

**PEF - Projekt Europäisches Forschungszentrum  
für Maßnahmen zur Luftreinhaltung**

**Forschungsbericht**

**Abschätzung und Bewertung der Unsicherheiten  
hochaufgelöster NO<sub>x</sub>- und NMVOC-Emissionsdaten**

von

J. Kühlwein, R. Friedrich, A. Obermeier, J. Thepoke

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

Förderkennzeichen: PEF 2 96 002

Juli 1999



## INHALTSVERZEICHNIS:

|  |     |
|--|-----|
| Inhaltsverzeichnis.....                | I   |
| Abbildungsverzeichnis.....             | III |
| Tabellenverzeichnis.....               | V   |
| Abkürzungs- und Symbolverzeichnis..... | VII |

### **1 PROBLEMSTELLUNG UND ZIELSETZUNG ..... 1**

### **2 STATISTISCHE METHODEN DER FEHLERERMITTLUNG..... 3**

|  |    |
|--|----|
| 2.1 Fehlerarten.....                               | 5  |
| 2.2 Fehler der Eingangsgrößen.....                 | 6  |
| 2.2.1 Streuungsmaße.....                           | 6  |
| 2.2.2 Stichprobentechnik und Schätzverfahren ..... | 8  |
| 2.3 Ermittlung des Gesamtfehlers .....             | 11 |

### **3 ERGEBNISSE QUELLSEKTOR STRASSENVERKEHR ..... 15**

|  |    |
|--|----|
| 3.1 Fehler der Eingangsgrößen.....                                 | 15 |
| 3.1.1 Emissionsfaktoren .....                                      | 15 |
| 3.1.1.1 Abgasemissionen.....                                       | 15 |
| 3.1.1.2 Verdampfungsemissionen .....                               | 21 |
| 3.1.1.3 VOC-Einzelkomponenten .....                                | 22 |
| 3.1.2 Verkehrsstärken und Fahrleistungen .....                     | 23 |
| 3.1.2.1 Außerorts.....   | 23 |
| 3.1.2.2 Innerorts .....  | 26 |
| 3.1.3 Fahrmuster-Mix.....  | 28 |
| 3.1.3.1 Autobahnen.....  | 28 |
| 3.1.3.2 Sonstige Außerortsstraßen.....                             | 30 |
| 3.1.3.3 Innerorts .....  | 31 |
| 3.1.4 Flottenzusammensetzung .....                                 | 33 |
| 3.1.5 Längsneigung.....  | 38 |
| 3.1.5.1 Außerorts.....   | 38 |
| 3.1.5.2 Innerorts .....  | 40 |
| 3.1.6 Anzahl von Fahrten (Start- und Abstellvorgänge).....         | 40 |
| 3.1.7 Standzeitenverteilung .....                                  | 43 |
| 3.1.8 Fahrtweitenverteilung.....                                   | 44 |
| 3.1.9 Temperaturen.....  | 45 |
| 3.1.10 Tagesganglinien.....  | 46 |
| 3.1.11 Treibstoffqualität .....                                    | 47 |
| 3.2 Fehlerbandbreiten auf unterschiedlichen Straßenkategorien..... | 47 |
| 3.2.1 Warm-Emissionen außerorts .....                              | 48 |
| 3.2.2 Warm-Emissionen innerorts.....                               | 50 |
| 3.2.3 Kaltstartemissionen .....                                    | 52 |
| 3.2.4 Verdampfungsemissionen .....                                 | 54 |

|  |            |
|--|------------|
| 3.2.4.1 Tankatmung.....  | 54         |
| 3.2.4.2 Heiß- und Warmabstellen (Hot Soak).....  | 56         |
| 3.2.4.3 Running Losses.....  | 57         |
| 3.3 Gesamtfehler Jahresemissionen Baden-Württemberg 1994.....  | 58         |
| 3.4 Unsicherheiten bei räumlicher Verteilung der Emissionen.....   | 61         |
| 3.5 Unsicherheiten der zeitlichen Auflösung der Emissionen.....  | 63         |
| 3.6 Zusammenfassung Straßenverkehr.....  | 67         |
| <b>4 ERGEBNISSE QUELLSEKTOR LÖSEMITTEL .....</b>   | <b>69</b>  |
| 4.1 Charakterisierung des Quellsektors.....  | 69         |
| 4.2 Eingangsdaten und Methoden zur Emissionsermittlung.....  | 71         |
| 4.3 Bisherige Ansätze zur Abschätzung der Unsicherheiten berechneter Lösemittel-<br>Emissionen .....                                   | 73         |
| 4.4 Gesamteinschätzung der Unsicherheiten berechneter Jahresemissionen aus<br>Lösemittelanwendungen in Deutschland und Westeuropa..... | 74         |
| 4.5 Vorgehen zur detaillierten Abschätzung von Unsicherheiten.....   | 76         |
| 4.6 Quellgruppen- bzw. produktbezogene Abschätzung von Unsicherheiten.....   | 78         |
| 4.6.1 Anstrichmittel und Verdünnungen.....   | 79         |
| 4.6.1.1 Ermittlung des Inlandsverbrauches an Anstrichmitteln und<br>Verdünnungen.....  | 79         |
| 4.6.1.2 Zuordnung des Produktverbrauches und der Emissionen zu<br>Anwendungsbereichen sowie Regionalisierung.....                      | 82         |
| 4.6.1.3 Zeitliche Disaggregation.....  | 85         |
| 4.6.1.4 Stoffliche Aufgliederung von VOC-Gesamtemissionen.....   | 86         |
| 4.6.1.5 Gesamteinschätzung der Unsicherheiten.....   | 86         |
| 4.6.2 Oberflächenbehandlung.....   | 89         |
| 4.6.2.1 Ermittlung des Inlandsverbrauches.....   | 89         |
| 4.6.2.2 Zuordnung des Produktverbrauches und der Emissionen zu<br>Anwendungsbereichen sowie Regionalisierung.....                      | 90         |
| 4.6.2.3 Zeitliche Disaggregation.....  | 91         |
| 4.6.2.4 Stoffliche Aufgliederung.....  | 91         |
| 4.6.2.5 Gesamteinschätzung der Unsicherheiten.....   | 92         |
| 4.6.3 Sonstige Emittentenbereiche.....   | 92         |
| 4.6.3.1 Ermittlung von Jahresemissionen.....   | 94         |
| 4.6.3.2 Regionalisierung der Emissionsdaten.....   | 95         |
| 4.6.3.3 Zeitliche Disaggregation jährlicher Emissionsdaten.....  | 96         |
| 4.6.3.4 Stoffliche Disaggregation von NMVOC-Emissionen.....  | 97         |
| 4.7 Zusammenfassung Lösemittel-Emissionen.....   | 99         |
| <b>5 SCHLUSSBETRACHTUNG UND AUSBLICK .....</b>   | <b>103</b> |
| <b>6 QUELLENVERZEICHNIS.....</b>   | <b>107</b> |

## **ABBILDUNGSVERZEICHNIS:**

|          |  |    |
|----------|--|----|
| Abb. 1:  | Definition der Modellgrenzen .....   | 4  |
| Abb. 2:  | 95% - Vertrauensbereich (rel.) für HC als Funktion der mittleren Geschwindigkeit der Fahrmuster (innerorts und außerorts) - G-Kat-Pkw ab 1987; 1,4 - 2,0 Liter Hubraum [HASSEL 1998a].....                     | 19 |
| Abb. 3:  | 95% - Vertrauensbereich (rel.) für NO <sub>x</sub> als Funktion der mittleren Geschwindigkeit der Fahrmuster (innerorts und außerorts) - Lkw, 20-24 Tonnen zul. Gesamtmasse [HASSEL 1998b].....                | 19 |
| Abb. 4:  | Jährliche Innerortsfahrleistungen pro Gemeinde in den alten Bundesländern 1990 in Abhängigkeit von der Einwohnerzahl [SCHMITZ 1997].....   | 27 |
| Abb. 5:  | Durch ungenaue Längsneigungsangaben verursachte statistische Unsicherheiten der NMHC-Emissionen in Baden-Württemberg 1994.....   | 39 |
| Abb. 6:  | Durch ungenaue Längsneigungsangaben verursachte statistische Unsicherheiten der NO <sub>x</sub> -Emissionen in Baden-Württemberg 1994 .....  | 39 |
| Abb. 7:  | Fehlerbandbreiten der Jahresemissionen auf Außerortsstraßenabschnitten in Baden-Württemberg 1994.....  | 49 |
| Abb. 8:  | Fehlerbandbreiten der Jahresemissionen innerorts warm auf Gemeindeebene in Baden-Württemberg 1994.....   | 51 |
| Abb. 9:  | Fehlerbandbreiten der Kaltstartzuschläge auf Gemeindeebene in Baden-Württemberg für Pkw 1994.....  | 53 |
| Abb. 10: | Fehlerbandbreiten der jährlichen Tankatmungs- und Hot Soak- (Heiß- / Warmabstell-) Verluste in Baden-Württemberg 1994.....   | 55 |
| Abb. 11: | NO <sub>x</sub> -Emissionen und statistische Fehler einzelner Quellgruppen Straßenverkehr für die Gesamtemissionen Baden-Württemberg 1994 .....  | 59 |
| Abb. 12: | NMHC-Emissionen und statistische Fehler einzelner Quellgruppen Straßenverkehr für die Gesamtemissionen Baden-Württemberg 1994.....   | 60 |
| Abb. 13: | Unsicherheiten der räumlichen Verteilung von NO <sub>x</sub> -Emissionen des außerörtlichen Straßenverkehrs bei unbekanntem Verlauf der Straßenabschnitte zwischen den Netzknoten (Rheinland-Pfalz 1995) ..... | 63 |

|   |    |
|---|----|
| Abb. 14: Stündliche Verkehrsstärkeanteile an der jährlichen Gesamtverkehrsstärke, Standardabweichungen und Variationskoeffizienten von 21 Autobahnabschnitten in Baden-Württemberg am Mittwoch, 20.4.1994 ..... | 64 |
| Abb. 15: Bandbreite der Lösemittelgehalte verschiedener Lackarten .....   | 80 |
| Abb. 16: Jährlicher beschäftigtenbezogener Lösemittelseinsatz bei der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen in Betrieben des Maschinenbaus .....   | 84 |

## **TABELLENVERZEICHNIS:**

|          |  |    |
|----------|--|----|
| Tab. 1:  | Zusammenhang zwischen t-Faktor und Lagewahrscheinlichkeit für große Stichprobenumfänge.....  | 10 |
| Tab. 2:  | Durch die Methodik der Ermittlung von Emissionsfaktoren bedingte systematische Fehler.....   | 17 |
| Tab. 3:  | Statistische Fehler (VK) der Emissionsfaktoren mit warmem Motor für verschiedene Straßenkategorien in Baden-Württemberg 1994.....                                      | 20 |
| Tab. 4:  | Fahrleistungsverteilungen von Krädern und Lkw mit Anhängern auf allen Außerortsabschnitten in Baden-Württemberg 1990.....  | 24 |
| Tab. 5:  | Fehler bei der Interpolation von Verkehrsstärkedaten 1990 und 1995 auf 1994.....   | 25 |
| Tab. 6:  | Gesamt-Innerortsfahrleistungen für die alten Bundesländer 1990 nach drei unterschiedlichen Methoden.....   | 26 |
| Tab. 7:  | Mittlere Verteilung der Verkehrssituationen auf Autobahnen in den alten Bundesländern sowie obere und untere Grenze des 68,3 % - Vertrauensbereichs.....               | 29 |
| Tab. 8:  | Mittlere Fahrleistungsverteilungen der Linienführungen auf Außerortsstraßen in den alten Bundesländern (ohne autobahnähnliche Abschnitte) und Fehlerabschätzungen..... | 31 |
| Tab. 9:  | Mittlere Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und Fehlerabschätzungen.....   | 32 |
| Tab. 10: | Mittlere kaltstartrelevante Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und Fehlerabschätzungen.....                                      | 32 |
| Tab. 11: | Korrekturfaktoren für die Umrechnung von Pkw-Bestandsanteilen auf Pkw-Fahrleistungsanteile.....  | 34 |
| Tab. 12: | Vergleich der neu ermittelten Pkw-Klassen-Anteile für die alten Bundesländer 1994 mit den entsprechenden Angaben im UBA-Handbuch.....                                  | 34 |
| Tab. 13: | Auswirkungen der systematischen Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Pkw-Emissionen.....  | 35 |
| Tab. 14: | Auswirkungen der systematischen Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Emissionen aller Fahrzeugkategorien.....   | 36 |
| Tab. 15: | Auswirkungen der statistischen (regionalen) Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Pkw-Emissionen.....  | 36 |

|          |  |    |
|----------|--|----|
| Tab. 16: | Auswirkungen der statistischen (regionalen) Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Emissionen aller Fahrzeugkategorien.....                             | 37 |
| Tab. 17: | Mittlere, nach Längsneigungsklassen differenzierte Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und geschätzte Fehlergrenzen.....        | 40 |
| Tab. 18: | Gesamtfahrleistungen für die alten Bundesländer 1990 nach drei unterschiedlichen Methoden .....  | 41 |
| Tab. 19: | Fahrleistungsbezogene Fahrtenanzahl der Pkw in den alten Bundesländern - Mittelwert und Fehlerbandbreite.....  | 42 |
| Tab. 20: | Fehler bei der Ermittlung der Anzahl von Pkw-Fahrten auf Gemeindeebene.....  | 43 |
| Tab. 21: | Standzeitenverteilungen von Pkw.....   | 43 |
| Tab. 22: | Fahrtweitenverteilungen von Pkw .....  | 44 |
| Tab. 23: | Relative Gesamtfehler (systematische Fehler und Variationskoeffizienten) für Jahres-emissionen des Straßenverkehrs in Baden-Württemberg 1994 .....                   | 58 |
| Tab. 24: | Übersicht über die ausgewerteten Rasterelemente unterschiedlich feiner Rasternetze.....  | 62 |
| Tab. 25: | Fehlerbandbreiten der stündlichen Auflösung von jährlichen Verkehrsstärken für unterschiedliche Straßenkategorien (außerorts), Wochentage und Tageszeiten.....       | 65 |
| Tab. 26: | Gesamtbewertung berechneter Emissionen aus Kombinationen der Bewertungen von Emissionsfaktoren und Aktivitätsdaten .....   | 73 |
| Tab. 27: | Bewertungsskala und exemplarische Beschreibungen zur Einordnung der Unsicherheiten hochaufgelöster Emissionsberechnungen.....  | 77 |
| Tab. 28: | Fehlerbandbreiten des beschäftigtenbezogenen Einsatzes an Anstrichmittel und Verdünnungen für eine Auswahl an Betrieben in verschiedenen Wirtschaftszweigen .....    | 83 |
| Tab. 29: | Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus dem Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen in verschiedenen Anwendungsbereichen ..... | 86 |
| Tab. 30: | Fehlerbandbreiten des beschäftigtenbezogenen Einsatzes an Entfettungs- und Reinigungsmitteln für eine Auswahl an Betrieben in verschiedenen Wirtschaftszweigen ..... | 90 |
| Tab. 31: | Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus der Oberflächenbehandlung .....   | 92 |

|   |     |
|---|-----|
| Tab. 32: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus der Anwendung von organischen Lösemitteln (ohne Lackierung und Oberflächenbehandlung) ..... | 93  |
| Tab. 33: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus den mengenmäßig bedeutsamsten Quellgruppen .....  | 99  |
| Tab. 34: Zuordnung geschätzter Unsicherheitsbandbreiten zu den im Lösemittelsektor verwendeten qualitativen Bewertungsstufen .....  | 100 |

**ABKÜRZUNGS- UND SYMBOLVERZEICHNIS:**

|          |   |
|----------|---|
| A        | Autobahnen  |
| AB       | Fahrmuster Autobahn   |
| ABL      | alte Bundesländer   |
| AKF      | Aktivkohlefilter  |
| AO       | Fahrmuster außerorts  |
| b        | Beschleunigung  |
| B        | Bundesstraßen   |
| BEFU     | Basisemissionsfunktion  |
| BfLR     | Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung, Bonn |
| BImSchV  | Bundes-Immissionsschutz-Verordnung                            |
| BVZ      | Bundesverkehrszählung   |
| $c_i$    | Konstante   |
| CKW      | Chlorierte Kohlenwasserstoffe                                 |
| CORINAIR | Core Inventories Air  |
| DIW      | Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung, Berlin           |
| DTV      | durchschnittliche tägliche Verkehrsstärke                     |
| E        | Emission  |
| e        | zulässiger Fehler als Grenze des Vertrauensbereichs           |
| EBM      | Eisen-, Blech-, Metallwaren                                   |
| EF       | Emissionsfaktor   |
| EPS      | Expandiertes Polystyrol                                       |
| ESIG     | European Solvent Industry Group                               |
| EWZ      | Einwohnerzahl   |
| f        | Tagesganglinien-Typ   |
| FTP      | Federal Test Procedure  |
| GKat     | Katalysator und geregelte Gemischbildung                      |
| HC       | Kohlenwasserstoffe  |
| HS       | Heiß- / Warmabstellverluste (Hot Soak)                        |
| io       | innerorts   |
| IOFL     | Innerortsfahrleistung   |
| K        | Kreisstraßen  |
| KBA      | Kraftfahrt-Bundesamt, Flensburg                               |
| Kfz      | Kraftfahrzeug   |
| KG       | Kreis- und Gemeindestraßen                                    |
| KS       | Kaltstartzuschläge  |

|                                   |   |
|-----------------------------------|---|
| L                                 | Landesstraßen   |
| Lkw                               | Lastkraftwagen  |
| MW                                | Mittelwert  |
| n                                 | Anzahl der Einzelmeßwerte bzw. Stichprobenumfang              |
| N                                 | Umfang der Grundgesamtheit                                    |
| NMHC                              | Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe                               |
| NMVOG                             | Non Methane Volatile Organic Compounds                        |
| NO <sub>x</sub>                   | Stickoxide  |
| oG                                | obere Grenze des Vertrauensbereichs                           |
| Otto-GKat                         | Fahrzeuge mit Otto-Motor und GKat                             |
| Otto-sonst                        | Fahrzeuge mit Otto-Motor ohne GKat                            |
| Pkw                               | Personenkraftwagen  |
| RL                                | Running Losses  |
| RVP                               | Dampfdruck nach Reid  |
| RWTÜV                             | Rheinisch-Westfälischer Technischer Überwachungsverein, Essen |
| s                                 | Standardabweichung  |
| s <sub>j</sub>                    | Standardabweichung der Stichprobe j                           |
| SKS                               | Sommerkraftstoff  |
| StVZO                             | Straßenverkehrs-Zulassungs-Ordnung                            |
| s <sub><math>\bar{x}</math></sub> | Standardabweichung des arithmetischen Mittelwerts             |
| t                                 | Student-Faktor  |
| T                                 | Temperatur  |
| TA                                | Tankatmung  |
| TEW                               | tausend Einwohner   |
| TÜV                               | Technischer Überwachungsverein                                |
| UBA                               | Umweltbundesamt, Berlin                                       |
| uG                                | untere Grenze des Vertrauensbereichs                          |
| UKat                              | Katalysator und unregelte Gemischbildung                      |
| v                                 | Geschwindigkeit   |
| VB                                | Vertrauensbereich   |
| VK                                | Variationskoeffizient   |
| VOC                               | Volatile Organic Compounds                                    |
| WKS                               | Winterkraftstoff  |
| $\bar{x}$                         | arithmetischer Mittelwert                                     |
| x <sub>i</sub>                    | Eingangsgröße   |
| $\bar{x}_j$                       | arithmetischer Mittelwert der Stichprobe j                    |

## Kühlwein, Friedrich, Obermeier, Theloke

|                                 |  |
|---------------------------------|--|
| $y_i$                           | Hilfsgröße   |
| $z$                             | Anzahl aller möglichen unterschiedlichen Stichproben mit dem Umfang $n$  |
| $z_i$                           | Größe mit unbekanntem Einfluß  |
| $\Delta E$ (dE)                 | Gesamtfehler des Emissionswertes (differentiell)   |
| $\overline{\Delta E}$           | mittlerer Gesamtfehler   |
| $\Delta E_i$                    | Einzelfehler der berechneten Gesamtemission $E$ bezogen auf $\Delta x_i$                                       |
| $\overline{\Delta E}_{rel}$     | relativer mittlerer Gesamtfehler   |
| $\Delta T$                      | tägliche Temperaturdifferenz   |
| $\Delta x_i$ (dx <sub>i</sub> ) | Fehlerbandbreite der Eingangsgröße (differentiell)   |
| $\partial E/\partial x_i$       | partielle Ableitung der Emission nach der Eingangsgröße $i$ bzw. Sensitivität                                  |
| $\mu$                           | arithmetischer Mittelwert der Grundgesamtheit  |
| $\sigma_{\bar{x}}$              | Standardabweichung der Mittelwerte sämtlicher möglichen Stichproben aus der Grundgesamtheit mit dem Umfang $n$ |

# 1 PROBLEMSTELLUNG UND ZIELSETZUNG

Emissionsdaten in Form von Emissionskatastern dienen als Eingangsdaten zur Modellierung von atmosphärischen Transport-, Umwandlungs- und Depositionsprozessen und sind somit u.a. unabdingbare Voraussetzung für die numerische Simulation der Konzentrationen und Depositionsraten primärer und sekundärer Luftschadstoffe und Ausgangspunkt zur Entwicklung von Luftreinhaltestrategien. Über die Zuverlässigkeit und Fehlerbandbreiten der erhobenen Emissionsdaten lagen bislang jedoch nur unzureichende Kenntnisse vor.

Erste Ansätze beinhalteten pauschale Fehlerschätzungen, die sich auf die Jahresemissionen eines Schadstoffes bzw. einer ganzen Stoffklasse bezogen [BUILTJES 1987]. In späteren Untersuchungen wurde eine genauere quellgruppenbezogene Aufgliederung von Fehlerschätzungen angestrebt, und zwar - wie z. B. in [BAARS 1993] - vorrangig für den Bereich der Kraftfahrzeugabgase. In der präzisen Identifizierung der Ursachen von Unsicherheiten und einer möglichst weitgehenden, ursachenbezogenen Quantifizierung von Unsicherheitsbandbreiten in sämtlichen Teilschritten hochaufgelöster Emissionsberechnungen bestehen aber nach wie vor erhebliche Kenntnislücken [MCINNES 1996].

Um möglichst präzise Aussagen über die Qualität der modellierten Emissionsdaten treffen zu können, ist es erforderlich, durch geeignete Methoden statistische Fehlerbandbreiten der Eingangsdaten zu ermitteln und diese über Sensitivitätsuntersuchungen und statistische Fehlerrechnung zu einem Gesamtfehler zu verknüpfen, der als Maß für die Güte der berechneten Emissionsdaten angegeben werden kann. Sofern Art und Umfang der Eingangsdaten eine konkrete Quantifizierung von Fehlerbandbreiten nicht ermöglichen, sind zumindest qualitative Bewertungen anhand definierter Kriterien anzustreben.

Aus den Ergebnissen der Unsicherheitsberechnungen können diejenigen Eingangsdaten ermittelt werden, deren Fehler am stärksten zum Fehler der Gesamtemissionen beitragen und deren Genauigkeit im Rahmen einer Modifizierung des Berechnungsmodells vorrangig verbessert werden sollte. Umgekehrt kann möglicherweise der Aufwand bei der Ermittlung von wenig sensitiven Eingangsdaten bei annähernd gleichbleibender Qualität der berechneten Emissionen reduziert werden.

Grundlage der hier durchgeführten Fehlerbetrachtungen sind bereits entwickelte Modelle, wie sie zur Erstellung von Emissionskatastern verwendet werden. Als Eingangsdaten dienen verfügbare, bereits in anderem Zusammenhang erhobene Daten über aktivitäts- und emissionsbezogene Eingangsgrößen. Zusätzliche Erhebungen bzw. Messungen zur Vergrößerung der Eingangsdatenbasis

und somit zur Präzisierung der Ergebnisse der Emissionsmodellierung werden nicht durchgeführt. Die durchgeführten Fehlerabschätzungen konzentrieren sich auf die beiden wesentlichen Quellgruppen für NO<sub>x</sub>- und NMHC-Emissionen, d.h. den Straßenverkehr und die Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen.

## 2 STATISTISCHE METHODEN DER FEHLERERMITTLUNG

Mit Hilfe der statistischen Fehlerrechnung können physikalische Meßgrößen bzw. aus Meßwerten abgeleitete physikalische Größen auf ihre Genauigkeit hin überprüft werden. Durch Berechnung von Fehlerbandbreiten bzw. Vertrauensbereichen können Schlüsse über die Qualität der ermittelten physikalischen Größe gezogen werden.

Das Beobachtungsmaterial bei der Ermittlung physikalischer Größen wird allgemein in direkte und vermittelnde Messungen gegliedert, wobei unter vermittelnden Beobachtungen Messungen verstanden werden, die nicht unmittelbar die gesuchte Größe ergeben, sondern die erst über einen funktionalen Zusammenhang der gemessenen Größen zur gesuchten Größe führen.

Großräumige Emissionen aus Punkt-, Linien- oder Flächenquellen können nur unter großem Aufwand meßtechnisch erfaßt werden, so daß diese i.d.R. durch Modellrechnungen ermittelt werden müssen. Jedes Rechenmodell basiert auf einer Beziehung in der Form von Gleichung 1, mit der sich die Emission  $E$  einer luftverunreinigenden Substanz als Funktion eines Satzes von Eingangsdaten (Basisdaten)  $x_1, x_2, \dots, x_n$  darstellen läßt. Ein Element  $x_i$  dieses Satzes kann z. B. einen aktivitätsbezogenen Parameter oder einen Emissionsfaktor repräsentieren.

$$E = E(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad (1)$$

Der Gesamtfehler des ermittelten Emissionswertes ( $\Delta E$ ) ist dabei auf zwei wesentliche Fehlerursachen zurückzuführen:

- Modellfehler:     - unberücksichtigte Teilbereiche (unvollständiges Modell)  
                      - falsche oder ungenaue funktionale Zusammenhänge der Eingangsdaten  
                      - Verwendung von Hilfsgrößen bei unbekanntem Eingangsdaten
- Fehler der Eingangsdaten  $x_i$

Modellfehler resultieren entweder aus der Nichtberücksichtigung spezieller Emissionsteilbereiche (z.B. aus Unkenntnis oder wegen unzureichender Datenlage), falschen Modellvorstellungen oder aus dem Fehlen geeigneter Eingangsdaten.

Durch nichtberücksichtigte Emissionsteilbereiche bzw. Einflußfaktoren verursachte Modellfehler sind in der Regel nur schwer abzuschätzen, da sie aufgrund fehlender wissenschaftlicher Ergebnisse nicht erkannt werden bzw. keine zur Fehlerquantifizierung geeigneten Daten vorliegen. Werden alle bekannten Teilbereiche und Einflußfaktoren in einem Modell berücksichtigt, so ist zunächst davon auszugehen, daß das Modell vollständig ist. Dies schließt nicht aus, daß das Modell aufgrund neuerer wissenschaftlicher Erkenntnisse zukünftig ergänzt und fortgeschrieben werden muß, was u.U. zu einer Vergrößerung der ermittelten Gesamtfehlerbreiten führen kann.

Modellfehler durch falsche oder ungenaue funktionale Zusammenhänge der Eingangsdaten können bei Modellen zur Emissionsberechnung in der Regel ausgeschlossen werden, da die Eingangsdaten per Definition schon aufeinander abgestimmt sind. Die eigentliche Emissionsmodellierung besteht im Prinzip aus einer einfachen Multiplikation von Aktivitätsparametern mit entsprechenden Emissionsfaktoren.

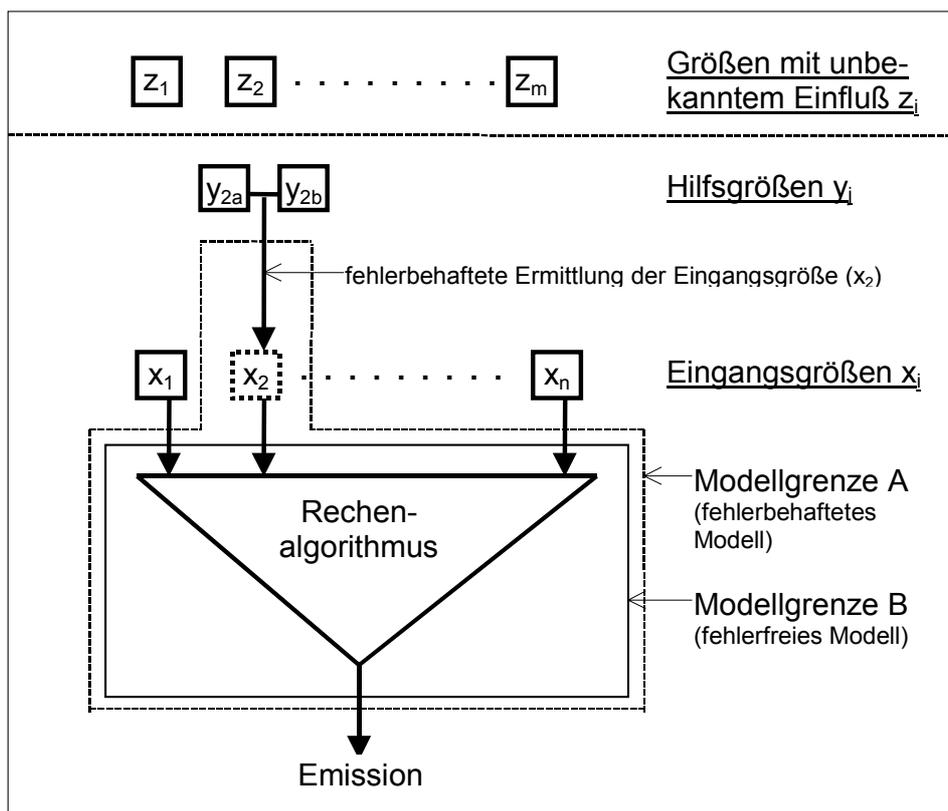


Abb. 1: Definition der Modellgrenzen

Liegen benötigte Eingangsdaten nicht vor, so ist man häufig auf die hilfsweise Verwendung von Daten angewiesen, aus denen die eigentlich benötigten Eingangsdaten abgeleitet werden können. Neben den Fehlerbandbreiten der Daten dieser Hilfsgrößen entstehen durch die Übertragung auf

die benötigte Eingangsgröße zusätzliche modellbedingte Fehler. Sind Korrelation zwischen Hilfs- und Eingangsgrößen und die Fehlerbandbreiten der Hilfsdaten bekannt, so lassen sich daraus die benötigten Eingangsdaten und deren Fehlerbereiche berechnen.

In Abb. 1 sind der Einfluß des Übertragungsfehlers von Hilfsgrößen auf die eigentlichen Eingangsgrößen und die sich daraus ergebenden möglichen Modelldefinitionen schematisch dargestellt. Faßt man die Grenzen des Modells so eng, daß das Modell selbst als fehlerfrei angesehen werden kann (Modellgrenze B), so ist der Gesamtfehler der Emission unmittelbar und ausschließlich abhängig von den Fehlerbandbreiten der Eingangsdaten ( $\Delta x_i$ ). Die Auswirkungen dieser Fehler auf den Emissionswert können dann prinzipiell mit Methoden der Fehleranalyse (Sensitivitätsuntersuchungen) quantifiziert und zu einem Gesamtfehler  $\Delta E$  nach dem Prinzip der Fehlerfortpflanzung verknüpft werden.

## 2.1 Fehlerarten

Bei der Betrachtung der Fehlerbandbreiten der Eingangsdaten sind die beiden grundsätzlichen Fehlerarten zufällige und systematische Fehler zu unterscheiden.

Zufällige Fehler werden durch die statistische Streuung von Einzelwerten um den arithmetischen Mittelwert beschrieben und stehen somit für die Präzision des Modells oder Meßsystems. Ein Fehler heißt zufälliger Fehler, wenn

- a) ein positiver und ein gleich großer negativer Fehler gleich wahrscheinlich sind,
- b) ein kleiner Fehler wahrscheinlicher begangen wird als ein großer,
- c) für die fehlerfreie Beobachtung die größte Wahrscheinlichkeit auftritt, und
- d) die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines beliebigen Fehlers unabhängig vom Vorhandensein anderer Fehler ist [HÄNSEL 1967].

Unter der Voraussetzung, daß die Einzelwerte bekannt sind, können die zufälligen Fehler durch statistische Fehlerrechnungsmethoden quantifiziert werden. Bei der Emissionsmodellierung stehen diese Einzelwerte jedoch nicht bei allen Eingangsdaten in ausreichender Quantität und Qualität zur Verfügung, so daß eine eindeutige statistische Beschreibung der Streuungsmaße nicht in allen Fällen möglich ist. Insbesondere im Quellsektor Lösemittel liegen benötigte Eingangsdaten häufig nur als grobe Mittelwerte vor, wodurch eine Fehlerermittlung nach statistischen Methoden ausgeschlossen ist. Auch im Quellsektor Straßenverkehr ist die Datensituation in einigen Teilbereichen nach wie vor unzureichend. In solchen Fällen und in den Fällen, bei denen aufgrund der physikali-

schen Komplexität der Eingangsgröße die Streuung nicht durch statistische Methoden quantifiziert werden kann, ist man auf plausible Schätzungen der Fehlerbandbreiten angewiesen.

Systematische Fehler einer Größe sind innerhalb des vorgegebenen Systems konstant bzw. nach bestimmaren Gesetzmäßigkeiten veränderlich und stehen somit für die Genauigkeit des Modells oder Meßsystems. Sie können innerhalb des Systems nicht mit Hilfe statistischer Methoden quantifiziert werden. Vielmehr müssen zur Quantifizierung grundsätzlich die das gleiche Meßobjekt beschreibenden Ergebnisse mehrerer voneinander unabhängiger Systeme miteinander verglichen werden. Im Idealfall steht ein objektives (fehlerfreies oder mit bekanntem systematischem Fehler), unabhängiges (Meß-) System zur Verfügung, das durch Vergleich mit dem ursprünglichen System unmittelbar die Quantifizierung des systematischen Fehlers erlaubt. Steht ein solches objektives (Meß-) System nicht zur Verfügung, müssen die Ergebnisse aus zusätzlichen unabhängigen Systemen herangezogen werden. Der systematische Fehler eines Systems wird damit auf höherer Ebene zu einem zufälligen Fehler, indem er durch den Vergleich der Mittelwerte der Messungen der unabhängigen Systeme durch statistische Methoden abgeschätzt wird. Die Bestimmung dieser statistischen Streuungsmaße erfordert somit die Auswertung umfangreichen, zusätzlichen Datenmaterials, das im Bereich der Emissionsmodellierung nicht bei allen Eingangsgrößen zur Verfügung steht.

Der Aufwand und die Anforderungen an das benötigte Datenmaterial bei der Quantifizierung systematischer Fehler ist somit im Vergleich zu den zufälligen Fehlern deutlich größer. Ist ein systematischer Fehler jedoch einmal quantifiziert, können alle mit dem entsprechenden (Meß-) System ermittelten Werte korrigiert werden, was einer Eliminierung des systematischen Fehlers gleichkommt.

## **2.2 Fehler der Eingangsgrößen**

### **2.2.1 Streuungsmaße**

Die Bandbreiten von zufälligen Fehlern bei der meßtechnischen Ermittlung einfacher physikalischer Größen können bei Kenntnis der einzelnen Meßwerte nach den elementaren statistischen Methoden als Standardabweichung  $s$  (Gleichung 3) (mittlerer Fehler der Einzelwerte) bzw. als Standardabweichung des arithmetischen Mittelwerts  $s_{\bar{x}}$  (Gleichung 4) berechnet und angegeben werden. Während eine Zunahme der Anzahl der Einzelmeßwerte  $n$  auf die Standardabweichung  $s$

keinen Einfluß hat (statistische Schwankungen bei kleinen  $n$  ausgenommen), nimmt die Standardabweichung des Mittelwerts  $s_{\bar{x}}$  mit zunehmendem  $n$  ab. Dies bedeutet, daß sich mit zunehmendem  $n$  der arithmetische Mittelwert  $\bar{x}$ , der sich nach Gleichung 2 aus den  $n$  Einzelmeßwerten ergibt, dem wahren Wert (bzw. dem Mittelwert der Grundgesamtheit) annähert.

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n} \quad (2)$$

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \quad (3)$$

$$s_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n(n - 1)}} \quad (4)$$

In der Praxis der Emissionsmodellierung ist eine Berechnung der Fehlerbandbreiten der Eingangsgrößen in Form von Standardabweichungen und die Ermittlung systematischer Fehler nicht in allen Fällen möglich. Die wesentlichen Gründe dafür sind, daß

- die Fehler der Eingangsgröße (und z.T. die Eingangsgröße selbst) aufgrund ihrer komplexen physikalischen Struktur nicht nach den einfachen statistischen Prinzipien quantifizierbar sind (z.B. Kfz-Flottenzusammensetzung),
- für Teile der Datenbasis weder die Einzelmeßwerte zugänglich noch Standardabweichungen bekannt sind und
- zusätzliche unabhängige Beschreibungen des Meßobjekts zu Vergleichszwecken fehlen.

In diesen Fällen sind plausible Annahmen über die Schwankungsbreiten der Eingangsgrößen zu treffen. Stehen zusätzliche unabhängige Meßreihen nicht zur Verfügung, ist die Ermittlung möglicher systematischer Fehler nicht möglich.

Darüberhinaus ist zu berücksichtigen, daß die Auswirkungen einiger Einflußgrößen auf die Schadstoffemissionen der verschiedenen Quellsektoren noch nicht näher untersucht worden sind und in

den gängigen Berechnungsmodellen derzeit lediglich als einheitliche Mittelwerte oder gar nicht berücksichtigt werden. Somit können die durch diese Größen verursachten Schwankungsbreiten derzeit noch nicht ermittelt werden.

### **2.2.2 Stichprobentechnik und Schätzverfahren**

In der Regel beruhen die aus der Literatur bekannten für die Emissionsmodellierung notwendigen Eingangsdaten (z.B. Emissionsfaktoren, Geschwindigkeitsverteilungen auf Autobahnen, usw.) nicht auf einer vollständigen meßtechnischen Erfassung aller Elemente der jeweiligen statistischen Masse (der sog. Grundgesamtheit), sondern aus Praktikabilitätsgründen auf der Erfassung und Auswertung von Daten einer begrenzten Stichprobe (Teilerhebung). Die Auswahl der Stichprobenelemente aus der Grundgesamtheit erfolgt idealerweise nach dem Zufallsprinzip. Das bedeutet, daß die ermittelten Lage- und Streuungsparameter aus der Stichprobe nicht mit den entsprechenden Parametern der Grundgesamtheit übereinstimmen müssen. Um die Güte der Stichprobenergebnisse zu bewerten sind daher quantitative Aussagen über die Übertragbarkeit auf die entsprechenden Werte der Grundgesamtheit zu treffen [SACHS 1997].

$$\bar{x}_j = \frac{\sum_{i=1}^n x_{j,i}}{n} \quad (5)$$

$$s_j = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_{j,i} - \bar{x}_j)^2}{n - 1}} \quad (6)$$

Für die Bestimmung der Standardabweichung als Streuungsmaß für eine Eigenschaft von Elementen einer Stichprobenauswahl aus einer Grundgesamtheit findet Gleichung 6 Anwendung. n steht für die Anzahl der Elemente der Stichprobe j. Die Standardabweichung der Elemente einer Stichprobe j wird mit  $s_j$  bezeichnet.

Der arithmetische Mittelwert der Elemente der Stichprobe  $\bar{x}_j$  (Gleichung 5) gilt als Schätzwert für den arithmetischen Mittelwert der Grundgesamtheit  $\mu$ . Als Maß für die Güte eines Stichpro-

benmittelwertes gilt die Standardabweichung der Mittelwerte sämtlicher möglichen Stichproben aus der Grundgesamtheit mit dem Umfang  $n$ , die mit  $\sigma_{\bar{x}}$  bezeichnet wird:

$$\sigma_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^z (\bar{x}_j - \bar{x})^2}{z}} \quad (7)$$

mit:

$\bar{x}$ : Mittelwert aller möglichen Stichprobenmittelwerte

$z$ : Anzahl aller möglichen unterschiedlichen Stichproben mit dem Umfang  $n$

$$z = \binom{N}{n} = \frac{N!}{n!(N-n)!} \quad (8)$$

Die Standardabweichung der Stichprobenmittelwerte kann unter der Voraussetzung, daß die Standardabweichung der Stichprobe mit der Standardabweichung der Grundgesamtheit übereinstimmt (d.h. für nicht zu kleine  $n$ ), aus der Standardabweichung der Stichprobenelemente abgeschätzt werden:

$$\sigma_{\bar{x}} = s_j \sqrt{\frac{(N-n)}{n(N-1)}} \quad (9)$$

mit:

$s_j$ : Standardabweichung der Elemente der Stichprobe  $j$  aus der Grundgesamtheit (Schätzwert)

$n$ : Umfang der Stichprobe  $i$

$N$ : Umfang der Grundgesamtheit

Für kleine Stichproben aus einer großen Grundgesamtheit ( $N \gg n$ ) geht Gleichung 9 über in:

$$\sigma_{\bar{x}} = \frac{s_j}{\sqrt{n}} \quad (10)$$

Wenn  $\bar{x}_j$  als Stichprobenmittelwert zur Schätzung von  $\mu$  herangezogen wird, so gelten hinsichtlich des Vertrauensbereiches (Genauigkeit) des Schätzwertes folgende Feststellungen:

Die Stichprobenmittelwerte unterliegen einer Normalverteilung, wobei der Mittelwert der Grundgesamtheit  $\mu$  dem Mittelwert dieser Normalverteilung entspricht. Für die Größe des Vertrauensbereiches VB um den Mittelwert der Grundgesamtheit, in dem der Mittelwert einer beliebigen Stichprobe  $\bar{x}_j$  mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit liegt, gilt:

$$VB = \mu \pm t \cdot \sigma_{\bar{x}} \quad (11)$$

Der Ausdruck  $t \cdot \sigma_{\bar{x}}$  stellt somit ein Maß für die Breite des Vertrauensbereiches dar.  $\sigma_{\bar{x}}$  kann als Fehlerbandbreite von  $\bar{x}_j$  interpretiert werden (Genauigkeitsgrad). Mit zunehmender Breite des Vertrauensbereiches nimmt die Wahrscheinlichkeit, daß der Stichprobenmittelwert innerhalb des Vertrauensbereiches liegt, zu. Der Student-Faktor t bestimmt somit den Sicherheitsgrad der Aussage.

Die Tabelle 1 gibt einen Überblick über den Zusammenhang zwischen dem Sicherheitsgrad (Student-Faktor t) und der Lagewahrscheinlichkeit für normalverteilte Stichproben mit großem Stichprobenumfang.

