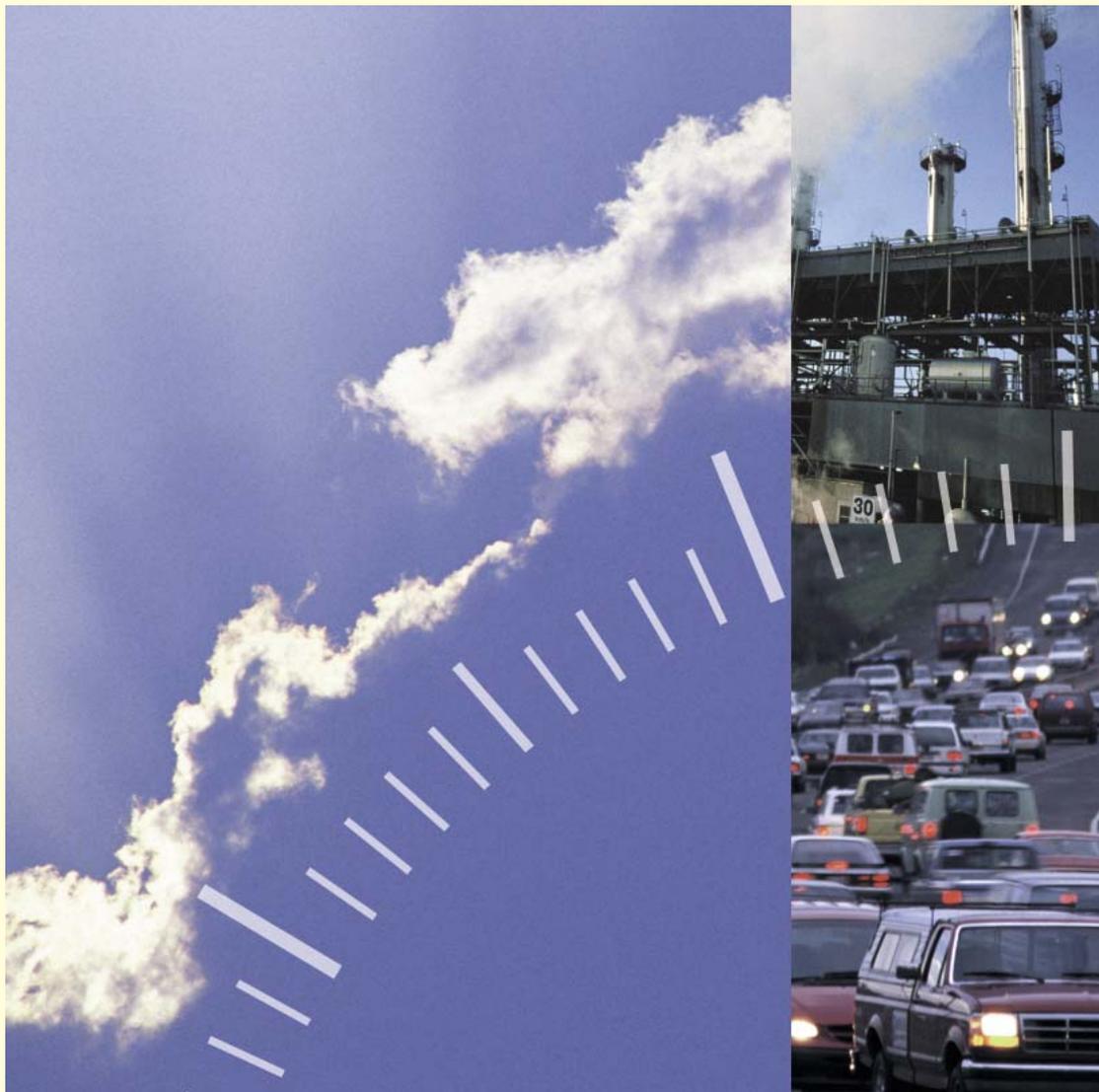


Entwicklung der Stickstoffoxid-Immissionen in Baden-Württemberg zwischen 1995 und 2003

 Kurzfassung der Datenauswertungen des Luftmessnetzes
- Diskussion möglicher Ursachen -



IMPRESSUM

Herausgeber

Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg
76157 Karlsruhe · Postfach 21 07 52
www.lfu.baden-wuerttemberg.de

Juni 2004

Redaktion

Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg
Referat 33 · Luftqualität, Lärm, Verkehr
Dipl.-Ing. Ursula Mielicke, Dr. Dieter Ahrens, Dr. Werner Scholz

Zusammenfassung

Die Zunahme der Stickstoffdioxid-Immissionen an vielen Stationen im Luftmessnetz Baden-Württemberg im Jahr 2003 war der Anlass für diesen Bericht. Er konzentriert sich auf einen Vergleich der Immissionen der Jahre 2002 und 2003 von Stickstoffmonoxid, Stickstoffdioxid und Summe der Stickstoffoxide. Hierfür konnten die Jahresmittelwerte von 5 Verkehrsstationen, 44 Stationen in städtischer und vorstädtischer Lage sowie an 4 Hintergrundstationen in Baden-Württemberg ausgewertet werden. Ergänzend wird die längerfristige zeitliche Entwicklung (Trend) von 1995 bis 2003 untersucht.

Die Daten für Stickstoffmonoxid (NO) und die Summe der Stickstoffoxide (NO_x) sind zur besseren Vergleichbarkeit als Stickstoffdioxid (NO₂) angegeben¹.

Stickstoffmonoxid (NO als NO₂)

An den meisten Stationen lagen die Veränderungen der NO-Jahresmittelwerte im Jahr 2003 gegenüber 2002 im Bereich von nur $\pm 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, im Mittel bei $-0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Verkehrsstationen Karlsruhe und Stuttgart mit einer Abnahme von je $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bildeten hier die Ausnahmen.

Von den Absolutwerten her wiesen die Verkehrsstationen im Jahr 2003 - ebenso wie im Jahr 2002 - die höchsten NO-Konzentrationen auf, mit Jahresmitteln zwischen 70 und $112 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei den städtischen Stationen erreichte Heilbronn $56 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Karlsruhe-Mitte und Plochingen folgten mit Konzentrationen von 52 und $51 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Der gering bis deutlich abnehmende Trend im Zeitraum seit 1995 (ausgenommen Heilbronn wegen Stationsverlegung) setzte sich auch 2003 fort. Die mittleren jährlichen Veränderungen betragen im Zeitraum 1995 bis 2003:

- im gesamten Messnetz (ohne Verkehrsstationen): in kleineren Städten unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3\cdot\text{a}$, in Ballungsgebieten bis zu $-2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3\cdot\text{a}$, an verkehrsbeeinflussten Stationen bis zu $-5,3 \mu\text{g}/\text{m}^3\cdot\text{a}$ (Plochingen);
- an den Verkehrsstationen: zwischen $-7,0 \mu\text{g}/\text{m}^3\cdot\text{a}$ (Freiburg) und $-8,7 \mu\text{g}/\text{m}^3\cdot\text{a}$ (Karlsruhe). Hier war der Trend am deutlichsten ausgeprägt.

Stickstoffdioxid (NO₂)

Vom Jahr 2002 auf 2003 war an 2/3 aller Stationen eine **Zunahme** und nur an 1/3 eine Abnahme der gemessenen NO₂-Jahresmittelwerte zu verzeichnen. Im Mittel über alle Stationen des Messnetzes betrug die Veränderung $+1,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gegenüber 2002.

Die höchste Zunahme erfolgte an den Verkehrsstationen Freiburg mit $7,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, welches eine Steigerung um 20% gegenüber 2002 bedeutet, gefolgt von Leonberg ($7,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Stuttgart ($5,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Aber auch städtische Stationen wie Plochingen und Heilbronn erreichten Zunahmen bis zu $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Eine nennenswerte Abnahme verzeichnete nur die städtische Station Göppingen mit $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Der ab dem Jahr 2010 einzuhaltende Grenzwert für NO₂ als Jahresmittel beträgt $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemäß 22. BImSchV. An allen hinsichtlich dieses Grenzwertes bereits 2002 als kritisch einzustufenden Stationen nahmen die Jahresmittelwerte 2003 entweder zu oder blieben gleich hoch.

¹ Zur Umrechnung von NO in NO₂ wird der Faktor 1,53 verwendet, der sich aus dem Verhältnis der Molgewichte NO₂/NO ergibt.

An den Verkehrsstationen Stuttgart ($80 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Karlsruhe ($61 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Mannheim ($56 \mu\text{g}/\text{m}^3$) überschritten die Jahresmittelwerte auch die Summe aus Grenzwert plus der Toleranzmarge für 2003 von $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die mittleren jährlichen Veränderungen über den Zeitraum seit 1995 setzten sich im Prinzip im Jahr 2003 in einer weitgehenden Stagnation fort und waren an den meisten Stationen deutlich geringer als $-1 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$. Ansonsten lagen sie:

- im gesamten Messnetz (ohne Verkehrsstationen): zwischen $+0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Stuttgart-Zuffenhausen) und $-1,6 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Waiblingen).
- An den Verkehrsstationen ergaben sich langfristig sowohl Zunahmen als auch Abnahmen zwischen $+1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Stuttgart) und $-1,3 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Freiburg).

Auch an diesen Zahlen zeigt sich, dass die NO_2 -Immissionen in Baden-Württemberg entgegen allen früheren Prognosen eher konstant bleiben als abnehmen. Besonders auffällig ist der zunehmende Trend an der Verkehrsstation Stuttgart.

Summe der Stickstoffoxide (NO_x als NO_2)

Die Summe aus NO und NO_2 (NO_x) ist ein Maß für die gesamte Verunreinigung der bodennahen Luftschichten mit Stickstoffoxiden.

Die Verkehrsstation Leonberg verzeichnete die höchste Zunahme mit $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die Verkehrsstation Karlsruhe die stärkste Abnahme mit $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ von 2002 auf 2003.

Die Jahresmittel der NO_x -Konzentration überdeckten im Jahr 2003 einen weiten Bereich zwischen $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Schwarzwald-Süd) und $192 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Verkehrsstation Stuttgart).

Auch für die Summe NO_x ist durch die Messwerte 2003 kein gravierender Einfluss auf den langfristig abnehmenden Trend zu erkennen. Die mittleren jährlichen Veränderungen betragen für den Zeitraum 1995 bis 2003:

- im gesamten Messnetz (ohne Verkehrsstationen): zwischen $-0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Tauberbischofsheim) und $-6,2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Plochingen);
- an den Verkehrsstationen: zwischen $-6,0 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Stuttgart) und $-9,7 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{a}$ (Mannheim).

Anteil des Stickstoffmonoxids (NO) an der Summe der Stickstoffoxide (NO_x)

Von luftchemischem Interesse ist das Verhältnis von NO zu NO_x und seine langfristige Entwicklung, weil damit u.U. eine Veränderung in der Emissionsstruktur erkannt werden kann.

Im Jahr 2003 dominierten die Anteile des NO die Summe der Stickstoffoxide an den Verkehrsstationen mit durchschnittlich 59%. An den städtischen Stationen lag der Anteil zwischen 40 und 59 %, an den Hintergrundstationen zwischen 12 % und 15 %.

Interessanterweise setzte sich der Trend zu geringeren Anteilen seit 1995 auch im Jahr 2003 fort:

- im gesamten Messnetz (ohne Verkehrsstationen)

1995 47%	2002 43%	2003 42%;
----------	----------	-----------
- an den Verkehrsstationen:

1995 72%	2002 63%	2003 59%.
----------	----------	-----------

Diese eindeutige Tendenz wirft die Frage auf, warum besonders an den Verkehrsstationen trotz einer deutlichen Abnahme der NO -Immissionen die NO_2 -Immissionen stagnieren oder sogar zunehmen. Als mögliche Ursache wird derzeit ein zunehmender Anteil von Dieselfahrzeugen mit Oxidationskatalysator angenommen, welche einen höheren Emissionsanteil von NO_2 im Abgas aufweisen. Aber auch atmosphärenchemische Einflüsse durch die Wechselwirkungen von NO und NO_2 mit Ozon werden diskutiert.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Einleitung	6
1. Veränderungen der NO-, NO₂- und NO_x-Immissionen im Jahre 2003 gegenüber dem Jahr 2002	7
1.1. Stickstoffmonoxid (NO als NO ₂)	7
1.2. Stickstoffdioxid (NO ₂)	10
1.3. Summe der Stickstoffoxide (NO als NO ₂).....	13
2. Veränderungen der NO-, NO₂- und NO_x-Immissionen im längeren Zeitraum 1995 bis 2003	16
2.1. Veränderungen an den Verkehrsstationen (1995 bis 2003).....	16
2.2. Veränderungen an allen Stationen (1995 bis 2003).....	20
3. Mögliche Ursachen der Veränderungen	24
3.1. Unterschiede im Jahresgang von NO ₂ und Ozon zwischen 2002 und 2003.....	24
3.2. Anteile des Stickstoffmonoxids (NO) an der Summe der Stickstoffoxide (NO _x)	24
3.3. Einfluss der Luftchemie	25

Einleitung

Im Jahre 2003 zeigten die Stickstoffoxid-Immissionen im Jahresmittel teilweise erhebliche Abweichungen von den entsprechenden Immissionen im Jahr 2002. Für Stickstoffdioxid (NO_2) ergab sich überwiegend eine Zunahme der Konzentration, die an verkehrsbeeinflussten Stationen bis zu 20% gegenüber dem Vorjahr ausmachte.

