

# **Ermittlung des Beitrages von Reifen-, Kupplungs-, Brems- und Fahrbahnabrieb an den PM<sub>10</sub>-Emissionen von Straßen**

**Berichte der  
Bundesanstalt für Straßenwesen**

**Verkehrstechnik Heft V 165**

The logo for 'bast' is written in a bold, lowercase, green sans-serif font. The letters are closely spaced and have a slight shadow effect, giving it a three-dimensional appearance. The 'b' is particularly prominent with its thick stroke.

# **Ermittlung des Beitrages von Reifen-, Kupplungs-, Brems- und Fahrbahnabrieb an den PM<sub>10</sub>-Emissionen von Straßen**

von

Ulrich Quass  
Astrid C. John  
Matthias Beyer  
Jörg Lindermann  
Thomas A.J. Kuhlbusch

Institut für Energie und Umwelttechnik (IUTA) e.V.  
Bereich Luftgetragene Partikel, Duisburg

Alfred V. Hirner  
Martin Sulkowski  
Margaretha Sulkowski  
Jörg Hippler

Universität Duisburg-Essen  
Institut für Umweltanalytik

**Berichte der  
Bundesanstalt für Straßenwesen**

**Verkehrstechnik Heft V 165**

**bast**

Die Bundesanstalt für Straßenwesen veröffentlicht ihre Arbeits- und Forschungsergebnisse in der Schriftenreihe **Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen**. Die Reihe besteht aus folgenden Unterreihen:

A - Allgemeines  
B - Brücken- und Ingenieurbau  
F - Fahrzeugtechnik  
M - Mensch und Sicherheit  
S - Straßenbau  
V - Verkehrstechnik

Es wird darauf hingewiesen, dass die unter dem Namen der Verfasser veröffentlichten Berichte nicht in jedem Fall die Ansicht des Herausgebers wiedergeben.

Nachdruck und photomechanische Wiedergabe, auch auszugsweise, nur mit Genehmigung der Bundesanstalt für Straßenwesen, Stabsstelle Presse und Öffentlichkeitsarbeit.

Die Hefte der Schriftenreihe **Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen** können direkt beim Wirtschaftsverlag NW, Verlag für neue Wissenschaft GmbH, Bgm.-Smidt-Str. 74-76, D-27568 Bremerhaven, Telefon: (04 71) 9 45 44 - 0, bezogen werden.

Über die Forschungsergebnisse und ihre Veröffentlichungen wird in Kurzform im Informationsdienst **BAST-Info** berichtet. Dieser Dienst wird kostenlos abgegeben; Interessenten wenden sich bitte an die Bundesanstalt für Straßenwesen, Stabsstelle Presse und Öffentlichkeitsarbeit.

## **Impressum**

**Bericht zum Forschungsprojekt FE 02.254/2004/LRB:**  
Ermittlung des Beitrages von Reifen-, Kupplungs-, Brems- und Fahrabrieb an den PM<sub>10</sub>-Emissionen von Straßen

**Projektbetreuung**  
Anja Baum

**Herausgeber**  
Bundesanstalt für Straßenwesen  
Brüderstraße 53, D-51427 Bergisch Gladbach  
Telefon: (0 22 04) 43 - 0  
Telefax: (0 22 04) 43 - 674

**Redaktion**  
Stabsstelle Presse und Öffentlichkeitsarbeit

**Druck und Verlag**  
Wirtschaftsverlag NW  
Verlag für neue Wissenschaft GmbH  
Postfach 10 11 10, D-27511 Bremerhaven  
Telefon: (04 71) 9 45 44 - 0  
Telefax: (04 71) 9 45 44 77  
Email: [vertrieb@nw-verlag.de](mailto:vertrieb@nw-verlag.de)  
Internet: [www.nw-verlag.de](http://www.nw-verlag.de)

ISSN 0943-9331  
ISBN 978-3-86509-786-6

Bergisch Gladbach, März 2008

## Kurzfassung – Abstract

### **Ermittlung des Beitrages von Reifen-, Kuppelungs-, Brems- und Fahrbahnabrieb an den $PM_{10}$ -Emissionen von Straßen**

Im Hinblick auf die prozessbezogenen Beiträge nicht-motorischer Partikelemissionen durch Abriebs- und Aufwirbelung existieren derzeit lediglich Studien, die an stark belasteten Innerortsstraßen oder in Tunneln durchgeführt wurden. Für die Emissionen von Autobahnen konnten die so gewonnenen Ergebnisse daher nicht ohne weiteres als repräsentativ für die – wesentlich häufiger anzutreffende – Situation frei angeströmter Autobahnabschnitte betrachtet werden.

Um diese Wissenslücke zu schließen, wurden im vorliegenden Projekt an der Autobahn A 61 für mehr als 1 Jahr Luv-Lee Messungen durchgeführt. Mittels der  $NO_x$ -Tracer-Methode wurden die in Tabelle 16 des Berichtes wiedergegebenen partikelmassen-bezogenen Emissionsfaktoren (EFs) ermittelt. Die EFs für  $PM_{10}$  sind mit Ergebnissen anderer Studien aus Deutschland bzw. der Schweiz gut vergleichbar, während sich für die  $PM_{1-10}$ -Fraktion geringere EFs ergaben, als aktuell angenommen<sup>1</sup>.

Mittels der Positiv-Matrix-Faktorisierung konnten neben den motorischen Emissionen vier nicht-motorische Quellfaktoren identifiziert und quantifiziert werden. Dabei zeigte sich neben einem deutlichen Einfluss durch Tausalzausbringung insbesondere die Relevanz von Bremsabrieb. Diese Ergebnisse bestätigen somit auch für freiliegende Autobahnabschnitte die Signifikanz der nicht-motorischen Partikelemissionen für die  $PM_{10}$ -Emissionen.

### **Determining the contribution of tyre, clutch, brake and wearing course abrasion to the $PM_{10}$ emissions of roads**

Currently, only studies conducted at highly polluted streets within built-up areas or in tunnels exist concerning non-exhaust emissions from traffic caused by abrasion and resuspension. Results from these studies are therefore not directly transferable to emissions from highway traffic with free airflow.

In order to close this gap of knowledge, upwind/downwind measurements at the German highway A61 were conducted for more than 1 year. Particle mass related emissions factors (EFs) (see table 16 of the report) were derived using the  $NO_x$  tracer method. EFs for  $PM_{10}$  compare well with results from other studies from Germany and Switzerland, whereas the coarse fraction's EFs ( $PM_{1-10}$ ) are lower than those actually used in Germany<sup>1</sup>.

Using positive matrix factorisation (PMF) four non-exhaust sources could be identified and quantified. The relevance of brake abrasion was shown, together with a considerable influence due to road salting. These results confirm the importance of non-exhaust particle emissions regarding  $PM_{10}$  emissions also for highways in non-built-up areas with free air flow conditions.

---

<sup>1</sup> DÜRING, I., A. LOHMEYER: KRdL-Schriftenreihe 33 (2004), 131-138



## Inhalt

<b>1</b>	<b>Hintergrund und Zielsetzung</b>	7	3.4.3.1	Analysenumfang und Datenaufarbeitung	24
1.1	Reifen- und Bremsabrieb	7	3.4.3.2	Ionenbilanz zur Plausibilitätsprüfung	24
1.1.1	Emissionsfaktoren	7	3.4.3.3	Statistische Kennzahlen	25
1.1.2	Partikelgrößen	8	3.4.4	Verkehrsbedingte Zusatzbeiträge der Inhaltsstoffe	28
1.1.3	Inhaltsstoffe/Tracer	9	3.5	Boden- und Straßenstaubproben	29
1.2	Straßenabrieb und Aufwirbelung von Staub	11	<b>4</b>	<b>Ableitung von Emissionsfaktoren</b>	32
1.2.1	Straßenabrieb	11	4.1	Emissionsfaktoren für PM <sub>10</sub> , PM <sub>1</sub> und PM <sub>1-10</sub>	32
1.2.2	Aufwirbelung von Straßenstaub	11	4.2	Statistische Rezeptormodellierung der Inhaltsstoffkonzentrationen	34
1.3	Emissionsfaktoren	12	4.2.1	Vorüberlegungen	34
<b>2</b>	<b>Methodischer Ansatz</b>	13	4.2.2	Faktoranalyse mit dem PMF-Modell	34
<b>3</b>	<b>Messdatenerhebung und -aufbereitung</b>	14	4.2.2.1	Beschreibung des verwendeten Modells	34
3.1	Lage und Ausstattung der Probenahme-Orte	14	4.2.2.2	Datenvorbereitung für die PMF	35
3.1.1	Meteorologische Daten	14	4.2.2.3	Screenings und Sensitivitätsuntersuchungen	36
3.1.2	Verkehrsaufkommen	18	4.2.2.4	Ergebnisse der Faktormodellierung	37
3.2	Kontinuierliche Messungen mit hoher Zeitaufösung	18	4.2.2.4.1	8-Faktoren-Modell der kompletten Datenmatrix	37
3.2.1	Massenkonzentrationen der Stickstoffoxide (NO, NO <sub>x</sub> , NO <sub>2</sub> )	18	4.2.2.4.2	4-Faktoren-Modell der reduzierten Datenmatrix	42
3.2.2	PM <sub>1</sub> - und PM <sub>10</sub> -Massenkonzentrationen (TEOM)	18	4.2.2.4.3	Tausalz-Einfluss	43
3.2.3	Konzentrationsrosen	19	4.2.2.4.4	Unsicherheitsabschätzung durch Bootstrapping-Modellierung	43
3.3	Filterprobenahmen	20	4.2.3	Ergebnis der PMF-Modellierung	45
3.3.1	PM <sub>1</sub> - und PM <sub>10</sub> -Massenkonzentrationen	20	4.3	Emissionsfaktoren für verkehrsbezogene Quellen	45
3.3.1.1	Probenahme und Wägung	20	<b>5</b>	<b>Analytik und Qualitätssicherung</b>	46
3.3.1.2	Zeitreihen und statistische Kenndaten	20	<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Schlussfolgerungen</b>	53
3.4	Inhaltsstoff-Analytik	21	<b>7</b>	<b>Literatur</b>	54
3.4.1	Ausgewählte Filterproben	21			
3.4.2	PM-Massenkonzentrationskenn- daten der ausgewählten Filter	22			
3.4.3	Massenkonzentrationen der Inhaltsstoffe	24			



## 1 Hintergrund und Zielsetzung

In der 1. Tochterrichtlinie (99/30/EG) zur Rahmenrichtlinie Luftqualität (96/69/EG) sind im Juli 1999 neue, verschärfte Grenzwerte unter anderem für Feinstaub (PM<sub>10</sub>) eingeführt und mit der 22. BImSchV (11/09/2002) in deutsches Recht umgesetzt worden. Aufgrund der durch Messungen festgestellten Überschreitungen der Tagesgrenzwerte werden zurzeit Maßnahmenpläne zur Reduzierung der Luftbelastung erstellt. Der Straßenverkehr liefert hierbei einen relevanten Teil zu den Überschreitungen.

Der Verkehrsbeitrag zur Feinstaubbelastung geht auf drei Gruppen von Partikeln zurück:

1. direkt emittierte Primärpartikel aus den Abgasen (im Wesentlichen Ruß aus unvollständiger Kraftstoffverbrennung, Partikelgröße  $< 1 \mu\text{m } d_{ae}$  [GEHRIG et al., 2003]),
2. diffus emittierte Partikel (Reifenabrieb, Bremsabrieb, Kupplungsabrieb, Straßenabrieb, Aufwirbelung von Straßenstaub, Korrosionspartikel Fahrzeug/Straße/Straßeneinbauten; Partikelgröße überwiegend  $> 1 \mu\text{m } d_{ae}$ ),
3. Sekundärpartikel aus gasförmigen Vorläuferstoffen (im Wesentlichen Nitrate aus NO<sub>x</sub>-Emission, aber auch partikelgebundene Kohlenstoffverbindungen aus VOC-(volatile organic carbon) Emissionen, Partikelgröße überwiegend  $< 1 \mu\text{m } d_{ae}$ ).

Die Sekundärpartikel nach 3. spielen unmittelbar an der verkehrsbelasteten Stelle nur eine untergeordnete Rolle, da für die Konversion von NO<sub>x</sub> zu Nitraten längere Aufenthaltszeiten in der freien Atmosphäre oder katalytische wirksame Oberflächen notwendig sind. Sie tragen aber sowohl zur großräumigen Hintergrundbelastung als auch zum städtischen Hintergrund bei. Ihr Gesamtbeitrag zur Hintergrundbelastung lässt sich aus den durch Fahrzeugflottenprüfungen bekannten NO<sub>x</sub>-Emissionsfaktoren abschätzen.

Auf gleichartigen Prüfungen basieren auch die Kenntnisse über die motorischen Primärpartikel-Emissionsfaktoren, die, nach verschiedenen Fahrzeugklassen, Fahrsituationen und weiteren Kriterien wählbar, im Handbuch für Emissionsfaktoren [HBEFA] niedergelegt sind.

Größere Unsicherheiten bestehen allerdings hinsichtlich des Beitrags der diffusen Partikelemissionen.

Zwar hat sich hier der Kenntnisstand bezüglich der diffusen PM<sub>10</sub>-Gesamtemission in den letzten Jahren durch verschiedene Studien deutlich erhöht, sodass mittlerweile ebenfalls pauschale Emissionsfaktoren für Pkw und Lkw zur Verfügung stehen [DÜRING, 2004], ihre Aufteilung in die Teilprozesse und damit deren Relevanz für die Gesamtemissionen sind jedoch noch weitgehend unklar. Dies ist u. a. durch die komplexe Zusammensetzung des an der Straße messbaren Feinstaubes und die in der Regel nicht eindeutig unterscheidbaren Emissionsprozesse (z. B. kann primär emittierter Ruß auch auf der Straße deponiert und wieder aufgewirbelt werden) zu erklären.

Bisher in diese Richtung durchgeführte Studien untersuchten, nicht zuletzt wegen der damit verbundenen erheblichen messtechnischen Anforderungen, stark frequentierte und hoch belastete Innerortsstraßen oder nutzten den partikelanreichernenden Effekt von Tunneln. Die dabei erhaltenen Ergebnisse lassen sich somit nicht ohne weiteres auf frei angeströmte Autobahnabschnitte übertragen, sodass Rückschlüsse auf die Gesamtemissionen von Autobahnverkehr nur eingeschränkt möglich sind.

Der Stand der Kenntnisse bis zum Jahr 2004 lässt sich dem Abschlussbericht eines internationalen Projektes der EU-Kommission [LUHANA et al., 2004] entnehmen, der neben experimentellen Teilen auch eine umfassende Literaturstudie beinhaltet. Im Folgenden werden die darin aufgeführten Rechercheergebnisse – unter Ergänzung durch aktuellere Publikationen – zusammengefasst.

### 1.1 Reifen- und Bremsabrieb

#### 1.1.1 Emissionsfaktoren

Im Hinblick auf Reifen- und Bremsabrieb sind die in Tabelle 1 wiedergegebenen Studien referenziert und die darin berichteten Emissionsfaktoren (EF) den in der Studie selbst anhand von Tunnelmessungen ermittelten gegenübergestellt. Die Daten zeigen, dass die Emissionsfaktoren von Schwerlastfahrzeugen diejenigen von leichten Nutzfahrzeugen (und damit auch Pkw) erheblich übersteigen können und z. T. sehr große Spannen bestehen, die auf unterschiedliche Mess- und Datenanalysemethoden und Verkehrssituationen zurückzuführen sind.

In Deutschland wurden an einer Außerortsstraße Gesamtemissionsfaktoren von im Wochenmittel 81 mg/vkm<sup>2</sup> ermittelt und daraus anhand von Inhaltsstoffanalysen Anteile von 50 % motorisch bedingten Emissionen, 30 % Fahrbahnabrieb, 20 % Reifenabrieb und weniger als 1 % Bremsabrieb abgeschätzt [DÜRING, 2004]. Während in dieser Studie somit für den Reifenabrieb ein zu den in Tabelle 1 genannten Werten vergleichbarer Emissionsfaktor von ca. 20 mg/vkm resultiert, liegt der Emis-

sionsfaktor für Bremsabrieb mit weniger als 0,8 mg/vkm noch unterhalb des geringsten in anderen Studien gefundenen Wertes.

Für den Gesamt-Reifenabrieb in Abhängigkeit vom Fahrzeugtyp referiert das Emission Inventory Guidebook der Europäischen Umweltagentur [EEA, 2003] aus verschiedenen Studien stammende Werte zwischen 17 und 193 mg/vkm.

### 1.1.2 Partikelgrößen

Hinsichtlich der Partikelgrößen kann davon ausgegangen werden, dass ein Großteil des Bremsabriebs zur PM<sub>10</sub>-Fraktion gehört (88-98 % der insge-

<sup>2</sup> vkm: vehicle-km

<sup>3</sup> HDV: heavy duty vehicle; HGV: heavy goods vehicle

Study	Method/comments	Vehicle category	PM10 emission factor (mg/vkm)		
			Brake wear	Tyre wear	Combined brake & tyre wear
This study	Tunnel measurements and PCA	Floot in Hartfield Tunnel			10.7
		LDV			6.9
		HDV			49.7
Tyre wear - light-duty					
USEPA (1995)		LDV		5.0	
RAUTERBERG-WULFF (1999)	Tunnel measurements	LDV		6.1	
EMPA (2000)		LDV		13.0	
Tyre wear - heavy-duty					
USEPA (1995)		HGV rigid		7.5	
USEPA (1995)		HGV articulated		22.5	
RAUTERBERG-WULFF (1999)	Tunnel measurements	HDV		31	
EMPA (2000)		HDV		200	
Brake wear - light-duty					
CHA et al. 1983	Asbestos brakes	LDV	7.8		
RAUTERBERG-WULFF (1999)	Tunnel measurements	LDV	1.0		
Catbotech (1999)		LDV	1.8-4.9		
GARG et al. (2000b)	Wheel dynamometers	LDV	2.9-7.5		
WESTERLUND (2001)	Roadside measurements and CMB	LDV	6.9		
ABU-ALLABAN et al. (2003)			0-79		
Brake wear - heavy-duty					
RAUTERBERG-WULFF (1999)	Tunnel measurements	HDV	24.5		
Catbotech (1999)		HDV	3.5		
CADLE et al. (2000)	Wheel dynamometers	HDV	7.6		
WESTERLUND (2001)	Roadside measurements and CMB	HDV	41.2		
ABU-ALLABAN et al. (2003)			0-610		

**Tab. 1:** Emissionsfaktoren für Reifen- bzw. Bremsabrieb aus verschiedenen Studien (Tabelle entnommen aus [LUHANA et al., 2004]; LDV: Pkw und Leichte Nutzfahrzeuge; HDV/HGV<sup>3</sup>: Lkw; vkm: vehicle-km

samt emittierten Partikel [LUHANA et al., 2004 und darin zit. Lit.]. Die Anteile mit einem aerodynamischen Durchmesser  $d_{ae}$  unter  $2,5 \mu\text{m}$  bzw.  $1 \mu\text{m}$  werden in verschiedenen Studien sehr unterschiedlich mit 5-60 % bzw. 10 bis > 33 % angegeben. Neueste Untersuchungen [IJIJIMA et al., 2007] zeigen, dass die Anzahlkonzentration von Bremsabriebspartikeln bei ca.  $1\text{-}2 \mu\text{m}$  maximal wird, was mit einer massenbezogenen Maximalkonzentration zwischen  $3 \mu\text{m}$  und  $6 \mu\text{m}$  korrespondiert.

Auch deutliche Anteile ultrafeiner Partikel ( $< 0,1 \mu\text{m}$ ) wurden berichtet. Hierfür sind möglicherweise Verdampfungs- und Kondensationsprozesse aufgrund der in Bremsen auftretenden hohen Temperaturen verantwortlich [GARG et al., 2000]. Ein beträchtlicher, aber schwer zu quantifizierender Teil der abgeriebenen Partikel gelangt nicht in den luftgetragenen Zustand, sondern verbleibt im Inneren der Bremse bzw. scheidet sich an Fahrzeug-Bauteilen ab. Auf diese Weise gebildete Agglomerate können schließlich auf der Straße deponiert werden und so zum Bestandteil des durch Aufwirbelung freigesetzten Feinstaubes werden.

Beim Reifenabrieb wird der größte Teil der Partikelmasse in großen, nicht luftgetragenen Partikeln freigesetzt. Die in [LUHANA et al., 2004] zitierten Studien fanden Durchmesser für Reifenpartikel im Straßenstaub von mehreren 10 bis mehreren  $100 \mu\text{m}$ . Nur geringe Anteile der freigesetzten Masse scheinen im  $\text{PM}_{10}$ -Größenbereich zu liegen und dabei überwiegend in der Fraktion  $> 2,5 \mu\text{m}$ .

Eine jüngere Studie [FAUSER 1999] fand allerdings 90 % der Partikelmasse durch Reifenabrieb im Bereich  $< 1 \mu\text{m}$ . Unterschiedliche Fahrgeschwindigkeiten und damit einhergehend die Temperatur der Reifen könnten für diese widersprüchlichen Ergebnisse mit verursachend sein, da sich bei höheren Temperaturen Reifenbestandteile verflüchtigen und anschließend wieder als Fein- oder sogar Ultrafeinpartikel kondensieren können [CADLE und WILLIAMS, 1979]. Für diesen im Prinzip plausiblen Mechanismus fehlen allerdings noch experimentelle Belege [EEA, 2003].

### 1.1.3 Inhaltsstoffe/Tracer

Reifen- und Bremsabriebspartikel sind in den letzten Jahren wiederholt auf ihre chemischen Inhaltsstoffe untersucht worden, zumeist um Tracer-Komponenten für die Quellenzuordnung zu identifizieren. Die Auswahl repräsentativer Reifen und Bremsen bereitete dabei jedoch erhebliche Probleme, da viele verschiedene Typen und Formulierungen auf dem Markt existieren und genaue Informationen dazu bei den Herstellern aus Patentschutzgründen oft nicht erhältlich sind. Entsprechend groß sind die Varianzen bei den in der Literatur veröffentlichten Konzentrationen. Die Bilder 1 bis 3 zeigen auf der Basis der in der EU-Studie [LUHANA et al., 2004] referenzierten Literatur einen Vergleich für die Zusammensetzung von Reifenpartikeln, Bremsbelägen bzw. Bremsabrieb. Wiedergegeben sind nur die Komponenten, die mindestens mit 0,01 % (= 100

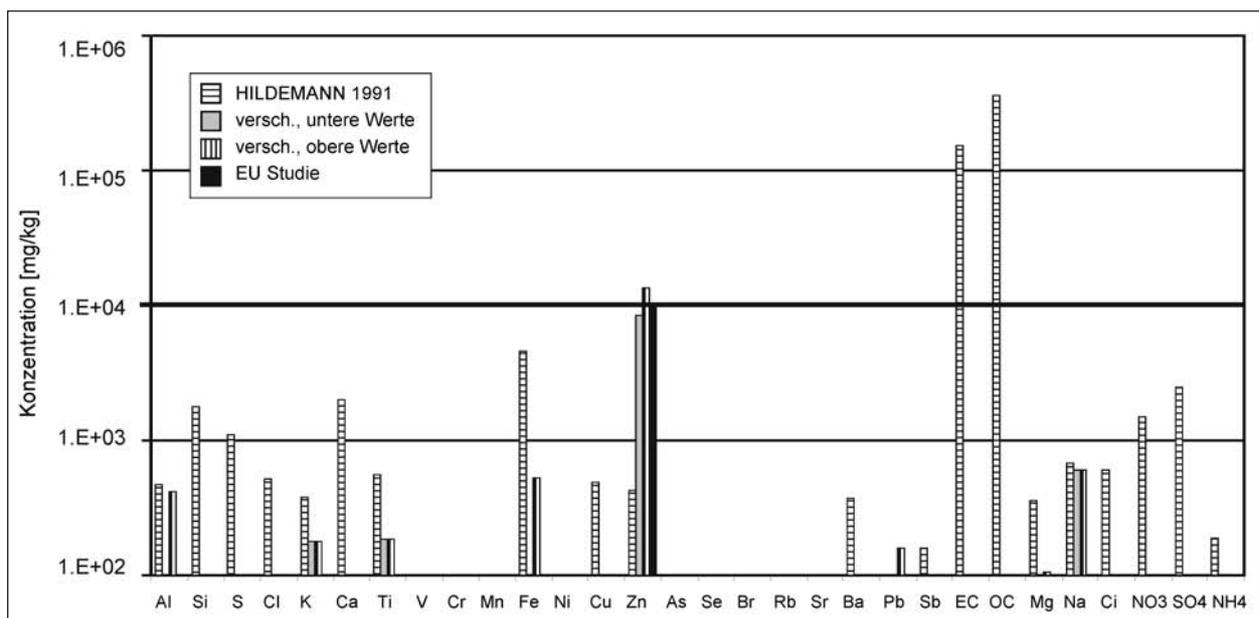


Bild 1: Inhaltsstoffe von Reifenabriebspartikeln [gem. Literatur zitiert in LUHANA et al., 2004]

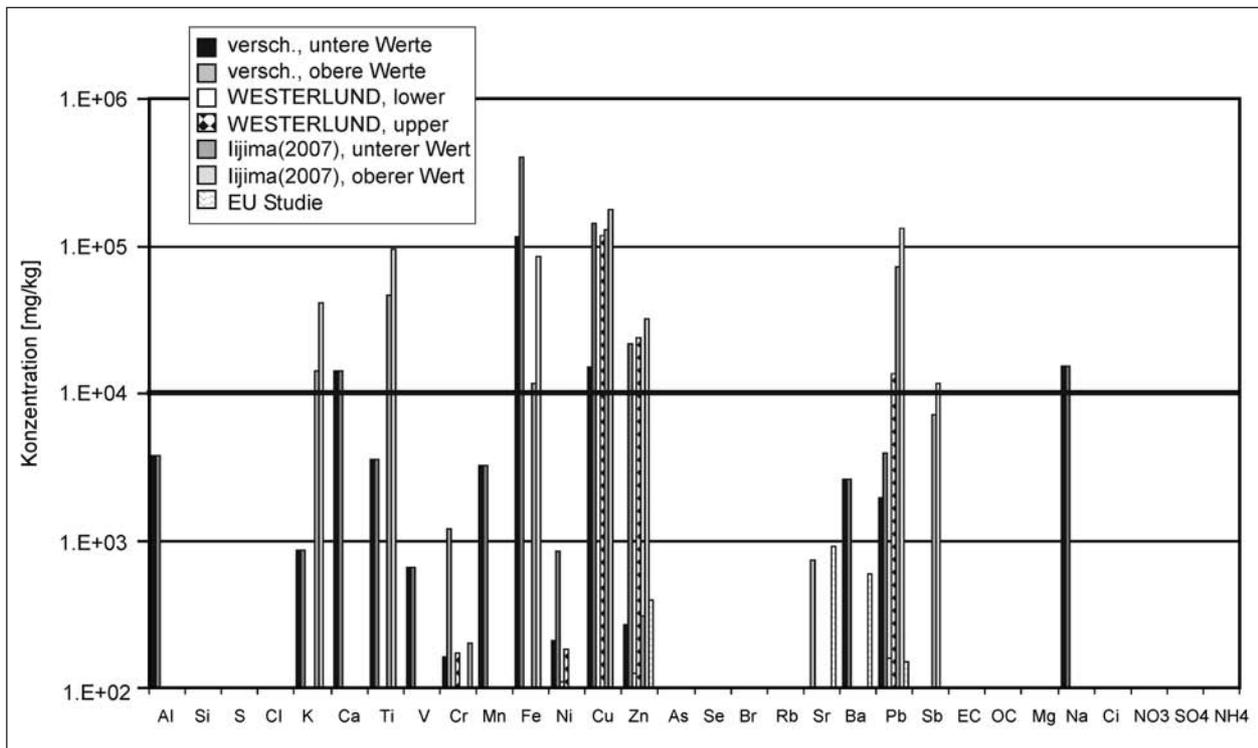


Bild 2: Inhaltsstoffe von Bremsbelägen [gem. Literatur zitiert in LUHANA et al., 2004 sowie IJIMA, 2007]

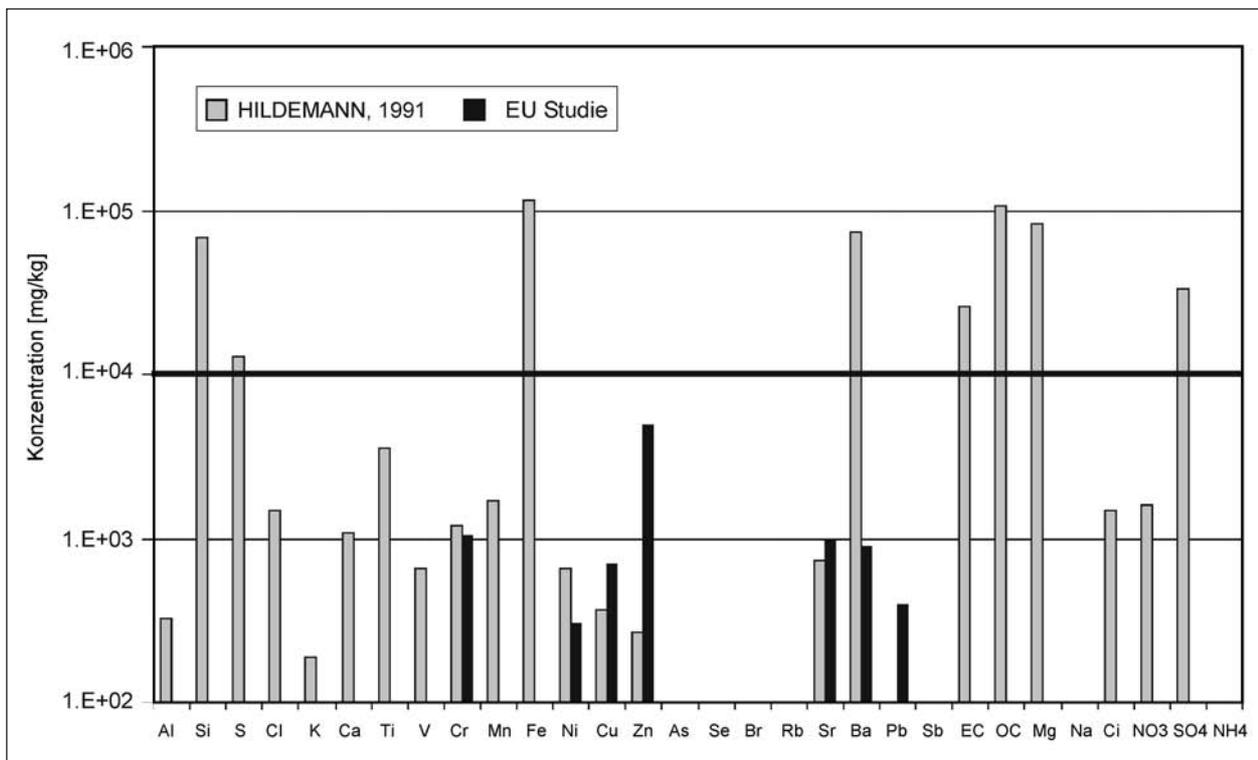


Bild 3: Inhaltsstoffe von Bremsabriebspartikeln [gem. Literatur zitiert in LUHANA et al., 2004]

mg/kg) beitragen. Mit mehr als 1 % der Masse (in den Grafiken indiziert durch fettgedruckte horizontale Linie) sind danach beim Reifenabrieb lediglich Zn, EC und OC vertreten. Im Fall von Bremsabrieb/

Bremsbelägen sind die wesentlichen Inhaltsstoffe Si, Fe, Cu, Zn, Ba, EC, OC, Mg und Sulfat. In den älteren Untersuchungen wurde Antimon (Sb) nicht bestimmt, die Analysen der EU-Studie berichten

Konzentrationen von ca. 50-60 mg/kg (annähernd gleich in Bremsabrieb und -belägen), die damit erheblich geringer waren als die von IJIMA et al. (2007) in 3 verschiedenen Bremsbelägen gefundenen Sb-Gehalte. Nach den aktuelleren Ergebnissen erscheint Sb als die markanteste und spezifischste Tracer-Komponente für Bremsabrieb. Insgesamt wird jedoch anhand der Daten deutlich, dass die Zusammensetzung von Bremsbelägen und damit auch von Bremsabriebspartikeln von einer großen Variabilität gekennzeichnet ist und repräsentative chemische Profile kaum zu erhalten sind.

