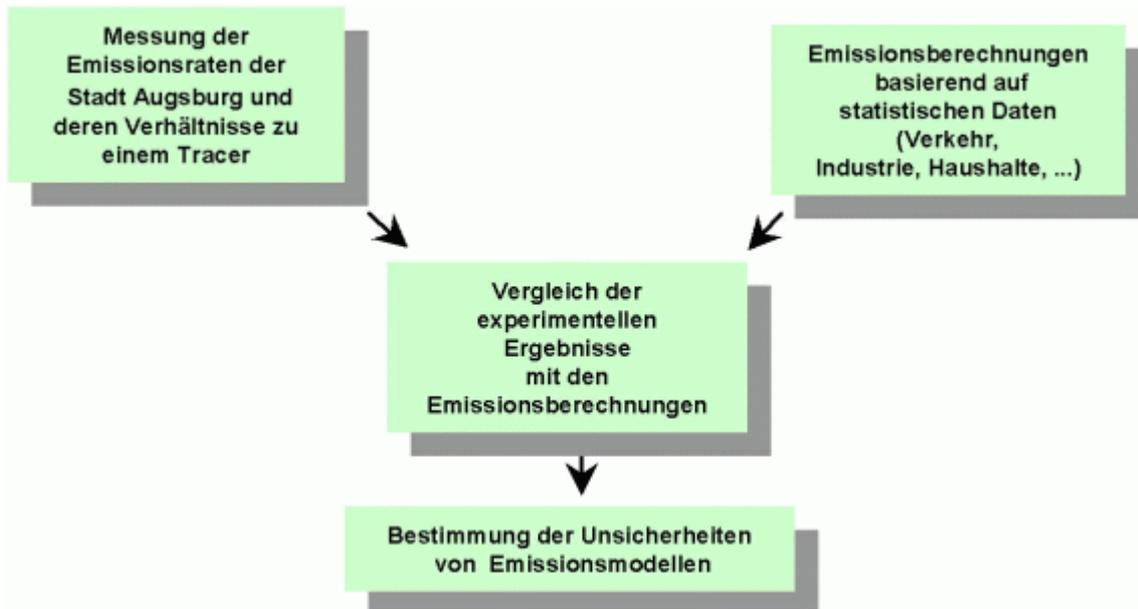


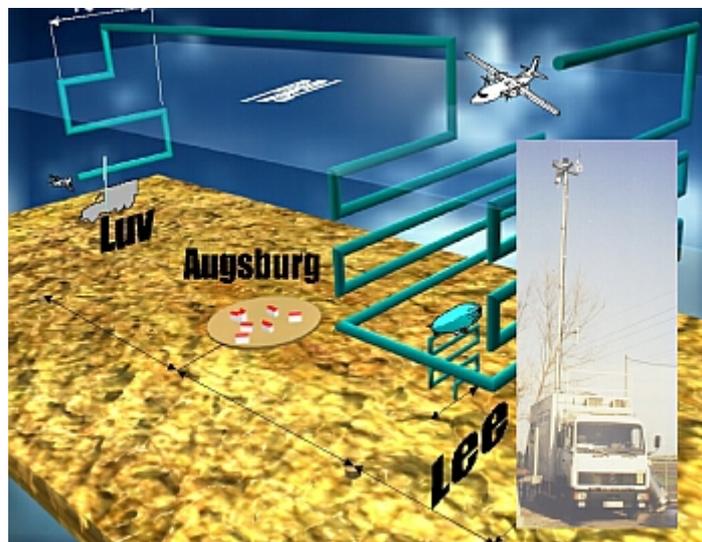
Das Augsburger Emissionsevaluierungsexperiment - EVA

Anthropogene Emissionsdaten sind wichtige Eingangsgrößen für luftchemische Modelle zur Analyse und Prognose sommerlicher Ozonspitzenkonzentrationen und dienen als Basis für die Planung von Reduktionsmaßnahmen. Für die experimentelle Evaluierung der Berechnungsmodelle (BMBF-Projekt EVA) wurden die Spurengaszusammensetzungen in der Abluffahne der Stadt Augsburg charakterisiert und mit den Resultaten der Emissionsberechnungen verglichen.