Tab. 1: Zusammenhang zwischen t-Faktor und Lagewahrscheinlichkeit für große Stichprobenumfänge

| Faktor t | Wahrscheinlichkeit, daß $\bar{x}_j$ innerhalb VB liegt |
|----------|--|
| 1,00     | 68,3 %   |
| 1,96     | 95,0 %   |
| 2,00     | 95,5 %   |
| 2,58     | 99,0 %   |
| 3,00     | 99,7 %   |
| 3,29     | 99,9 %   |

Umgekehrt läßt sich der notwendige Stichprobenumfang n bei vorgegebenen Genauigkeits- und Sicherheitsgrad ermitteln. Aus Gleichung 9 ergibt sich durch umformen:

$$n = \frac{N \cdot s_j^2}{s_j^2 + (N - 1) \cdot \sigma_{\bar{x}}^2} \quad (12)$$

Und für große N:

$$n = \frac{s_j^2}{\sigma_{\bar{x}}^2} \quad (13)$$

Definiert man den zulässigen absoluten Fehler  $e$  als Grenze des Vertrauensbereiches nach Gleichung 14 als Differenz zwischen den Mittelwerten aus Grundgesamtheit und Stichprobe, so folgt unter der eingangs gemachten Näherung, daß die Standardabweichung der Stichprobe  $s_j$  der Standardabweichung der Grundgesamtheit  $s$  entspricht, für den Mindeststichprobenumfang  $n$  nach Gleichung 15.

$$e = |\mu - \bar{x}_i| = t \cdot \sigma_{\bar{x}} \quad (14)$$

$$n = \frac{t^2 \cdot \sigma^2}{e^2} \quad (15)$$

Die Ermittlung des notwendigen Stichprobenumfangs erfordert also neben den frei wählbaren Angaben zu Genauigkeit und Sicherheit auch Kenntnisse über die Streubreite der Grundgesamtheit.

### 2.3 Ermittlung des Gesamtfehlers

Durch Variation einer einzelnen Eingangsgröße  $x_i$  im Berechnungsmodell läßt sich anhand der partiellen Ableitung der Emission nach der jeweiligen Eingangsgröße die Empfindlichkeit oder Sensitivität  $\partial E / \partial x_i$  ermitteln. Durch Multiplikation mit dem errechneten bzw. abgeschätzten absoluten Fehler  $dx_i$  bzw.  $\Delta x_i$  resultiert der absolute Fehler der Emission bezogen auf den Fehler der Eingangsgröße  $x_i$ .

Der differentielle, maximale Fehler der Gesamtemission folgt aus dem totalen oder vollständigen Differential [HARTWIG 1967] aus Gleichung 16.

$$dE = \sum_{i=1}^n \left| \frac{\partial E}{\partial x_i} dx_i \right| \quad (16)$$

Aus Gleichung 16 ergibt sich für kleine  $\Delta x_i$  näherungsweise der maximale Gesamtfehler (Größtfehler)  $\Delta E$  aus der Summe der Einzelfehler:

$$\Delta E = \sum_{i=1}^n \left| \frac{\partial E}{\partial x_i} \Delta x_i \right| = \sum_{i=1}^n |\Delta E_i| \quad (17)$$

mit:

$\Delta E$ : maximaler Gesamtfehler

$\partial E/\partial x_i$ : Sensitivität der berechneten Gesamtemission E bezogen auf die Eingangsgröße  $x_i$

$\Delta x_i$ : Fehler (z.B. Standardabweichung) der Eingangsgröße  $x_i$

$\Delta E_i$ : Einzelfehler der berechneten Gesamtemission E bezogen auf  $\Delta x_i$

In der Regel stimmt jedoch der maximale Gesamtfehler nicht mit dem tatsächlichen Gesamtfehler überein, da die Einzelfehler unterschiedliche Vorzeichen aufweisen und sich somit gegenseitig kompensieren können.

Mit Hilfe des Fehlerfortpflanzungsgesetzes läßt sich unter den Voraussetzungen, daß

- die Fehlerabschätzungen der Eingangsgrößen richtig sind,
- die Eingangsgrößen statistisch voneinander unabhängig sind und deren Fehler sich gegenseitig kompensieren können und
- die Fehler der Eingangsgrößen  $\Delta x_i$  klein gegenüber  $x_i$  sind,

der mittlere Gesamtfehler  $\overline{\Delta E}$  für die Emission E errechnen:

$$\overline{\Delta E} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left| \frac{\partial E}{\partial x_i} \Delta x_i \right|^2} = \sqrt{\sum_{i=1}^n (\Delta E_i)^2} \quad (18)$$

Bezogen auf die errechnete Emission E folgt für den relativen mittleren Gesamtfehler  $\overline{\Delta E}_{rel}$  :

$$\overline{\Delta E}_{rel} = \frac{\Delta \overline{E}}{E} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left| \frac{\partial E}{\partial x_i} \frac{\Delta x_i}{E} \right|^2} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left( \frac{\Delta E_i}{E} \right)^2} \quad (19)$$

Aus den allgemeinen Berechnungsformeln nach Gleichung 18 und Gleichung 19 lassen sich für bekannte funktionale Zusammenhänge zwischen den Eingangsgrößen die jeweiligen Gesamtfehler aus den Fehlern der Eingangsgrößen  $\Delta x_i$  ermitteln:

a) Linearkombinationen:

$$E = \sum_{i=1}^n c_i \cdot x_i \quad (20)$$

$$\overline{\Delta E} = \sqrt{\sum_{i=1}^n (c_i \cdot \Delta x_i)^2} \quad (21)$$

b) (Potenz-) Produkte:

$$E = \prod_{i=1}^n x_i^{c_i} \quad (22)$$

$$\frac{\overline{\Delta E}}{E} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left| c_i \frac{\Delta x_i}{x_i} \right|^2} \quad (23)$$

Die Aussagen, die aus dem berechneten mittleren Gesamtfehler gezogen werden können, sind abhängig von der Art der Fehler der Eingangsgrößen  $\Delta x_i$ . Fließen beispielsweise für alle Eingangsgrößen die einfachen Standardabweichungen in den Algorithmus der Fehlerfortpflanzung ein, so bezieht sich auch der berechnete Gesamtfehler auf die einfache Standardabweichung. Das bedeu-

tet, daß unter der Voraussetzung, daß sämtliche Fehler der Eingangsgrößen zumindest näherungsweise einer Normalverteilung unterliegen, die tatsächliche Gesamtemission mit einer Wahrscheinlichkeit von 68,3 % innerhalb des errechneten Fehlerbereiches liegt. Entsprechende Aussagen können bei anders gearteten Fehlern der Eingangsgrößen (z.B. doppelte oder dreifache Standardabweichung - siehe dazu Tabelle 1) getroffen werden. Auf jeden Fall ist zu beachten, daß die Fehler aller Eingangsgrößen der gleichen Art entsprechen müssen und nicht verschiedene Fehlerarten (z.B. einfache Standardabweichungen und Maximalfehler) durch die Fehlerfortpflanzung miteinander kombiniert werden, da sonst der ermittelte Gesamtfehler nicht mehr zu interpretieren ist.

## **3 ERGEBNISSE QUELLSEKTOR STRASSEN- VERKEHR**

### **3.1 Fehler der Eingangsgrößen**

Zur Berechnung der Gesamtfehler ist zunächst die Ermittlung der Fehler der Eingangsgrößen notwendig. Im folgenden werden für die wichtigsten Eingangsgrößen des Modells zur Emissionsmodellierung aus vorliegenden Datensätzen statistische Unsicherheiten und - soweit möglich - systematische Abweichungen ermittelt. In den Fällen, in denen eine Berechnung der Standardabweichung nicht möglich oder sinnvoll war (z.B. bei asymmetrischer, linkssteiler Verteilung der Eingangsgröße) wurde mit Hilfe geeigneter statistischer Methoden ein zentraler 68,3 % - Vertrauensbereich ermittelt, um die Vergleichbarkeit mit den Standardfehlern der anderen Eingangsgrößen zu gewährleisten. Systematische Fehler können grundsätzlich nur dann erkannt werden, wenn bei einem Vergleich von allgemein zur Emissionsberechnung verwendeten Daten mit aus unabhängigen Quellen stammenden, plausiblen Referenzdaten Differenzen auftreten.

#### **3.1.1 Emissionsfaktoren**

##### **3.1.1.1 Abgasemissionen**

Die bis Anfang 1999 aktuellsten verfügbaren Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs [UBA 1995] beruhen im wesentlichen auf Prüfstandsmessungen des TÜV Rheinland und des RWTÜV [HASSEL 1994, HASSEL 1995]. Die Fahrzeugflotte ist dabei in sog. Fahrzeugschichten eingeteilt, die Fahrzeuge mit jeweils ähnlichem Emissionsverhalten zusammenfassen. Die Fehler bei der Anwendung der Emissionsfaktoren der Fahrzeugschichten lassen sich auf verschiedene Ursachen zurückführen:

1. Fehler durch unzureichende Feinheit bei der Einteilung der Fahrzeugflotte in Fahrzeugschichten ( unterschiedliche mittlere Emissionen durch räumlich oder zeitlich variierende Schichtzusammensetzungen)
2. unberücksichtigte Einflußfaktoren (z.B. Höheneinfluß, Meteorologie, Kraftstoffqualität)
3. für Fahrzeugschicht nicht repräsentative Fahrzeugauswahl im Meßprogramm
4. Fehler bei der experimentellen Ermittlung der Basisfunktionen (Prüfstand)
5. Fehler bei der Hochrechnung von den Basisfunktionen auf integrale Emissionswerte definierter Fahrmuster

6. Fehler der Korrekturfaktoren für Kaltstart, Längsneigung, Laufleistung, Beladungszustand, Fahrmuster „Stop and Go“
7. Fehler bei der Übertragung und Hochrechnung der ermittelten Emissionsfaktoren auf bei den Messungen nicht berücksichtigte Fahrzustände (z.B. Geschwindigkeiten  $> 150$  km/h, Längsneigungen  $> 7\%$ ) oder Fahrzeugschichten (z.B. Fahrzeuge ab Baujahr 1991)

Soweit entsprechende Daten zur Fehlerermittlung verfügbar sind, ist zwischen systematischen und statistischen Fehlern zu unterscheiden.

#### D) Systematische Fehler:

Grundlage der ermittelten systematischen Fehler sind Messungen des TÜV Rheinland an Pkw der Baujahre 1986 bis 1990 [HASSEL 1994]. Um auch für nicht auf dem Prüfstand gefahrene Fahrmuster Emissionsfaktoren (EF) ableiten zu können, wurde eine neue Methode entwickelt. Die auf den Prüfständen gemessenen Emissionen werden in Sekundenabständen erfaßt und den jeweiligen Betriebsparametern Geschwindigkeit ( $v$ ) und Geschwindigkeit mal Beschleunigung ( $v*b$ ) zugeordnet (modale Analyse). Somit wurden für jede Fahrzeugschicht sog. Basisemissionsfunktionen (BEFU) erstellt, die die sekundliche Emission eines Fahrzeugs als Funktion von  $v$  und  $v*b$  abbilden. Die Ermittlung des Emissionsfaktors eines beliebigen Fahrmusters erfolgt durch Verknüpfung der Häufigkeitsverteilung der Betriebszustände ( $v$  und  $v*b$ ) dieses Fahrmusters mit den BEFU (Faltung).

Um die methodisch bedingten Fehler dieser Art der Ermittlung der EF zu ermitteln, wurden vom TÜV Rheinland für alle Fahrzeuge des Meßprogramms und für alle auf dem Prüfstand gefahrenen Fahrzyklen zusätzlich die integral über den gesamten Fahrzyklus emittierten Schadstoffmengen gemessen. Hierzu wurden die Abgase in Beuteln pro Fahrzyklus vollständig aufgefangen und nach Abschluß des Fahrzyklus analysiert. Diese Meßwerte geben somit die tatsächlichen Emissionen pro Fahrzeug und Fahrzyklus wieder und können - abgesehen von als gering einzustufenden Meßfehlern - als fehlerfrei angesehen werden. Als Manko der TÜV-Untersuchungen muß angesehen werden, daß die gleichen Prüfläufe sowohl für die Ableitung der BEFU als auch für die integralen Beutelmessungen herangezogen wurden. Somit sind die hochgerechneten und die integral gemessenen EF streng genommen als statistisch nicht voneinander unabhängig anzusehen. Statistische Abhängigkeiten führen jedoch immer zu einer Verminderung des Fehlers. Somit sind die vom TÜV quantifizierten Abweichungen als untere Grenzen der tatsächlichen systematischen Fehler anzusehen.

Die Abweichungen zwischen hochgerechneten und gemessenen EF wurden als Mittelwerte für fünf Fahrzyklen und für fünf Fahrzeugkonzepte ausgewiesen. Zur Berechnung der systematischen Abweichungen wurden drei Fahrzyklen, die aus realen Fahrverhaltensuntersuchungen abgeleitet worden sind, den drei Haupt-Straßenkategorien zugeordnet:

|                         |                           |
|-------------------------|---------------------------|
| Fahrzyklus Autobahn     | Autobahn                  |
| Fahrzyklus Highway      | sonstige Außerortsstraßen |
| Fahrzyklus FTP Phase II | innerorts                 |

Unter Einbeziehung der Fahrleistungsanteile der einzelnen Fahrzeugkonzepte für Baden-Württemberg 1994 wurden für die gemessenen EF in Bezug auf die hochgerechneten EF die in Tabelle 2 dargestellten systematischen Abweichungen ermittelt. Ein positiver systematischer Fehler bedeutet dabei eine Unterschätzung, ein negativer systematischer Fehler bedeutet eine Überschätzung des hochgerechneten EF im Vergleich zum realen, gemessenen EF.

Tab. 2: Durch die Methodik der Ermittlung von Emissionsfaktoren bedingte systematische Fehler

| Straßenkategorie          | HC       | NO <sub>x</sub> |
|---------------------------|----------|-----------------|
| Autobahn                  | + 8,6 %  | + 8,4 %         |
| sonstige Außerortsstraßen | - 10,4 % | - 1,8 %         |
| innerorts                 | - 20,1 % | - 10,0 %        |

Die quantifizierten Fehler der EF entsprechen den Fehlern der berechneten Emissionen.

Mögliche Ursachen der quantifizierten methodischen Fehler sind:

- nicht oder zu schwach besetzte Zellen der BEFU
- Fehler bei der zeitlichen Zuordnung der Meßwerte zum jeweiligen Fahrzeug-Betriebszustand aufgrund unterschiedlicher Abgasströmungsgeschwindigkeiten bei verschiedenen Motorlasten
- systematische Abweichungen zwischen dem vorgegebenen und dem tatsächlich gefahrenen Fahrzyklus
- Trägheit des Systems zur Treibstoffgemischregulierung
- zu grobe Rasterung der BEFU
- „Mikrodynamik“ der Testzyklen

Abschätzungen von methodisch bedingten Fehlern liegen derzeit z.T. nur für die Fahrzeugkategorie Pkw vor. Es ist davon auszugehen, daß entsprechende methodisch bedingte Fehler bei der Er-

mittlung der Emissionsfaktoren anderer Fahrzeugkategorien zumindest in der gleichen Größenordnung vorhanden sind.

Weitere mögliche systematische Fehler der Emissionsfaktoren, wie sie z.B.

- durch nicht repräsentative Fahrzeugauswahl bei den Prüfstandsmessungen,
  - durch bisher unberücksichtigte Einflußfaktoren auf das Emissionsverhalten (z.B. Höheneinfluß, Meteorologie, Kraftstoffqualität),
  - bei den Korrekturfaktoren für Kaltstart, Längsneigung, Laufleistung, Beladungszustand, Fahrmuster „Stop and Go“ oder
  - bei der Übertragung und Hochrechnung der ermittelten Emissionsfaktoren auf bisher bei Prüfstandsmessungen nicht berücksichtigte Fahrzustände und Fahrzeugschichten
- auftreten können, können derzeit aufgrund fehlender Daten noch nicht ermittelt werden.

## II) Statistische Fehler:

Die Abschätzungen der statistischen Fehler der EF basieren auf Untersuchungen des TÜV Rheinland [HASSEL 1998a, HASSEL 1998b]. Hier wurden aus allen Meßwerten des Meßprogramms der Fahrzeuge der Baujahre 1986 bis 1990 pro Fahrzeugschicht und BEFU-Zelle zunächst die Standardabweichungen der Einzelwerte ermittelt. Durch Faltung der entstandenen Matrizen mit den Häufigkeitsverteilungen der Fahrmuster wurden die Standardabweichungen der Einzelwerte pro Fahrzeugschicht und Fahrmuster berechnet. Durch Division mit der Wurzel der Anzahl der gemessenen Fahrzeuge pro Fahrzeugschicht und Multiplikation mit dem entsprechenden t-Faktor der Student-Verteilung wurden die 95 % - Vertrauensbereiche der EF-Mittelwerte pro Fahrzeugschicht ermittelt. In den Abb. 2 und 3 sind für zwei beispielhafte Fahrzeugschichten die relativen Vertrauensbereiche über die mittleren Geschwindigkeiten der Fahrmuster dargestellt.

Zur Auswertung der vom TÜV Rheinland erhobenen Daten wurden die 95 % - Vertrauensbereiche unter der Einbeziehung der Besetzungszahlen pro Fahrzeugschicht in einfache Standardabweichungen bzw. Variationskoeffizienten umgerechnet. Als problematisch müssen dabei insbesondere die Untersuchungen der schweren Nutzfahrzeuge angesehen werden. Bei der Erstellung der EF wurden aus lediglich 34 auf Prüfständen untersuchten Motoren durch rechnerische Verfahren ca. 300 verschiedenen Fahrzeugschichten abgeleitet. Es ist daher nicht auszuschließen, daß innerhalb einer Fahrzeugschicht die modellierten EF verschiedener Fahrzeuge teilweise auf den Untersuchungen des gleichen Motors basieren. Somit wären die EF verschiedener Fahrzeuge innerhalb einer Fahrzeugschicht nicht statistisch voneinander unabhängig und die auftretenden Streubreiten

deutlich kleiner als in der Realität. Da die Besetzungszahlen der Fahrzeugschichten der schweren Nutzfahrzeuge den entsprechenden Publikationen nicht zu entnehmen sind, wurde eine einheitliche Schichtbesetzung mit 10 Fahrzeugen angenommen (t-Faktor = 2,2).

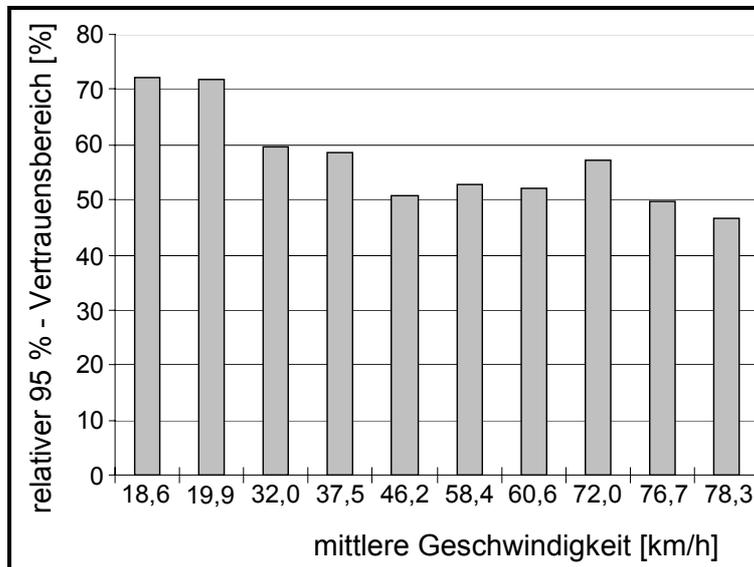


Abb. 2: 95% - Vertrauensbereich (rel.) für HC als Funktion der mittleren Geschwindigkeit der Fahrmuster (innerorts und außerorts) - G-Kat-Pkw ab 1987; 1,4 - 2,0 Liter Hubraum [HASSEL 1998a]

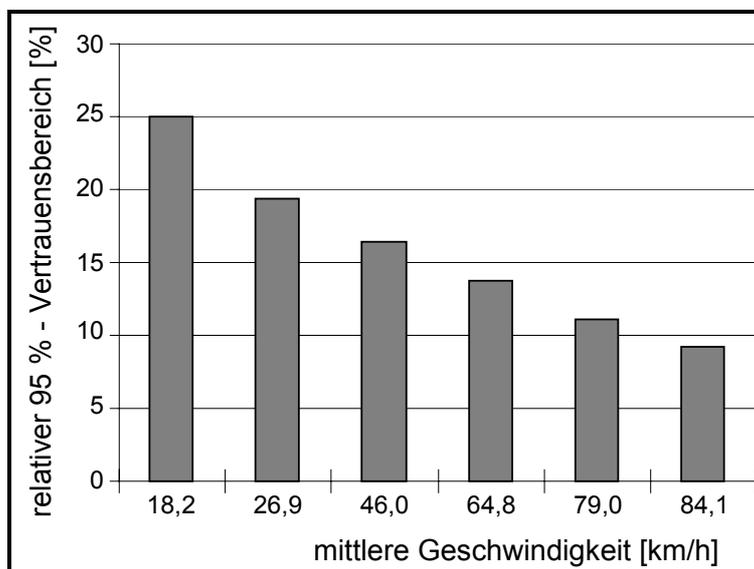


Abb. 3: 95% - Vertrauensbereich (rel.) für NOx als Funktion der mittleren Geschwindigkeit der Fahrmuster (innerorts und außerorts) - Lkw, 20-24 Tonnen zul. Gesamtmasse [HASSEL 1998b]

Die auf die Fahrmuster bezogenen Variationskoeffizienten wurden entsprechend den im UBA-Handbuch [UBA 1995] angegebenen Anteilen auf die definierten Verkehrssituationen übertragen. Geringe Fehler entstehen dabei durch Fahrmuster, für die keine statistischen Fehler angegeben sind. Für diese Fahrmuster (z.B. „Stop and Go“ innerorts und außerorts) wurden die Variationskoeffizienten der jeweils ähnlichsten Fahrmuster mit Fehlerangabe übertragen.

Ein weiteres Manko der vorliegenden Fehlerermittlungen liegt in der Unvollständigkeit, was die derzeit im Verkehr befindlichen Fahrzeugschichten anbetrifft. Für Fahrzeuge der Baujahre vor 1986 bzw. nach 1990 liegen keine Fehlerbetrachtungen vor, so daß auf diese Fahrzeugschichten die vorliegenden Fehler der technisch ähnlichsten Schichten übertragen werden müssen. Für Motorräder sind derzeit noch keine Fehlerabschätzungen verfügbar, so daß hier Fehler von Pkw-Schichten verwendet werden müssen. Für die EF von Mofas wurde ein einheitlicher VK von 30 % angenommen.

Entsprechend der Emissionsmodellierungen wurden die statistischen Gesamtfehler pro Straßenkategorie anhand der mittleren Verteilungen der Verkehrssituationen und der Flottenzusammensetzungen im Jahresmittel berechnet. In der Tabelle 3 sind die resultierenden Unsicherheiten der Emissionsfaktoren für Kohlenwasserstoffe und Stickoxide zusammenfassend dargestellt. Da für NMHC bzw. Methan keine nach Fahrzeugschichten aufgelösten EF verfügbar sind, erfolgte die Berechnung der Fehlerbandbreiten für den Parameter HC.

Tab. 3: Statistische Fehler (VK) der Emissionsfaktoren mit warmem Motor für verschiedene Straßenkategorien in Baden-Württemberg 1994

| Straßenkategorie | HC       | NO <sub>x</sub> |
|------------------|----------|-----------------|
| Autobahnen       | ± 17,5 % | ± 10,5 %        |
| Bundesstraßen    | ± 22,0 % | ± 15,0 %        |
| Landesstraßen    | ± 22,6 % | ± 15,8 %        |
| Kreisstraßen     | ± 23,3 % | ± 15,5 %        |
| innerorts        | ± 24,0 % | ± 20,1 %        |

Die statistischen Fehlerermittlungen des TÜV Rheinland enthalten alle Fehlerbeiträge, die zu Schwankungen der EF innerhalb einer Fahrzeugschicht führen. Dies sind neben den durch unterschiedliche Fahrzeugtypen verursachten Schwankungen auch Meßunsicherheiten (Meßanlage, Rollenprüfstand, Fahrerverhalten, Umwelteinflüsse, Aggregat) und methodisch bedingte Streuungen bei der Ermittlung der BEFU und der Ableitung der EF aus den BEFU (s.a. Punkt I - systematische Fehler). Vergleiche der Streuungsbreiten mit parallel durchgeführten integralen Beutelmessungen haben ergeben, daß der methodisch bedingte Streuungseinfluß die restlichen Fehlerbeiträge

deutlich übersteigt (Anteil an der Gesamtstandardabweichung: ca. 86 %) [HASSEL 1998a]. Somit muß die Methodik der Ermittlung der EF als maßgebliche Ursache der statistischen Fehler der EF angesehen werden.

Aussagen über die statistischen Fehler der Korrekturfaktoren für Kaltstart, Längsneigung, Laufleistung, Beladungszustand, Fahrmuster „Stop and Go“ sind derzeit aufgrund der zu schlechten Datenbasis nicht möglich [WIESNER 1998].

### 3.1.1.2 Verdampfungsemissionen

#### I) Tankatmung:

Zur Ermittlung der statistischen Fehler der mittleren Tankatmungs-Emissionsfaktoren stehen die einzelnen Werte der Meßreihen für Otto-Pkw mit AKF [BACH 1993] und ohne AKF [HEINE 1989] zur Verfügung. Diese mittleren EF sind auch im UBA-Handbuch [UBA 1995] enthalten. Es zeigt sich, daß die relativen statistischen Schwankungen der Fahrzeuge untereinander weitgehend unabhängig von der Temperaturerhöhung sind und bei den Pkw mit AKF mit einem Variationskoeffizienten von ca. 32 % etwa doppelt so hoch ausfallen wie bei den Pkw ohne AKF (ca. 17%). Für das Bezugsjahr 1994 ergibt sich somit bei etwa gleichen Anteilen von Fahrzeugen mit und ohne AKF ein mittlerer Variationskoeffizient von 24,4 %. Für nachfolgende Jahre mit zunehmendem Anteil der Pkw mit AKF ist mit einer entsprechenden Zunahme des Fehlers zu rechnen. Zu beachten ist, daß bei den Messungen von [HEINE 1989] Fahrzeuge mit sehr hohen Emissionen nicht bei der Ermittlung der Emissionsfaktoren berücksichtigt worden sind („Ausreißer“). Daher ist zu vermuten, daß Fahrzeuge mit Leckagen am Kraftstoffsystem, die insbesondere bei älteren Fahrzeugen auftreten, in den derzeit vorliegenden EF nicht in ausreichendem Maße berücksichtigt werden.

#### II) Heiß- / Warmabstellverluste (Hot Soak):

Aus den Meßreihen zur Ermittlung der Hot-Soak-Emissionsfaktoren ergibt sich für die Otto-Pkw ohne AKF [HEINE 1989] für den Mittelwert ein VK von 9,7 % beim Heißabstellen und von 8,7 % beim Warmabstellen. Die entsprechenden VK für Fahrzeuge mit AKF [BACH 1993] liegen beim Heißabstellen bei 14,9 %. Für warm abgestellte Fahrzeuge mit AKF können derzeit aufgrund der zu kleinen Datenbasis keine Fehlerbandbreiten ermittelt werden. Es wird daher in erster Näherung davon ausgegangen, daß die Fehler beim Heißabstellen auf das Warmabstellen übertragbar sind. Für das Bezugsjahr 1994 mit ungefähr gleichen Anteilen der Otto-Pkw mit und ohne AKF ergibt

sich ein mittlerer VK von 12,3 %, wobei für die Folgejahre aufgrund des zunehmenden Anteils der Fahrzeuge mit AKF mit leicht ansteigenden relativen Fehlern zu rechnen ist. Bezüglich der Ausreißer bei den Messungen von [HEINE 1989] gelten die bereits für die Tankatmungs-Emissionsfaktoren getroffenen Aussagen.

### III) Running Losses:

Emissionsfaktoren für die Verdampfungsemissionen während des Fahrbetriebs sind in detaillierter Form nur für amerikanische Fahrzeuge verfügbar. Für die europäische Fahrzeugflotte existieren nur punktuelle Messungen. Fehlerbandbreiten für Running-Losses-Emissionsfaktoren europäischer Fahrzeuge können deshalb z.Zt. nicht ermittelt werden.

#### **3.1.1.3 VOC-Einzelkomponenten**

Ermittlungen von Abgasemissionen einzelner organischer Verbindungen erfordern die Kenntnis komponentenspezifischer Emissionsfaktoren. Diese liegen meist als Anteile der einzelnen Komponenten an den Gesamt-Kohlenwasserstoff-Emissionen, die durch integrative Meßmethoden (z.B. FID) bestimmt worden sind, in Form von VOC-Splits für verschiedene Fahrzeugkonzepte vor [PATYK 1995]. Zusätzlich zu den Unsicherheiten der Gesamt-HC-Emissionsfaktoren treten bei den VOC-Einzelkomponenten Fehler durch unpräzise VOC-Splits auf.

Neuere Prüfstandsmessungen des TÜV Rheinland [HASSEL 1998c] mit je fünf Fahrzeugen der Pkw-Konzepte Otto konventionell, Otto GKat und Diesel für unterschiedliche Fahrzyklen lassen erstmals Aussagen über Unsicherheiten von detaillierten VOC-Splits (45 Kohlenwasserstoffe, 9 Carbonylverbindungen, Phenol, Kresole) zu. Es zeigen sich bei den GKat- und den Dieselfahrzeugen im Vergleich zu den konventionellen Otto-Pkw deutlich höhere Streuungen. Darüberhinaus hat der gefahrene Fahrzyklus einen erheblichen Einfluß auf die Streuungen zwischen den einzelnen Fahrzeugen innerhalb eines Pkw-Konzeptes. U.a. wurden für die in die drei Substanzklassen Alkane, Alkene und Aromaten gruppierten Kohlenwasserstoffe auf den Stichprobenmittelwert bezogene Konfidenzintervalle mit 95-prozentiger statistischer Sicherheit ermittelt. Es ergaben sich rechnerische relative Konfidenzintervalle zwischen ca. 30 % und 180 % bei den Diesel-, zwischen ca. 20 % und 115 % bei den GKat- und zwischen ca. 15 % und 65 % bei den konventionellen Otto-Fahrzeugen.

Ein ebenfalls in [HASSEL 1998c] enthaltener Vergleich der TÜV-Daten mit Meßdaten aus anderen Studien zu VOC-Splits zeigt für gleiche Fahrzyklen und gleiche Fahrzeugkonzepte für Emissionsfaktoren ausgewählter organischer Einzelkomponenten Abweichungen von z.T. mehreren 100 %. Die größten Differenzen treten dabei wiederum bei GKat- und Diesel-Pkw auf.

### **3.1.2 Verkehrsstärken und Fahrleistungen**

#### **3.1.2.1 Außerorts**

Die Fahrleistungen auf einzelnen Außerorts-Streckenabschnitten ergeben sich aus dem Produkt von Abschnittslänge und Verkehrsstärke.

Die Abschnittslängen liegen für Baden-Württemberg aus der Straßendatenbank des Landes flächendeckend für alle Außerortsabschnitte mit einer Genauigkeit von 1 Meter vor und können somit als nahezu fehlerfrei angesehen werden.

Zur Ermittlung der abschnittsbezogenen Verkehrsstärken kann auf die Daten der Bundesverkehrszählung (BVZ) zurückgegriffen werden, die in 5-jährigem Turnus durchgeführt wird. Bei der Ermittlung der jährlichen Verkehrsstärken 1994 für einen bestimmten Straßenabschnitt sind drei unterschiedliche Fehlerquellen zu berücksichtigen:

- I) Fehler der Daten der Bundesverkehrszählungen 1990 und 1995
- II) Fehler durch Anpassen der Fahrzeugklassen
- III) Fehler durch Interpolationen der Verkehrsstärken auf 1994

#### I) Fehler der Daten der Bundesverkehrszählungen 1990 und 1995:

Während der BVZ 1985 wurden an 188 Streckenabschnitten die durch Zählungen und Hochrechnungen ermittelten jährlichen Gesamtverkehrsstärken mit Daten aus automatischen Dauerzählstellen verglichen [LENSING 1986]. Es ergab sich für die Quotienten aus manuellen und automatischen Zählwerten ein Variationskoeffizient von 9,1 %. Im Mittel waren dabei die manuellen Zählwerte um 1,0 % höher als die automatischen. Weitere Auswertungen haben ergeben, daß der Anteil des methodisch bedingten Hochrechnungsfehlers bei 4,4 % liegt. Nach dem Prinzip der Fehlerfortpflanzung folgt daraus für die eigentlichen Zählfehler ein VK von 8,0 %. Die Fehlerbetrachtungen wurden nicht differenziert nach Fahrzeugkategorien und Straßenklassen durchgeführt, so daß für die Fehlerbetrachtungen der Emissionen die angegebenen Werte als Mittelwerte übernommen werden

müssen. Die Fehlerbetrachtungen der BVZ 1985 sind auf die BVZ 1990 und 1995 übertragbar, da sich die Methodik der Erhebungen in diesem Zeitraum nicht verändert hat [LENSING 1998]. Größere Unsicherheiten treten an Abschnitten auf, an denen nicht in dem von der Hochrechnungsmethodik der BVZ vorgesehenen zeitlichen Umfang gezählt worden ist. Dies betrifft ca. 10-15 % der Außerortsabschnitte in Baden-Württemberg.

Es liegen nicht für alle Außerortsstraßenabschnitte DTV-Mengen (**D**urchschnittliche **T**ägliche **V**erkehrsstärken) aus den BVZ vor. So wurden beispielsweise bei der BVZ 1995 von 174 vorhandenen Autobahnabschnitten in Baden-Württemberg nur 92 (52,9 %) durch Zählungen erfaßt. Für die restlichen Abschnitte wurden die Ergebnisse von benachbarten Abschnitten übernommen. Diese Vorgehensweise kann zu erheblichen Fehlern führen. Liegen keine Informationen über die jährliche Verkehrsstärke an einem bestimmten Abschnitt vor und wird die mittlere Verkehrsstärke pro Straßenkategorie auf diesen Abschnitt übertragen, so treten Variationskoeffizienten zwischen ca. 55 % bei Autobahnen und ca. 75 % bei Kreisstraßen auf.

## II) Fehler durch Anpassen der Fahrzeugklassen:

Während bei der BVZ 1990 die Verkehrsstärkedaten noch nach neun Fahrzeugklassen differenziert wurden, erfolgte bei der BVZ 1995 eine Unterteilung in lediglich sechs Fahrzeugklassen. Um diese Einteilung an die Fahrzeugkategorien des UBA-Handbuchs anzupassen, ist eine Differenzierung der Verkehrsstärken von insgesamt drei Fahrzeugklassen notwendig:

- |                     |     |                         |
|---------------------|-----|-------------------------|
| 1. Kräder           | --> | Mofas, Motorräder       |
| 2. Lkw mit Anhänger | --> | Lastzüge, Sattelzüge    |
| 3. Busse            | --> | Reisebusse, Linienbusse |

Die Mittelwerte für die Aufteilungen der Verkehrsstärken können der Literatur entnommen werden [PALM 1994a, PALM 1994b, PALM 1996]. Zur Ermittlung der Standardabweichungen der Fahrleistungsanteile wurden die abschnittsbezogenen Daten der BVZ 1990 ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 dargestellt.

Eine Fahrleistungsaufteilung der Busse wurde nicht durchgeführt, da für Linienbusse derzeit noch keine zuverlässigen Fahrmuster für den Außerortsbereich existieren und deshalb sinnvolle Emissionsberechnungen in diesem Teilbereich noch nicht durchgeführt werden können.

Tab. 4: Fahrleistungsverteilungen von Krädern und Lkw mit Anhängern auf allen Außerortsabschnitten in Baden-Württemberg 1990

|                                |            | A    | B    | L    | K    |
|--------------------------------|------------|------|------|------|------|
| <b><u>Kräder</u></b>           |            |      |      |      |      |
| Mittelwerte [%]                | Mofas      | 0,0  | 12,3 | 19,5 | 29,2 |
|                                | Motorräder | 100  | 87,7 | 80,5 | 70,8 |
| Standardabweichungen [%]       |            | 0    | 9,7  | 11,6 | 16,3 |
| <b><u>Lkw mit Anhänger</u></b> |            |      |      |      |      |
| Mittelwerte [%]                | Lastzüge   | 57,7 | 66,1 | 68,7 | 71,3 |
|                                | Sattelzüge | 42,3 | 33,9 | 31,3 | 28,7 |
| Standardabweichungen [%]       |            | 7,5  | 9,1  | 15,3 | 23,7 |

III) Fehler durch Interpolationen der Verkehrsstärken auf 1994:

Zur Abschätzung der Fehler bei der Interpolation der Verkehrsstärkedaten 1990 und 1995 auf 1994 wurden für 80 ausgewählte Abschnitte in Baden-Württemberg die interpolierten Daten mit den Verkehrsstärkedaten aus automatischen Dauerzählstellen verglichen. Die Tabelle 5 zeigt die Ergebnisse für die Quotienten aus gezählten und interpolierten Verkehrsstärken.

Es ergibt sich somit gemittelt über alle Fahrzeug- und Straßenkategorien ein Variationskoeffizient von 3,3 %. Die interpolierten Verkehrsstärken liegen im Mittel 0,9 % unter den tatsächlichen Werten (Dauerzählstellen). Aufgrund der Einschränkungen durch die vorliegenden Zählstellendaten können die Fehlerbetrachtungen nicht nach Fahrzeugkategorien aufgelöst werden. Für Kreisst Straßen in Baden-Württemberg liegen keine Zählstellendaten vor, so daß hier die Ergebnisse für die Landesstraßen übertragen werden müssen.

Tab. 5: Fehler bei der Interpolation von Verkehrsstärkedaten 1990 und 1995 auf 1994

|                        | Mittelwert | VK [%] | n  |
|------------------------|------------|--------|----|
| Autobahnen             | 1,014      | 2,8    | 22 |
| Bundesstraßen          | 1,009      | 2,7    | 28 |
| Landesstraßen          | 1,005      | 4,2    | 30 |
| alle Straßenkategorien | 1,009      | 3,3    | 80 |

### 3.1.2.2 Innerorts

In der Regel sind für einzelne Gemeinden keine detaillierten Fahrleistungen verfügbar. Für die Emissionsmodellierung ist daher die Einbeziehung von zusätzlichen Infrastrukturdaten erforderlich. Eine übliche Methode der Ermittlung von gemeindebezogenen Fahrleistungsdaten besteht in der Differenzierung von großräumigen Innerortsfahrleistungen anhand von Einwohnerzahlen. Die dabei auftretenden Fehler lassen sich in drei Bereiche aufteilen:

- I) Fehler bei der Ermittlung von großräumigen Innerortsfahrleistungen
- II) Fehler bei der Differenzierung der Innerortsfahrleistungen nach Gemeinden
- III) Fehler bei der Differenzierung der gemeindebezogenen Innerortsfahrleistungen nach Fahrzeugkategorien

#### I) Fehler bei der Ermittlung von großräumigen Innerortsfahrleistungen:

Für das Bezugsjahr 1990 sind drei unabhängige Datenquellen zur Ermittlung der Gesamt-Innerortsfahrleistungen für die alten Bundesländer verfügbar:

1. Das Deutsche Institut für Wirtschaftsforschung, Berlin, ermittelt die Fahrleistungen anhand einer Kraftstoffverbrauchsrückrechnung [DIW 1997].
2. Heusch/Boesefeldt, Aachen, stützt sich bei der Fahrleistungserhebung auf soziologische Befragungen von Fahrzeughaltern [PALM 1994a].
3. Die Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung (BfLR), Bonn, hat für einzelne Gemeinden verfügbare Innerortsfahrleistungen zusammengetragen und daraus die Gesamtfahrleistung hochgerechnet [SCHMITZ 1997, SCHMITZ 1999].

Tab. 6: Gesamt-Innerortsfahrleistungen für die alten Bundesländer 1990 nach drei unterschiedlichen Methoden

|                       | Innerortsfahrleistung [Mrd km] |
|-----------------------|--------------------------------|
| - DIW                 | 151,0                          |
| - Heusch/Boesefeldt   | 185,98                         |
| - BfLR                | 178,9                          |
| Mittelwert            | 171,96                         |
| Standardabweichung    | 18,49                          |
| Variationskoeffizient | 10,8 %                         |

Die jeweils ermittelten Gesamtfahrleistungen, Mittelwert und Fehlerbandbreiten sind in der Tabelle 6 dargestellt.

Da für das Bezugsjahr 1994 nur Fahrleistungsdaten aus einer Quelle vorliegen [DIW 1997], können für den Hochrechnungsfaktor 1990 --> 1994 derzeit keine Fehlerabschätzungen durchgeführt werden.

II) Fehler bei der Differenzierung der Innerortsfahrleistungen nach Gemeinden:

Auf der Grundlage von Daten aus Emissionskatastern und Luftreinhalteplänen hat [SCHMITZ 1997, SCHMITZ 1999] für 67 Gemeinden und Gemeindeteile in den alten Bundesländern im Bezugsjahr 1990 die Korrelation zwischen jährlicher Innerortsfahrleistung des motorisierten Verkehrs und der Einwohnerzahl untersucht. Wie in Abb. 4 dargestellt, ergibt sich ein guter linearer Zusammenhang bei doppelt-logarithmischer Darstellung. Aus der Regressionsanalyse mit der Einwohnerzahl (EWZ) als unabhängiger und der Innerortsfahrleistung (IOFL) [Mio. km] als abhängiger Variable ergibt sich der Zusammenhang nach Gleichung 24.

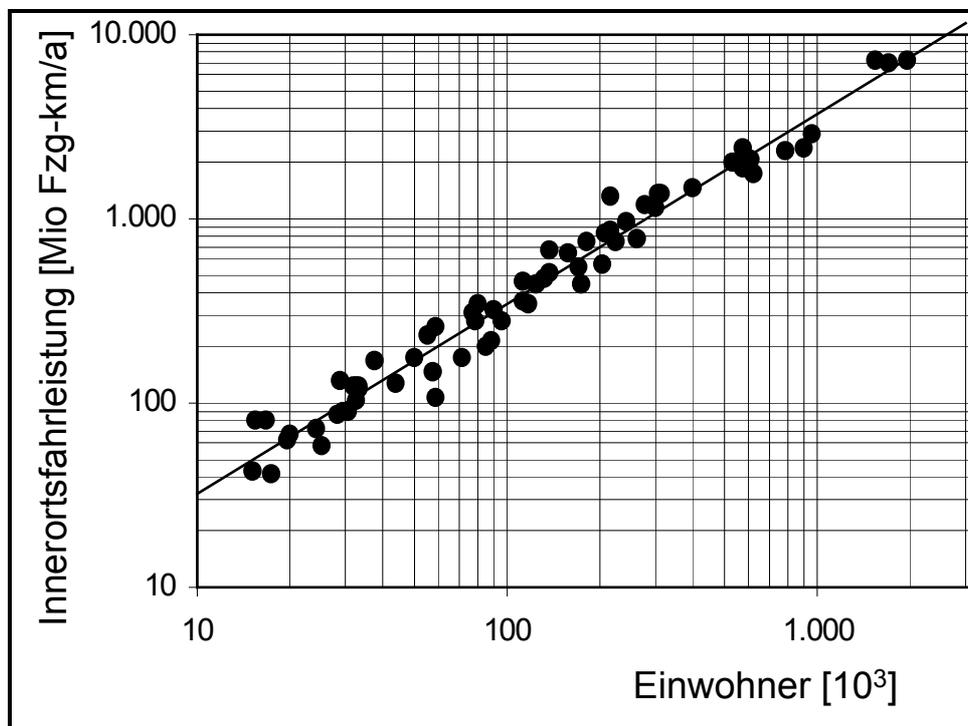


Abb. 4: Jährliche Innerortsfahrleistungen pro Gemeinde in den alten Bundesländern 1990 in Abhängigkeit von der Einwohnerzahl [SCHMITZ 1997]

$$\text{IOFL} = 10^{-2,5888} \times \text{EWZ}^{1,0257} \quad (24)$$

Die Ermittlung des Vertrauensbereiches der Regressionsgeraden in der doppelt-logarithmischen Darstellung erfolgt in der Form eines Voraussagebereiches für eine zukünftige Beobachtung an einer bestimmten Stelle der unabhängigen Variable [SACHS 1997]. Dies entspricht dem 68,3 % - Vertrauensbereich der Einzelwerte. Es ergibt sich für die Fahrleistungen über den gesamten Wertebereich ein weitgehend konstanter Variationskoeffizient von + 26,0 % / - 20,6 %, wobei in der Mitte des Wertebereiches die VK ca. 0,5 % kleiner und an den extremen Enden des Wertebereiches (sehr hohe bzw. sehr niedrige Einwohnerzahlen) die VK ca. 0,5 % größer sind. Die Bevölkerungsdaten als unabhängige Variable werden dabei als fehlerfrei angesehen, was aufgrund der vorliegenden detaillierten Daten aus Melderegistern gerechtfertigt ist.