Die Veränderungen der Werte für 2003 gegenüber den Werten für 2002 an den Stationen des Luftmessnetzes, für die entsprechende Daten verfügbar waren, beschreibt **Kapitel 1**.

Der Bericht „*Entwicklung der Stickstoffoxidbelastungen im Zeitraum 1992 bis 2002 in Baden-Württemberg*“ [LfU, 2003]² untersuchte die Messstellengruppen, in denen im Jahr 2002 höhere NO_2 -Konzentrationen auftraten, d.h. die Verkehrsstationen Stuttgart, Karlsruhe, Mannheim, Freiburg und Ulm, sowie die Stationen in städtischer bzw. vorstädtischer Lage im Rheingraben und im Raum Stuttgart. Für die Gruppe der Verkehrsstationen wird in **Kapitel 2.1** diese Darstellung um das Jahr 2003 erweitert und der Einfluss auf die mittlere jährliche Veränderung für den Zeitraum 1995 bis 2003 untersucht.

Ergänzend werden in **Kapitel 2.2** die mittleren jährlichen Veränderungen der Stickstoffoxidimmissionen an allen Stationen des Luftmessnetzes für den Zeitraum 1995 bis 2003 dargestellt.

Wie im oben erwähnten Bericht wurde auch hier die Komponente Stickstoffmonoxid (NO) für den Vergleich in Stickstoffdioxid (NO_2) umgerechnet (Faktor 1,53, vgl. Fußnote auf S. 1). NO_x ist die Summe der Stickstoffoxide ($\text{NO} + \text{NO}_2$) und wird ebenfalls als NO_2 angegeben.

Eine stationsbezogene Interpretation der einzelnen Trendverläufe war auch in dem vorliegenden Bericht nicht beabsichtigt, da Detailinformationen zu den Stationen und ihren jeweiligen Umgebungsbedingungen sowie eventueller Veränderungen in den betrachteten Zeiträumen nur teilweise vorliegen.

² Der Bericht [LfU, 2003] ist im Internet verfügbar unter:

http://www.lfu.baden-wuerttemberg.de/lfu/abt3/luft/entwicklung_der_luftqualitaet/berichte/index.html

1 Veränderungen der NO-, NO₂- und NO_x-Immissionen im Jahre 2003 gegenüber dem Jahr 2002

Untersucht werden die Jahresmittelwerte der Immissionskonzentrationen von Stickstoffmonoxid (NO als NO₂), Stickstoffdioxid (NO₂) und der Summe dieser Stickstoffoxide (NO_x als NO₂) für das Jahr 2003 und deren Abweichungen von den entsprechenden Werten des Jahres 2002 für alle Stationen des Luftmessnetzes Baden-Württemberg.

Die Abbildungen 1.1.1, 1.2.1 und 1.3.1 zeigen jeweils die Differenz zwischen den Jahresmittelwerten an den einzelnen Messstation im Jahr 2003 gegenüber dem Jahr 2002, sortiert nach dem Ausmaß der Veränderung. Den Abbildungen 1.1.2, 1.2.2 und 1.3.2 sind die Jahresmittelwerte für 2003, sortiert nach der Höhe der Werte, zu entnehmen.

1.1 Stickstoffmonoxid (NO als NO₂)

Etwa die Hälfte der Stationen zeigte eine Zunahme, die andere Hälfte eine Abnahme der NO- Jahresmittelwerte im Jahr 2003 gegenüber 2002 (Abb. 1.1.1). Die meisten Veränderungen (34 von 53 Stationen) lagen aber in einem sehr schmalen Konzentrationsbereich von unter $\pm 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und sind damit als unbedeutend anzusehen. Sie trugen somit zu einer sehr geringen über alle Stationen gemittelten Veränderung von nur $-0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei.

Eine außergewöhnliche Zunahme von fast $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zeichnete sich jedoch an der Station Stuttgart-Zuffenhausen ab. Als Ursache sind im Jahr 2002 begonnene Baumaßnahmen in der Umgebung anzusehen, die zu einer starken Verkehrszunahme und damit Erhöhung der NO-Emission im Nahbereich der Station geführt haben. Für Vergleichszwecke ist diese Station derzeit nicht geeignet und wird im Weiteren zu solchen nicht herangezogen. Der Vollständigkeit halber wird sie in den Abbildungen über die Absolutwerte belassen.

Betrachtet man nur die Veränderungen größer als $\pm 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, so sind die Zunahmen eher gering im Vergleich zu den Abnahmen. Dies betrifft sowohl die Zahl der Stationen (7 gegen 11) als auch insbesondere den Wertebereich. Einer maximalen Zunahme von $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in Heilbronn stehen Abnahmen an den Verkehrsstationen Karlsruhe von $15,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und Stuttgart von $14,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gegenüber. Bis auf die Verkehrsstation Leonberg verzeichneten alle Verkehrsstationen Abnahmen.

Trotz der Minderungen wiesen die Verkehrsstationen auch im Jahre 2003, wie im Jahre 2002, die höchsten Jahresmittelwerte auf (Abb. 1.1.2). Mit einem Wert von $112 \mu\text{g}/\text{m}^3$ lag die Verkehrsstation Stuttgart am höchsten, gefolgt von den Verkehrsstationen Karlsruhe ($91 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Leonberg ($87 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Mannheim ($75 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Freiburg ($70 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Mit $56 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreichte Heilbronn den höchsten Jahresmittelwert der städtischen Stationen, gefolgt von Karlsruhe-Mitte ($52 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Plochingen ($51 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Die niedrigsten Werte verzeichneten die außerhalb größerer direkter NO-Emissionen liegenden Hintergrundstation Odenwald, Welzheimer Wald, Schwäbische Alb und Schwarzwald Süd sowie die Station Freudenstadt im Schwarzwald mit $1,3$ bis $3,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

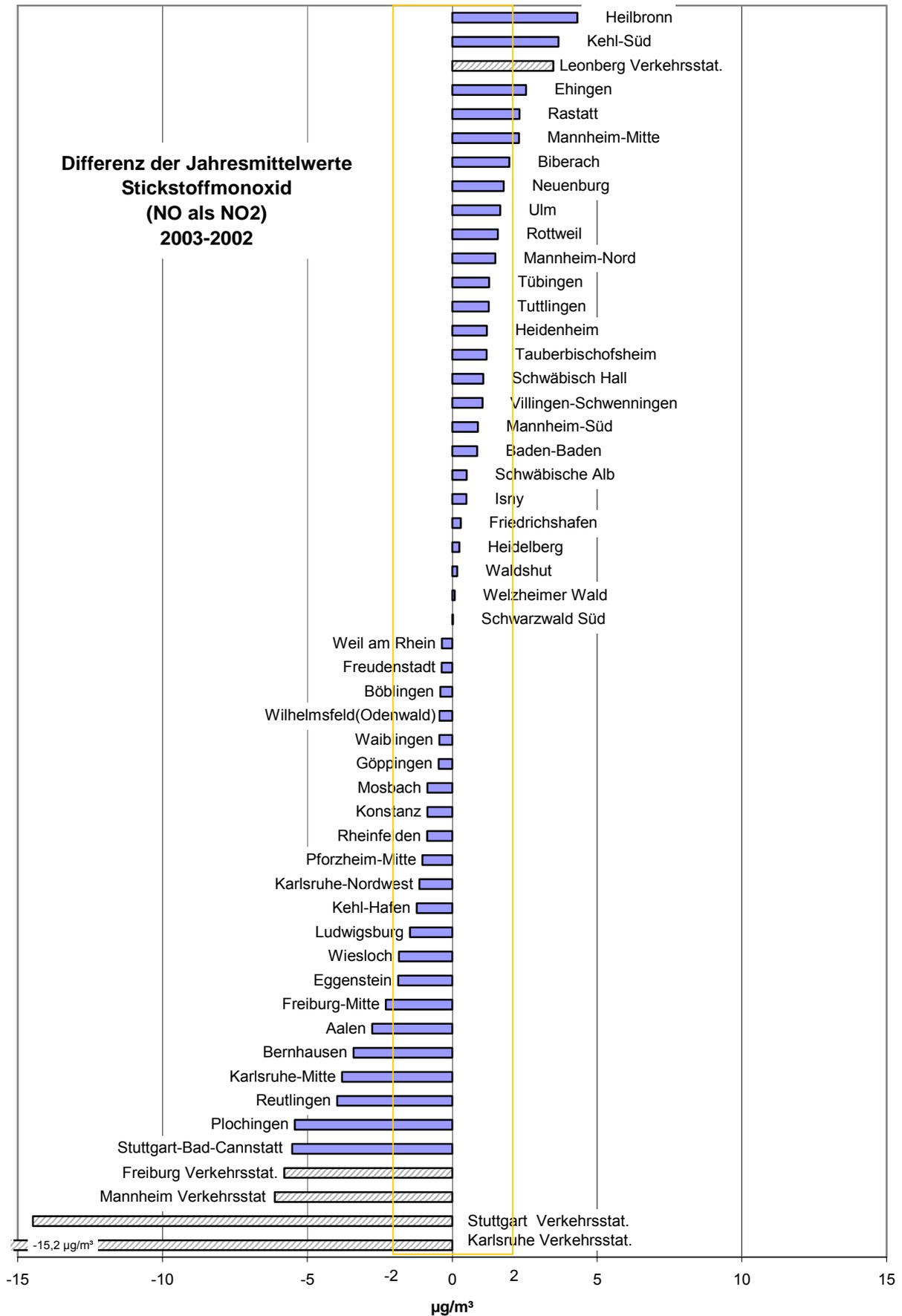


Abb. 1.1.1: Veränderung der Jahresmittelwerte der Stickstoffmonoxid-Konzentration (NO als NO₂) im Jahr 2003 gegenüber 2002

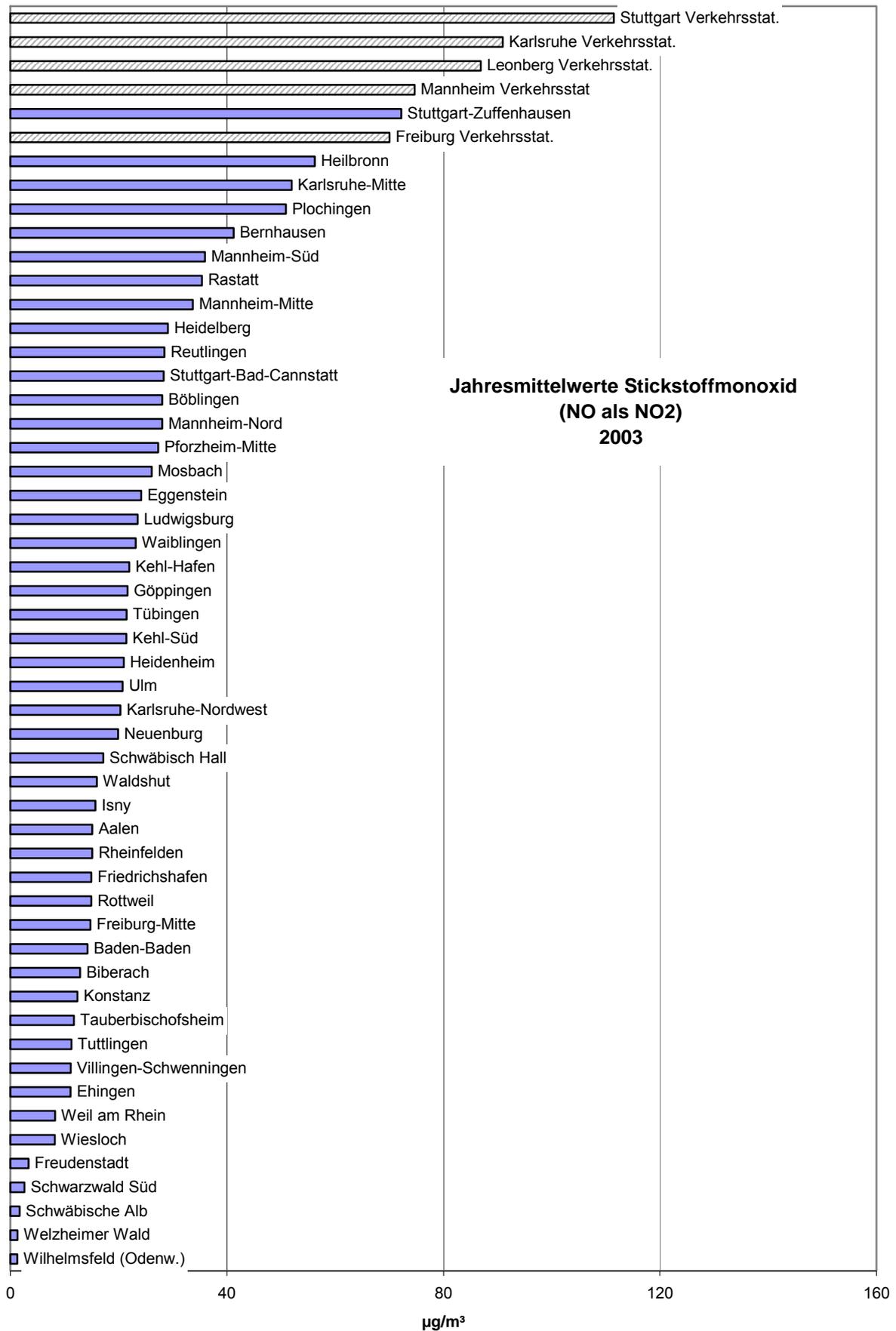


Abb. 1.1.2: Jahresmittelwerte der Stickstoffmonoxid-Konzentrationen (NO als NO₂) im Jahr 2003

1.2 Stickstoffdioxid (NO₂)

Für Stickstoffdioxid NO₂ zeigten weitaus mehr Stationen als für NO eine Zunahme der Jahresmittelwerte im Jahr 2003 gegenüber 2002 (Abb. 1.2.1).

