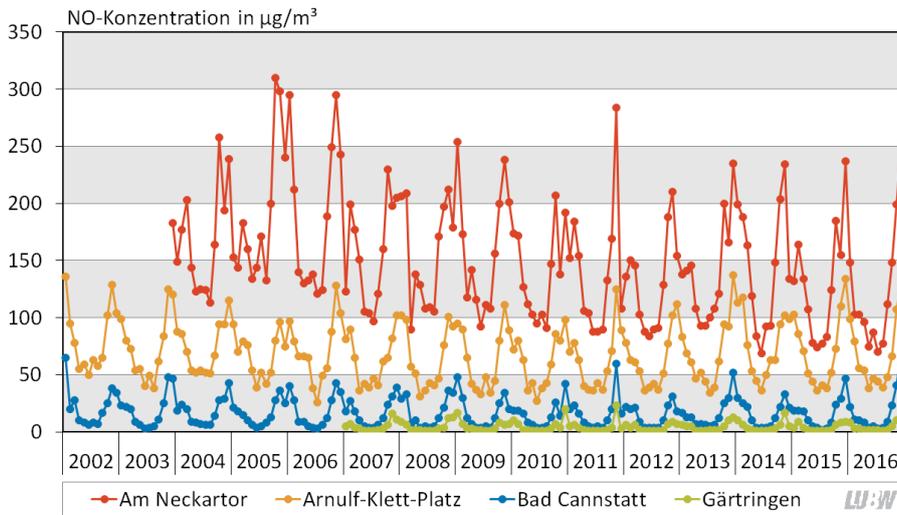


Abbildung 4-21: Monatsmittelwerte der NO-Konzentration im Raum Stuttgart

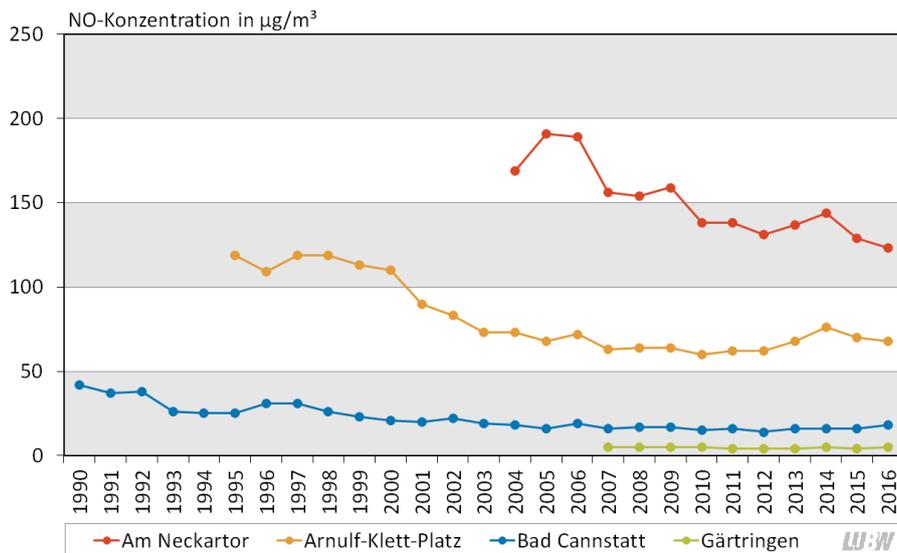


Abbildung 4-22: Jahresmittelwerte der NO-Konzentration im Raum Stuttgart

Fazit:

- Die NO-Konzentrationen zeigen einen Jahresgang (Abbildung 4-21).
- Die NO-Konzentrationen sind in Verkehrsnähe rückläufig, im städtischen und ländlichen Hintergrund stagnierend (Abbildung 4-22).