### III) Fehler bei der Differenzierung der gemeindebezogenen Innerortsfahrleistungen nach Fahrzeugkategorien:

Die Anteile der verschiedenen Fahrzeugkategorien an der Gesamt-Innerortsfahrleistung einer Gemeinde können von Gemeinde zu Gemeinde beträchtlich variieren, je nach Anteil des Durchgangsverkehrs und geographischer Lage der Gemeinde. Zur Abschätzung dieser Variationsbandbreiten wurden aus den Ergebnissen der BVZ 1990 die enthaltenen Innerortsabschnitte der Bundes-, Landes- und Kreisstraßen in Baden-Württemberg herangezogen. Insgesamt konnten somit für 884 Ortsdurchfahrten die Anteile der verschiedenen Fahrzeugkategorien ermittelt werden. Der Anteil der Fahrleistungen, die auf den Ortsdurchfahrten erbracht werden, an den gesamten Innerortsfahrleistungen liegt bei ca. 63 % [PALM 1996]. Für die restlichen, auf Gemeindestraßen erbrachten Fahrleistungen liegen keine entsprechend detaillierten Daten vor. Auch der Einfluß der Größe einer Gemeinde auf die Fehlerbandbreiten kann derzeit noch nicht abgeschätzt werden. Es ist aber wahrscheinlich, daß sich mit zunehmender Einwohnerzahl die Fahrleistungsanteile der einzelnen Fahrzeugkategorien einer mittleren Verteilung annähern und die Fehler dadurch geringer werden.

### **3.1.3 Fahrmuster-Mix**

#### **3.1.3.1 Autobahnen**

Die Fehler der Fahrmuster- bzw. Geschwindigkeitsverteilung der Fahrzeugflotte auf einem bestimmten Autobahnabschnitt werden einerseits durch die unbekannte Streckencharakteristik und

andererseits durch Schwankungen zwischen verschiedenen Abschnitten gleicher Charakteristik verursacht.

Sind die Streckencharakteristik (Anzahl der Fahrstreifen, Tempolimit) und die jährliche Verteilung der Verkehrszustände (frei, teilgebunden, gebunden, Stau) für einen Autobahnabschnitt nicht bekannt, so müssen mittlere Verteilungen aus der Literatur übertragen werden. Aus [PALM 1996] liegen für Pkw und das Bezugsjahr 1993 mittlere jährliche Fahrleistungsverteilungen für die Autobahnabschnitte der alten Bundesländer differenziert nach Tempolimit, Anzahl der Fahrstreifen und Verkehrszustand mit der jeweiligen Durchschnittsgeschwindigkeit vor. Zur Emissionsmodellierung muß diese Verteilung der Definition der Verkehrssituationen im UBA-Handbuch angepaßt werden. Es ist eine Teilaggregation der Fahrleistungsanteile erforderlich, da die Verkehrssituationen des UBA-Handbuchs nicht nach der Anzahl der Fahrstreifen differenziert sind und der Verkehrszustand „teilgebunden“ nicht enthalten ist. Da für andere Fahrzeugkategorien ähnlich detaillierte Verteilungen nicht vorhanden sind, wird die Pkw-Verteilung der Verkehrssituationen auf alle Fahrzeugkategorien übertragen.

Zur Abschätzung der Unsicherheiten bei der Übertragung der mittleren Verteilung für die Streckencharakteristik wird ein zentraler 68,3 % - Vertrauensbereich der nach Durchschnittsgeschwindigkeit sortierten Fahrleistungsanteile abgeschätzt. Es ergibt sich je eine Streckencharakteristik als obere und untere Grenze des Vertrauensbereiches, denen wiederum mittlere Verteilungen der Verkehrssituationen zugeordnet werden können. Die Tabelle 7 zeigt die mittlere Verteilung der Verkehrssituationen sowie diejenigen der oberen und unteren Grenze des Vertrauensbereiches.

Tab. 7: Mittlere Verteilung der Verkehrssituationen auf Autobahnen in den alten Bundesländern sowie obere und untere Grenze des 68,3 % - Vertrauensbereichs

| Verkehrssituation (nach [UBA 1995]) | Mittelwert | obere Grenze    | untere Grenze       |
|-------------------------------------|------------|-----------------|---------------------|
|                                     |            | ohne Tempolimit | Tempolimit 100 km/h |
| AB>120                              | 40,61 %    | 53,85 %         | --                  |
| AB_120                              | 29,90 %    | 33,86 %         | --                  |
| AB_100                              | 14,20 %    | --              | 87,73 %             |
| AB_80                               | 2,74 %     | --              | --                  |
| AB_80_gebunden                      | 10,37 %    | 10,40 %         | 10,38 %             |
| AB_60                               | 0,25 %     | --              | --                  |
| AB_60_gebunden                      | 0,04 %     | --              | --                  |
| AB_Stop+Go                          | 1,89 %     | 1,89 %          | 1,89 %              |

## **Kühlwein, Friedrich, Obermeier, Theloke**

Zusätzliche Unsicherheiten entstehen durch Abweichungen bei den Geschwindigkeitsverteilungen verschiedener Autobahnabschnitte mit gleicher Streckencharakteristik. Aus dem Abgas-Großversuch 1985 [MEIER 1986] liegen Ergebnisse aus umfangreichen Geschwindigkeitsmessungen auf Autobahnen vor. Für die mittlere Geschwindigkeit auf 42 Autobahnabschnitten ergibt sich für Pkw ohne Tempolimit eine Standardabweichung von 8,7 km/h, mit Tempolimit 100 km/h eine Standardabweichung von 5,8 km/h. Für Lkw liegen die Standardabweichungen bei 24 ausgewerteten Abschnitten bei 3,1 km/h (ohne Tempolimit) bzw. bei 3,3 km/h (Tempolimit 100 km/h). Für Busse und leichte Nutzfahrzeuge liegen keine entsprechenden Daten vor. Für Motorräder wurden die Ergebnisse der Pkw übernommen. Zwar sind die gefahrenen mittleren Geschwindigkeiten im Zeitraum von 1985 bis 1994 insbesondere für Pkw auf Strecken ohne Tempolimit deutlich angestiegen, es wird aber davon ausgegangen, daß diese zeitlichen Änderungen der mittleren Geschwindigkeiten auf allen Streckenabschnitten gleichmäßig verlaufen und die Abweichungen zwischen den einzelnen Strecken somit zeitlich konstant bleiben. Die Geschwindigkeitsdaten aus dem Abgas-Großversuch enthalten keine Zuordnungen zu den verschiedenen Verkehrszuständen.

Der Fahrleistungsanteil der Verkehrssituation Stau liegt lediglich als Mittelwert über alle Streckencharakteristiken vor. Es können daher keine Angaben über streckenspezifische Unterschiede der Stauanteile gemacht werden. Im Hinblick auf die sehr hohe Emissionsrelevanz der Stausituationen sind verbesserte Aussagen in diesem Bereich anzustreben. Denkbar wäre beispielsweise die Einbindung einer Funktion der Stauanteile in Abhängigkeit von der jährlichen Verkehrsstärke in das Emissionsmodell.

Systematische Fehler der Eingangsgröße Fahrmuster-Mix können aufgrund fehlender zusätzlicher Daten derzeit nicht ermittelt werden. Es ist insbesondere bei der Umsetzung von realen Geschwindigkeitsverteilungen auf die im UBA-Handbuch enthaltenen Verkehrssituationen und Teilschichtfaktoren von zusätzlichen Fehlern auszugehen, da für die hohen Geschwindigkeitsbereiche (Pkw: > 150 km/h, Lkw: > 86 km/h, Motorräder: >139 km/h) derzeit keine Emissionsfaktoren vorliegen. Die Geschwindigkeitsverteilungen im UBA-Handbuch weisen bei gleichem Mittelwert geringere Streuungen auf als reale Geschwindigkeitsverteilungen. Somit bleiben sehr hohe und sehr niedrige Geschwindigkeiten bei der Emissionsberechnung unberücksichtigt.

### **3.1.3.2 Sonstige Außerortsstraßen**

Für Bundes-, Landes-, und Kreisstraßen (ohne autobahnähnliche Abschnitte) liegen ähnlich detaillierte, abschnittsbezogene Daten über Geschwindigkeits- bzw. Fahrmusterverteilungen, wie dies bei Autobahnen der Fall ist, nicht vor.

Die Streckencharakteristik dieser Straßenkategorien richtet sich nach der Art der Linienführung bzw. der Kurvigkeit der Strecken (stetig, eng, unstetig). Für die Anteile der drei Klassen der Streckencharakteristik liegen mittlere Verteilungen für die alten Bundesländer pro Straßenkategorie vor [PALM 1996]. Da für jede der drei Klassen der Linienführung genau eine Verkehrssituation im UBA-Handbuch definiert ist, ist eine eindeutige Zuordnung der jeweiligen Emissionsfaktoren möglich. Abschätzungen der Fehler bei unbekannter Linienführung eines Abschnitts können nur durch grobe Verschiebungen der Verteilungen der Verkehrssituationen erfolgen. In der Tabelle 8 sind pro Straßenkategorie die mittleren Verteilungen der Linienführung sowie die abgeschätzten oberen und unteren Grenzen pro Straßenkategorie dargestellt.

Tab. 8: Mittlere Fahrleistungsverteilungen der Linienführungen auf Außerortsstraßen in den alten Bundesländern (ohne autobahnähnliche Abschnitte) und Fehlerabschätzungen

| Linienführung /<br>Verkehrssituation | Bundesstraßen |       |        | Landesstraßen |        |        | Kreisstraßen |        |        |
|--------------------------------------|---------------|-------|--------|---------------|--------|--------|--------------|--------|--------|
|                                      | MW            | oG    | uG     | MW            | oG     | uG     | MW           | oG     | uG     |
| stetig / AO 1                        | 91,3 %        | 100 % | 87,2 % | 87,2 %        | 91,3 % | 83,9 % | 83,9 %       | 87,2 % | 80,0 % |
| eng / AO 2                           | 6,1 %         | 0 %   | 9,2 %  | 9,2 %         | 6,1 %  | 10,8 % | 10,8 %       | 9,2 %  | 13,0 % |
| unstetig / AO 3                      | 2,6 %         | 0 %   | 3,6 %  | 3,6 %         | 2,6 %  | 5,3 %  | 5,3 %        | 3,6 %  | 7,0 %  |

MW: Mittelwert, oG: obere Grenze, uG: untere Grenze

Aussagen über die Streubreiten der mittleren Geschwindigkeiten auf Abschnitten mit vergleichbarer Linienführung sind derzeit nicht möglich.

### 3.1.3.3 Innerorts

Fahrmusterverteilungen für den Innerortsbereich liegen für die Fahrzeugkategorie Pkw als mittlere Verteilung für die alten Bundesländer und für vier nach Einwohnerzahlen klassierten Gemeindegruppen (< 10 TEW, 10-20 TEW, 20-100 TEW, > 100 TEW) vor [PALM 1994a]. Ergebnisse über Streubreiten der Fahrmusterverteilungen innerhalb dieser Gemeindegruppen liegen nicht vor. Emissionsberechnungen haben ergeben, daß die Fahrmusterverteilung der Gemeindegruppe 3 (20-100 TEW) als ungünstigste, die der Gemeindegruppe 4 (> 100 TEW) als günstigste Verteilung bezüglich der Emissionsmengen anzusehen sind. In den Fahrmusterverteilungen sind jeweils 5 Innerortsfahrmuster berücksichtigt. Der Anteil des Fahrmusters „Stau“ liegt jedoch nur als Mittelwert vor, so daß bei der Definition der Grenzen des Vertrauensbereiches von plausiblen Schätzungen für den Stauanteil ausgegangen werden muß. Die Tabelle 9 enthält die mittleren Fahrmuster-

verteilungen, die den einzelnen Fahrmustern zuzuordnenden Verkehrssituationen aus dem UBA-Handbuch sowie die Verteilungen für die Grenzen des Vertrauensbereichs.

Tab. 9: Mittlere Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und Fehlerabschätzungen

| Pkw-Fahrmuster | Verkehrssituation   | mittlere Geschw. [km/h] | mittlere Verteilung | obere Grenze | untere Grenze |
|----------------|---|-------------------------|---------------------|--------------|---------------|
| 1              | Nebenstraßen im dicht bebauten Siedlungsgebiet              | 19                      | 12,0 %              | 19,4 %       | 5,8 %         |
| 2              | Stadtkern   | 20                      | 10,6 %              | 12,6 %       | 14,7 %        |
| 3              | Hauptverkehrsstraße, vorfahrtsberechtigt, starke Störungen  | 32                      | 27,7 %              | 26,2 %       | 25,4 %        |
| 5              | Hauptverkehrsstraße, vorfahrtsberechtigt, geringe Störungen | 46                      | 38,2 %              | 34,8 %       | 34,2 %        |
| 7              | Ortsdurchfahrt, vorfahrtsberechtigt, ohne Störungen         | 58                      | 9,6 %               | 3,8 %        | 19,3 %        |
| Stau           | Stop+Go-Verkehr   | 5                       | 1,9 %               | 3,2 %        | 0,6 %         |

Da für die Nicht-Pkw-Kategorien vergleichbare Fahrmusterverteilungen nicht vorliegen, werden die Verteilungen der Verkehrssituationen für Pkw bei der Emissionsmodellierung auf die restlichen Fahrzeugkategorien übertragen.

Tab. 10: Mittlere kaltstartrelevante Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und Fehlerabschätzungen

| Pkw-Fahrmuster | Anteil der Kaltstart-Fahrleistung pro Fahrmuster | normale Innerorts-Verteilung | Kaltstartrelevante Innerorts-Verteilung | Kaltstartrelevante UBA-Verteilung | obere Grenze des Vertrauensbereichs | untere Grenze des Vertrauensbereichs |
|----------------|--|------------------------------|---|-----------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|
| 1              | 37,1 %   | 12,0 %                       | 14,0 %                                  | 25,5 %                            | 22,3 %                              | 6,9 %                                |
| 2              | 44,1 %   | 10,6 %                       | 14,7 %                                  | 9,0 %                             | 17,2 %                              | 20,9 %                               |
| 3              | 36,9 %   | 28,4 %                       | 32,8 %                                  | 24,0 %                            | 30,0 %                              | 30,2 %                               |
| 5              | 25,8 %   | 39,2 %                       | 31,7 %                                  | 33,5 %                            | 27,9 %                              | 28,4 %                               |
| 7              | 22,0 %   | 9,8 %                        | 6,8 %                                   | 8,0 %                             | 2,6 %                               | 13,6 %                               |

Der kaltstartrelevante Innerorts-Fahrmuster-Mix unterscheidet sich von dem mittleren Innerorts-Fahrmuster-Mix, da auf kleinen Nebenstraßen und im Stadtkern verhältnismäßig höhere Fahrleistungsanteile mit kaltem Motor erbracht werden. [BARTELT 1994] enthält für jedes Fahrmuster den mittleren Anteil der Kaltstart-Fahrleistung an der Gesamt-Fahrleistung. Aus diesen Angaben und

dem normalen Innerorts-Fahrmuster-Mix läßt sich der kaltstartrelevante Innerorts-Fahrmuster-Mix berechnen. Im UBA-Handbuch [UBA 1995] ist ebenfalls ein kaltstartrelevanter Innerorts-Fahrmuster-Mix angegeben, der sich von dem neu berechneten deutlich unterscheidet. Da die UBA-Angaben nicht nachvollzogen werden können, ist bei Verwendung dieser Daten von einem systematischen Fehler auszugehen. In der Tabelle 10 sind alle beschriebenen Daten sowie die Grenzen des zentralen Vertrauensbereichs, die entsprechend dem Vorgehen beim normalen Innerorts-Fahrmuster-Mix berechnet worden sind, enthalten. Das Fahrmuster „Stau“ kann bei der Modellierung von Kaltstartemissionen nicht berücksichtigt werden, da derzeit keine Kaltstart-Stau-Emissionsfaktoren verfügbar sind.

### 3.1.4 Flottenzusammensetzung

#### 1) Systematische Fehler:

Die Zusammensetzung der Fahrzeugflotte kann - differenziert nach Fahrzeugschichten - für die Bezugsjahre 1980 bis 2010 für die drei Straßenkategorien Autobahnen, sonstige Außerortsstraßen und innerorts dem UBA-Handbuch [UBA 1995] entnommen werden. Bei Wahl einer höheren Aggregierungsstufe der Flottenzusammensetzung (Fahrzeugkategorie oder Fahrzeugkonzept) werden bei der Ermittlung der aggregierten Emissionsfaktoren die jeweiligen Fahrleistungsanteile der Fahrzeugschichten von dem UBA-Programm mit den entsprechenden Schicht-Emissionsfaktoren kombiniert und zusammengefaßt.

Da keine Informationen über die Herleitung der schichtspezifischen Fahrleistungsanteile aus dem UBA-Handbuch vorliegen und somit auch keine unmittelbaren Fehlerabschätzungen durchgeführt werden können, erfolgte anhand bekannter Literaturdaten eine Neuberechnung für das Bezugsjahr 1994.

Detaillierte emissionsbezogene Pkw-Bestandsdaten liegen für den Bezugszeitpunkt 1.7.1994 aus Statistiken des Kraftfahrtbundesamtes vor [KBA 1994]. Die Einteilung der Pkw erfolgt hier nach den gesetzlichen Anforderungen der einzuhaltenden Abgasgrenzwerte, aufgelöst nach Zulassungsbezirken. Die vorliegenden Daten erfordern eine Umschlüsselung in die Fahrzeugschichten des UBA-Handbuchs, deren Abgrenzung anhand technischer Kriterien erfolgt. Da Daten über eine weitere Differenzierung des Pkw-Bestandes nach Hubraumklasse und Fahrzeugalter nicht vorliegen, erfolgte die Umschlüsselung in lediglich fünf Pkw-Klassen, die den kleinsten gemeinsamen Nenner zwischen den Klassierungsmerkmalen aus KBA-Statistik und UBA-Handbuch darstellen. Für die Zusammensetzung dieser fünf Pkw-Klassen wurde wiederum jeweils die Fahrleistungs-

verteilung des UBA-Handbuchs angenommen. Bei der Umschlüsselung der KBA-Daten entstehen Unschärfen bei Fahrzeugen mit Ottomotor, die nach Anlage XXIII bis XXV zu § 47 StVZO zugelassen worden sind, da die Ausrüstung dieser Fahrzeuge mit UKat oder GKat erst ab März 1989 vom KBA erfaßt wird. Zur Umschlüsselung dieser Fahrzeuge muß somit auf zusätzliche Daten zurückgegriffen werden [UBA 1997].

Zur Ermittlung der dynamischen Flottenzusammensetzung aus den statischen Bestandsdaten werden schichtspezifische Korrekturfaktoren benötigt. Hierzu liegen für das Bezugsjahr 1993 aus Kennzeichenauswertungen Daten für eine Differenzierung der Pkw-Flotte nach Antriebsart und Hubraumklasse vor [PALM 1994a], die von [STEVEN 1995] auf die Pkw-Schichten des UBA-Handbuchs erweitert worden sind. Die Korrekturfaktoren für die Hochrechnung von Bestandsanteilen auf Fahrleistungsanteile wurden für die alten Bundesländer nach Tabelle 11 ermittelt.

Die Korrekturfaktoren von 1993 wurden für die Ermittlung der Flottenzusammensetzung für das Bezugsjahr 1994 übernommen. Aufgrund von Verschiebungen der Pkw-Klassen-Anteile zwischen 1993 und 1994 wurden die Fahrleistungsanteile 1994 nach der Korrektur auf die Summe von 100 % normiert. Es ergeben sich im Vergleich zu 1993 für alle Pkw-Klassen und Straßenkategorien etwas niedrigere Korrekturfaktoren.

Tab. 11: Korrekturfaktoren für die Umrechnung von Pkw-Bestandsanteilen auf Pkw-Fahrleistungsanteile

|            | Autobahnen |       | sonst. Außerortsstraßen |       | innerorts |       |
|------------|------------|-------|-------------------------|-------|-----------|-------|
|            | 1993       | 1994  | 1993                    | 1994  | 1993      | 1994  |
| Otto-GKat  | 1,109      | 1,077 | 1,021                   | 1,010 | 1,015     | 1,006 |
| Otto-sonst | 0,879      | 0,854 | 0,943                   | 0,933 | 0,946     | 0,937 |
| Diesel     | 1,232      | 1,196 | 1,176                   | 1,165 | 1,176     | 1,166 |

Für die Pkw-Bestands- und Fahrleistungsanteile wurden somit im Vergleich zu den Angaben im UBA-Handbuch die in Tabelle 12 enthaltenen Werte ermittelt.

Während die UBA-Bestandsdaten für Pkw mit Otto-Motor mit den neu ermittelten Bestandsdaten noch gut übereinstimmen, treten bei den drei Klassen der Dieselfahrzeuge bereits deutliche Unterschiede auf. Gravierende Differenzen finden sich bei den Fahrleistungsverteilungen bei allen Pkw-Klassen, und zwar in zunehmendem Maße in der Reihenfolge der Straßenkategorien innerorts-außerorts-Autobahnen. Besonders eklatant sind die Unterschiede bei der für die Emissionen maßgeblichen Pkw-Klasse der Otto-Fahrzeuge ohne GKat.

Tab. 12: Vergleich der neu ermittelten Pkw-Klassen-Anteile für die alten Bundesländer 1994 mit den entsprechenden Angaben im UBA-Handbuch

|                   | Bestand |         | Fahrleistungen<br>Autobahnen |         | Fahrleistungen<br>sonst. außerorts |         | Fahrleistungen<br>innerorts |         |
|-------------------|---------|---------|------------------------------|---------|------------------------------------|---------|-----------------------------|---------|
|                   | neu     | UBA     | neu                          | UBA     | neu                                | UBA     | neu                         | UBA     |
| Otto-GKat         | 43,50 % | 42,70 % | 46,84 %                      | 58,48 % | 43,96 %                            | 50,00 % | 43,77 %                     | 47,31 % |
| Otto-sonst        | 42,13 % | 41,83 % | 35,97 %                      | 21,00 % | 39,31 %                            | 31,32 % | 39,48 %                     | 33,35 % |
| Diesel-konv       | 1,04 %  | 0,54 %  | 1,24 %                       | 0,17 %  | 1,21 %                             | 0,34 %  | 1,21 %                      | 0,56 %  |
| Diesel-Anl. 24,25 | 7,78 %  | 5,83 %  | 9,31 %                       | 5,21 %  | 9,06 %                             | 5,18 %  | 9,07 %                      | 5,55 %  |
| Diesel-Anl. 23    | 5,55 %  | 9,09 %  | 6,64 %                       | 15,14 % | 6,46 %                             | 13,15 % | 6,47 %                      | 13,22 % |

Da die Fahrleistungsverteilungen des UBA-Handbuchs einerseits als Standardeingabedaten zur Emissionsmodellierung angesehen werden müssen, andererseits die Ableitung dieser Daten anhand der vorliegenden Dokumentationen nicht nachvollzogen werden kann, werden die Abweichungen zu den neu berechneten Fahrleistungsverteilungen als systematische Fehler ausgewiesen.

Für die Pkw-Emissionen treten bei Verwendung der neu ermittelten Fahrleistungsverteilungen für die alten Bundesländer (ABL) gegenüber den UBA-Fahrleistungsverteilungen als Bezugsgröße die in Tabelle 13 dargestellten Abweichungen auf. Zusätzliche systematische Fehler entstehen bei der Übertragung der für die alten Bundesländer gemittelten Fahrleistungsverteilungen auf regional begrenzte Gebiete. In der Tabelle sind daher zusätzlich die systematischen Abweichungen dargestellt, die sich bei Verwendung der für Baden-Württemberg spezifischen Fahrleistungsverteilungen ergeben.

Tab. 13: Auswirkungen der systematischen Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Pkw-Emissionen

|               | Abweichungen ABL<br>gegenüber UBA |                 | Abweichungen Baden-Württemberg<br>gegenüber ABL |                 |
|---------------|-----------------------------------|-----------------|---|-----------------|
|               | HC                                | NO <sub>x</sub> | HC  | NO <sub>x</sub> |
| Autobahnen    | + 48,0 %                          | + 26,1 %        | - 1,9 %   | - 1,4 %         |
| Bundesstraßen | + 19,5 %                          | + 11,7 %        | - 1,8 %   | - 1,4 %         |
| Landesstraßen | + 19,5 %                          | + 11,7 %        | - 1,8 %   | - 1,4 %         |
| Kreisstraßen  | + 19,5 %                          | + 11,7 %        | - 1,8 %   | - 1,4 %         |
| innerorts     | + 13,9 %                          | + 4,1 %         | - 1,8 %   | - 1,1 %         |

Da für die restlichen Fahrzeugkategorien keine detaillierten emissionsbezogenen Bestandsdaten vorliegen, können die UBA-Fahrleistungsverteilungen nicht in der für die Pkw durchgeführten Weise überprüft werden. Für die Berechnung der Gesamtemissionen wird daher vom günstigsten Fall ausgegangen, daß die UBA-Fahrleistungsverteilungen der Nicht-Pkw-Kategorien fehlerfrei sind. Die Tabelle 14 zeigt die berechneten Abweichungen bezogen auf die Emissionen aller Fahrzeugkategorien.

Tab. 14: Auswirkungen der systematischen Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Emissionen aller Fahrzeugkategorien

|               | Abweichungen ABL gegenüber UBA |                 | Abweichungen Baden-Württemberg gegenüber ABL |                 |
|---------------|--------------------------------|-----------------|--|-----------------|
|               | HC                             | NO <sub>x</sub> | HC   | NO <sub>x</sub> |
| Autobahnen    | + 28,3 %                       | + 11,9 %        | - 1,1 %                                      | - 0,6 %         |
| Bundesstraßen | + 15,7 %                       | + 9,4 %         | - 1,4 %                                      | - 1,1 %         |
| Landesstraßen | + 14,6 %                       | + 8,4 %         | - 1,3 %                                      | - 1,0 %         |
| Kreisstraßen  | + 11,9 %                       | + 8,2 %         | - 1,1 %                                      | - 1,0 %         |
| innerorts     | + 10,4 %                       | + 2,3 %         | - 1,3 %                                      | - 0,6 %         |

II) Statistische Fehler:

Zur Abschätzung regionaler Schwankungen der Flottenzusammensetzung innerhalb Baden-Württembergs wurden die emissionsbezogenen, nach Zulassungsbezirken (kreisfreie Städte bzw. Landkreise) differenzierten Pkw-Bestandsdaten des Kraftfahrtbundesamtes ausgewertet [KBA 1994]. Die Umschlüsselung der Bestandsanteile in die Fahrleistungsanteile erfolgte entsprechend der in Punkt I (systematische Fehler) erläuterten Vorgehensweise. Für jeden der 44 Zulassungsbezirke wurden somit Fahrleistungsanteile der definierten Pkw-Klassen für die drei Straßenklassen Autobahnen, außerorts und innerorts ermittelt. Für die abgeleiteten 44 verschiedenen Flottenzusammensetzungen wurden jeweils die Emissionen in einem ansonsten einheitlichen Modell (Baden-Württemberg 1994) ermittelt und die Differenzen statistisch ausgewertet. Die Ergebnisse der auf die Pkw-Emissionen beschränkten Modellierungen sind in Tabelle 15 dargestellt.

Bezogen auf die Gesamtemissionen aller Fahrzeugkategorien unter der günstigsten Annahme, daß die Fahrleistungsverteilungen im UBA-Handbuch für die Nicht-Pkw-Kategorien fehlerfrei sind, ergeben sich die Fehlerbandbreiten nach Tabelle 16.

Tab. 15: Auswirkungen der statistischen (regionalen) Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Pkw-Emissionen

|               | Variationskoeffizient |                 |
|---------------|-----------------------|-----------------|
|               | HC                    | NO <sub>x</sub> |
| Autobahnen    | ± 6,5 %               | ± 4,9 %         |
| Bundesstraßen | ± 6,4 %               | ± 5,3 %         |
| Landesstraßen | ± 6,4 %               | ± 5,3 %         |
| Kreisstraßen  | ± 6,4 %               | ± 5,3 %         |
| innerorts     | ± 6,3 %               | ± 4,9 %         |

Tab. 16: Auswirkungen der statistischen (regionalen) Abweichungen bei der Flottenzusammensetzung auf die Emissionen aller Fahrzeugkategorien

|               | Variationskoeffizient |                 |
|---------------|-----------------------|-----------------|
|               | HC                    | NO <sub>x</sub> |
| Autobahnen    | ± 3,8 %               | ± 2,2 %         |
| Bundesstraßen | ± 5,1 %               | ± 4,2 %         |
| Landesstraßen | ± 4,8 %               | ± 3,8 %         |
| Kreisstraßen  | ± 3,9 %               | ± 3,7 %         |
| innerorts     | ± 4,7 %               | ± 2,7 %         |

Ein entscheidendes Kriterium bei der Verdampfungsemission von Kohlenwasserstoffen ist die Ausrüstung eines Otto-Fahrzeuge mit einem Aktivkohlefilter (AKF). Bei GKat-Fahrzeugen ab EURO1-Norm kann mit ausreichender Sicherheit von einer vollständigen Ausrüstung mit AKF ausgegangen werden. Fahrzeuge ohne GKat sind mit ebenfalls ausreichender Sicherheit nicht mit AKF ausgerüstet. Unsicherheiten bestehen bei GKat-Pkw, die nach Anlage XXIII bis XXV zu § 47 StVZO bzw. nach „schadstoffarm E1“ zugelassen worden sind. Hier schwanken die Schätzungen über den Ausstattungsgrad mit AKF zwischen 90 % [MAY 1993] und 100 % (eigene Schätzungen). Faßt man diese Werte als maximale Grenzen, so ergibt sich für einen zentralen 68 % - Vertrauensbereiches der AKF-Anteilen bei diesen Fahrzeugen zwischen 91,6 und 98,4 %. Bezogen auf alle am Stichtag 1.7.1994 zugelassenen Otto-Pkw folgt somit ein mittlerer Ausstattungsgrad mit AKF von 49,22 %. Der Vertrauensbereich wird mit 47,96 % nach unten und 50,48 % nach oben begrenzt.

### **3.1.5 Längsneigung**

#### **3.1.5.1 Außerorts**

Grundlage der Fehlerabschätzungen der Straßenlängsneigungen ist eine Straßendatenbank, in der für alle Außerortsabschnitte Längsneigungen in 1 % - Klassen enthalten sind. Dies bedeutet für einen einzelnen Streckenabschnitt (korrekte Zuordnungen in der Straßendatenbank vorausgesetzt) unter Zugrundelegung des jeweiligen Klassenmittelwertes einen maximalen Fehler der Längsneigung von  $\pm 0,5$  %. Unter der Voraussetzung einer gleichmäßigen Verteilung der Streckenabschnitte innerhalb einer Längsneigungsklasse ergeben sich die Grenzen des zentralen 68 % - Vertrauensbereiches einer Längsneigungsklasse aus:

Obere Grenze = Klassenmittelwert + 0,34 %

Untere Grenze = Klassenmittelwert - 0,34 %

Die Emissionsfaktoren müssen zur Emissionsberechnung und zur Fehlerermittlung den vorgegebenen Längsneigungen angepaßt werden. Da Emissionsfaktoren derzeit lediglich in 2 % - Längsneigungsabstufungen vorliegen, werden die benötigten Emissionsfaktoren durch lineare Interpolationen berechnet. Für Motorräder und Mofas sind noch keine Längsneigungsfaktoren vorhanden, so daß hier auf allen Abschnitten unabhängig von der Längsneigung die Emissionsfaktoren für ebenen Straßenverlauf Verwendung finden.

Die Abb. 5 und 6 zeigen für die Flottenzusammensetzungen und die Fahrmusterverteilungen in Baden-Württemberg 1994 die durch die ungenauen Längsneigungsangaben verursachten statistischen Unsicherheiten der berechneten Emissionen differenziert nach Längsneigungsklasse. Während bei  $\text{NO}_x$  eine zunehmende Tendenz der Variationskoeffizienten mit höherer Längsneigungsklasse erkennbar ist, ist der Verlauf bei NMHC sowohl auf Autobahnen als auch auf den sonstigen Außerortsstraßen uneinheitlich. Insgesamt liegen die maximal auftretenden VK bei ca. 5,5 % (NMHC) bzw. 3,5 % ( $\text{NO}_x$ ). Diese Fehler fallen gering aus im Vergleich zu den zu erwartenden Fehlern der längsneigungskorrigierten Emissionsfaktoren.

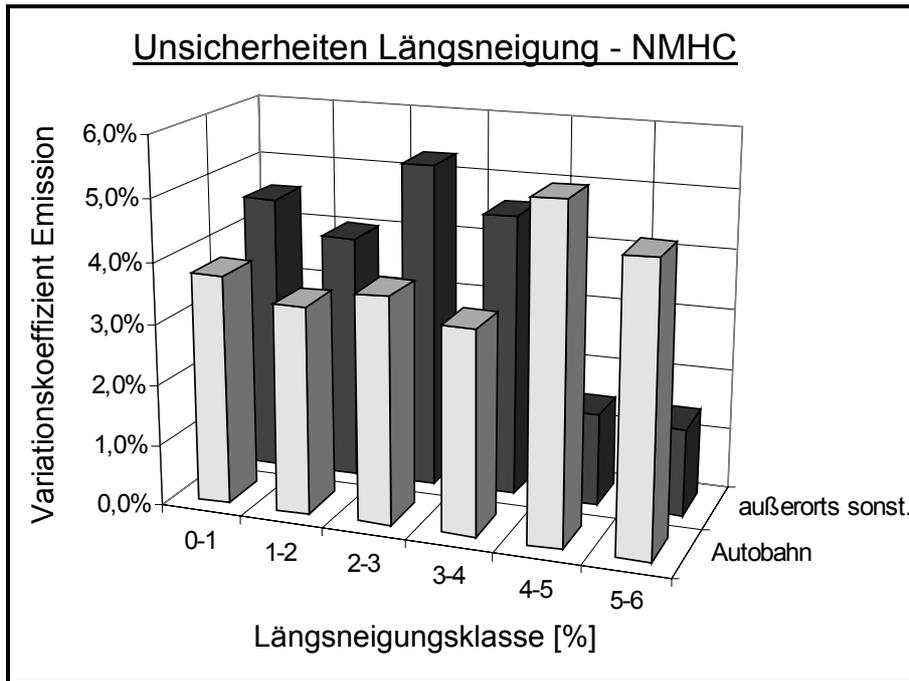


Abb. 5: Durch ungenaue Längsneigungsangaben verursachte statistische Unsicherheiten der NMHC-Emissionen in Baden-Württemberg 1994

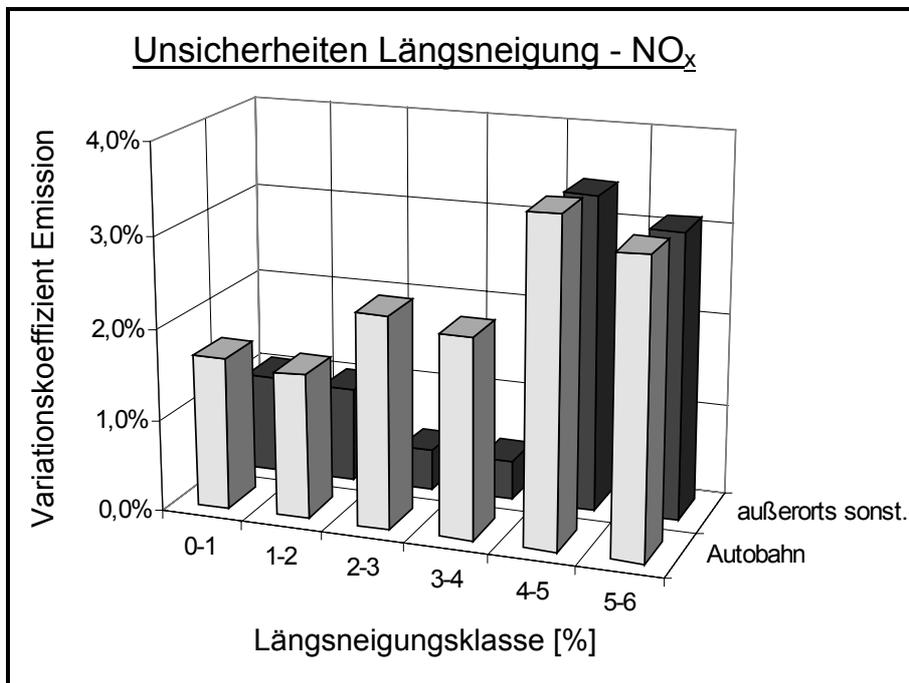


Abb. 6: Durch ungenaue Längsneigungsangaben verursachte statistische Unsicherheiten der NO<sub>x</sub>-Emissionen in Baden-Württemberg 1994

### **3.1.5.2 Innerorts**

Für die nach Längsneigungen differenzierten Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich liegen Abschätzungen von [PALM 1996] für die alten Bundesländer vor, die auf Auswertungen der Längsneigungsdaten von Ortsdurchfahrten beruhen. Flächendeckende Höhendaten für gesamte Straßennetze verschiedener Gemeinden sind derzeit nicht verfügbar. Die mittleren Verteilungen sowie Abschätzungen für die Grenzen des zentralen Vertrauensbereiches sind in der Tabelle 17 dargestellt.

Tab. 17: Mittlere, nach Längsneigungsklassen differenzierte Fahrleistungsverteilungen im Innerortsbereich in den alten Bundesländern und geschätzte Fehlergrenzen

| Längsneigungsklasse | 0-1 %  | 1-3 %  | 3-5 % | >5 %  |
|---------------------|--------|--------|-------|-------|
| Mittelwert          | 0,5 %  | 2 %    | 4 %   | 6 %   |
| mittlere Verteilung | 62,5 % | 29,5 % | 6 %   | 2 %   |
| Minimum             | 100 %  | 0 %    | 0 %   | 0 %   |
| untere Grenze       | 87,5 % | 10 %   | 2 %   | 0,5 % |
| obere Grenze        | 37,5 % | 49 %   | 10 %  | 3,5 % |

### **3.1.6 Anzahl von Fahrten (Start- und Abstellvorgänge)**

Angaben über die Anzahl der Fahrtvorgänge pro Gemeinde sind in der Regel nicht verfügbar. Es sind daher näherungsweise Abschätzungen unter Einbeziehung geeigneter Hilfsdaten erforderlich. Eine gebräuchliche Methode besteht in der Ermittlung der großräumigen Anzahl von Gesamtstarts aus Gesamtfahrleistungen und mittleren Fahrtlängen und der anschließenden räumlichen Differenzierung anhand von Einwohnerdaten. Die Ermittlung der Anzahl der Fahrten ist nur für die Fahrzeugkategorie Pkw durchführbar, da für die restlichen Fahrzeugkategorien die erforderlichen Datensätze nicht verfügbar sind.

Durch die Verwendung unterschiedlicher Datensätze sind mehrere Fehlerquellen vorhanden:

- I) Fehler bei der Ermittlung der Gesamtfahrleistungen
- II) Fehler der mittleren Fahrtlängen
- III) Fehler bei der Differenzierung der Fahrten nach Gemeinden

1) Fehler bei der Ermittlung der Gesamtfahrleistungen:

Für das Bezugsjahr 1990 sind Daten aus drei unabhängigen Methoden zur Ermittlung der Gesamtfahrleistungen für die alten Bundesländer verfügbar:

1. Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung [DIW 1997].
2. Heusch/Boesefeldt [PALM 1994a].
3. Innerortsfahrleistungen der Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung (BfLR) [SCHMITZ 1997] + Außerortsfahrleistungen der BVZ 1990 [LENSING 1995]

Die jeweils ermittelten Gesamtfahrleistungen, Mittelwert und Fehlerbandbreiten sind in der Tabelle 18 dargestellt.

Tab. 18: Gesamtfahrleistungen für die alten Bundesländer 1990 nach drei unterschiedlichen Methoden

|                       | Gesamtfahrleistung [Mrd km] |
|-----------------------|-----------------------------|
| - DIW                 | 488,5                       |
| - Heusch/Boesefeldt   | 523,4                       |
| - BfLR + BVZ          | 516,4                       |
| Mittelwert            | 509,4                       |
| Standardabweichung    | 18,5                        |
| Variationskoeffizient | 3,6 %                       |

Da für das Bezugsjahr 1994 nur Fahrleistungsdaten aus einer Quelle vorliegen [DIW 1997], können für den Hochrechnungsfaktor 1990 --> 1994 (+ 1,7 %) derzeit keine Fehlerabschätzungen durchgeführt werden.

Für die Fahrzeugkategorie Pkw ergibt sich bei einem Fahrleistungsanteil von 84,32 % [PALM 1996] für das Bezugsjahr 1994 eine Gesamtfahrleistung von 436,8 Mrd. km. Auch für die Fahrleistungsanteile der einzelnen Fahrzeugkategorien fehlen Vergleichszahlen, so daß eine Fehlerabschätzung derzeit nicht möglich ist.

II) Fehler der mittleren Fahrtlängen:

Die Anzahl der Gesamtfahrten der Pkw ergibt sich aus der Multiplikation der Gesamtfahrleistung mit der auf die Fahrleistung bezogenen Anzahl der Fahrten (bzw. aus der Division der Gesamtfahrleistung durch die mittlere Fahrtlänge). Angaben über die auf die Fahrleistung bezogene Anzahl der Fahrten gehen aus soziologischen Studien hervor, die auf Befragungen von Fahrzeughaltern und Auswertungen von Tachometerständen und Fahrtenbüchern basieren. Derzeit liegen lediglich zwei umfangreiche Studien dieser Art mit verwertbaren Ergebnissen vor, die in der Tabelle 19 zusammengefaßt sind.