## 1.2 Straßenabrieb und Aufwirbelung von Staub

Deutlich unsicherere Informationen als für Reifen- und Bremsabrieb existieren bezüglich Straßenabrieb und Aufwirbelung von Staub. Dies liegt vor allem daran, dass sich Untersuchungen zu Brems- und Reifenabrieb auch unter Laborbedingungen durchführen lassen, was für Straßenabrieb nur sehr eingeschränkt und für die Resuspension überhaupt nicht möglich ist.

### 1.2.1 Straßenabrieb

Qualität und Quantität des Straßenabriebs werden einerseits natürlich durch die Verkehrsbelastung und andererseits durch die Art des Straßenbelags beeinflusst. Auf deutschen Autobahnen sind sowohl Beton- als auch Asphaltfahrbahnen anzutreffen. Beton ist eine Mischung aus Grobmaterial, Sand und Zement, während Asphalt eine Mischung aus Split (ca. 95 %) und ca. 5 % Bitumen, einem Erdölprodukt, darstellt (der Bitumenanteil kann je nach Asphaltart bis auf ca. 10 % ansteigen).

Der Abrieb von Asphaltoberflächen wurde in verschiedenen Studien mit Werten zwischen ca. 4 und 40 mg/vkm angegeben, wobei die höheren Werte allerdings Reifen- und Bremsabrieb mit beinhalten. In Ländern, die die Nutzung von Spikereifen erlauben, wurde der Abrieb auf 24 mg/vkm geschätzt, mit neueren weichen Spikes und verbesserten Asphalten soll dieser Wert auf ca. 11 mg/vkm zurückgehen [NILU, 1996]. Die unter solchen Bedingungen (Spikereifen und trockene Witterung) resultierende  $PM_{10}$ -Belastung kann mit bis zu 600  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  sehr erheblich sein [NILU, 1996].

Ein Einfluss von Spikereifen liegt vermutlich auch bei den von FAUSER [FAUSER, 1999] berichteten Messungen aus Kopenhagen vor, bei denen

im Januar 1996 die Partikelgröße von luftgetragenen Bitumen-Partikeln durch Impaktormessungen an einer belebten Straße ermittelt wurde. Aus der Analyse von 24h-Filterproben resultierten dort verhältnismäßig hohe Konzentrationen von Bitumenpartikeln zwischen ca. 2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Samstag/Sonntag, TSP 25-30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) und bis zu 16  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (TSP ~80  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Eher überraschend ist, dass der überwiegende Massenanteil der Straßenabriebspartikel (ca. 80-90 %, siehe Bild 4) im Größenbereich zwischen 0,35 und 2,8  $\mu\text{m}$   $d_{ae}$  gefunden wurde.

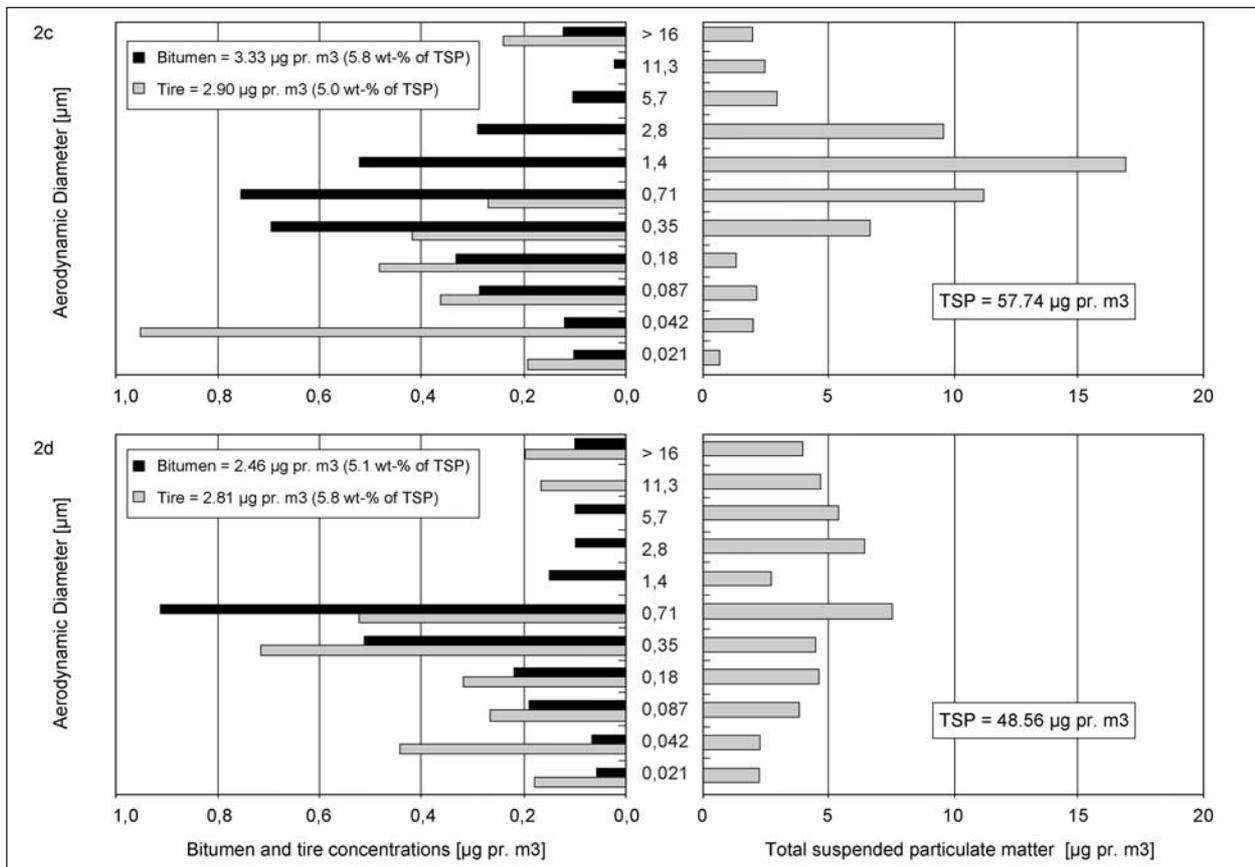
Bei der zuvor beschriebenen Studie wurden organische Verbindungen mit hohen Molekularmassen (Asphaltene und Maltene) als Maß für die Bitumenpartikelkonzentration verwendet. Neben diesen Indikatoren enthält Asphalt als Erdölprodukt auch Spuren von Vanadium (50-600 mg/kg) und Nickel (15-100 mg/kg) [BAEKKEN (1993)].

Über das unter realen Verkehrsbedingungen auftretende Abriebverhalten von Betonfahrbahnen liegen nur spärliche Informationen vor. Nach [SIEKER et al., 1988] beträgt der Abrieb von Betonfahrbahnen ca. 1/3 desjenigen von Asphaltbelägen.

### 1.2.2 Aufwirbelung von Straßenstaub

Straßenoberflächen wirken als Rezeptor und – bedingt durch Oberflächenporosität – auch als Reservoir für Staubdepositionen. Die Zusammensetzung des Straßenstaubes ist sehr komplex und kann stark durch lokale Eintragsquellen mitbestimmt werden. Grundsätzlich finden sich im Straßenstaub alle bisher bereits diskutierten Partikelklassen, also Reifen-, Brems-, und Straßenabriebspartikel. Weiterhin kommen als fahrzeugbezogene Bestandteile Korrosionspartikel, mit den Fahrzeugen eingetragenes Material sowie weggeworfener Abfall von Verkehrsteilnehmern in Betracht. Neben dem Straßenabrieb sind weitere straßenbezogene Einträge durch Korrosion von Straßeneinbauten (z. B. Leitplanken), von Tausalzen sowie von Düngemitteln, Pestiziden und Wachstumsinhibitoren aus der Unterhaltung des Straßenbegleitgrüns gegeben [LUHANA et al., 2004<sup>4</sup>]. Nicht-verkehrsbezogene Einträge potenziell staubender Materialien erfolgen

<sup>4</sup> Der Einsatz von Pestiziden und Herbiziden ist in Deutschland nur sehr eingeschränkt möglich, Düngemittel werden grundsätzlich nicht verwendet, können aber aus angrenzender Landwirtschaft in den Straßenbereich eingetragen werden.



**Bild 4:** Größenverteilung von Reifenabriebs- und Bitumen-Partikel sowie Gesamtstaub-Messungen in Kopenhagen [FAUSER 1999, Riso-R-1053]: oben: trockene, unten feuchte Witterungsbedingungen

schließlich auch durch die trockene und nasse atmosphärische Deposition, Pflanzenbestandteile sowie aufgewirbeltes Bodenmaterial.

Aufgrund der unterschiedlichen Eintragspfade und ihrer örtlich und saisonal (Vegetationsperiode, Eintrag von Tausalzen im Winter) wechselnden Anteile an der Belastung der Straßenoberfläche gibt es keine allgemeingültige chemische Charakterisierung von Straßenstaub. Vergleiche der Zusammensetzung von Straßenstaub und straßennah gesammelten Feinstaubproben erfordern daher immer die Analyse lokaler Straßenstaubproben (siehe Kapitel 3.5). Massenmäßig die größten Beiträge liefern in der Regel Silikate, organische Komponenten, Eisen- und Aluminiumoxide sowie Calcium, in den Wintermonaten treten bei Tausalzanwendung Natrium und Chlorid sowie Magnesium hinzu.

### 1.3 Emissionsfaktoren

Vergleiche zwischen  $PM_{10}$ -Messungen an belasteten Straßen und Immissionsmodellierungen auf der Basis der motorgebundenen Partikelemissionen er-

gaben z. T. markante Differenzen, die auf signifikanten Einfluss der Staubaufwirbelung auf die  $PM_{10}$ -Belastung hinwiesen [UMEG]. Verschiedentlich wurde versucht, diesen Einfluss modellrechnerisch abzubilden, wobei in Deutschland vor allem ein modifiziertes Modell der US EPA als Grundlage diente [DÜRING, 2002]. Weitere Modelle wurden in Norwegen und Schweden [OMSTEDT et al., 2005, KETZEL et al., 2005] entwickelt. In das EPA-Modell fließt als wesentlicher Faktor die Belastung mit „silt“ ein (die Siebfraktion  $\approx PM_{75}$ ). Trotz intensiver Bemühungen, dieses Modell auf die Straßenverhältnisse und typischen Staubbelastungen in Deutschland anzupassen, gelang mit diesem Modell letztlich nur ein ungenügendes Bild der messbaren  $PM_{10}$ -Belastung [LOHMEYER, 2003]. Letztlich wurden daher aus der Zusammenschau der Ergebnisse mehrerer Forschungsprojekte empirisch abgeleitete Emissionsfaktoren festgelegt (DÜRING, 2004, siehe Tabelle 2), die allerdings neben der Aufwirbelung auch die Direktmissionen aus Abriebsprozessen mit umfassen.

Unter den Annahmen, dass die Aufwirbelung über längere Perioden betrachtet mit der trockenen at-

mosphärischen Deposition im Gleichgewicht steht (und damit alle anderen Einträge durch Auswaschung entfernt werden), wurde für Großbritannien ein pauschaler Emissionsfaktor von 40 mg/vkm abgeleitet [NICHOLSON, 2000]. Dieser Wert wurde in das nationale Emissionsinventar für das Basisjahr 2000 übernommen.

## 2 Methodischer Ansatz

Mit dem vorliegenden Projekt sollte erstmals ermittelt werden, welchen Beitrag zur gesamten PM<sub>10</sub>-Emission die Abriebs- und Aufwirbelungsprozesse an Autobahnen mit freier Luftanströmung und gleichmäßigem Verkehrsfluss leisten, um die dafür bestehende Erkenntnislücke zu schließen.

Dazu wurden Luv/Lee-Messungen an einem ausgewählten Messquerschnitt einer Autobahn durchgeführt, an dem die Hauptwindrichtung möglichst

senkrecht zur Autobahn ausgerichtet war. Hierbei wurden die Massenkonzentrationen der PM<sub>1</sub>- und PM<sub>10</sub>-Fraktionen bestimmt. Die PM<sub>1</sub>-Fraktion diente einer Differenzierung der gemessenen Zusatzbelastung in abgasbedingte und nicht abgasbedingte Emissionen, da davon ausgegangen wird, dass die nicht abgasbedingten Verkehrsemissionen fast ausschließlich zur PM-Größenfraktion 1-10 µm bei PM<sub>10</sub> beiträgt. Die Messung erfolgte bei beiden Fraktionen sowohl kontinuierlich als auch diskontinuierlich. Zur Bestimmung der Gesamtemissionsfaktoren von PM<sub>10</sub>, PM<sub>1</sub> und PM<sub>1-10</sub> wurde in Anlehnung an [GEHRIG et al. 2003] die NO<sub>x</sub>-Tracermethode<sup>5</sup> verwendet. Dazu wurden zeitaufgelöst

<sup>5</sup> Dabei wird aus gemessenen NO<sub>x</sub>-Immissionen und bekannten NO<sub>x</sub>-Emissionsfaktoren ein „Verdünnungsfaktor“ ermittelt, der anschließend auf die gemessenen PM<sub>x</sub>-Immissionen zur Rückrechnung der unbekannt PM<sub>x</sub>-Emissionsfaktoren angewendet wird.

Verkehrssituation (nach HBEFA)	Tempolimit (km/h)	Anteil Konstantfahrt (nach HBEFA) [%]	Standanteil (nach HBEFA) [%]	Emissionsfaktor für PM <sub>10</sub> -Auf/Ab je Kfz [mg/km]	
				Pkw inkl. Infz	Lkw
AB > 120	-			22	200
AB_120	120			22	200
AB_100	100			22	200
AB_80	80			22	200
AB_60	60			22	200
AB_StGo	-			22	200
AO1	100	60	1	22	200
AO2	100	53	1	22	200
AO3	100	28	1	22	200
IO_HVS>50	60	46	1	22	200
Tunnel AB_100	100			10	200
Tunnel AB_80	80			10	200
Tunnel AB_60	60			10	200
Tunnel IO_HVS>50	60	46	1	10	200
HVS1	50	46	1	22	200
HVS2	50	52	1	30	300
HVS3	50	44	7	40	380
LSA1	50	44	7	40	380
HVS4	50	37	14	50	450
LSA2	50	32	20	60	600
LSA3	50	28	26	90	800
IO_Kern	50	23	33	90	800
IO_NS_dicht	50	32	5	90	800

Tab. 2: Empirisch abgeleitete PM<sub>10</sub>-Emissionsfaktoren für Aufwirbelung und Abrieb [DÜRING, 2004]

die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen gemessen. Darüber hinaus erfolgte eine Messung der meteorologischen Parameter entsprechend der VDI-Richtlinie 3786. Informationen zum Verkehrsaufkommen für 8+1 Fahrzeugklassen und jeden Fahrstreifen wurden von der Bundesanstalt für Straßenwesen zur Verfügung gestellt.

Die Konzentrationen ausgewählter  $\text{PM}_{10}$ -Inhaltsstoffe wurden durch chemische Analysen ermittelt. Die  $\text{PM}_1$ -Fraktion wurde zusätzlich auf den Gehalt an elementarem (EC) und organischem Kohlenstoff (OC) untersucht, da die als Differenz  $\text{PM}_{1-10}$  errechenbare EC-Konzentration in der Grobstaubfraktion als Indikator für Reifenabrieb herangezogen werden sollte. Anhand dieser Analysendaten wurde eine Modellierung mit einer Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF) durchgeführt, um Emissionsfaktoren für Reifen-, Brems- und Straßenabrieb zu ermitteln.

### 3 Messdatenerhebung und -aufbereitung

#### 3.1 Lage und Ausstattung der Probenahme-Orte

Die Messungen wurden im Zeitraum 01.09.2005 bis 31.03.2006 und 20.06.2006 bis 07.01.2007 an der A 61 in der Nähe des Rastplatzes „Goldene Meile“ (km 177,5) durchgeführt.

Für die Messungen wurden 2 Messcontainer eingesetzt. Bild 5 zeigt Luftaufnahmen des Messquerschnittes mit der Lage der beiden Messcontainer. Die erhobenen Messgrößen und die dafür benutzten Messgeräte sind in Tabelle 3 aufgeführt.

##### 3.1.1 Meteorologische Daten

Die Messstation FR Koblenz war zusätzlich mit einer Wetterstation (Campbell Scientific) ausgestattet. Folgende meteorologische Daten wurden dabei erfasst:



Bild 5: Satellitenaufnahmen des Messstandortes mit Lage der Messcontainer [Image NASA © 2007, Google Earth]

Messparameter	Station	Messprinzip/Gerät	Gerät bzw. Hersteller	Zeitauflösung
Meteorologie WR, WG, rH, T, Luftdruck, Strahlung	FR Koblenz		Campbell Scientific	Kont.
Stickstoffoxide	Beide	Chemilumineszenz	MonitorLabs ML 9811	Kont., 0,5h
$\text{PM}_{10}$	Beide	TEOM	R&P 1400	Kont., 0,5h
$\text{PM}_{10}$	Beide	High-Vol-Filtriersammler	Digitel DHA 80	Disk., 24h
$\text{PM}_1$	Beide	TEOM	R&P 1400	Kont., 0,5h
$\text{PM}_1$	Beide	High-Vol-Filtriersammler	Digitel DHA 80	Disk., 24h
DTV	Beide	Induktionsschleifen		Kont., 1h

Tab. 3: Messgrößen, Messgeräte und ihre Zeitauflösung

- Luftdruck,
- Lufttemperatur,
- Luftfeuchte,
- Sonnenstrahlung,
- Windrichtung,
- Windgeschwindigkeit,
- Regen.

Tabelle 4 zeigt die statistischen Kenngrößen der meteorologischen Daten für den gesamten Messzeitraum (basierend auf Halbstundenwerten). Die Bilder 6 bis 8 zeigen die Verläufe der Tagesmittelwerte für Temperatur, Windgeschwindigkeiten und Niederschlagsmenge.

<sup>6</sup> Die hohe Anzahl der niederschlagsfreien Halbstundenwerte bedingt einen Mittelwert von lediglich 0,02 mm.

	Druck [hPa]	Temp.* [°C]	Feuchte [%]	Str.** [kW/m <sup>2</sup> ]	WG*** [m/s]	Regen [mm]
Mittelwert	991.5	10.3	86.1	0.09	2.1	0.0 <sup>6</sup>
Abs. St.-abw.****	9.4	8.1	15.0	0.17	1.4	0.2
Rel. St.-abw. %	1 %	79 %	17 %	183 %	66 %	882 %
Minimum	960.3	-11.9	18.5	0.00	0.0	0.0
Maximum	1015.0	35.5	100.0	0.91	10.8	13.4
Median	992.3	10.1	91.2	0.00	1.9	0.0
25er Perzentil	985.9	3.8	79.4	0.00	1.1	0.0
75er Perzentil	998.2	16.2	97.5	0.11	2.8	0.0
Verfügbarkeit	93 %	93 %	93 %	93 %	92 %	93 %

\* Temperatur  
\*\* Strahlung  
\*\*\* Windgeschwindigkeit  
\*\*\*\* Standardabweichung

Tab. 4: Statistische Kennzahlen der meteorologischen Messparameter (19.872 Halbstundenwerte)

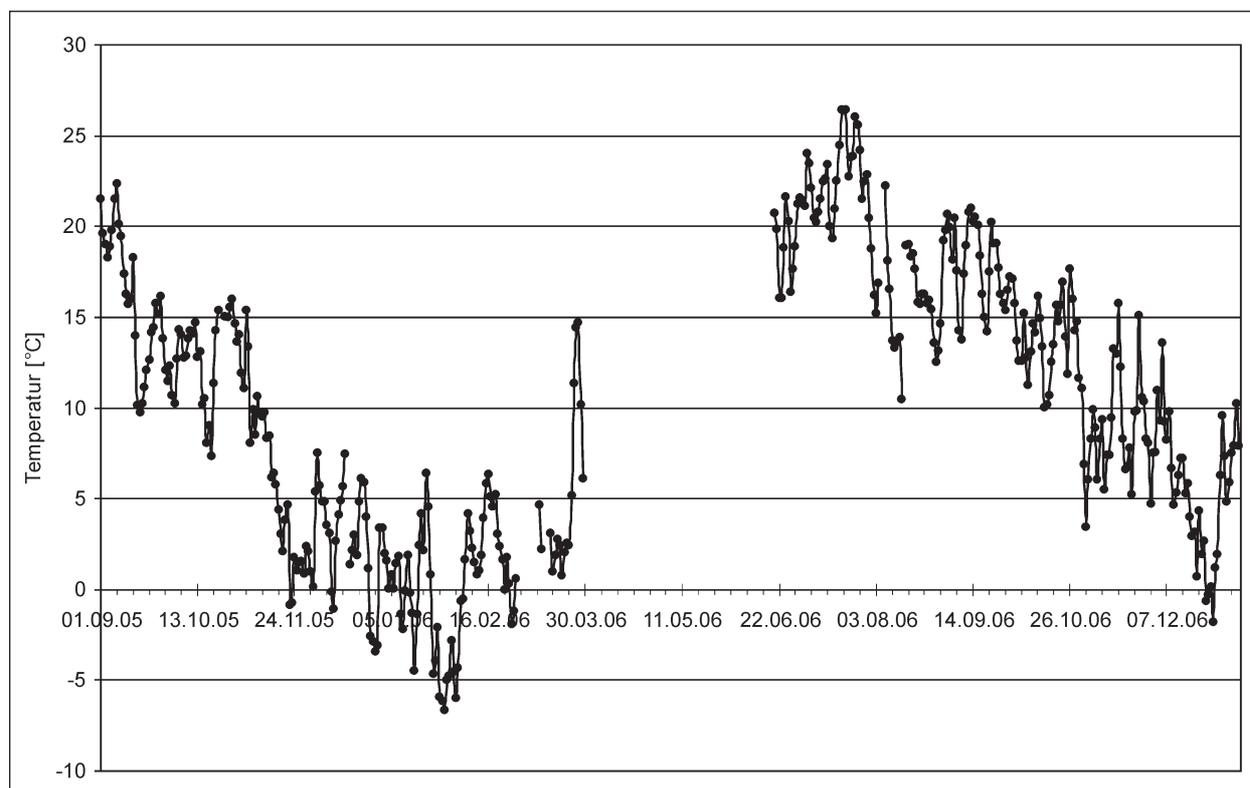
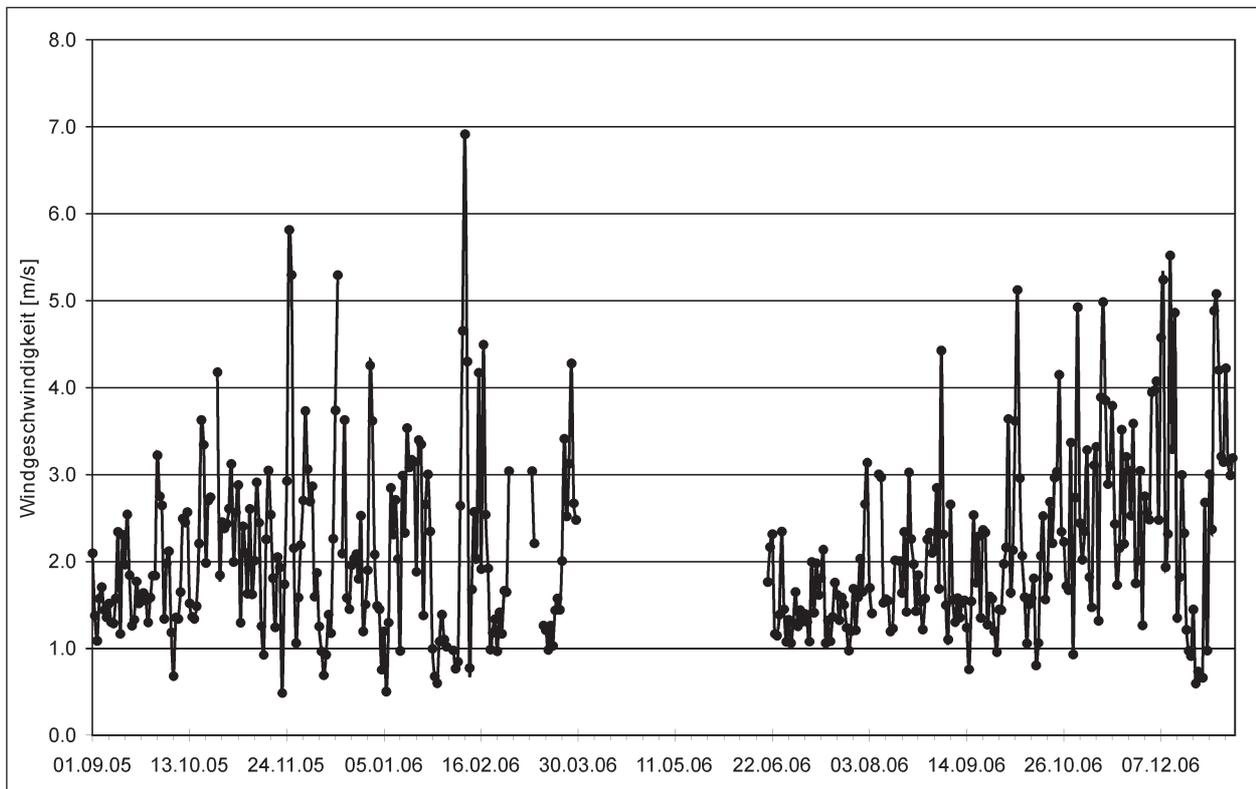
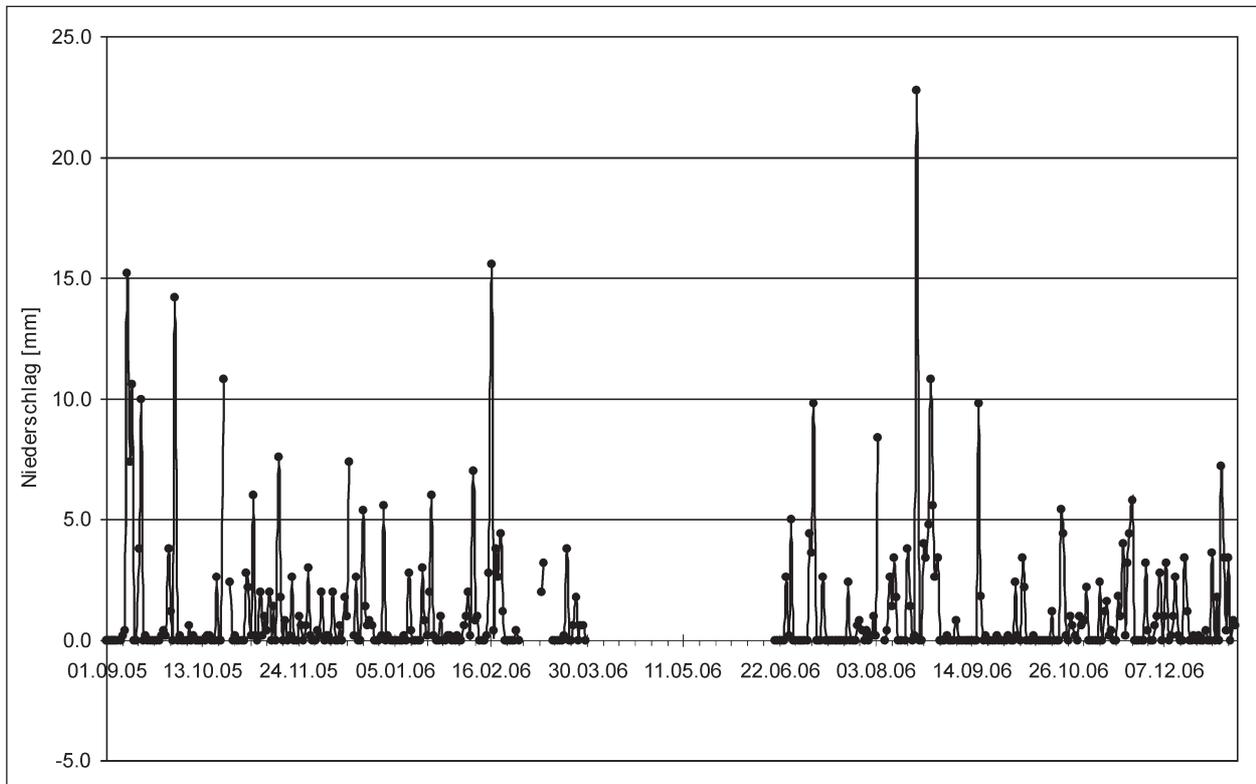


Bild 6: Tagesmittelwerte der Temperatur im Messzeitraum



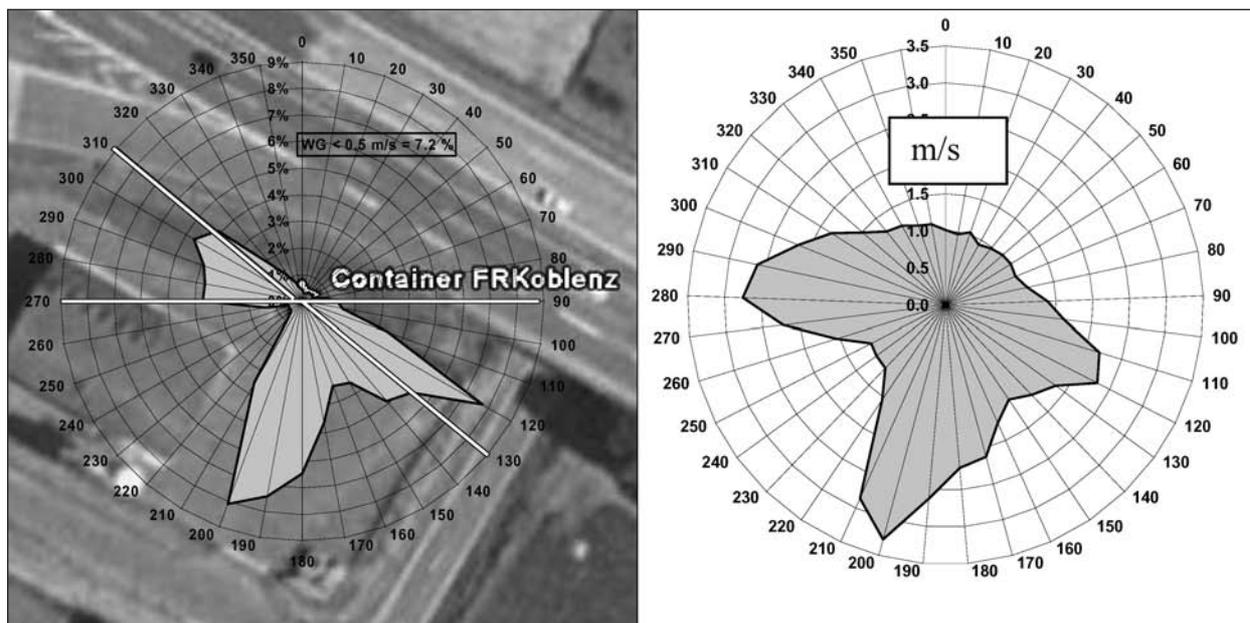
**Bild 7:** Tagesmittelwerte der Windgeschwindigkeit im Messzeitraum