NO₂/NO_x-Verhältnis

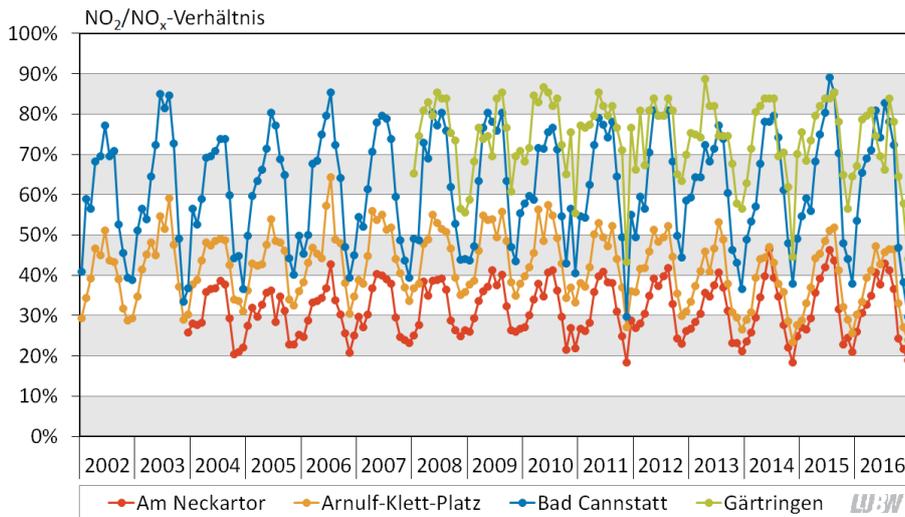


Abbildung 4-23: Monatsmittelwerte des NO₂/NO_x-Verhältnisses im Raum Stuttgart

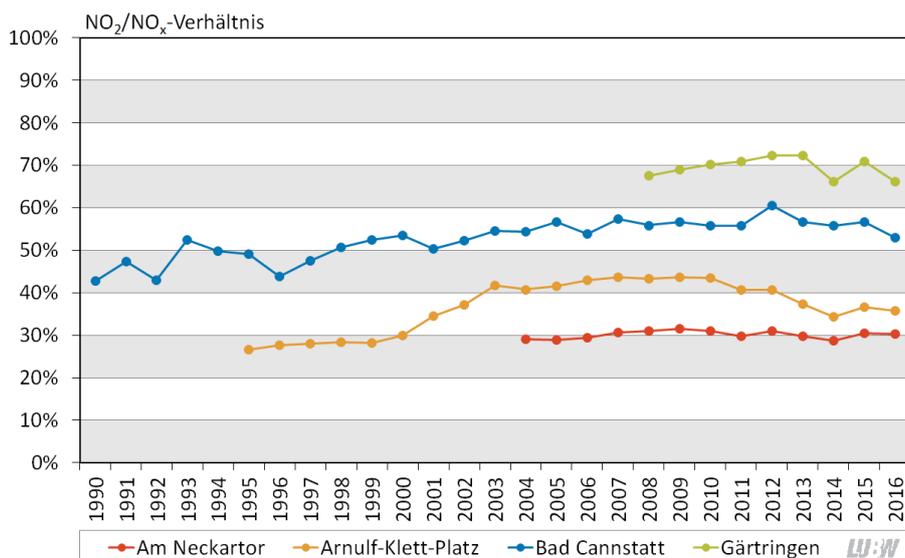


Abbildung 4-24: Jahresmittelwerte des NO₂/NO_x-Verhältnisses im Raum Stuttgart

Fazit:

- Das NO₂/NO_x-Verhältnis zeigt einen Jahrgang (Abbildung 4-23).
- Das NO₂/NO_x-Verhältnis hat sich Am Neckartor seit Beginn der Messungen kaum geändert (Abbildung 4-24). Am Arnulf-Klett-Platz ist das NO₂/NO_x-Verhältnis – nach einem Maximum in

der ersten Dekade des neuen Jahrtausends – inzwischen wieder rückläufig. Im städtischen und ländlichen Hintergrund ist kein ausgeprägter Trend erkennbar; der in [LUBW 2010] festgestellte Anstieg des NO₂/NO_x-Verhältnisses hat sich aber nicht fortgesetzt.