Tab. 19: Fahrleistungsbezogene Fahrtenanzahl der Pkw in den alten Bundesländern - Mittelwert und Fehlerbandbreite

|                                  | Anzahl der Fahrten pro km | Mittlere Fahrtlänge [km] |
|----------------------------------|---------------------------|--------------------------|
| AUTOMOTIV<br>[WEISSBARTH 1992]   | 0,05974                   | 16,7                     |
| NRW-KONTIV<br>[UEBERSCHAER 1991] | 0,06944                   | 14,4                     |
| Mittelwert                       | 0,06459                   | 15,6                     |
| Standardabweichung               | 0,00689                   | 1,65                     |
| Variationskoeffizient            | ± 10,6 %                  | ± 10,6 %                 |

Mit den aufgeführten Mittelwerten ergibt sich für das Jahr 1994 eine Gesamtzahl der Pkw-Fahrten von ca. 28 Mrd und mit einem Pkw-Bestand von ca. 33,067 Mio Fahrzeugen [KBA 1994] pro Pkw im Mittel 846,8 Fahrten pro Jahr bzw. 2,32 Fahrten pro Tag.

III) Fehler bei der Differenzierung der Fahrten nach Gemeinden:

Für die räumliche Verteilung der Fahrten auf Gemeindeebene anhand der Einwohnerzahlen liegen keine verlässlichen Beziehungen vor. Da die Fahrten zum stark überwiegenden Teil im Innerortsbereich beginnen und enden, wird vereinfachend davon ausgegangen, daß sich die Verteilung der Starts und Abstellvorgänge wie die räumliche Verteilung der Innerortsfahrleistungen verhält (s. Kap. 3.1.2.2). Somit muß für Gleichung 24 lediglich ein neuer Faktor ermittelt werden, der die Abhängigkeit zwischen der jährlichen Anzahl der Pkw-Abstellvorgänge und der Einwohnerzahl der Gemeinde beschreibt. Für die relativen Fehlerbandbreiten gelten die gleichen Aussagen wie bei der Verteilung der Innerortsfahrleistungen. Es ergibt sich ein VK von + 26,0 % / -20,6 %.

In der Tabelle 20 sind die Fehler bei der Ermittlung der Anzahl der Starts zusammenfassend dargestellt.

Tab. 20: Fehler bei der Ermittlung der Anzahl von Pkw-Fahrten auf Gemeindeebene

|                                    | Variationskoeffizient |
|------------------------------------|-----------------------|
| Gesamtfahrleistung                 | ± 3,6 %               |
| mittlere Fahrtlänge                | ± 10,6 %              |
| Verteilung auf Gemeinden           | + 26,0 % / - 20,6 %   |
| Gesamtfehler (Fehlerfortpflanzung) | + 28,3 % / - 23,4 %   |

### 3.1.7 Standzeitenverteilung

Die Kenntnis der Verteilung der Standzeiten ist zum einen als Hilfsgröße zur Abschätzung der Verteilung der Motortemperaturen zu Fahrtbeginn zur Ermittlung der Kalt- / Kühlstartemissionen und zum anderen zur Ermittlung der Heiß- / Warmabstellverluste erforderlich.

Zur Zeit liegen zwei verwertbare Studien über Standzeitenverteilungen von Pkw vor:

1. DRIVE 1991 / UBA-Handbuch: Auswertungen von 14 Einzelfahrzeugen (Halterbefragungen) [BARTELT 1994, UBA 1995]
2. SrV Potsdam 1994: Auswertungen von ca. 1300 Einzelfahrten (Fahrerbefragungen) in Potsdam / Brandenburg [KUSCHK 1998]

Tab. 21: Standzeitenverteilungen von Pkw

|  | Anteile der Standzeiten [%] |       |       |       |       |       |       |       |       |
|--|-----------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
|  | < 1 h                       | 1-2 h | 2-3 h | 3-4 h | 4-5 h | 5-6 h | 6-7 h | 7-8 h | > 8 h |
| DRIVE 1991 / UBA<br>(untere Grenze des VB) | 41,6                        | 10,6  | 6,5   | 4,2   | 2,45  | 2,45  | 1,4   | 1,4   | 29,4  |
| SrV Potsdam 1994<br>(obere Grenze des VB)  | 30,5                        | 15    | 6     | 4     | 2     | 1     | 1     | 1     | 39,5  |
| mittlere Verteilung                        | 36,05                       | 12,8  | 6,25  | 4,1   | 2,225 | 1,725 | 1,2   | 1,2   | 34,45 |

Die Ergebnisse sowie eine daraus abgeleitete mittlere Verteilung sind in der Tabelle 21 dargestellt. Da derzeit lediglich zwei Studien zur Verfügung stehen, wurden die Verteilungen dieser beiden Studien jeweils als Grenzen des Vertrauensbereiches festgelegt. Abweichungen zwischen der mittleren Verteilung und der DRIVE/UBA-Verteilung werden aufgrund der weiten Verbreitung der DRIVE/UBA-Daten (Standard) als systematische Fehler angesehen.

Eine tageszeitlich aufgelöste Standzeitenverteilung, wie sie zur exakten Ermittlung der Kaltstartemissionen aufgrund des tageszeitlich variierenden Temperaturverlaufs erforderlich ist, ist in den UBA-Daten nicht enthalten, kann jedoch aus Daten der SrV Potsdam 1994 abgeleitet werden.

### 3.1.8 Fahrtweitenverteilung

Fahrtweitenverteilungen werden u.a. zur Ermittlung der Kalt- / Kühlstartemissionen benötigt, da ein kalter Motor erst nach ca. 5 km seine Betriebstemperatur erreicht und sich daher das Emissionsverhalten auf den ersten 5 Fahrkilometern kontinuierlich ändert. Außerdem fließen Fahrtweitenverteilungen in das Modell zur Berechnung der Heiß- / Warmabstellverluste als Hilfsgröße zur Ermittlung der Motortemperaturen zum Zeitpunkt des Abstellvorgangs ein.

Zur Fehlerabschätzung liegen sechs Studien über Pkw-Fahrtweitenverteilungen vor, deren Ergebnisse und eine daraus resultierende mittlere Verteilung in Tabelle 22 zusammengefaßt sind.

Tab. 22: Fahrtweitenverteilungen von Pkw

|   | Anteile der Fahrtweiten [%] |             |             |            |            |             |
|---|-----------------------------|-------------|-------------|------------|------------|-------------|
|   | < 1<br>km                   | 1-2<br>km   | 2-3<br>km   | 3-4<br>km  | 4-5<br>km  | >5<br>km    |
| AUTOMOTIV 1990/91 [WEISSBARTH 1992]     | 5,4                         | 9,3         | 8,8         | 7,1        | 7,7        | 61,7        |
| KONTIV 1989 [BARTELT 1994]              | 6,4                         | 11,5        | 11,8        | 8,5        | 8,5        | 53,3        |
| DRIVE 1991 / UBA [UBA 1995]             | 10,3                        | 13,4        | 10,9        | 7,1        | 7,1        | 51,2        |
| Brandenburg Stadt 1994 [TROSTORF 1995]  | 12                          | 15          | 14          | 8          | 8          | 43          |
| Brandenburg Land 1994 [TROSTORF 1995]   | 16                          | 6           | 6           | 3          | 2          | 67          |
| Berlin 1993 [BLÜMEL 1995] <sup>1)</sup> | 4,2                         | 9,0         | 9,1         | 7,9        | 7,9        | 61,9        |
| <b>mittlere Verteilung</b>              | <b>9,1</b>                  | <b>10,7</b> | <b>10,1</b> | <b>6,9</b> | <b>6,9</b> | <b>56,3</b> |

1) nur Hauptverkehrsstraßen (ohne Stadtautobahn)

Modellierungen haben ergeben, daß die Berliner Fahrtweitenverteilung sowohl bei HC als auch bei NO<sub>x</sub> zu den höchsten Emissionswerten führt. Die niedrigsten Emissionswerte treten bei HC mit der Brandenburger Land-Verteilung, bei NO<sub>x</sub> mit der Brandenburger Stadt-Verteilung auf. Diese Verteilungen wurden jeweils als Grenzen der Vertrauensbereiche gewählt. Als systematische Fehler wurden wiederum die Abweichungen der mittleren Verteilung von der am weitesten verbreiteten DRIVE/UBA-Verteilung definiert.

Tageszeitliche Unterschiede bei der Fahrtweitenverteilung, die sich aufgrund tageszeitlich variierender Start-Temperaturen auf das Gesamtemissionsverhalten auswirken können, müssen derzeit noch unberücksichtigt bleiben.

### 3.1.9 Temperaturen

Das Temperaturniveau der Außenluft hat erheblichen Einfluß auf das Kaltstartverhalten der Fahrzeuge. Desweiteren sind Einflüsse der Außentemperatur auf die Verdunstungsemissionen bekannt. Die Tankatmungsverluste werden maßgeblich von den täglichen Temperaturdifferenzen beeinflusst.

Über die vier Jahreszeiten gemittelte, einwohnergewichtete tägliche Temperaturverläufe in stündlicher Auflösung liegen für die alten Bundesländer aus [UBA 1997] vor. Zur Abschätzung der statistischen Schwankungen aufgrund regionaler Temperaturunterschiede auf Gemeindeebene müssen zwei verschiedenen Fehlerquellen berücksichtigt werden:

1. Regionale Schwankungen zwischen verschiedenen Klimazonen in Deutschland
2. Schwankungen zwischen innerstädtischen und ländlichen Gebieten bzw. Stadtrandlagen

Zur Abschätzung der Temperaturschwankungen zwischen verschiedenen Klimazonen wurden einwohnergewichtete Temperaturdaten als monatliche Tagesmittel für 10 Klimazonen in den alten Bundesländern ausgewertet [HEINE 1989]. Es ergibt sich eine mittlere Standardabweichung von 0,9 °C, wobei die Differenzen zwischen den einzelnen Klimazonen in den Wintermonaten etwas höher (max. Standardabweichung: 1,35 °C) und in den Sommermonaten etwas geringer (min. Standardabweichung: 0,62 °C) ausfallen.

Die Differenzen der Tagesmittel zwischen einwohnergewichtetem Stadtklima und Umlandklima können den Daten von [HEINE 1989] unabhängig von der Jahreszeit mit konstant 0,64 °C entnommen werden. Bei der Differenzierung der Temperaturunterschiede Stadt-Umland im Tagesverlauf ist zu berücksichtigen, daß in den Nachtstunden deutlich höhere Differenzen auftreten als tagsüber.

Daten über den tageszeitlichen Verlauf der Stadt-Land-Unterschiede können ebenfalls [HEINE 1989] entnommen werden.

Aus den Standardabweichungen der beiden Fehlerquellen können jahreszeitlich gemittelte Tagesgänge für obere und untere Grenze des zentralen Vertrauensbereichs abgeleitet werden. Die obere Grenze entspricht dabei der Temperaturcharakteristik einer mittleren Großstadt in einer warmen Klimazone, die untere Grenze einer mittleren Kleinstadt in einer kalten Klimazone.

Entsprechend den Fehleruntersuchungen für die tagesmittleren Temperaturen erfolgen die Abschätzungen für die Tagesdifferenzen  $\Delta T$ . Die Standardabweichung zwischen den einzelnen Klimazonen wurde mit  $\Delta T = \pm 1,3 \text{ }^\circ\text{C}$  ermittelt. Für die Unterschiede zwischen Stadt- und Landklima gilt  $\Delta T = \pm 0,9 \text{ }^\circ\text{C}$ . Faßt man beide Standardabweichungen nach den Regeln der Fehlerfortpflanzung zusammen, so erhält man als Gesamtfehler für gemeindebezogene Unterschiede täglicher Temperaturdifferenzen  $\Delta T = \pm 1,6 \text{ }^\circ\text{C}$  bei einer mittleren Tagesdifferenz in den alten Bundesländern von  $\Delta T = 7,0 \text{ }^\circ\text{C}$ .

### **3.1.10 Tagesganglinien**

Eine exakte Berechnung der Kaltstartemissionen erfordert aufgrund der tageszeitlichen Schwankungen der Außentemperaturen und Standzeitenverteilung (und auch in geringerem Ausmaß der Fahrtweiten-, Fahrmusterverteilung und Flottenzusammensetzung) eine tageszeitliche Differenzierung der Startvorgänge. Zu diesem Zweck werden Tagesgänge der Innerortsfahrleistungen auf die tageszeitliche Verteilung der Startvorgänge übertragen.

Eine umfassende Fehleranalyse zur Abschätzung der Schwankungsbreiten von Tagesganglinien erfordert als Datenbasis Tagesganglinien der gesamten Innerortsfahrleistungen einzelner Gemeinden. Diese vollständige Datenbasis ist nicht verfügbar. Vielmehr liegen aus [SCHMIDT 1995] nach vier Tagesganglinien-Kennwerten (Quotient aus Verkehrsstärke zwischen 16-18 Uhr und Verkehrsstärke zwischen 12-14 Uhr) zusammengefaßte Tagesganglinien auf der Basis von Zählungen an 144 Querschnitten in sechs westdeutschen Großstädten vor. Die ausgewerteten Zählquerschnitte liegen überwiegend an Hauptverkehrsstraßen, so daß das Nebenstraßennetz in den ermittelten vier Tagesganglinien-Typen ( $f$ :  $<1,4$ ;  $1,4-1,8$ ;  $1,8-2,0$ ;  $>2,0$ ) unterrepräsentiert ist. Aufgrund der sehr unterschiedlichen Charakteristik der vier klassierten Tagesganglinien ist eine Übertragung der statistischen Streuungen auf Streuungen zwischen Gemeinden, die in unterschiedlichem Maße von Durchgangs-, Pendler- und Freizeitverkehr geprägt werden, vertretbar.

### 3.1.11 Treibstoffqualität

Der Einfluß der Kraftstoffqualität auf die Abgasemissionen kann derzeit nicht abgeschätzt werden, da keine nach Kraftstoffeigenschaften differenzierten Abgas-Emissionsfaktoren vorliegen.

Die Verdampfungsemissionen sind stark von der Flüchtigkeit der Einzelkomponenten des Kraftstoffgemischs abhängig. Ein Maß für die Flüchtigkeit eines Kraftstoffs stellt der Dampfdruck nach Reid (RVP) dar, der den Dampfdruck bei einer Temperatur von 37,8 °C beschreibt.

Über Verdampfungsemissionen von Dieselfahrzeugen liegen derzeit keine Daten vor. In Deutschland werden im wesentlichen zwei unterschiedliche Otto-Kraftstoffsorten eingesetzt: Sommer- und Winterkraftstoff. Der RVP liegt dabei nach [HEINE 1993] beim Sommerkraftstoff (SKS) zwischen 450 und 700 mbar und beim Winterkraftstoff (WKS) zwischen 600 und 900 mbar. Der mittlere RVP liegt nach [HEINE 1993] beim SKS bei 680 mbar und beim WKS bei 860 mbar. [MAY 1993] setzt für die mittleren RVP 670 mbar für SKS und 850 mbar für WKS. Auf der Grundlage dieser Daten wird die Standardabweichung für den RVP auch unter Einbeziehung möglicher regionaler Schwankungen vorsichtig mit 20 mbar abgeschätzt.

Für den Wechsel von SKS auf WKS und umgekehrt werden in der Literatur unterschiedliche Einsatztermine angegeben. [HEINE 1993] beschreibt den Einsatzzeitraum für SKS vom 15.4. bis 15.9, für WKS vom 16.9. bis 14.4. Laut [MAY 1993] wird SKS im Zeitraum vom 1.5. bis 30.9. und WKS vom 1.11. bis 31.3. angeboten. Die Monate April und Oktober werden hier als Übergangsmo-nate angegeben.

Für die Tankatmungsemissionen liegen funktionale Zusammenhänge zwischen der täglich emittierten Kohlenwasserstoffmenge und dem Dampfdruck des Kraftstoffs in [HEINE 1989] vor. Entsprechende Zusammenhänge für die Heiß- / Warmabstellverluste finden sich z.B. in [MCARRAGHER 1990].

## 3.2 Fehlerbandbreiten auf unterschiedlichen Straßenkategorien

Für verschiedene Straßenkategorien wurden Fehlerabschätzungen von berechneten Jahresemissionen durchgeführt. Aus den ermittelten statistischen Fehlern der Eingangsdaten wurden die partiellen Auswirkungen der einzelnen Fehler auf die modellierten Emissionswerte ermittelt und nach

dem Prinzip der Fehlerfortpflanzung zu einem Gesamtfehler verknüpft. Aufgrund der teilweise lückenhaften Datensituation konnten die Fehlerabschätzungen oftmals nicht vollständig, sondern nur in Teilbereichen durchgeführt werden. Die ermittelten statistischen Gesamtfehler sind somit als untere Grenze der tatsächlichen Gesamtfehler anzusehen und haben bis zur Einbeziehung neu erhobener Daten vorläufigen Charakter.

Neben den statistischen Fehlern wurden, soweit entsprechende Daten verfügbar waren, auch systematische Fehler quantifiziert und gesondert ausgewiesen. Die Ermittlung der systematischen Gesamtfehler erfolgte durch Addition der auf die Emission bezogenen systematischen Einzelfehler.

### **3.2.1 Warm-Emissionen außerorts**

Die Ergebnisse der Fehlerermittlungen für die Straßenkategorien Autobahn, Bundesstraße, Landesstraße und Kreisstraße in Baden-Württemberg für das Bezugsjahr 1994 sind in der Abb. 7 dargestellt. Die Ergebnisse beziehen sich auf Straßenabschnitte mit folgenden Voraussetzungen:

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

Auf eine gesonderte Fehlerbetrachtung für Außerorts-Gemeindestraßen wurde aufgrund der unzureichenden Datensituation bei dieser Straßenkategorie verzichtet. In erster Näherung können die Ergebnisse der Kreisstraßen übertragen werden.

Die ermittelten statistischen Fehler (Variationskoeffizienten) der berechneten Jahresemissionen liegen bei allen Straßenkategorien bei NMHC zwischen 21 und 26 % und bei NO<sub>x</sub> zwischen 16 und 22 %, wobei insbesondere bei den Autobahnabschnitten aufgrund der asymmetrischen Auswirkung des Fehlers beim Fahrmuster-Mix ein negativer Fehler (Emissionen sind zu hoch berechnet) mit einer größeren Wahrscheinlichkeit verbunden ist als ein positiver Fehler.

Die Emissionsfaktoren stellen die größte Fehlerquelle, insbesondere bei NMHC, dar. Hier liegen Untersuchungen des TÜV Rheinland vor (s. Kap. 3.1.1.1), die jedoch nur Fahrzeuge der Baujahre 1986-1990 und nicht alle Verkehrssituationen umfassen. Beim Schwerverkehr (Lkw, Busse) basieren die Untersuchungen auf lediglich 34 verschiedenen Motoren, aus denen Emissionsfaktoren für ca. 300 verschiedene Fahrzeugschichten abgeleitet worden sind. Es ist daher anzunehmen, daß die

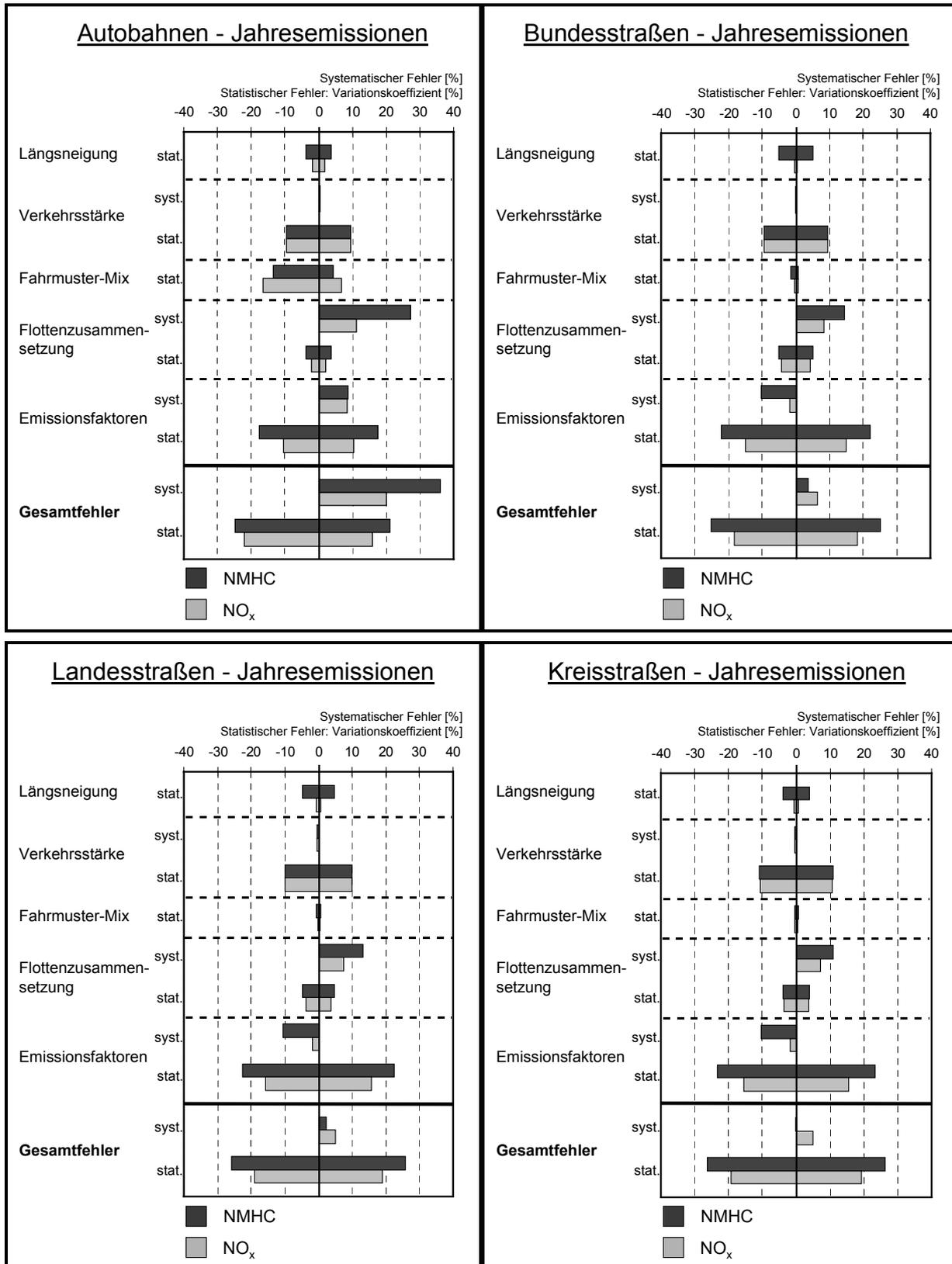


Abb. 7: Fehlerbandbreiten der Jahresemissionen auf Außerortsstraßenabschnitten in Baden-Württemberg 1994

tatsächlichen Schwankungsbreiten innerhalb der Fahrzeugschichten deutlich höher ausfallen als die bislang ermittelten.

Als weitere bedeutende Fehlerquelle müssen die nach Fahrzeugkategorien differenzierten Verkehrsstärkedaten aus den Bundesverkehrszählungen angesehen werden. Hier ist zu unterscheiden zwischen Zählfehlern (ca. 8 %), Hochrechnungsfehlern (ca. 4-6 %) und Interpolationsfehlern bei der Ermittlung der Jahresverkehrsstärken 1994 (ca. 3-4 %) (s. Kap. 3.1.2.1).

Auffällig sind die hohen systematischen Fehler, die bei den Eingangsgrößen Flottenzusammensetzung und Emissionsfaktoren zumindest teilweise quantifiziert werden konnten. Während bei den sonstigen Außerortsabschnitten die beiden Fehlergruppen unterschiedliche Vorzeichen aufweisen und sich somit gegenseitig kompensieren, liegt die systematische Abweichung auf den Autobahnabschnitten insgesamt bei ca. + 36 % (NMHC) bzw. bei ca. + 20 % (NO<sub>x</sub>), d.h. es kommt zu einer systematischen Unterschätzung der Emissionen bei Verwendung der gebräuchlichen Eingangsdatsätze.

### **3.2.2 Warm-Emissionen innerorts**

Im Gegensatz zum Außerortsverkehr liegen für den Innerortsbereich keine flächendeckenden abschnittsbezogenen Verkehrsstärkedaten vor. Auch Gesamtfahrleistungen auf Gemeindeebene sind nur für wenige Gemeinden verfügbar. Zur Ermittlung von flächendeckenden Innerortsfahrleistungen pro Gemeinde müssen daher in der Regel zusätzliche Infrastrukturdaten (z.B. Einwohnerzahl) zur Disaggregation von Gesamt-Innerortsfahrleistungen auf Bundes- bzw. Landesebene herangezogen werden. Die Ermittlung der Unsicherheiten räumlich höher aufgelöster Emissionsdaten (Rasterung) erfordert detaillierte Daten über Flächennutzungen mit zugeordneten Fahrleistungen, die derzeit noch nicht vorliegen.

In Abb. 8 sind die Ergebnisse der Fehlerbetrachtungen für Emissionen des innerörtlichen Straßenverkehrs mit warmem Motor auf Gemeindeebene in Baden-Württemberg 1994 dargestellt. Die Ergebnisse beziehen sich auf folgende Voraussetzungen:

- Längsneigungsklasse aller Innerortsstraßen 0-1 %,
- unbekannte Aufteilung der Fahrleistungen auf Innerorts-Straßenkategorien,
- keine gemeindebezogenen Informationen über Fahrmuster-Mix und Flottenzusammensetzung,
- Einwohnerzahlen pro Gemeinde sind fehlerfrei.

Die ermittelten statistischen Gesamtfehler liegen mit ca. 37 % bei NMHC und ca. 35 % bei NO<sub>x</sub> höher als die Fehler auf Außerortsabschnitten. Dazu kommt ein quantifizierter systematischer Fehler von ca. - 11 % bei NMHC und ca. - 8 % bei NO<sub>x</sub>. Die beiden Eingangsgrößen, welche die wesentlichen Beiträge zum Gesamtfehler liefern, sind zum einen die Fahrleistung und zum anderen die Emissionsfaktoren.

Während die Gesamt-Innerortsfahrleistung für alle Kfz (z.B. für die alten Bundesländer) noch relativ sicher bestimmt werden kann (Variationskoeffizient: ca. 11 %) und auch die Differenzierung der Fahrleistung nach Fahrzeugkategorien mit vergleichsweise geringen Fehlern von 3,8 % (NMHC) bzw. 11,9 % (NO<sub>x</sub>) behaftet ist, ist der Schritt der Disaggregation der Gesamtfahrleistungen auf Gemeindeebene über die Einwohnerzahl der Gemeinden mit Unsicherheiten von ca. 23 % behaftet (s. Kap. 3.1.2.2)].

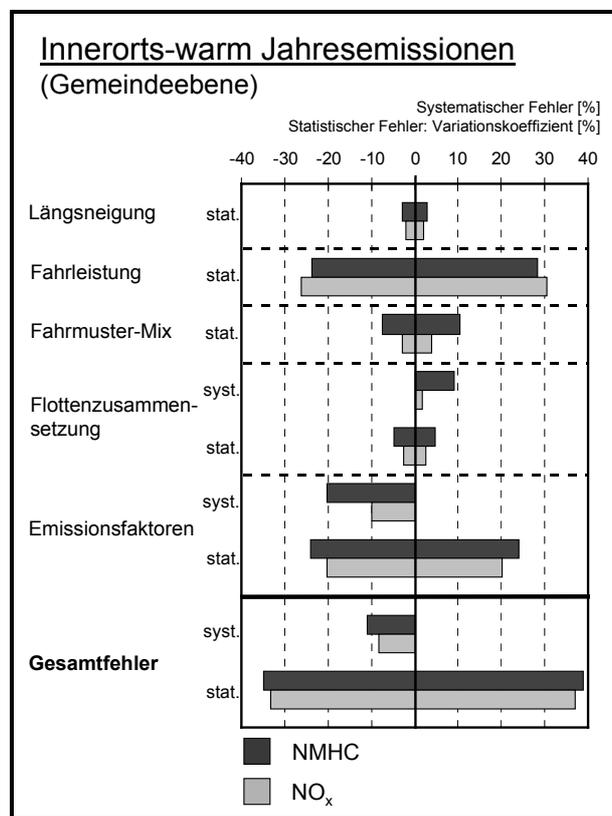


Abb. 8: Fehlerbandbreiten der Jahresemissionen innerorts warm auf Gemeindeebene in Baden-Württemberg 1994

Die Unsicherheiten der Emissionsfaktoren liegen etwas über denjenigen auf Außerortsabschnitten. Ansonsten gelten die bereits in den Kap. 3.1.1.1 und 3.2.1 gemachten qualitativen Aussagen über die Unsicherheiten der Emissionsfaktoren entsprechend auch für den Innerortsbereich.

### **3.2.3 Kaltstartemissionen**

Grundlage für die Fehlerbetrachtungen der Kaltstartemissionen ist ein Berechnungsmodell, in das mittlere Verteilungen für den kaltstartrelevanten Fahrmuster-Mix, die Flottenzusammensetzung, Standzeiten vor dem Start, Fahrtweiten, Außentemperaturen und den Tagesgang der Starthäufigkeiten [UBA 1995] einfließen. Die Anzahl der Starts pro Gemeinde werden aus Fahrleistungs- und Bevölkerungsdaten abgeleitet.

Eine sinnvolle Berechnung von Kaltstartemissionen ist derzeit aufgrund der Datenlage nur für Pkw mit Otto-Motor möglich. Zwar existieren auch für leichte Nutzfahrzeuge und Kleinbusse mit Otto-Motor Kaltstart-Emissionsfaktoren, jedoch liegen für diese Fahrzeugkategorie erforderliche Daten über die Anzahl der Starts, Standzeiten- und Fahrtweitenverteilung nicht vor.

Wie in Abb. 9 dargestellt, werden die Fehler der Kaltstartzuschläge im wesentlichen von den Einflußgrößen der Anzahl der Starts auf Gemeindeebene und den Kaltstart-Emissionsfaktoren geprägt. Fehlerbeiträge über 10 % liefern darüber hinaus die auf die Fahrleistung bezogene Fahrtenanzahl und die jährliche Temperaturverteilung (nur bei NMHC).

Ähnlich wie bei den Fahrleistungen zur Ermittlung der Innerorts-Emissionen mit warmem Motor liegen notwendige Informationen über die Anzahl der Startvorgänge nicht nach Gemeinden aufgelöst vor, so daß zunächst aus der Gesamtfahrleistung der Pkw (für die alten Bundesländer) und einer mittleren Fahrtenanzahl pro Gesamtfahrleistung (bzw. einer mittleren Fahrlänge) die Gesamtanzahl der Startvorgänge ermittelt wird. Entsprechend der Disaggregation der Innerortsfahrleistungen werden anschließend die Gesamtstarts anhand der Einwohnerzahlen auf die einzelnen Gemeinden verteilt.

Wie in Kap. 3.1.6 dargestellt, liefert der Berechnungsschritt der räumlichen Verteilung der Anzahl der Startvorgänge auf die Gemeinden mit + 26,0 % / - 20,6 den mit Abstand größten Beitrag zum Fehler der Eingangsgröße Anzahl der Starts. Die Fehler der auf die Fahrleistung bezogenen Anzahl der Fahrten bzw. die mittlere Fahrlänge (10,6 %) und der Ermittlung der Gesamtfahrleistungen (3,6 %) fallen vergleichsweise gering aus.

Die Auswirkungen der Verwendung einer mittleren Temperaturverteilung sind nur für NMHC (ca. 11 %) relevant, nicht jedoch für NO<sub>x</sub> (ca. 2 %). Bei den Betrachtungen der Schwankungsbreiten wurden sowohl regionale Unterschiede unterschiedlicher Klimazonen in Deutschland als auch Unterschiede zwischen Stadt- und Land- Klima berücksichtigt (s. Kap. 3.1.9).

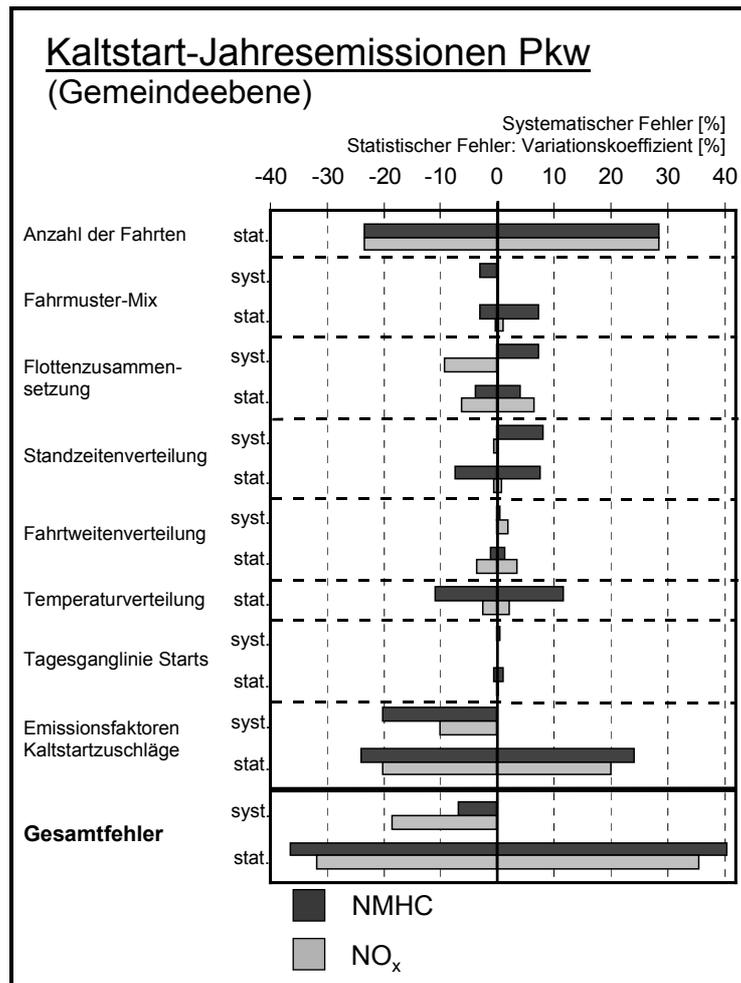


Abb. 9: Fehlerbandbreiten der Kaltstartzuschläge auf Gemeindeebene in Baden-Württemberg für Pkw 1994

Nach Einschätzung des TÜV Rheinland können für die Kaltstart-Emissionsfaktoren aufgrund der zu kleinen Datenbasis derzeit keine statistischen Fehlerbandbreiten angegeben werden [WIESNER 1998]. Da die Kaltstart-Emissionsfaktoren lediglich als Faktoren vorliegen, die mit den Warm-Emissionsfaktoren der entsprechenden Innerortsfahrmuster verknüpft werden, kann gefolgert werden, daß die Fehler der Kaltstart-Emissionsfaktoren mindestens so groß sind wie jene der Innerorts-Warm-Emissionsfaktoren. Somit wurden die in Kap. 3.1.1.1 dargestellten Fehler auf die Kaltstartzuschläge übertragen. Die tatsächlichen Fehlerbandbreiten liegen jedoch aus folgenden Gründen vermutlich deutlich höher:

- Die auf dem Prüfstand ermittelten Kaltstartfaktoren beruhen auf einer sehr kleinen Stichprobe (46 Fahrzeuge).
- Es wurde nur bei 3 Temperaturen gemessen (- 10 °C, 5 °C, 20 °C).
- Es wurde nur ein Fahrzyklus gefahren (FTP 75).

## **Kühlwein, Friedrich, Obermeier, Theloke**

- Für Starts mit Motortemperaturen im Bereich von 20 - 80 °C werden zusätzliche Kühlstartfaktoren benötigt.
- Kaltstartfaktoren in Kombination mit Längsneigungen > 0 % liegen nicht vor.

Die bisher quantifizierten statistischen Gesamtfehler liegen bei ca. 39 % für NMHC bzw. 33 % bei NO<sub>x</sub>. Systematische Abweichungen wurden aus den verfügbaren Daten mit ca. - 7 % für NMHC und ca. - 19 % für NO<sub>x</sub> ermittelt.

### **3.2.4 Verdampfungsemissionen**

Kohlenwasserstoff-Verdampfungsemissionen treten auf bei direktem Kontakt von Kraftstoff mit der Atmosphäre. Kritische Austrittsstellen am Fahrzeug sind dabei der Kraftstofftank mit Entlüftungssystem, die Schwimmerkammer des Vergasers, Undichtigkeiten am Kraftstoffsystem sowie die Belüftungsöffnung am Aktivkohlefilter (AKF - soweit vorhanden). Je nach Betriebszustand des Fahrzeugs werden drei Verdampfungsarten unterschieden:

- Tankatmungsemissionen beim abgestellten Fahrzeug durch Tankerwärmung aufgrund täglicher Temperaturschwankungen (Diurnal Losses)
- Heiß- bzw. Warm-Abstellemissionen durch Erwärmung des Kraftstoffs im Motorraum unmittelbar nach einem Abstellvorgang (Hot Soak)
- Emissionen während der Fahrt (Running Losses)

Für die Emissionsmodellierung brauchbare Emissionsfaktoren liegen derzeit nur für Pkw und (mit Abstrichen) für leichte Nutzfahrzeuge und Kleinbusse mit Otto-Motoren vor. Für Motorräder und Mofas sind keine verlässlichen Emissionsfaktoren verfügbar, obwohl Stichprobenmessungen darauf hindeuten, daß Motorrad-Verdampfungsemissionen bis zu zehn mal so hoch sein können wie diejenigen von Pkw [BACH 1993]. Auch für Dieselfahrzeuge liegen keine gesicherten Emissionsfaktoren vor, so daß für diese Fahrzeugkategorien Emissionsberechnungen und somit auch Fehlerabschätzungen noch nicht durchgeführt werden können.

#### **3.2.4.1 Tankatmung**

In das Modell zur Berechnung der HC-Tankatmungsverluste gehen als Eingangsgrößen die Anzahl der zugelassenen und vorübergehend abgemeldeten Otto-Pkw mit bzw. ohne Aktivkohlefilter (AKF), der Anteil der abgestellten Fahrzeuge, die räumlich und jahreszeitlich variierende Qualität

des Kraftstoffs, mittlere monatliche Tagestemperaturen, mittlere monatliche Tagestemperaturschwankungen und Tankatmungs-Emissionsfaktoren ein.

Zur Ermittlung der Anzahl der abgestellten Fahrzeuge auf Gemeindeebene kann auf die Bestandsstatistiken der Zulassungsstellen zurückgegriffen werden, die als fehlerfrei angesehen werden können. Maßgeblich für die Berechnung der Tankatmungsemissionen sind die im Zeitraum ansteigender Lufttemperaturen (vormittags und mittags) abgestellten Fahrzeuge. Zusätzlich zu den Bestandsdaten müssen daher die morgendlichen Fahrzeugströme der Berufspendler berücksichtigt werden, die entsprechenden Statistiken, z.B. der Volkszählung 1987, entnommen werden können. Der Anteil der in Garagen abgestellten Fahrzeuge trägt aufgrund der deutlich geringeren täglichen Temperaturschwankungen nicht oder nur wenig zu den gesamten Tankatmungsemissionen bei. Unsicherheiten von Daten zu Pendlerströmen und zu Anteilen der in Garagen abgestellten Fahrzeuge können derzeit aufgrund der schlechten Datensituation nicht ermittelt werden.

Die Abb. 10 zeigt, daß die quantifizierbaren Gesamtfehler nahezu ausschließlich von den Fehlern der beiden Eingangsgrößen Temperaturschwankungen und Emissionsfaktoren verursacht werden.

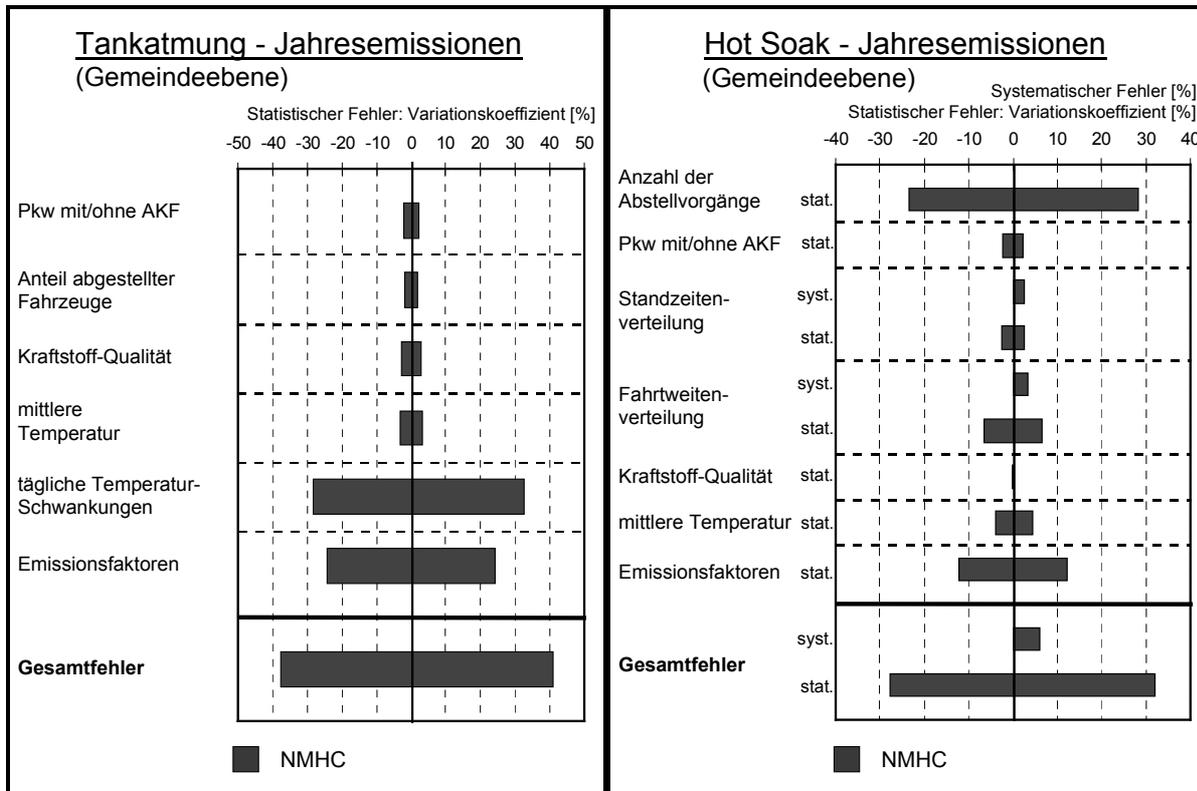


Abb. 10: Fehlerbandbreiten der jährlichen Tankatmungs- und Hot Soak- (Heiß- / Warmabstell-) Verluste in Baden-Württemberg 1994

Bei den täglichen Temperaturschwankungen wurde ein für die alten Bundesländer einwohnergewichteter typischer Mittelwert als Eingangsgröße für das Berechnungsmodell ( $\Delta T = 7 \text{ }^\circ\text{C}$ ) verwendet. Dieses Vorgehen entspricht der Methodik des UBA-Handbuchs [UBA 1995], wo ebenfalls nur ein mittlerer Wert für die täglichen Temperaturschwankungen zur Verfügung steht. Es zeigt sich eine hohe Sensitivität der Tankatmungsemissionen gegenüber dem Parameter  $\Delta T$ . Zur Berechnung der Tankatmungsemissionen auf Gemeindeebene scheint daher die Verfügbarkeit regional aufgelöster und nach Einwohnerzahlen differenzierter Temperaturdaten mit entsprechend aufgelösten Emissionsfaktoren geboten.