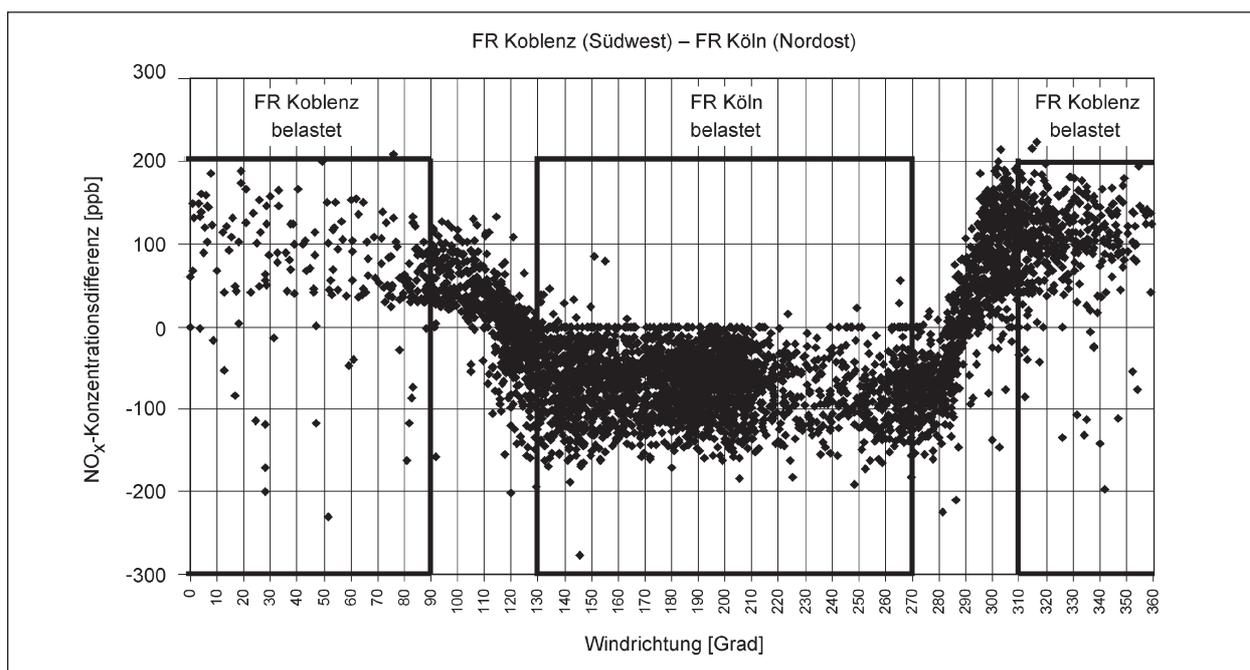
**Bild 8:** Tagesmittelwerte des Niederschlags im Messzeitraum

Bild 9 zeigt links die Windrose basierend auf den Halbstundenwerten. Bei 7,2 % der Messwerte lag die zugehörige Windgeschwindigkeit unterhalb von

0,5 m/s, diese Werte wurden bei der Windrichtungsverteilung nicht berücksichtigt. Im rechten Teil von Bild 9 ist die Verteilung der Windgeschwindig-



**Bild 9:** Häufigkeitsverteilung der Windrichtungen (links) bzw. Windgeschwindigkeitsverteilung (rechts) an der Messstelle FR Koblenz [Image NASA © 2007, Google Earth]



**Bild 10:** Auswertung der NO<sub>x</sub>-Konzentrationsdifferenzen zur Festlegung der Windsektoren für die Stationsklassifizierung

keit in Abhängigkeit von der Windrichtung gezeigt. Daraus geht hervor, dass bei der am häufigsten anzutreffenden Südwestwindlage auch im Mittel deutlich höhere Windgeschwindigkeiten auftreten als bei Wind aus Nordost.

In die Windrose bereits eingezeichnet sind weiterhin die WR-Sektoren, die für die Klassifizierung der Messdaten hinsichtlich ihrer Luv-Lee-Charakteristik verwendet wurden.

Diese Sektoren wurden anhand der Windrichtungsdaten in Zusammenschau mit den gemessenen NO<sub>x</sub>-Konzentrationen auf der Basis von Halbstunden-Mittelwerten bestimmt (siehe Bild 10). Es ergab sich, dass für Windrichtungen zwischen 130 und 270° die Station FR Köln, für Windrichtungen zwischen 310 bis 90° die Station FR Koblenz als belastet anzusehen ist.

### 3.1.2 Verkehrsaufkommen

Die Daten zum Verkehrsaufkommen wurden von der Bundesanstalt für Straßenwesen zur Verfügung gestellt. Die Zählschleifen liegen zwischen dem Autobahnkreuz Meckenheim und der Ausfahrt Bad Neuenahr/Ahrweiler (Knoten 5408-7149, Ringen-Vettelhoven) und befanden sich in unmittelbarer Nähe zu den Luftmesscontainern.

Aufgezeichnet werden dort die DTV<sup>7</sup>-Daten mit differenzierter Fahrzeugunterscheidung in 8+1 Klassen. Als maximale Zeitauflösung stehen in diesem Fall Stundenwerte zur Verfügung. Angaben zur Fahrzeuggeschwindigkeit waren nicht verfügbar.

Tabelle 5 zeigt die statistischen Kenngrößen der DTV-Daten (basierend auf Stundenwerten) für den gesamten Messzeitraum. Aufgeführt sind die für alle Fahrspuren und beide Fahrrichtungen aufsummierten Werte. Aus diesen Daten ergibt sich ein durchschnittliches tägliches Verkehrsaufkommen von ca. 72.000 Fahrzeugen.

DTV gesamt	Pkw [Anzahl]	Lkw [Anzahl]	Kfz [Anzahl]	Lkw-Anteil [%]
Mittelwert	2.358	646	3.004	28 % <sup>8</sup>
Abs. St.-abw.*	1.600	364	1.764	19 %
Rel. St.-abw. %	68 %	56 %	59 %	68 %
Minimum	106	6	164	2 %
Maximum	6.754	1.684	6.982	82 %
Median	2.530	654	3.326	24 %
25er Perzentil	734	328	1.170	14 %
75er Perzentil	3.592	988	4.480	37 %
Verfügbarkeit	98 %	98 %	98 %	98 %
*Standardabweichung				

Tab. 5: Statistische Kennzahlen des Fahrzeugaufkommens (1h-Werte)

<sup>7</sup> DTV: durchschnittlicher täglicher Verkehr

<sup>8</sup> Der Lkw-Anteil von 28 % resultiert als Mittelwert der stundenweise ausgewiesenen Lkw-Anteile, die beispielsweise in den frühen Morgenstunden sehr hoch sein können. Berechnet man den Lkw-Anteil aus den Mittelwerten der Kfz- bzw. Lkw-Aufkommen (3.004 bzw. 646), so wird ein mittlerer Lkw-Anteil von 21 % erhalten. Für die Tage mit analysierten Filterproben lag der Lkw-Anteil bei 20 %. Dieser Wert wird im Folgenden für die Beschreibung der Verkehrssituation weiterverwendet.

<sup>9</sup> Die Rohmesswerte wurden vor Mittelung hinsichtlich Langzeitdrift korrigiert und von Ausreißern befreit. Negative Messwerte entstanden durch Rauschen um den Nullpunkt und sind somit ein Maß für das erzielte Signal/Rauschverhältnis. Daher wurden sie für die Darstellung der Kennzahlen zunächst nicht ausgesondert. Bei der Ableitung der Emissionsfaktoren blieben sie unberücksichtigt (siehe Kapitel 4.1)

## 3.2 Kontinuierliche Messungen mit hoher Zeitauflösung

Die aufgeführten kontinuierlichen Messdaten wurden jeweils mit einer Zeitauflösung von 5 min erfasst und zu Halbstunden-Werten gemittelt. Der gesamte Messzeitraum (01.09.2005 bis 31.03.2006 und 20.06.2006 bis 07.01.2007) umfasste dabei 19.872 Halbstunden-Werte, die der Berechnung der Datenverfügbarkeit zugrunde gelegt wurden.

### 3.2.1 Massenkonzentrationen der Stickstoffoxide (NO, NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub>)

Tabelle 6 zeigt die statistischen Kenngrößen der Stickstoffoxid-Konzentrationen für den gesamten Messzeitraum und beide Fahrrichtungen.

### 3.2.2 PM<sub>1</sub>- und PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen (TEOM)

Die Tabelle 7 zeigt die statistischen Kenngrößen der an das gravimetrische Verfahren angeglich-

	FR Koblenz			FR Köln		
	NO [ppb]	NO <sub>x</sub> [ppb]	NO <sub>2</sub> [ppb]	NO [ppb]	NO <sub>x</sub> [ppb]	NO <sub>2</sub> [ppb]
Mittelwert	30,8	48,7	17,8	46,2	67,0	20,8
Abs. St.-abw.*	52,0	65,1	15,4	40,8	49,5	11,3
Rel. St.-abw. %	169 %	134 %	86 %	88 %	74 %	54 %
Minimum	-2,2	-1,6	-0,9	-0,5	1,0	-0,2
Maximum	450,3	514,4	92,4	379,7	444,6	79,6
Median	3,5	17,4	13,1	37,6	58,2	19,9
25er Perzentil	0,2	5,6	5,3	13,7	27,6	12,1
75er Perzentil	41,0	68,6	27,3	67,7	95,7	28,0
Verfügbarkeit	90 %	90 %	90 %	96 %	96 %	96 %
*Standardabweichung						

Tab. 6: Kenndaten der gemessenen Stickstoffoxid-Konzentrationen<sup>9</sup>

	FR Koblenz			FR Köln		
	PM <sub>1</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1-10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1-10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]
Mittelwert	13,8	24,2	10,9	13,6	24,6	11,1
Abs. St.-abw.*	11,1	20,6	13,4	9,8	17,9	11,5
Rel. St.-abw. %	80 %	85 %	122 %	72 %	73 %	104 %
Minimum	-53,8	-62,4	-46,8	-44,1	-53,6	-59,2
Maximum	161,0	678,4	621,4	156,8	301,3	216,9
Median	11,7	20,7	8,4	11,6	22,1	9,2
25er Perzentil	5,9	11,2	4,0	6,7	13,2	4,6
75er Perzentil	19,5	33,4	14,9	18,5	32,7	15,1
Verfügbarkeit	90 %	90 %	89 %	95 %	97 %	94 %
*Standardabweichung						

Tab. 7: Statistische Kenndaten der mittels TEOM gemessenen Konzentrationen<sup>10</sup>

nen  $PM_1$ - und  $PM_{10}$ -Konzentrationen (TEOM) sowie der daraus berechneten Grobstaubfraktion  $PM_{1-10}$  (Korrekturfaktor Filter/TEOM auf 24h-Basis).

### 3.2.3 Konzentrationsrosen

Die Bilder 11 bis 13 zeigen die erläuternden Konzentrationswindrosen für FR Koblenz (links) und FR Köln (rechts). In Bild 11 sind die Mittelwerte der  $PM_x$ -Konzentrationen für die einzelnen Windrichtungsklassen dargestellt. Diese Art der Darstellung

zeigt die Höhe der  $PM_x$ -Konzentrationen, die bei Vorliegen einer bestimmten Windrichtung gemessen wurden. In beiden Fällen sind die Konzentrationen je Windrichtungsklasse für alle 3 Größenfraktionen ( $PM_{10}$ ,  $PM_1$  und  $PM_{1-10}$ ) grundsätzlich recht ähnlich, wobei die niedrigen Konzentrationen an der Station FR Koblenz im Bereich von ca.  $130^\circ$  bis ca.  $270^\circ$  (Luftmassen mit Hintergrund-Belastung) auffallen. Dem gegenüber ist, wie an der Grafik für die FR Köln zu sehen, die Hintergrundbelastung bei Nordostwindlagen (kontinentale Luftmassen) bereits deutlich erhöht.

In Bild 12 sind nochmals die  $PM_{10}$ -Konzentrationsrosen dargestellt. Zur Visualisierung der durch die Autobahn hervorgerufenen Zusatzbelastung wurden dabei die jeweils auf der anderen Seite gemessenen Vorbelastungen vergleichend mit einbezogen. Die Zusatzbelastung ist bei Nordostwindlage höher als bei Wind aus Südwest. Dies erklärt

<sup>10</sup> Die Rohmesswerte wurden vor Mittelung von Ausreißern befreit; negative Messwerte sind durch das Messprinzip (Differenzbestimmung der massenabhängigen Schwingungsfrequenz) bei Massenrückgang aufgrund volatiler Substanzen (Wasser, Ammoniumnitrat, organische Stoffe) möglich und wurden daher nicht ausgesondert.

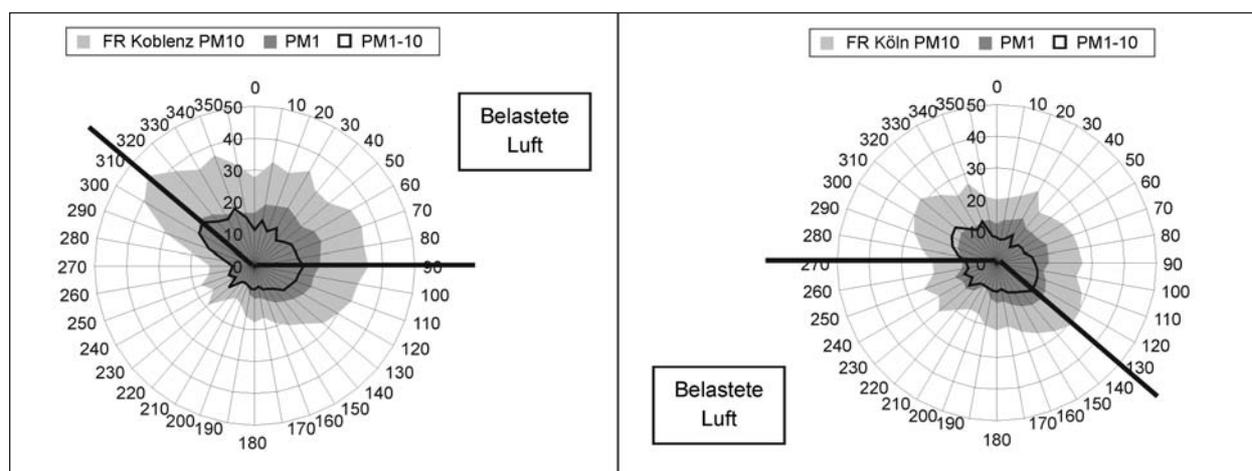


Bild 11: Konzentrationsrosen für  $PM_{10}$ ,  $PM_1$  und  $PM_{1-10}$

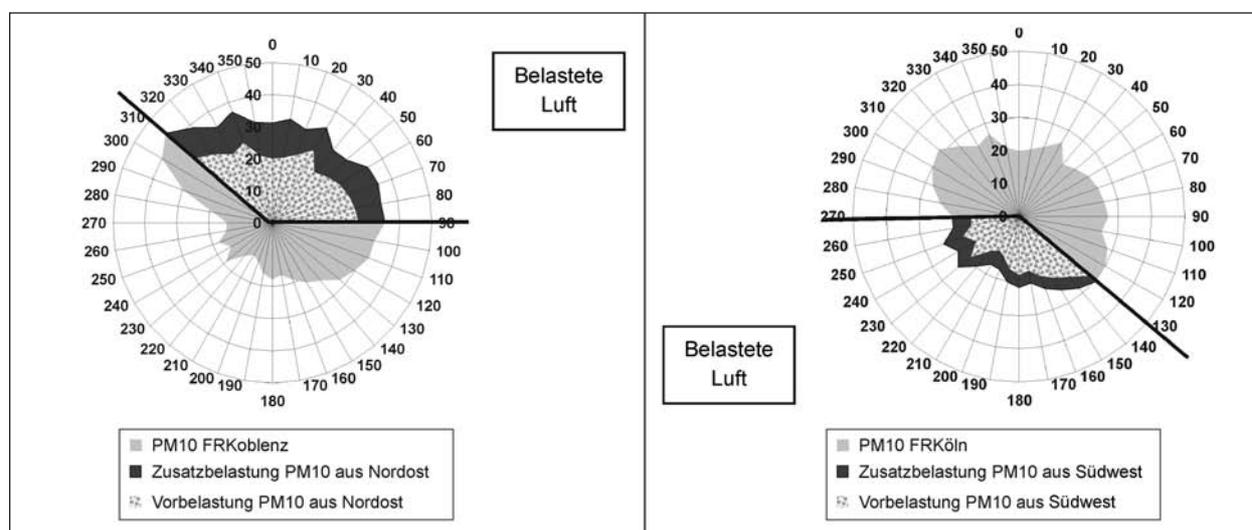
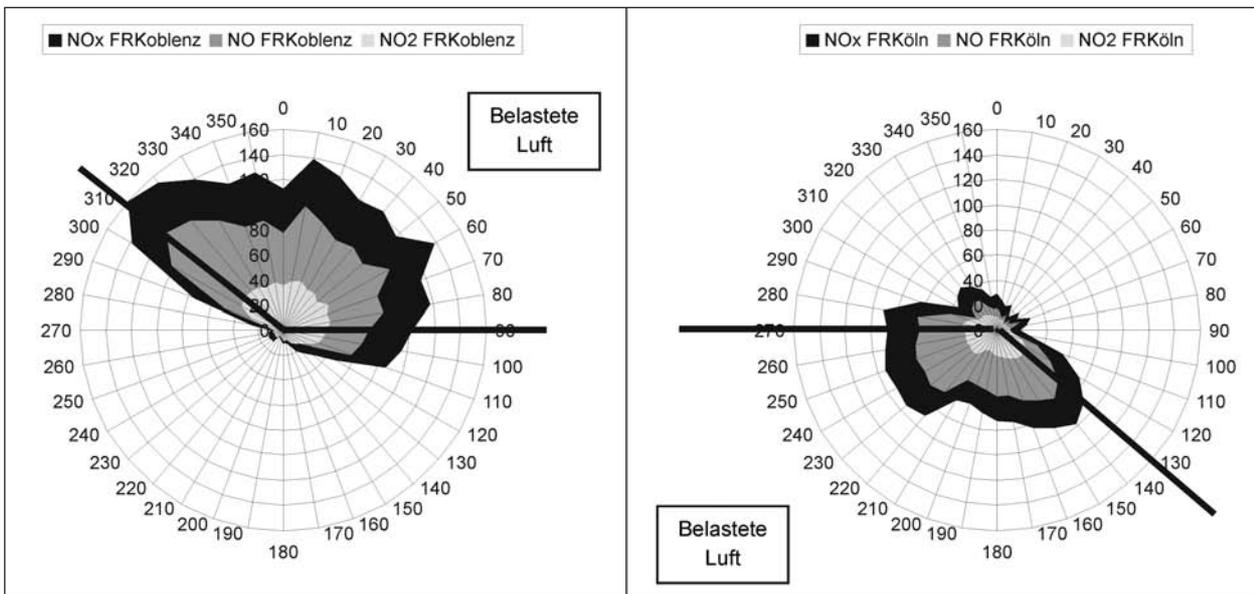


Bild 12: Grafischer Vergleich der durch die Fahrzeugemissionen hervorgerufenen  $PM_{10}$ -Zusatzbelastungen (Radiusachsen:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )



**Bild 13:** Konzentrationsrosen für NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub> und NO (Radiusachsen: µg/m<sup>3</sup>)

sich aus unterschiedlichen Dispersionsbedingungen aufgrund unterschiedlicher mittlerer Windgeschwindigkeiten (siehe Bild 9).

Zum Vergleich sind in Bild 13 die Konzentrationswindrosen für NO, NO<sub>x</sub> und NO<sub>2</sub> dargestellt. In diesem Fall macht sich die zwischen den beiden Messstationen liegende Quelle „Autobahn“ bei den Immissionskonzentrationen deutlich stärker bemerkbar als bei den PM<sub>x</sub>-Konzentrationen, bei denen die Vorbelastung im Vergleich zur Zusatzbelastung wesentlich höher ist. Auch hier ist der Effekt der höheren durchschnittlichen Windgeschwindigkeiten aus Südwest an den niedrigeren Konzentrationen auf der Seite FR Köln zu erkennen.

### 3.3 Filterprobenahmen

#### 3.3.1 PM<sub>1</sub>- und PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen

##### 3.3.1.1 Probenahme und Wägung

Neben der zeitaufgelösten Messung der PM<sub>1</sub>- bzw. PM<sub>10</sub>-Massenkonzentration erfolgte eine Probenahme auf Quarzfaserfiltern zur gravimetrischen Bestimmung und nachfolgenden chemischen Analytik. Die Probenahme erfolgte mit High-Vol-Sammlern (Digital DHA 80), die mit den entsprechenden

	PM <sub>10</sub>	PM <sub>1</sub>	PM <sub>1-10</sub>
Median	8,5 %	14,8 %	28,5 %
10-Perzentil	5,3 %	8,4 %	17,8 %
90-Perzentil	13,3 %	28,8 %	62,0 %

**Tab. 8:** Relative Gesamt-Unsicherheiten der PM<sub>x</sub>-Massenkonzentrationen

größenselektiven Vorabscheidern ausgerüstet waren. Die Filter wurden in Anlehnung an die EN12341 vor und nach der Probenahme im klimatisierten Wägeraum des IUTA bei 20 °C und 50 % r. H. konditioniert<sup>11</sup> und mindestens zweimal gewogen. Zusätzliche Wägungen erfolgten, solange die Abweichung zwischen aufeinanderfolgenden Wägungen größer als absolut 0,8 mg betrug. Die PM<sub>x</sub>-Massenkonzentration wurde schließlich aus der Differenz der erhaltenen Mittelwerte für Aus- und Einwaage durch Division mit dem insgesamt beprobten Gasvolumen (ca. 720 m<sup>3</sup> bzw. ca. 570 m<sup>3</sup> für PM<sub>10</sub> bzw. PM<sub>1</sub>) ermittelt. Die Gesamt-Unsicherheiten<sup>12</sup> für die PM<sub>x</sub>-Massenkonzentrationen basierend auf den Standardabweichungen der wiederholten Ein- und Auswaage sind in Tabelle 8 gezeigt. Der relative Fehler des Volumenstroms war im Vergleich dazu vernachlässigbar und wurde daher nicht berücksichtigt.

##### 3.3.1.2 Zeitreihen und statistische Kenndaten

Die nachfolgenden Graphen (Bild 14) zeigen die Zeitreihen der diskontinuierlich bestimmten PM<sub>1</sub>- und PM<sub>10</sub>-Konzentrationen für alle Filterprobenahme-Tage und beide Messstationen.

<sup>11</sup> Die Mittelwerte und Standardabweichungen der an den insgesamt 67 Wägetagen gemessenen Temperaturen und rel. Feuchten betragen 19,5 ± 0,5 °C bzw. 55,0 ± 4,1 % r. F.

<sup>12</sup> Ermittelt mit dem EPA-Ansatz als Wurzel aus der Summe der Fehlerquadrate, vgl. Kapitel 4.2.2.3.

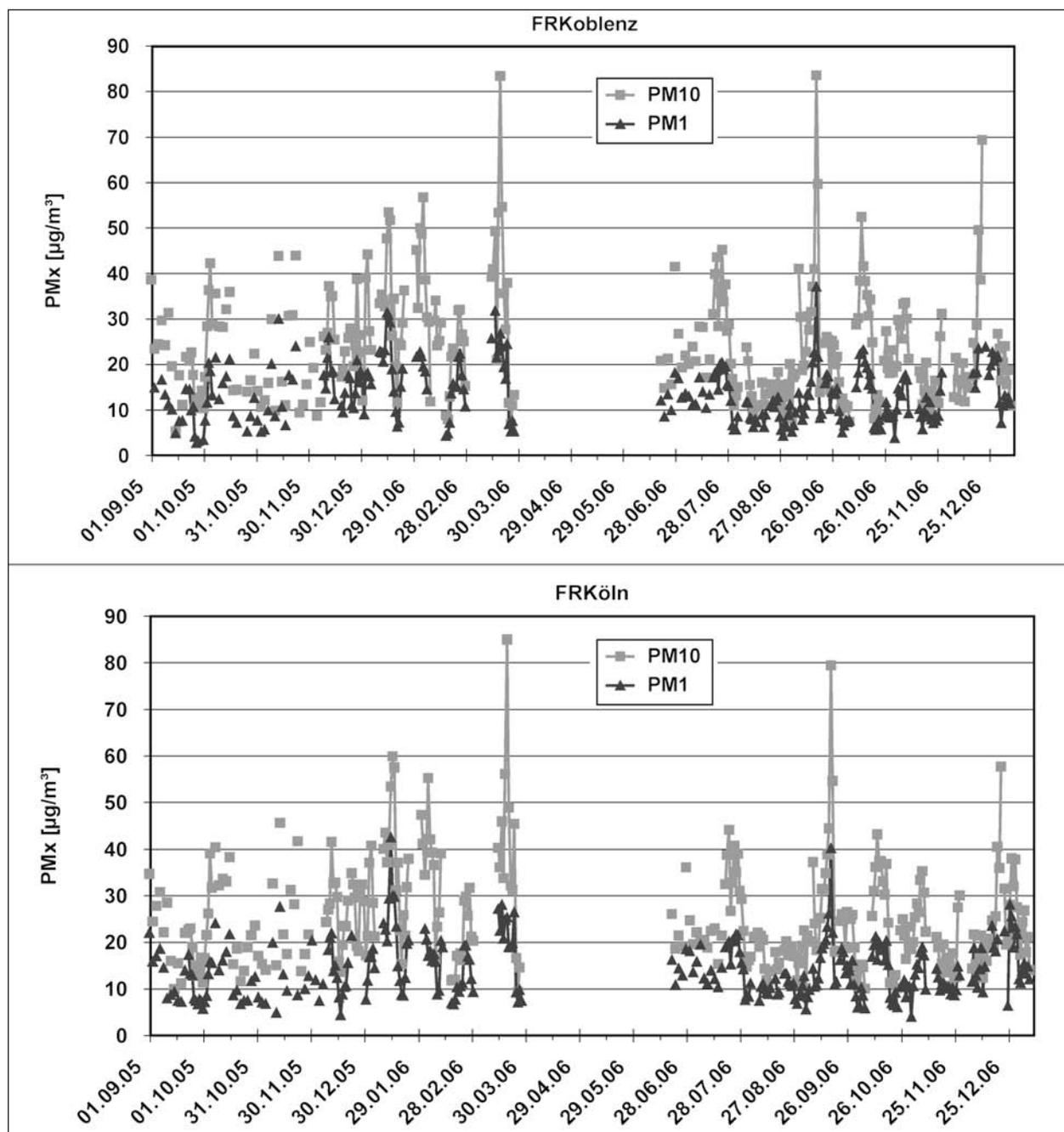


Bild 14: Zeitreihen der PM<sub>10</sub> und PM<sub>1</sub>-Konzentrationen (Filterprobenahme)

### 3.4 Inhaltsstoff-Analytik

#### 3.4.1 Ausgewählte Filterproben

Aus den insgesamt ca. 400 Tagen mit Filterproben wurden zunächst diejenigen Tage ausgewählt, bei denen möglichst folgende Kriterien erfüllt waren:

- Verfügbarkeit von allen 4 simultan beprobten Filtern<sup>13</sup>,
- überwiegende Luv-Lee-Windrichtung quer zur Fahrbahn  
(Luv-Lee-Situation =  $|\eta_{\text{HSW, Luv}} - \eta_{\text{HSW, Lee}}| > 40\%$ ; HSW: Halbstundenwert),
- hohe PM<sub>1-10</sub>-Massenkonzentrations-Differenz zwischen belasteter und unbelasteter Seite ( $\geq 1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ),
- hohe absolute PM<sub>10</sub>-Konzentrationen ( $\geq 25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ),

<sup>13</sup> Tage, an denen lediglich ein PM<sub>1</sub>-Filter fehlte, wurden – soweit die übrigen Kriterien dies sinnvoll erscheinen ließen – mit einbezogen.

e) geringe Niederschlagsmenge.

Von den danach verbliebenen (ca. 150) Tagen wurden vertragsgemäß anschließend 72 für die Analytik ausgewählt. Aufgrund von Implausibilitäten bzw.

Jahr	Monat	Datum
2005	September	7, 26, 27, 30
	Oktober	1, 12, 20, 26
	November	1, 3, 5, 11, 15, 25, 27, 29
	Dezember	20, 24, 30
2006	Januar	5, 11, 17, 20
	Februar	17, 1, 20, 22, 23, 25, 26, 27
	März	25, 26, 27
	Juni	20, 22, 26
	Juli	27, 28, 30
	August	1, 2, 3, 10, 11, 12, 17, 18, 19, 23, 24, 27, 28, 29, 31
	September	1, 2, 3, 4, 5
	Dezember	30, 31
2007	Januar	1, 2, 3, 4, 5, 6

Tab. 9: Ausgewählte Tage für die chem. Inhaltsstoff-Analysen

Wochentag	Anzahl
Sonntag	7
Montag	8
Dienstag	11
Mittwoch	8
Donnerstag	12
Freitag	11
Samstag	11

Tab. 10: Verteilung der PN-Tage auf Wochentage

Analytik-Tage (PM <sub>10</sub> -Filter)	unbelastete Station			verkehrsbelastete Station		
	PM <sub>10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1-10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>1-10</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]
Mittelwert	16,6	9,7	6,9	20,0	11,7	8,3
Abs. St.-abw.*	6,8	4,7	3,2	7,0	4,6	3,5
Rel. St.-abw. %	40,9	48,5	45,7	35,0	39,0	42,2
Minimum	6,7	2,6	-0,4	9,1	4,7	2,0
Maximum	37,4	22,4	18,1	43,3	23,2	20,7
Median	15,3	8,7	6,5	18,4	10,9	7,7
25er Perzentil	11,2	6,1	4,9	15,1	8,1	5,8
75er Perzentil	20,1	11,7	8,8	22,8	14,6	9,9
Verfügbarkeit	68	68	68	68	68	68

\*Standardabweichung

Tab. 11: Statistische Kennzahlen der gravimetrisch bestimmten PM<sub>x</sub>-Massenkonzentrationen für die belastete bzw. unbelastete Messstation (jeweils 68 Filterproben)

Blindwertproblemen mit einigen Inhaltsstoffen (siehe Kapitel 3.6.3.2) wurden weitere 4 Tage eliminiert, sodass die weiteren Auswertungen auf einer Datenbasis von 4\* 68 Filterproben (jeweils PM<sub>10</sub>, PM<sub>1</sub> für beide Seiten) beruhen.