Definiert man einen Indifferenzbereich von $\pm 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ entsprechend $\pm 5\%$ des Grenzwertes von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$, in welchem die jährliche Veränderung aufgrund verschiedenster Einflussfaktoren eher zufällig ist, ergibt sich eine Gruppierung der Stationen in solche mit Zunahme, Stagnation und Abnahme.

Zwar zeigen nach diesem Kriterium nur noch 13 von 53 Stationen eine **Zunahme**, sehr deutlich fällt diese aber an den Verkehrsstationen Freiburg, Leonberg und Stuttgart sowie den städtischen Stationen Plochingen und Heilbronn aus. Dabei verzeichneten die bisher eher geringer belasteten Verkehrsstationen Freiburg und Leonberg den größten Konzentrationszuwachs. Die städtischen Stationen Plochingen und Heilbronn, welche ebenfalls signifikante Steigerungen aufwiesen, sind zwar keine direkten Verkehrsstationen, aber durch hohes Verkehrsaufkommen im Umfeld ihrer Ballungsräume auch einer erhöhten Stickstoffoxidimmission ausgesetzt.

Somit nahm an allen bezüglich des Grenzwertes als kritisch einzustufenden Stationen der Jahresmittelwert von NO₂ zu, lediglich die Verkehrsstation Karlsruhe bildete eine Ausnahme. Die von den absoluten Konzentrationswerten (Abb. 1.2.2) eher dem Mittelfeld zugehörigen Stationen Heidenheim bis Ehingen in der Abbildung 1.2.1. zeigen bereits viel geringere Zunahmen von nur 2 bis $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Legt man das oben eingeführte Indifferenzkriterium zugrunde, so ist an 35 von 53 Stationen gegenüber 2002 **keine Veränderung** eingetreten. Auch diese Stagnation ist ein Indiz dafür, dass die bisherigen Prognosen über einen raschen Rückgang der NO₂-Belastung nicht zutreffen.

Lediglich 5 Stationen mit uneinheitlichen Standorteigenschaften zeigen eine sehr geringe Abnahme von 2 bis $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die höher belastete Station Stuttgart-Bad-Cannstatt ist hier ebenso dabei wie Waldshut am Hochrhein.

Im Jahr 2003 überschritten die Verkehrsstationen Stuttgart ($80 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Karlsruhe ($61 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Mannheim ($56 \mu\text{g}/\text{m}^3$) die Summe des Grenzwertes zum Schutz der menschlichen Gesundheit gemäß 22.BImSchV plus der Toleranzmarge für 2003 von $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Abb. 1.2.2). Die Jahresmittelwerte der Verkehrsstationen Leonberg ($51 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Freiburg ($51 \mu\text{g}/\text{m}^3$) sowie der städtischen Stationen Stuttgart-Zuffenhausen ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Karlsruhe-Mitte ($41 \mu\text{g}/\text{m}^3$) lagen über dem ab 2010 einzuhaltenden Grenzwert von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Mit Werten zwischen 5 und $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wiesen die Hintergrundstationen die geringsten Werte auf, mit $13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ die Station Freudenstadt den geringsten Wert der übrigen städtischen Stationen.

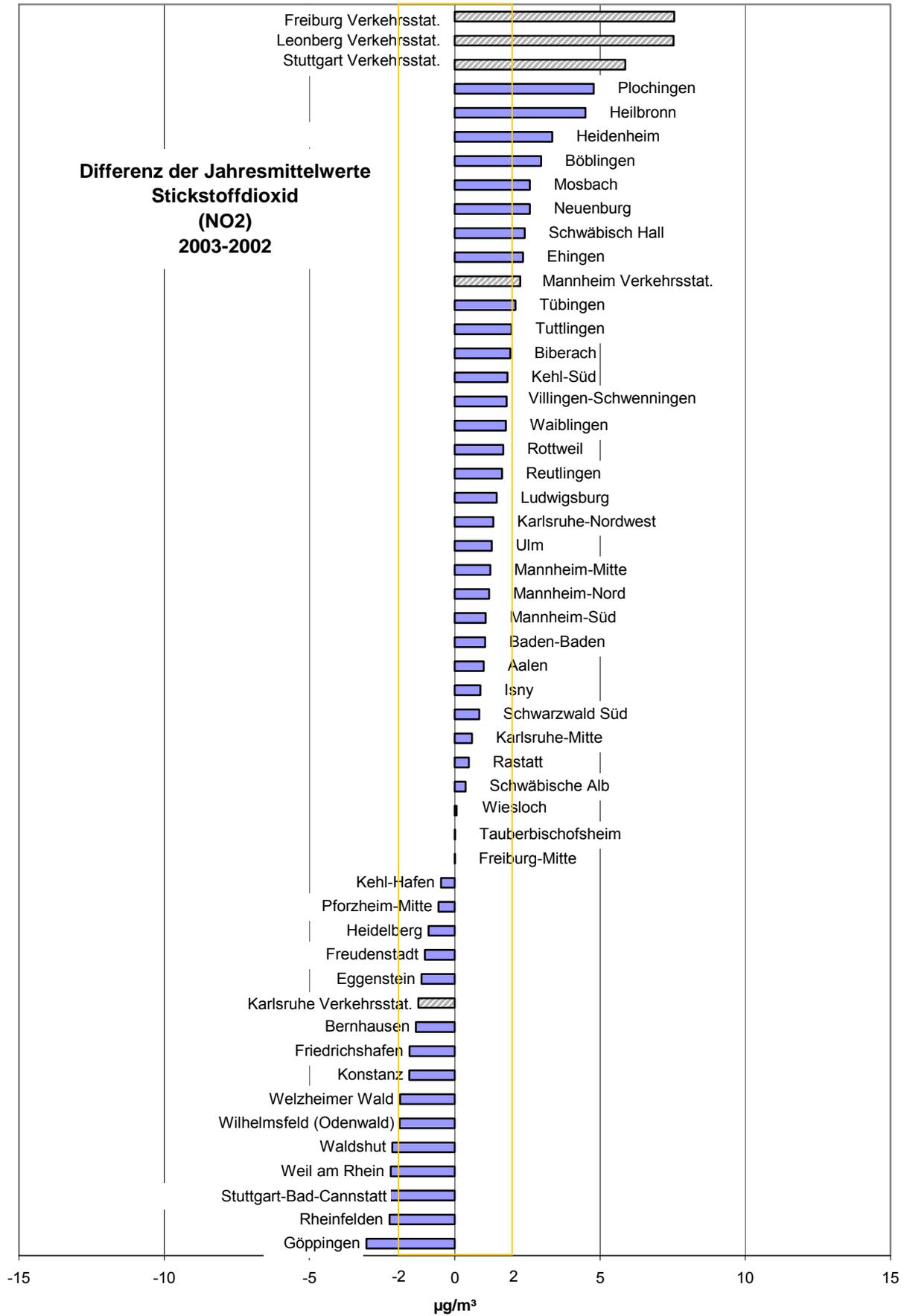


Abb. 1.2.1: Veränderung der Jahresmittelwerte der Stickstoffdioxid-Konzentration (NO₂) im Jahr 2003 gegenüber 2002

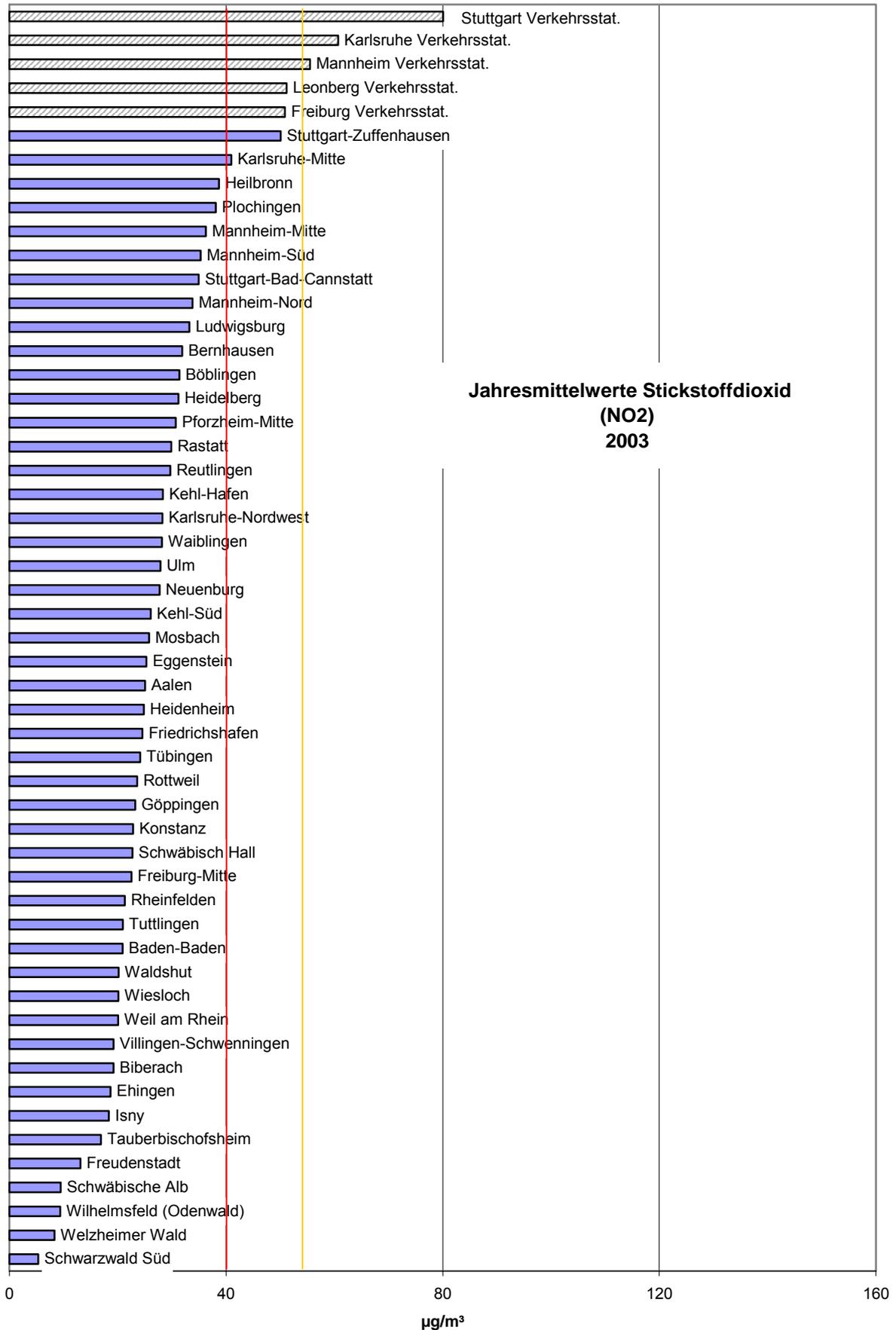


Abb. 1.2.2: Jahresmittelwerte der Stickstoffdioxid-Konzentrationen (NO₂) im Jahr 2003. Grenzwert ab 2010 nach 22. BImSchV: 40 µg/m³, Grenzwert plus Toleranzmarge für 2003: 54 µg/m³

1.3 Summe der Stickstoffoxide (NO_x als NO₂)

Entsprechend den jeweiligen Veränderungen der NO- und NO₂-Konzentrationen im Jahresmittel 2003 gegenüber 2002 lagen auch die Veränderung der Summe NO_x in der Regel in einem engen Bereich von wenigen µg/m³. Dabei hatte etwa die Hälfte der Stationen eine Zunahme, die andere Hälfte eine Abnahme zu verzeichnen (Abb. 1.3.1). Im Mittel betrug die Veränderung + 0,5 µg/m³.

Die Verkehrsstation Leonberg wies mit 11 µg/m³ die größte NO_x-Zunahme auf, gefolgt von der städtischen Station Heilbronn mit 8,8 µg/m³.

Die Verkehrsstationen Karlsruhe und Stuttgart lagen, aufgrund der starken Dominanz der NO-Konzentrationen und deren Veränderungen, auch an der Spitze der Abnahmen von NO_x mit 16,5 und 8,6 µg/m³. An den städtischen Stationen Stuttgart-Bad-Cannstatt und Bernhausen nahmen sowohl NO als NO₂ ab und führten in der Summe zu einer Abnahme von 7,7 bzw. 4,7 µg/m³.

Betrachtet man die absoluten Konzentrationen, so erreichte im Jahresmittel 2003 die Verkehrsstation Stuttgart mit 192 µg/m³ den höchsten Wert, gefolgt von den Verkehrsstationen Karlsruhe (152 µg/m³), Leonberg (138 µg/m³), Mannheim (130 µg/m³) sowie Freiburg (121 µg/m³). Die Stationen Heilbronn, Karlsruhe-Mitte und Plochingen, alle in Ballungsgebieten oder Großstädten gelegen, hatten deutlich höhere NO_x-Konzentrationen als alle anderen städtischen Stationen.

Die niedrigsten Werte waren an den Hintergrundstationen mit 8 bis 11 µg/m³ und in Freudenstadt mit 17 µg/m³ zu verzeichnen.