Für die Tankatmungsemissionsfaktoren fallen die Variationskoeffizienten der Mittelwerte für die Otto-Pkw mit AKF mit ca. 32 % etwa doppelt so hoch aus wie bei den Pkw ohne AKF (ca. 17%) (s. Kap. 3.1.1.2). Die relativen statistischen Schwankungen der Fahrzeuge untereinander sind dabei weitgehend unabhängig von der Temperaturerhöhung und damit vom absoluten Emissionsniveau. Für das Bezugsjahr 1994 ergibt sich somit bei etwa gleichen Anteilen von Fahrzeugen mit und ohne AKF ein mittlerer Variationskoeffizient von 24,4 %. Für nachfolgende Jahre mit zunehmendem Anteil der Pkw mit AKF ist mit einer entsprechenden Zunahme des relativen Fehlers zu rechnen.

Eine Abschätzung des Einflusses von Luftdruckschwankungen auf die Tankatmungsemissionen hat ergeben, daß dieser vernachlässigbar ist. Der Einfluß des Tankfüllgrads auf die Verdampfungsemissionen kann derzeit aufgrund fehlender Daten nicht quantifiziert werden. Weitere Unsicherheiten bestehen bei der Anzahl von längerfristig abgemeldeten Fahrzeugen, die ebenfalls Tankatmungsemissionen verursachen, aber nicht mit den Statistiken des Kraftfahrt-Bundesamtes erfaßt werden.

Die ermittelten Variationskoeffizienten für jährliche Tankatmungsemissionen auf Gemeindeebene liegen insgesamt bei ca. 39 %.

#### **3.2.4.2 Heiß- und Warmabstellen (Hot Soak)**

Die Verdampfungsemissionen eines Otto-Pkws unmittelbar nach einer Fahrt werden im wesentlichen verursacht durch eine Aufheizung des im Motorraum in Vergaser und Kraftstoffleitungen befindlichen Kraftstoffs. Zur Berücksichtigung des Einflusses der Motortemperatur wird als Hilfsgröße die Fahrtweite des Fahrzeugs vor dem Abstellen herangezogen. Man unterscheidet zwischen dem Abstellen mit heißem Motor (Betriebstemperatur bei Fahrten  $> 10 \text{ km}$ ) und dem sog. Warmabstellen, bei dem die Betriebstemperatur bei entsprechend kürzeren Fahrtstrecken noch

nicht erreicht ist. Ähnlich wie bei der Modellierung der Kaltstartemissionen fließen mittlere Fahrweiten- und Standzeitenverteilungen in die Emissionsberechnung ein, deren Fehlerauswirkungen auf die Gesamtemissionen jedoch als gering eingestuft werden können, wie Abb. 10 zeigt.

Als maßgebliche Größe für die Gesamtunsicherheiten der Abstellverluste ist mit einem VK von ca. 26 % die Anzahl der Abstellvorgänge pro Gemeinde anzusehen. Die Fehlerermittlung erfolgte hier äquivalent zu der Anzahl der Startvorgänge als Eingangsgröße bei der Modellierung der Kaltstartemissionen (s. Kap. 3.1.6), wobei die Bestimmung der Innerortsfahrleistungen pro Gemeinde den Hauptunsicherheitsfaktor darstellt.

Im Vergleich zu den Tankatmungsemissionen fallen die Unsicherheiten der Emissionsfaktoren bei den Abstellverlusten mit ca. 12 % deutlich geringer aus. Allerdings ist zu berücksichtigen, daß sich diese Fehlerabschätzung nur auf die Emissionsfaktoren Heißabstellen beziehen. Die derzeit verfügbaren Daten über Emissionsfaktoren beim Abstellen mit warmem Motor, insbesondere bei Fahrzeugen mit AKF, lassen keine detaillierten Fehlerbestimmungen zu.

Für den Gesamtfehler der Heiß- / Warmabstellverluste auf Gemeindeebene ergibt sich aus den derzeit vorliegenden Daten ein VK von ca. 30 %.

### **3.2.4.3 Running Losses**

Über die Verdampfungsemissionen von Otto-Pkw während dem Fahrbetrieb, die aufgrund der Aufheizung des Kraftstofftanks und des Kraftstoffleitungssystems entstehen, liegen für die alten Bundesländer Abschätzungen für das Bezugsjahr 1990 vor [MAY 1993]. Grundlage dieser Abschätzungen ist eine Literaturstudie, die sich im wesentlichen auf detaillierte Emissionsfaktoren aus Kalifornien und einzelne Messungen europäischer Fahrzeuge stützt. Die Autoren schätzen die Running Losses insgesamt auf ca. 50.000 - 70.000 t/a. Nimmt man als Mittelwert 60.000 t/a für 1990 an, so ergibt sich unter Berücksichtigung der Zunahme der Pkw-Fahrleistungen und der Verschiebung der Anteile von Otto-Pkw mit und ohne AKF für das Bezugsjahr 1994 eine Gesamtemission von ca. 47.000 t für die alten Bundesländern. Eine Differenzierung nach Anzahl der Einwohner führt zu ca. 7500 t/a für Baden-Württemberg.

Unter Zugrundelegung der in [MAY 1993] angegebenen Schwankungsbreite ergibt sich ein Variationskoeffizient von ca. 20 %. Dies entspricht in etwa den statistischen Schwankungen der beiden anderen Verdampfungsquellen Tankatmung und Heißabstellen bei großräumiger Betrachtung. Zusätzliche Unsicherheiten der räumlichen Disaggregation auf Gemeindeebene können derzeit auf-

grund der schlechten Datensituation nicht quantifiziert werden. Die geschätzte Unsicherheitsbandbreite von 20 % kann als untere Grenze angesehen werden. Aufgrund der mangelhaften Datensituation bei den Running-Losses-Emissionsfaktoren für europäische Fahrzeuge muß im Vergleich zu Tankatmung und Heißabstellen von deutlich größeren Fehlern ausgegangen werden.

### **3.3 Gesamtfehler Jahresemissionen Baden-Württemberg 1994**

Die im Kap. 3.2 gewonnenen Erkenntnisse über die Fehler der Emissionsmodellierung für einzelne Streckenabschnitte bzw. Gemeinden werden zu einer Gesamtfehlerabschätzung der Jahresemissionen 1994 für Baden-Württemberg zusammengefaßt. Dabei ist zu beachten, daß für die Eingangsgrößen, die regionale Schwankungen aufweisen (Flottenzusammensetzung, Fahrmuster-Mix, Verkehrsstärke, Längsneigung, Temperaturdaten usw.), die Fehler bei räumlich hoch aufgelöster Betrachtung größer sind als bei einer großräumigen Betrachtung, wie z.B. für Gesamt-Baden-Württemberg. Im Falle großräumiger Betrachtung fließen mittlere Werte für die genannten Eingangsgrößen in das Berechnungsmodell ein. Für die Fehlerermittlung sind somit nicht mehr die Fehler der Einzelwerte sondern die Fehler der Mittelwerte der Eingangsgrößen maßgebend. Die zur Ermittlung der Fehler der Mittelwerte notwendigen Daten liegen allerdings entweder nicht vor oder erfordern einen sehr hohen Rechenaufwand. Es wird daher vereinfachend von einem Stichprobenumfang von  $n=10$  für alle Eingangsdaten ausgegangen. Der statistische Fehler des Mittelwerts ergibt sich somit aus der Division der Fehler der Einzelwerte durch 3,2 (Wurzel aus 10 - s. Kap. 2.2.1). Die Fehler der nicht (oder nur gering) regional schwankenden Eingangsgrößen (z.B. Emissionsfaktoren) sind unabhängig von der räumlichen Auflösung der Emissionsmodellierung. Ebenso bleiben die quantifizierten systematischen Fehler unverändert.

Tab. 23: Relative Gesamtfehler (systematische Fehler und Variationskoeffizienten) für Jahresemissionen des Straßenverkehrs in Baden-Württemberg 1994

|                           | NO <sub>x</sub>    | NMHC                |
|---------------------------|--------------------|---------------------|
| Jahresemissionen [t]      | 145.700            | 100.800             |
| systematische Fehler      | + 5,0 %            | -0,2 %              |
| statistische Fehler (VK): |                    |                     |
| untere Grenze:            | + 7,8% / - 7,9 %   | + 11,0 % / - 10,4 % |
| obere Grenze:             | +17,2 % / - 17,5 % | + 23,9 % / - 23,8 % |

Bei der Zusammenfassung der Emissionen aus den verschiedenen Quellgruppen ist teilweise von erheblichen Korrelationen zwischen den einzelnen Quellgruppen auszugehen (z.B. Innerorts- und Kaltstart-Emissionen). Zur exakten Berechnung des Gesamtfehlers müßten daher die Korrelationen zwischen allen Eingangsgrößen in Form von Kovarianzen ermittelt werden, was aber aufgrund der lückenhaften Datenbasis nicht möglich ist. Es können daher zunächst nur Fehlerbereiche angegeben werden, die zwischen dem mittleren Gesamtfehler (Fehlerfortpflanzung) als unterer Grenze und dem maximalen Gesamtfehler als oberer Grenze liegen (s. Kap. 2.3). In der Tabelle 23 sind die Ergebnisse dargestellt.

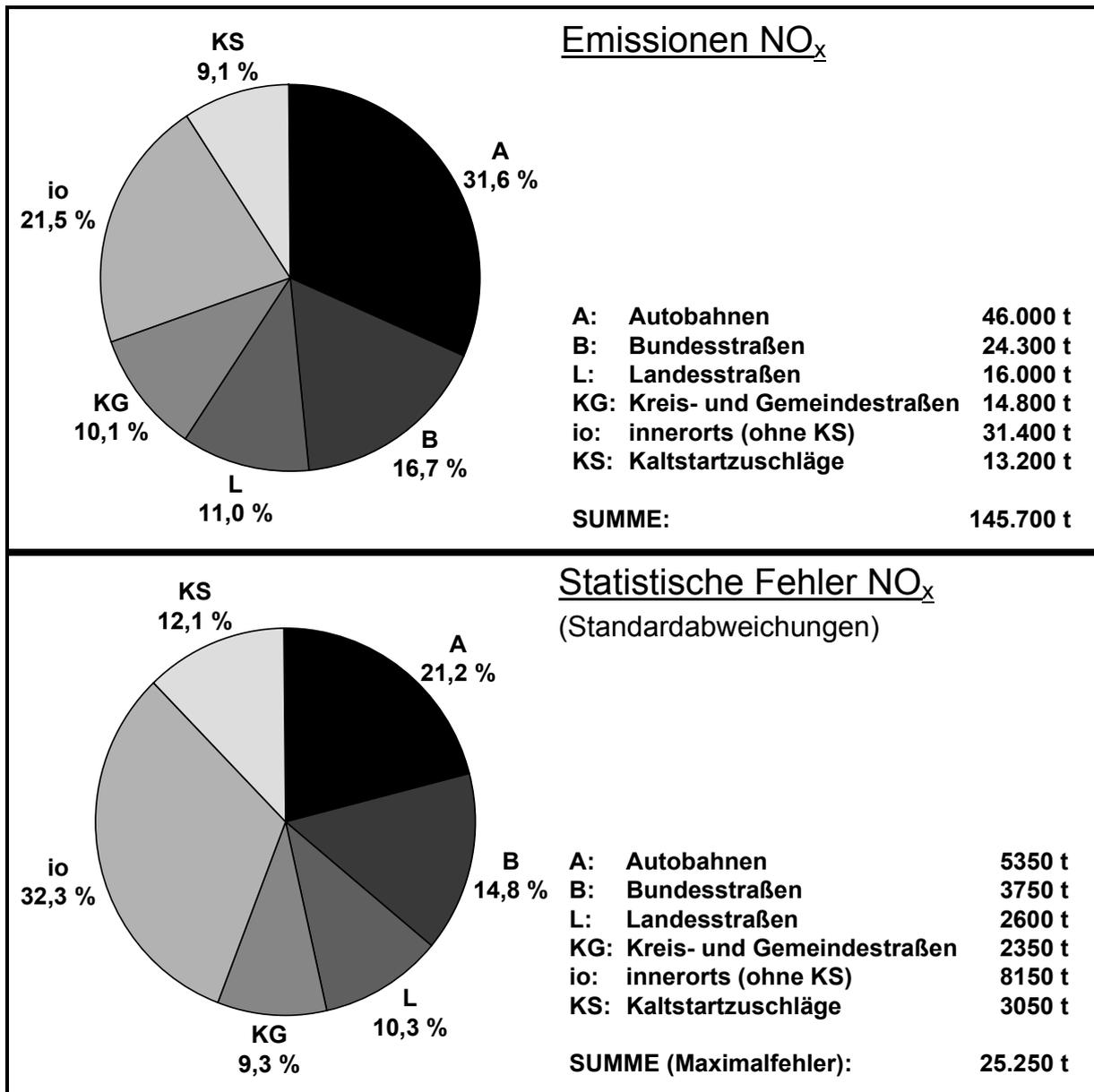


Abb. 11: NO<sub>x</sub>-Emissionen und statistische Fehler einzelner Quellgruppen Straßenverkehr für die Gesamtemissionen Baden-Württemberg 1994

Da von hochgradigen Korrelationen der Emissionen aus den verschiedenen Quellgruppen ausgegangen werden muß, ist der maximale Gesamtfehler als realistischere Fehlerabschätzung anzusehen. Als Schätzwert läßt sich für die NO<sub>x</sub>-Emissionen ein mittlerer VK von ca. 14 %, für die NMHC-Emissionen ein mittlerer VK von ca. 19 % annehmen. Darüberhinaus werden nach derzeitigem Kenntnisstand die NO<sub>x</sub>-Emissionen für Gesamt-Baden-Württemberg systematisch um ca. 5 % unterschätzt. Bei den NMHC-Emissionen liegen insgesamt keine systematischen Fehler vor.

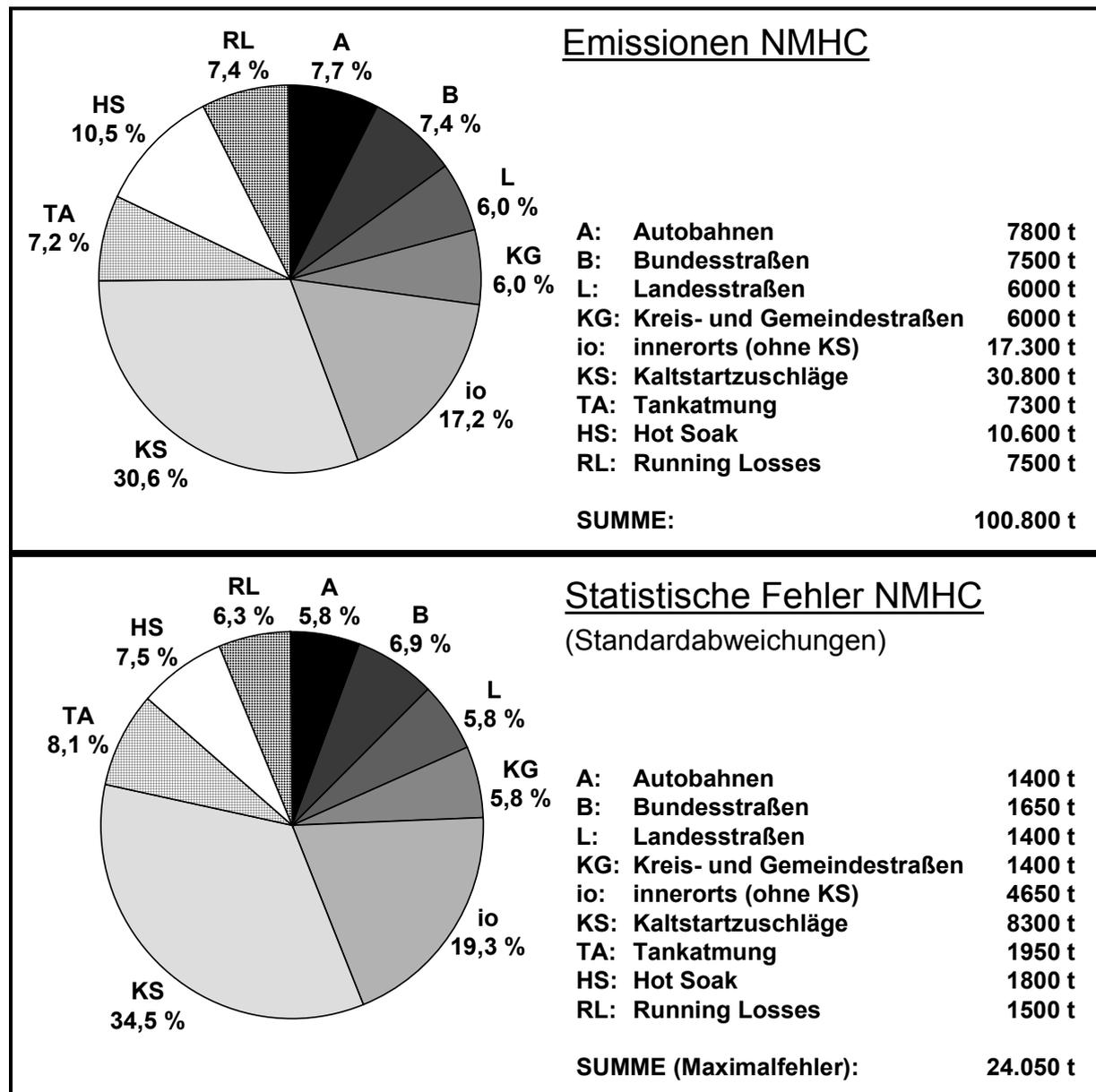


Abb. 12: NMHC-Emissionen und statistische Fehler einzelner Quellgruppen Straßenverkehr für die Gesamtemissionen Baden-Württemberg 1994

In den Abb. 11 und 12 sind jeweils für  $\text{NO}_x$  und NMHC die Beiträge der einzelnen Quellgruppen zu den Gesamtemissionen und zum maximalen Gesamtfehler im Vergleich dargestellt. Es zeigt sich, daß bei den Stickoxiden die Innerorts-Emissionen mit warmem Motor und die Autobahn-Emissionen am stärksten zu den Gesamtunsicherheiten beitragen. Im Vergleich zu den Anteilen an der Gesamtemission fallen bei den Unsicherheiten die Innerorts-Emissionen deutlich stärker ins Gewicht, während die Autobahnemissionen an Bedeutung verlieren. Bei den Kohlenwasserstoffen sind die Anteile an den Emissionen mit den Anteilen an den statistischen Unsicherheiten weitgehend identisch. Es sind lediglich leichte Verschiebungen hin zu etwas größerem Einfluß der Kaltstart- und Innerorts-Emissionen feststellbar. Für die Quellbereiche außerorts : innerorts+KS : Verdampfung ergeben sich für Emission und Unsicherheiten grob die Anteile 1 : 2 : 1, wobei die Kaltstart-Emissionen mit 34,5 % den von allen Quellbereichen mit Abstand größten Beitrag zur Gesamtunsicherheit leisten.

### **3.4 Unsicherheiten bei räumlicher Verteilung der Emissionen**

Unsicherheiten bei der räumlichen Verteilung entstehen bei der Verschneidung von linienbezogenen Emissionsdaten (außerorts) mit Rasterelementen, wenn lediglich die Koordinaten der Netzknoten und die Gesamtlänge des Straßenabschnitts, nicht aber der tatsächliche geographische Verlauf des Abschnitts zwischen den Netzknoten aus der entsprechenden Straßendatenbank bekannt sind. Die Emissionsmodellierung für den Straßenabschnitt erfolgt in diesem Fall unter der Annahme eines direkten Straßenverlaufs zwischen den begrenzenden Netzknoten. Die auf den somit verkürzten Abschnitt bezogenen Emissionsdaten werden anschließend auf die reale Abschnittslänge hochgerechnet.

Die Fehler, die durch Unschärfen bei der Zuordnung von Emissionsdaten zu Rasterfeldern entstehen, können durch Vergleiche von groben Straßennetz-Daten (nur Koordinaten der Netzkoordinaten bekannt) mit hochaufgelösten Straßennetz-Daten ermittelt werden. Ein solch hochaufgelöstes Straßennetz liegt z.B. für Rheinland-Pfalz vor, wo die Abstände der Koordinatenpunkte je nach Kurvigkeit des Straßenabschnitts im Bereich zwischen 50 und 300 m liegen [LA-RP 1997]. Die Verschneidung der modellierten Emissionsdaten auf der Grundlage dieses hochaufgelösten Straßennetzes führt zu einer quasi fehlerfreien räumlichen Verteilung der Emissionen. Vergleicht man die Emissionsdaten jedes einzelnen Rasterelements eines herkömmlichen, auf dem groben Straßennetz beruhenden Emissionskatasters mit den entsprechenden Rasterelementen des quasi fehlerfreien Katasters, so erhält man entsprechend der Anzahl der Rasterelemente Wertepaare mit i.d.R. sich unterscheidenden Emissionsdaten, die statistisch ausgewertet können.

Tabelle 24 zeigt eine Übersicht über die bei den Berechnungen verwendeten Rastergrößen, die Gesamtanzahl der jeweiligen Rasterelemente, die Anzahl der Rasterelemente denen im herkömmlichen Emissionskataster fälschlicherweise Emissionen zugeordnet werden, obwohl sie gemäß dem hochaufgelösten Straßennetz nicht von Straßenabschnitten geschnitten werden, sowie umgekehrt die Anzahl der Rasterelemente denen fälschlicherweise keine Emissionen zugeordnet werden, obwohl sie von Straßenabschnitten geschnitten werden. Bei den Auswertungen wurden nur die Rasterelemente berücksichtigt, die vollständig im Untersuchungsgebiet (Rheinland-Pfalz) lagen.

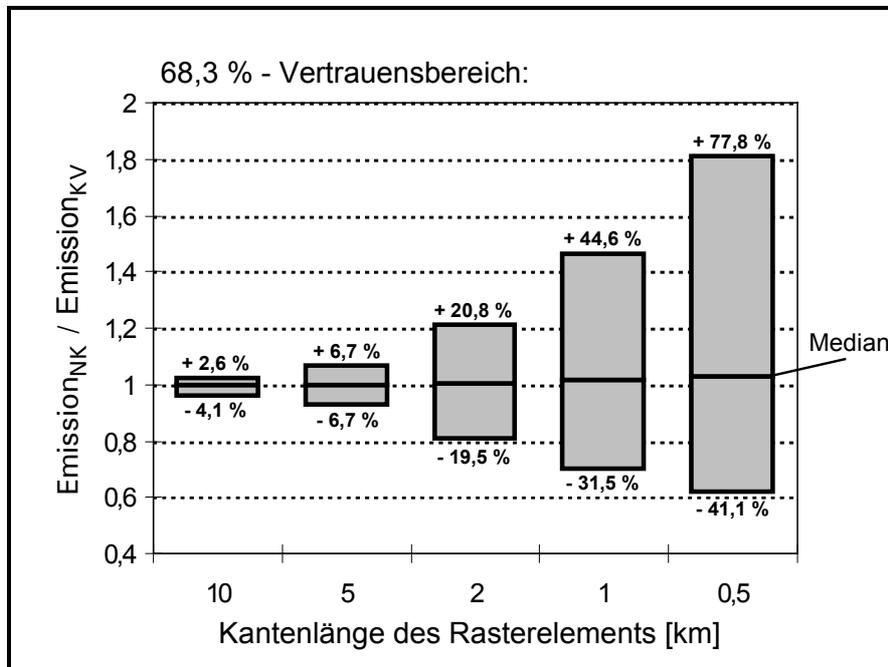
Tab. 24: Übersicht über die ausgewerteten Rasterelemente unterschiedlich feiner Rasternetze

| Kantenlänge Rasterelement [km] | Anzahl der Rasterelemente |  |        |      |         |   |        |      |        |
|--------------------------------|---------------------------|--|--------|------|---------|---|--------|------|--------|
|                                | gesamt                    | davon <b>mit</b> Emissionen im herkömmlichen Kataster (grobes Außerorts-Straßennetz) |        |      |         | davon <b>ohne</b> Emissionen im herkömmlichen Kataster (grobes Außerorts-Straßennetz) |        |      |        |
|                                |                           | richtig  | falsch |      | richtig | falsch  |        |      |        |
| 10                             | 147                       | 147  | 100 %  | 0    |         | 0   |        | 0    |        |
| 5                              | 685                       | 683  | 99,7 % | 0    |         | 2   | 0,3 %  | 0    |        |
| 2                              | 4669                      | 4203   | 90,0 % | 40   | 0,9 %   | 263   | 5,6 %  | 163  | 3,5 %  |
| 1                              | 19242                     | 12112  | 62,9 % | 801  | 4,2 %   | 4579  | 23,8 % | 1750 | 9,1 %  |
| 0,5                            | 78150                     | 26576  | 34,0 % | 5627 | 7,2 %   | 36852   | 47,2 % | 9095 | 11,6 % |

Der Vergleich der unterschiedlich feinen Rasternetze zeigt, daß bereits bei einer Kantenlänge von 2 km 4,4 % aller Rasterelemente fälschlicherweise Emissionen bzw. fälschlicherweise keine Emissionen zugeordnet werden. Bei Kantenlängen von 1 km bzw. 0,5 km steigt dieser Anteil von Fehlzuordnungen auf 13,3 % bzw. 18,8 %.

Zur weiteren Auswertung wurden bei den Rasterelementen, denen korrekterweise Emissionen zugeordnet wurden, pro Rasterelement die Quotienten aus Emission in Normalauflösung (grobes Straßennetz mit Netzknoten) und Emission in Feinauflösung (hochaufgelöstes Straßennetz mit Kurvenverlauf) gebildet und statistischen Auswertungen unterzogen. Die Ergebnisse in Abb. 13 zeigen gute Übereinstimmungen zwischen normal- und feinauflöster Emission bei Rastergrößen von 10 km und 5 km. 2-km-Raster müssen bereits als kritisch angesehen werden, während bei Rastergrößen von 1 km bzw. 0,5 km die dargestellten Fehler der räumlichen Auflösung die Fehler der restlichen Eingangsparameter zur Emissionsmodellierung (s. Kap. 3.2) deutlich übertreffen. Eine

Rasterung im Größenbereich unter 2 km ist bei unbekanntem Straßenverlauf zwischen den Netzknoten somit mit erheblichen Unsicherheiten behaftet.



$Emission_{NK}$ : Berechnete Emission auf Basis der Netzknoten-Straßendaten

$Emission_{KV}$ : Berechnete Emission auf Basis hochaufgelöster Straßendaten mit Kurvenverlauf

Abb. 13: Unsicherheiten der räumlichen Verteilung von NOx-Emissionen des außerörtlichen Straßenverkehrs bei unbekanntem Verlauf der Straßenabschnitte zwischen den Netzknoten (Rheinland-Pfalz 1995)

### 3.5 Unsicherheiten der zeitlichen Auflösung der Emissionen

Die wesentliche Fehlerquelle bei der zeitlichen Disaggregation von Emissionsdaten für den Straßenverkehr liegt im unbekanntem zeitlichen Verlauf der Verkehrsstärke pro Straßenabschnitt. Zur Modellierung zeitlich hochaufgelöster Emissionsdaten werden mittlere Jahres-, Wochen- und Tagesganglinien pro Straßenkategorie auf die zu untersuchenden Straßenabschnitte übertragen, obwohl die Unterschiede zwischen den einzelnen Abschnitten beträchtlich sein können.

Zeitlich hochaufgelöste Verkehrsstärkedaten (Stundenintervalle) liegen aus Verkehrszählungen mit automatischen Dauerzählstellen vor. Aus Vergleichen der Anteile der stündlichen an den jährli-

chen Verkehrsstärken zu bestimmten Stunden lassen sich Schwankungsbreiten zwischen den Streckenabschnitten gleicher Straßenkategorie ableiten.

Die Abb. 14 zeigt beispielhaft die mittleren Anteile, Standardabweichungen und Variationskoeffizienten von 21 mit Dauerzählstellen ausgestatteten Autobahnabschnitten in Baden-Württemberg im Tagesverlauf für Mittwoch, den 20.4.1994. Auffällig sind die starken Schwankungen des relativen Fehlers mit dem Tagesgang. Je nach Tageszeit liegen die Variationskoeffizienten zwischen ca. 10 und 45 % (Pkw) bzw. 20 und 45 % (Lkw). Während bei den Lkw-ähnlichen Fahrzeugen die größten relativen Abweichungen in den verkehrsarmen Nachtstunden liegen, tritt bei den Pkw-ähnlichen Fahrzeugen eine zusätzliche Spitze in den frühen Morgenstunden auf. Hier machen sich Unterschiede bei der Streckencharakteristik (überwiegend Nah- oder Fernverkehr) bemerkbar.

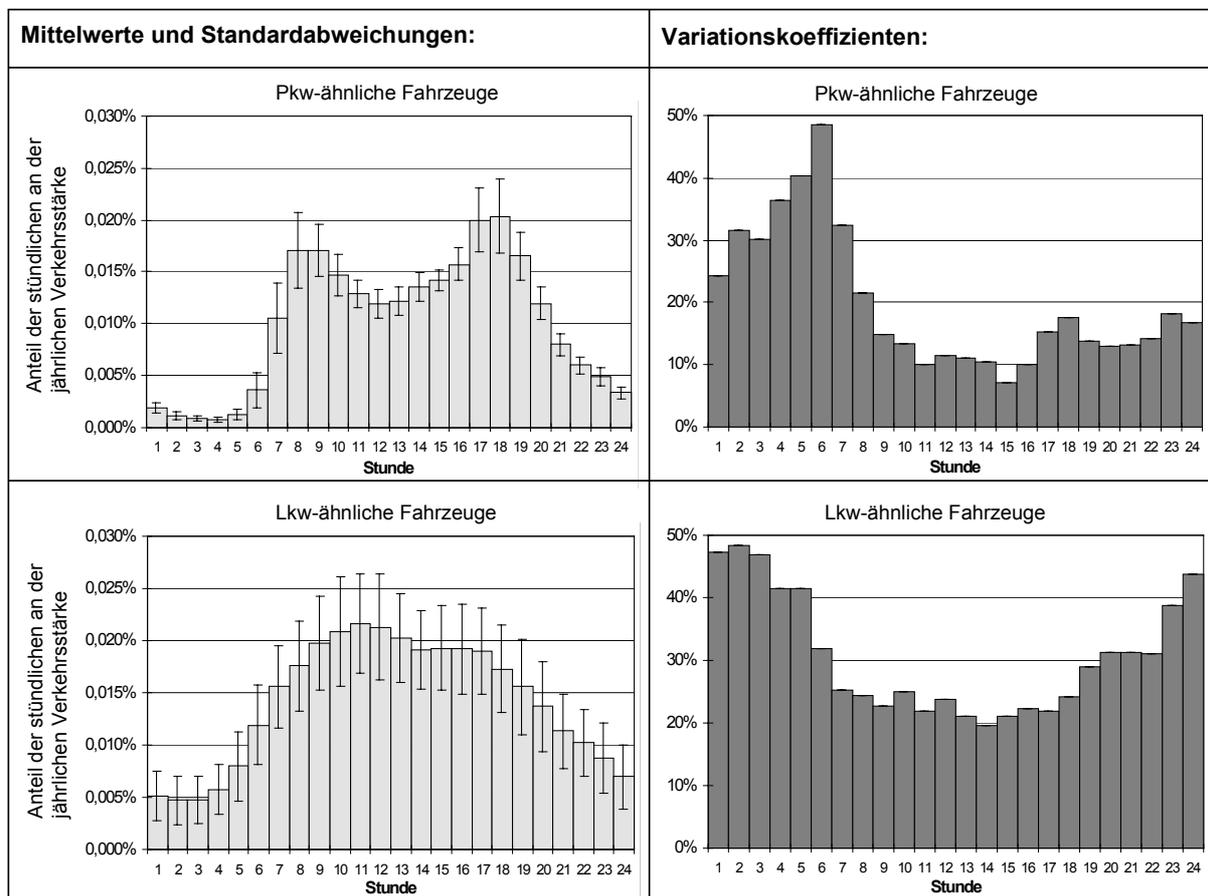


Abb. 14: Stündliche Verkehrsstärkeanteile an der jährlichen Gesamtverkehrsstärke, Standardabweichungen und Variationskoeffizienten von 21 Autobahnabschnitten in Baden-Württemberg am Mittwoch, 20.4.1994

Die tageszeitlichen Schwankungen der Variationskoeffizienten lassen sich grob in zwei Bereiche einteilen: 1. spätmorgens bis abends und 2. nachts bis frühmorgens. Neben den Schwankungen im Tagesgang treten signifikante Unterschiede zwischen den Wochentagen (Montag-Freitag, Samstag, Sonntag) auf. Diese sind für die Straßenkategorien Autobahn, Bundesstraße und Landesstraße, abgeleitet aus den für Baden-Württemberg zur Verfügung stehenden Daten aus Dauerzählstellen 1994, zusammenfassend in Tabelle 25 dargestellt.

Generell ist eine Zunahme der Variationskoeffizienten mit abnehmender Verkehrsstärke festzustellen. So ist ein Anstieg mit abnehmender Ordnung der Straßenkategorie (Autobahn → Bundesstraße → Landesstraße) zu verzeichnen. Am Wochenende treten größere Abweichungen als an Werktagen auf. Eine Ausnahme stellen dabei die Pkw während der Nachtstunden dar, wo die Variationskoeffizienten am Wochenende unverändert bleiben bzw. sogar abnehmen. Bei den Lkw-ähnlichen Fahrzeugen treten bei allen untersuchten Fällen im Vergleich zu den Pkw-ähnlichen Fahrzeugen größere Schwankungsbreiten auf.

Tab. 25: Fehlerbandbreiten der stündlichen Auflösung von jährlichen Verkehrsstärken für unterschiedliche Straßenkategorien (außerorts), Wochentage und Tageszeiten

| Straßenkategorie | Pkw/Lkw | Tag/Nacht <sup>1)</sup> | Variationskoeffizienten [%] |         |         |
|------------------|---------|-------------------------|-----------------------------|---------|---------|
|                  |         |                         | Montag -<br>Freitag         | Samstag | Sonntag |
| Autobahn         | Pkw     | Tag                     | 10-15                       | 10-20   | 20-30   |
|                  |         | Nacht                   | 20-45                       | 15-25   | 20-30   |
|                  | Lkw     | Tag                     | 20-30                       | 30-40   | 30-70   |
|                  |         | Nacht                   | 30-45                       | 35-55   | 45-70   |
| Bundesstraße     | Pkw     | Tag                     | 10-15                       | 10-20   | 20-30   |
|                  |         | Nacht                   | 25-50                       | 20-35   | 25-50   |
|                  | Lkw     | Tag                     | 15-25                       | 25-40   | 45-60   |
|                  |         | Nacht                   | 35-70                       | 45-75   | 55-90   |
| Landesstraße     | Pkw     | Tag                     | 10-25                       | 10-35   | 30-50   |
|                  |         | Nacht                   | 25-60                       | 30-45   | 20-45   |
|                  | Lkw     | Tag                     | 30-40                       | 35-65   | 65-90   |
|                  |         | Nacht                   | 50-95                       | 60-100  | 70-100  |

- 1) Tag: spätmorgens bis abends  
 Nacht: nachts bis frühmorgens

Zusätzliche Fehler bei der zeitlichen Differenzierung von Emissionsdaten ergeben sich aufgrund zeitlicher Schwankungen der Parameter Fahrmuster-Mix bzw. Geschwindigkeitsverteilung und Flottenzusammensetzung.

Hinsichtlich der Geschwindigkeitsverteilung ergibt sich die Schwierigkeit, daß mit den derzeit verfügbaren Daten und Methoden keine genauen Aussagen über die Geschwindigkeitsverteilung auf einem bestimmten Abschnitt zu einer gegebenen Stunde gemacht werden können. Anhaltspunkte über zeitliche Variationen der Geschwindigkeitsverteilungen auf Autobahnen finden sich in [PALM 1994a], wo differenziert nach unterschiedlichen Streckencharakteristika (Tempolimit, Längsneigung) Fahrleistungsanteile für jeweils vier typische Verkehrssituationen (frei, teilgebunden, gebunden, Stau) im Jahresmittel beschrieben werden. Die zeitliche Differenzierung dieser Daten ist aber nicht hoch genug, um Fehlerabschätzungen stündlicher Schwankungen ermitteln zu können.

Von besonderem Interesse bei stündlichen Emissionsdaten ist das Auftreten des Fahrmusters „Stau“. Die Stauvorhersage wirft jedoch eine Reihe von bislang ungeklärten Problemen auf. Derzeit gibt es einen von [PALM 1994a] angegebenen Wert für den Stauanteil an der Jahresfahrleistung, welcher auf Schätzungen und Abgleichen mit den Staumeldungen der Verkehrspolizei beruht. Um jedoch Stausituationen für eine gegebene Stunde vorhersagen zu können, müßte ein Vorhersagemodell:

- die Stauwirkung von zufälligen Ereignissen wie z. B. Unfällen,
- den Einfluß von temporären Störungen wie z. B. Baustellen,
- die Staulänge und -dauer und
- die Änderung der Verkehrsstärke im Stauzustand gegenüber der freien Fahrt

quantitativ beschreiben. Wegen der Komplexität der zu lösenden Fragestellung ist z. Z. nicht absehbar, ob und wann ein Modell zur Stauvorhersage verfügbar sein wird [JOHN 1997b].

Auch bei der Flottenzusammensetzung ergeben sich bei stündlicher Auflösung Schwankungen, die über diejenigen bei Jahresemissionen liegen (z.B. Wochenend-, Feierabend-, Urlaubsverkehr). Die Datensituation ist auch hier derzeit nicht ausreichend, um zeitlich hochaufgelöste Schwankungen von Flottenzusammensetzungen zu quantifizieren.

### 3.6 Zusammenfassung Straßenverkehr

Die durchgeführten statistischen Fehleranalysen haben für die jährlichen Abgasemissionen mit warmem Motor im Bezugsjahr 1994 im Außerortsbereich auf einzelnen Streckenabschnitten Variationskoeffizienten (68,3 % - Vertrauensbereich) zwischen 21 und 26 % bei NMHC und zwischen 16 und 22 % bei NO<sub>x</sub> ergeben. Daneben konnten bei den Eingangsdaten Abgas-Emissionsfaktoren und Flottenzusammensetzung unter Einbeziehung zusätzlicher Datensätze signifikante systematische Fehler nachgewiesen werden, die insbesondere auf Autobahnabschnitten mit + 36 % bei NMHC bzw. mit + 20 % bei NO<sub>x</sub> stark ins Gewicht fallen. Die statistischen Unsicherheiten der Innerorts-Emissionen im Warmbetrieb pro Gemeinde liegen mit 37 % bei NMHC und 35 % bei NO<sub>x</sub> deutlich über den Fehlern im Außerortsbereich. Im gleichen Größenbereich liegen die bisher ermittelten Fehlerbandbreiten bei den Kaltstartzuschlägen.

Die HC-Verdampfungsemissionen sind auf Gemeindeebene mit Variationskoeffizienten von ca. 39 % bei den Tankatmungsverlusten und ca. 30 % bei den Heiß-/Warm-Abstellverlusten verbunden. Abschätzungen von Unsicherheiten der Running-Losses-Emissionen auf Gemeindeebene sind derzeit aufgrund der schlechten Datensituation bei den Emissionsfaktoren nicht möglich., mit großer Wahrscheinlichkeit liegen sie jedoch über denjenigen von Tankatmung und Heiß-/Warmabstellen.

Alle ermittelten Gesamtfehler sind als untere Grenze der tatsächlichen Gesamtfehler anzusehen, da aufgrund der lückenhaften Datensituation die Unsicherheiten einiger Eingangsdaten nur in Teilbereichen quantifiziert werden konnten. Insbesondere bei den Emissionsfaktoren (Kaltstart, Längsneigungen, Schwerverkehr, Verdampfungsemissionen), dem Fahrverhalten auf sonstigen Außerortsstraßen und innerorts und den Verkehrsstärke- bzw. Fahrleistungsdaten bestehen erhebliche Datenlücken.

Die Variationskoeffizienten bei der Ermittlung der Jahresemissionen 1994 für Gesamt-Baden-Württemberg liegen bei NO<sub>x</sub> im Bereich zwischen ca. 8 % und 17 %, bei NMHC im Bereich zwischen ca. 11 % und 24 %. Die unteren Grenzen resultieren dabei aus der Fehlerfortpflanzung und der Annahme der statistischen Unabhängigkeit der verschiedenen Quellgruppen. Die oberen Grenzen resultieren aus der realistischeren Annahme hochgradiger Korrelationen zwischen den Emissionen der verschiedenen Quellgruppen. Als Schätzwert läßt sich für die NO<sub>x</sub>-Emissionen ein mittlerer VK von ca. 14 %, für die NMHC-Emissionen ein mittlerer VK von ca. 19 % annehmen. Darüberhinaus werden nach derzeitigem Kenntnisstand die NO<sub>x</sub>-Emissionen systematisch um ca. 5 % unterschätzt Die höchsten absoluten Fehlerbeiträge (Standardabweichungen) ergeben sich bei

NO<sub>x</sub> durch die Innerorts- und die Autobahnemissionen, bei NMHC durch die Kaltstartzuschläge und die Innerorts-Emissionen mit warmem Motor.

Die Auswertung eines hochaufgelösten Straßennetzes hat ergeben, daß bei einem Straßennetz, bei dem lediglich die Koordinaten der Netzknoten, nicht jedoch der tatsächliche geographische Straßenverlauf bekannt sind, eine Rasterung mit 2 km x 2 km - Elementen als kritische Grenze angesehen werden muß. Eine feinere Rasterauflösung ist aufgrund des erhöhten Anteils falsch zugeordneter Linienquellenanteile nicht sinnvoll, bzw. sollte nur auf der Basis verfeinerter Straßennetz-Daten vorgenommen werden.

Die Unsicherheiten zeitlich hochaufgelöster (stündlicher) Emissionsdaten für den Straßenverkehr sind sehr stark von der Tageszeit und stark vom Wochentag und der Straßenkategorie abhängig. Bei den Pkw wurde für die Variationskoeffizienten ein Bereich von 10 bis 70 %, bei den Lkw von 15 bis 100 % ermittelt. Dabei treten geringere Fehlerbandbreiten an den verkehrsreichen Tagstunden und höhere Fehlerbandbreiten an den verkehrsarmen Nachtstunden auf.

## 4 ERGEBNISSE QUELLSEKTOR LÖSEMITTEL

### 4.1 Charakterisierung des Quellsektors

Die Anwendung von flüchtigen organischen Lösemitteln bzw. lösemittelhaltigen Erzeugnissen stellt einen Quellsektor dar, der hinsichtlich seiner stofflichen sowie auch prozess- und anwendungsbezogenen Vielfalt weder mit dem zuvor diskutierten Straßenverkehr noch mit anderen anthropogenen Quellgruppen vergleichbar ist.

Innerhalb des Quellsektors Lösemittel-Anwendungen werden heute in der Regel nicht nur Anwendungen von Lösemitteln im streng chemischen Sinne (d.h. Substanzen, die andere Stoffe ohne chemische Veränderungen in Lösung zu bringen vermögen) behandelt. Vielmehr wird darunter vielfach auch z.B. der Einsatz von Organika als Treibmittel, Enteisungs- und Kältemittel u.ä. subsumiert.