Aufgabenverteilung und beteiligte Institutionen

- Emissionsberechnungen: Institut für Rationelle Energieanwendung (Uni Stuttgart).
- Bestimmung der Emissionen durch fluggestützte Messungen aus der Divergenz der Stoffflüsse von CO und NO_x im Luv und Lee der Stadt: Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Forschungszentrum Karlsruhe (IMK) und Institut für Dampfkesselwesen der Uni Stuttgart.
- Bestimmung der Emissionen mit Freisetzung eines Tracers: Forschungszentrum Jülich (ASS + ICG-II).
- Bestimmung der Emissionsverhältnisse von NO, NO₂, NO_y, CO, HCHO und C₂ - C₁₀-Kohlenwasserstoffen durch bodengestützte Langzeitmessungen: Forschungszentrum Jülich (ICG-II), Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung.



Im Rahmen von zwei mehrwöchigen Experimenten (März 98 und Oktober 98) mithilfe eines [fahrbaren Messlabors](#) wurde die detaillierte Zusammensetzung der Emissionen der Stadt Augsburg durch bodengestützte Messungen im Abluft-Bereich der Stadt bestimmt. Zusätzlich wurde während mehrerer Intensivphasen Tracerexperimente und fluggestützte Messungen von NO_x und CO durchgeführt.

Eine Zusammenfassung der Resultate des Experiments ist im Jahre 2002 in J. Atmos. Chem. 42, 207-233 veröffentlicht.

Die Resultate des Jülicher Beitrags zum Emissionsevaluierungsexperiment EVA

Anthropogene Emissionsdaten sind wichtige Eingangsgrößen für luftchemische Modelle zur Analyse und Prognose sommerlicher Ozonspitzenkonzentrationen und dienen als Basis für die Planung von Reduktionsmaßnahmen. Für die experimentelle Evaluierung der Berechnungsmodelle (BMBF-Projekt EVA) wurden die Spurengaszusammensetzungen in der Abluffahne der Stadt Augsburg charakterisiert und mit den Resultaten der Emissionsberechnungen des Instituts für Rationelle Energieanwendungen der Universität Stuttgart (IER) verglichen. Der Schwerpunkt der Untersuchungen lag dabei auf der detaillierten Analyse von experimentell bestimmten und berechneten Kohlenwasserstoff-Zusammensetzungen.

Anhand der guten Übereinstimmung der gemessenen Kohlenwasserstoff-Mixe mit denen aus Flugzeugmessungen und durch geeignete Wahl der Messzeiträume (d.h. bei vernachlässigbarem photochemischen Abbau während des Transports von der Stadt zum Messort) wurde sichergestellt, dass Rückschlüsse von gemessenen Konzentrationsverhältnissen auf Emissionsverhältnisse möglich sind. Auf diesem Wege konnte sowohl die erforderliche gute Durchmischung der städtischen Abluffahne als auch eine vernachlässigbare Kontamination durch nahe Quellen für den gewählten Messort nachgewiesen werden. Die Unterscheidung zwischen dem Konzentrationshub der Stadt und der luvseitigen Hintergrundkonzentrationen wurde mit Hilfe von Regressionsanalysen durchgeführt.

Der Vergleich der Kohlenwasserstoffzusammensetzung mit anderen Messungen zeigt eine gute Übereinstimmung des mittleren Kohlenwasserstoff-Mixes für Augsburg mit einem verkehrsdominierten Kohlenwasserstoff-Mix (Abb. 1). Da die relativen Anteile von Toluol und der Xylole (Substanzen, für die das Emissionsberechnungsmodell einen Lösemittelanteil von $\geq 50\%$ prognostiziert) im Augsburger Mix nicht deutlich höher liegen als für den verkehrsdominierten Mix, ist zu schließen, dass die Emissionen aus der Lösemittelanwendung nur einen geringen Anteil an dem gemessenen Kohlenwasserstoff-Mix besitzen.

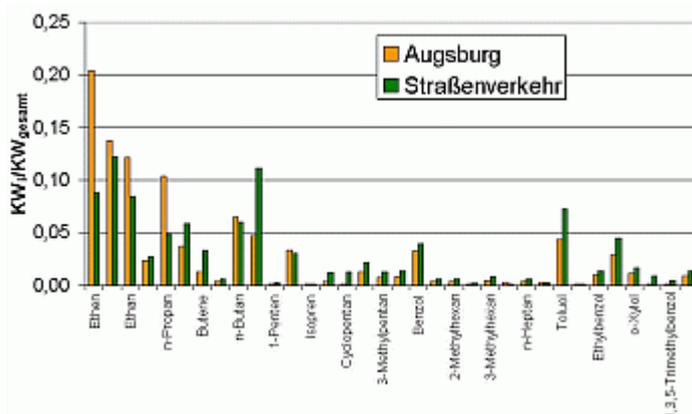


Abb. 1: Vergleich der mittleren KW_i/KW_{gesamt} Anteile [ppb/ppb] für Augsburg (Oktober, Werkstage) mit den Resultaten verkehrsdominierter Messungen in München (Werkstage).