Die ausgewählten Probenahmetage sind Tabelle 9 zu entnehmen. Alle Monate des Messzeitraums sind vertreten, Häufungen sind im Herbst 2005, Winter 2006 und Spätsommer 2006 zu erkennen. Jahreszeitlich unterrepräsentiert ist wegen der Messpause in den Monaten April und Mai 2006 das Frühjahr. Die Verteilung auf die unterschiedlichen Wochentage ist annähernd gleichmäßig (Tabelle 10). Es soll an dieser Stelle allerdings betont werden, dass im Hinblick auf die Zielsetzung nicht die Repräsentativität der Filterproben, sondern deren Eignung für die durchzuführenden Analysen im Vordergrund stand.

### 3.4.2 PM-Massenkonzentrationskenndaten der ausgewählten Filter

Die Tabelle 11 fasst die statistischen Kenngrößen der PM<sub>x</sub>-Konzentrationen für die jeweils unbelastete bzw. verkehrsbelastete Station zusammen.

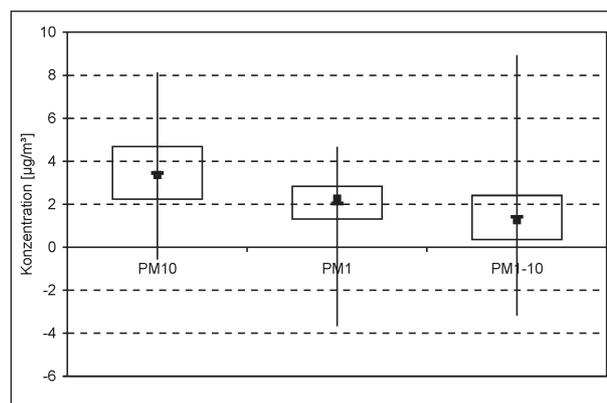
In allen Filterproben der belasteten und in 67 von 68 Proben der unbelasteten Seite wurden höhere Massenkonzentrationen in der PM<sub>10</sub>-Fraktion als in der PM<sub>1</sub>-Fraktion gemessen. Da die Inhaltsstoffanalysen für den Filter mit PM<sub>1</sub>/PM<sub>10</sub> > 1 plausibel erschienen, wurde dieser Filter in der Datenbasis belassen. Die Verteilung der PM<sub>1</sub> und PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen sowie der Differenz PM<sub>1-10</sub> ist in Bild 15 gezeigt. Dem Bild ist zu entnehmen, dass

die Differenzen von der unbelasteten zur belasteten Seite zunehmen, was darauf hinweist, dass die Zunahme der  $PM_{10}$ -Konzentrationen nicht allein auf Emissionen feiner Partikel  $< 1 \mu m$  zurückzuführen ist.

Auch die Verhältnisse von  $PM_1$  zu  $PM_{10}$  (Bild 15, unten rechts) liegen mit 0,45 bis 0,8 im erwarteten Bereich<sup>14</sup>. Aus der Tatsache, dass sich das  $PM_1$ - zu  $PM_{10}$ -Verhältnis von im Mittel 0,58 zwischen unbelasteter und belasteter Seite kaum ändert ist anzunehmen, dass auch die Zusatzbelastung in der Nähe dieses Verhältnisses liegt, ca. 2/3 Partikel  $< 1 \mu m d_{ae}$  und 1/3 größerer Partikel.

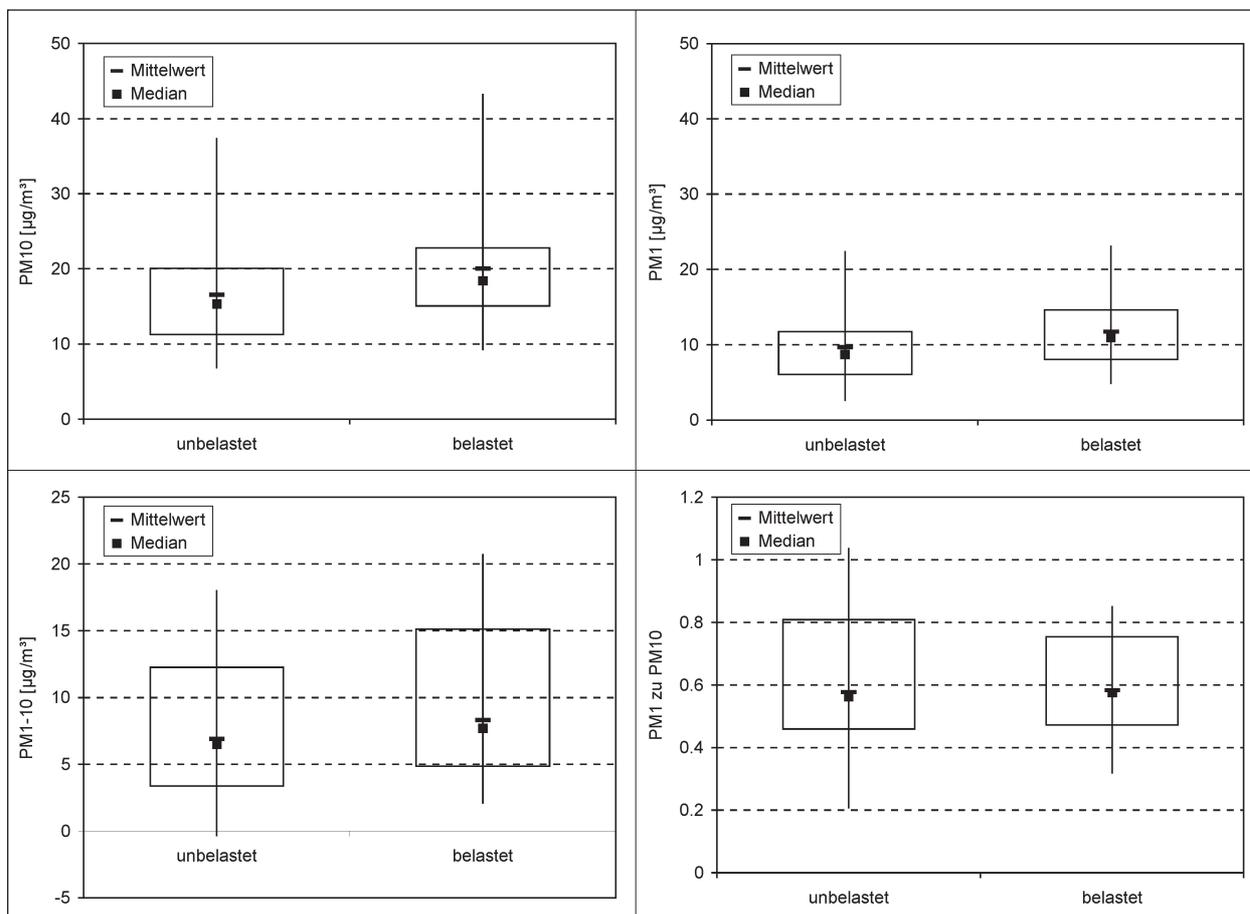
Bild 16 zeigt die Verteilung der  $PM_x$ -Zusatzbelastungen (= Differenz belastet – unbelastet) für die 68 ausgewählten Analysentage. Wesentlich ist, dass

die Differenz „belastet – unbelastet“ für  $PM_{10}$  im Mittel  $3,5 \mu g/m^3$  beträgt. Diese Differenz entspricht der gesamten verkehrsbedingten  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung und enthält damit sowohl die motorgebundenen als auch die durch nicht-motorische Prozesse bedingten Partikelemissionen. Die Zu-



**Bild 16:** Verteilung der Massenkonzentrations-Differenzen zwischen der belasteten und unbelasteten Station (68 Analysentage); Balken: Mittelwerte, Punkte: Mediane; Box: 25- bzw. 75-Perzentil, Linien: Min/Max

<sup>14</sup> Zum Vergleich: An der Autobahn-Messtelle Humlikon (CH) wurden, bei einer  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung von  $3,4 \mu g/m^3$ , im Mittel im Lee bzw. Luv  $PM_1$ - zu  $PM_{10}$ -Verhältnisse von 0,53 bzw. 0,56 gefunden [GEHRIG et al., 2003]



**Bild 15:** Boxplots der  $PM_{10}$ - und  $PM_1$ -Massenkonzentrationen sowie der Massenkonzentrations-Differenzen  $PM_{1-10}$  bzw. des Verhältnisses  $PM_1$  zu  $PM_{10}$  für die beiden Messorte (Boxen umfassen 25-75-Perzentile, N = 68 Proben)

satzbelastung für  $PM_{10}$ , welche überwiegend der motorischen Emission zugeordnet werden kann, liegt im Mittel bei  $2,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Für die nicht-motorisch bedingte Zusatzbelastung ( $PM_{1-10}$ ) ergibt sich ein Mittelwert von  $1,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , wobei 50 % aller Werte im Bereich zwischen  $0,4$  und  $2,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  liegen.

### 3.4.3 Massenkonzentrationen der Inhaltstoffe

#### 3.4.3.1 Analysenumfang und Datenaufarbeitung

Die beprobten  $PM_{10}$ -Filter wurden auf ihren Gehalt an 15 Neben- und Spurenmetallen, den anionischen Bestandteilen Sulfat, Nitrat und Chlorid, Ammonium sowie EC und OC analysiert. Zusätzliche EC und OC -Analysen erfolgten von den zeitgleich beprobten  $PM_{10}$ -Filtern, wobei allerdings nur eine geringere Zahl von 50 Filtern zur Verfügung stand. Diese Analysen dienen insbesondere der Ermittlung des EC-Gehaltes im Grobanteil  $PM_{1-10}$ , welcher als zusätzlicher Indikator für Reifenabrieb hinzugezogen werden sollte. Die ursprünglich in dieser Hinsicht vorgesehene Analyse auf NCBA, einer Substanz, die in anderen Studien bereits erfolgreich als Tracer für Reifenabrieb verwendet wurde [HÜGLIN, 2000], erwies sich als untauglich, da in Testproben mit hoher  $PM_{10}$ -Belastung lediglich Konzentrationen unterhalb der Nachweisgrenzen gefunden wurden.<sup>15</sup>

Eine detaillierte Darstellung der durchgeführten Aufschlüsse und der Analysenverfahren ist Kapitel 5 zu entnehmen.

<sup>15</sup> Nähere Informationen dazu in Kapitel 5

Gemessene Substanz	Angenommene Spezies	Umrechnungsfaktor
OC	OM	1,40
Al	$Al_2O_3$	1,89
Ca	CaO	1,63
V	$VO_2$	1,79
Mn	MnO	1,47
Fe	$Fe_2O_3$	1,43
Ni	NiO	1,45
Cu	CuO	1,25
Zn	ZnO	1,24
Cd	CdO	1,14
Sb	$Sb_2S_3$	1,40
Pb	PbO	1,08

Tab. 12: Umrechnungsfaktoren zur Abschätzung der Spezies-Massen

Vor der weiteren Datenauswertung wurden die in Tabelle 12 gezeigten Umrechnungen der gemessenen Konzentrationen in Spezies-Konzentrationen vorgenommen. Da keine genauen Kenntnisse über die Speziation der gemessenen Substanzen vorliegen, wurden im Falle der Metalle jeweils die stabilsten Sauerstoffverbindungen angenommen. Lediglich bei Sb kann aus der Anwendung von Antimon-sulfid in Bremsbelägen direkt auf die wahrscheinlich emittierte Spezies geschlossen werden.

#### 3.4.3.2 Ionenbilanz zur Plausibilitätsprüfung

Neben den während der Messungen und Analysen ergriffenen qualitätssichernden Maßnahmen wurden die erhaltenen Ergebnisse auf interne Konsistenz und Plausibilität geprüft. Bei einer nahezu vollständigen Analyse aller relevanten ionischen Bestandteile erfolgte hierzu die Aufstellung von Ionenbilanzen.

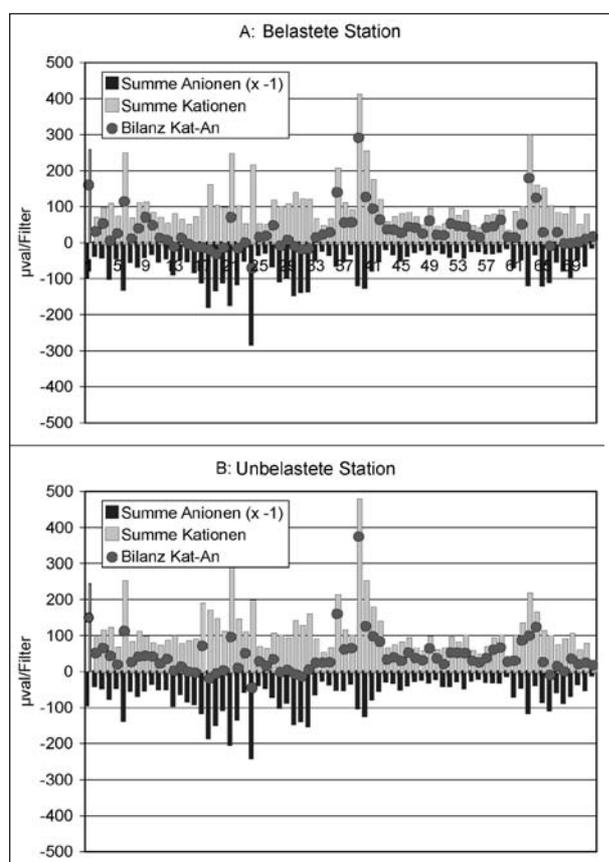
Zunächst wurden die Ionen-Äquivalenzgehalte berechnet, indem die gemessenen Filtergehalte durch die jeweilige Molekül- bzw. Elementmasse dividiert und mit ihrer Ladungszahl multipliziert wurden. Im Falle der metallischen Ionen wurden dabei die unter Umweltbedingungen jeweils stabilsten Oxidationsstufen angenommen. Die so erhaltenen Äquivalenzmassen werden im Folgenden durch die Maßeinheit „ $\mu\text{val}$ “ gekennzeichnet. Anschließend wurden jeweils die Summen aus Anionen- bzw. Kationen-Äquivalenzgehalten gebildet.

Die Bilder 17A bzw. B zeigen vergleichend die Ionenbilanzen für die unbelastete und belastete Station für die ursprünglich ausgewählten 72 Filter. In beiden Fällen werden überwiegend mehr Kationen als Anionen gefunden. Dies ist plausibel, da in dem nicht aufgeschlüsselten „Rest“ vor allem anionische Silikate und Karbonate zu erwarten sind und ggf. vorhandene organische Säureanionen (Acetate, Oxalate) in der OC-Analyse miteingefasst werden. Auf der Seite der Kationen stellt das Hydrogenium-Ion ( $H_3O^+$ ), das im Wesentlichen von im Aerosol befindlichen starken Säuren (Schwefel-, Salpeter- und Salzsäure) eingetragen werden kann, das einzige massenrelevante, nicht analysierte Kation dar.

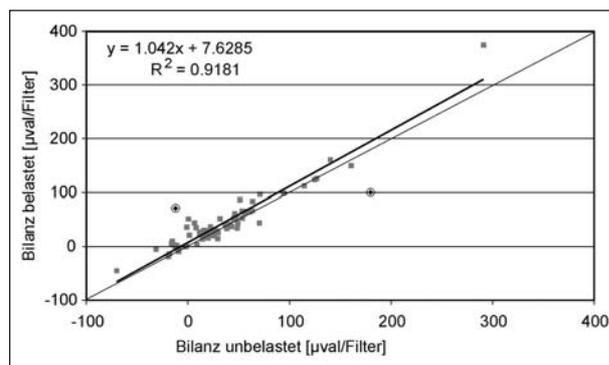
Die beiden Tage mit den höchsten Abweichungen von der ausgeglichenen Ionenbilanz wurden aus dem Datensatz herausgenommen

Vergleicht man die an den beiden Stationen erhaltenen Ionenbilanzwerte, so erhält man die in Bild 18 gezeigte Beziehung. Anhand der überwiegend über-

einstimmenden Ionenbilanzwerte für beide Stationen zeigt sich die gute Qualität der Analysendaten. Auch die zuvor diskutierten Extremtage fügen sich in das Bild noch gut ein. Zwei andere Messtage liegen jedoch weiter von der Ausgleichsgeraden entfernt (in Bild 18 eingekreist). In beiden Fällen liegen außergewöhnlich unterschiedliche Aluminiumgehalte vor (Verhältnis belastet/unbelastet von 0,2 bzw. 12,6). Am Messtag mit dem hohen Aluminium-Verhältnis sind gleichzeitig auch die Verhältnisse der



**Bild 17:** Ionenbilanzen der gemessenen ionischen Inhaltsstoffe. Die Äquivalenzgehalte der Anionen sind zur besseren Vergleichbarkeit negativ dargestellt



**Bild 18:** Lineare Regression der Ionenbilanzen für die belastete und unbelastete Station. Eingekreiste Werte sind bei der Berechnung der Regression nicht berücksichtigt

meisten anderen relevanten Kationen erhöht, und die entsprechenden Messwerte auf der unbelasteten Seite sind durchweg sehr niedrig. Somit lag offenbar eine auf der belasteten Seite signifikant durch diffuse Verkehrsemissionen beeinflusste Situation bei gleichzeitig schwach ausgeprägter Hintergrundbelastung vor. Dieser Messtag wurde daher für die spätere Faktoranalyse beibehalten.

Im anderen Fall mit Aluminium-Verhältnis von 0,2 (belastet/unbelastet) wurde die abweichende Ionenbilanz zwischen den Stationen ausschließlich durch die abweichenden Aluminiumwerte verursacht. Da diese Probe auf QMA-Filtermaterial mit erhöhten Al-Blindwerten gesammelt wurden müssen die Ergebnisse für Aluminium kritisch gesehen werden. Um einen Einfluss solcher Effekte auf die Aussagefähigkeit der Modellierungen auszuschließen, wurden daher dieser und auch der folgende Messtag, bei dem ebenfalls ein QMA-Filter verwendet wurde, für die weitergehenden Auswertungen ausgeschlossen.

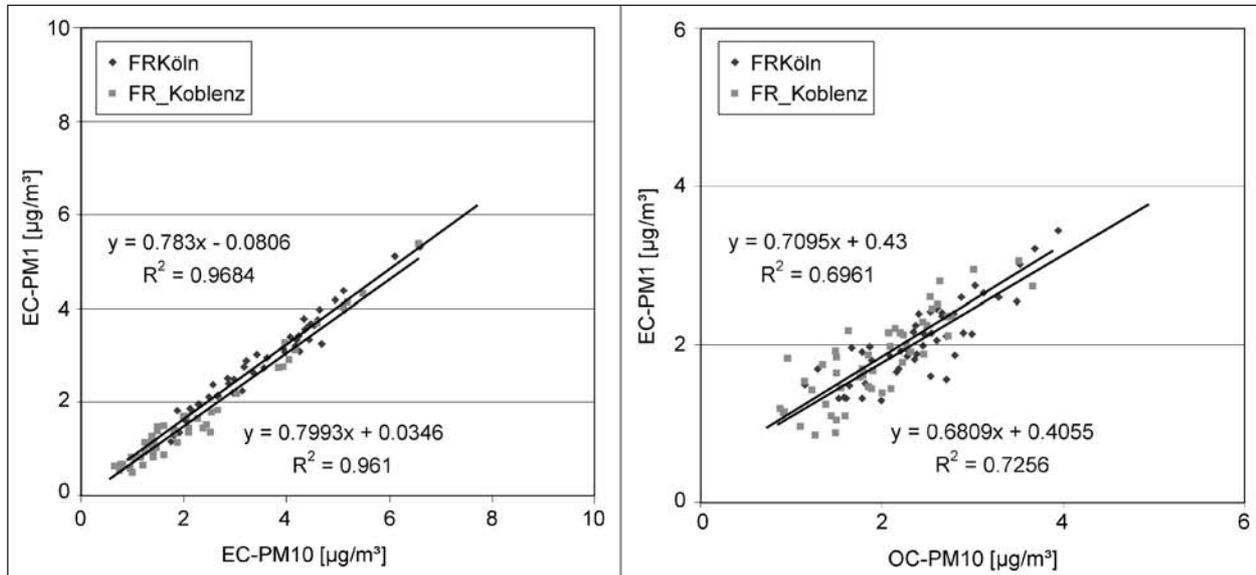
### 3.4.3.3 Statistische Kennzahlen

Aus den als Beladung pro Gesamtfilter erhaltenen Analyseergebnissen (68 Filter) wurden nach ggf. notwendiger Blindwertkorrektur durch Division mit dem zugehörigen Probenahmevolumen die Inhaltsstoffkonzentrationen ermittelt und ggf. in Speziesmassen (Oxide bzw. Sulfide, siehe Kapitel 3.4.3.1) umgerechnet. Fehlende Werte für EC und OC in der  $PM_{10}$ -Fraktion wurden zuvor unter Nutzung der Korrelation (siehe Bild 19) für diese Komponenten in der  $PM_{10}$ - und  $PM_{10}$ -Fraktion durch Regressionsrechnungen ergänzt. Die statistischen Kennzahlen der so erhaltenen Konzentrationswerte sind in Tabelle 13 für die unbelastete, in Tabelle 14 für die belastete Station dargestellt. Neben den direkt bestimmten Komponenten sind darin auch die rechnerisch ermittelten Konzentrationen für den nicht analytisch bestimmten Rest (Differenz der  $PM_{10}$ -Masse zur Summe der bestimmten Inhaltsstoffe) sowie der in der Grob-Fraktion  $PM_{1-10}$  enthaltene Anteil an elementarem und organischem Kohlenstoff enthalten. In Bild 20 sind die Daten als Kreisdiagramm dargestellt, wobei die Massen der Schwermetalle als Summe Metalloxide (S MeO) zusammengefasst wurden.

Entsprechend der Zuordnung der Proben zu den Windrichtungsklassen wurden die Konzentrationsdifferenzen zwischen der belasteten und der unbelasteten Station ermittelt. Die Darstellung in Bild 21

zeigt, dass für alle Komponenten überwiegend positive Differenzen, aber zum Teil auch negative Differenzen gefunden wurden. Dies erklärt sich ei-

nerseits aus der analytischen Unsicherheit insbesondere bei Substanzen mit geringer Differenz zwischen den beiden Stationen oder mit sehr



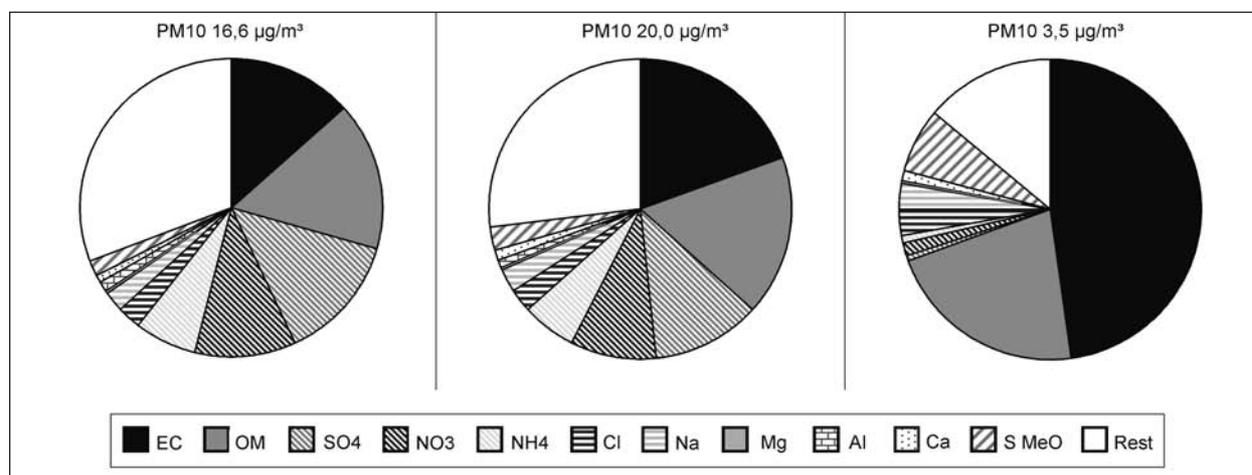
**Bild 19:** Korrelation der gemessenen EC- bzw. -OC-Gehalte zwischen PM<sub>10</sub> und PM<sub>1</sub>

		Min	25-Perc.	Median	<b>Mittelwert</b>	75-Perc.	Max
OM-PM <sub>1</sub>	ng/m <sup>3</sup>	770.6	1.932.7	2.384.0	<b>2497.0</b>	3012.8	5308.8
OM-PM <sub>1-10</sub>	ng/m <sup>3</sup>	28.8	106.9	189.8	<b>296.6</b>	464.9	1306.2
EC-PM <sub>1</sub>	ng/m <sup>3</sup>	310.2	909.4	1361.9	<b>1633.8</b>	2082.2	4603.7
EC-PM <sub>1-10</sub>	ng/m <sup>3</sup>	13.9	305.5	545.5	<b>571.2</b>	772.4	1440.2
OM	ng/m <sup>3</sup>	1013.3	2096.3	2535.3	<b>2685.4</b>	3287.2	5441.3
EC	ng/m <sup>3</sup>	549.9	1296.0	1810.2	<b>2205.0</b>	2788.2	5859.6
Cl	ng/m <sup>3</sup>	6.9	19.6	103.0	<b>390.3</b>	462.4	4047.7
SO <sub>4</sub>	ng/m <sup>3</sup>	516.8	1234.0	1616.0	<b>2268.3</b>	2541.1	6876.4
NO <sub>3</sub>	ng/m <sup>3</sup>	36.2	549.3	1185.7	<b>1789.0</b>	2169.0	7060.5
NH <sub>4</sub>	ng/m <sup>3</sup>	96.2	456.2	823.8	<b>1106.7</b>	1567.1	4229.4
Na	ng/m <sup>3</sup>	32.3	78.7	241.6	<b>396.0</b>	572.9	1832.5
Mg	ng/m <sup>3</sup>	6.9	23.3	41.4	<b>55.3</b>	79.8	200.7
Al	ng/m <sup>3</sup>	4.2	44.1	108.1	<b>161.9</b>	189.7	1071.8
Ca	ng/m <sup>3</sup>	6.6	68.4	113.9	<b>150.8</b>	204.4	662.4
V	ng/m <sup>3</sup>	0.0	0.8	1.4	<b>2.2</b>	2.7	16.4
Mn	ng/m <sup>3</sup>	0.7	2.8	4.3	<b>5.5</b>	6.6	23.9
Fe	ng/m <sup>3</sup>	5.6	83.4	151.7	<b>197.4</b>	237.4	821.8
Ni	ng/m <sup>3</sup>	0.1	0.9	1.5	<b>1.7</b>	2.0	10.6
Cu	ng/m <sup>3</sup>	0.4	2.3	5.3	<b>7.3</b>	8.9	40.7
Zn	ng/m <sup>3</sup>	4.3	15.4	26.6	<b>30.9</b>	40.4	100.7
Mo	ng/m <sup>3</sup>	1.3	2.1	3.5	<b>5.1</b>	5.7	21.4
Cd	ng/m <sup>3</sup>	0.0	0.1	0.1	<b>0.1</b>	0.2	0.5
Sb	ng/m <sup>3</sup>	0.0	0.2	0.6	<b>1.0</b>	1.5	3.7
Ba	ng/m <sup>3</sup>	0.0	2.9	4.6	<b>5.0</b>	6.8	13.7
Pb	ng/m <sup>3</sup>	0.6	4.1	6.2	<b>7.1</b>	8.8	21.2
Rest	ng/m <sup>3</sup>	722.4	3376.6	4436.9	<b>5119.3</b>	6489.9	12793.0

**Tab. 13:** Kenndaten der Inhaltsstoff-Konzentrationen der unbelasteten Station (68 Filter); Metalle z. T. als Oxide bzw. Sulfide (siehe Kapitel 3.4.3.1)

niedrigem Konzentrationsniveau. Mit ursächlich dafür kann aber auch die Tatsache sein, dass mit einem Tagesmittelwert zwangsläufig auch anteilig gegenläufige Windrichtungen erfasst werden, wodurch die eigentlich positive Zusatzbelastung für

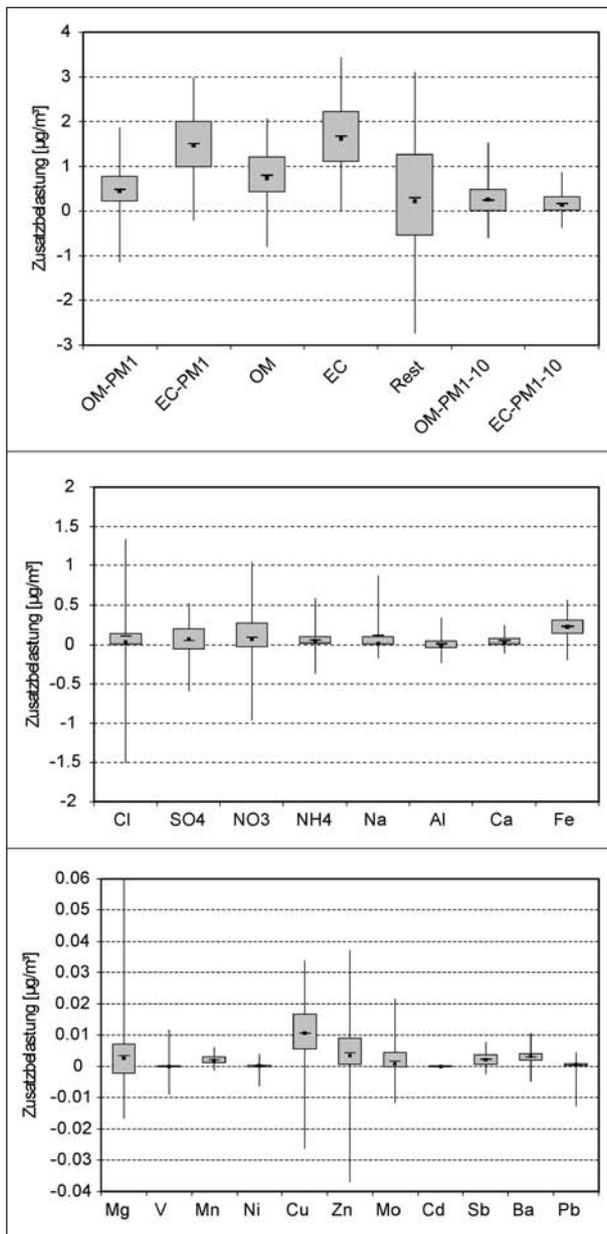
einen oder mehrere Stoffe verringert wird. Dies kann sich vor allem dann auswirken, wenn die dem mittleren Tagestrend entgegengerichtete Windrichtung mit hohem Emissionsaufkommen zusammenfällt.