Hinsichtlich der Emission in die Atmosphäre steht der „klassische“ Einsatz von organischen Lösemitteln z.B. als Reaktionsmedium in der Chemischen Industrie nicht so sehr im Vordergrund, da hier vorwiegend in geschlossenen Anlagen gearbeitet wird und folglich die Emissionen trotz teilweise hoher Einsatzmengen vergleichsweise gering sind. Demgegenüber ist die Verdunstung von Lösemitteln beim Einsatz lösemittelhaltiger Erzeugnisse oftmals beabsichtigt, und wird durch Verwendung von besonders flüchtigen Substanzen sowie z.B. durch nachfolgende Trocknungsprozesse oder Wärmebehandlung gezielt unterstützt. Soweit diesen Anwendungen keine Abluftreinigung nachgeschaltet ist, muß in der Regel mit einer vollständigen Freisetzung der flüchtigen organischen Inhaltsstoffe in die Atmosphäre gerechnet werden. Emissionsseitig sind insbesondere folgende lösemittelhaltigen Produktgruppen hervorzuheben:

- Anstrichmittel und Verdünnungen,
- Druckfarben, Druckfarbenverdünnungen sowie Druckhilfsmittel,
- Klebstoffe,
- Entfettungs- und Reinigungsmittel,
- Konsumgüter, vorwiegend für den Gebrauch in Haushalten (Körperpflegemittel, Putz- und Pflegemittel, Seifen und Waschmittel).

Die einzelnen Produktgruppen unterteilen sich wiederum in eine mehr oder minder große Zahl an Produktarten, wie beispielsweise verschiedene Anstrichmittelarten (vom Nitrocelluloselack über die Dispersionsfarbe bis hin zum Pulverlack), Druckfarbenarten (für die jeweiligen Druckverfah-

ren) oder Klebstoffarten (Lösemittelklebstoff, Dispersionskleber, Reaktionskleber) mit zum Teil äußerst unterschiedlichem Lösemittelgehalt.

Dabei stellt sich das Spektrum der als Lösemittel dienenden Inhaltsstoffe ebenso vielfältig dar wie die geschilderte Bandbreite der Produktgruppen, und umfaßt vor allem verschiedenste Alkane, Aromaten, Alkohole und Glykole, Ether, Ketone, Ester sowie gesättigte und ungesättigte Chlor-kohlenwasserstoffe. Problematisch ist hierbei die Abgrenzung der als „flüchtige organische Verbindungen“ bzw. „VOC“ zu bezeichnenden Einzelkomponenten. Im Hinblick auf anlagenbezogene VOC-Emissionen definiert die EU-Lösemittel-Richtlinie VOC als organische Verbindungen, die bei 293,15 K einen Dampfdruck von mindestens 0,01 kPa oder unter den jeweiligen Gebrauchsbedingungen eine entsprechende Flüchtigkeit haben. In verschiedenen Anwendungsbereichen derartiger Substanzen werden jedoch auch davon abweichende Stoffspezifizierungen verwendet.

Zu berücksichtigen ist außerdem, daß sich die Anwendungsbereiche der lösemittelhaltigen Produkte z.T. auf sehr viele verschiedene Branchen der Industrie und des Gewerbes sowie auch auf den Bereich der privaten Haushalte erstrecken. In besonderem Maße gilt dies für den Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen. Ferner sind je nach Anwendungsbereich gegebenenfalls auch sehr verschiedene Anwendungstechniken zu betrachten, wie z.B. die Applikation von Lacken durch Tauchen, verschiedene Spritzverfahren, Rollen, Streichen, Gießen etc., wobei die diesen Verfahren zuzuordnenden unterschiedlichen Auftragswirkungsgrade Einfluß auf den spezifischen Lackverbrauch für eine Lackieraufgabe nehmen.

Schließlich ist im Hinblick auf die aus der Lösemittel-Anwendung resultierenden Emissionen an NMVOC die sehr heterogene Bestandsstruktur an Anlagen und Einrichtungen zur Abluftreinigung zu berücksichtigen. Während beispielsweise eine Anlage, die von ihrer Art und Größe her in den Geltungsbereich der TA Luft fällt, über eine entsprechende Abluftreinigung verfügen muß, ist dies bei einer etwas kleineren Anlage derselben Art nicht notwendigerweise der Fall.

Die hier dargestellte weitreichende Heterogenität des Quellsektors Lösemittel-Anwendungen schlägt sich auf die Art und den Umfang verfügbarer Eingangsdaten und demzufolge auch auf die Methoden zur Emissionsermittlung nieder, mit entsprechenden Auswirkungen auf die Quantifizierungsmöglichkeiten von Unschärfen bzw. Unsicherheiten abgeschätzter Emissionsdaten. Darauf wird in den nachfolgenden Abschnitten näher eingegangen.

## 4.2 Eingangsdaten und Methoden zur Emissionsermittlung

Neben der zuvor angesprochenen Heterogenität des Quellsektors Lösemittel-Anwendungen ist die Ermittlung der Mengen von als Lösemittel u.ä. eingesetzten organischen Substanzen durch den Umstand geprägt, daß keine allgemein zugänglichen Verbrauchsangaben zur Verfügung stehen, wie dies z.B. für Energieträger in Form von Energiebilanzen auf Bundes- oder Länderebene der Fall ist.

Für verschiedene flüchtige organische Substanzen läßt sich der Verbrauch in Deutschland zwar aus der Produktions- und Außenhandelsstatistik abschätzen. Insbesondere aus Gründen des Datenschutzes werden in der Produktionsstatistik jedoch bei weitem nicht alle potentiellen Lösemittel ausgewiesen. Und selbst wenn dies der Fall wäre, ließe sich allein auf der Grundlage von Gesamtverbrauchsmengen an flüchtigen organischen Komponenten kaum eine belastbare Abschätzung der Emissionen in die Atmosphäre vornehmen. Dies liegt in erster Linie daran, daß ein sicherlich sehr großer, jedoch kaum näher bezifferbarer Anteil der Komponenten nicht als Lösemittel sondern als Ausgangsstoff für weitere Synthesen oder auch als Reaktionsmedium in geschlossenen Anlagen verwendet wird. Bei derartigen Anwendungen wird nur ein kleiner Teil der eingesetzten Komponenten emittiert, während im Zuge des Einsatzes lösemittelhaltiger Produkte häufig eine vollständige Emissionen der flüchtigen Inhaltsstoffe erfolgt.

Soweit demnach Emissionen durch den Einsatz lösemittelhaltiger Produkte wie z.B. Anstrichmittel, Druckfarben oder Putz- und Pflegemittel verursacht werden, erfolgt die Emissionsabschätzung auf der Grundlage produktbezogener Betrachtungen. Dabei wird zunächst der Inlandsverbrauch aus den entsprechenden Produktions- und Außenhandelszahlen der Produkte ermittelt. Aus dem Inlandsverbrauch der Produkte wird dann anhand von verfügbaren Angaben zum Lösemittelgehalt der mit der Produktverwendung einhergehende Lösemittelverbrauch bestimmt. Parallel dazu erfolgt eine näherungsweise Zuordnung des Produktverbrauchs zu Anwendungsbereichen (einzelne Wirtschaftszweige und Gewerbebereiche, Haushalte), wobei hierzu Daten und Informationen unterschiedlichster Herkunft sowie zum Teil auch plausible Annahmen herangezogen werden. Unter Berücksichtigung des Umfangs installierter Abluftreinigungsanlagen wird dann aus dem produktbezogenen Lösemittelverbrauch letztlich die Emission in die Atmosphäre abgeschätzt.

Der beschriebene produktbezogene Ansatz läßt sich jedoch nicht auf alle der hier zu betrachtenden Emittentenbereiche anwenden. Bei verschiedenen emissionsrelevanten Prozessen läßt sich der Einsatz flüchtiger organischer Komponenten nicht definierten Produkten bzw. in den genannten Statistiken aufgeführten Produkten zuordnen. Meist handelt es sich hierbei um speziellere Herstel-

lungsprozesse, z.B. in der Chemischen Industrie oder in der Kunststoffverarbeitenden Industrie. Lösemittelverbrauch und Emission lassen sich in diesen Fällen z.B. anhand prozessbezogener Abschätzungen vornehmen, basierend auf statistisch erfaßter Produktionsmengen und – soweit verfügbar – repräsentativen prozessbezogenen Verbrauchs- bzw. Emissionsfaktoren.

Für Anlagen, die in den Geltungsbereich der 11. BImSchV fallen, sind von den Betreibern Emissionserklärungen anzufertigen und den zuständigen Behörden vorzulegen. Soweit mit behördlicher Zustimmung und unter Beachtung der Rechtsvorschriften möglich, wird auf Daten aus diesen Emissionserklärungen (z.B. Angaben zu anlagenbezogenen Jahresemissionen) zugegriffen. Je nach Emittentenbereich läßt sich damit ein mehr oder minder großer Teil der Gesamtemissionen des Emittentenbereiches abdecken. Anlagenbezogene Daten einerseits und ergänzende produkt- bzw. prozessbezogene Daten andererseits müssen dabei miteinander abgeglichen werden, um letztlich Doppelerfassungen von Emissionen zu vermeiden.

Über die Ermittlung jährlicher Gesamtemissionen je Emittentenbereich hinaus, beinhaltet die Erstellung hochaufgelöster Emissionsdatensätze für den Quellsektor Lösemittel-Anwendungen ebenso wie im Sektor Straßenverkehr weitere Arbeitsschritte zur räumlichen, zeitlichen und stofflichen Disaggregation.

Die flächenhafte räumliche Verteilung, d.h. für Deutschland oder ein Bundesland ermittelter produkt- bzw. prozessbezogener Emissionen, erfolgt dabei vorwiegend anhand regionalisierter Beschäftigten- bzw. Einwohnerzahlen mit nachfolgender Umlegung regionalisierter Emissionen auf Siedlungsflächen bzw. sonstige Landnutzungsarten. Anlagenbezogene und damit punktförmig vorliegende Emissionsdaten können demgegenüber direkt den Anlagenstandorten bzw. den entsprechenden Quellen zugeordnet werden.

Die zeitliche Disaggregation wird anhand von Jahresgängen (Monatswerte wie z. B. monatliche Nettoproduktionsindizes der einzelnen Wirtschaftszweige), Wochengängen (Tageswerte wie z.B. branchenübliche Schichtfolgen an Werktagen und Wochenendtagen) sowie Tagesgängen (Stundenwerte je Tagtyp, z.B. tageszeitliche Variabilität in der Anwendung lösemittelhaltiger Erzeugnisse im Bereich privater Haushalte) abgeschätzt. Derartige Zeitgänge werden im Falle von Produktionsindizes aus Statistiken entnommen, ansonsten z.B. durch Auswertungen einzelbetrieblicher bzw. anlagenbezogener Daten aus Emissionserklärungen abgeleitet.

### 4.3 Bisherige Ansätze zur Abschätzung der Unsicherheiten berechneter Lösemittel-Emissionen

Einfachere Ansätze zur Bewertung der Unsicherheiten berechneter Emissionen, welche im Hinblick auf die oben skizzierte Vielschichtigkeit auch auf den Bereich der Lösemittel-Emissionen anwendbar sind, basieren auf einer eher qualitativen bzw. vergleichenden Bewertung. So wird in [EEA 1996] eine 5-stufige Bewertungsskala von Emissionsfaktoren mit folgenden Merkmalen ausgewiesen:

|         |  |
|---------|--|
| Stufe A | Wert basiert auf einer großen Zahl an Messungen an zahlreichen Anlagen, welche die Quellgruppe voll repräsentieren   |
| Stufe B | Wert basiert auf einer großen Zahl an Messungen an zahlreichen Anlagen, welche einen großen Teil der Quellgruppe repräsentieren                                      |
| Stufe C | Wert basiert auf einer Anzahl an Messungen an wenigen repräsentativen Anlagen, oder auf einer Experteneinschätzung auf der Grundlage verschiedener relevanter Fakten |
| Stufe D | Wert basiert auf einer einzelnen Messung oder auf einer Experteneinschätzung auf der Grundlage verschiedener relevanter Fakten und einiger Annahmen                  |
| Stufe E | Wert basiert auf einer Experteneinschätzung auf der Grundlage von Annahmen   |

Ähnliche Bewertungen werden auch den Daten zur Beschreibung des Umfangs emissionsrelevanter Aktivitäten (z.B. Produktionsdaten) zugeordnet. Die „mittlere Qualitätsstufe C“ wird dabei vergeben, wenn es sich z.B. um offizielle Statistiken handelt. Andere Bewertungen werden dann relativ zu „C“ vorgenommen, wobei präziser ermittelte Aktivitätsdaten entsprechend mit „A“ oder „B“ bewertet werden, während Aktivitätsdaten, die aus anderen Werten bzw. Ersatzindikatoren abgeleitet wurden, nach „D“ oder „E“ zugeordnet werden. Die Gesamtbewertung der aus Emissionsfaktoren und Aktivitätsdaten ermittelten Emissionen erfolgt dann nach dem in Tabelle 26 dargestellten Schema.

Dieses Schema zielt zwar ursprünglich eher auf die Bewertung berechneter jährlicher Gesamtemissionen für eine Quellengruppe bzw. einen emissionsrelevanten Prozeß ab, ließe sich sinn gemäß aber auch auf die weiteren Arbeitsschritte zur Ermittlung zeitlich, räumlich und stofflich hochaufgelöster Emissionen übertragen. Eine quantitative Einordnung von Unsicherheiten ist damit jedoch nicht verbunden.

Tab. 26: Gesamtbewertung berechneter Emissionen aus Kombinationen der Bewertungen von Emissionsfaktoren und Aktivitätsdaten

| Kombination | Endfaktor | Kombination | Endfaktor | Kombination | Endfaktor |
|-------------|-----------|-------------|-----------|-------------|-----------|
| A - A       | A         | D - A       | C         | E - B       | D         |
| B - A       | A         | C - C       | C         | D - D       | D         |
| B - B       | B         | D - B       | C         | E - C       | D         |
| C - A       | B         | D - C       | C         | E - D       | D         |
| C - B       | B         | E - A       | C         | E - E       | E         |

Eine grobe quantitative Indikation der Unsicherheiten von Aktivitätsdaten, Emissionsfaktoren sowie daraus ermittelter Emissionen wird in [RIVM 1997] vorgenommen, und zwar mit folgender Skalierung:

- geringe Unsicherheiten      ( $\pm 10\%$ )
- mittlere Unsicherheiten      ( $\pm 50\%$ )
- hohe Unsicherheiten      ( $\pm 100\%$ )
- sehr hohe Unsicherheiten      ( $> 100\%$ )

Auf globaler bzw. regionaler Ebene wird hierbei den Aktivitätsdaten, Emissionsfaktoren und Emissionsdaten im Lösemittelbereich eine mittlere Unsicherheit zugeordnet. Im Vergleich dazu wird im Bereich der Verbrennung fossiler Energieträger den Aktivitätszahlen eine „geringe“ Unsicherheit zugewiesen, den Emissionsfaktoren und damit auch den berechneten Emissionen jedoch auch eine „mittlere“ Unsicherheit. Ergänzend wird in [RIVM 1997] aber auch darauf hingewiesen, daß die Ergebnisse der Schätzungen von Unsicherheiten berechneter Emissionsdaten maßgeblich davon abhängen, welche Querschnitte hinsichtlich Raumbezug und Quellenbezug angesetzt werden.

#### 4.4 Gesamtschätzung der Unsicherheiten berechneter Jahresemissionen aus Lösemittelanwendungen in Deutschland und Westeuropa

Wie bereits erwähnt, stellt die Anwendung von organischen Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen eine Quellgruppe dar, die hinsichtlich ihrer stofflichen sowie prozess- und anwendungstechnischen Vielfalt weder mit dem zuvor diskutierten Straßenverkehr noch mit anderen Quellgruppen vergleichbar ist. In Anbetracht dessen stellt sich zunächst die vordringliche Frage, inwieweit der gesamte Verbrauch und daraus die Gesamtemissionen an flüchtigen organischen

Lösemitteln auf Basis der heutigen Erkenntnis überhaupt vollständig abgeschätzt werden kann, d.h. ob gegebenenfalls weitere Anwendungsbereiche von Lösemitteln bislang gar nicht als solche erkannt sind.

Entsprechend der verfügbaren Datenlage kann dieser Frage zunächst am Beispiel Westeuropas nachgegangen werden. Die abgesetzte Frischwarenmengende an organischen Lösemitteln wird hier vom Zusammenschluß der europäischen Lösemittelhersteller (ESIG) für das Jahr 1993 mit 4,3 Mio. t angegeben. Die Frischwarenmengende ist näherungsweise gleichzusetzen der Summe aller Stoffausträge, d.h. in erster Linie der Emission in die Atmosphäre, ggf. auch den Einträgen in Wasser und Boden, sowie der Entsorgung (z.B. thermische Verwertung, Wiederaufbereitung und Export in Drittländer). Im Vergleich dazu werden die entsprechenden Lösemittel-Emissionen im Jahr 1994 gemäß der Emissionsdatenbasis CORINAIR auf insgesamt 3,6 Mio. t beziffert [EEA 1996]. Damit würden sich die angegebenen Emissionen in die Atmosphäre auf rund 84 % des angegebenen Frischwarenabsatzes belaufen. Unter Berücksichtigung der anderweitigen Stoffaustragspfade deutet dies auf eine plausible Übereinstimmung hin.

Aufgrund bislang nicht verfügbarer Angaben zum Frischwarenabsatz in Deutschland ist ein solcher Vergleich mit eigenen Berechnungen der Lösemittel-Emissionen auf nationaler Ebene nicht möglich. Es kann jedoch ein indirekter Vergleich gezogen werden, wobei die Lösemittel-Emissionen in Deutschland gemäß der CORINAIR-Datenbasis knapp 1,1 Mio. t im Jahr betragen, und aktuelle eigene Berechnungen – die auch sämtliche, in CORINAIR berücksichtigten Emittentenbereiche mit beinhalten – eine Gesamtemission von ca. 900 kt für 1994 ergeben. Für Baden-Württemberg weisen die CORINAIR-Daten eine Lösemittel-Emission von rund 150 kt/a aus, während sich eigene Berechnungen auf ca. 140 kt/a belaufen. Die jeweiligen Abweichungen bewegen sich damit in einem Bereich von  $\pm 20\%$ . Damit liegen zumindest Hinweise dafür vor, daß die den jährlichen Gesamtemissionen an Lösemitteln zuzuordnenden Unsicherheiten in ähnlicher Größenordnung liegen dürften wie die Unsicherheiten der Emissionsdaten für den Verkehrssektor. Dabei ist im Vergleich zu den in den Abbildungen 7 bis 10 dargestellten Ergebnissen zu berücksichtigen, daß dort bereits eine Regionalisierung (Linien- bzw. Gemeindebezug) einbezogen ist.

Nach dieser Grobeinschätzung erhebt sich nun die Frage, wie die Unsicherheiten von Lösemittel-Emissionsdaten für die einzelnen Teilbereiche (Anwendung verschiedener lösemittelhaltiger Erzeugnisse in verschiedenen Wirtschaftszweigen bzw. Anwendungsbereichen) zu bewerten sind, und welche Unsicherheiten sich im Zuge einer räumlichen, zeitlichen und stofflichen Disaggregation dieser Emissionsdaten ergeben.

## 4.5 Vorgehen zur detaillierten Abschätzung von Unsicherheiten

Aus dem vorangegangenen Abschnitt 4.2 wird deutlich, daß die Ermittlung von Emissionen aus Lösemittelanwendungen vorrangig auf sogenannten Top-down-Ansätzen beruht. Bei den hierbei verwendeten Eingangsdaten handelt es sich vielfach um einzelne Werte, wie z.B. die Produktions- oder Außenhandelsmenge einer bestimmten Lackart, Emissionsangaben für eine immissionsrechtlich genehmigungsbedürftige Anlage, die monatlichen Nettoproduktionswerte eines Wirtschaftszweiges etc. Statistische Streuungsmaße lassen sich hierfür jedoch nur bestimmen, wenn das zur Ermittlung solcher Gesamt- oder Durchschnittswerte verwendete Zahlenmaterial oder zumindest damit vergleichbare Daten zur Verfügung stehen. Dies ist aber im Fall der Lösemittelanwendungen sehr häufig nicht gegeben. Damit sind hier die Möglichkeiten zur expliziten Quantifizierung von Unsicherheiten weitaus stärker limitiert als im zuvor diskutierten Quellsektor Straßenverkehr. Die Bestimmung statistischer Streuungsmaße muß sich hier auf die exemplarische Untersuchung einzelner Aspekte der Emissionsberechnung beschränken. Dies wird in den nachfolgenden Ausführungen zu einzelnen Verursacherbereichen von Lösemittel-Emissionen ausführlicher diskutiert.

Um trotz dieser Einschränkungen zumindest orientierende Aussagen über die Unsicherheiten berechneter Lösemittel-Emissionen treffen zu können, ist eine eher qualitativ ausgerichtete Betrachtungsweise zu entwickeln und anzuwenden. Das vorrangige Ziel ist dabei, zumindest eine relative Bewertung von Unsicherheiten im Lösemittelsektor zu ermöglichen. Um eine solche Bewertung transparent bzw. nachvollziehbar und – über die verschiedenen Quellgruppen hinweg - vergleichbar gestalten zu können, muß sie auf einem Bewertungsschema mit definierten Kriterien aufbauen. Anhand der im folgenden aufgestellten Kriterien lassen sich Charakteristika der betrachteten Quellgruppen sowie die jeweiligen Eingangsdaten und deren methodische Verknüpfungen vergleichend bewerten:

- sektorale bzw. stoffliche Abgrenzbarkeit der betrachteten Quellgruppe
- Homogenität der betrachteten Quellgruppe
- Charakterisierung der Datengrundlage zur Emissionsberechnung:
  - Verfügbarkeit von Detailuntersuchungen
  - Eignung und Unschärfen von Eingangsdaten zur Beschreibung emissionsbestimmender Parameter
  - Umfang und Eignung einzubeziehender Ersatzindikatoren
  - Umfang und Plausibilität notwendiger Annahmen zur Vervollständigung der Datenbasis
- Bedeutung immissionsrechtlich genehmigungspflichtiger Anlagen innerhalb der betrachteten Quellgruppe

Tab. 27: Bewertungsskala und exemplarische Beschreibungen zur Einordnung der Unsicherheiten hochaufgelöster Emissionsberechnungen

| Stufe | exemplarische Beschreibungen  |
|-------|---|
| 1     | <p>Quellgruppen-Abgrenzung:<br/><i>keine Einschränkungen hinsichtlich sektoraler und stofflicher Abgrenzung</i></p> <p>Quellgruppen-Homogenität:<br/>Quellgruppe sehr homogen strukturiert</p> <p>Datengrundlage:<br/><i>keine Einschränkungen hinsichtlich Umfang, Qualität und Repräsentativität der Eingangsdaten, ggf. liegen umfangreiche Detailuntersuchungen vor</i></p> <p>Anlagen-/betriebsbezogene Daten:<br/><i>ggf. sind Emissionen weitestgehend aus anlagen-/betriebsbezogenen Daten ermittelbar</i></p>  |
| 2     | <p>Quellgruppen-Abgrenzung:<br/><i>keine wesentlichen Einschränkungen hinsichtlich sektoraler und/oder stofflicher Abgrenzung</i></p> <p>Quellgruppen-Homogenität:<br/>Quellgruppe im wesentlichen homogen strukturiert</p> <p>Datengrundlage:<br/><i>kaum Einschränkungen hinsichtlich Umfang, Qualität und Repräsentativität der Eingangsdaten, ggf. liegen Detailuntersuchungen vor</i></p> <p>Anlagen-/betriebsbezogene Daten:<br/><i>ggf. sind Emissionen zumindest in signifikantem Umfang aus anlagen-/betriebsbezogenen Daten ermittelbar</i></p>         |
| 3     | <p>Quellgruppen-Abgrenzung:<br/><i>Einschränkungen hinsichtlich sektoraler und/oder stofflicher Abgrenzung</i></p> <p>Quellgruppen-Homogenität:<br/>Quellgruppe näherungsweise als homogen strukturiert anzusehen</p> <p>Datengrundlage:<br/><i>Umfang, Qualität und Repräsentativität der Eingangsdaten sind eingeschränkt, Detailuntersuchungen nicht verfügbar, Ersatzindikatoren sind einzubeziehen</i></p> <p>Anlagen-/betriebsbezogene Daten:<br/><i>ggf. sind Emissionen nur in geringerem Umfang aus anlagen-/betriebsbezogenen Daten ermittelbar</i></p> |
| 4     | <p>Quellgruppen-Abgrenzung:<br/><i>sektorale und/oder stoffliche Abgrenzung nur näherungsweise möglich</i></p> <p>Quellgruppen-Homogenität:<br/>Quellgruppe insgesamt sehr inhomogen strukturiert</p> <p>Datengrundlage:<br/>Datengrundlage weist signifikante Unzulänglichkeiten auf, die durch Ersatzindikatoren bzw. Annahmen nur bedingt zu beheben sind</p> <p>Anlagen-/betriebsbezogene Daten:<br/><i>ggf. sind Emissionen kaum aus anlagen-/betriebsbezogenen Daten ermittelbar</i></p>  |
| 5     | <p>Quellgruppen-Abgrenzung:<br/><i>sektorale und/oder stoffliche Abgrenzung stützt sich auf grobe Annahmen</i></p> <p>Quellgruppen-Homogenität:<br/>Quellgruppe äußerst inhomogen strukturiert</p> <p>Datengrundlage:<br/>Datengrundlage weist gravierende Lücken und Unschärfen auf bzw. basiert weitestgehend auf Annahmen</p> <p>Anlagen-/betriebsbezogene Daten:<br/><i>Emissionen nicht aus anlagen-/betriebsbezogenen Daten ermittelbar</i></p>   |

Die Reihenfolge der zuvor genannten Kriterien ist hier nicht als Rangordnung der Bedeutung zu verstehen. Für die Gesamteinschätzung der Unsicherheiten eines Rechenschrittes für eine bestimmte Quellgruppe ist nicht nur von Bedeutung, ob die Mehrzahl o.g. Kriterien eher im positiven Sinne (geringe Unsicherheiten) oder negativen Sinne (hohe Unsicherheiten) zu bewerten ist. Entscheidender kann vielmehr sein, ob bestimmte Kriterien in besonders ausgeprägtem Maße positiv bzw. negativ zu bewerten sind.

Angelehnt an Vorschläge der U.S. Environmental Protection Agency [EPA 1999], die sinngemäß unter anderem auch von der Europäischen Umweltagentur übernommen werden [EEA 1999], wird zur eigentlichen Bewertung eine 5-stufige Skala definiert. Exemplarische Beschreibungen der einzelnen Stufen sind in Tabelle 27 wiedergegeben.

Konkrete Beispiele hinsichtlich der Anwendung der hier dargestellten Bewertungskriterien und Abstufungen finden sich in den nachfolgenden Abschnitten zu den jeweils betrachteten Quellgruppen.

#### **4.6 Quellgruppen- bzw. produktbezogene Abschätzung von Unsicherheiten**

Getrennt nach den wesentlichen Quellgruppen bzw. den verschiedenen Arten lösemittelhaltiger Erzeugnisse werden die jeweiligen Unsicherheiten der einzelnen Arbeitsschritte zur Abschätzung hochaufgelöster Lösemittel-Emissionsdaten betrachtet und analysiert. Dies umfaßt:

- die Ermittlung jährlicher NMVOC-Gesamtemissionen einer Quellengruppe,
- die räumliche Disaggregation der Emissionen,
- die zeitliche Disaggregation der Emissionen,
- die Aufschlüsselung von NMVOC-Emissionsdaten nach Einzelkomponenten bzw. Stoffklassen.

Dabei ist zu berücksichtigen, daß die quantitativen Unsicherheiten der einzelnen Berechnungsschritte untereinander, auch wenn sie der selben Stufe in der qualitativ ausgerichteten Bewertungsskala zugeordnet sind, nicht oder zumindest nicht notwendigerweise übereinstimmen. So dürften beispielsweise die Unsicherheiten in der Ermittlung jährlicher NMVOC-Gesamtemissionen einer Quellgruppe in Baden-Württemberg auf der Grundlage einer relativ guten Datenbasis in der Regel deutlich geringer sein als die Unsicherheiten der räumlichen Disaggregation.

rung dieser Emissionen auf Kreis- oder Gemeindeebene, auch wenn diese Disaggregation ebenfalls auf der Grundlage einer als relativ gut einzuordnenden Datenbasis erfolgt. Eine direkte Vergleichbarkeit der Unsicherheiten der einzelnen Berechnungsschritte untereinander wäre nur im Falle einer expliziten Quantifizierung möglich, wie dies im Bereich des Straßenverkehrs durchgeführt wurde. Miteinander vergleichbar sind vielmehr die innerhalb eines Berechnungsschrittes ausgewiesenen Bewertungen der Unsicherheiten für einzelne Emittentenbereiche.

#### **4.6.1 Anstrichmittel und Verdünnungen**

Unter den verschiedenen Produktgruppen lösemittelhaltiger Erzeugnisse kommt den Anstrichmitteln und Verdünnungen hinsichtlich der darin enthaltenen Lösemittelmengen die größte Bedeutung zu. Aufgrund besagter Umweltrelevanz ist diese Produktgruppe vergleichsweise gut untersucht, d.h. über das statistische Zahlenmaterial hinaus kann auch auf Ergebnisse spezieller Untersuchungen über den Lösemittleinsatz und die VOC-Emissionen aus der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen zurückgegriffen werden.

##### **4.6.1.1 Ermittlung des Inlandsverbrauches an Anstrichmitteln und Verdünnungen**

Die Ermittlung des Verbrauches an Anstrichmitteln und Verdünnungen läßt sich – wie bei anderen Produktverwendungen auch – anhand von Statistiken nur auf Bundesebene durchführen. Der Inlandsverbrauch ergibt sich dabei aus einer Verknüpfung von Produktionsstatistik und Warenaußenhandelsstatistik.

In der Produktionsstatistik werden immerhin rund 30 verschiedene Arten an Anstrichmitteln mit teilweise höchst unterschiedlichem durchschnittlichem Lösemittelgehalt ausgewiesen, so daß die in den produzierten Anstrichmitteln enthaltenen Lösemittelmengen recht detailliert ermittelt werden können. Gewisse Unschärfen ergeben sich bei diesem Rechengang jedoch aus dem Umstand, daß in der Warenaußenhandelsstatistik insgesamt zwar auch 15 Produkt- bzw. Warenarten differenziert werden, eine Gegenüberstellung der einzelnen Positionen beider Statistiken jedoch nur über jeweils 7 zu bildende Gruppen durchgeführt werden kann. Der für die Emissionsberechnung ausschlaggebende Lösemittelgehalt der Anstrichmittel läßt sich demzufolge für den Inlandsverbrauch nur mit etwas höheren Unsicherheiten ermitteln als allein für die Produktion. Differenziert man z.B. bei den lösemittelhaltigen Lacken nur zwischen

- Low-Solid-Lacken,
- Medium-Solid-Lacken,
- High-Solid-Lacken,

- Wasserlacken,
- Pulverlacken,

so führt dies zu entsprechend höheren Bandbreiten des Gehaltes an organischen Lösemitteln innerhalb dieser Gruppen.

Beispielhaft zeigt Abb. 15 ausgewertete Ergebnisse einer vom Statistischen Landesamt Baden-Württemberg durchgeführten Befragung von Lackanwendern [STALA 1998]. Dargestellt ist hier die Bandbreite der Lösemittelgehalte für Wasserlacke sowie für High-, Medium- und Low-Solids, wobei die jeweilige Häufigkeit der entsprechenden Nennungen von Lackanwendern über dem in 5 %-Stufen angegebenen Lösemittelgehalt aufgetragen ist. Die Bandbreite der Unsicherheiten bewegt sich demzufolge in einer Größenordnung von  $\pm 15\%$ .

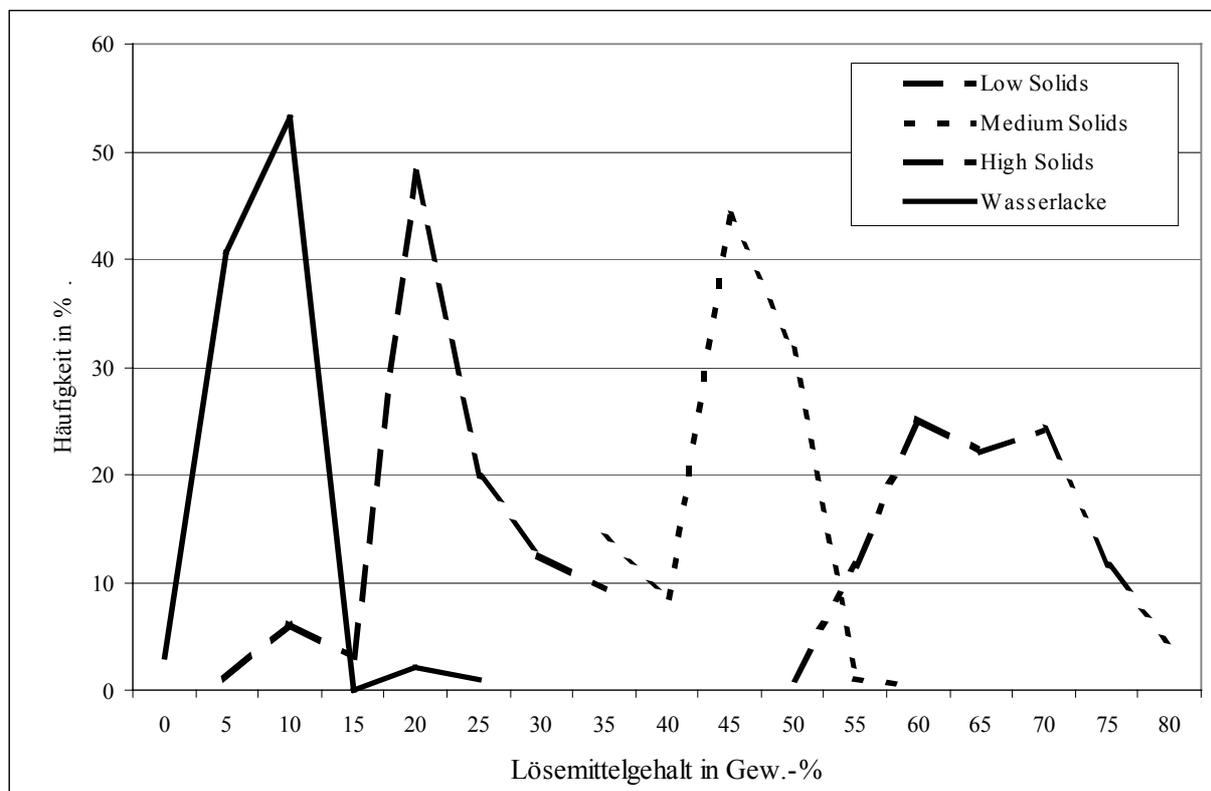


Abb. 15: Bandbreite der Lösemittelgehalte verschiedener Lackarten

Hinweise auf gegebenenfalls größere Unsicherheiten in der Abschätzung des Lösemittelsatzes ergeben sich bei einer Analyse der neueren Entwicklung der jährlichen Produktion bzw. des Inlandsverbrauches an Verdünnungen, wobei hier nicht die in den Anstrichmitteln bereits enthaltenen Lösemittel gemeint sind. Die Produktions- bzw. Inlandsverbrauchsmenge an Verdünnungen weist nämlich im Gegensatz zu den Anstrichmittelmengen in den letzten Jahren eine erhebliche Zunahme auf. So stieg die Verdünnungsproduktion zwischen 1994 und 1997 um annähernd 80 %,

während z.B. die Produktion konventioneller lösemittelhaltiger Lacke im genannten Zeitraum sogar um rund 5 % abnahm. Hierfür können verschiedene Ursachen maßgeblich sein, die teilweise auch Indizien für eine mit erheblichen Unsicherheiten behaftete statistische Erfassung von Verdünnermengen liefern. In Expertenkreisen werden folgende Erklärungsmöglichkeiten diskutiert:

1. In Anbetracht der zunehmenden Verwendung von High-Solid-Lacken wäre es denkbar, daß diese häufiger unter Zugabe erhöhter Verdünnermengen auf die Konsistenz und Verarbeitungsfähigkeit konventioneller Low- und Medium-Solid-Lacke eingestellt werden.
2. Es liegen Hinweise dafür vor, daß die auf die Lackeinsatzmenge bezogene Verbrauchsmenge an Verdünnungen für Reinigungs- und Spülzwecke in den vergangenen Jahren zugenommen hat. Ursachen hierfür liegen in immer häufigeren Farbwechseln und einer zunehmenden Automatisierung von Lackieranlagen, wobei der spezifische Einsatz an Reinigungs- und Spülverdünnern in automatisierten Anlagen oftmals weit über dem Einsatz bei der manuellen Applikation liegt.
3. Es ist denkbar, daß die in früheren Produktionsstatistiken ausgewiesenen Verdünnermengen signifikant unterschätzt wurden, und zwar aus dem Grund, daß ggf. nicht unerhebliche Mengen an Verdünnungen von Kleinbetrieben mit weniger als 20 Beschäftigten produziert (bzw. abgefüllt) wurden. Die Produktion solcher Kleinbetriebe wird in der Produktionsstatistik jedoch nicht erfaßt. Durch eventuelle Übernahmen von Kleinbetrieben durch bereits berichtspflichtige größere Betriebe könnte in den letzten Jahren eine vollständigere Erfassung des gesamten Produktionsumfangs eingetreten sein.
4. Gegebenenfalls werden die im Rahmen von Beschichtungsprozessen benötigten Verdüner (zur Farbverdünnung, Entfettung, Vorreinigung, Geräte- und Anlagenreinigung) im Zuge verstärkter angebotener Komplettlösungen zunehmend von Lackherstellern bezogen, während in früheren Jahren eventuell eher auf (preisgünstigere) Standardlösemittel zurückgegriffen wurde, welche in der Produktionsstatistik gar nicht als Farbverdünnungen geführt bzw. gemeldet werden.

Die unter Punkt 1 und Punkt 2 genannten Argumente deuten auf eine tatsächliche Erhöhung des Lösemittel- bzw. Verdünnereinsatzes hin, während die Punkte 3 und 4 nur in einer scheinbaren Erhöhung der jährlichen Einsatzmengen im betrachteten Zeitraum resultieren würden. Unterstellt man, daß die Emissionen in 1994 und früheren Jahren um den Betrag des danach erfolgten drastischen Anstiegs unterschätzt wurden, so würde dies, bezogen auf die Gesamtemissionen aus der Verwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen, einem Fehler von rund 25 % gleichkommen.

#### **4.6.1.2 Zuordnung des Produktverbrauches und der Emissionen zu Anwendungsbereichen sowie Regionalisierung**

Im Hinblick auf die räumliche Disaggregation der für das Gesamtgebiet Deutschlands ermittelten Lösemittel-Verbrauchsmengen und –Emissionen ist es notwendig, den Gesamteinsatz an Anstrichmitteln und Verdünnungen auf die wesentlichen Wirtschaftszweige und sonstige Anwendungsbereiche zu verteilen. Auf diese Weise kann vorhandenen regionalen Unterschieden z.B. in der Zusammensetzung der Betriebe im Verarbeitenden Gewerbe bzw. regionalen Schwerpunkten einzelner Wirtschaftszweige bei der Emissionsermittlung Rechnung getragen werden. Detailuntersuchungen zu den Verbrauchsmengen und Emissionen in Deutschland nach hauptsächlichlichen Anwendungsbereichen von Anstrichmitteln und Verdünnungen stehen aus [BMU/VCI 1997] zur Verfügung. Mit welchen Unsicherheiten die dort vorgenommenen Zuordnungen nach einzelnen Wirtschaftszweigen behaftet sind, ist nicht näher bekannt. Für eine branchenbezogene räumliche Disaggregation bundesweiter Emissionen auf Landesebene anhand von branchenbezogenen Beschäftigtenverhältnissen (Anteil eines Bundeslandes an der Gesamtzahl der Beschäftigten jeder Branche in Deutschland) erscheinen diese Daten jedoch als gut geeignet. Eine weitergehende Disaggregation auf Kreis- oder Gemeindeebene anhand von Beschäftigtenzahlen impliziert jedoch in sehr viel weitergehendem Maße, daß in jedem Betrieb einer Branche pro Beschäftigtem eine in erster Näherung vergleichbare Menge an Anstrichmitteln und Verdünnungen verbraucht bzw. letztlich emittiert wird.

Inwieweit dies zutrifft, läßt sich exemplarisch für einzelne Branchen anhand ausgewerteter Ergebnisse einer vom Statistischen Landesamt Baden-Württemberg durchgeführten Befragung von Lackanwendern [STALA 1998] untersuchen. Dies wird in Tabelle 28 anhand der Fehlerbandbreiten des beschäftigtenbezogenen Einsatzes an Anstrichmittel und Verdünnungen für eine Auswahl an Betrieben in verschiedenen Wirtschaftszweigen dokumentiert. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Auswahl der Betriebe für die vom Statistischen Landesamt Baden-Württemberg durchgeführte Befragung nicht rein zufällig erfolgte. Vielmehr wurden solche Betriebe angesprochen, bei denen aufgrund anderweitiger Informationen (gemeldete Abgabe lösemittelhaltiger Abfälle) die Vermutung nahelag, daß dort Anstrichmittel und Verdünnungen verwendet werden. Betriebe, welche keine Anstrichmittel einsetzen, sind damit in dieser Auswahl in jedem Fall unterrepräsentiert.

Tab. 28: Fehlerbandbreiten des beschäftigtenbezogenen Einsatzes an Anstrichmittel und Verdünnungen für eine Auswahl an Betrieben in verschiedenen Wirtschaftszweigen

| Branche   | Anzahl Betriebe | Variationskoeffizienten der Mediane (Summe Betriebe) |        | Variationskoeffizienten der Mediane (Einzelbetriebe) |        |
|---|-----------------|--|--------|--|--------|
| Maschinenbau  | 119             | -7 %   | +26 %  | -79 %  | +285 % |
| Straßenfahrzeugbau                                      | 37              | -15 %  | +120 % | -93 %  | +728 % |
| Elektrotechnik  | 46              | -14 %  | +139 % | -96 %  | +944 % |
| Herst. v. EBM-Waren                                     | 36              | -15 %  | +134 % | -89 %  | +803 % |
| Holzverarbeitung  | 32              | -8 %   | +28 %  | -45 %  | +159 % |
| Alle untersuchten Betriebe (inklusive weitere Branchen) | (390)           | -5 %   | +33 %  | -92 %  | +649 % |

Betrachtet man für jede Branche zunächst die Variationskoeffizienten der Mediane, die sich auf die Gesamtheit der Betriebe beziehen, so ergeben sich für den Maschinenbau und die Holzverarbeitung Fehlermargen bezüglich des Lösemittleinsatzes in einer Größenordnung, wie sie im vorigen Kapitel für Emissionen aus verschiedenen Quellenbereichen des Straßenverkehrs quantifiziert wurden. Im Falle des Straßenfahrzeugbaus (genauer gesagt der Kfz-Zulieferbetriebe), der Elektrotechnik und der Herstellung von EBM-Waren liegen jedoch die positiven Abweichungen mit mehr als 100 % deutlich über den Ergebnissen der Fehlerbetrachtungen im Straßenverkehr. Noch weit- aus größer sind die Fehlerbandbreiten der Einzelwerte, da hier zwischen den einzelnen Betrieben zum Teil sehr hohe Unterschiede im Produktverbrauch pro Beschäftigtem auftreten.