Anteil des Stickstoffmonoxids (NO) an die Summe der Stickstoffoxide (NO_x)

Der Anteil des NO dominierte die Summe der Stickstoffoxide an allen Verkehrsstationen mit 57 bis 63%, ging aber gegenüber 2002 leicht um rund 3% zurück.

Eine ganze Reihe städtischer Stationen mit merklichem Verkehrsaufkommen im Umfeld hatten nur geringfügig niedrigere oder vergleichbare NO-Anteile, z.B. Heilbronn 59%, Plochingen 57%, Karlsruhe-Mitte und Bernhausen 56% sowie Rastatt 54%. Diese Stationen befanden sich alle im oberen Drittel der NO_x-Konzentrationen (Abb. 1.3.2). Für die weiteren Stationen in diesem Konzentrationsbereich wie Mannheim-Süd, Mannheim-Mitte, Heidelberg und Böblingen lagen die NO- und NO₂-Konzentrationen in der gleichen Größenordnung. Bei Mannheim-Nord (45%) und Stuttgart-Bad-Cannstatt (45%) dominierte leicht die NO₂-Konzentration. Den geringsten NO-Anteil am NO_x bei den städtischen Stationen hatte Freudenstadt mit 20%. Am niedrigsten war er an den Hintergrundstationen Schwäbische Alb, Welzheimer Wald und Odenwald mit 15 bis 12%.

Aus dieser Aufstellung wird deutlich, dass der NO-Anteil am NO_x eng mit der Verkehrsbelastung korreliert ist und direkt im Straßenraum maximale Werte annimmt.

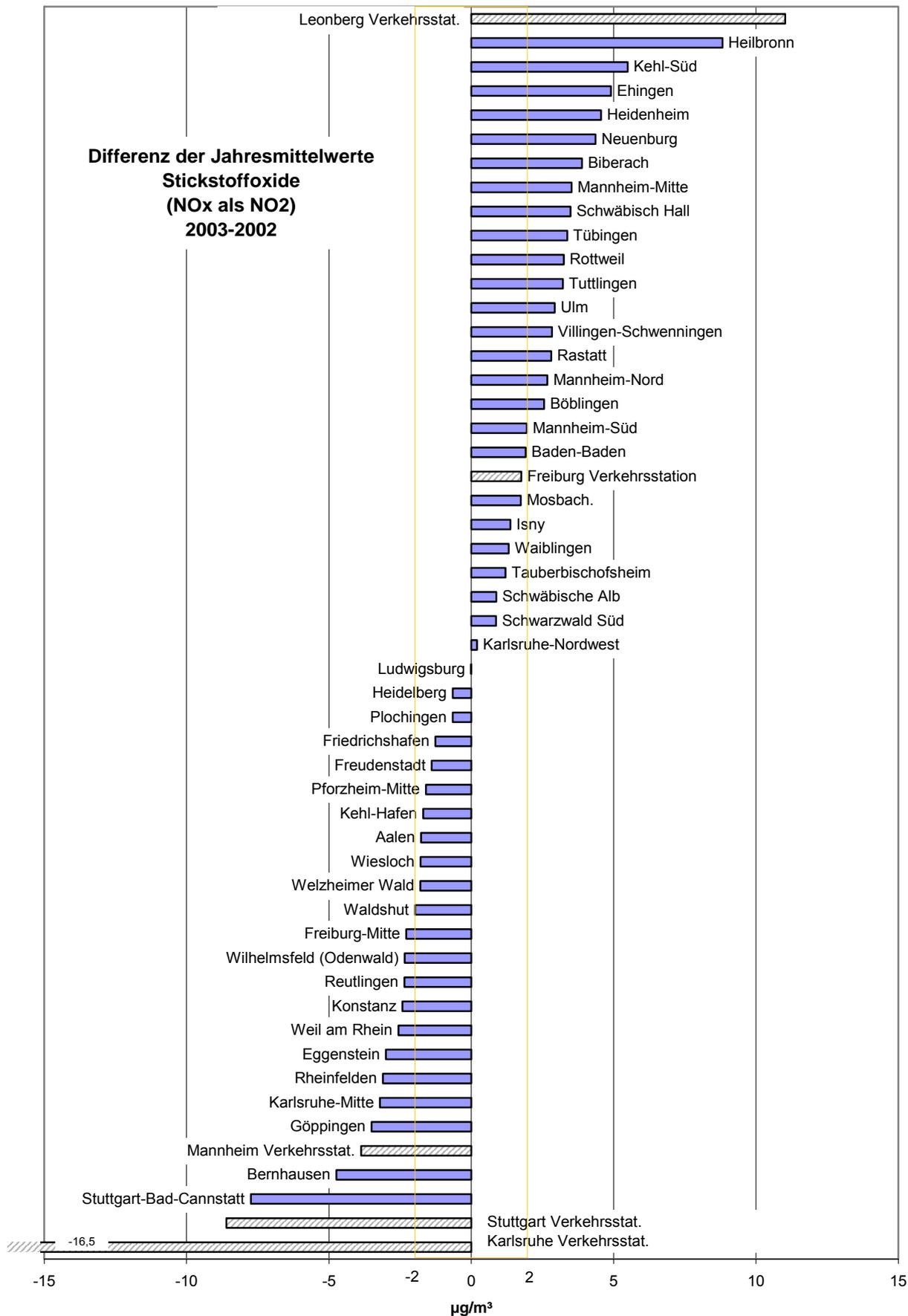


Abb. 1.3.1: Veränderung der Jahresmittelwerte der Stickstoffoxid-Konzentration (NO_x als NO₂) im Jahr 2003 gegenüber 2002

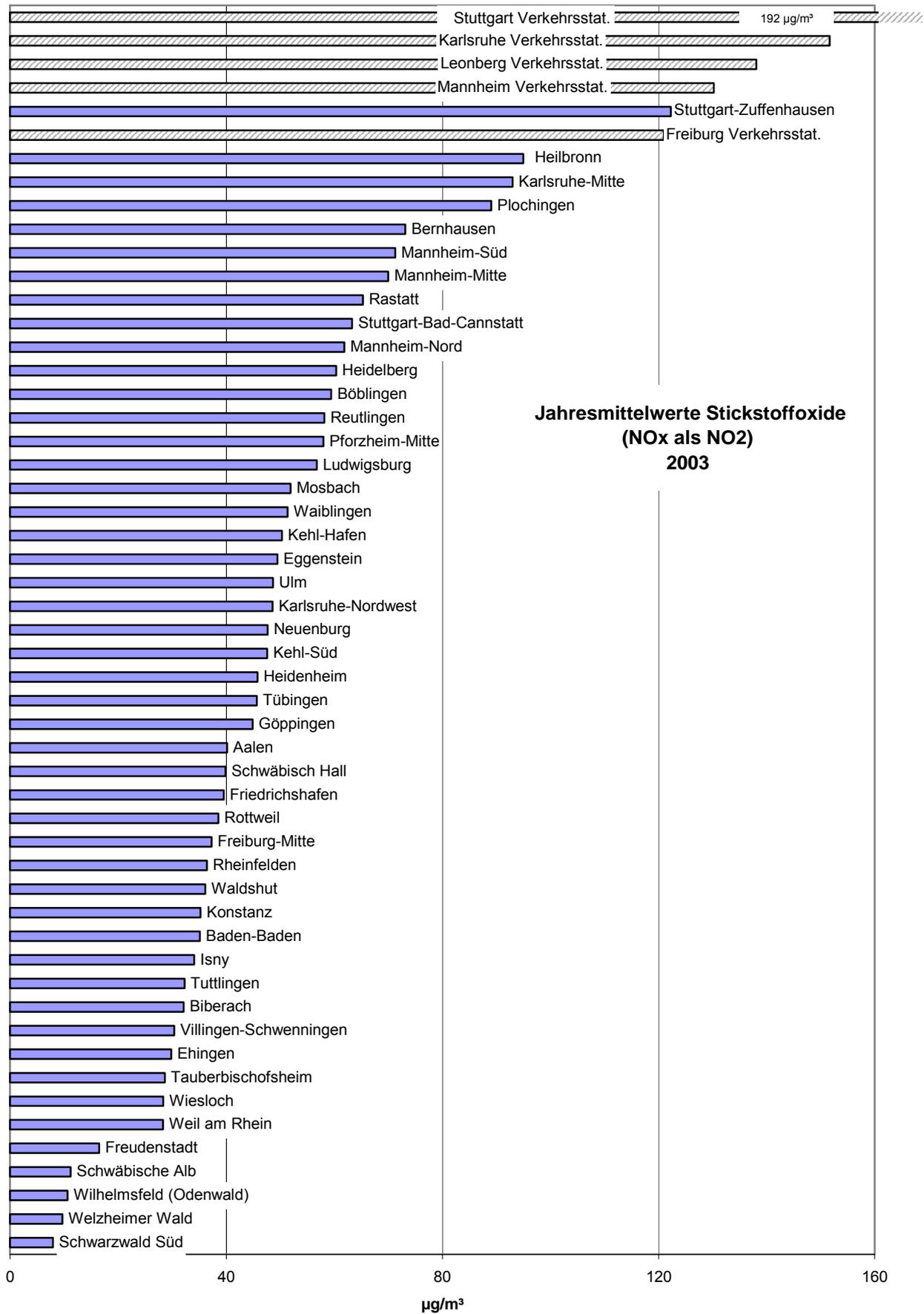


Abb. 1.3.2: Jahresmittelwerte der Stickstoffoxid-Konzentrationen (NO_x als NO₂) im Jahr 2003

2 Veränderungen der NO-, NO₂- und NO_x-Immissionen im längeren Zeitraum 1995 bis 2003

Seit 1995 sind die Verkehrsstationen in Baden-Württemberg in Betrieb, weshalb der Zeitraum 1995 bis 2003 für eine Trendanalyse aller Luftmessstationen besonders geeignet ist.

Hierfür standen die Daten von 4 Verkehrsstationen, 41 Stationen in städtischer und vorstädtischer Lage sowie an 3 Hintergrundstationen zur Verfügung.

2.1 Veränderungen an den Verkehrsstationen (1995 bis 2003)

Die Abbildung 2.1.1 zeigt die Entwicklung der NO- und NO₂-Konzentrationen für den Zeitraum 1995 bis 2003. Die resultierenden mittleren jährlichen Veränderungen (lineare Approximation) sind der Tabelle 2.1 und der Abbildung 2.1.2 zu entnehmen.

Einzelne Verkehrsstationen	Stickstoffmonoxid (NO als NO ₂)		Stickstoffdioxid (NO ₂)		Stickstoffoxid (NO _x als NO ₂)	
	Mittlere jährliche Veränderung in µg/m ³ ·a					
	1995-2002	1995-2003	1995-2002	1995-2003	1995-2002	1995-2003
<i>Mittelwerte</i>	-8,0	-8,2	-0,4	-0,2	-8,4	-8,4
Freiburg	-7,6	-7,0	-1,8	-1,3	-9,4	-8,3
Karlsruhe	-8,3	-8,7	+0,3	+0,2	-8,0	-8,5
Mannheim	-8,9	-8,6	-1,3	-1,1	-10,1	-9,7
Stuttgart	-7,2	-8,6	+1,2	+1,5	-6,0	-7,0

Für die Verkehrsstationen Ulm und Leonberg stehen keine vergleichbaren Zeitreihen zur Verfügung.

Tab. 2.1: Veränderungen der Stickstoffoxidkonzentrationen in den Zeiträumen 1995 bis 2002 beziehungsweise 1995 bis 2003

Stickstoffmonoxid (NO als NO₂)

An den Verkehrsstationen Stuttgart und Karlsruhe nahmen 2003 die NO-Konzentrationen stärker als in den vorangegangenen Jahren ab. Dies führte zu einer erhöhten mittleren jährlichen Abnahme der NO-Konzentrationen. An den beiden Stationen Stuttgart und Mannheim führten die Werte des Jahres 2003 zu einer geringeren Abnahme.

Im Zeitraum 1995 bis 2003 zeigten die Verkehrsstationen weitgehend eine parallele Entwicklung der NO-Konzentrationen. Freiburg weist eine geringere mittlere jährliche Abnahme der NO-Konzentrationen auf, allerdings ausgehend vom niedrigsten Absolutwert aller Verkehrsstationen.

Stickstoffdioxid (NO₂)

Die NO₂-Konzentrationen nahmen im Jahre 2003 gegenüber 2002 an den Verkehrsstationen Stuttgart, Freiburg und Mannheim zu. An der Verkehrsstation Stuttgart führte dies zu einer weiteren Steigerung des positiven Trends der NO₂-Konzentrationen, in Mannheim und Freiburg zu einer Abschwächung der mittleren Abnahme pro Jahr seit 1995.

Lediglich an der Verkehrsstation Karlsruhe nahm die NO_2 -Konzentration von 2002 auf 2003 leicht ab. Der sonst ansteigende Trend der NO_2 -Konzentrationen wurde hierdurch geringfügig gebremst.

Unter Berücksichtigung der Konzentrationswerte des Jahres 2003 zeigt besonders die Verkehrsstation Stuttgart seit 1999, also über 5 Jahre hinweg, eine stetige jährliche Zunahme (Abb. 2.1.1) der NO_2 -Immission. Auch an der Station Leonberg steigen die NO_2 -Jahresmittel seit 2000 an.