**Bild 20:** Mittlere Zusammensetzung der ausgewählten PM<sub>10</sub>-Proben (links: unbelastete Seite, Mitte: belastete Seite; rechts: Zusatzbelastung; Metalle z. T. als Oxide bzw. Sulfide (siehe Kapitel 3.4.3.1))

		Min	25-Perc.	Median	<b>Mittelwert</b>	75-Perc.	Max
OM-PM <sub>1</sub>	ng/m <sup>3</sup>	848.0	2370.1	2915.0	<b>2972.2</b>	3395.7	6296.8
OM-PM <sub>1-10</sub>	ng/m <sup>3</sup>	28.2	341.9	469.3	<b>538.4</b>	706.5	1610.2
EC-PM <sub>1</sub>	ng/m <sup>3</sup>	684.5	2322.5	3174.1	<b>3144.0</b>	3727.6	6139.3
EC-PM <sub>1-10</sub>	ng/m <sup>3</sup>	39.8	456.8	767.7	<b>732.3</b>	933.5	1572.8
OM	ng/m <sup>3</sup>	1181.7	2885.2	3548.2	<b>3481.7</b>	3913.3	6920.2
EC	ng/m <sup>3</sup>	896.1	2801.5	4040.3	<b>3876.4</b>	4602.9	7712.1
Cl	ng/m <sup>3</sup>	8.9	47.8	208.4	<b>489.5</b>	618.9	4004.3
SO <sub>4</sub>	ng/m <sup>3</sup>	462.4	1336.8	1720.6	<b>2309.9</b>	2760.3	6807.5
NO <sub>3</sub>	ng/m <sup>3</sup>	125.4	507.4	1221.0	<b>1874.8</b>	2237.3	7632.7
NH <sub>4</sub>	ng/m <sup>3</sup>	123.9	498.3	857.2	<b>1159.3</b>	1665.0	4810.0
Na	ng/m <sup>3</sup>	29.7	117.6	296.4	<b>504.6</b>	794.5	1895.6
Mg	ng/m <sup>3</sup>	9.3	26.5	45.2	<b>58.7</b>	80.3	205.2
Al	ng/m <sup>3</sup>	4.4	56.6	111.1	<b>168.7</b>	191.3	1030.7
Ca	ng/m <sup>3</sup>	8.7	114.7	167.5	<b>192.1</b>	234.3	697.7
V	ng/m <sup>3</sup>	0.0	0.8	1.3	<b>2.1</b>	2.3	18.0
Mn	ng/m <sup>3</sup>	1.0	5.0	6.3	<b>7.5</b>	8.4	25.5
Fe	ng/m <sup>3</sup>	71.0	282.0	393.7	<b>420.2</b>	523.4	895.0
Ni	ng/m <sup>3</sup>	0.2	1.1	1.5	<b>1.7</b>	2.0	5.9
Cu	ng/m <sup>3</sup>	3.0	12.2	17.1	<b>17.9</b>	23.9	39.7
Zn	ng/m <sup>3</sup>	1.7	23.3	30.4	<b>35.3</b>	44.7	107.0
Mo	ng/m <sup>3</sup>	2.1	3.5	4.6	<b>6.9</b>	10.4	24.1
Cd	ng/m <sup>3</sup>	0.0	0.1	0.1	<b>0.2</b>	0.2	0.5
Sb	ng/m <sup>3</sup>	0.2	1.7	3.5	<b>3.3</b>	4.4	8.0
Ba	ng/m <sup>3</sup>	0.4	6.0	7.5	<b>8.1</b>	9.9	16.8
Pb	ng/m <sup>3</sup>	0.7	4.5	6.4	<b>7.4</b>	9.8	23.3
Rest	ng/m <sup>3</sup>	-1162.6	3362.6	4944.0	<b>5418.9</b>	7697.4	14469.1

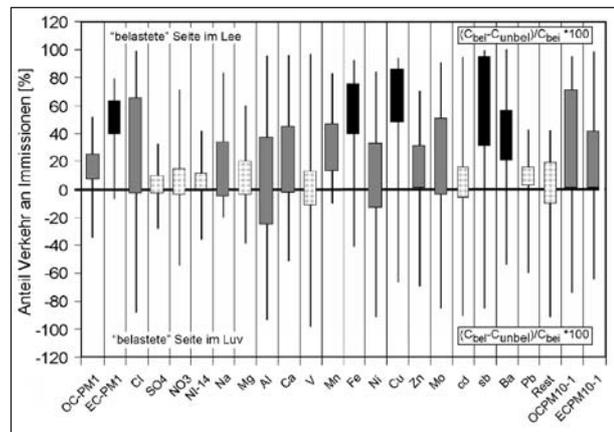
**Tab. 14:** Kenndaten der Inhaltsstoff-Konzentrationen der belasteten Station (68 Filter); Metalle z. T. als Oxide bzw. Sulfide (siehe Kapitel 3.4.3.1)



**Bild 21:** Box-Whiskerplots der Zusatzbelastungen für Inhaltsstoffe; oben: massenrelevante Komponenten, Mitte: NebenkompONENTEN, unten: SpurenkompONENTEN (Metalle z. T. als Oxide bzw. Sulfide (siehe Kapitel 3.4.3.1); Box: 25-75-Perzentil, Balken: Mittelwert, Punkte: Medianwert

### 3.4.4 Verkehrsbedingte Zusatzbeiträge der Inhaltsstoffe

Normiert man die im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Zusatzbelastungen (Differenzen belastet – unbelastet) auf die jeweils an der belasteten Seite gemessene Konzentration, so erhält man unmittelbar den Anteil des Verkehrs an den jeweiligen auf der belasteten Seite gefundenen Immissionskonzentrationen. Bild 22 zeigt die sich so ergebenden Datenverteilungen. Dabei wurde zunächst un-



**Bild 22:** Anteil der „Zusatzbelastung“ an der jeweiligen Konzentration an der belasteten Station

abhängig von der tatsächlichen mittleren Windrichtung diejenige Station als belastet angenommen, an der die jeweils höhere Konzentration angetroffen wurde. Lag diese Station im Lee, so wurde der entsprechende Quotient positiv, bei Luv-Lage der Station mit negativem Vorzeichen dargestellt.

Der überwiegende Teil aller Messwerte wurde so der Gruppe mit der belasteten Seite im Lee zugeordnet und war somit durch die Emissionen des Straßenverkehrs beeinflusst. Bei allen Stoffen gab es aber auch Messwerte, bei denen höhere Konzentrationen an der gemäß Windrichtung nicht durch die Verkehrsemissionen beeinflussten Luv-Seite gefunden wurden. Die in unterschiedlichen Mustern dargestellten Kästen umfassen den Bereich des jeweiligen 25- bis 75-Perzentils, und anhand der Muster können drei Gruppen von Inhaltsstoffen unterschieden werden:

- a) grau gemustert markierte Stoffe: kein bis geringer Beitrag der leeseitigen Zusatzbelastung (< 20 %),
- b) grau markierte Stoffe: geringer bis mittlerer Beitrag der leeseitigen Zusatzbelastung (signifikante Anteile der Messwerte > 20 %),
- c) schwarz: 25-Perzentil > 20 % der leeseitigen Zusatzbelastung.

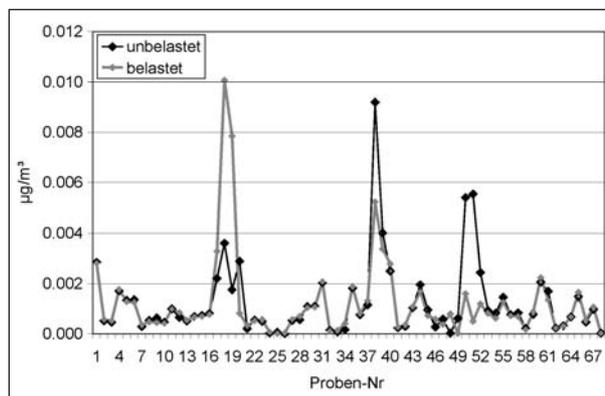
Die erste Gruppe umfasst die Stoffe, die durch im Mittel mit maximal ca. 20 % Verkehrsanteil und Einschluss des Nullwertes zwischen den 25- und 75-Perzentilen gekennzeichnet sind. Dazu gehören Sulfat, Nitrat, Ammonium und „Rest“ ebenso wie die Metalle Mg, V, Cd und Pb. Bei diesen Komponenten ist somit offensichtlich eine in der PM<sub>10</sub>-Partikelfraktion wiederzufindende Emission durch Ver-

kehraktivität sehr gering und im Rahmen der Datenunsicherheit als nicht oder wenig signifikant einzustufen. Im Falle der genannten Nichtmetallionen ist dieser Befund plausibel, da für diese Komponenten spezifische verkehrsgebundene Quellprozesse nicht zu erwarten sind. Beim Erdkrustenelement Mg wäre bedingt durch den Straßenabrieb ggf. ein Verkehrsbeitrag zu erwarten. Für Cd kommt als verkehrsbezogene Quelle lediglich der Reifenabrieb in Betracht, da das darin enthaltene Element Zn immer auch Cd-Verunreinigungen enthält. Die dadurch bedingten Cd-Einträge sind augenscheinlich aber so gering, dass sie sich gegenüber der Hintergrundbelastung nicht signifikant abheben. Signifikante Bleiemissionen aus dem Verkehr sind seit Einstellung der Nutzung von verbleitem Kraftstoff nicht mehr zu erwarten; bedingt durch den hohen Eintrag dieses Stoffes in den vergangenen Jahrzehnten findet sich jedoch eine merkbare Hintergrundbelastung im Schwebstaub.

Eher unerwartet war der geringe verkehrsbedingte Beitrag des nicht analysierten Restes, der neben Wasser auch Silikate und Karbonate enthält, die als Bestandteile von Boden- und Straßenbaumaterialien auch in aufgewirbelten Partikeln oder im Straßenabrieb vorhanden sein können.

Emissionen von Vanadium mit dem Abgas sind nicht zu erwarten (Kfz-Katalysatoren enthalten Platin, Gold, Iridium, Rhenium, Rhodium). Da Schweröle Vanadium enthalten können (die Schwerölvverbrennung in Ölkraftwerken und Schiffen gilt als wesentlichste Eintragsquelle von Vanadium in die Umwelt) kann auch Asphalt in der Bitumenkomponente mit diesem Element kontaminiert sein und somit als Tracer für Straßenabrieb dienen. Die Zusatzbelastung von Vanadium war abgesehen von wenigen Tagen jedoch nicht signifikant und in der Mehrzahl dieser Fälle negativ (d. h., die Konzentrationen waren an der unbelasteten Seite höher als an der belasteten) (siehe Bild 23).

Die zweite Gruppe (graue Markierung, OM (PM<sub>1</sub>), EC und OM in PM<sub>1-10</sub>, Cl, Na, Al, Ca, Mn, Ni, Zn, Mo) besteht aus den Komponenten, die z. T. deutlich höhere mittlere Anteile aufweisen und auch manchmal den Nullwert nicht einschließen. Diese Komponenten weisen eine deutlich größere Streuung ihrer verkehrsbedingten Anteile auf. Dies weist auf eine ungleichmäßige zeitliche Relevanz hin, die durch besondere Episoden mit höherer und niedrigerer Emission gekennzeichnet ist, wofür z. B. Witterungsbedingungen (Trockenheit im Falle der Erd-



**Bild 23:** Vergleich der gemessenen Vanadium-Konzentrationen

krustenelemente, Winter bei Tausalz-Bestandteilen) und der Verkehrsfluss verantwortlich sein können.

In der dritten Gruppe schließlich sind die Komponenten zusammengefasst, deren Zusatzbelastung jeweils einen erheblichen Anteil an den auf der belasteten Seite gemessenen Konzentrationen haben. Diese Gruppe umfasst einerseits mit EC (PM<sub>1</sub>) die Abgasemissionen und andererseits typische Tracer für Bremsabrieb Sb, Ba, Fe und Cu, von denen Fe und Cu auch teilweise aus aufgewirbeltem Bodenmaterial stammen können.

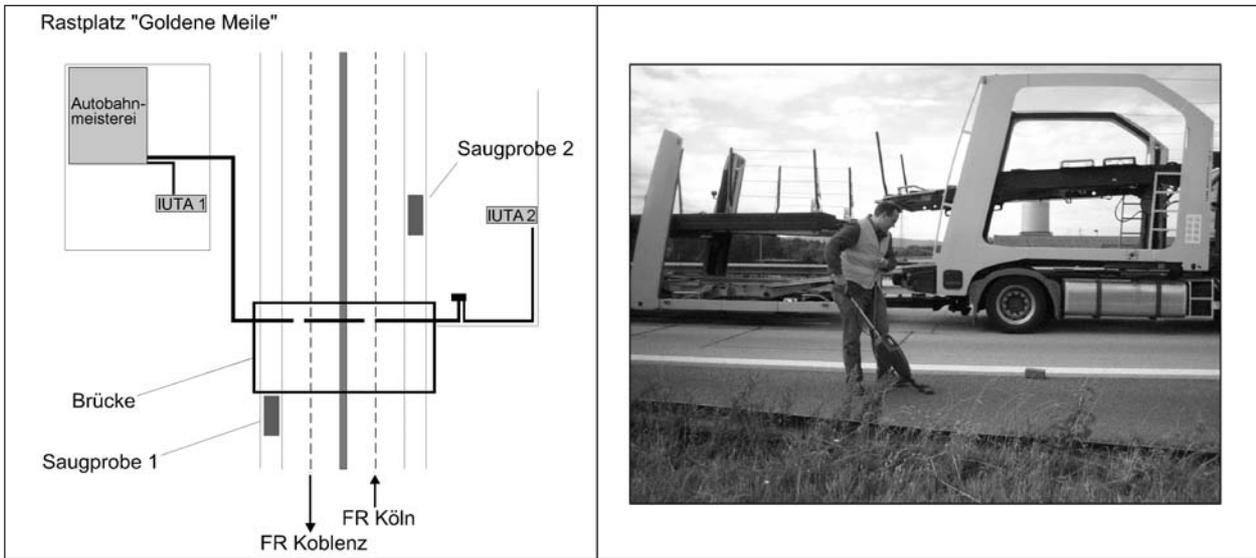
### 3.5 Boden- und Straßenstaubproben

Im Hinblick auf mögliche Einträge von Bodenmaterial des seitlich der Fahrbahn befindlichen, überwiegend landwirtschaftlich genutzten Geländes auf die Fahrbahn wurden in beiden Fahrtrichtungen sowohl vom Seitenstreifen Saugproben als auch in jeweils 2 Abständen zum Fahrbahnrand Proben des Oberflächen-Bodenmaterials (1-2 m Schichtdicke) genommen (a: direkt neben dem Seitenstreifen „0 m“, b: FR Köln: ca. 60 m, FR Koblenz: ca. 130 m vom jeweiligen Seitenstreifen entfernt). Die Lage der Saugprobenahmestellen ist in Bild 26 dargestellt.

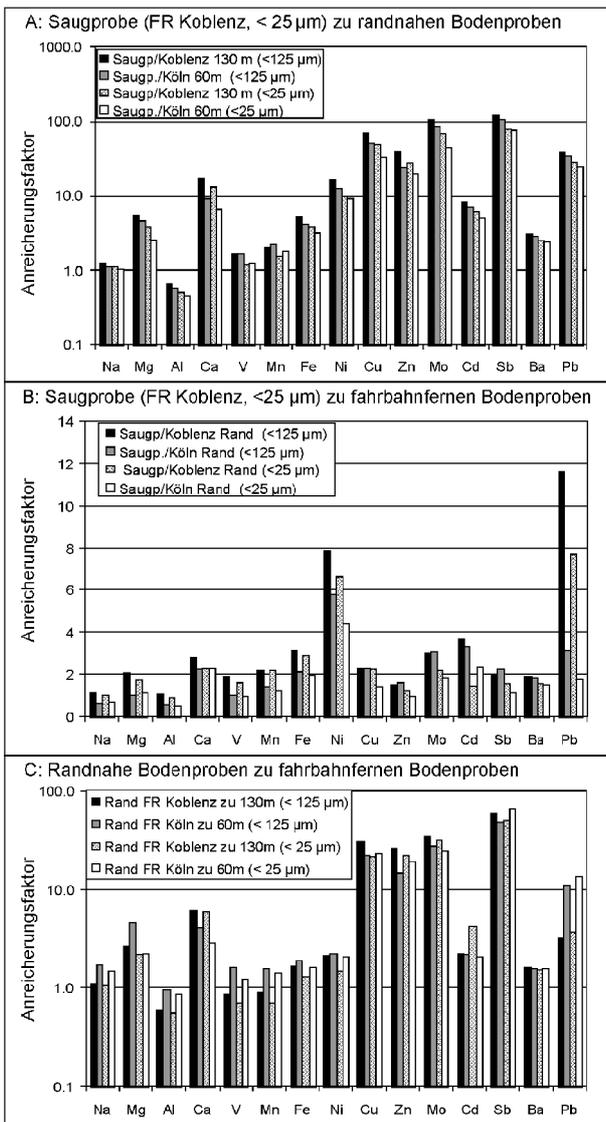
Alle Proben wurden einer Siebanalyse unterzogen, deren Ergebnisse in Bild 26 gezeigt sind.

Aus der Summe der Massen für die Fraktionen < 63 µm bzw. < 125 µm und den jeweils beprobten Flächen von 12,5 m<sup>2</sup> bzw. 11,25 m<sup>2</sup> ergaben sich die in Tabelle 15 gezeigten Partikelbelastungen.

Aus dem Vergleich mit Literaturangaben für die PM<sub>7,5</sub>-Beladung auf Inner- und Außerortsstraßen, die einen Bereich zwischen 0,04 und 0,8 g/m<sup>3</sup> um-



**Bild 24:** Lage der Probenahmestellen und Vorgehensweise für Saugproben vom Seitenstreifen



**Bild 25:** Anreicherungs-faktoren für Elemente in Abhängigkeit vom Probenahmeort

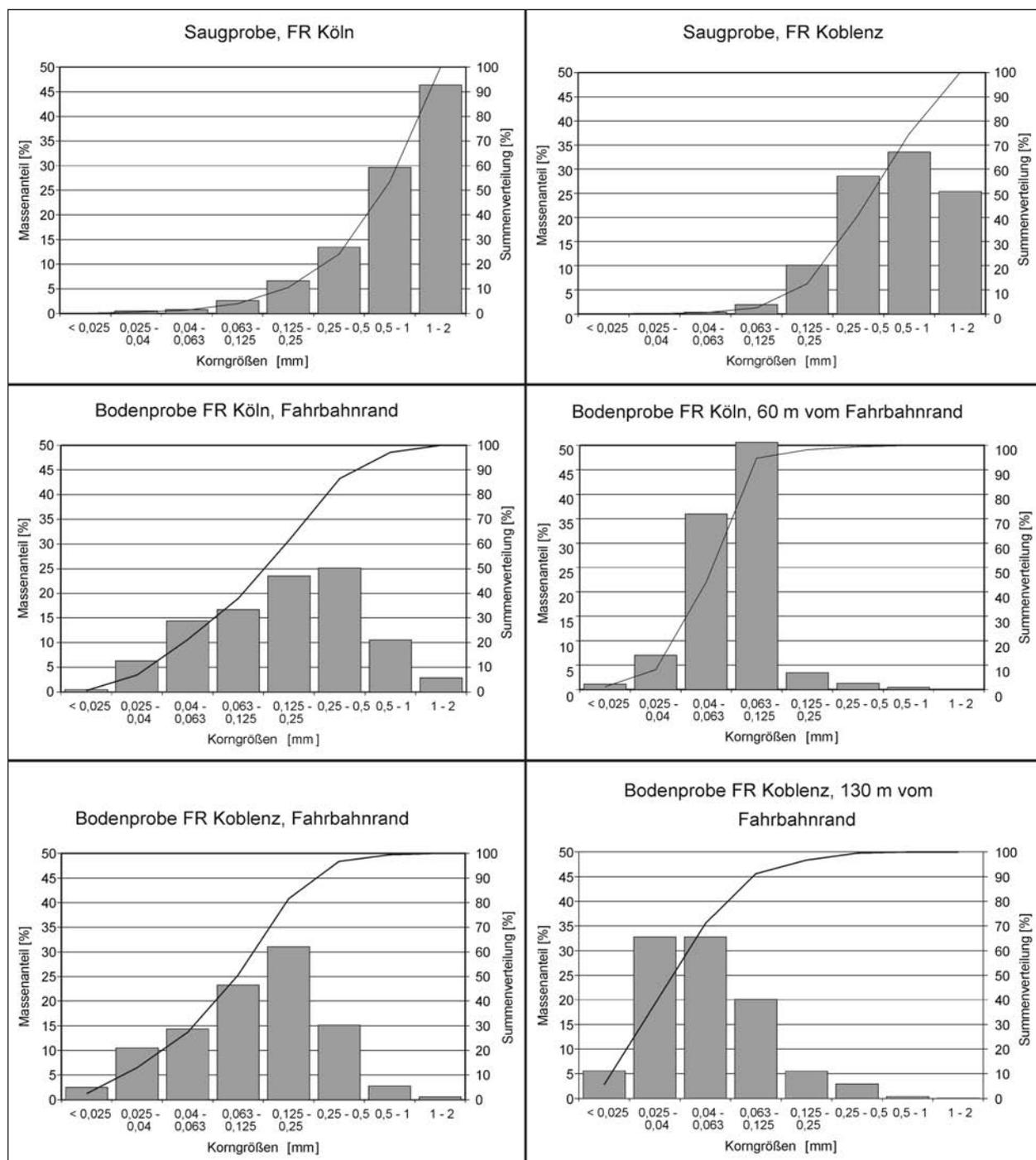
Partikelfraktion	Beladung [mg/m <sup>3</sup> ]	
	FR Koblenz	FR Köln
PM <sub>63</sub>	39	16
PM <sub>125</sub>	193	48

**Tab. 15:** Partikelbeladungen der Seitenstreifen

fassen [BÄCHLIN et. al, 2003, DÜRING und LOHMEYER, 2001, RAUTERBERG-WULF, 2000, KOSCHUTNIG et al., 2004], ergibt sich, dass die Beladung der A-61-Seitenstreifen eher am unteren Ende dieser Skala angesiedelt ist.

Von der Siebfraktion < 25 µm (Bodenproben und Saugprobe FR Koblenz) und den vereinigten Siebfraktionen < 125 µm (nur Saugproben) wurden chemische Analysen auf Metallgehalte durchgeführt. Die Fraktion < 25 µm der Saugprobe FR Köln erbrachte zu wenig Masse für eine Analyse.

Ziel der Messungen war es herauszufinden, ob mit Annäherung an die Fahrbahn eine An- oder Abreicherung von Inhaltsstoffen erfolgt. Dazu wurden die Verhältnisse/Anreicherungs-faktoren der gemessenen Konzentrationen in der Saugprobe von der Fahrbahnoberfläche zu den verschiedenen Bodenproben gebildet. Wie die obere Grafik in Bild 25 zeigt, sind im Vergleich zwischen der Saugprobe und den fahrbahn-nahen Bodenproben bereits für die meisten Elemente merkbare Anreicherungen vorhanden. Markant sind hier vor allem die Elemente Ni und Pb. Im Vergleich der Saugprobe zu den fahrbahn-fernen Bodenproben ergeben sich für eine Reihe von Stoffen bis um 2 Größenordnungen höhere Anreicherungs-faktoren. Hier sind dann vor allem die Elemente Cu, Zn, Mo, Sb und Pb mit Fak-



**Bild 26:** Korngrößenverteilungen der Saug- und Bodenproben

toren zwischen 30 und 120 zu nennen. Die unterste der drei Grafiken in Bild 25 zeigt schließlich die Anreicherung, die die Bodenprobe vom Fahrbahnrand zu der jeweiligen weiter entfernt gezogenen Bodenprobe aufwies.

Insgesamt können aus den Ergebnissen folgende Schlüsse gezogen werden:

- Die Konzentrationen im fahrbahnnahe Boden unterscheiden sich in der Regel nur geringfügig

von den Konzentrationen im Staub auf der Straßenoberfläche. Ausnahmen sind hierbei Ni und Pb mit einer 5- bis 10fachen Anreicherung im Straßenstaub. Nahezu identische Konzentrationen werden für Na, Al, Ca, V und Ba gefunden.

- Im Vergleich zu den weiter von der Fahrbahn entfernt liegenden sind einige Elemente erheblich (bis 120fach) im Straßenstaub bzw. im fahr-

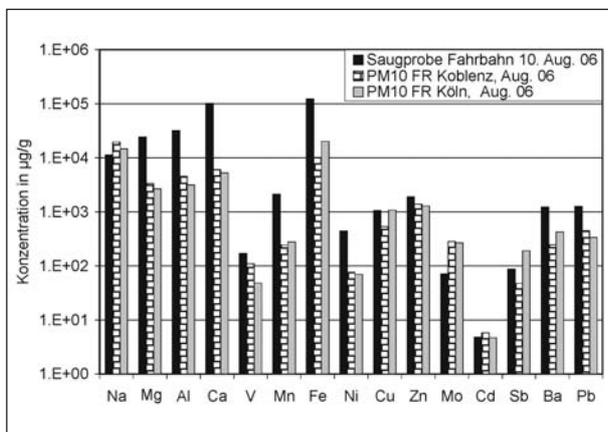
bahnnahe Boden angereichert. Am stärksten ausgeprägt ist dies für Sb, Mo, Cu, Pb, Zn, Ni und Ca. Moderate Anreicherungen (Faktor < 10) werden auch für Mg, Fe, Cd und Ba angetroffen.

- Für die hoch angereicherten Elemente ist der Anreicherungsfaktor bezogen auf die Bodenproben „< 125 µm“ in der Regel etwas größer als bei Bezug auf die Proben „< 25 µm“.

In Bild 27 ist ein Vergleich der Elementkonzentrationen in der Straßenstaubprobe (Korngrößenfraktion < 25 µm) und den Mittelwerten der im selben Monat erhaltenen PM<sub>10</sub>-Filter durchgeführt. Alle Filter wurden bei Südwestwindlage beprobt, sodass die FR Koblenz unbelastet und die FR Köln belastet war. Es ist darauf hinzuweisen, dass lediglich eine einzige Straßenstaubprobe analysiert wurde und somit deren Zusammensetzung nur bedingt als räumlich und zeitlich repräsentativ angesehen werden kann.

Setzt man voraus, dass die Zusammensetzung des auf den Fahrstreifen aufgewirbelten Straßenstaubes derjenigen der Saugprobe entspricht und für die hier betrachteten Elemente alleine der Straßenstaub zur PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung an der windabgewandten Station (FR Köln) beiträgt, so wäre zu erwarten, dass

- bei höheren Konzentrationen in der Saugprobe im Vergleich zum PM<sub>10</sub> der unbelasteten Station ein Konzentrationsanstieg an der belasteten Station zu sehen ist und
- bei geringeren Konzentrationen in der Saugprobe entsprechend ein Rückgang der Konzentrationen in PM<sub>10</sub> erfolgt.



**Bild 27:** Vergleich der Elementkonzentrationen in der Straßenstaubprobe und den im gleichen Monat beprobten PM<sub>10</sub>-Filtern (FR Koblenz: unbelastet, FR Köln: belastet)

Für einige der Komponenten (z. B. Fe, Cu, Sb, Ba) trifft Fall a), für andere (Na, Mo, Cd) Fall b) zu. Bei anderen Elementen ist die Tendenz jedoch entgegen der Erwartung, sodass sich insgesamt aus dem Vergleich kein letztlich schlüssiges Bild ergibt, was sicherlich auch der Tatsache eines zu geringen Umfanges an Straßenstaubprobenahmen geschuldet ist.

## 4 Ableitung von Emissionsfaktoren

### 4.1 Emissionsfaktoren für PM<sub>10</sub>, PM<sub>1</sub> und PM<sub>1-10</sub>

Zur Ableitung der Emissionsfaktoren für die gemessenen PM<sub>10</sub>- und PM<sub>1</sub>- bzw. PM<sub>1-10</sub>-Partikelfractionen und für prozessbezogene PM<sub>10</sub>-Emissionen wird die nachfolgende Beziehung zwischen der Zusatzbelastung für die Komponente X zugrunde gelegt:

$$\Delta X = \frac{EF_{PKW,X} * n_{PKW} + EF_{LKW,X} * n_{LKW}}{V}$$

mit

$\Delta X$ : Zusatzbelastung der Komponente X

$EF_{PKW,X}$ : Emissionsfaktor für Pkw der Komponente X

$n_{PKW}$ : Anzahl der Pkw

$EF_{LKW,X}$ : Emissionsfaktor für Lkw der Komponente X

$n_{LKW}$ : Anzahl der Lkw

V: Faktor für die atmosphärische Verdünnung

Zur Berechnung wurde die NO<sub>x</sub>-Tracermethode verwendet. Diese Methode ermittelt auf der Grundlage von als bekannt angenommenen NO<sub>x</sub>-Emissionsfaktoren (HBEFA 2.1) für die zu untersuchenden Fahrzeugtypen (hier: Pkw und Lkw) und Fahrzustände (hier: autobahntypische Geschwindigkeiten) und den gemessenen NO<sub>x</sub>-Zusatzbelastungen den Verdünnungsfaktor gemäß

$$V = \frac{EF_{PKW,NO_x} * n_{PKW} + EF_{LKW,NO_x} * n_{LKW}}{\Delta NO_x}$$

mit

V: Faktor für die atmosphärische Verdünnung

$EF_{Pkw,NO_x}$ : Emissionsfaktor für Pkw der Komponente  $NO_x$

$n_{Pkw}$ : Anzahl der Pkw

$EF_{Lkw,NO_x}$ : Emissionsfaktor für Lkw der Komponente  $NO_x$

$n_{Lkw}$ : Anzahl der Lkw

$\Delta NO_x$ : Zusatzbelastung der Komponente  $NO_x$

Aus dem Grunddatensatz der kontinuierlich gemessenen Daten wurde zunächst ein konsolidierter Datensatz hergestellt, der nur die Halbstundenwerte enthielt, wenn alle benötigten Parameter verfügbar waren ( $NO_x$ -,  $PM_{10}$ - und  $PM_1$ -Konzentrationen sowie DTV-Werte jeweils für beide Fahrrichtungen zusammen mit der Meteorologie). Bei Vorliegen einer Luv-Lee-Situation erfolgte daraus die Berechnung der Verdünnungsfaktoren sowie der Emissionsfaktoren für  $PM_{10}$ ,  $PM_1$  und  $PM_{1-10}$ . Aus den einzelnen Halbstundenwerten wurden dann die Mittelwerte für den gesamten Messzeitraum gebildet<sup>16</sup>. Die einzelnen Emissionsfaktoren wurden zunächst je Fahrzeug bestimmt. Aus Zeiträumen mit sehr hohem bzw. sehr niedrigem Lkw-Aufkommen wurden daraus die Emissionsfaktoren aufgeteilt nach Pkw und Lkw abgeschätzt.