Abbildung 16 zeigt die Verteilungsfunktion der Betriebe im Maschinenbau hinsichtlich des jährlichen beschäftigtenbezogenen Lösemittelverbrauches bei der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen. Während der Mittelwert aller Angaben bei ca. 40 kg Lösemittel je Beschäftigtem beträgt, liegt der Median bei lediglich rund 20 kg Lösemittel je Beschäftigtem. Es handelt sich damit keineswegs um eine Normalverteilung.

Aufgrund häufig fehlender Angaben zu den Lösemittel-Emissionen lassen sich aus der Umfrage des Statistischen Landesamtes kaum verwertbare statistische Auswertungen zur Bandbreite der beschäftigtenbezogenen Lösemittel-Emissionen durchführen. Tendenziell ist jedoch mit etwas höheren Bandbreiten zu rechnen, als dies allein für den Lösemittleinsatz der Fall ist.

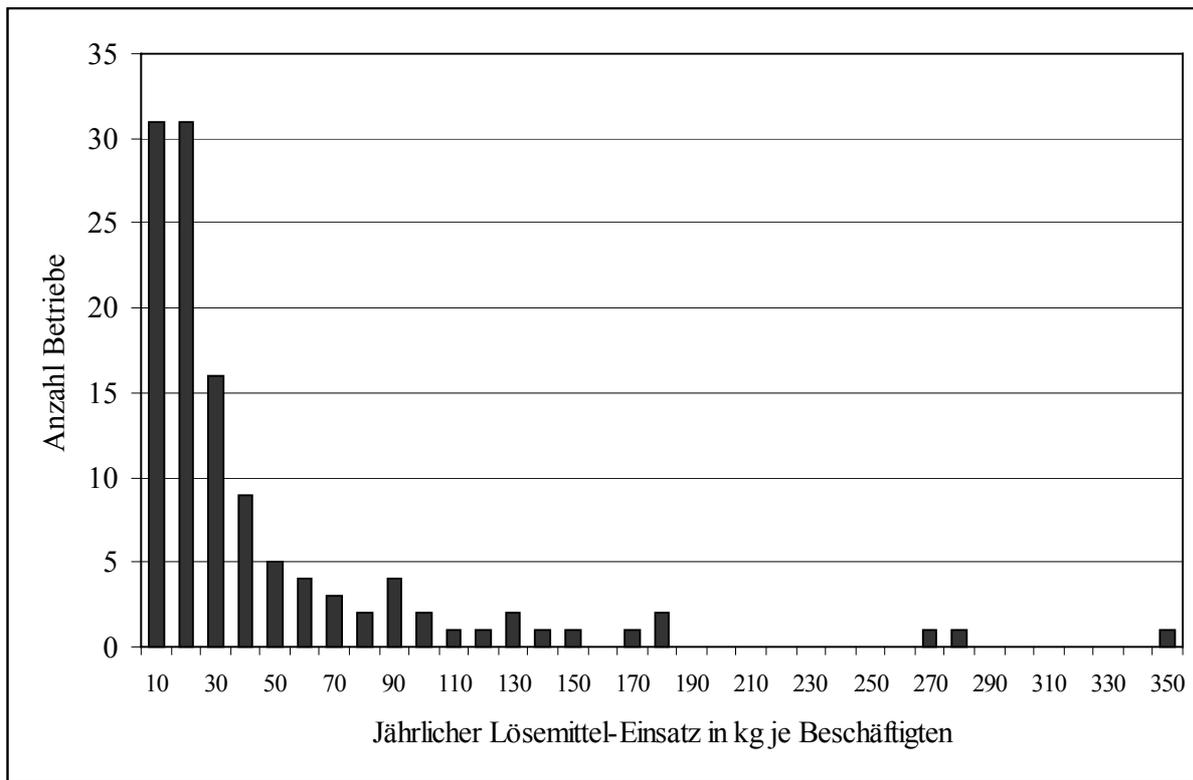


Abb. 16: Jährlicher beschäftigtenbezogener Lösemittelleinsatz bei der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen in Betrieben des Maschinenbaus

Die Ergebnisse der hier diskutierten Auswertungen deuten damit darauf hin, daß sich die jährlichen Produktverbräuche und Lösemittel-Emissionen – ausgehend von bundesweiten Zahlen – mit vertretbaren Fehlern auf ein Bundesland wie Baden-Württemberg sowie auch größere Städte und Kreise umlegen lassen. Dies wird auch in Tabelle 28 aus den Gesamtangaben zu allen untersuchten Betrieben, unter Einbeziehung weiterer Branchen mit nur geringen Fallzahlen je Branche, deutlich. Hier liegen die Variationskoeffizienten der Mediane, bezogen auf die Gesamtheit der Betriebe, bei – 5 % bis + 33 %. Hinsichtlich der Emissionen in kleineren Kreisen bzw. Gemeinden mit nur wenigen Betrieben ist jedoch mit weit höheren Unsicherheiten zu rechnen, als dies für Emissionen im Bereich des Straßenverkehrs der Fall ist.

Generell kommt es bei dem gewählten Berechnungsansatz (Top-down-Ansatz) zu einer zu gleichmäßigen räumlichen Verteilung der Lösemittel-Emissionen. In der Mehrzahl der Fälle bzw. der zu betrachtenden regionalen Einheiten (Kreise oder Gemeinden) werden die Emissionen leicht überschätzt, in einer kleineren Zahl von Fällen bzw. regionalen Einheiten ist mit einer deutlichen Unterschätzung der Emissionen zu rechnen.

#### 4.6.1.3 Zeitliche Disaggregation

Angaben zur Beschreibung des Zeitverhaltens von Emissionsvorgängen, wie z.B. Dauer und Häufigkeit sowie tageszeitliche, tagtyp- und monatsbezogene Zuordnungen von Emissionsvorgängen, sind Bestandteil von Emissionserklärungen für immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftige Anlagen. Allerdings kommt diesen Angaben vielfach nur eine begrenzte Aussagefähigkeit zu. So wird beispielsweise die Verteilung prozessbezogener Emissionen auf die einzelnen Monate des Berichtsjahres zumeist als konstant angegeben. Aus den Angaben zur tageszeitlichen und tagtypbezogenen Zuordnung von Emissionsvorgängen läßt sich in der Regel nur herauslesen, wann emissionsrelevante Anlagen grundsätzlich in Betrieb sind bzw. sein können. D.h. im hier betrachteten Fall der Emissionen aus der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen, daß aus den Angaben lediglich grobe Hinweise abgeleitet werden können, ob eine Lackieranlage ggf. auch an Wochenendtagen in Betrieb ist, und in welcher Schichtfolge (1-Schicht-, 2-Schicht- oder kontinuierlicher Schichtbetrieb) Lackierarbeiten in der Regel durchgeführt werden. Die reale zeitliche Variabilität der Emissionen über konkrete Zeiträume hinweg geht damit aus den genannten Angaben kaum hervor, so daß eine weitergehende Analyse der Daten im Hinblick auf die Bestimmung von Unsicherheiten zeitlich disaggregierter Emissionswerte wenig sinnvoll erscheint.

Im Vergleich zu den in den Emissionserklärungen verzeichneten konstanten Jahregängen der Emissionen erscheint vielmehr die Annahme plausibler, daß die monatliche Variabilität der Emissionen im industriellen/gewerblichen Bereich durch die in Statistiken verzeichneten branchenbezogenen monatlichen Nettoproduktionsindizes beschrieben werden kann. Darüber hinaus wird angenommen, daß sich Wochen- und Tagesgänge der Emissionen aus dem Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen in Lackieranlagen mit Trocknungseinrichtungen durch eine weitgehend gleichmäßige Verteilung über Arbeits- bzw. Betriebszeiten beschreiben lassen. Die mit dieser Annahme verbundenen Unsicherheiten in der zeitlichen Disaggregation der Emissionen lassen sich anhand der verfügbaren Datengrundlage jedoch nicht explizit quantifizieren.

Vergleichsweise höhere Unsicherheiten dürften sich in den Fällen bzw. Anwendungsbereichen ergeben, in denen keine forcierte Lacktrocknung (durch den Einsatz entsprechender Trocknungsanlagen) stattfindet, wie z.B. im Bautenbereich oder im Do-it-yourself-Bereich. Durch verzögert auftretende Emissionen bei einer Lufttrocknung frischer Beschichtungen ist mit einer stärkeren Entkopplung von Beschichtungsvorgängen und Emissionen zu rechnen, die bislang nur in grober Näherung berücksichtigt werden kann.

#### **4.6.1.4 Stoffliche Aufgliederung von VOC-Gesamtemissionen**

Umfangreichere Angaben über die Zusammensetzung der in Anstrichmitteln und Verdünnungen enthaltenen Lösemittel finden sich in [BRÄUTIGAM 1992], wobei zwischen Industrielacken auf der einen Seite und Anstrichmitteln für den Maler- und Do-it-yourself-Bereich auf der anderen Seite unterschieden wird. Die Fehlerbandbreiten dieser Literaturangaben lassen sich nicht quantifizieren. Jedoch ist zu beachten, daß neuere Entwicklungen z.B. im Bereich der wasserverdünnbaren Lacke und daraus ggf. resultierende Veränderungen hinsichtlich der chemischen Zusammensetzung der in neuen Lacksystemen enthaltenen organischen Lösemittel in der zitierten Datengrundlage nicht berücksichtigt sind. Wenngleich es sich bei den Daten aus [BRÄUTIGAM 1992] um Ergebnisse umfangreicherer Detailuntersuchungen handelt, ist ihre Aktualität damit nicht mehr uneingeschränkt gegeben. Die in Emissionserklärungen für immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftige Lackieranlagen enthaltenen Angaben zu VOC- bzw. NMVOC-Emissionen umfassen vielfach keine oder lediglich bruchstückhafte Informationen zur chemischen Zusammensetzung. Eine Verbesserung der komponentenbezogenen Datengrundlage ist damit häufig nicht zu erzielen.

#### **4.6.1.5 Gesamteinschätzung der Unsicherheiten**

Auf der Grundlage der vorstehenden Abschnitte soll eine Einordnung der Unsicherheiten von Berechnungen jährlicher Gesamtemissionen aus dem Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen in Baden-Württemberg sowie von nachgeordneten Disaggregierungsschritten erfolgen. Tabelle 29 faßt entsprechende Einschätzungen zusammen, die nachfolgend noch zu diskutieren bzw. zu erläutern sind.

Bei der Ermittlung von Jahreswerten der NMVOC-Gesamtemission aus der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen kann - insgesamt gesehen - von einer vergleichsweise guten Datenbasis ausgegangen werden, d.h. die Unsicherheiten bewegen sich noch auf relativ niedrigem Niveau. Emissionen aus der Applikation von Anstrichmitteln sind Gegenstand verschiedener Detailuntersuchungen, und damit recht gut dokumentiert. Nachteilig macht sich die eingangs beschriebene Problematik in der Quantifizierung des Verdünnereinsatzes bemerkbar, so daß eine bessere Bewertung nicht gerechtfertigt erscheint. Hinsichtlich einer Aufschlüsselung der Jahresmissionen nach einzelnen Anwendungsbereichen ist zu vermerken, daß es sich bei der Kfz-Serienlackierung (dies beinhaltet nicht die Zulieferindustrie) und – nach derzeitigem Kenntnisstand – auch bei der Bandbeschichtung quasi ausschließlich um immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftige Lackieranlagen handelt, für die anlagenbezogene Emissionsdaten aus Emis-

onserklärungen zur Verfügung stehen. Belastbares Zahlenmaterial steht auch für den seit Jahren sehr umfangreich untersuchten und recht homogen strukturierten Bereich der Kfz-Reparatlackierung zur Verfügung. Wie schon aus Tabelle 28 andeutungsweise hervorgeht, sind auch die Unsicherheiten jährlicher Emissionswerte für die Holzverarbeitung und den Maschinenbau als vergleichsweise gering einzustufen.

Tab. 29: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus dem Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen in verschiedenen Anwendungsbereichen

| Anwendungsbereiche                               | Unsicherheitsbandbreiten |               |               |            | Anteile an Emission |
|--|--------------------------|---------------|---------------|------------|---------------------|
|  | Jahreswert               | Ortsauflösung | Zeitauflösung | VOC-Profil |                     |
| Holzverarbeitung                                 | 2                        | 3             | 4             | 3          | 6,0 %               |
| Kfz-Serienlackierung                             | 1                        | 1             | 2             | 2          | 3,8 %               |
| Kfz-Rep.lackierung/Nutzfahrzeuge                 | 1                        | 2             | 3             | 3          | 2,0 %               |
| Maschinenbau                                     | 2                        | 3             | 3             | 3          | 4,9 %               |
| EBM-Waren  | 3                        | 4             | 3             | 3          | 2,2 %               |
| Elektrotechnik                                   | 3                        | 4             | 3             | 3          | 1,9 %               |
| Bandbeschichtung                                 | 1                        | 1             | 2             | 2          | 0,2 %               |
| Kunststoffverarbeitung                           | 3                        | 4             | 3             | 3          | 1,8 %               |
| Baugewerbe                                       | 3                        | 3             | 4             | 3          | 2,8 %               |
| sonstige industr./gewerbl. Bereiche              | 3                        | 5             | 4             | 3          | 11,3 %              |
| Haushalte  | 3                        | 2             | 5             | 3          | 1,4 %               |
| Anstrichmittel/Verdünnungen<br>(Gesamtbewertung) | 2-3                      | 3             | 3-4           | 3          | 38,2 %              |

Hinsichtlich der räumlichen Disaggregation der Emissionen sind bei der Kfz-Serienlackierung und der Bandbeschichtung mit der Einbindung standortbezogener Daten aus Emissionserklärungen keine größeren Unsicherheiten zu erwarten. Die Kfz-Reparatlackierung und die Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen in privaten Haushalten lassen sich mit Beschäftigtenzahlen bzw. Einwohnerzahlen als geeignete Indikatorgrößen noch recht gut räumlich disaggregieren. In anderen Anwendungsbereichen ergeben sich jedoch z.T. überdurchschnittlich hohe Unsicherheiten der räumlichen Disaggregation, insbesondere dann, wenn je regionaler Einheit nur einzelne oder wenige Industrie- und Gewerbebetriebe bzw. potentielle Quellen vorhanden sind. Dies bedeutet

gleichzeitig, daß Emissionsschwerpunkte in industriell geprägten und dicht besiedelten Städten und Regionen mit deutlich geringeren Unsicherheiten ermittelt werden können als die Emissionen in eher ländlich geprägten Räumen. In der Abstufung der relativen Unsicherheiten in den einzelnen Wirtschaftszweigen bzw. Anwendungsbereichen wird insbesondere auch berücksichtigt, inwieweit der Einsatz von Anstrichmitteln und Verdünnungen in der jeweiligen Branche eher verbreitet ist, oder aber eine eher begrenzte Zahl an Einzelfällen darstellt.

Die Rangfolge zunehmender Unsicherheiten in der zeitlichen Disaggregation von NMVOC-Emissionsdaten wird gleichfalls von der Kfz-Serienlackierung und der Bandbeschichtung angeführt, da aus den Daten der Emissionserklärungen - die jeweils den gesamten Emittentenbereich abdecken - anlagenbezogene Hinweise auf die Betriebszeiten abzuleiten sind. Im Gegensatz dazu basiert die zeitliche Disaggregation der Emissionen im Do-it-yourself-Bereich ausschließlich auf Annahmen. Hinzu kommt, daß sowohl in privaten Haushalten als auch im Baugewerbe und zu einem großen Teil in der Holzverarbeitung eine reine Lufttrocknung (d.h. keine forcierte Trocknung in einem beheizten Trockner) frischer Beschichtungen erfolgt, so daß sich die NMVOC-Emissionen nach erfolgtem Beschichtungsvorgang über einen nur schwer eingrenzbaaren, längeren Folgezeitraum verteilen.

Auf die für die Quellengruppe Anstrichmittel und Verdünnungen grundsätzlich verfügbare Datenbasis zur Aufschlüsselung des Lösemittleinsatzes und der Emissionen nach VOC-Komponenten wurde bereits hingewiesen. Mit [BRÄUTIGAM 1992] stehen hier zwar Ergebnisse einer nach Industrielacken und Lacken für den Maler-/Heimwerkerbereich gegliederten Detailuntersuchung zur Verfügung., allerdings beschreiben diese Ergebnisse die Situation Mitte bis Ende der 80iger Jahre. Der Zusammensetzung neuer Lacksysteme, die seither - in begrenztem Umfang - an Bedeutung gewonnen haben, wird damit ggf. nur unzureichend Rechnung getragen. Ebenfalls nur in begrenztem Umfang können Informationen aus Emissionserklärungen zur Verbesserung der Datenlage herangezogen werden, da häufig keine oder nur sehr grobe stoffliche Spezifikation der emittierten Komponenten ausgewiesen wird. Auch ist generell zu vermerken, daß auf Seiten der Lackanwender vielfach keine präzise Kenntnis der Zusammensetzung der flüchtigen Lackinhaltsstoffe vorhanden ist (abgesehen z.B. von Informationen, die aus der Kennzeichnungspflicht bestimmter Inhaltsstoffe abzuleiten sind). Zudem weisen auch Lackhersteller darauf hin, daß die Zusammensetzung der Lösemittel in den einzelnen Produkten von Charge zu Charge durchaus Schwankungen aufweisen kann. Hinsichtlich der vorhandenen Daten und Informationen liegen damit keine näheren Anhaltspunkte vor, die ein differenzierteres Ranking der Unsicherheitsbandbreiten je Anwendungsbereich nahelegen würden.

Faßt man die Einordnungen von Unsicherheiten der Ermittlung hochaufgelöster Emissionen für die einzelnen Anwendungsbereiche von Anstrichmitteln und Verdünnungen – nach Emissionsanteilen gewichtet - zusammen, so ist der Ermittlung von Jahresemissionen eine relativ geringe Unsicherheit zuzuordnen, während die Datenbasis zur zeitlichen Disaggregation insgesamt ein deutlich höheres Maß an Unsicherheiten aufweist.

#### **4.6.2 Oberflächenbehandlung**

Dem Stichwort Oberflächenbehandlung wird hier der industrielle/gewerbliche Einsatz von Entfettungs- und Reinigungsmitteln, Abbeizmitteln sowie Textilreinigungsmitteln zugeordnet.

##### **4.6.2.1 Ermittlung des Inlandsverbrauches**

Die Ermittlung der Emissionen aus der Anwendung von Entfettungs- und Reinigungsmitteln, die vorrangig in der Metallverarbeitung sowie in geringerem Umfang in der Kunststoffverarbeitung und im Bereich der Feinoptik eingesetzt werden, ist insofern ein Problem, als sich der Inlandsverbrauch nicht aus verfügbaren statistischen Daten ableiten läßt. Selbiges gilt für den Einsatz von Chemikalien zum Entfernen von Farben und Lacken sowie zur Textilreinigung. D.h., weder in der Produktions- noch in der Außenhandelsstatistik werden die in diesen Quellgruppen eingesetzten chemischen Erzeugnisse explizit ausgewiesen.

Somit können Abschätzungen des Stoffeinsatzes und der Emissionen nur über die Auswertung vorhandener Literaturangaben bzw. anderweitig durchgeführter Detailuntersuchungen vorgenommen werden, wobei zwischen Chlorkohlenwasserstoffen einerseits und sonstigen VOC andererseits unterschieden wird (siehe z.B. [VCI 1996, ENQUETE 1994]). Der Bereich Chlorkohlenwasserstoffe kann im Hinblick auf die 2. BImSchV als vergleichsweise detailliert untersucht angesehen werden, während Abschätzungen des - gesetzlich nicht direkt geregelten - Einsatzes und der Emission von Kohlenwasserstoffen und oxidierten Kohlenwasserstoffen mit deutlich größeren Unsicherheiten behaftet sein dürften. Nach erfolgter Umsetzung der 2. BImSchV spielen dabei letztgenannte Substanzen bei der Metallentfettung eine mengenmäßig größere Rolle als die Chlorkohlenwasserstoffe, so daß die Unsicherheitsbandbreiten hier eher als überdurchschnittlich einzuordnen sind. Hingegen spielen bei der Textilreinigung CKW immer noch eine dominierende Rolle.

**4.6.2.2 Zuordnung des Produktverbrauches und der Emissionen zu Anwendungsbereichen sowie Regionalisierung**

Die insbesondere für die Regionalisierung der Emissionen bedeutsame Zuordnung der Gesamtemissionen auf einzelne Wirtschaftszweige bzw. Anwendungsbereiche (insbesondere im Bereich metallverarbeitender Branchen) stützt sich im Falle der Entfettungs- und Reinigungsmittel auf eine dem branchenbezogenen Aufkommen an CKW-haltigen und CKW-freien Lösemittelabfällen proportionale Verteilung. Dieses methodische Vorgehen wird in [OBERMEIER 1995] näher beschrieben. Die branchenbezogene Disaggregation der Abbeizmittel-Verwendung erfolgt proportional zum entsprechenden Lackeinsatz in den jeweiligen Branchen bzw. Anwendungsbereiche, wobei die diesem Ansatz zugrunde liegenden Annahmen eine sehr grobe Näherung darstellen dürften. Da Chemischreinigungen einen eigenen Wirtschaftszweig bilden, ist hier keine weitere branchenbezogene Disaggregation von Gesamtverbrauch bzw. Emission durchzuführen.

Im Falle des Einsatzes von Entfettungs- und Reinigungsmitteln kann wiederum exemplarisch geprüft werden, inwieweit sich branchenbezogene Daten des Gesamtverbrauchs anhand von Beschäftigtenzahlen regionalisieren lassen, bzw. welche Unsicherheiten damit verbunden sind. Hierfür dienen ausgewertete Ergebnisse einer vom Statistischen Landesamt Baden-Württemberg durchgeführten Betriebsbefragung [STALA 1998]. Aus Tabelle 30 wird deutlich, daß die Fehlerbandbreite über die Summe der Betriebe im Bereich des Maschinenbaus – wie schon im Falle der Lackanwendung (vgl. Tabelle 28) – vergleichsweise gering ist, während in den übrigen Wirtschaftszweigen wiederum z.T. sehr hohe Unsicherheiten zu verzeichnen sind.

Tab. 30: Fehlerbandbreiten des beschäftigtenbezogenen Einsatzes an Entfettungs- und Reinigungsmitteln für eine Auswahl an Betrieben in verschiedenen Wirtschaftszweigen

| Branche   | Anzahl Betriebe | Variationskoeffizienten der Mediane (Summe Betriebe) |        | Variationskoeffizienten der Mediane (Einzelbetriebe) |         |
|---|-----------------|--|--------|--|---------|
| Ziehereien, Walzwerke etc.                              | 20              | -10 %  | +70 %  | -45 %  | +314 %  |
| Maschinenbau  | 98              | -7 %   | +27 %  | -72 %  | +263 %  |
| Straßenfahrzeugbau                                      | 30              | -14 %  | +137 % | -79 %  | +752 %  |
| Elektrotechnik  | 56              | -10 %  | +69 %  | -72 %  | +514 %  |
| Herst. v. EBM-Waren                                     | 37              | -14 %  | +158 % | -83 %  | +963 %  |
| Kunststoffverarbeitung                                  | 37              | -14 %  | +201 % | -84 %  | +1220 % |
| Alle untersuchten Betriebe (inklusive weitere Branchen) | (405)           | -4 %   | +25 %  | -87 %  | +496 %  |

Betrachtet man die Gesamtzahl aller untersuchten Betriebe, unter Einbeziehung weiterer, hier nicht explizit ausgewiesener Branchen, so bewegen sich die Variationskoeffizienten der Mediane insgesamt zwischen  $-4\%$  und  $+25\%$ . Sie sind damit noch etwas geringer als bei der zuvor diskutierten Lackanwendung.

Regionalisierte Beschäftigtendaten von Wäschereien und Chemischreinigungen stehen lediglich aus der Arbeitsstättenzählung von 1987 für Westdeutschland zur Verfügung. Da in den letzten Jahren ein deutlicher Rückgang der Zahl kleinerer Betriebe stattgefunden hat, stellt der Einsatz dieser Beschäftigtenzahlen als Indikatorgröße zur räumlichen Disaggregation inzwischen keine so gute Näherung mehr dar.

Die hier diskutierten Quellengruppen umfassen keine Anlagenarten, für die gemäß 11. BImSchV Emissionserklärungen abzugeben sind, so daß auch keine entsprechenden punktquellenbezogenen Daten zur Verfügung stehen.

#### **4.6.2.3 Zeitliche Disaggregation**

Zur Durchführung zeitlicher Disaggregationen der Jahresemissionen aus der Verwendung von Entfettungs- und Abbeizmitteln kann prinzipiell auf dieselben Zeitgänge zurückgegriffen werden, die für die Lackierung zusammengestellt wurden. Lediglich anlagenbezogene Daten stehen nicht zur Verfügung. Erhöhte Unsicherheiten durch verzögert auftretende Emissionen – wie sie bei der Lufttrocknung von Lacken z.B. außerhalb von Anlagen auftreten – sind vor allem beim Einsatz von Abbeizmitteln nicht auszuschließen. Im Falle der Chemischreinigungen ist zu beachten, daß mit dem Fehlen monatlicher Produktionsindizes keine geeignete Basis zur Ableitung von Jahresgängen zur Verfügung steht.

#### **4.6.2.4 Stoffliche Aufgliederung**

Die Anteile einzelner CKW am Gesamteinsatz chlorierter Kohlenwasserstoffe in den hier besprochenen Quellgruppen sind relativ genau bekannt. Weniger detailliert stellt sich demgegenüber der Kenntnisstand über die Zusammensetzung der CKW-freien Komponenten dar. Daraus resultieren für den Bereich Entfettungs- und Reinigungsmittel überdurchschnittliche Unsicherheiten in der stofflichen Disaggregation, in der Textilreinigung hingegen relativ geringe Fehlerbandbreiten.

#### 4.6.2.5 Gesamteinschätzung der Unsicherheiten

Fügt man die in den vorangegangenen Abschnitten diskutierten Aspekte zu einem Gesamtbild zusammen, so ergibt sich die in Tabelle 31 dargestellte qualitative Einschätzung der Unsicherheiten von Jahresemissionen sowie deren räumlicher, zeitlicher und stofflicher Disaggregation. Bei den mengenmäßig bedeutsamsten Emissionen aus Entfettungs- und Reinigungsmitteln treten insgesamt die höchsten Unsicherheiten auf, wodurch auch das Gesamtergebnis der Quellgruppe Oberflächenbehandlung geprägt wird. In der Textilreinigung, deren Emissionsrelevanz nach Umsetzung der 2. BImSchV deutlich abgenommen hat, finden sich hingegen die insgesamt kleinsten Fehlerbandbreiten.

Tab. 31: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus der Oberflächenbehandlung

| Anwendungsbereiche                         | Unsicherheitsbandbreiten |               |               |            | Anteile an Emission |
|--|--------------------------|---------------|---------------|------------|---------------------|
|  | Jahreswert               | Ortsauflösung | Zeitauflösung | VOC-Profil |                     |
| Entfettungs- und Reinigungsmittel          | 4                        | 4             | 4             | 4          | 5,2 %               |
| Abbeizmittel                               | 3                        | 5             | 4             | 3          | 1,1 %               |
| Textilreinigung                            | 2                        | 3             | 4             | 2          | 0,4 %               |
| Oberflächenbehandlung<br>(Gesamtbewertung) | 4                        | 4             | 4             | 4          | 6,7 %               |

#### 4.6.3 Sonstige Emittentenbereiche

Mit den bislang diskutierten Emittentenbereichen der Anstrichmittel und der Oberflächenbehandlung sind rund 45 % der NMVOC-Emissionen aus der Anwendung von organischen Lösemitteln abgedeckt. Die restlichen Emissionen verteilen sich auf eine ganze Reihe weiterer Quellsektoren, für die jedoch keine ausreichende Datengrundlage für statistische Fehlerbetrachtungen zur Verfügung steht. Zur besseren Vergleichbarkeit relativer Unsicherheiten werden die einzelnen Rechenschritte sowie die jeweilige Eingangsdatenbasis zur Ermittlung hochaufgelöster Emissionsdaten für alle Quellsektoren im folgenden zusammenfassend erörtert und bewertet.

Die in Tabelle 32 ausgewiesenen Quellsektoren umfassen rund 97 % der neben Lackierung und Oberflächenbehandlung anfallenden Emissionen. Der Bereich „Konsumgüter im Haushalt“ beinhaltet hierbei verschiedenste Körperpflegemittel, Putz- und Pflegemittel sowie Seifen und Waschmittel. Unter den Betonzusatzmitteln werden u.a. Entschalungs- sowie Imprägniermittel subsumiert.

Weitergehende Erläuterungen zu den in Tabelle 32 ausgewiesenen Bewertungen der Unsicherheitsbandbreiten finden sich in den darauffolgenden Abschnitten.

Tab. 32: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus der Anwendung von organischen Lösemitteln (ohne Lackierung und Oberflächenbehandlung)

| Quellsektoren   | Unsicherheitsbandbreiten |               |               |            | Anteile an Emission |
|---|--------------------------|---------------|---------------|------------|---------------------|
|   | Jahreswert               | Ortsauflösung | Zeitauflösung | VOC-Profil |                     |
| Konsumgüter im Haushalt   | 3                        | 2             | 5             | 2          | 12,3 %              |
| Druckfarben- u. Druckhilfsmittel  | 2                        | 2             | 3             | 2          | 9,9 %               |
| Kunststoffverarbeitung  | 4                        | 4             | 4             | 3          | 9,1 %               |
| Betonzusatzmittel u.ä.  | 3                        | 3             | 4             | 4          | 5,5 %               |
| Kühlschmierstoffe   | 3                        | 4             | 3             | 4          | 3,4 %               |
| Chemische Industrie   | 2                        | 2             | 2             | 5          | 2,6 %               |
| Klebstoffe  | 2                        | 3             | 4             | 2          | 2,4 %               |
| Medizinische Praxen   | 5                        | 3             | 4             | 5          | 2,2 %               |
| Holzschutzmittel  | 2                        | 3             | 4             | 4          | 1,9 %               |
| Asphaltherstellung u.- verarbeitung   | 4                        | 4             | 4             | 4          | 0,9 %               |
| wissenschaftliche Laboratorien  | 5                        | 4             | 3             | 5          | 0,9 %               |
| Kfz Unterbodenschutz/Konservierung  | 4                        | 4             | 3             | 4          | 0,9 %               |
| Treibgase in Spraydosen   | 3                        | 2             | 5             | 2          | 0,7 %               |
| Extraktion von Fetten u. Ölen   | 2                        | 1             | 2             | 1          | 0,7 %               |
| Lösemittelanwendung, ohne Lackierung und Oberflächenbehandlung<br>(Gesamtbewertung) | 3                        | 3             | 4             | 3          | 53,2 %              |

#### **4.6.3.1 Ermittlung von Jahresemissionen**

Die Ermittlung der jährlichen NMVOC-Emissionen aus der Anwendung von Druckfarben und Druckhilfsmitteln, Klebstoffen, sowie aus Produktionsprozessen in der Chemischen Industrie und bei der Fett- bzw. Ölextraktion kann sich jeweils auf eine Datengrundlage überdurchschnittlicher Qualität stützen. Für die beiden erstgenannten Bereiche stehen Ergebnisse umfangreicherer Detailuntersuchungen zur Verfügung (siehe [BMU/VCI 1997]). Hingegen ist im Falle der Produktionsprozesse in der Chemischen Industrie sowie insbesondere auch bei der Extraktion von Fetten und Ölen davon auszugehen, daß die auftretenden Emissionen zum weit überwiegenden Teil durch Daten aus Emissionserklärungen erfaßt sind. Auch die Datenbasis im vergleichsweise homogen strukturierten Bereich der Anwendung von Holzschutzmitteln ist als gut zu bewerten.

Für die den Konsumgütern zugeordneten Erzeugnisarten stehen zwar ausführliche Daten zum jeweiligen mittleren Lösemittelgehalt zur Verfügung. Die Genauigkeit der Emissionsabschätzungen wird jedoch dadurch reglementiert, daß der Warenaußenhandel von Erzeugnisarten mit z.T. sehr unterschiedlichem Lösemittelgehalt nur in aggregierter Form berücksichtigt werden kann. Zudem ergeben sich teilweise Abgrenzungsprobleme zu den ebenfalls in Tabelle 32 ausgewiesenen Treibgasanwendungen in Spraydosen. Die Einsatzmengen an Treibmitteln in Haarsprays und anderen Körperpflegemitteln, sonstigen Pflegemitteln, Lacksprays etc. sind zwar dokumentiert, jedoch ist die Vermeidung von Überschneidungen bzw. Doppelzählungen im Konsumgüterbereich, im Anstrichmittelbereich usw. nicht zweifelsfrei gewährleistet. So können Treibmittel in Spraydosen z.B. gleichzeitig als Lösungsvermittler fungieren. Eher durchschnittliche Unsicherheitsbandbreiten sind auch den Betonzusatzmitteln sowie Kühlschmierstoffen zuzuordnen, wobei hier Literaturangaben zu Emissionsanteilen bzw. mittlerem Lösemittelgehalt teilweise als Anhaltswerte zu interpretieren sind.

Signifikante Datenlücken bzw. erhöhte Unsicherheiten von Emissionsabschätzungen treten zumindest in Teilbereichen der Kunststoffverarbeitung auf. Größere Anlagen zur Beschichtung von Materialien mit Kunststofflösungen sowie zur Kunststoffverarbeitung (z.B. Polyesterharze, Epoxidharze, Kunststoff/Weichmacher-Gemische, Polyurethan-Verschäumung) sind zwar gemäß dem Anhang zur 4. BImSchV immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftig, so daß ein Teil der Emissionen durch Auswertung von Daten aus Emissionserklärungen erfaßt werden kann. Allerdings gestaltet sich der notwendige Abgleich dieser betriebs- bzw. anlagenbezogenen Daten mit den ergänzenden flächenhaften Berechnungen auf statistischer Datenbasis schwierig, da Art und Umfang der in der Verarbeitung gehandhabten Stoffe häufig nur unspezifisch und offensichtlich unvollständig wiedergegeben sind. Zudem berücksichtigen die vorliegenden Emissionsfaktoren die

z.T. beträchtlichen Unterschiede im Emissionsverhalten verschiedener Prozesse nicht oder nur in sehr aggregierter Form.

Letztlich basieren die Emissionsdaten für medizinische Praxen und wissenschaftliche Laboratorien allein auf Angaben bzw. Emissionsfaktoren in [INFRAS 1994], wobei es sich hier jeweils um grobe Abschätzungen der jährlichen Emissionen je Arbeitsplatz handelt, basierend auf stichprobenhaften Umfragen in verschiedenen Schweizer Kantonen sowie Auswertungen von Literaturdaten.

Führt man die Einzelbewertungen anhand einer mengenmäßigen Gewichtung zusammen, so ergeben sich als rechnerischer Mittelwert Unsicherheiten, die als durchschnittlich einzuordnen sind. Ein solches Ergebnis kann freilich nicht als Resultat einer statistischen Fehlerrechnung interpretiert werden. Es soll lediglich als Orientierungshilfe in der Zusammenführung von Einzelbewertungen dienen.

#### **4.6.3.2 Regionalisierung der Emissionsdaten**

Hinsichtlich der Unsicherheiten bei der Regionalisierung von NMVOC-Emissionen wird die Liste der Anwendungsbereiche von der Extraktion von Fetten und Ölen angeführt. Die Emissionen können hierbei allein den Standorten immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftiger Anlagen zugeordnet werden.

Die Optionen zur räumlichen Disaggregation der Emissionen aus der Anwendung von Konsumgütern und Spraydosen sowie aus Produktionsprozessen in der Chemischen Industrie können ebenfalls noch als überdurchschnittlich gut bewertet werden. Während die erstgenannten Produkte sich in guter Näherung über die Einwohnerstatistik verteilen lassen, werden die Emissionen in der Chemischen Industrie zumindest überwiegend über betriebs- bzw. anlagenbezogene, und damit standortbezogene Daten aus Emissionserklärungen abgedeckt. Auch die Anwendung von Druckfarben und Druckhilfsmitteln läßt sich diesem Bereich der Bewertungsskala zuordnen. Die emissionsrelevanten Prozesse erfolgen zwar nicht vollständig, jedoch weit überwiegend im Wirtschaftszweig „Druckereien“, so daß die entsprechenden Beschäftigtendaten dieser Branchen als brauchbare Indikatoren zur Regionalisierung zur Verfügung stehen.

Gegenüber früheren Jahren erheblich verbessert hat sich die Datenlage in der Klebstoffanwendung. In [BMU/VCI 1997] werden die Verwendungsmengen lösemittelhaltiger Klebstoffe und die daraus resultierenden NMVOC-Emissionen, nach den wesentlichen Anwendungsbereichen aufgeschlüsselt, angegeben. Einschränkend ist jedoch zu vermerken, daß lösemittelhaltige Klebstoffe men-

genmäßig nur einen Bruchteil des gesamten Klebstoffmarktes umfassen. Dadurch ergeben sich erhöhte Inhomogenitäten innerhalb der einzelnen Anwendungsbereiche bzw. Branchen. Durchschnittliche Unsicherheiten werden des Weiteren dem Bautenbereich und dem Holzschutz zugeordnet, wo insbesondere Daten über Siedlungsflächen, Gebäudebestand bzw. Bautätigkeiten als Indikatoren zur Regionalisierung genutzt werden.

Überdurchschnittliche Unsicherheiten ergeben sich unter den mengenmäßig bedeutsameren Emissionenbereichen bei der Kunststoffverarbeitung und dem Einsatz von Kühlschmierstoffen. Bei der Herstellung halboffener Schaumkunststoffe erfolgt ein Teil der Emissionen bzw. der Freisetzung von Treibmittel unter Umständen gar nicht im Herstellungsbetrieb sondern beim späteren Gebrauch. Im Falle geschlossener Schäume verzögert sich die Freisetzung gegebenenfalls bis zur Zerstörung bzw. Zersetzung des Schaumstoffes auf der Mülldeponie, oder es kommt bei einer thermischen Verwertung in der Müllverbrennung gar nicht zur Freisetzung des Treibmittels. Der Einsatz von Kühlschmierstoffen erfolgt zwar vorrangig im Bereich der Metallverarbeitenden Industrie, zur differenzierteren Aufschlüsselung nach einzelnen Wirtschaftszweigen fehlt es jedoch an einer geeigneten Datengrundlage.

Wie schon im Falle der Unsicherheiten in der Berechnung von Gesamtemissionen je Quellgruppe ergibt sich bei der Zusammenführung der Einzelbewertungen ein rechnerischer Mittelwert, der auf eine durchschnittliche Unsicherheit hindeutet.

#### **4.6.3.3 Zeitliche Disaggregation jährlicher Emissionsdaten**

Mit Daten aus Emissionserklärungen für Anlagen zur Fett- bzw. Ölextraktion steht eine überdurchschnittlich gute Grundlage zumindest zur Bildung von Tages- und Wochengängen der Emission. Hingegen ist die Formulierung eines Jahresganges anhand von monatlichen Produktionsindizes hier mit größeren Unsicherheiten behaftet, da für diesen Bereich des Nahrungsmittelgewerbes keine separaten Produktionsindizes verfügbar sind, und somit auf Daten für übergeordnete Produktionsbereiche zurückgegriffen werden muß. Die erwähnte Einschränkung bezüglich Jahresgänge trifft nicht auf die Chemische Industrie zu, so daß hier die Datenlage tendenziell eher noch etwas besser zu bewerten ist.

In einigen weiteren Bereichen, d.h. der Anwendung von Druckfarben und Druckhilfsmitteln, Kühlschmierstoffen, sowie bei wissenschaftlichen Laboratorien, der Aufbringung von Kfz-Unterbodenschutz und der Transportkonservierung von Fahrzeugkarosserien, liegen keine näheren

Anhaltspunkte für eine über- oder unterdurchschnittliche Bewertung der Unsicherheiten in der zeitlichen Auflösung der Emissionen vor.

Überdurchschnittliche Unsicherheiten ergeben sich zum einen in der Kunststoffverarbeitung, und zwar bei der Verschäumung von Kunststoffen. Je nachdem, ob offenzellige, halboffene oder geschlossene Schaumstoffe hergestellt werden, entweichen die zur Produktion eingesetzten Treibgase mit einer mehr oder minder langen zeitlichen Verzögerung (siehe Abschnitt „Regionalisierung der Emissionsdaten“). Auch beim Einsatz von Bautenschutz- und Holzschutzmitteln sowie bei der Asphaltverarbeitung kann sich die Freisetzung von Lösemitteln über längere Zeiträume erstrecken. Besonders hoch sind die Unsicherheiten in der zeitlichen Disaggregation der Emissionen aus Konsumgütern und Spraydosen. Vorrangig in Haushalten eingesetzt, stehen hier keine statistischen Daten zur Verfügung, aus denen sich Jahressgänge, Wochengänge und Tagesgänge ableiten lassen. Somit kann hier eine zeitliche Disaggregation lediglich auf plausiblen Annahmen aufbauen.

Die Gesamtbetrachtung der Unsicherheiten durch eine Gewichtung der Einzelbewertungen weist im Falle der zeitlichen Disaggregation auf überdurchschnittliche Fehlerbandbreiten hin.

#### **4.6.3.4 Stoffliche Disaggregation von NMVOC-Emissionen**

Die Aufschlüsselung von Lösemittel-Emissionen nach Einzelsubstanzen oder Stoffklassen (z.B. entsprechend der chemischen Struktur der Verbindungen in Alkane, Aromaten, Alkohole etc.) erfolgt anhand von Angaben über die Zusammensetzung der Lösemittel bzw. die flüchtigen Inhaltsstoffe lösemittelhaltiger Erzeugnisse. Stoffliche Veränderungen durch chemische Reaktionen finden in der Regel nicht statt.

Die hier vorgenommene Bewertung der Unsicherheiten in der stofflichen Disaggregation von NMVOC-Gesamtemissionen zielt weniger auf die Ermittlung von Einzelkomponenten ab, sondern vielmehr auf die Ausweisung von Stoffklassen, wie sie als Input für gängige Chemiemodule in Chemie-Transport-Modellen benötigt werden. Als Beispiel sei hier die Einteilung in insgesamt 32 Stoffklassen gemäß [MIDDLETON 1990] herangezogen, die u.a. als Basis zur Zusammenstellung von NMVOC-Eingabedaten für das häufiger verwendete RADM2.0-System genutzt werden kann.

Bei der Extraktion von pflanzlichen Fetten und Ölen wird nach heutigem Kenntnisstand ausschließlich n-Hexan verwendet, so daß hier keine Unsicherheiten in der stofflichen Zuordnung der NMVOC-Emissionen zu erwarten sind. Eine relativ gute Datengrundlage ist auch in den Bereichen

Konsumgüter (unterteilt nach Körperpflegemitteln, Putz- und Pflegemitteln sowie Seifen und Waschmitteln), Druckfarben und Druckhilfsmittel, Klebstoffe und Treibgase zu konstatieren.