Summe der Stickstoffoxide (NO_x als NO_2)

Entsprechend den Entwicklungen für die NO - und NO_2 -Konzentrationen addierten sich die Tendenzen zu einer verstärkten mittleren jährlichen Abnahme der NO_x -Konzentrationen für die Verkehrsstationen Karlsruhe und Stuttgart und zu einer geringeren mittleren jährlichen Abnahme für die Verkehrsstationen Mannheim und Freiburg (Abb.2.1.2).

Anteil des Stickstoffmonoxids (NO) an der Summe der Stickstoffoxide (NO_x)

Die Anteile der NO -Konzentrationen an der Summe der NO_x -Jahresmittelwerte der Verkehrsstationen lagen im Jahr 2003 im Mittel bei 59% (Spannbreite von 57 bis 63%). Trotz der Abnahme dieser Anteile, welche im Jahr 1995 im Mittel noch 72% betragen haben, dominiert die Entwicklung der NO -Werte auch weiterhin die Entwicklung der NO_x -Konzentrationen an den Verkehrsstationen.

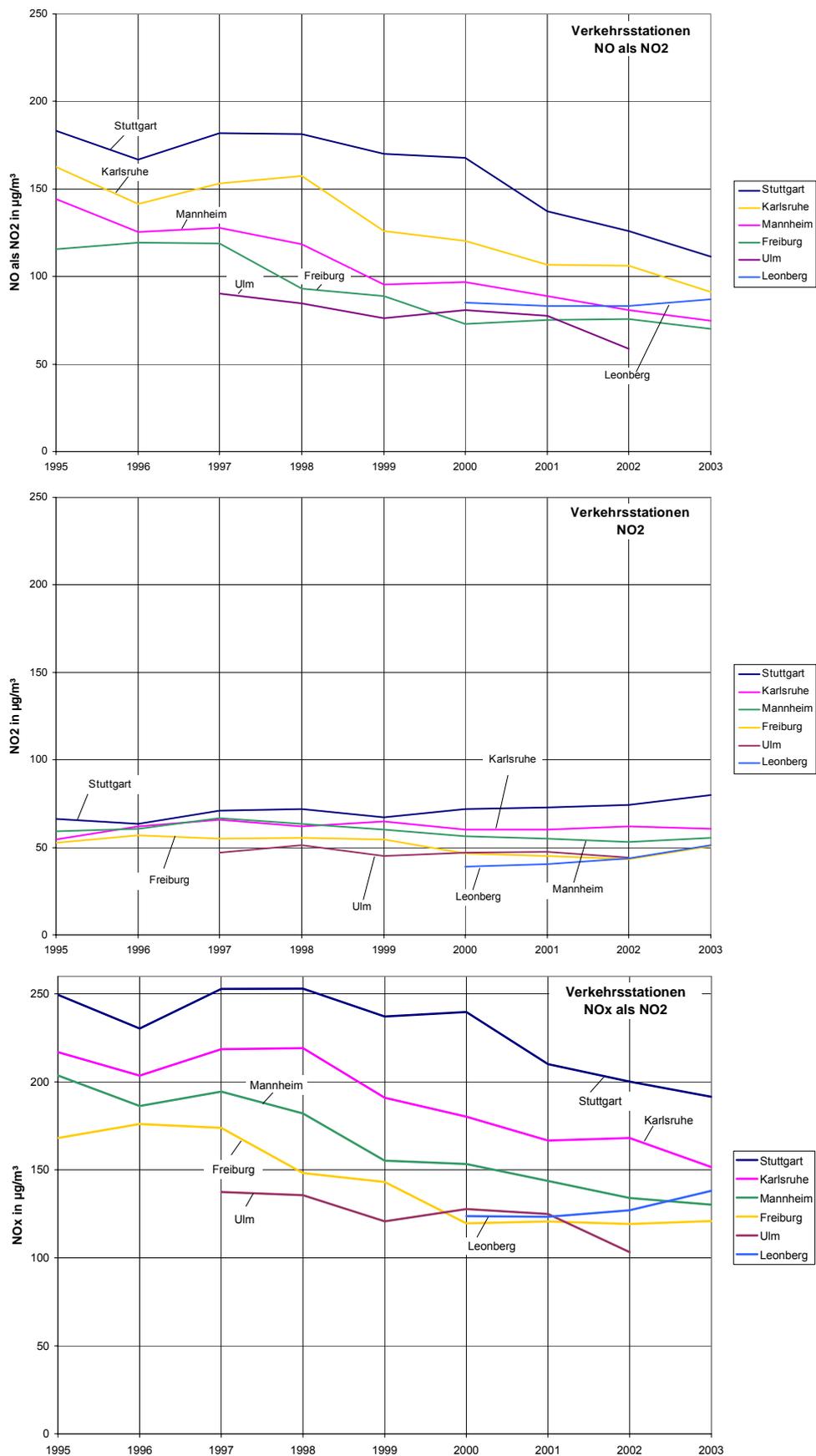


Abb. 2.1.1: Jahresmittelwerte der Stickstoffoxidimmissionen an den Verkehrsstationen in den Jahren 1995 bis 2003

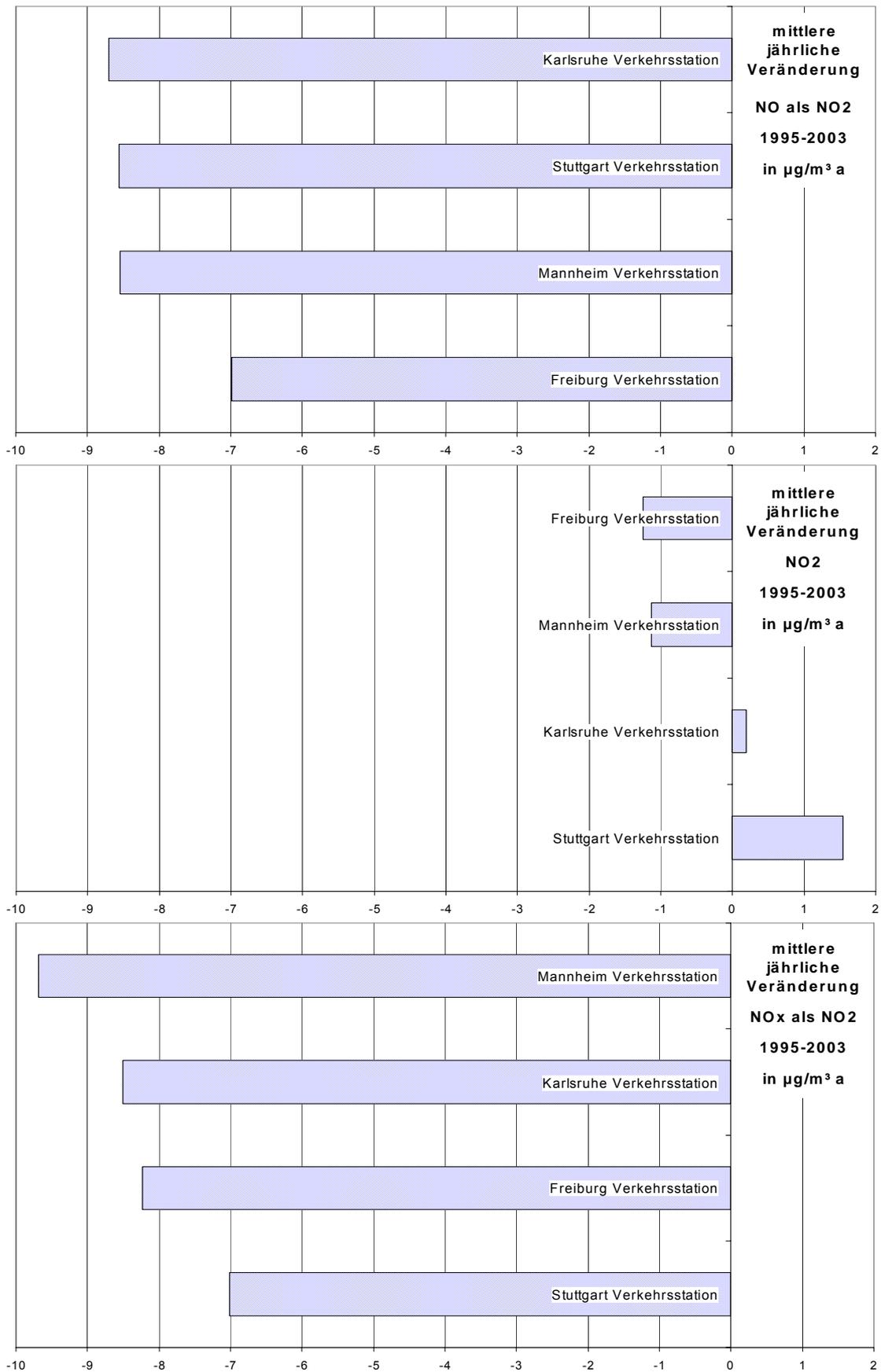


Abb. 2.1.2: Mittlere jährliche Veränderung der Stickstoffoxid-Jahresmittelwerte an den Verkehrsstationen im Zeitraum 1995 bis 2003 (NO und NO_x als NO₂)

2.2 Veränderungen an allen Stationen (1995 bis 2003)

Für die Verkehrsstationen liegen Jahresmittelwerte seit 1995 vor, daher wird im Folgenden der Zeitraum von 1995 bis 2003 auch für alle Stationen des Luftmessnetzes ausgewertet.

Die Abbildungen 2.2.1 bis 2.2.3 zeigen die entsprechenden Werte des gesamten Messnetzes.

Die Luftmessstation Heilbronn wurde 1996 innerhalb des Stadtgebietes verlegt und zwar hin zu einer größeren Verkehrsbeeinflussung. Vermutlich ist dies die Hauptursache für das abweichende Trendverhalten (Zunahme bei NO, NO₂ und NO_x in den nachfolgenden Abbildungen).

Stickstoffmonoxid (NO als NO₂)

Die höchsten mittleren jährlichen Abnahmen der NO-Konzentration von 7,0 bis 8,7 µg/m³·a im Zeitraum 1995 bis 2003 verzeichneten die Verkehrsstationen, gefolgt von den Stationen Plochingen und Karlsruhe-Mitte mit 5,3 beziehungsweise 4,6 µg/m³·a. Alle anderen Stationen wiesen deutlich geringere Veränderungen im Rahmen von - 2,5 µg/m³ (Heidelberg) bis + 1,2 µg/m³·a (Heilbronn) auf (Abb. 2.2.1).

Die Berücksichtigung der NO-Jahresmittelwerte für 2003 gegenüber dem Berechnungszeitraum 1995 bis 2002 veränderte die mittlere jährliche Abnahme an den meisten Stationen um weniger als ± 0,4 µg/m³·a.

Stickstoffdioxid (NO₂)

Alle Stationen wiesen im Zeitraum 1995 bis 2003 mittlere jährliche Veränderungen der NO₂-Konzentrationen von weniger als ± 2 µg/m³·a auf und lagen damit in einem deutlich engeren Rahmen als die Veränderungen der NO-Konzentrationen (Abb. 2.2.2). An 48 der 53 untersuchten Stationen war die jährliche Abnahme kleiner als 1 µg/m³·a, bei den meisten nur im Bereich weniger Zehntel µg/m³·a.

Die höchste mittlere jährliche Zunahme verzeichnete die Verkehrsstationen Stuttgart mit 1,5 µg/m³·a, gefolgt von der städtischen Station Heilbronn und Stuttgart-Zuffenhausen. Die höchste mittlere jährliche Abnahme ergab sich für die Stationen Waiblingen mit 1,6 µg/m³·a, gefolgt von Rheinfeldern mit 1,5 µg/m³·a und der Verkehrsstation Freiburg mit 1,3 µg/m³·a.

Die Berücksichtigung der NO₂-Jahresmittelwerte für 2003 gegenüber dem Berechnungszeitraum 1995 bis 2002 beeinflussen die mittlere jährliche Ab- oder Zunahme an den meisten Stationen relativ wenig. Lediglich die Verkehrsstation Freiburg erfuhr etwas größere Veränderungen von - 1,8 (1995-2002) auf - 1,3 µg/m³·a (1995-2003).

Insgesamt belegt die Auswertung aller Stationen, dass über nunmehr 9 Jahre hinweg nur eine sehr geringe Abnahme der NO₂-Immissionen in Baden-Württemberg erfolgt ist. Sollte sich dieser Trend so fortsetzen, reicht er nicht aus, um im Jahr 2010 den Grenzwert von 40 µg/m³·a überall einzuhalten.

Summe der Stickstoffoxide (NO_x als NO₂)

Mit Ausnahme der Station Heilbronn (+ 2,0 µg/m³·a) weisen alle Stationen eine mittlere jährliche Abnahme der NO_x-Konzentrationen im Zeitraum 1995 bis 2003 auf. Die mittleren jährlichen Veränderungen an den Verkehrsstationen lagen zwischen - 7,0 und - 9,7 µg/m³·a, gefolgt von Plochingen mit - 6,2 µg/m³·a und Karlsruhe-Mitte mit - 4,9 µg/m³·a. Die Veränderungen an allen anderen Stationen lagen in der Bandbreite von - 3,2 bis - 0,2 µg/m³·a (Abb. 2.2.3).