Die Berechnung der Emissionsfaktoren wurde ebenfalls mit den Filterwerten für die Tage durchgeführt, an denen die chemische Analytik verfügbar war. Die Zeitaufösung der Werte betrug in diesem Fall 24 Stunden. Tabelle 16 zeigt eine Zusammenstellung der berechneten Emissionsfaktoren.

Die mit den Online-Daten bestimmten  $PM_{10}$ -Emissionsfaktoren teilen sich auf in 60 % Auspuff-Emissionen ( $PM_1$ ) und 40 % nicht-abgasbedingte Emissionen ( $PM_{1-10}$ ). Bei den Filterdaten, die im Hinblick auf eine möglichst markante Zusatzbelastung durch diffuse Emissionsprozesse ausgewählt wurden (siehe Kapitel 3.4.2), liegt der Emissionsfaktor für Abrieb und Aufwirbelung etwas höher als derjenige der motorischen Emissionen.

<sup>16</sup> Um Verfälschungen des Ergebnisses durch Extremwerte auszuschließen, wurden jeweils positive und negative Spitzenwerte aus dem weiterbearbeiteten Datensatz ausgeschlossen.

Bei den differenzierten Emissionsfaktoren zeigt sich für  $PM_{10}$  ein ca. 6fach höherer Emissionsfaktor für Lkw, verglichen mit demjenigen für Pkw. Etwas stärker ausgeprägt ist der Unterschied für motorische Emissionen (Unterschied Faktor 7), geringer dagegen bei den nicht-abgasbedingten Emissionen (Unterschied Faktor 4,3). Bei den Pkw verteilen sich die Emissionen je zur Hälfte auf motorische und nicht-motorische Emissionen, bei den Lkw sind die motorischen Emissionen etwas größer als die nicht-motorischen (64 % bzw. 36 %). An dieser Stelle ist jedoch darauf hinzuweisen, dass die Bestimmung der differenzierten Emissionsfaktoren mit großen Unsicherheiten behaftet ist und diese deshalb nicht überbewertet werden sollten.

Bild 28 zeigt den Vergleich der ermittelten Emissionsfaktoren mit Literaturwerten [GEHRIG et al. 2003]: Messungen an zwei unterschiedlichen Autobahnen in der Schweiz; [HBEFA 2.1]: Emissions-

	Kfz* [g/km*Fzg]	Pkw* [g/km*Pkw]	Lkw* [g/km*Lkw]	Kfz** [g/km*Fzg] (Analysentage)
EF $PM_{10}$	0,067	0,033	0,187	0,066
EF $PM_1$	0,039	0,017	0,119	0,030
EF $PM_{1-10}$	0,027	0,016	0,068	0,035

\* bestimmt aus den Halbstundenwerten (TEOM)  
\*\* bestimmt aus den Tageswerten (Filter)

Tab. 16: Emissionsfaktoren für  $PM_x$

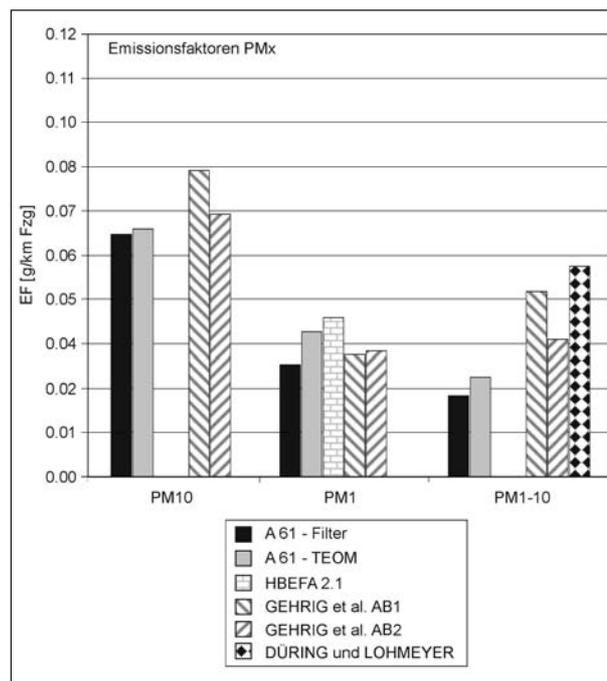


Bild 28: Vergleich der ermittelten Emissionsfaktoren mit Literaturwerten

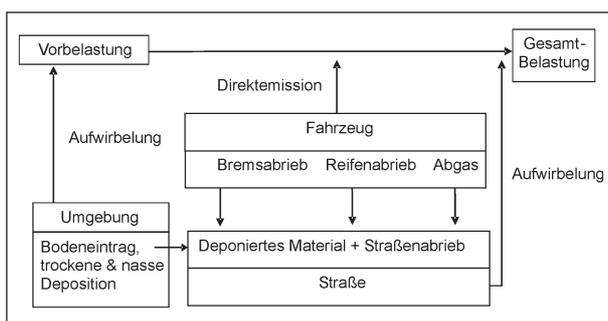
faktor für die im Handbuch beschriebenen motorischen Emissionen; [DÜRING und LOHMEYER, 2004]: empirisch ermittelte Emissionsfaktoren für nicht-motorische Emissionen an Autobahnen). Generell ergibt sich eine gute Vergleichbarkeit der Daten. Der in diesem Projekt ermittelte  $PM_{10}$ -Emissionsfaktor (Online-Daten) liegt dabei zwischen denjenigen für die beiden Schweizer Autobahnen. Für den  $PM_1$ -Emissionsfaktor ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit demjenigen aus dem Handbuch für Emissionsfaktoren, für die Schweizer Autobahnen liegen die Faktoren jeweils etwas niedriger. Der Emissionsfaktor für die Fraktion  $PM_{1-10}$  ist im vorliegenden Projekt am niedrigsten, gefolgt von den beiden Schweizer Autobahnen gefundenen Werten und den um ca. einen Faktor zwei höheren Werten von [DÜRING und LOHMEYER, 2003].

## 4.2 Statistische Rezeptormodellierung der Inhaltsstoffkonzentrationen

### 4.2.1 Vorüberlegungen

Neben den motorisch bedingten Emissionen von Primärpartikeln, bei denen es sich überwiegend um Ruß handelt und die im Größenbereich unter  $1 \mu m$  zu erwarten sind, können weitere Primäremissionen durch den Abrieb von Kupplungs- und Bremsbelägen sowie durch Reifen- und Straßenabrieb entstehen. Die Partikelbildung aufgrund von mechanischen Scherkräften führt vermutlich zu „gröbereren“ Teilchen mit aerodynamischen Durchmessern größer als  $1 \mu m$ . Diese unterliegen damit auch einer stärkeren Sedimentation und können sich somit im Straßenstaub anreichern, der seinerseits durch Aufwirbelung eine sekundäre Quelle für die Abriebspartikel darstellt (vgl. Bild 29).

Alle vorgenannten Vorgänge finden bedingt durch die gemeinsame Quelle „Fahrzeug“ mit einer hohen



**Bild 29:** Emissionsprozesse im System Fahrzeug-Straße

zeitlichen Grundkorrelation statt, wobei allerdings die Emissionsintensität der einzelnen Prozesse durch die Fahrzeugzusammensetzung, die Fahrsituationen und Witterungsbedingungen in unterschiedlicher Weise beeinflusst werden.

Eine Quantifizierung der Beiträge der einzelnen Prozesse kann wegen dieser Gleichzeitigkeit und der zwangsläufigen Ähnlichkeit der chemischen Zusammensetzung der einzelnen Emissionsmassenströme weder mit Ausbreitungsmodellen (die bekannte prozessbezogene Emissionsraten voraussetzen) noch mit Quellen-Rezeptormodellen (die bekannte prozessbezogene Emissionsprofile benötigen) vorgenommen werden.

Um die Beiträge der einzelnen Prozesse zu den Immissionsbelastungen zu ermitteln, wird daher im Folgenden die multivariate statistische Methode der Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF) verwendet, die eine Quellenzuordnung allein auf der Grundlage gemessener Immissionskonzentrationen erlaubt.

### 4.2.2 Faktoranalyse mit dem PMF-Modell

#### 4.2.2.1 Beschreibung des verwendeten Modells

Bei der PMF erfolgt eine Neustrukturierung der Konzentrations-Matrix durch Zusammenfassen von Inhaltstoffen zu Faktoren, deren Beiträge in Form einer Zeit-Faktor-Matrix (G-Matrix) und deren Inhaltstoff-Profil als Faktor-Komponenten-Matrix (F-Matrix) errechnet werden (siehe Bild 30). Zusätzlich wird eine Residuenmatrix ermittelt, die die Abweichungen des Modells von den Messwerten charakterisiert. Grundlage der Modellierung sind die zwischen den Komponenten bestehenden internen Korrelationen.

Die PMF wurde von PAATERO in der Mitte der 90er Jahre entwickelt [PAATERO, 1997]. Von anderen Faktoranalysen wie z. B. der Principal Components Analysis (PCA) unterscheidet es sich vor allem durch die Beschränkung auf Lösungen mit ausschließlich positiven Faktorbeiträgen. Das dafür von PAATERO entwickelte Programm zur Durchführung der PMF ermöglicht eine Vielzahl von Parameter-Einstellmöglichkeiten, ist aber in seiner Anwendung dadurch auch recht unübersichtlich und fehlerträchtig. Wegen der großen Bedeutung, die diese Auswertemethode in den letzten Jahren für die Quellenzuordnung von Luftschadstoffen erfahren hat, hat deshalb die USEPA ein eigenes, frei verfügbares

PMF-Modell entwickeln lassen [USEPA, 2005]. Dieses verwendet im Kern allerdings eine andere, ebenfalls von PAATEERO entwickelte Methode, die „Multi-Linear Engine 2 (ME-2)“ [PAATERO, 1999]. Die EPA-PMF zeichnet sich weiterhin durch eine übersichtlichere Input-output-Struktur aus. Ein weiterer Unterschied zwischen dem EPA-Modell und der PMF nach PAATERO besteht darin, dass Ersteres auch geringfügig negative Beiträge der Faktoren zulässt. Gemäß Handbuch sorgt diese Einstellung in vielen Fällen für eine deutlich bessere Modellierung als eine strikte Unterbindung negativer Werte. Für die nachfolgenden Modellierungen wurde diese Voreinstellung, die mittels Änderung der Initialisierungsdatei auch geändert werden kann, beibehalten.

Bei einem Modelllauf mit dem EPA-Programm wird ein (multilinear) Least-Square-Fit zwischen separierten Faktoren und den Messdaten durchgeführt. Dabei sucht das Programm die Lösung mit der geringsten Summe der quadratischen Abweichungen, also mit dem Minimum des Q-Wertes, der gemäß

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{s_{ij}} \right)^2$$

mit  $i$  = Zähler der maximal  $n$  Datensätze (Tage/Filter),  $j$  = Zähler der maximal  $m$  Komponenten,  $k$  = Zähler der maximal  $p$  Faktoren,  $g_{ik}$  = relative Emissionsstärke des Faktors  $k$  am Tag  $i$ ,  $f_{kj}$  = relativer Beitrag der Komponente  $j$  zum Faktor  $k$ ,  $s$  = Unsicherheit der Messwerte (s. u.) berechnet wird. Als Faustregel gilt, dass bei einem Modell, das die Messdaten sinnvoll wiedergibt und für die Unsicherheiten definiert wurden, die der realen Messunsicherheit entsprechen, der Q-Wert in etwa der Anzahl der eingestellten Messwerte entsprechen sollte.

#### 4.2.2.2 Datenvorbereitung für die PMF

Für die Durchführung der PMF werden zwei Input-Matrizen benötigt, die einerseits für jeden Tag/Filter die Konzentrationen der gemessenen chemischen Komponenten und ggf. aller weiteren Parameter, die in das Modell mit einbezogen werden sollen, und andererseits die diesen Werten zugeordneten Unsicherheiten enthalten. Grundsätzlich gilt dabei, dass umso mehr Faktoren aufgelöst werden können, je umfangreicher die Datenmatrix ist, und dass die Unsicherheiten eher zur oberen Grenze des abschätzbaren Unsicherheitsbereiches gewählt werden sollten, um dem Modell genügend Freiheitsgrade zu belassen.

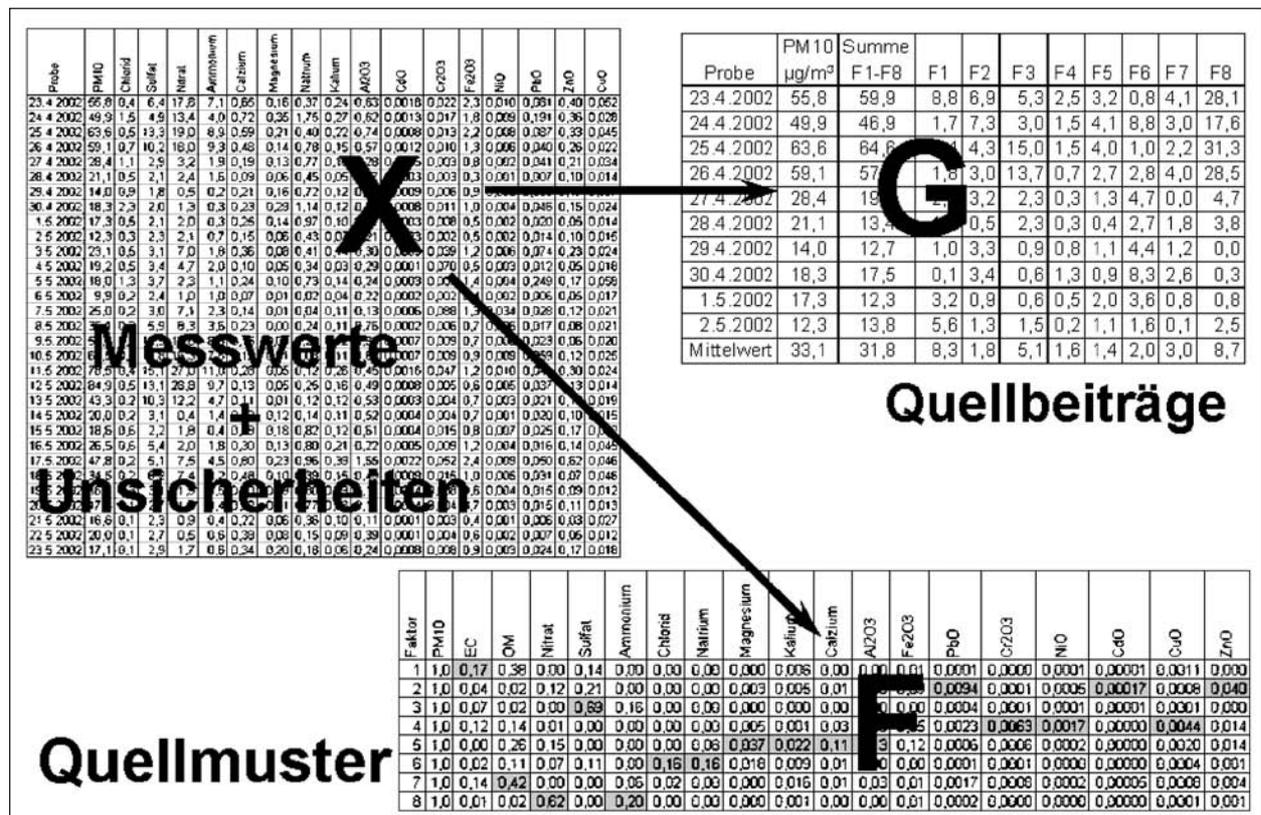


Bild 30: Erläuterung der Faktoranalyse am Beispiel von Messdaten für Staubinhaltsstoffe

Die Konzentrationsmatrix wurde aus den Werten der ausgewählten 68 Tage zusammengestellt. Sie beinhaltet alle Komponenten, die in ihrer Summe die gemessenen  $PM_{10}$ -Konzentration ergaben, d. h., die Differenz zwischen der Summe der analysierten Bestandteile (ggf. als Masse der Oxide bzw. Sulfide berücksichtigt, siehe Kapitel 3.4.3.1) und der gemessenen  $PM_{10}$ -Konzentration wurde als „Rest“-Komponente mit eingestellt. Im Fall von EC bzw. OM wurden die Anteile in der  $PM_1$ -Fraktion und die rechnerisch aus der Differenz  $PM_{1-10} - PM_1$  ermittelten Anteile in der  $PM_1$ -Fraktion berücksichtigt. Das bearbeitete Komponentenspektrum enthielt somit 24 „Stoffe“.

#### 4.2.2.3 Screenings und Sensitivitätsuntersuchungen

Mit dem EPA-Modell wurden zunächst orientierende Modellläufe mit separaten Datensätzen durchgeführt, die jeweils die auf der belasteten und unbelasteten Seite gemessenen Konzentrationen enthielten. Dabei wurde die Erkenntnis gewonnen, dass bei der stationsweisen Modellierung für jeweils 68 Filterproben und somit insgesamt 1.632 Einzelwerte lediglich 5 oder 6 Faktoren sinnvoll auflösbar waren. Bei höherer Faktorenzahl ergaben sich Separationen von Inhaltsstoffen in Einzelfaktoren, die im Lichte der bekannten aerosolchemischen Zusammenhänge als nicht sinnvoll betrachtet werden mussten, so z. B. eine Trennung von Ammonium von den Gegen-Ionen Nitrat bzw. Sulfat oder Natrium von Chlorid. Die Aufspaltung in nur maximal 6 Faktoren genügte jedoch nicht, um jeden Faktor eindeutig einem unterschiedlichen Quellprozess zuordnen zu können.

Zur Erzielung einer besseren Faktorenauflösung wurden daher die 3 Teildatensätze „unbelastet“, „belastet“ und „Zusatzbelastung“ in eine Datei mit 204 Datensätzen (Zeilen) und 24 Komponenten (Spalten) mit insgesamt 4.896 Werten zusammengestellt und mit dem EPA-PMF-Modell analysiert. Diese Vorgehensweise weist den zusätzlichen Vorteil auf, dass die Plausibilität der Modellierung systemintern geprüft werden kann, da für Faktoren, die einen Verkehrseinfluss abbilden, unterschiedliche Konzentrationsmuster (G-Matrix) für die drei Datensatzgruppen erwartet werden, wobei der zweite („belastet“) im Durchschnitt höhere Konzentrationen als der erste („unbelastet“) hat und der Unterschied zwischen beiden in etwa durch die dritte Datensatzgruppe („Zusatzbelastung“) abgebildet sein

sollte. Im Falle von Faktoren ohne Verkehrseinfluss wird entsprechend ein weitgehend identisches Muster für die ersten beiden Datensatzgruppen bei in der Nähe von null liegenden Werten für die Differenz-Datensatzgruppe erwartet.

Spezifische Sensitivitätsuntersuchungen wurden mit diesem vereinigten Datensatz unter Variation der Ansätze für die Berechnung der Unsicherheiten und der Berücksichtigung des Signal-Rausch-Verhältnisses der Eingangsdaten durchgeführt. So wurden die Unsicherheiten einerseits für alle Messwerte einheitlich mit der im EPA-Handbuch [USEPA, 2005] vorgeschlagenen Berechnungsformel

$$s = \sqrt{(u * c)^2 + NWG^2}$$

mit

s = Gesamtunsicherheit des Messwertes,

u = relative Unsicherheit des Messwertes,

c = gemessene Konzentration,

NWG = Nachweis- oder Bestimmungsgrenze für die jeweilige Komponente,

andererseits durch eine Klassifizierung der Daten in 4 Gruppen mit unterschiedlicher Gewichtung ermittelt. Die sich daraus ergebenden Unterschiede in der Zusammensetzung der Faktoren waren wenig signifikant, sodass im weiteren Verlauf der einheitliche EPA-Ansatz weiterverfolgt wurde.

Weitere orientierende Modellierungsläufe mit dem Gesamtdatensatz unbelastet/belastet/Zusatzbelastung für eine vorgewählte Zahl von 5 bis 10 Faktoren ergaben eine insgesamt plausibel erscheinende Faktorisierung bei Vorgabe von 8 Faktoren. Fünf, von Zufallszahlen aus gestartete Iterationsläufe konvergierten mit sehr geringer Varianz bei einem Q-Wert von ca. 2.400; der vom Programm zusätzlich ermittelte Q-Wert für eine robuste Modellierung unter Entfernung von Ausreißern lag dabei bei ca. 1.900. Die recht gute Übereinstimmung beider Q-Werte ist ebenso wie die grundsätzlich mit der Gesamtdatenzahl von ca. 5.000 vergleichbare Größenordnung ein Hinweis auf eine konsistente Modellierung.

Bei der Vorgabe einer höheren Anzahl von Faktoren ergaben sich bei fünf Modellläufen Ergebnisse mit stärker variierenden Q-Werten. Bei der qualitativen Analyse zeigte sich, dass die zusätzlichen Faktoren Abspaltungen der bereits im 8-Faktor-Mo-

dell bestehenden Faktoren waren, deren Interpretation zunehmend problematisch wurde.

#### 4.2.2.4 Ergebnisse der Faktormodellierung

##### 4.2.2.4.1 8-Faktoren-Modell der kompletten Datenmatrix

Die PMF-Modellierung liefert zunächst für jeden Iterationslauf ein Faktorenprofil (F-Matrix), für dessen Einzelwerte durch Normierung auf die Summe aller Faktoren für die jeweilige Komponente prozentuale Anteile der Faktoren errechnet werden können (vgl. Tabelle 17). In dieser Tabelle ist das jeweilige Zei-

lenmaximum, also der Faktor, dem von einer Komponente der größte Anteil zugeteilt wurde, grau hinterlegt markiert.

Anhand der größten in jeder Spalte anzutreffenden Werte lässt sich dann ermitteln, welche Komponenten einen Faktor hauptsächlich prägen. So ist der Faktor 1 klar durch hohe Anteile für Na, Cl und Mg gekennzeichnet, Faktor 6 enthält die Maximalbeiträge für Sb, Fe, Cu, Ba, EC-PM<sub>1</sub> und OM-PM<sub>1-10</sub>.

In Tabelle 18 sind die Ergebnisse dieser Selektion für einen der fünf vorgenommenen Iterationsläufe dargestellt. Für jeden Faktor wurden jeweils höchst-

	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8
OM-PM1	2%	1%	17%	19%	13%	20%	4%	24%
EC-PM1	1%	11%	11%	9%	4%	53%	0%	11%
Cl	75%	25%	0%	0%	0%	0%	0%	0%
SO <sub>4</sub>	14%	0%	17%	69%	0%	0%	0%	0%
NO <sub>3</sub>	10%	82%	8%	0%	0%	0%	0%	0%
NH <sub>4</sub>	0%	17%	0%	65%	11%	4%	3%	0%
Na	87%	2%	2%	0%	0%	2%	0%	7%
Mg	55%	0%	28%	0%	17%	0%	0%	0%
Al	0%	1%	70%	7%	6%	0%	15%	0%
Ca	14%	0%	56%	7%	0%	7%	4%	12%
V	6%	0%	13%	36%	35%	0%	10%	0%
Mn	0%	7%	41%	3%	6%	18%	25%	0%
Fe	0%	3%	24%	1%	3%	59%	8%	2%
Ni	10%	2%	33%	26%	3%	2%	14%	10%
Cu	2%	0%	11%	0%	0%	77%	3%	6%
Zn	2%	0%	23%	0%	0%	0%	3%	72%
Mo	10%	0%	44%	0%	0%	13%	0%	33%
Cd	0%	0%	0%	19%	4%	0%	0%	77%
Sb	0%	2%	0%	6%	0%	92%	0%	0%
Ba	18%	6%	20%	11%	0%	42%	0%	3%
Pb	3%	0%	0%	23%	0%	0%	67%	6%
Rest	3%	21%	0%	0%	76%	0%	0%	0%
OM-PM1-10	4%	12%	13%	0%	15%	41%	1%	15%
EC-PM1-10	0%	0%	21%	30%	12%	24%	0%	12%

Tab. 17: Prozentuale Anteile der Faktoren an der jeweils für eine Komponente modellierten Konzentration

Na, Cl, Mg Seesalz/Tausalz	Nitrat Hintergrund	Al, Ca Straßenabrieb	SO <sub>4</sub> /NH <sub>4</sub> Hintergrund	Rest Aufwirbelung	Sb, Cu, Fe Bremsen, Motor	Pb/Mn ???	Zn, Cd, OC Reifenabrieb
F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8
Na (87)	NO <sub>3</sub> (82)	Al (70)	SO <sub>4</sub> (69)	Rest (76)	Sb (92)	Pb (67)	Cd (77)
Cl (75)	Cl (25)	Ca (56)	NH <sub>4</sub> (65)	V (35)	Cu (77)	Mn (25)	Zn (72)
Mg (55)	Rest (21)	Mo (44)	V (36)	Mg (17)	Fe (59)	Al (15)	MO (33)
BA (18)	NH <sub>4</sub> (17)	MN (41)	EC-PM <sub>1-10</sub> (30)	EC-PM <sub>1-10</sub> (15)	EC-PM <sub>1</sub> (53)	NI (14)	OM-PM <sub>1</sub> (24)
SO <sub>4</sub> (14)	OM-PM <sub>1-10</sub> (12)	NI (33)	NI (26)	OM-PM <sub>1</sub> (13)	Ba (42)	V (10)	OM-PM <sub>1-10</sub> (15)

Tab. 18: Faktorzusammensetzung aus 5 Iterationsläufen für 8 Faktoren. ( ): proz. Anteile von der Komponenten-Gesamtmasse, gezeigt sind Komponenten mit Anteil > = 20 %

tens die 5 wichtigsten Komponenten aufgelistet, wobei der Beitrag (= prozentualer Anteil des jeweiligen Konzentrations-Mittelwertes) von oben nach unten abnimmt.

Die 8 Faktoren fanden sich, mit geringen Variationen, zumeist in den Nebenkomponten, in allen Läufen und mit übereinstimmenden prozentualen Anteilen wieder. Dies indiziert wie bereits die nahe beieinander liegenden Q-Werte eine robuste und vom Startwert der Iterationen unabhängige Modellierung.

In der ersten Zeile der Tabelle 18 sind den Faktoren bereits mögliche Quellen bzw. Quellprozesse zugeordnet. Hierfür wurden neben den bekannten Tracer-Komponenten für einzelne Quellen implizit auch bereits Informationen über die Beiträge der Faktoren zur Zusatzbelastung sowie ggf. ihre zeitliche Dynamik mit verwendet. Diese Information ergibt sich aus dem Vergleich der Konzentrations-Zeit-Muster für die drei Datensatzgruppen, was besonders deutlich wird, wenn man für die eigentlich nicht zeitlich zusammenhängenden Filterdaten eine flächenhafte Darstellung in Form einer Quasi-Zeitreihe wählt (siehe Bild 32). So konnten beispielsweise für den Faktor F4 ein nur unbedeutender Beitrag zur Zusatzbelastung und weitgehend identische Muster für die Datensatzgruppen „belastet“ und „unbelastet“

gefunden werden. Damit ist dieser Faktor der Hintergrundbelastung zuzuordnen, und aufgrund seiner Zusammensetzung repräsentiert er das Ammonium und Sulfat enthaltende Sekundäraerosol.

Als Beispiel für einen zumindest zeitweise deutlich durch Verkehr beeinflussten Faktor ist in Bild 32 das Konzentrationsmuster für den Faktor F1 auffällig, der wegen seiner Hauptbestandteile Natrium und Chlorid als „Seesalz/Tausalz“-Faktor bezeichnet wurde. Während der überwiegenden Zahl der Probenahmetage wird dieser Faktor mit annähernd gleichen Konzentrationen für die unbelastete und belastete Seite ausgewiesen. Da fast ausschließlich Tage mit Südwestwindlage berücksichtigt sind, ist dies mit hoher Wahrscheinlichkeit den mit Seesalz angereicherten maritimen Luftmassen zuzurechnen<sup>17</sup>. Während des Winters 2005/2006 zeigen jedoch einige Tage auch merkbare Zusatzbelastungen, die entsprechend auf einen verkehrsbedingten Eintrag hindeuten und vermutlich durch Tausalzeintrag zu erklären sind.

<sup>17</sup> Ein Einfluss des auf der zumeist unbelasteten Seite (FR Koblenz) vorhandenen Salzlagers ist unwahrscheinlich, da dies aufgrund der unterschiedlichen Entfernung zu den Messcontainern zu deutlichen Differenzen in Form von „negativen“ Zusatzbelastungen geführt hätte.