Dieses Ergebnis steht in klarem Gegensatz zu den Resultaten der Emissionsberechnungen, die für die Kohlenwasserstoffemissionen im Bereich von C₂ - C₁₀ aus Lösemittelanwendungen einen Anteil von etwa 50% prognostizieren.

Das Emissionsmodell kann nur für eine Untergruppe an Kohlenwasserstoffen, die im wesentlichen aus dem Verkehr stammen, substanzspezifische Anteile angeben. Diese stimmen im Mittel recht gut mit den entsprechenden gemessenen Anteilen überein (Abb. 2).

Vom Emissionsmodell wird jedoch ein erheblicher Teil der Kohlenwasserstoffemissionen (ca. 50%), die vom eingesetzten GC-System detektierbar sind, nicht spezifiziert, sondern nur als Summe KW_i angegeben. Dieser vom Emissionsmodell angegebene Anteil der Kohlenwasserstoffemissionen wird ausschließlich den Emissionen aus dem Lösemittelverbrauch zugeordnet. In den experimentellen Resultaten finden sich keine Hinweise auf entsprechende zusätzliche Kohlenwasserstoffemissionen. Es ist festzustellen, dass das Emissionsberechnungsmodell den Beitrag der Emissionen aus dem Lösemittelanwendung erheblich überschätzt und den Beitrag der Verkehrsemissionen unterschätzt. Die quantitative Bestimmung der Anteile der verschiedenen Quellgruppen anhand der experimentell ermittelten KW -Emissionszusammensetzungen erfordert die Anwendung von Massenbilanzanalysen (CMB-Analysen).

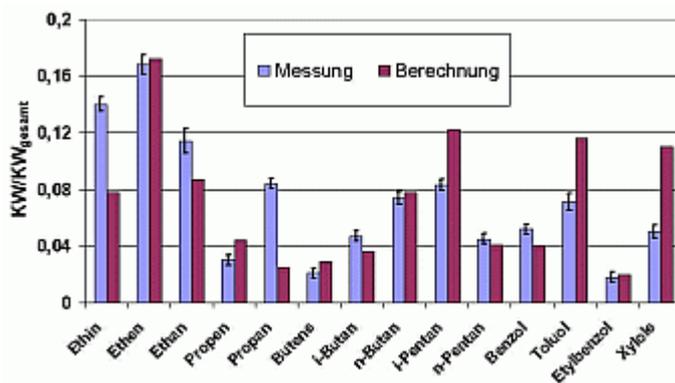


Abb. 2: Berechnete und gemessene Emissionszusammensetzung sowie zugehörige 1- σ -Standardabweichungen für eine Untergruppe (siehe Text) von Kohlenwasserstoffen (auf ppb bezogen, Oktoberkampagne).

Erste Untersuchungen zum Beitrag der Lösemittellemissionen an den anthropogenen KW -Emissionen mittels CMB-Analysen

Die vom Emissionsmodell des IER berechnete Quellverteilung für Augsburg unterscheidet sich nur gering von den Angaben des Umweltbundesamtes (UBA) für Deutschland. Für das Emissionskataster für Deutschland liegt der Beitrag der Lösemittellemissionen an den anthropogenen KW -Emissionen im Jahresmittel bei etwa 60%, der des Verkehrs bei etwa 30% (vergl. Abb. 3).

Um eine experimentelle Überprüfung der vom UBA angegebenen Quellverteilung durchzuführen, wurden Kohlenwasserstoff-Mixe aus mehreren urbanen Gebieten, die von uns in den Jahren 1995 - 1998 gemessen wurden, mit Hilfe von Multiregressionsanalysen (Chemical Mass Balance Modell CMB Vers. 8 der Environmental Protection Agency (EPA)) untersucht. Die für die Untersuchungsmethode benötigten Quellprofile (basierend auf 40 Einzelsubstanzen) aus den Bereichen Verkehr, Lösemittelanwendung und Verbrennungsprozesse wurden ebenfalls von uns experimentell bestimmt.