Ozon

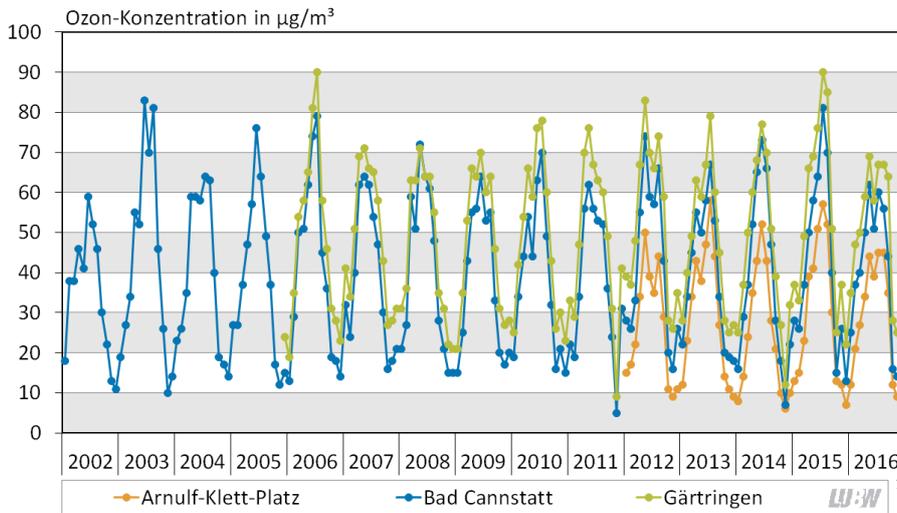


Abbildung 4-25: Monatsmittelwerte der Ozon-Konzentration im Raum Stuttgart

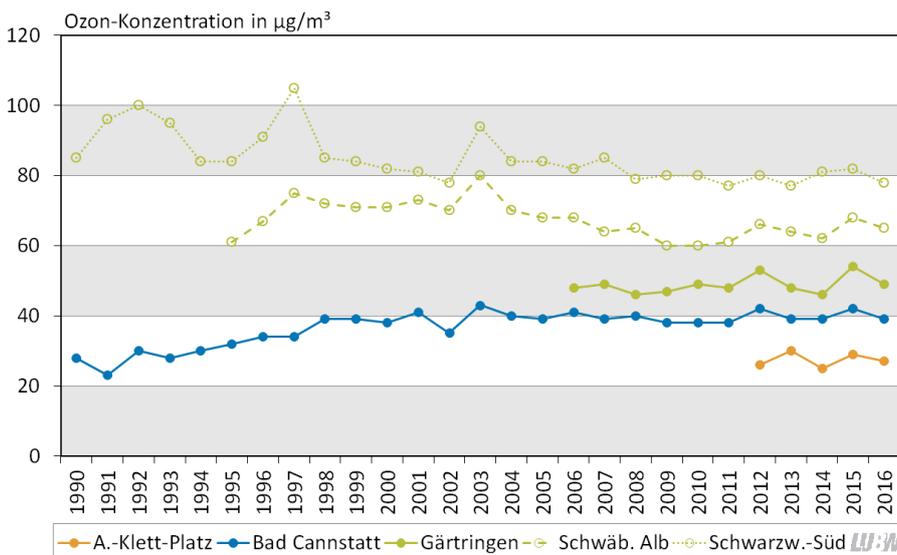


Abbildung 4-26: Jahresmittelwerte der Ozon-Konzentration im Raum Stuttgart (sowie zum Vergleich an zwei Stationen im ländlichen Hintergrund)

Fazit:

- Die Ozon-Konzentration zeigt einen ausgeprägten Jahresgang (Abbildung 4-25).
- Die Ozon-Konzentration hat sich an der Station Bad Cannstatt in den vergangenen 15 Jahren leicht erhöht (Abbildung 4-26). Die Messungen

an den anderen Messstellen im Raum Stuttgart sind zu kurz für eine Trendaussage. Im ländlichen Hintergrund (Luftmessstationen Schwäbische Alb und Schwarzwald-Süd) sind die Konzentrationen leicht rückläufig.