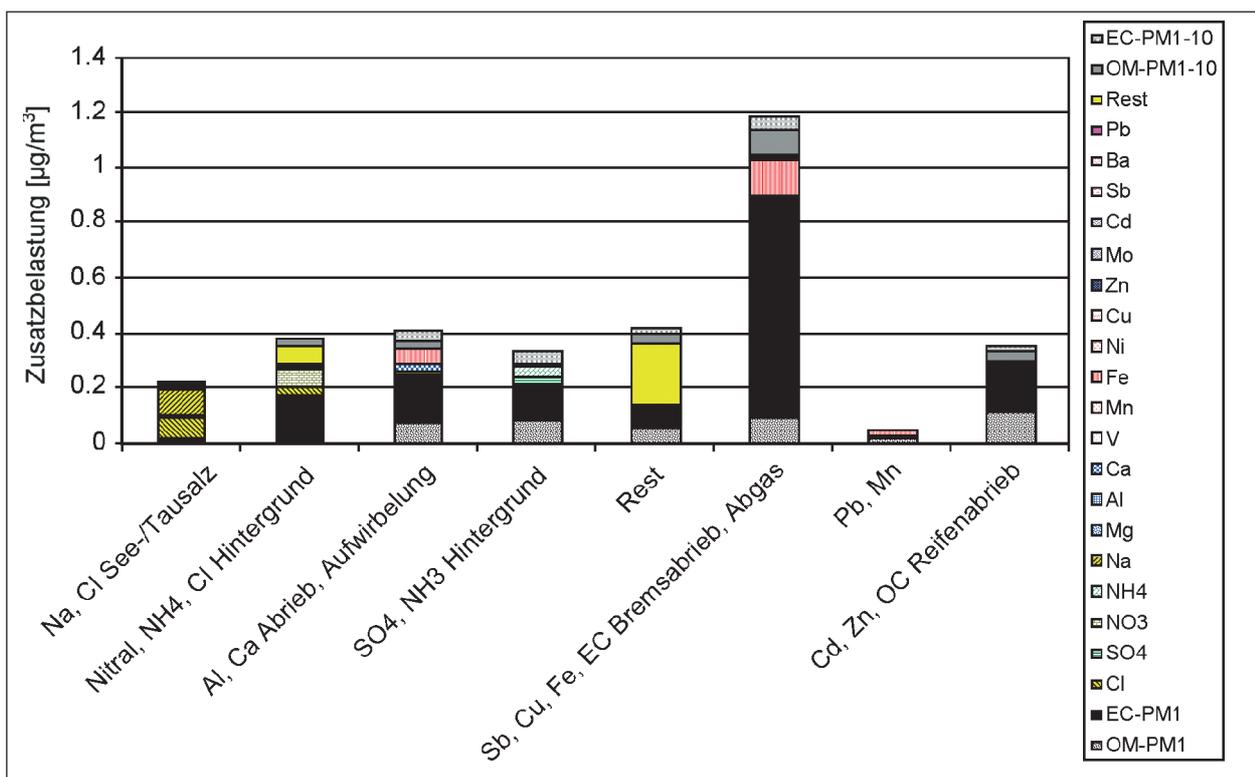
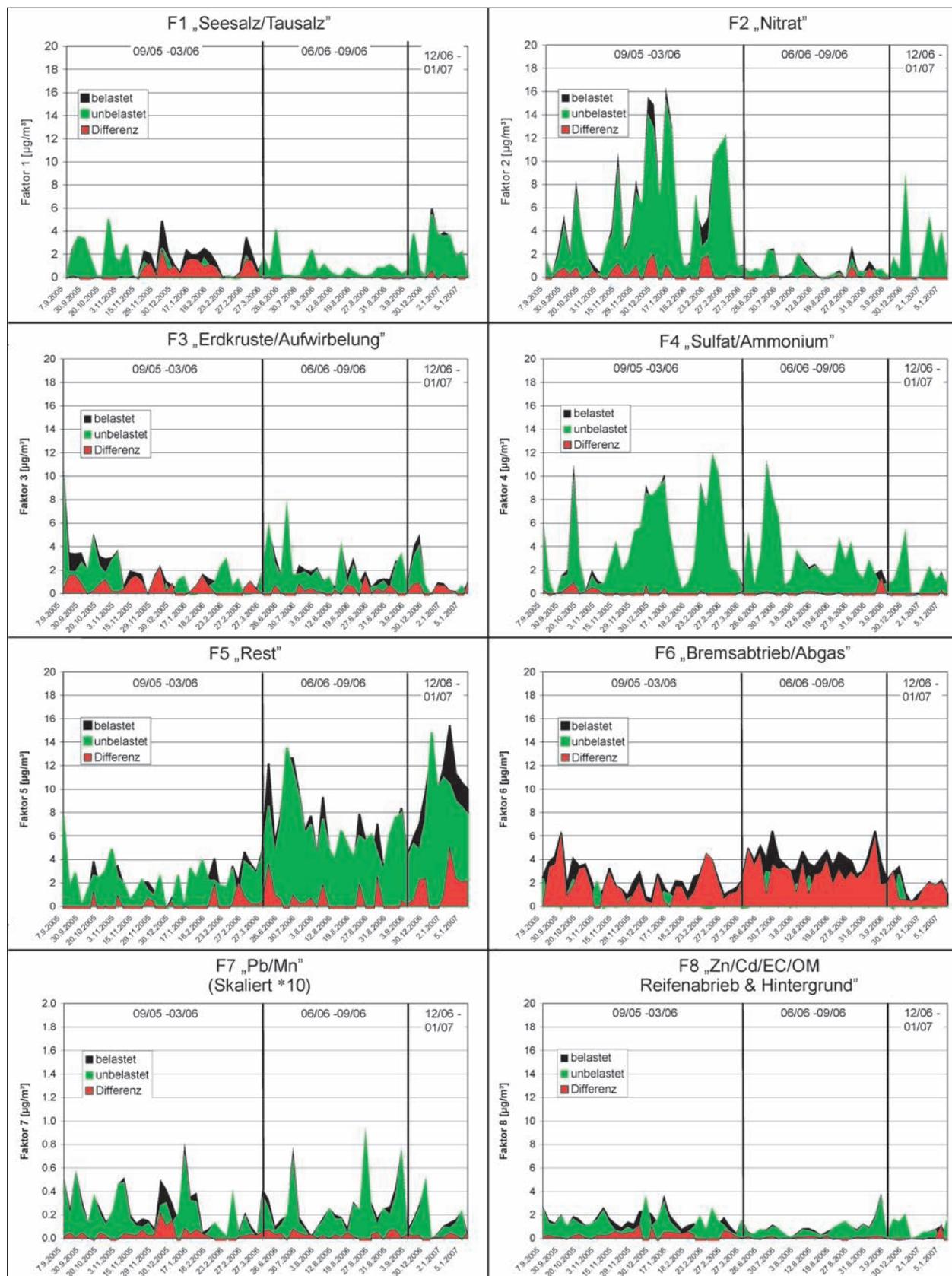


Bild 31: 8-Faktoren-Modell: Zusammensetzung der Faktoren

Die signifikanteste Zusatzbelastung ist beim Faktor 6 ausgewiesen, der die Tracer-Komponenten für

den Bremsabrieb, aber als massenrelevante Bestandteile auch erhebliche Anteile des elementaren



**Bild 32:** Konzentrations-Zeit-Muster für die erhaltenen 8 Faktoren

und organischen Kohlenstoffs enthält (vgl. Bild 31). Dieser Faktor vereinigt somit zwei unterschiedliche Emissions-Prozesse, die offenbar hoch korreliert sind. Eine Separation dieser beiden Quellen durch Vorgabe höherer Faktorenzahl gelang nicht.

Wie Bild 31 weiterhin zeigt, wurde – mit Ausnahme der Faktoren F1 (See-/Tausalz) und F7 (Pb/Mn) – auch den übrigen Faktoren jeweils ein signifikanter Anteil an EC und/oder OC zugewiesen. Wegen der absolut hohen Konzentrationen dieser Komponenten machen diese Kohlenstoff-Beiträge einen erheblichen Teil der jeweiligen Faktor-Zusatzbelastung aus.

Diese Vermischung von überwiegend mit dem Abgas emittierten Komponenten mit jenen Substanzen, die die diffusen verkehrsbedingten Emissionen kennzeichnen, dürfte einerseits auf die gemeinsame Quelle „Fahrzeug“, andererseits (wie bei Ammonium, Sulfat, Nitrat) z. T. auf die statistische Unschärfe zurückzuführen sein.

Eine quantitative Auswertung der Beiträge der Faktoren zur gemessenen PM<sub>10</sub>-Konzentration ergibt die in Bild 33 gezeigten Kreisdiagramme. Aus dem Vergleich der Diagramme 33a) und 33b) für die unbelastete und belastete Seite geht deutlich hervor, dass der Anteil des Bremsabrieb/Abgas-Faktors steigt, während insbesondere der Restfaktor, aber auch die Hintergrundfaktoren prozentual abnehmen. Das Diagramm 30c) für die Zusatzbelastung zeigt, dass hier der Beitrag des Sulfat-Hintergrundes ganz verschwindet, während für den Rest- und den Nitrat-Faktor, auch wegen des darin enthaltenen Abgas-Anteils (EC und OC PM<sub>1</sub>), noch ein geringer Beitrag ausgewiesen wird. Den Hauptanteil der Zusatzbelastung trägt jedoch der Faktor „Bremsabrieb/Abgas“.

Eine weitergehende Betrachtung zeigt, dass das 8-Faktoren-Modell die PM<sub>10</sub>-Konzentrationen für die Teildatensätze der unbelasteten und belasteten Station gut wiedergibt (siehe Bild 34a, b). Die Übereinstimmung ist jedoch für den Datensatz der Zusatzbelastung erheblich geringer (Bild 34c). Ursächlich dafür sind die deutlich niedrigeren Konzentrationen, die damit verbundenen höhere Messunsicherheiten und die Tatsache, dass die Originaldatenmatrix für viele Komponenten eine negative Zusatzbelastung vorgibt, die vom Modell nicht entsprechend verarbeitet werden kann. Eine etwas bessere Korrelation ergibt sich, wenn man mit den modellierten Konzentrationen tagesweise die Differenz zwischen belasteter und unbelasteter Station

bildet und diese dann mit den gemessenen Zusatzbelastungen vergleicht (Bild 34d). Die guten Übereinstimmungen mit den gemessenen höheren Konzentrationen für die Teildatensätze unbelastet/belastet zeigen, dass das Modell eine Lösung gefun-

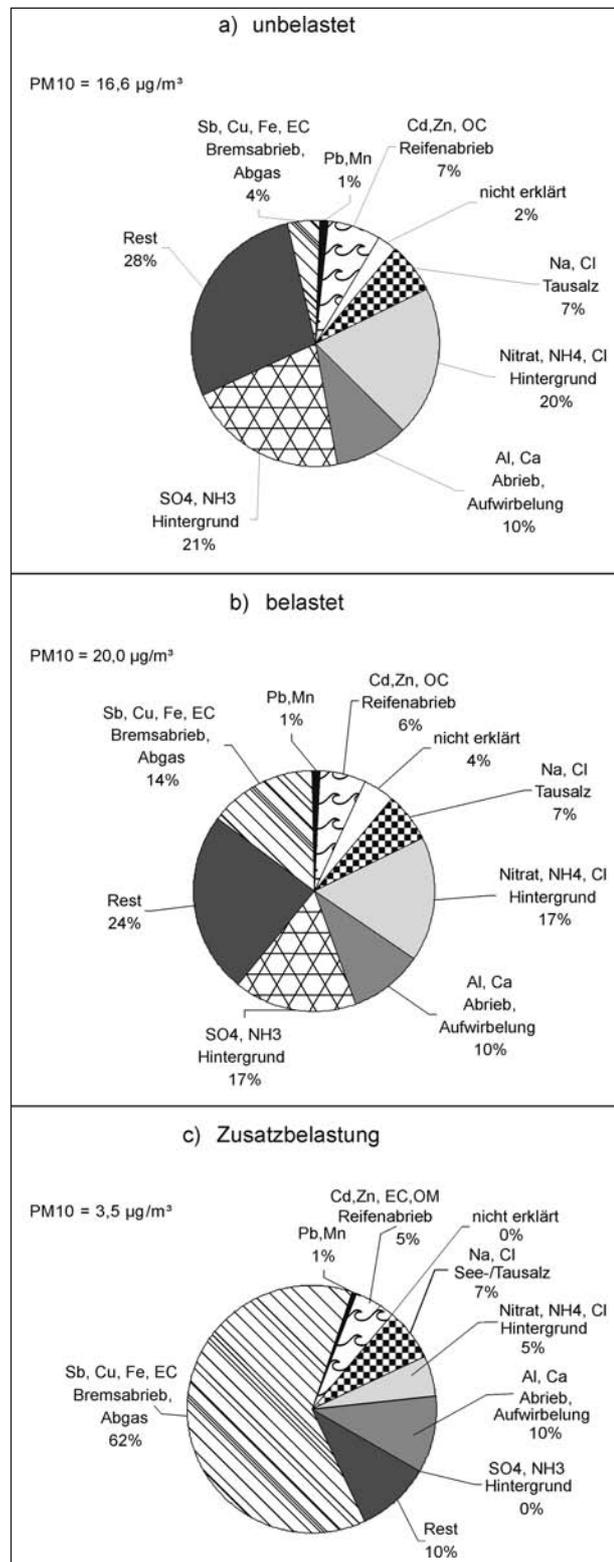


Bild 33: 8-Faktoren-Modell: prozentuale Anteile der Faktoren an den gemessenen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen

den hat, die diese Konzentrationen optimal anpasst, allerdings auf Kosten der Modellierung der niedrigeren Zusatzbelastungen.

Die im Mittel gemessene  $PM_{10}$ -Konzentration wird vom Modell für die unbelastete und belastete Station etwas zu gering, im Falle der Zusatzbelastung um ca.  $0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  zu hoch angepasst, sodass hier der nicht erklärte Anteil rechnerisch negativ ist und daher in Bild 33 mit 0 % angegeben wird.

Insgesamt war somit das 8-Faktoren-Modell für die Auftrennung der die  $PM_{10}$ -Konzentrationen an der unbelasteten und belasteten Station bestimmenden Quellen, insbesondere für die Unterscheidung der Hintergrundeinflüsse und der verkehrsbedingten Einflüsse, gut geeignet. Die Auftrennung der verkehrsbedingten Quellprozesse gelang mit diesem Ansatz jedoch noch nicht befriedigend.

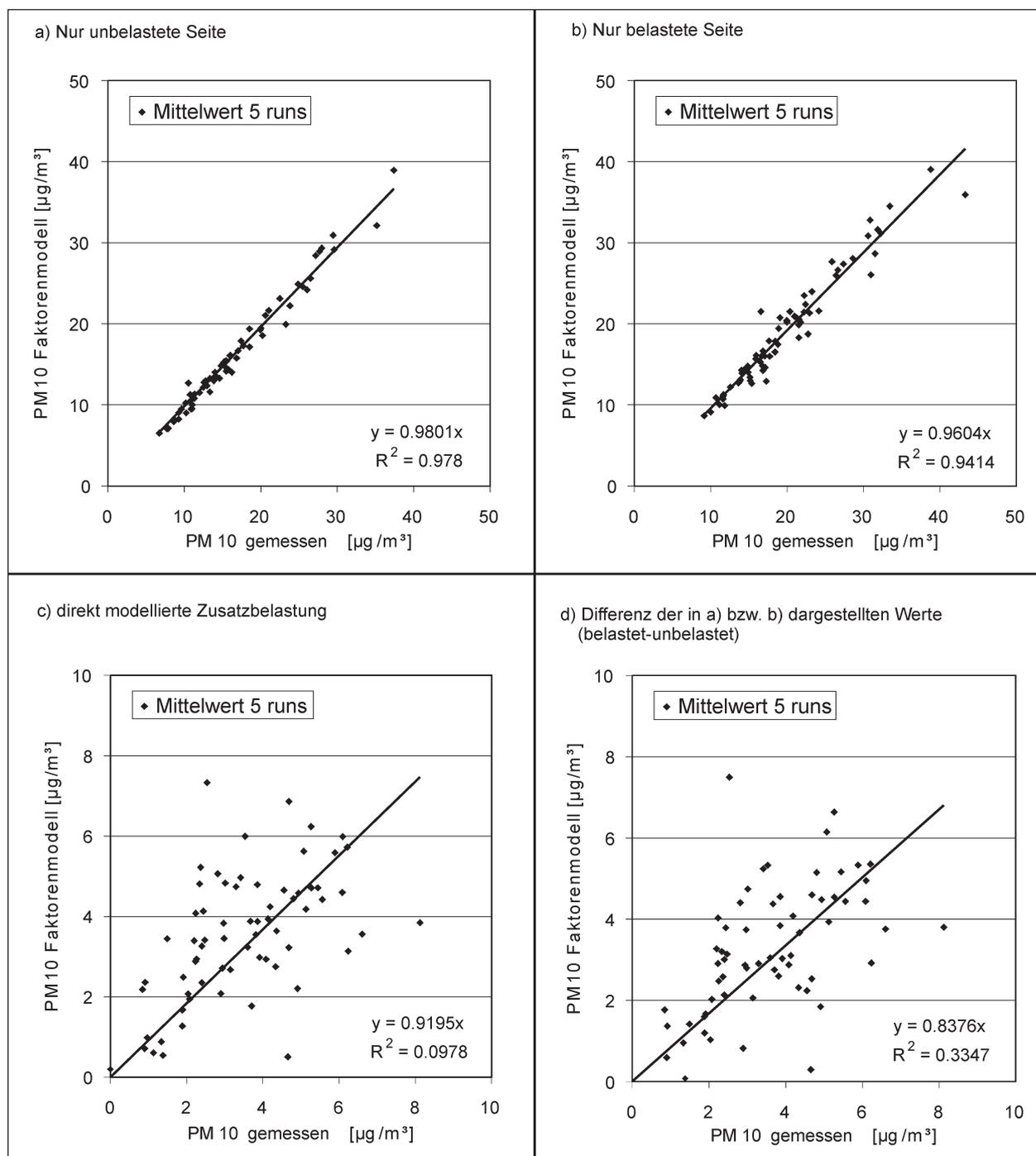


Bild 34: 8-Faktor-Modell: Korrelationen zwischen gemessenen und modellierten  $PM_{10}$ -Konzentrationen

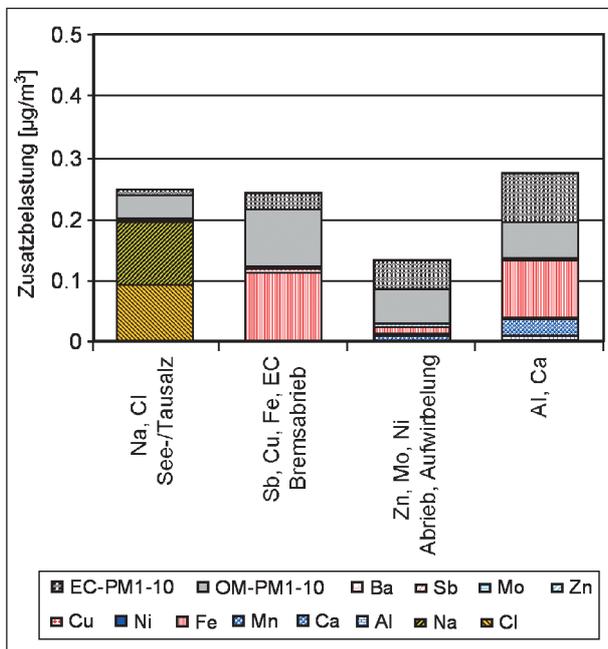
**4.2.2.4.2 4-Faktoren-Modell der reduzierten Datenmatrix**

Im Folgenden wurde daher eine weitere Modellierung mit einem modifizierten Datensatz durchgeführt. Hierfür wurden einerseits die nahezu ausschließlich<sup>18</sup> mit dem Abgas emittierten Kohlenstoffkomponenten (EC und OC in PM<sub>1</sub>) und andererseits die Komponenten entfernt, bei denen die verkehrsbedingte Zusatzbelastung einen Mindestanteil an der Konzentration der belasteten Seite unterschreitet. Diese Auswahl wurde anhand von Bild 22 vorgenommen, wobei die darin dargestellten Komponenten mit Anteilen von weniger als 20 % aus der Datenmatrix entfernt wurden. Die reduzierte Datenmatrix enthielt somit nur noch 14 Komponenten und insgesamt 2.856 Einzeldaten. Anhand von Screening-Modellierungen zeigte sich, dass sich aus dieser Datenmatrix vier Faktoren heraus-

bilden lassen, deren wesentlichste Komponenten in Tabelle 19 gezeigt sind.

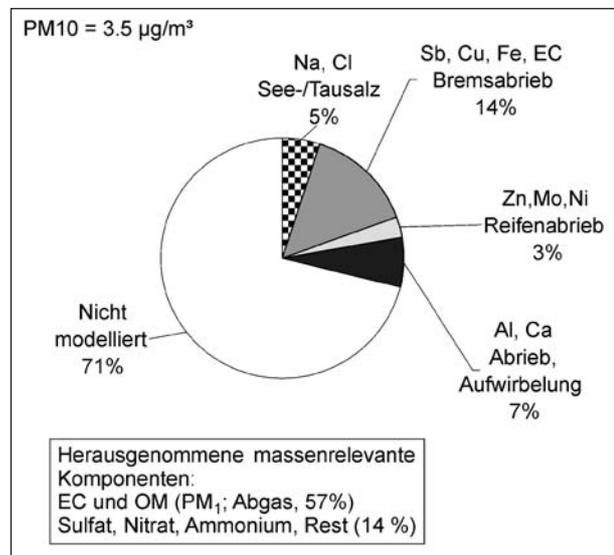
Die quantitative Zusammensetzung der Faktoren aus den darin gruppierten Komponenten zeigt Bild 35. Daran lässt sich erkennen, dass die Faktoren eine grundsätzlich plausible Zusammensetzung aufweisen. Alle Faktoren enthalten, neben den spezifischen Tracer-Substanzen, auch Anteile des in der PM<sub>1-10</sub>-Fraktion enthaltenen Kohlenstoffs. Da alle Prozesse als Kombination von Direktmission und Aufwirbelung anzusehen sind, ist dies ebenfalls nachvollziehbar. Summiert man die in Bild 35 dargestellten Konzentrationen auf, so erhält man den Mittelwert der in das Modell eingespeisten Zusatzbelastungskonzentrationen von ca. 0,9 µg/m<sup>3</sup>. Die Beiträge der 4 Faktoren (Mittelwert über die modellierten Filtertage) betragen insgesamt 0,98 µg/m<sup>3</sup>, das Modell überschätzt damit geringfügig die gemessenen Werte.

<sup>18</sup> Das gemessene Verhältnis von Gesamtkohlenstoff- (EC + OC) zur PM<sub>1</sub>-Konzentration (jeweils Zusatzbelastung) betrug im Mittel 0,9 (25- bzw. 75-Perzentil: 0,6 bzw. 1,2).



**Bild 35:** 4-Faktoren-Modell: Zusammensetzung der Faktoren

Bild 36 zeigt die Anteile der Faktoren an der PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung. Insgesamt 71 % (2,46 µg/m<sup>3</sup>) wurden wegen der aus der Datenmatrix entfernten Komponenten nicht modelliert. Davon entfallen 1,99 µg/m<sup>3</sup> auf EC und OM in der PM<sub>1</sub>-Fraktion,



**Bild 36:** 4-Faktoren-Modell: prozentuale Anteile der Faktoren an der gemessenen PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung

Cl	96 %	Sb	91 %	Zn	100 %	Al	100 %
Na	96 %	Cu	73 %	Mo	54 %	Mn	64 %
Ba	18 %	Fe	51 %	Ni	51 %	Ca	64 %
OM-Pm <sub>1-10</sub>	14 %	Ba	39 %	EC-PM <sub>1-10</sub>	29 %	EC-PM <sub>1-10</sub>	49 %
Ca	12 %	OM-PM <sub>1-10</sub>	38 %	Mn	26 %	Ni	44 %

**Tab. 19:** Zusammensetzung der Faktoren im 4-Faktoren-Modell

was 57 % der gemessenen  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung entspricht.

#### 4.2.2.4.3 Tausalz-Einfluss

Bei den bisher dargestellten Auswertungen wurde der Einfluss der Tausalzabringung nicht gesondert berücksichtigt, da die Faktorisierung zunächst keine Unterscheidung zwischen Seesalz und Tausalz macht. Sichtbar wird dieser Unterschied in der temporär auftretenden erhöhten Zusatzbelastung (Bild 37, vgl. auch Bild 32). Bezieht man den nur für diese Phase (Nov. 2005 bis März 2006) errechneten Mittelwert der Faktor-Zusatzbelastung ( $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) auf den entsprechenden Mittelwert der  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung ( $4,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), so beträgt der Anteil des See-/Tausalz factors 13,3 %. In der übrigen Zeit trägt der Faktor See-/Tausalz nicht zur Zusatzbelastung bei. Der in Bild 36 gezeigte 5%-Anteil an der  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung ist somit für Zeiten mit Tausalzanwendung zu gering und für andere Phasen ohne Winterdienst zu hoch angesetzt.

#### 4.2.2.4.4 Unsicherheitsabschätzung durch Bootstrapping-Modellierung

Neben der im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Unsicherheitsbetrachtung auf der Basis der bei verschiedenen Modellierungsansätzen erhaltenen Ergebnisse kann die Variabilität der Faktorisierung zusätzlich durch ein in das EPA-Modul implementiertes Bootstrapping-Verfahren ermittelt werden. Bei diesem Verfahren wird aus dem Originaldatensatz durch gleich große Prüfdatensätze zufallsgesteuertes „Ziehen unter Zurücklegen“ erzeugt und der Faktorisierung unterzogen. Durch dieses Verfahren ist es möglich, dass ein Prüfdatensatz Werte doppelt oder mehrfach enthält. Führt man das Verfahren genügend oft (mindestens

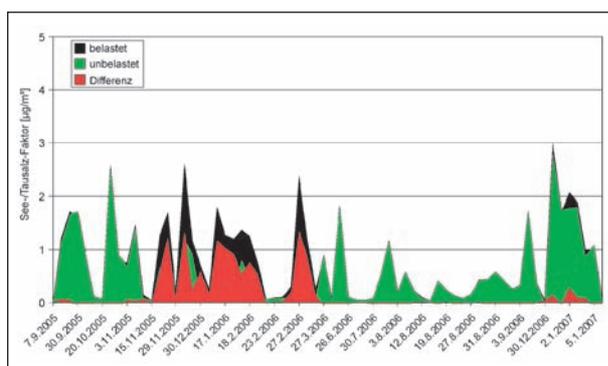


Bild 37: 4-Faktoren-Modell: Zeitverlauf des See-/Tausalz factors

100mal) durch, so erhält man eine Gauss-Verteilung von Prüfdatensätzen mit höheren Häufigkeiten bei solchen Datensätzen, die den Originaldaten ähnlich sind und abnehmender Häufigkeit, je mehr Veränderungen gegenüber dem Originaldatensatz vorgenommen wurden. Die Prüfdatensätze werden jeweils faktorisiert und die erhaltenen Faktoren anhand eines vorzuzählenden Mindest-Korrelationskoeffizienten (Vorgabe ist 0,6) den in der PMF gefundenen Faktoren zugeordnet. Bei einem robusten Modell sollten alle bzw. möglichst viele der Bootstrap-Faktoren einem Basis-Faktor zugeordnet werden. Mit höher gewähltem Korrelationsfaktor steigt die Wahrscheinlichkeit für nicht zugeordnete Bootstrap-Faktoren. Im vorliegenden Fall wurden von 200 Bootstrap-Läufen bei einem Korrelationskoeffizienten von 0,6 alle Faktoren zugeordnet, bei 0,9 insgesamt 3 Faktoren nicht zugeordnet. Dies spricht für eine sehr robuste und konsistente Faktorisierung mit dem PMF-Modell.

Die Streuung der zuordenbaren Bootstrap-Faktoren wird vom Programm grafisch als Box-Whisker-Plot ausgegeben (siehe Bild 38). Extremwerte außerhalb der Box-Grenzen (25- bzw. 75-Perzentil) sind darin als Einzelwerte (+) ausgewiesen; das Sternchen (\*) indiziert den Ergebniswert des PMF-Modells.

Idealerweise sollte Letzterer innerhalb oder nahe der Box liegen, die ihrerseits bei reproduzierbaren Faktorprofilen möglichst schmal ausfallen sollte. Dies ist bei allen in Bild 38 dargestellten Faktorprofilen erfüllt.

Insgesamt ist somit – mit Blick auf die Tatsache, dass mit der PMF hier eine geringe  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung in der Nähe des messtechnisch Erfassbaren analysiert wurde – eine sehr gute Reproduzierbarkeit der Faktorprofile erreicht worden. Eine Nutzung der dargestellten Variabilitäten der Faktor-Komponenten für eine exakte quantitative Ableitung von Konfidenzintervallen für die daraus resultierenden Beiträge der Faktoren zur Zusatzbelastung konnte allerdings nicht durchgeführt werden, da der dazu notwendige rechnerische Aufwand den Rahmen des Projektes überschritten hätte.

Basierend auf den messtechnisch bedingten Unsicherheiten der durch unterschiedliche Modellansätze ermittelten Spanne und den Bootstrap-Variabilitäten wird die mögliche Spannbreite der Faktorbeiträge zur Zusatzbelastung auf maximal einen Faktor 3 zwischen Minimal- und Maximalwert geschätzt.

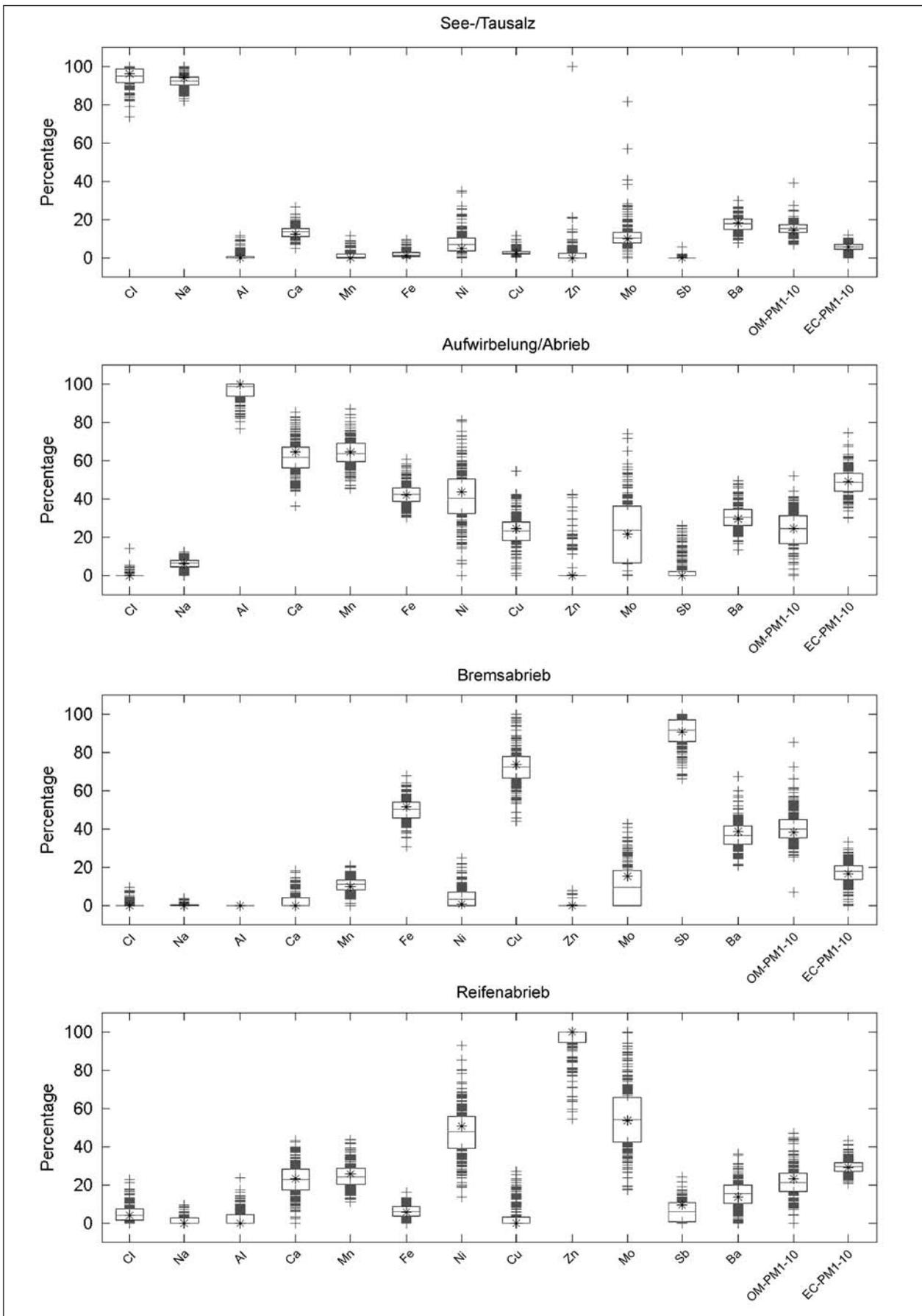


Bild 38: Bootstrap-Verteilungen für die Faktorenprofile des 4-Faktoren-Modells

### 4.2.3 Ergebnis der PMF-Modellierung

Als Ergebnis der Faktorenanalyse lassen sich somit die in Tabelle 20 gezeigten Anteile der ermittelten Faktoren an der verkehrsbedingten PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung festhalten.