In der Kunststoffverarbeitung ist dies nur teilweise der Fall, und zwar bei der Verschäumung, wo z.B. EPS-Schaumstoff nahezu ausschließlich mit n-Pentan und i-Pentan hergestellt wird. In anderen Bereichen der Kunststoffverarbeitung liegen demgegenüber weitaus weniger konkrete Hinweise auf die Zusammensetzung der NMVOC-Emissionen vor, so daß die Datenlage insgesamt in diesem Emittentenbereich eher als durchschnittlich zu bewerten ist.

In anderen Bereichen, wie z.B. bei Bautenschutz- und Holzschutzmitteln, bei Kühlschmierstoffen, Kfz-Unterbodenschutz und Transportkonservierungen läßt die derzeit verfügbare Datenbasis kaum eine explizite Aufschlüsselung nach Einzelkomponenten zu. Basierend auf Hinweisen zu den Anteilen der wesentlichen Stoffgruppen können häufig lediglich Annahmen über die in jeder Stoffgruppe vorrangig vorkommenden Spezies getroffen werden, so daß mit erhöhten Unsicherheiten auch bei der Bildung von z.B. 32 VOC-Stoffklassen zu rechnen ist.

Letztlich sind die in der Chemischen Industrie sowie auch in wissenschaftlichen Laboratorien ablaufenden Prozesse hinsichtlich der NMVOC-Emissionen und ihrer Zusammensetzung durch ein ausgesprochen hohes Maß an Inhomogenität geprägt. Die Formulierung eines für diese Quellengruppen spezifischen VOC-Profiles ist daher kaum möglich bzw. mit äußerst hohen Unsicherheiten verbunden. Der Umstand, daß ein wesentlicher Teil der Emissionen aus der Chemischen Industrie über die Einbeziehung von Daten aus Emissionserklärungen erfaßt wird, kann dieses Defizit nur ansatzweise beheben. Dies liegt wiederum daran, daß VOC-Emissionen in den Emissionserklärungen vielfach nicht als Einzelkomponenten ausgewiesen werden, sondern nur summarisch als „organische Komponenten“, „Lösungsmittel“ etc.

Eine gewichtete Zusammenführung der Einzelbewertungen führt im Falle der stofflichen Disaggregation zu Unsicherheiten, die als durchschnittlich zu bewerten sind. Dabei ist nochmals zu betonen, daß als Bewertungsmaßstab hier die auf den Einsatz von Chemie-Transport-Modellen orientierte Bildung bestimmter Speziesklassen herangezogen wird. Die Unsicherheiten in der Ausweisung von Einzelstoffen sind in der Regel als noch größer zu beurteilen.

## 4.7 Zusammenfassung Lösemittel-Emissionen

In Tabelle 33 sind die 5 wichtigsten Quellgruppen, die zusammen einen Anteil von mehr als 75 % der gesamten Lösemittel-Emissionen verursachen, sowie die übrigen Emittentenbereiche in zusammenfassender Form nochmals ausgewiesen.

Die Datenbasis zur Ermittlung zeitlich, räumlich und stofflich hochaufgelöster Emissionsdaten stellt sich für die Anwendung von Druckfarben und Druckhilfsmitteln als die belastbarste dar. Es folgen die Anstrichmittel und Verdünnungen sowie die Konsumgüter für den Haushaltsbereich. Letztgenannter Bereich weist dabei insbesondere Defizite in der zeitlichen Auflösung auf, während im Gegensatz dazu die Ortsauflösung und die Spezifizierung von VOC-Komponenten mit relativ geringen Unsicherheiten verbunden ist. Auch die unter „sonstige Emittentenbereiche“ zusammengefaßten Quellen weisen insgesamt noch eine zufriedenstellende Eingangsdatenbasis auf. Die höchsten Unsicherheiten liegen hier in der Spezifizierung der VOC-Komponenten begründet. An letzter Stelle dieser Rangliste stehen die Kunststoffverarbeitung sowie die Oberflächenbehandlung mit überdurchschnittlichen Unsicherheiten in nahezu allen Schritten der Emissionsberechnung.

Tab. 33: Einordnung der Unsicherheitsbandbreiten berechneter NMVOC-Emissionen aus den mengenmäßig bedeutsamsten Quellgruppen

| Quellsektoren                            | Unsicherheitsbandbreiten |               |               |            | Anteile an Emission |
|--|--------------------------|---------------|---------------|------------|---------------------|
|  | Jahreswert               | Ortsauflösung | Zeitauflösung | VOC-Profil |                     |
| Anstrichmittel und Verdünnungen          | 2-3                      | 3             | 3-4           | 3          | 38,3 %              |
| Konsumgüter im Haushalt                  | 3                        | 2             | 5             | 2          | 12,3 %              |
| Druckfarben- u. Druckhilfsmittel         | 2                        | 2             | 3             | 2          | 9,9 %               |
| Kunststoffverarbeitung                   | 4                        | 4             | 4             | 3          | 9,1 %               |
| Oberflächenbehandlung                    | 4                        | 4             | 4             | 4          | 6,7 %               |
| sonstige Emittentenbereiche              | 3                        | 3             | 3-4           | 4          | 23,7 %              |
| Lösemittelanwendung<br>(Gesamtbewertung) | 3                        | 3             | 4             | 3          | 100,0 %             |

Faßt man alle unter dem Begriff „Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen“ subsumierten Emittentenbereiche zusammen, und zwar gewichtet nach ihren jeweiligen

Emissionsanteilen, so ergeben sich insgesamt Unsicherheiten, die als durchschnittlich einzuordnen sind. Dies trifft auf die Datengrundlage zur Ermittlung von Jahreswerten der Emission zu, auf die Ortsauflösung sowie auch die zur Verfügung stehenden Daten zur Aufschlüsselung von NMVOC nach Stoffgruppen. Überdurchschnittliche Fehlerbandbreiten sind dagegen in der zeitlichen Disaggregation jährlicher Emissionen zu konstatieren. Zur Schließung vorhandener Daten- und Informationslücken sind hier verstärkt Annahmen über Jahres-, Wochen- und Tagesgänge der emissionsverursachenden Aktivitäten bzw. der Emissionen erforderlich.

Eine Überführung der im Lösemittelsektor vorgenommenen qualitativen Bewertungen der Unsicherheiten von Emissionsberechnungen in quantitative Bewertungen, wie dies z.B. in [RIVM 1997] vorgenommen wurde, kann lediglich einen orientierenden Charakter haben. Eine Vergleichbarkeit mit den weitaus detaillierteren und belastbareren Ergebnissen für den Sektor Straßenverkehr ist dabei kaum bzw. nur sehr eingeschränkt gegeben. Jedoch kann zumindest ein Eindruck über die Größenordnung der zu erwartenden Unsicherheiten vermittelt werden.

Angelehnt an die in [RIVM 1997] vorgeschlagene Skalierung sowie unter Abwägung der in Expertengesprächen zusammengetragenen groben Einschätzungen der Unsicherheiten verschiedener Eingangsdaten, werden der gebildeten 5-stufigen qualitativen Bewertungsskala näherungsweise die in Tabelle 34 angegebenen Unsicherheitsbandbreiten zugeordnet.

Tab. 34: Zuordnung geschätzter Unsicherheitsbandbreiten zu den im Lösemittelsektor verwendeten qualitativen Bewertungsstufen

| Bewertungsstufe | geschätzte Bandbreite der Variationskoeffizienten |
|-----------------|---|
| 1               | bis $\pm 15 \%$                                   |
| 2               | $\pm 15 \%$ bis $\pm 30 \%$                       |
| 3               | $\pm 30 \%$ bis $\pm 50 \%$                       |
| 4               | $\pm 50 \%$ bis $\pm 100 \%$                      |
| 5               | über $100 \%$                                     |

Diese Zuordnung beinhaltet somit eine nicht-lineare Abstufung der Bewertungsskala. In den bisher durchgeführten Gesamtbewertungen für die Bereiche Lackanwendung, Oberflächenbehandlung, sonstige Lösemittelanwendungen, sowie in der zusammenfassenden Bewertung des gesamten Lösemittelsektors ist eine solche Nicht-Linearität – d.h. eine überproportionale Zunahme der Unsicherheitsbandbreiten in Richtung auf das untere Ende der Bewertungsskala - nicht berücksichtigt. Dies erscheint auch gerechtfertigt, da z.B. die Unsicherheiten der Gesamtemissionen aus der Anwendung von Anstrichmitteln und Verdünnungen tendenziell niedriger liegen als die Unsicherhei-

ten der nach Anwendungsbereichen disaggregierten Emissionen. Da die Emission nicht kleiner Null werden kann, kann auch die untere Grenze der Unsicherheitsbandbreite einen relativen Wert von -100 % nicht unterschreiten. Das bedeutet, in Bewertungsstufe 5 liegt in jedem Fall eine linkssteile Verteilung vor.

Gemäß Tabelle 33 ergibt sich damit für die Unsicherheit der berechneten NMVOC-Jahresemission aus der Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen eine Bandbreite des Variationskoeffizienten zwischen  $\pm 30\%$  und  $\pm 50\%$ . Beim gegenwärtigen Kenntnisstand erscheint diese Bandbreite realistisch, zudem deckt sie sich mit der Einschätzung in [RIVM 1997].

Eine Bandbreite zwischen  $\pm 30\%$  und  $\pm 50\%$  wird auch dem Schritt der räumlichen Disaggregation flächenhaft ermittelter Emissionen zugeordnet, wobei dies nur einen sehr summarischen Anhaltswert darstellen kann. Auf Kreisebene bzw. in größeren Gemeinden mit entsprechend hoher Zahl an Einwohnern und Betrieben ist tendenziell mit niedrigeren Unsicherheiten zu rechnen. Auch die Industriestruktur spielt eine Rolle, da – wie gezeigt – z.B. der Lackeinsatz in Betrieben des Maschinenbaus oder der Holzverarbeitung homogener verteilt ist als in anderen Branchen. Während dessen treten in Gebieten mit einer kleinen Zahl an Einwohnern und Betrieben erheblich höhere Unsicherheiten als  $\pm 50\%$  auf. Die Umlegung von Emissionsdaten, die auf die Ebene administrativer Einheiten disaggregiert wurden, auf die aus Landnutzungsdaten bestimmbaren Siedlungsflächen innerhalb dieser administrativen Einheiten, ist zwar kaum mit zusätzlichen Unsicherheiten verbunden. In guter Näherung kann angenommen werden, daß Emissionen aus der Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen zum weit überwiegenden Teil innerhalb von Siedlungsflächen auftreten. Bei einer Rasterung der flächenbezogenen Emissionsdaten erhöhen sich die Unsicherheiten dann nochmals deutlich, wenn die Flächen der einzelnen Rasterelemente wesentlich kleiner als die Flächen der administrativen Einheiten gewählt werden. Ausgenommen von dieser Betrachtung der Unsicherheiten räumlicher Disaggregation sind freilich die über Quellenkoordinaten direkt räumlich zuordbaren Emissionen von immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftigen Anlagen.

Da die zeitliche Disaggregation jährlicher Emissionsdaten in teilweise größerem Umfang auf Annahmen aufbaut, und viele Lösemittelanwendungen - insbesondere bei Kleinanwendungen - eher sporadisch als kontinuierlich erfolgen, sind die diesem Arbeitsschritt zuzuordnenden Unsicherheiten überdurchschnittlich hoch. Auch hier gilt jedoch, wie bereits im Falle der Emissionen des Straßenverkehrs aufgezeigt, daß z.B. Daten stündlicher Emissionen während der Tagesstunden an Werktagen tendenziell mit geringeren Unsicherheiten behaftet sind, hingegen Emissions-

raten während der Nachtstunden und an Wochenendtagen höhere Unsicherheiten als 100 % aufweisen können.

Eine sehr breite Streuung weisen die Unsicherheiten der stofflichen Disaggregation von NMVOC-Gesamtemissionen für die verschiedenen Emittentenbereiche bzw. Anwendungsbereiche von Lösemitteln auf. Die gemäß Tabelle 33 ausgewiesene geschätzte Bandbreite des Variationskoeffizienten zwischen  $\pm 30\%$  und  $\pm 50\%$  kann diesem Umstand sicherlich nicht Rechnung tragen. Wiederum ist festzuhalten, daß die Zusammensetzung der NMVOC-Emissionen für die mengenmäßig bedeutendsten Anwendungsbereiche von Lösemitteln detaillierter bekannt ist, als dies für eine Reihe weiterer, kleinerer Anwendungsbereiche der Fall ist.

Zusammenfassend kann damit die Feststellung getroffen werden, daß hochaufgelöste Daten über die NMVOC-Emissionen aus der Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen mit etwas höheren Unsicherheiten behaftet sind als die für den Straßenverkehr ermittelten Unsicherheiten. Gleichsam ist festzuhalten, daß nicht nur die Höhe der Emissionen räumlich und zeitlich gesehen eine hohe Variabilität aufweist, sondern auch die den hochaufgelösten Emissionsdaten zuzuordnenden Unsicherheiten. Geht man davon aus, daß die fehlerbehafteten Größen nicht korrelieren, so ergibt sich für die hochaufgelösten Emissionsdaten - rein rechnerisch – eine Bandbreite des Variationskoeffizienten, die von  $\pm 72\%$  bis  $+164/-100\%$  reicht. Unterstellt man demgegenüber, daß die fehlerbehafteten Größen korrelieren, d.h. voneinander abhängig sind, so würde sich die Gesamtbandbreite des Variationskoeffizienten nahezu verdoppeln. Bei realistischer Einschätzung ist anzunehmen, daß sich die Gesamtbandbreite des Variationskoeffizienten zwischen diesen beiden Fällen bewegt.

## 5 SCHLUSSBETRACHTUNG UND AUSBLICK

Die Unsicherheiten von Emissionsdaten, welche mit heute verfügbaren Modellen und Eingangsdatensätzen in hoher räumlicher, zeitlicher und stofflicher Auflösung berechnet werden, waren bislang nicht oder nur ansatzweise bekannt, und beschränkten sich vorrangig auf Unsicherheiten in der Ermittlung von jährlichen Gesamtemissionen. Ziel der hier vorgestellten Arbeiten war es deshalb, diesen Kenntnisstand möglichst umfassend zu erweitern, und hierbei auch die Qualität räumlich, zeitlich und stofflich hochaufgelöster Emissionsberechnungen zu bewerten.

Ausgehend von vorhandenen Emissionsmodellen und verfügbaren Eingangsdatensätzen (Stand 1998) wurde am Beispiel der Ozonvorläufersubstanzen  $\text{NO}_x$  und NMVOC versucht, die Unsicherheiten derartiger Emissionsberechnungen für Baden-Württemberg soweit wie möglich zu quantifizieren, zumindest jedoch qualitativ zu bewerten. Die Untersuchungen konzentrierten sich dabei auf die maßgeblichen anthropogenen Emittentenbereiche der genannten Luftverunreinigungen, d.h. den Straßenverkehr sowie im Falle der NMVOC zusätzlich die Anwendung von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen.

Grundsätzlich ist anzumerken, daß die Bestimmung von Unsicherheiten hochaufgelöster Emissionsberechnungen einen größeren Umfang an Eingangsdaten erfordert, und folglich auch mit deutlich höherem Aufwand verbunden ist, als die Berechnung der Emissionen selbst. Im Falle des Straßenverkehrs sind derartig umfangreiche Sätze an Eingangsdaten im wesentlichen vorhanden. Wenngleich auch hier noch Daten- und Kenntnislücken erkennbar sind, erlauben die verfügbaren Angaben doch die Anwendung statistischer Methoden der Fehleranalyse, und somit eine Quantifizierung von Unsicherheiten. Dies ist jedoch im Lösemittelsektor lediglich ansatzweise möglich. Die hier bislang verfügbaren Angaben und Informationen lassen im wesentlichen nur eine qualitative Bewertung der Eingangsdaten und der daraus abgeschätzten Emissionen zu. Deren Überführung in eine eher quantitative Bewertung von Unsicherheiten ist dann nur in sehr grober Näherung möglich.

Die wesentlichen Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die durchgeführten statistischen Fehleranalysen ergeben für die Jahresemissionen auf Außerorts-Straßenabschnitten Variationskoeffizienten (68,3 % - Vertrauensbereich) im Größenbereich zwischen 15 und 25 %. Daneben können systematische Fehler gebräuchlicher Eingangsdatensätze nachgewiesen werden, die insbesondere auf Autobahnabschnitten stark ins Gewicht fallen. Die statistischen Unsicherheiten der Innerorts-Emissionen im Warmbetrieb pro Ge-

meinde liegen mit ca. 35 % deutlich über den Fehlern im Außerortsbereich. Im gleichen Größenbereich liegen die bisher ermittelten Fehlerbandbreiten bei den Kaltstartzuschlägen.

- Die Variationskoeffizienten bei der Ermittlung der Jahresemissionen 1994 für Gesamt-Baden-Württemberg betragen für NO<sub>x</sub> ca. 14 %, für NMHC ca. 19 %. Die höchsten absoluten Fehlerbeiträge (Standardabweichungen) ergeben sich bei NO<sub>x</sub> durch die Innerorts- und die Autobahnemissionen, bei NMHC durch die Kaltstartzuschläge und die Innerorts-Emissionen mit warmem Motor. Darüber hinaus werden nach derzeitigem Kenntnisstand die NO<sub>x</sub>-Emissionen systematisch um ca. 5 % unterschätzt.
- Alle ermittelten Gesamtfehler für den Straßenverkehr sind aufgrund der lückenhaften Datensituation als untere Grenze der tatsächlichen Gesamtfehler anzusehen.
- Bei einem Straßennetz, bei dem lediglich die Koordinaten der Netzknoten, nicht jedoch der tatsächliche geographische Straßenverlauf bekannt sind, muß eine Rasterung mit 2km x 2km – Elementen als kritische Grenze der räumlichen Auflösung angesehen werden.
- Die zusätzlichen Unsicherheiten zeitlich hochaufgelöster (stündlicher) Emissionsdaten sind sehr stark von der Tageszeit und stark vom Wochentag und der Straßenkategorie abhängig. Bei den Pkw wurde für die Variationskoeffizienten ein Bereich von 10 bis 70 %, bei den Lkw von 15 bis 100 % ermittelt.
- Die Unsicherheiten berechneter jährlicher Lösemittel-Gesamtemissionen weisen für die verschiedenen Arten lösemittelhaltiger Erzeugnisse sowie die verschiedenen Anwendungsbereiche bzw. Wirtschaftszweige eine beträchtliche Variabilität auf. Vergleichsweise geringe Unsicherheiten ergeben sich z.B. für Emittentenbereiche, die sich weitgehend durch die Auswertung von Emissionserklärungen für immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftige Anlagen abdecken lassen (Kfz-Serienlackierung, Bandbeschichtung, Fettextraktion, Chemische Industrie), oder für die ausführliche Ergebnisse aus umfangreicheren Detailuntersuchungen bzw. Umfragen zur Verfügung stehen (Kfz-Reparaturlackierung, Druckereien, etc.). Die hier zuzuordnenden Bandbreiten der Variationskoeffizienten zwischen  $\pm 15\%$  und  $\pm 30\%$  sind vom Größenbereich her vergleichbar mit den Unsicherheiten von Emissionen des Straßenverkehrs. In anderen, z.B. bislang wenig untersuchten Bereichen (medizinische Praxen, wissenschaftliche Laboratorien, etc.) liegen die Unsicherheiten demgegenüber weitaus höher. Über den gesamten Lösemittelbereich hinweg betrachtet dürfte sich der Variationskoeffizient in einer Größenordnung von  $\pm 30\%$  bis  $\pm 50\%$
- Im Hinblick auf die Unsicherheiten in der räumlichen und zeitlichen Disaggregation von Lösemittel-Emissionen ist gleichfalls eine beträchtliche Variabilität zu konstatieren. Erhebliche Unterschiede sind dabei nicht nur im Detaillierungsgrad und der Qualität der Eingangsdaten für die verschiedenen lösemittelhaltigen Erzeugnisse und deren Anwendungsgebiete festzustellen. Vielmehr hängen die Unsicherheiten in der Regionalisierung insbesondere auch von

der Zahl der Quellen je Teilgebiet, Raster etc. ab. D.h., je mehr Einwohner und Betriebe in einem Kreis oder einer Gemeinde zu finden sind, um so geringer fallen die Unsicherheiten der Emissionsabschätzungen aus. Damit ergibt sich auch im Lösemittelbereich die für den Straßenverkehr aufgezeigte Tendenz, daß der zeitlichen Verteilung der Emissionen während der Tagesstunden an Werktagen deutlich geringere Unsicherheiten zuzuordnen sind als während der Nachtstunden bzw. an Wochenendtagen.

- Die Ergebnisse der Bewertung der Unsicherheiten im Lösemittelbereich zusammenfassend, bleibt festzuhalten, daß Emissionsspitzen wesentlich präziser ermittelt werden können als die „Hintergrundbelastung“ der Emissionen. Geht man davon aus, daß die fehlerbehafteten Größen nicht korrelieren, so ergibt sich für die räumlich, zeitlich und stofflich hochaufgelösten Emissionsdaten (d.h. für einzelne Emissionswerte) eine Gesamtbandbreite des Variationskoeffizienten von  $\pm 72\%$  bis  $+164/-100\%$ .

Im Hinblick auf weiterführende Arbeiten zur Ermittlung hochaufgelöster Emissionsdaten für Luftverunreinigungen sowie der Bestimmung der Unsicherheiten dieser Emissionsdaten lassen sich folgende Empfehlungen formulieren:

- Bei der Ermittlung von Emissionsdaten des Straßenverkehrs im regionalen Skalenbereich stellen die Emissionsfaktoren in allen Quellenbereichen den mit Abstand größten Unsicherheitsfaktor dar. Die experimentelle Ermittlung von detaillierten Emissionsfaktoren durch zusätzliche Prüfstandsmessungen - insbesondere für Fahrsituationen im Innerortsbereich und auf Autobahnen - ist als vorrangige Aufgabe zur gezielten Verbesserung der Qualität der Emissionsdaten einzustufen. Dabei müssen insbesondere die Bereiche abgedeckt werden, für die bisher keine oder eine nur sehr kleine Datenbasis zur Verfügung steht: hohe Geschwindigkeiten, Kaltstartemissionen, Längsneigungsfaktoren, Verdampfung (Running Losses, Motorräder, Dieselfahrzeuge). Aufgrund des dominierenden Anteils der methodischen Fehler bei der Erstellung der Emissionsfaktoren aus Emissionsfunktionen ist eine Verbesserung der Methodik wünschenswert.
- Zur Klärung der systematischen Abweichungen bei den vorliegenden Emissionsfaktoren sind Messungen von Kfz-Emissionen unter realen Bedingungen (Tunnelmessungen oder Freilandexperimente) und Vergleiche mit berechneten Emissionsdaten zu empfehlen. Dabei sind verschiedene Experimente mit unterschiedlichen Streckencharakteristiken und Flottenzusammensetzungen zusammenfassend auszuwerten.
- Die aufgetretenen systematischen Abweichungen bei den dynamischen Flottenzusammensetzungen sollten durch experimentelle Ermittlungen auf den verschiedenen Straßenkategorien (z.B. durch Kennzeichenauswertungen) möglichst weitgehend eliminiert werden.

- Räumlich höher aufgelöste Emissionsberechnungen für den Straßenverkehr erfordern für den Innerortsbereich detailliertere Modelle zur Abschätzung der gemeindebezogenen Fahrleistungen. Außerdem sind für die Bestimmung der Heiß-/Warmabstellverluste differenzierte Temperaturdaten notwendig (z.B. aus Ergebnissen meteorologischer Modellsimulationen). Außerorts führen zusätzliche Informationen über die Streckencharakteristik und die Verkehrsstärken der einzelnen Fahrzeugkategorien zu verbesserten Emissionsdaten. Für räumliche Rasterungen mit Gittergrößen unter zwei Kilometern sind genaue Informationen über den geographischen Verlauf der Streckenabschnitte - z.B. aus digitalisierten Straßennetzen - erforderlich.
- Die teilweise erheblichen Fehler der zeitlichen Auflösung der Verkehrs-Emissionsdaten in stündliche Werte lassen sich durch die erweiterte Erfassung von Verkehrsstärkeganglinien für eine größere Zahl zusätzlicher Streckenabschnitte (insbesondere auch unter Einbeziehung von Innerortsstraßen) reduzieren.
- Eine Reduzierung der Unsicherheiten in der Berechnung hochaufgelöster Emissionsdaten für den Bereich der Lösemittelanwendung kann insbesondere dann angestrebt werden, wenn folgende Voraussetzungen gegeben sind:
  - Vorliegen einer verbesserten statistischen Datengrundlage, die eine detailliertere Erfassung von Produktion und Außenhandel lösemittelhaltiger Erzeugnisse (z.B. Verdünnungen für Anstrichmittel, Entfettungsmittel etc.) bzw. eine direkte Erfassung des Inlandsverbrauches an flüchtigen organischen Lösemitteln beinhaltet (analog zum statistisch bereits erfaßten Verbrauch an Energieträgern). Diese Datengrundlage könnte nur durch die Statistischen Landesämter erarbeitet werden.
  - Durchführung und zielgerichtete Auswertung umfangreicher Erhebungen zum Einsatz von Lösemitteln und lösemittelhaltigen Erzeugnissen in Industrie, Gewerbe und Haushalt, unter Einbeziehung zurückgewonnener und entsorgter Lösemittelmengen.

Es ist jedoch anzumerken, daß eine derartige Verbesserung der Datengrundlage in jedem Fall mit einem hohen Aufwand verbunden wäre.

## 6 QUELLENVERZEICHNIS

**BAARS (1993):** Baars, H.P.; Builtjes, P.J.H.; Pulles, M.P.J.; Veldt, Chr.: TNO/EURASAP Workshop on the Reliability of VOC Emission Data Bases. - Delft, Niederlande, 9.-10. Juni 1993.

**BACH (1993):** Bach, C.; Paul, A.: Verdampfungs- und Abgasmessungen an leichten Motorwagen. - Arbeitsunterlage 6 zu: Luftschadstoffemissionen des Strassenverkehrs in der Schweiz 1990 - 2010. EMPA, Dübendorf. Im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern, 1993.

**BARTELT (1994):** Bartelt, B.; Regniet, G.; Schmidt, G.; Jost, P.; Sonnenborn, K.-S.: Untersuchung des repräsentativen Fahrverhaltens von Pkw auf Stadt- und Landstraßen. - Heusch-Boesefeldt GmbH, TÜV Rheinland e. V. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Berlin. Umweltbundesamt Texte 66/94.

**BLÜMEL (1995):** Blümel, H.; Liwicki, M.: EMISS - ein methodisch neuer Ansatz zur Ermittlung der Schadstoffemissionen des Kfz-Verkehrs. - In: Emissionen des Straßenverkehrs - Immissionen in Ballungsgebieten. VDI Berichte 1228. Düsseldorf, 1995.

**BMU/VCI (1997):** Bundesumweltministerium / Verband der Chemischen Industrie: Gemeinsamer Abschlußbericht zum Dialog des BMU und des VCI zu Umweltzielen am Beispiel VOC. - Erarbeitet von Vertretern des Bundesumweltministeriums, des Umweltbundesamtes, des Verbandes der Lackindustrie e.V., des Verbandes der Druckfarbenindustrie im Verband der Mineralfarbenindustrie e.V., des Bundesverbandes Druck, des Industrieverbands Klebstoffe e.V., und des Verbandes der Chemischen Industrie. Dezember 1997.

**BRÄUTIGAM et al. (1992):** Bräutigam, M.; Kruse, M.: Ermittlung der Emissionen organischer Lösemittel in der Bundesrepublik Deutschland. Forschungsbericht 10404116/01 im Auftrag des Umweltbundesamtes. Consulting Services, Köln, 1992.

**BUILTJES (1987):** Builtjes, P.J.H.: Introduction to Emission Needs in Long Range Transport Modelling: Episodic Models. - Int. Workshop on Methodologies for Air Pollutant Emission Inventories. Paris, Juni/Juli 1987.

**DIW (1997):** Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung: Verkehr in Zahlen 1997. - Im Auftrag des Bundesverkehrsministeriums. Berlin, 1997.

## **Kühlwein, Friedrich, Obermeier, Theloke**

**EEA (1999):** European Environmental Agency (ed.): Atmospheric Emission Inventory Guidebook. - EEA, Copenhagen (<http://www.eea.eu.int/aegb/backgrou/aver.htm>), Stand: April 1999.

**EEA (1996):** European Environmental Agency (ed.): Atmospheric Emission Inventory Guidebook – Emission summary tables. EEA, Copenhagen, 1996

**ENQUETE (1994):** Enquete-Kommission „Schutz des Menschen und der Umwelt“: Die Industriegesellschaft gestalten. - Economica, Bonn, 1994.

**EPA (1999):** U.S. Environmental Protection Agency: Compilation of Air Pollutant Emission Factors, AP-42, Fifth Edition. Research Triangle Park, NC. <http://www.epa.gov/ttn/chief/ap42.html>, Stand April 1999

**HÄNSEL (1967):** Hänsel, H.: Grundzüge der Fehlerrechnung. - VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1967.

**HARTWIG (1967):** Hartwig, Georg: Einführung in die Fehler- und Ausgleichsrechnung. Unter Berücksichtigung einiger Überlegungen aus der Mathematischen Statistik. - Das Fachwissen des Ingenieurs. Carl Hanser Verlag. München, 1967.

**HASSEL (1994):** Hassel, D.; Jost, P.; Weber, F.-J.; Dursbeck, F.; Sonnenborn, K.-S.; Plettau, D.: Das Abgas-Emissionsverhalten von Personenkraftwagen in der Bundesrepublik Deutschland im Bezugsjahr 1990. - Technischer Überwachungsverein Rheinland. Erich Schmidt Verlag, Berlin. Berichte Umweltbundesamt 8/94.

**HASSEL (1995):** Hassel, D.; Jost, P.; Weber, F.-J.; Dursbeck, F.; Sonnenborn, K.-S.; Plettau, D.: Das Abgas-Emissionsfaktoren von Nutzfahrzeugen in der Bundesrepublik Deutschland im Bezugsjahr 1990. - Technischer Überwachungsverein Rheinland. Erich Schmidt Verlag, Berlin. Berichte Umweltbundesamt 5/95.

**HASSEL (1998a):** Hassel, D.; Sonnenborn, K.-S.; Weber, F.-J.: Vertrauensbereich der Abgasemissionsfaktoren von PKW in der Bundesrepublik Deutschland. - TÜV Rheinland Sicherheit und Umweltschutz GmbH. Förderschwerpunkt Troposphärenforschung (TFS) des BMBF, Leitthema 2, Projekt A.2. Köln, 1998.

**HASSEL (1998b):** Hassel, D.; Sonnborn, K.-S.; Weber, F.-J.: Vertrauensbereich der Abgas-Emissionsfaktoren von schweren Nutzfahrzeugen in der Bundesrepublik Deutschland. - TÜV Rheinland Sicherheit und Umweltschutz GmbH. Förderschwerpunkt Troposphärenforschung (TFS) des BMBF, Leitthema 2, Projekt A.2. Köln, 1998.

**HASSEL (1998c):** Hassel, D.; Weber, F.-J.; Schmitz, T.: Zusammensetzung der Kohlenwasserstoffe für unterschiedliche Fahrzeugkonzepte. - TÜV Rheinland Sicherheit und Umweltschutz GmbH, Forschungszentrum Jülich GmbH. Förderschwerpunkt Troposphärenforschung (TFS) des BMBF, Leitthema 2, Projekt A.2. Köln, 1998.

**HEINE (1989):** Heine, P.; Baretti, A.: Emissionsfaktoren für die Verdampfungsemissionen von Kraftfahrzeugen mit Ottomotoren. - Umweltforschungsplan des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit - Luftreinhaltung -. Forschungsbericht 104 05 149. Rheinisch-Westfälischer Technischer Überwachungsverein, Essen. Umweltbundesamt Texte 6/89.

**HEINE (1993):** Heine, P.: Verdampfungs- und Verdunstungsemissionen. - Arbeitsunterlage 13 zu: Luftschadstoffemissionen des Strassenverkehrs in der Schweiz 1990 - 2010. RMTÜV, Essen. Im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern, 1993.

**INFRAS (1994):** Infrac (Hrsg.): Gesamterhebung für flüchtige organische Verbindungen in Industrie und Gewerbe – Teilprojekt „Weitere Branchen“. - Zürich, 1994.

**JOHN (1997):** John, C.; Friedrich, R.; Kühlwein, J.; Obermeier, A.: Abschätzung und Bewertung der Unsicherheiten hochaufgelöster NO<sub>x</sub>- und NMVOC-Emissionsdaten. - Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), Universität Stuttgart. Beitrag zum 13. Statuskolloquium des PEF am 11. und 12. März 1997 im Forschungszentrum Karlsruhe.

**JOHN (1997b):** John, C.: Emissionen von Luftverunreinigungen aus dem Straßenverkehr in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung. - Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), Universität Stuttgart. Dissertationsentwurf, September 1997.

**KBA (1994):** Kraftfahrt-Bundesamt: Statistische Mitteilungen. Reihe 2: Kraftfahrzeuge, Sonderheft 2. Bestand an Kraftfahrzeugen u. Kraftfahrzeuganhängern am 1. Juli 1994 nach Zulassungsbezirken in Deutschland. - Metzler-Poeschel Verlag. Stuttgart, 1994.

**KÜHLWEIN (1998):** Kühlwein, J.; John, C.; Friedrich, R.; Obermeier, A.: Abschätzung und Bewertung der Unsicherheiten hochaufgelöster NO<sub>x</sub>- und NMVOC-Emissionsdaten. - Institut für

## **Kühlwein, Friedrich, Obermeier, Theloke**

Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), Universität Stuttgart. Beitrag zum Statusseminar des PEF am 3. und 4. März 1998 im Forschungszentrum Karlsruhe.

**KUSCHK (1998):** Kusch, B.: Erhebungen von Verkehrsdaten zur Optimierung und Typisierung der Emissionsmodellierung des Straßenverkehrs. - Im Auftrag des Landesumweltamtes Brandenburg. Berlin, 1998.

**LA-RP (1997):** Landesamt für Straßen- und Verkehrswesen Rheinland-Pfalz, Koblenz (Hrsg): Daten der Straßendatenbank des Landes Rheinland-Pfalz 1994 und 1995. - persönliche Mitteilung vom 3.3.1997.

**LENSING (1986):** Lensing, N.; Schmidt, G.; Heusch, H.; Boesefeldt, J.: Straßenverkehrszählung 1985 in der Bundesrepublik Deutschland. Erhebungs- und Hochrechnungsmethodik. - Bundesanstalt für Straßenwesen. Straßenverkehrszählungen Heft 36. Im Auftrag des Bundesministers für Verkehr. Bergisch Gladbach, 1986.

**LENSING (1995):** Lensing, N.: Straßenverkehrszählung 1990. Jahresfahrleistungen und mittlere DTV-Werte.- Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen. Verkehrstechnik Heft V 25. Bergisch Gladbach, 1995.

**LENSING (1997):** Lensing, N.: Straßenverkehrszählung 1995. Jahresfahrleistungen und mittlere DTV-Werte.- Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen. Verkehrstechnik Heft V 41. Bergisch Gladbach, 1997.

**LENSING (1998):** Lensing, N. Büro für angewandte Statistik, Aachen. - persönliche Mitteilung vom 13.11.1998.

**MAY (1993):** May, H.; Hattingen, U.; Kind, W.: Abschätzung der Kohlenwasserstoffemissionen während des Betriebes eines Kraftfahrzeuges mit Ottomotor (Running Losses) in der Bundesrepublik Deutschland. - Forschungsstelle für Verbrennungskraftmaschinen und Kraftstoffe, Universität Kaiserslautern. Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit - Luftreinhalteung -. Forschungsvorhaben 105 06 030. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, 1993.

**MCARRAGHER (1990):** McArragher, J.; Betts, W.; Schug, K.: The effects of temperature and fuel volatility on vehicle evaporative emissions. - CONCAWE report no. 90/51, Brüssel, 1990.

**MCINNES (1996):** McInnes, G.: Atmospheric Emission Inventory Handbook. - European Environmental Agency. Kopenhagen, 1996.

**MEIER (1986):** Meier, E.; Plaßmann, E.; Wolff, C.; Heusch, H.; Schmidt, G.; Hassel, D.; Jost, P.; Leisen, P.; Waldeyer, H.; Heine, P.; Voss, H.: Abgas-Großversuch. Untersuchung der Auswirkungen einer Geschwindigkeitsbegrenzung auf das Abgas-Emissionsverhalten von Personenkraftwagen auf Autobahnen. Abschlußbericht. Im Auftrage des Bundesministers für Verkehr. Vereinigung der Technischen Überwachungs-Vereine (VdTÜV). Essen, 1986.

**MIDDLETON et al. (1990):** Middleton, P.; Stockwell, W.; Carter, W.: Aggregation and Analysis of Volatile Organic Compound Emissions for Regional Modeling. Atmospheric Environment Vol. 24A, No. 5, pp. 1107-1133, 1990

**OBERMEIER (1995):** Obermeier, A.; Berner, P.; Friedrich, R.; John, C.; Seier, J.; Büringer, H.; Reiner, F.; Walker, M.: Entwicklung von Verfahren zur Ermittlung jährlich fortschreibbarer VOC-Emissionsdaten für Baden-Württemberg. - Forschungszentrum Karlsruhe, Projekt Europäisches Forschungszentrum für Maßnahmen zur Luftreinhaltung (PEF). Berichte Umweltforschung in Baden-Württemberg, FZKA-PEF 129, Karlsruhe, 1995.

**PALM (1994a):** Palm, I.; Regniet, G.; Schmidt, G.: Ermittlung der Pkw-Jahresfahrleistung 1990 und 1986 auf allen Straßen in der Bundesrepublik Deutschland (FE-Nr. 90408/93). Heusch-Boesefeld GmbH, Aachen. Im Auftrag des Bundesministeriums für Verkehr. Bonn, 1994.

**PALM (1994b):** Palm, I.; Regniet, G.; Schmidt, G.: Nutzfahrzeug-Jahresfahrleistungen 1990 (1986) auf den Straßen in der Bundesrepublik Deutschland (FE-Nr. 90343/91). Heusch-Boesefeld GmbH, Aachen. Im Auftrag des Bundesministeriums für Verkehr. Bonn, 1994.

**PALM (1996):** Palm, I.; Regniet, G.; Schmidt, G.: Ermittlung der Pkw- und Nfz-Jahresfahrleistungen 1993 auf allen Straßen in der Bundesrepublik Deutschland (FE-Nr. 90434/94). Heusch-Boesefeld GmbH, Aachen. Im Auftrag des Bundesministeriums für Verkehr, Bonn, 1996.

**PATYK (1995):** Patyk, A. ; Höpfner, U. : Komponenten-Differenzierung der Kohlenwasserstoffemissionen von Kfz: Ermittlung von Faktoren zur Bestimmung der differenzierten Kohlenwasserstoffemissionen bei Kfz zur Erfüllung der Anforderungen des § 40.2 BImSchG - Ifeu-Institut für Energie- und Umweltforschung Heidelberg. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Berlin, 1995.

**RIVM (1997):** RIVM (ed.): General Information on the Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) – Version 2.0. - (<ftp://info.rivm.nl/pub/lae/EDGARV20>), Stand: April 1999.

**SACHS (1997):** Sachs, L.: Angewandte Statistik. Anwendung statistischer Methoden. - 8. Auflage. Springer-Verlag, Berlin, 1997.

**SCHMIDT (1995):** Schmidt, G.; Thomas, B.: Hochrechnungsfaktoren für manuelle und automatische Kurzzeitmessungen im Innerortsbereich. - Heusch-Boesefeldt GmbH, Aachen. Im Auftrag des Bundesministeriums für Verkehr, Bonn, 1995.

**SCHMITZ (1997):** Schmitz, S.; Haserich, D.; Oppermann, F.; Otto, I.; Pütz, T.; Siedhoff, M.; Viktorin, D.: Entwicklung eines planungsrelevanten Emissionskatasters Straßenverkehr. Materialien zur Raumentwicklung, Heft 80. Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit - Luftreinhaltung -. Forschungsbericht 104 04 127. Hrsg. im Auftrag des Umweltbundesamtes. Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung, Bonn, 1997.

**SCHMITZ (1999):** Schmitz, S.: Daten zu Innerortsfahrleistungen und Einwohnerzahlen ausgewählter Gemeinden. - Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung, Bonn - persönliche Mitteilung vom 6.1.1999.

**STALA (1998):** Statistisches Landesamt Baden-Württemberg: persönliche Mitteilungen von Dr. H. Büringer. 1998.

**STEVEN (1995):** Steven, H.: Emissionsfaktoren für verschiedene Fahrzeugschichten, Straßenkategorien und Verkehrszustände (1). - 2. Zwischenbericht zum Forschungsvorhaben 105 06 044: Erarbeitung von Grundlagen für die Umsetzung von § 40.2 BImSchG. Hrsg. im Auftrag des Umweltbundesamtes. FIGE GmbH. Herzogenrath, 1995.

**TROSTORF (1995):** Trostorf, L.; Feix, C.; Friedrich, U.: Erarbeitung von Datengrundlagen für Ausbreitungsrechnungen für Kfz-bedingte Luftschadstoffemissionen im Land Brandenburg (Emissionskataster Verkehr Brandenburg). - IVU Berlin, Landesumweltamt Brandenburg. Im Auftrag des Ministeriums für Umwelt, Naturschutz und Raumordnung, Potsdam. Berlin, 1995.

**UBA (1995):** Umweltbundesamt (Hrsg.); Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BU-WAL), Bern; INFRAS AG, Bern (Bearb.): Handbuch für Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Version 1.1 (Erschienen als Software auf CD-ROM). Berlin, 1995.

**UBA (1997):** Umweltbundesamt, Berlin; INFRAS AG, Bern: Handbuch Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs - Version 1.1 vom Okt. 1995 (Teil Deutschland). - Forschungsvorhaben Nr. 105 06 005. Grundlagenbericht. Berlin, 1997.

**UEBERSCHAER (1991):** Ueberschaer, M.; Jäger, G.: Analyse des Verkehrsverhaltens der Bevölkerung in Nordrhein-Westfalen an Werktagen im Jahre 1989. Sonderauswertung der KON-TIV'89. - Ministerium für Stadtentwicklung und Verkehr des Landes Nordrhein-Westfalen (Ref. ZC2), Düsseldorf, 1991.

**VCI (1996):** CKW-Lösemittelmarkt in Deutschland 1994. - Verband der Chemischen Industrie e.V.. Frankfurt/Main, 1996.

**WEISSBARTH (1992):** Weissbarth, R.; Kuhn, P.; Troger, B.: AUTOMOTIV. Ergänzungserhebung zur Nutzung von Pkw und Krafträdern. - Infratest Sozialforschung GmbH. München, 1992.

**WIESNER (1998):** Wiesner, W.; Hassel, H. TÜV Rheinland Sicherheit und Umweltschutz GmbH, Institut für Umweltschutz und Energietechnik - persönliche Mitteilung vom 12.10.1998.