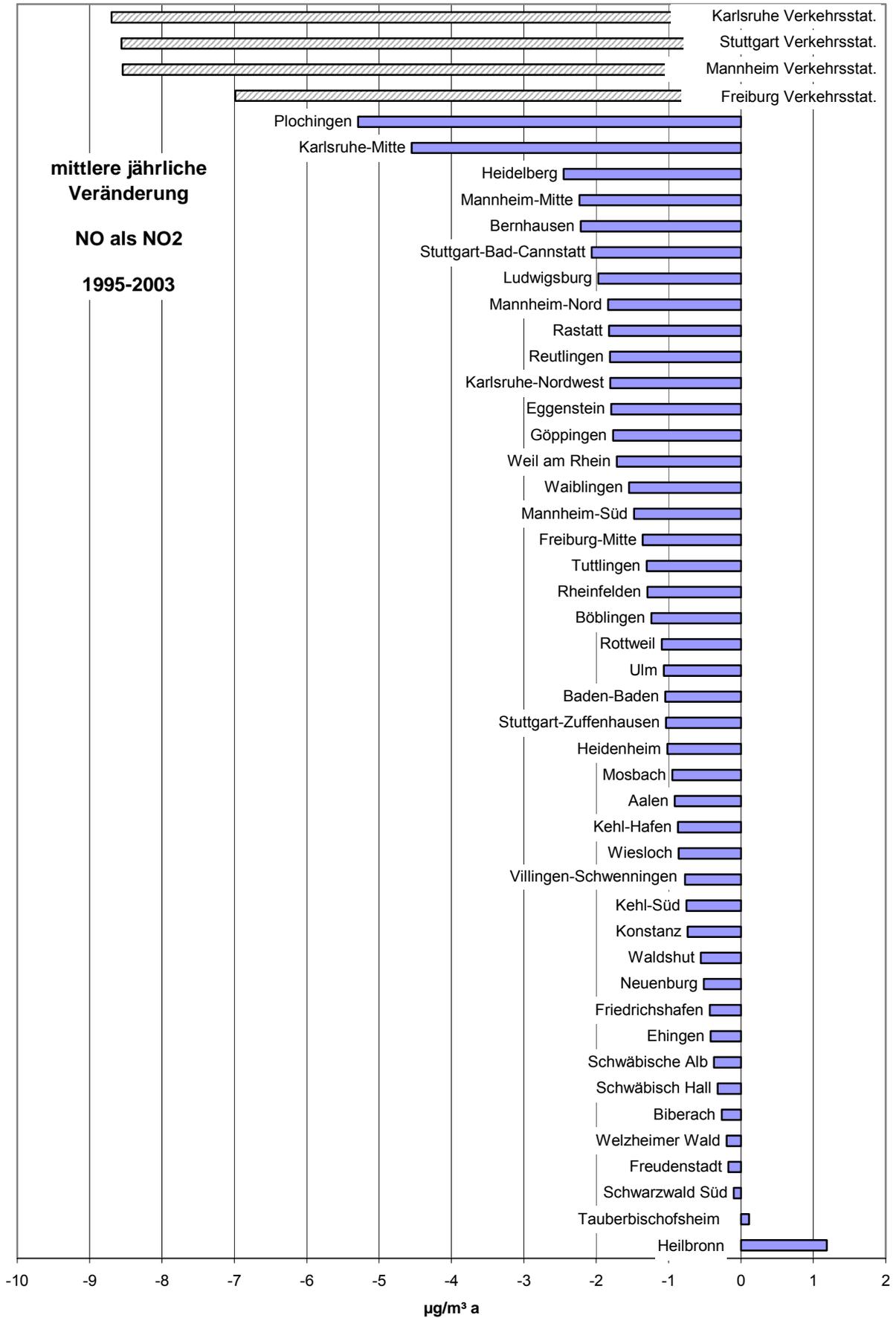


Abb. 2.2.1: Mittlere jährliche Veränderung der Stickstoffmonoxid-Jahresmittelwerte (NO als NO₂) im Zeitraum 1995 bis 2003

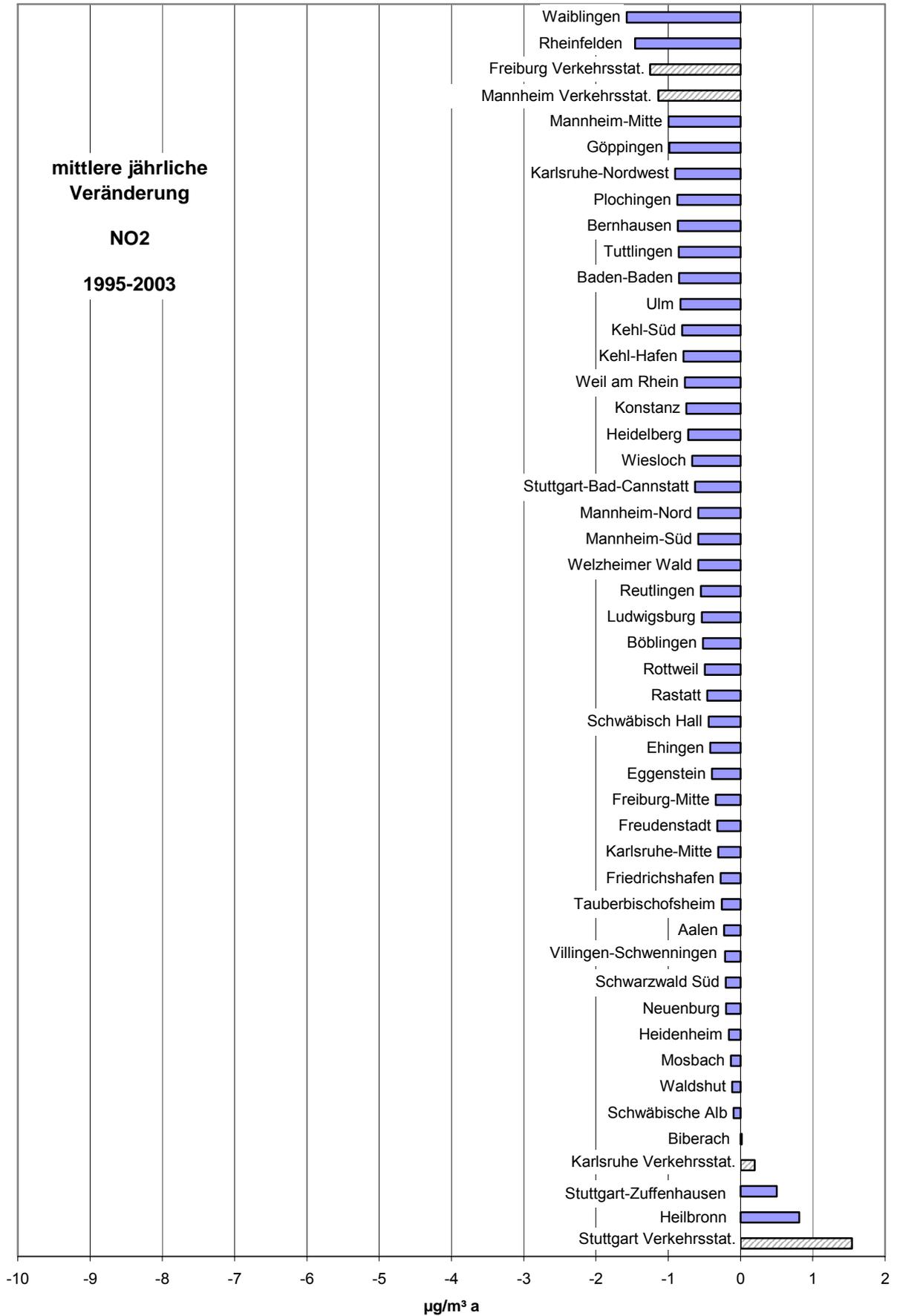


Abb. 2.2.2: Mittlere jährliche Veränderung der Stickstoffdioxid-Jahresmittelwerte (NO₂) im Zeitraum 1995 bis 2003

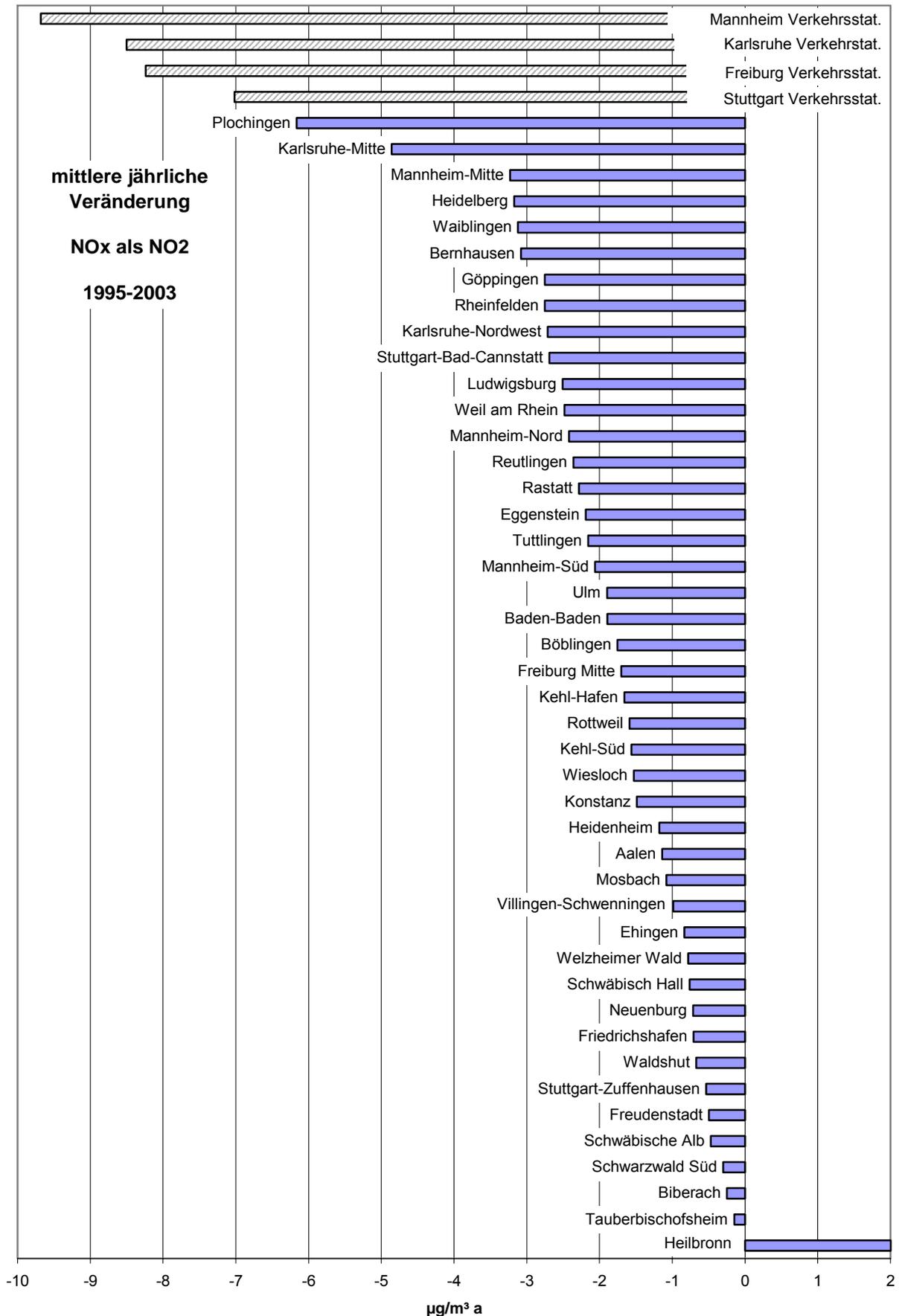


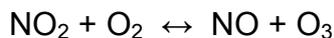
Abb. 2.2.3: Mittlere jährliche Veränderung der Stickstoffoxid-Jahresmittelwerte (NO_x als NO₂) im Zeitraum 1995 bis 2003

Besonders die deutliche Abnahme des NO-Anteils am NO_x an den Verkehrsstationen, die sich im direkten Einflussbereich der Auspuffemissionen befinden, deutet auf eine Veränderung des Emissionsverhältnisses NO zu NO_2 bei den Kraftfahrzeugemissionen seit 1995 hin.

Ein Grund für diese Entwicklung könnte die starke Zunahme des Anteils von Diesel-Pkw sein, die seit einigen Jahren durchweg mit Oxidationskatalysatoren ausgestattet werden. Diese weisen ein tendenziell höheres NO_2/NO_x -Verhältnis im Abgas auf als Ottomotor-Pkw. Auch Stadtbusse werden häufig mit Oxidationskatalysatoren ausgerüstet (in Baden-Württemberg wird dies mit Mitteln des UVM gefördert). Die ebenfalls bei Stadtbussen zunehmend eingesetzten CRT-Partikelfilter verwenden das in einem vorgeschalteten Oxikat erzeugte NO_2 als Oxidationsmittel für Ruß. Diese Verschiebung in der Fahrzeugflotte hin zu Dieselfahrzeugen mit Oxikat und höherem NO_2 -Anteil im Abgas könnte ein Grund für den gegenüber dem allgemeinen NO_x -Trend abgeflachten NO_2 -Trend sein, insbesondere an verkehrsnahen Standorten.

3.3 Einfluss der Luftchemie

Ein atmosphärenchemischer Erklärungsansatz für die nahezu konstanten NO_2 -Konzentrationen an verkehrsnahen Messstationen lässt sich aus der Betrachtung des photochemischen Gleichgewichts zwischen Stickstoffoxiden und Ozon ableiten³:



Setzt man die Komponenten nach dem Massenwirkungsgesetz in Beziehung, so ergibt sich:

$$k = \frac{[\text{NO}] \cdot [\text{O}_3]}{[\text{NO}_2]}$$

Dabei ist k die Gleichgewichtskonstante.