Die Analyse zeigt:

- Die Quellprofile aus Verkehr, Lösemittelanwendungen und aus Verbrennungsprozessen sind eindeutig voneinander unterscheidbar und können somit als voneinander unabhängige Quellprofile betrachtet werden. Dies wurde durch umfangreiche Sensitivitätsanalysen sichergestellt. So führen z. B. Multiregressionsanalysen ohne Berücksichtigung der Quelle Verkehr zu signifikanten Verschlechterungen der Qualität der Anpassungen.
- Für alle untersuchten urbanen Kohlenwasserstoff-Mixe beträgt der Anteil der Verkehrsemissionen an den Kohlenwasserstoffemissionen mehr als 50%; im Mittel liegt der Anteil bei mehr als 60% (vergl. Abb. 3).
- Der experimentell gefundene Beitrag der Lösemittelanwendungen liegt bei ca. 10-15% und ist somit von gleicher Größenordnung wie die aus Sensitivitätsanalysen bestimmte Unsicherheit der Resultate der CMB Analysen.

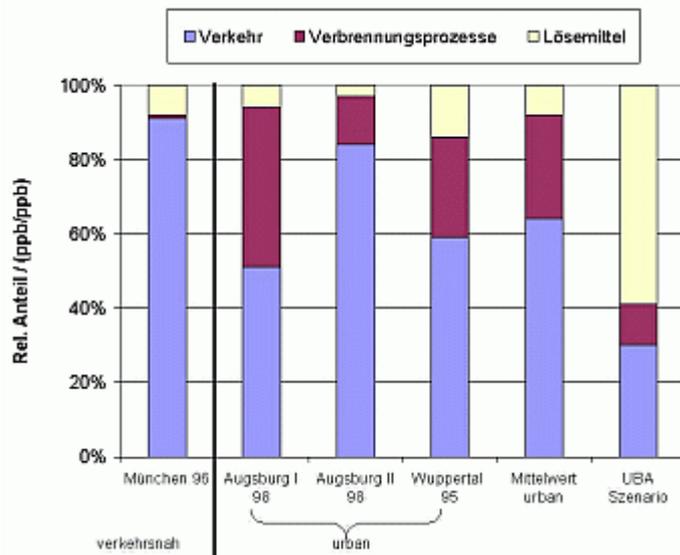


Abb. 3: Anhand von CMB-Analysen ermittelte Anteile der $C_2 - C_{10}$ -Kohlenwasserstoffe an den drei Hauptemittentengruppen und Vergleich mit den Resultaten des Umweltbundesamtes (Mittelwert für Deutschland 1998).

Die Resultate der CMB-Analysen liefern klare Hinweise auf eine wesentliche Überschätzung des Lösemittelbeitrags beim Emissionskatastern für Deutschland. Die Untersuchungen machen deutlich, dass die urbanen Emissionen der Kohlenwasserstoffe im untersuchten Zeitraum, anders als vom UBA Szenario angegeben, durch die Emissionen des Straßenverkehrs dominiert werden.

Zusammenfassende Bemerkungen

Im Rahmen des EVA-Projekts wurden ausschließlich Kohlenwasserstoffe im Bereich von $C_2 - C_{10}$ für die Evaluierung der Emissionsberechnungen herangezogen. Mit Ausnahme von Formaldehyd wurden in diesem Experiment keine weiteren oxigenierten bzw. halogenierten Substanzen gemessen. Für zukünftige Evaluierungsexperimente wäre es daher wichtig, die Emissionen dieser gasförmigen Spurenstoffe ebenfalls zu erfassen. Zusammen mit einer ausgeweiteten Charakterisierung der Zusammensetzung einzelner Quellen kann dann mit dem Instrument der CMB-Analyse eine exaktere Beschreibung der jeweiligen Quellanteile durchgeführt werden.

Unabhängig davon zeigen die Ergebnisse des EVA-Experiments, dass insbesondere die prognostizierten Kohlenwasserstoff-Emissionen aus dem Lösemittelbereich in den experimentellen Untersuchungen nicht beobachtet wurden, obwohl sie zum Bereich der $C_2 - C_{10}$ Kohlenwasserstoffe mit vergleichbarer Größenordnung beitragen sollten wie die KW-Emissionen aus dem Verkehr.

Die detaillierten Ergebnisse des EVA-Experiments sind in einem Sonderband von Atmospheric Environment veröffentlicht: Atmospheric Environment, 36, Supplement No. 1 (2002).