In den Abb. 3.3 und 3.4 wurde die Gültigkeit dieser Beziehung für die Stationen des baden-württembergischen Luftmessnetzes für die Jahre 2002 und 2003 geprüft. Es zeigt sich ein relativ deutlicher linearer Zusammenhang, wobei die Punkte umso näher am Koordinatennullpunkt liegen, je verkehrsferner gemessen wird. Die Steigung der Regressionsgeraden (= k) ist im stark mit Ozon belasteten Jahr 2003 mit $k=47,0$ erheblich steiler als in 2002 mit $k=33,5$.

In Abb. 3.5 sind die Stationen des Messnetzes über den Zeitraum 1992 – 2003 dargestellt, wobei jeder Punkt die Mittelwerte eines Jahres und einer Messstation repräsentiert. Um die Analyse zu erleichtern, wurden die Stationen in drei Gruppen aufgeteilt: Verkehrsnahe Stationen, sonstige städtische Stationen und Hintergrund. Es ergibt sich noch klarer ein linearer Zusammenhang für die städtischen und verkehrsnahen Stationen ($k \approx 34$). Dies spricht dafür, dass sich für die städtische Situation das Verhältnis zwischen NO, NO_2 und Ozon gut durch das Massenwirkungsgesetz beschreiben lässt, während bei Hintergrundstationen die niedrigen NO- und NO_2 -Konzentrationen und die häufig hohen Ozonkonzentrationen anscheinend nicht im Gleichgewicht miteinander stehen.

Wie ist dieser offenbar existierende Zusammenhang nach dem Massenwirkungsgesetz nun zu interpretieren, welche Schlussfolgerungen ergeben sich?

³ nach P. Rabl, Bayer. LfU, 2003

- Ist ein gestiegenes oxidatives Potential der Atmosphäre, also eine Zunahme der Ozonkonzentrationen in den Städten, für den geringen NO₂-Rückgang verantwortlich?

In der Tat ist in den Ballungsgebieten Baden-Württembergs seit einigen Jahren eine Zunahme der mittleren Ozonkonzentrationen zu beobachten (Abb. 3.6 oben). Diese Zunahme wirkt der Abnahme der NO-Emission entgegen, so dass es bei der Produktbildung [NO] · [O₃] zu einer Kompensation der Trends kommen kann.

Bei Umformung des Massenwirkungsgesetzes in

$$[\text{NO}_2] = 1/k ([\text{NO}] \cdot [\text{O}_3]) = c ([\text{NO}] \cdot [\text{O}_3])$$

ergibt sich, dass die NO₂-Konzentration proportional zu dem Produkt [NO] · [O₃] ist. Insofern spielt Ozon offenbar eine Rolle für das Zustandekommen eines im Vergleich zum NO-Rückgang stark abgeschwächten Rückgangs beim NO₂.

- Allerdings ist davon auszugehen, dass der in Abb. 3.6 oben wiedergegebene Anstieg der mittleren Ozonkonzentrationen in Ballungsgebieten nicht auf eine erhöhte Bildung, sondern auf einen **reduzierten Abbau** von Ozon zurückgeht. Dafür spricht zum einen die erhebliche europaweite Reduzierung der Vorläufersubstanzen NO_x und VOC in den vergangenen Jahren, die zu einem Rückgang der sommerlichen Ozonspitzenwerte geführt hat. Bei den Ozon-Jahresmittelwerten an den Hintergrundstationen (Abb. 3.6 unten) wird in Übereinstimmung damit zumindest kein zunehmender Trend beobachtet. Zum anderen zeigt der Verlauf der Ozonkonzentration in kleinen und mittleren Städten ein weitgehend konstantes Niveau mit Jahresmittelwerten zwischen 40 und 50 µg/m³ (Abb. 3.6 Mitte). Offensichtlich zu diesem Niveau hin bewegen sich die Ozon-Jahresmittel in den Ballungsgebieten (Ausnahme: Freiburg mit seiner Ozon-Sondersituation). Diese Entwicklung in Verbindung mit einer rückläufigen NO-Immission wird so interpretiert, dass der NO-bedingte Abbau des Ozons in den Ballungsgebieten geringer geworden ist und sich dadurch die Ozonkonzentration in den Städten allmählich dem Umland angleicht.
- Damit würde sich also das Ausbleiben einer NO₂-Abnahme in den Innenstädten mit dem Anstieg des Ozons durch geringeren luftchemischen Abbau erklären. Wenn dies soweit stimmt, würde das für die Zukunft bedeuten, dass die NO₂-Konzentration in dem Moment absinkt, wenn bei weiter abnehmenden NO_x-Emissionen die Ozonkonzentration in den Städten auf gleichem Niveau mit dem Umland angelangt ist.
- Ebenfalls nach dem Massenwirkungsgesetz wird die Ozonkonzentration an verkehrsnahen Stationen beeinflusst vom Verhältnis der NO- und NO₂-Immissionskonzentrationen zueinander und damit auch vom NO/NO₂-Anteil im Abgas. Eine weitere Umformung der obigen Gleichung ergibt:

$$\frac{[\text{NO}_2]}{[\text{NO}]} = c \cdot [\text{O}_3]$$

Dies bedeutet, dass im Gleichgewichtszustand die Ozonkonzentration proportional ist zum NO₂/NO-Verhältnis. Bei dieser Formulierung des Massenwirkungsgesetzes wird deutlich, dass die über den betrachteten Zeitraum festgestellte Verschiebung des NO₂/NO-Verhältnisses hin zu NO₂ ihrerseits wieder Auswirkungen auf die Ozonkonzentration hat. Dies unterstreicht die enge Verknüpfung der Komponenten NO, NO₂ und Ozon.

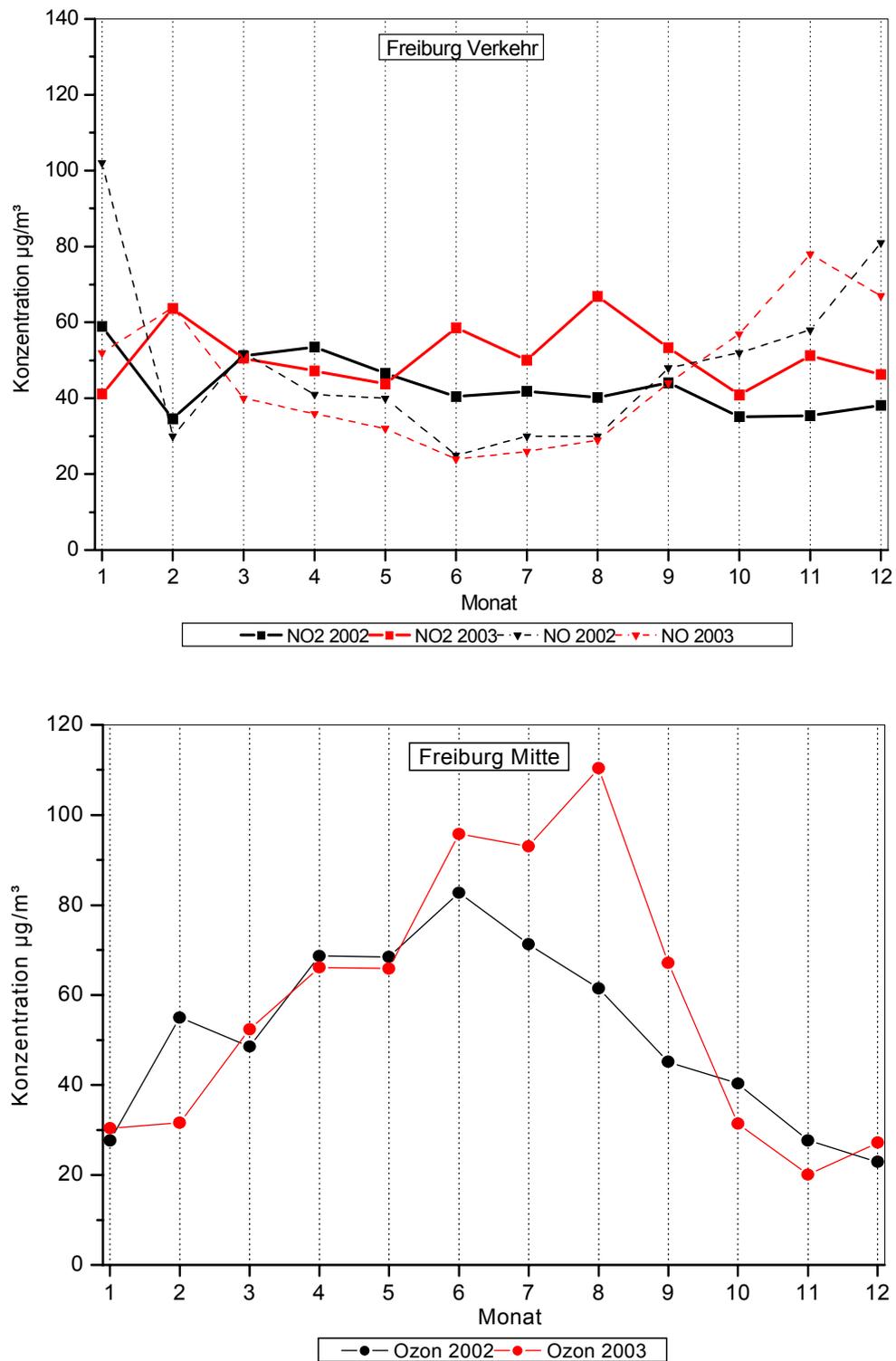


Abb. 3.1: Vergleich der Monatsmittel 2002 und 2003 der NO- und NO₂-Konzentration an der Verkehrsstation Freiburg und der Ozonkonzentration an einer benachbarten Station

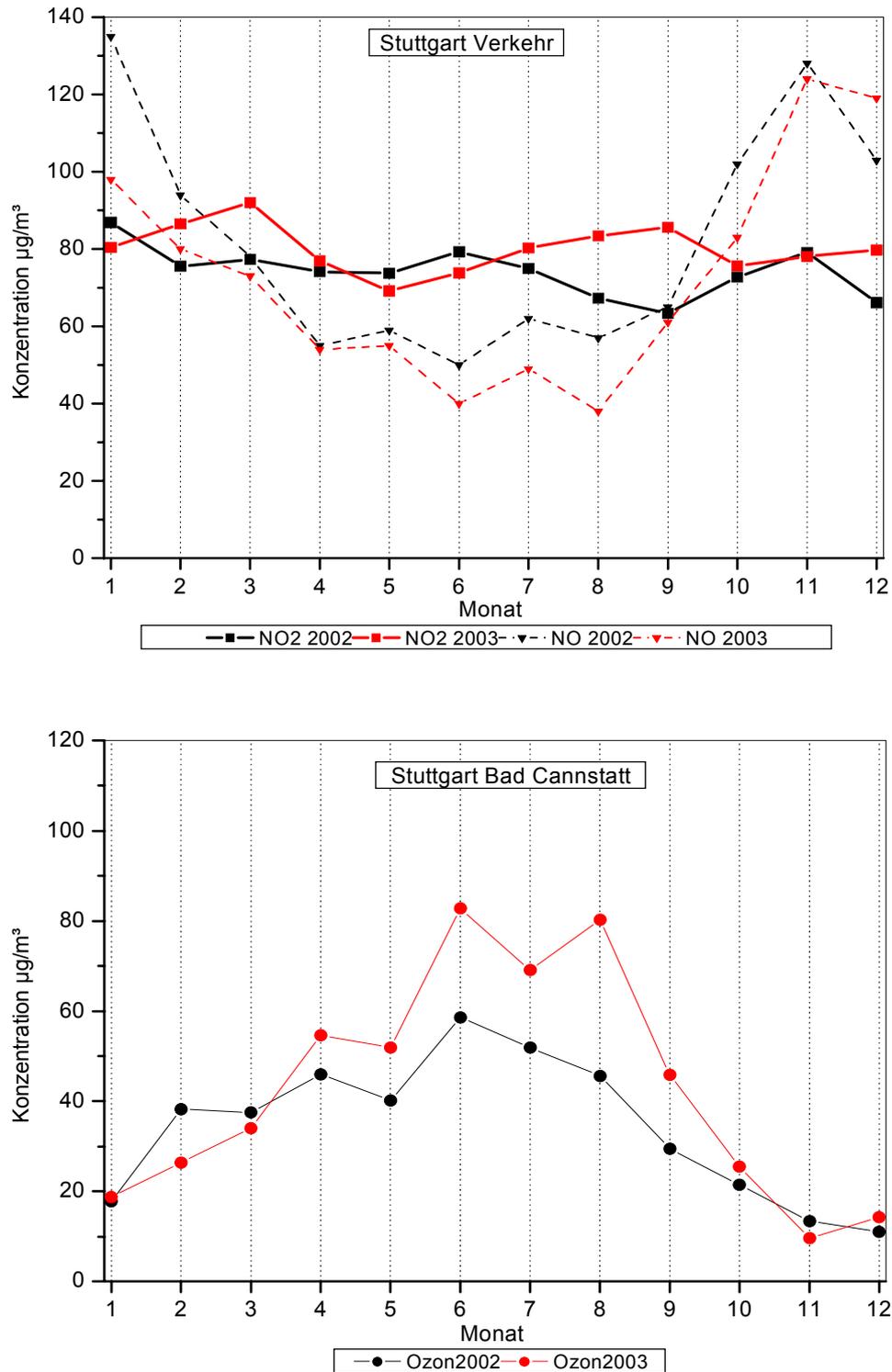


Abb. 3.2: Vergleich der Monatsmittel 2002 und 2003 der NO- und NO₂-Konzentration an der Verkehrsstation Stuttgart und der Ozonkonzentration an einer benachbarten Station

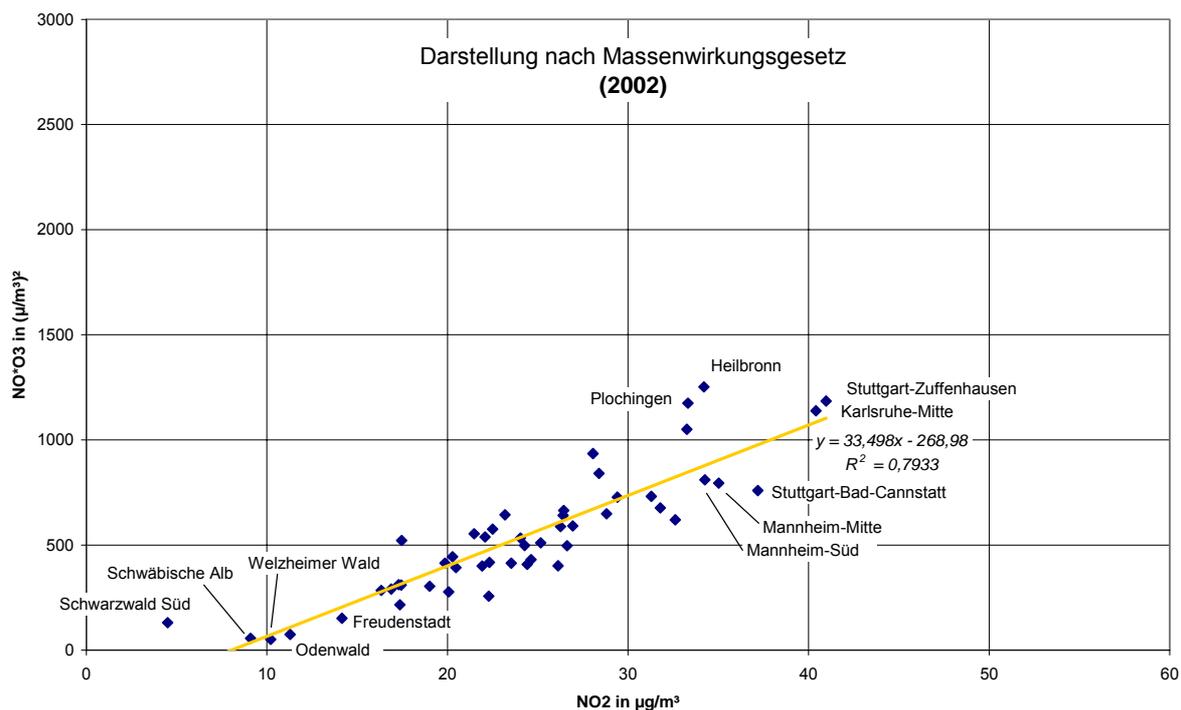


Abb. 3.3: Zusammenhang zwischen NO, NO₂ und Ozon an den Luftmessstationen in Baden-Württemberg **2002**. Jeder Punkt repräsentiert die Jahresmittelwerte einer Messstation.

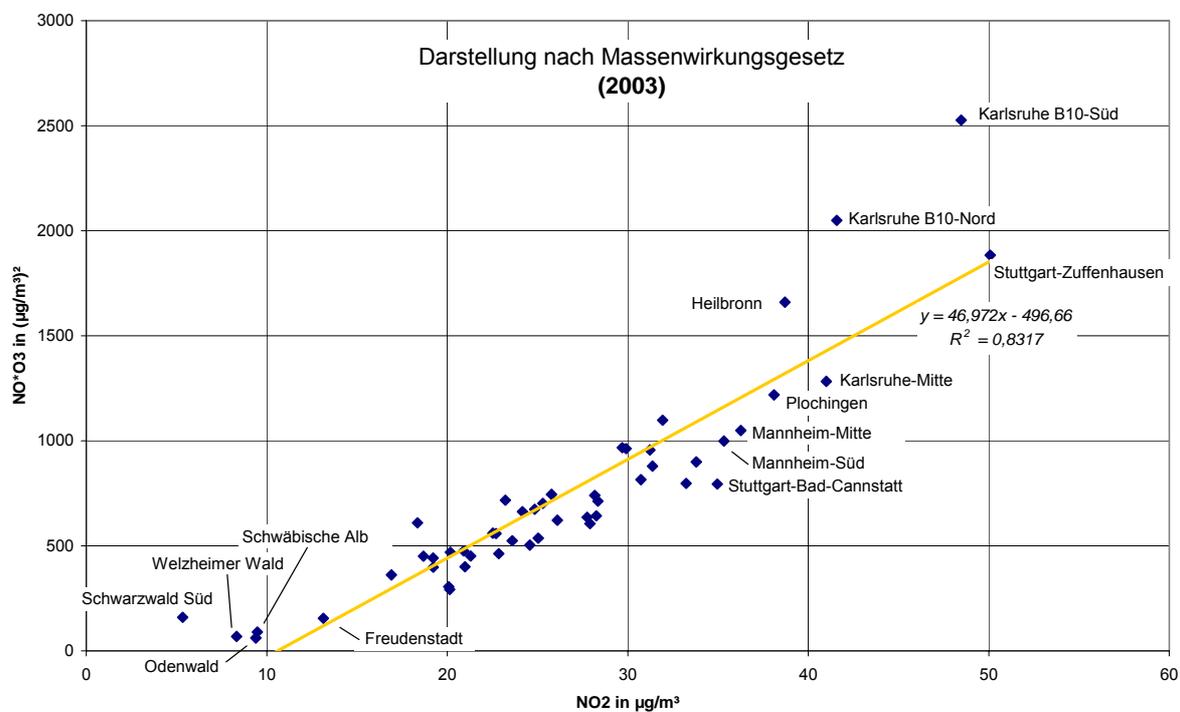


Abb. 3.4: Zusammenhang zwischen NO, NO₂ und Ozon an den Luftmessstationen in Baden-Württemberg **2003**. Jeder Punkt repräsentiert die Jahresmittelwerte einer Messstation.

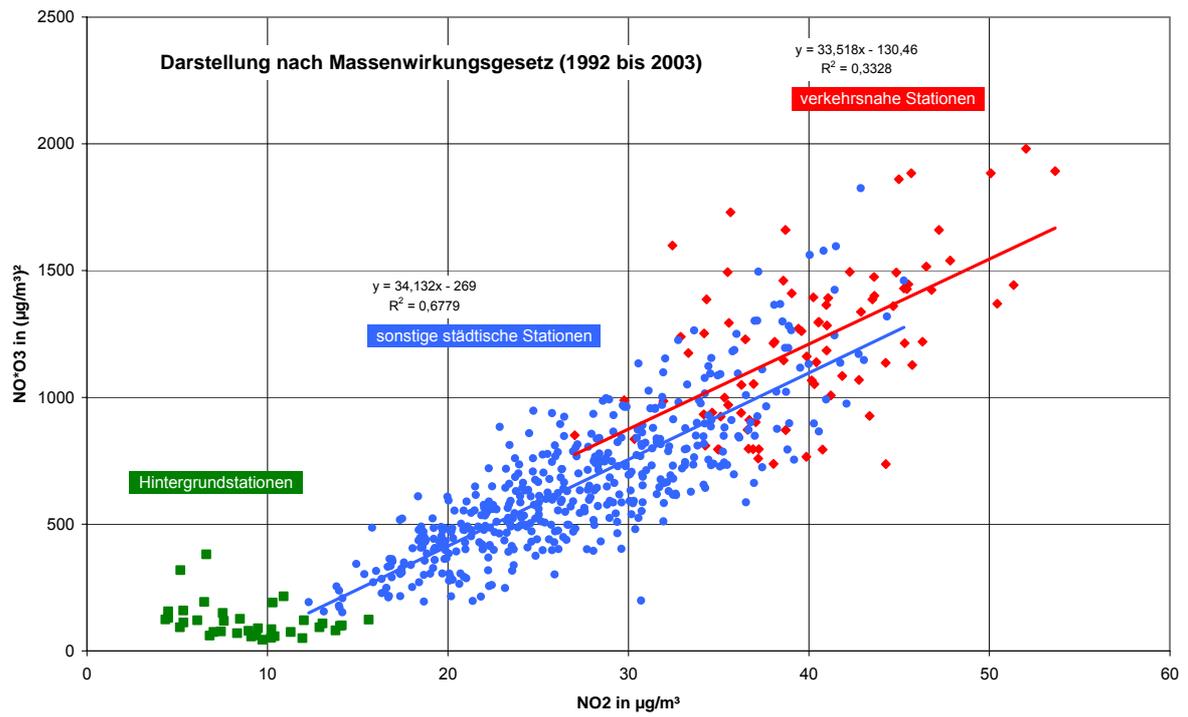


Abb. 3.5: Zusammenhang zwischen NO , NO_2 und Ozon an den Luftmessstationen in Baden-Württemberg im Zeitraum 1992 - 2003. Jeder Punkt repräsentiert die Mittelwerte eines Jahres und einer Messstation.

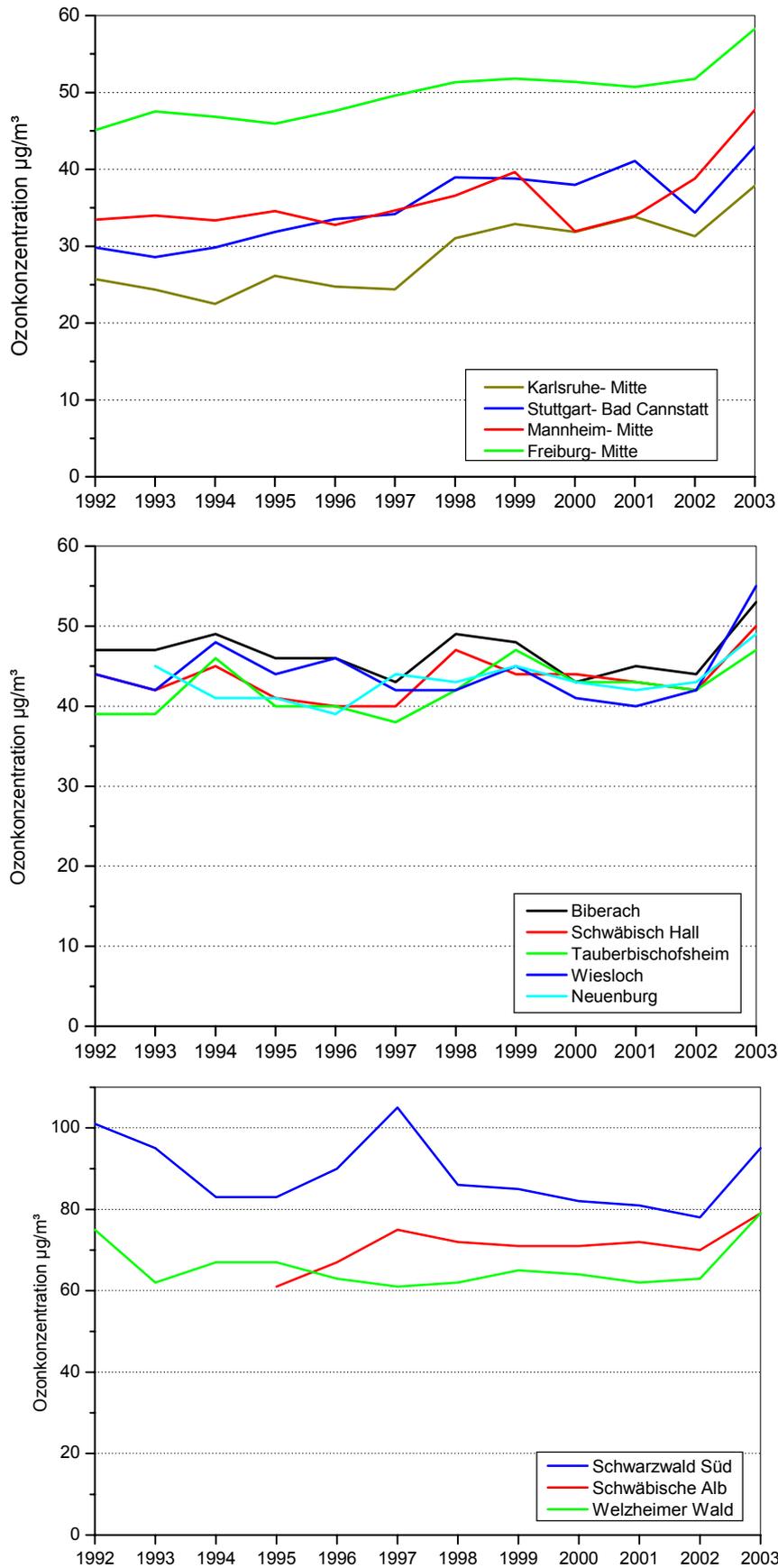


Abb. 3.6: Jahresmittel der Ozonkonzentration in Baden-Württemberg:
 Oben: in Ballungsgebieten; Mitte: in kleineren und mittleren Städten;
 Unten: an Hintergrundstationen (mit anderer Skalierung)