### 4.3 Emissionsfaktoren für verkehrsbezogene Quellen

Durch Multiplikation des in Kapitel 4.1 aus der gemessenen PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung abgeleiteten PM<sub>10</sub>-Emissionsfaktors von 0.066 mg/vkm mit den in der Faktorenanalyse ermittelten Anteilen der identifizierten Faktoren lassen sich anteilige Emissionsfaktoren für die betrachteten Teilprozesse errechnen. Diese sind in Tabelle 21 dargestellt

Die nicht zugeordneten Emissionen spiegeln die bei der Faktormodellierung nicht berücksichtigten Komponenten wider. Massenrelevant sind davon vor allem Sulfat, Nitrat, Ammonium und der nicht analysierte Rest. Für Ammonium und Nitrat kann von einem sehr geringen Beitrag zur Zusatzbelastung ausgegangen werden, wenngleich eine Emission von Ammoniak aus katalysatorbestückten Motoren bzw. eine Entstehung von Salpetersäure aus den emittierten Stickstoffoxiden durchaus möglich erscheint.

Sulfate stammen zum überwiegenden Teil aus der Hintergrundbelastung (sekundäres, aus SO<sub>2</sub> gebildetes Aerosol), sind aber auch in Erdkrustenmaterialien und in Form von Bariumsulfat (Baryt) in Bremsbelägen vorhanden. Legt man die mittlere Barium-Zusatzbelastung von ca. 3 µg/m<sup>3</sup> zu Grunde, so errechnet sich eine damit verbundene Sulfat-Zusatzbelastung von ca. 2,1 µg/m<sup>3</sup>, was weniger als 0,1 % der PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung und damit

einem Emissionsfaktor von weniger als 0,1 mg/vkm entspricht.

Der nicht analysierte Rest trug im Mittel mit 0,47 µg/m<sup>3</sup> (entsprechend ca. 14 %) zur PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung bei. Die in ihm enthaltenen Komponenten sind im Wesentlichen gebundenes Wasser sowie Silikate und Carbonate. Letztere kann man wahrscheinlich überwiegend Boden- bzw. Straßenbaumaterialien zuordnen. Somit ist davon auszugehen, dass ein Teil des nicht zugeordneten Emissionsfaktors dem Prozess „Aufwirbelung/Straßenabrieb“ zugeschlagen werden kann, der somit bis auf 17 mg/vkm anwachsen könnte. Eine exakte Quantifizierung dieses zusätzlich zu berücksichtigenden Anteils ist jedoch anhand der vorhandenen Daten nicht möglich.

Schlägt man die nicht zugeordnete Zusatzbelastung komplett den diffusen Emissionen zu, so ergibt sich aus der Faktorenanalyse ein Anteil der nicht-motorischen und motorischen Emissionen von 42 % bzw. 58 %. Damit ist das Verhältnis der motorischen zu den nicht-motorischen Emissionen mit etwa 60:40 abzuschätzen. Dies entspricht recht gut dem auf der Basis der kontinuierlich gemessenen PM<sub>10</sub>- bzw. PM<sub>1</sub>-Massenkonzentrationen ermittel-

Quellprozess	Emissionsfaktor [mg/vkm]
Bremsabrieb	9
Reifenabrieb	2
Aufwirbelung, Straßenabrieb	5
Motorische Emissionen	38
Nicht zugeordnet	12
Tausalz-Aufwirbelung (bei Winterdienst)	9

Tab. 21: PM<sub>10</sub>-Emissionsfaktoren für verkehrsbedingte Quellprozesse (Autobahn, DTV 72000 Fzg/d, 20 % Lkw-Anteil, trockene Witterung)

Faktor	Charakteristische Komponenten	Anteil an verkehrsbed. Zusatzbelastung [ % ] inkl. Tage mit Tausalz-Ausbringung	
		Ergebnis PMF	geschätzte Wertespanne
Bremsabrieb	Sb, Fe, Cu, Ba, (EC-PM <sub>1-10</sub> , OM-PM <sub>1-10</sub> )	14 %	10-30 %
Reifenabrieb	Zn, Mo, (EC-PM <sub>1-10</sub> , OM-PM <sub>1-10</sub> )	3 %	1,5-4,5 %
Aufwirbelung, Straßenabrieb	Al, Ca, Mn, Fe, Ni (EC-PM <sub>1-10</sub> , OM-PM <sub>1-10</sub> )	7 %	4-12 %
See-/Tausalz	Na, Cl	0 % (kein Winterdienst) 13 % (mit Winterdienst)	- 8 -24 %
Motorische Emissionen	EC-PM <sub>1</sub> , OM-PM <sub>1</sub>	57 %	25-75 %
Nicht zugeordnet	Rest, Nitrat, Sulfat, Ammonium	6-19 %	

Tab. 20: Anteile der verkehrsbedingten Emissionsprozesse an der PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung (Autobahn, DTV 72000 Fzg/d, 20 % Lkw-Anteil, trockene Witterung)

ten Verhältnis zwischen  $PM_1$  und  $PM_{1-10}$ . Für die Periode mit Tausalzausbringung ändert sich das Verhältnis auf ca. 50:50.

Im Vergleich mit den Wertebereichen für quellprozessbezogene Emissionsfaktoren, die aus anderen Untersuchungen resultieren, findet sich mit den ermittelten 9 mg/vkm eine befriedigende Übereinstimmung für den Bremsabrieb (1-7,5 mg/vkm für Pkw/LDV, 3,5-50 mg/vkm für Lkw, siehe Tabelle 1).

Der hier berechnete Emissionsfaktor für Reifenabrieb liegt am unteren Ende des Bereiches entsprechender Literaturdaten. Als Erklärung hierfür kommen Unterschiede in den betrachteten Verkehrssituationen und der Fahrbahnrauigkeiten in Betracht. Die hier vorliegenden Messdaten wurden an einer Bundesautobahn mit gerader Streckenführung und vermutlich gleichmäßigem Fahrmuster (entsprechend einem geringen Anteil an Brems- und Beschleunigungsvorgängen) erhoben. Auch die Abtrennung der Kohlenstoff-Komponenten der  $PM_1$ -Fraktion vor der abschließenden Modellierung könnte mit Blick auf die Befunde von FAUSER [FAUSER, 1999], dass erhebliche Anteile volatiler Reifenbestandteile als submikrone Partikel anzutreffen sind, zu einer Unterschätzung des Reifenabriebs beitragen.

Im Hinblick auf den Emissionsfaktor für Straßenabrieb und die Aufwirbelung von Straßenstaub besteht wie zuvor dargestellt ein größerer Unsicherheitsbereich wegen der nicht alle relevanten Komponenten umfassenden chemischen Analysendaten (fehlende Informationen über Silikate/Karbonate<sup>19</sup>). Der Emissionsfaktor liegt demnach zwischen 5 und 17 mg/vkm und damit im Bereich der Werte, die in der Literatur anzutreffen sind [LUHANA, 2004].

Der Gesamt-Emissionsfaktor von Aufwirbelung und Abrieb (alle Abriebsprozesse) wurde in Deutschland zu 22 mg/Pkw-km und 200 mg/Lkw-km ermittelt [DÜRING und LOHMEYER, 2004]. Mit dem in der vorliegenden Untersuchung angefallenen Lkw-Anteil von 20 % (für die Filtertage) ergäbe sich daraus ein Kfz-bezogener  $PM_{10}$ -Emissionsfaktor „Auf/Ab“ von 57.6 mg/vkm. Dieser Faktor kann für die vorliegende Untersuchung, die insgesamt 17 bis 23 mg/vkm ausweist, als definitiv zu hoch be-

zeichnet werden, da damit bereits 75-87 % des ermittelten  $PM_{10}$ -Gesamtemissionsfaktors (inkl. motorischer Emissionen) ausgeschöpft werden. Wie bereits in Bild 28 gezeigt, sind die nach DÜRING und LOHMEYER kalkulierten Emissionsfaktoren für die  $PM_{1-10}$ -Fraktion auch im Vergleich zu den in der Schweiz [GEHRIG, 2003] an Autobahnen gefundenen Werten erhöht.

In diesem Zusammenhang muss aber nochmals darauf hingewiesen werden, dass die im vorliegenden Projekt ermittelten Emissionsfaktoren

- einerseits durch die verhältnismäßig geringe Zahl der Filter für die Analysen
- und andererseits durch die Auswahlkriterien

weder als repräsentativ für ein Kalenderjahr noch für alle Verkehrssituationen auf Autobahnen angesehen werden können.

## 5 Analytik und Qualitätssicherung

### Beschreibung der Probenbehandlung und Analysenmethoden Metalle, Anionen und Ammoniak

#### Vorbereitung der Proben

Zur Bestimmung der Inhaltsstoffe wurde aus den Filtern eine repräsentative Teilprobe ausgestanzt. Dazu werden spezielle ringförmige Stanzmesser (aus Zirkonia-Keramik, Durchmesser 31 mm bzw. für die Kohlenstoff-Analytik aus Stahl mit Durchmesser 10 oder 14 mm) verwendet, wodurch Kontamination oder eine Änderung der ausgestanzten Fläche durch Abnutzung der Schneide vermieden wird. Das Ausstanzen der Teilprobe erfolgte auf einer PTFE-Platte. Die Teilprobe wurden aus einem homogen belegten Teil des Filters entnommen. Biogenes Material wie z. B. Insekten oder grobe Partikel wurden zuvor entfernt. Bei der Wahl der repräsentativen Teilprobe wurden solche Bereiche vermieden, in denen große Verunreinigungen, beispielsweise durch Insekten, vorab erkennbar waren.

#### Probenlagerung

Alle Proben wurden nach der Anlieferung im Kühlschrank bei 4-5 °C aufbewahrt. Dies gilt ebenso für

<sup>19</sup> Um diese Komponenten einzuschließen, wären separate Filterprobenahmen auf Teflon-Filtern (die den Finanzrahmen des Projektes gesprengt hätten) oder ein Verzicht auf die Kohlenstoff-Analysen notwendig gewesen.

die Lagerung der zu vermessenden Lösungen, sofern sie zeitnah (am selben oder folgenden Tag) zum Aufschluss beziehungsweise zur Elution vermessen wurden. War dies nicht der Fall, wurden sie bei -80 °C eingefroren und zur Messung schonend aufgetaut.

## Elementanalyse mittels ICP-MS

### Probenvorbereitung

Der Mikrowellendruckaufschluss erfolgte mittels eines Mars-5-Mikrowellendruckaufschlussystems der Firma CEM in XP-1.500-Druckaufschlussbehältern aus PFA mit Temperatur- und Druckkontrolle.

Vor jedem Aufschluss wurden die vorgereinigten Gefäße je zweimal einem Reinigungsaufschluss mit 8 mL konz. Salpetersäure (subboiled) unterzogen (in 15 min auf 200 °C, 10 min Halten der Temperatur).

Danach wurden jeweils 3 mit derselben Probe belegte Filterscheiben bzw. je 3 leere Filterscheiben in ein Aufschlussgefäß gegeben und mit 3 mL Flusssäure (40 %, VWR PROLABO NORMATOM ultrapure) versetzt. Nach einer Vorreaktionszeit von 30 min wurden noch 6 mL konz. Salpetersäure (subboiled) hinzugegeben und die Proben mit folgendem Programm aufgeschlossen:

Rampe (min)	Temperatur (°C)	Halten (min)
10	80	5
10	130	5
10	200	30

Nach dem Abkühlen auf unter 35 °C wurden die Säuren in denselben Behältern im Mikrowellengerät bis fast zur Trockenheit abgeraucht (Abraucheinheit Micro-Vap der Firma CEM). Dies erfolgte bei 120 °C innerhalb von 90 min. Nach dem erneuten Abkühlen wurden die Proben mit 2 mL konz. Salzsäure (30 %, Merck, suprapur) und 2 mL Reinstwasser (ELGA PURELAB ultra) aufgenommen. Dazu wurden sie mit den Flüssigkeiten versetzt und nochmals 20 min auf 80 °C im Mikrowellengerät erwärmt. Die Lösungen wurden anschließend in Kunststoffgefäße (50 mL, Firma Greiner) umgefüllt, mit internem Standard versehen (In und Bi, jeweils 10 µg/L Endkonzentration) und auf 40 mL mit Reinstwasser aufgefüllt. Die Lagerung bis zur Messung erfolgte bei -80 °C.

Zur Qualitätskontrolle wurden bei jedem Aufschlussdurchgang (jeweils 10 Proben pro Aufschluss) noch eine Blindaufschlusslösung (nur Säuren und Wasser) und eine zertifizierte Bodenprobe (Einwaage jeweils etwa 5 mg) auf dieselbe Art aufgeschlossen, abgeraucht und aufgenommen.

### ICP-MS-Elementanalyse

Die Analyse erfolgte mittels ICP-MS (Agilent 7500 ce mit Octopole Reaction System und Kollisions-/Reaktionszelle zur Unterdrückung von Interferenzen und Matrixeffekten).

Vermessen wurden folgende Elemente:

Element	Masse (amu)	Betriebsart Kollisions-/ Reaktionszelle	Integrationszeit (s)
Na	23	He	0,3
Mg	24	He	0,3
Al	27	He	0,3
Ca	44	normal	0,3
V	51	He	1,5
Mn	55	normal	0,3
Fe	57	H <sub>2</sub>	0,3
Ni	60	normal	1,5
Cu	63	normal	1,5
Zn	66	normal	0,3
Mo	95	normal	0,3
Cd	111	normal	0,3
Sb	121	normal	0,3
Ba	137	normal	0,3
Pb	206, 207, 208	normal	0,3 pro Masse
In (int. Std.)	115	H <sub>2</sub> , He und normal	0,3
Bi (int. Std.)	209	normal	0,3

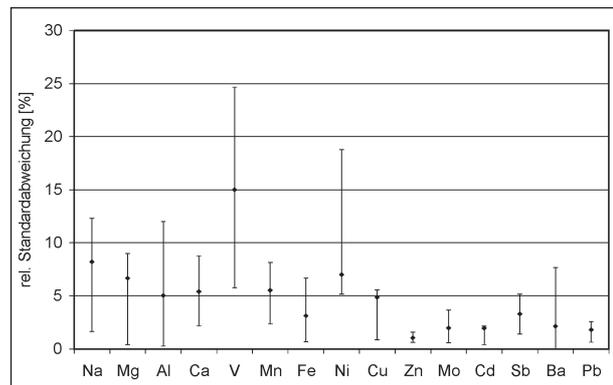
Jede Messung wurde dreifach wiederholt; die Blei-Messwerte wurden aufsummiert, um Fehler durch unterschiedliche Isotopenverhältnisse zu vermeiden.

Die Einstellungen des Messgerätes müssen täglich optimiert werden und unterschieden sich von Messkampagne zu Messkampagne leicht; exemplarisch die Werte für die letzte Messreihe:

	Normalmodus	H <sub>2</sub> -Modus	He-Modus
RF-Leistung	1.500 W	wie Normalmode	wie Normalmode
Abstand Spule/Sample cone	7 mm	wie Normalmode	wie Normalmode
Trägergas	0,75 L/min Ar	wie Normalmode	wie Normalmode
Makeup-Gas	0,44 L/min Ar	wie Normalmode	wie Normalmode
Zerstäuberpumpe	0,08 U/min	wie Normalmode	wie Normalmode
Sprühkammertemp.	2 °C	wie Normalmode	wie Normalmode
Zellgas-Durchfluss	-	3,3 mL/min	4,1 mL/min
Extract 1-Linse	3,7 V	wie Normalmode	wie Normalmode
Extract 2-Linse	-150 V	wie Normalmode	wie Normalmode
Ω-Vorspannung	-22 V	wie Normalmode	wie Normalmode
Ω-Linse	2,6 V	wie Normalmode	wie Normalmode
Zell-Eingang	-26 V	wie Normalmode	wie Normalmode
Quadrupol-Fokus	3 V	-9 V	wie H <sub>2</sub> -Modus
Zell-Ausgang	-26 V	-16 V	wie H <sub>2</sub> -Modus
Octopol-Vorspannung	-13,6 V	-15,4 V	wie H <sub>2</sub> -Modus
Quadrupol-Vorspannung	-10 V	-12 V	wie H <sub>2</sub> -Modus

Die Analyt-Zählraten wurden jeweils durch die der internen Standards korrigiert. Die externe Kalibrierung erfolgte mit jeweils 12 bis 15 Standardlösungen (jeweils abhängig vom Konzentrationsbereich der Proben), die mit ICP-Standardlösungen 1.000 mg/L (CertiPur® der Firma Merck) in 1,5%iger Salzsäure (Qualität siehe oben) und internen Standards (10 µg/L Endlösung) angesetzt wurden.

Von den Ergebnissen in µg/L wurden die Aufschlussblindwerte abgezogen, wenn Letztere oberhalb der Geräte-Nachweisgrenzen lagen. Aus den erhaltenen Werten wurden die Absolutwerte in µg für die Gehalte in jeweils 3 Filterscheiben berechnet.



**Bild 39:** ICP-MS Wiederholstandardabweichungen (relativ) für Doppelbestimmungen derselben Filterproben

## Statistische Kenngrößen

### Standardabweichungen

Zusammen mit den Mittelwerten der drei Einzelmessungen pro Element wurden auch die Standardabweichungen gleich vom Programm mit ausgegeben; die Berechnung erfolgt gemäß:

$$\text{Std.-Abw.} = \sqrt{\frac{\sum_i x_i^2 - \frac{1}{n} \left( \sum_i x_i \right)^2}{n - 1}}$$

wobei n die Anzahl der Wiederholungsmessungen und  $x_i$  die Konzentration ist (Angabe in den Tabel-

len in %). Diese Analysenstandardabweichung ist ein Maß für die Unsicherheit, die durch Schwankungen bei der Probenaufgabe in das ICP-MS und der geräteinternen Probenverarbeitung entsteht. Sie ist nicht mit der Wiederholstandardabweichung zu verwechseln, die man aus Mehrfachbestimmungen derselben Filterprobe unter Einbeziehung unabhängiger Aufschlussdurchgänge erhält.

Aus Kostengründen wurde auf eine regelmäßige Doppelbestimmung oder Mehrfachbestimmung der Filterproben verzichtet; zur Qualitätssicherung wurden jedoch mehrere Proben (für das Labor nicht erkennbar) einer doppelten Analyse unterzogen. In Bild 39 sind die Mediane sowie Minimum- und Maximumwerte der relativen Standardabweichungen

dieser Doppelbestimmungen wiedergegeben. Demnach sind für die meisten Elemente sehr zufriedenstellende rel. Standardabweichungen von maximal 10 %, in Einzelfällen akzeptable Abweichungen von bis zu 25 % festzustellen<sup>20</sup>.

### Nachweisgrenzen

Die ICP-MS Steuerungssoftware liefert programm-eigene Nachweisgrenzen, die anhand der Kalibrationsdaten mit Hilfe der Kalibrations-Blindlösung und der 10-µg/L-Lösung ermittelt werden; da diese Werte lediglich die „Gerätenachweisgrenze<sup>21</sup>“ liefern, aber die tatsächlich für die Proben erreichbaren Analysen-Nachweisgrenzen<sup>22</sup> nicht widerspiegeln, wurden letztere anhand der Daten der Blindaufschlusslösungen und der aufgeschlossenen zertifizierten Standardproben gemäß

$$NWG_{\text{Analyse}} = \frac{3 \cdot \sigma_Z \cdot c}{Z_L - Z_B}$$

berechnet ( $\sigma_Z$  = Standardabweichung der Zählraten für die Blindaufschlusslösungen,  $c$  = Konzentration einer Aufschlusslösung bekannter Konzentration,  $Z_L$  = Zählrate für diese Lösung,  $Z_B$  = Zählrate der Blindaufschlusslösung). Die Werte wurden zusammen mit jeder Probencharge separat bestimmt, da sie sich von Messtag zu Messtag leicht unterscheiden können. Die Analysendaten für die zertifizierten Bodenproben wurden mit den zertifizierten Daten verglichen; für alle Werte ergaben sich gute Übereinstimmungen.

Die so ermittelte Analysennachweisgrenze basiert auf ggf. vorhandenen Kontaminationen der verwendeten Aufschlusslösungen und Reagenzien, berücksichtigt allerdings noch nicht evtl. auf dem Filtermaterial bereits vorhandene Metallgehalte. Diese wurden aus Aufschluss und Analyse von unbelegten Filtern (Filterblindproben) ermittelt und der Mittelwert dieser Ergebnisse von den Analysenwerten der belegten Filter abgezogen. Aus der Standardabweichung  $\sigma_c$  der Gehalte in den Filterblindproben resultiert die Verfahrensnachweisgrenze<sup>23</sup> gemäß:

$$NWG_{\text{Verfahren}} = 3 \cdot \sigma_c$$

Während des Messprogramms kamen überwiegend Filter des Typs QF20 der Fa. Schleicher & Schüll (S & S) zum Einsatz. In der 2. Messphase musste jedoch, bedingt durch die Übernahme von S & S durch Whatman, auf einen anderen Filtertyp ausgewichen werden. Zunächst wurden die von Whatman vertriebenen und vom Hersteller als gleichwertig bezeichneten Quarzfaserfilter des

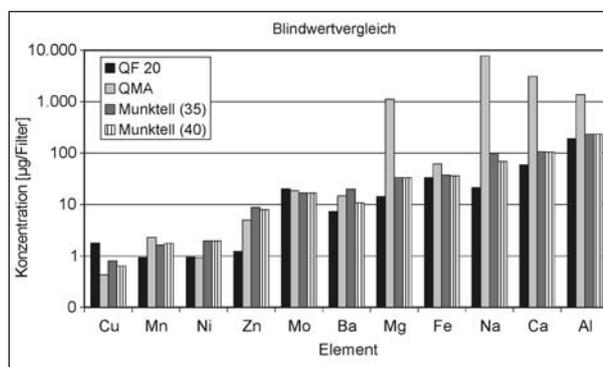


Bild 40: Blindwerte für die im Projekt verwendeten Filtertypen

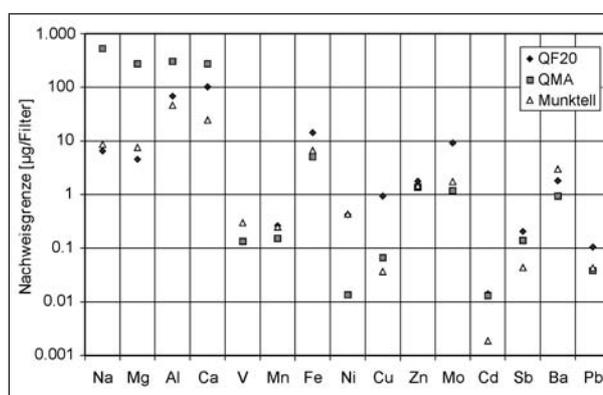


Bild 41: Metallanalysen: Verfahrensnachweisgrenzen (3-fache Standardabweichung der Blindwertschwankungen) für die verwendeten Filtertypen

Typs QMA verwendet. Blindwertanalysen zeigten jedoch, dass dieser Typ erheblich höhere Gehalte an Natrium, Calcium, Magnesium und Aluminium aufweist als die QF20-Filter. Somit wurde schließlich auf den Filtertyp Munktell 360 ausgewichen. Bild 40 zeigt die mittleren Blindwerte für die Filtertypen QF20, QMA sowie zwei Chargen der Munktell-Filter.

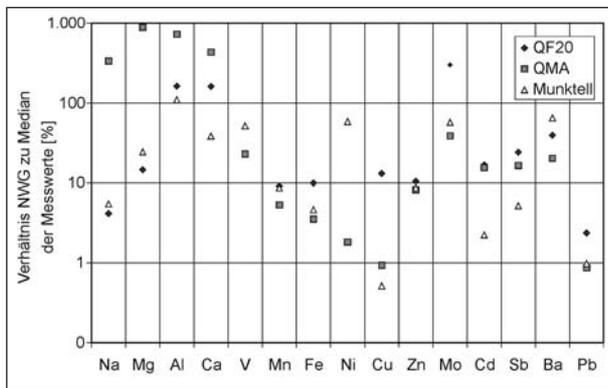
Entsprechend den unterschiedlich hohen Blindwerten und den damit zwangsläufig auch einhergehenden unterschiedlichen Blindwert-Varianzen unterscheiden sich auch die Verfahrensnachweisgrenzen für die einzelnen Filtertypen. Den Vergleich zeigt Bild 41. Zu hohe Nachweisgrenzen können

<sup>20</sup> vkm: Vehikel-km

<sup>21</sup> Für die PMF-Modellierung wurde als eine die Unsicherheit der Messwerte charakterisierende Größe das 90-Perzentil dieser relativen Standardabweichungen eingesetzt.

<sup>22</sup> Kleinste Konzentration, die zu einem vom Grundrauschen des Detektors noch unterscheidbaren Signal führt

<sup>23</sup> Kleinste Konzentration, die sich noch von den durch Blindaufschlusslösungen erzeugten Signalen unterscheiden lässt



**Bild 42:** Metallanalysen: Verhältnis der Verfahrens-Nachweisgrenzen zum Median der blindwertkorrigierten Messwerte für die verwendeten Filtertypen

dazu führen, dass sich der Gehalt der jeweiligen Komponente in Proben mit geringer Partikelmenge nicht mehr bestimmen lässt. In Bild 42 ist daher das Verhältnis der Nachweisgrenze zum Median aller Messwerte dargestellt. Bei einem Verhältniswert von 100 % lägen somit 50 % aller Messwerte unterhalb der jeweiligen Nachweisgrenze. Für die überwiegend verwendeten QF20- und Munktell-Filter sind zumeist geringe Verhältniswerte zu verzeichnen. Lediglich im Fall von Aluminium erwiesen sich alle Filtertypen als problematisch, auch bei Calcium und Molybdän wird der 100%-Wert durch die QF-0-Nachweisgrenzen überschritten.

### Ionnanalyse mittels Ionenchromatographie

Die angewandten Verfahren sind angelehnt an die Europäische Norm ISO 10304-1 zur Bestimmung von verschiedenen Anionen mittels Ionenchromatographie; die Probenvorbereitung wurde der Problemstellung entsprechend angepasst.

#### Probenvorbereitung

Es wurden jeweils die beiden Filterscheiben, die zu einer Probe gehören, in Kunststoffröhrchen (Greiner) gegeben und mit 10 mL Reinstwasser (ELGA, s. o.) versetzt. Die Röhrchen wurden fest verschlossen und für 5 Stunden ins Ultraschallbad gegeben. Dabei wurden sie immer wieder geschüttelt, um eine gleichmäßige Extraktion zu gewährleisten. Damit sich die Proben durch die Beschallung nicht erwärmen, wurde das Bad ständig mit Eis temperiert.

Der entstandene Filterbrei wurde in eine Spritze gefüllt und durch eine 0,24-µm-Filterkartusche in neue Kunststoffröhrchen gepresst. Das Filtrat wurde zum Vermessen in Glas-GC-Vials gegeben.

Die Proben wurden bis zur Messung mittels Ionenchromatographie bei 4 °C gelagert.

Ebenso wie die Filterproben wurden Blindproben nur mit Reinstwasser hergestellt.

### Ionenchromatographische Analyse

Die Analyse der Anionen Nitrat, Sulfat und Chlorid sowie des Kations Ammonium erfolgte ionenchromatographisch durch Geräte der Firma Dionex:

Probenwechsler	ASI-100
Pumpe	GP 40
Säulenofen	UltiMate 3000
Anionensäule/Vorsäule	IonPac AS14A 4 x 250 mm/ AG14A 4 x 50 mm
Kationensäule/Vorsäule	IonPac CS16 5 x 250 mm/ CG16 5 x 50mm
Anionensuppressor	ASRS-ULTRA II 4 mm
Kationensuppressor	CSRS-ULTRA II 4 mm
Detektor	ED-40 Electrochemical Detector
Flussmittel Anionen	8 mmol/L Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 1 mmol/L NaHCO <sub>3</sub>
Flussmittel Kationen	30 mmol/L Methansulfonsäure
Flussrate	1 mL/min
Säulentemperatur	30 °C Anionen, 40 °C Kationen
Software	Chromeleon 6.8

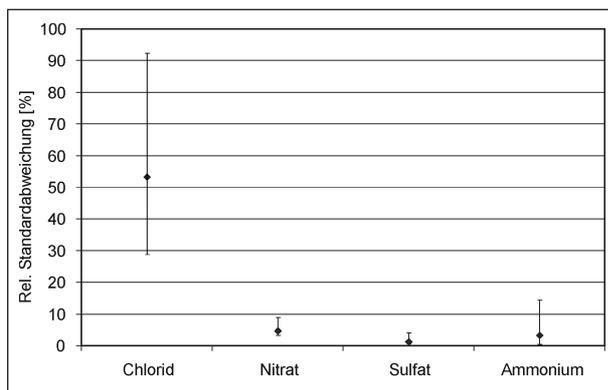
Die Kalibration erfolgte mit 10 Standardproben, die mittels 1-g/L-Standardlösungen und Reinstwasser hergestellt wurden (Ammonium-Ionenchromatographie-Standardlösung der Firma Fluka, Anionen-Mehrelementstandard II (Chlorid, Nitrat und Sulfat) der Firma Merck).

Die Ergebnisse der Analysen in mg/L wurden in Absolutgehalte pro 2 Filterscheiben in µg und anschließend mit dem Flächenverhältnis zum Gesamtfilter auf den Gehalt in µg/Filter umgerechnet.

### Statistische Kenngrößen

#### Standardabweichungen

Da im Falle der Ionenchromatographie nicht wie bei der ICP-MS Mehrfachmessungen durchgeführt wurden (ein Lauf dauerte etwa 20 min für die Anionen, 25 min für das Ammonium), konnten keine Analysen-Standardabweichungen für die Einzelmessungen angegeben werden; die Gerätesoftware des Ionenchromatographen liefert allerdings



**Bild 43:** Ionenchromatographie: Wiederholstandardabweichungen (relativ) für Doppelbestimmungen derselben Filterproben

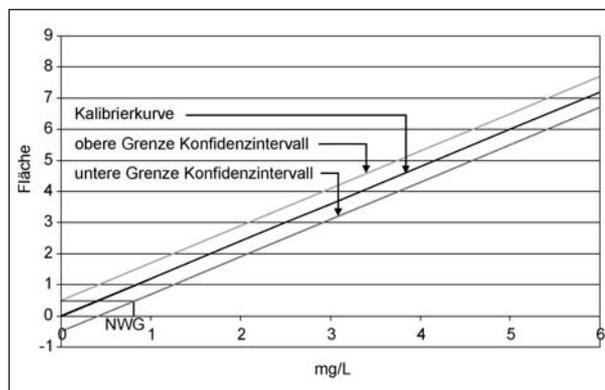
auf der Basis der wiederholt vermessenen Standardlösungen Konfidenzintervalle<sup>24</sup> für eine Wahrscheinlichkeit von 99 %, die als Maß für die gerätebedingte Messunsicherheit dienen.

Wie bei den Spurenmetallen wurden auch für die ionischen Komponenten einige Filter für Doppelbestimmungen verwendet. Bild 43 zeigt die Mediane, Minimum- und Maximumwerte der dabei erhaltenen Ergebnisse. Während die Abweichungen für Ammonium, Nitrat und Sulfat als sehr gering einzustufen sind, zeigten die Überprüfungen für Chlorid eine erheblich höhere Varianz.

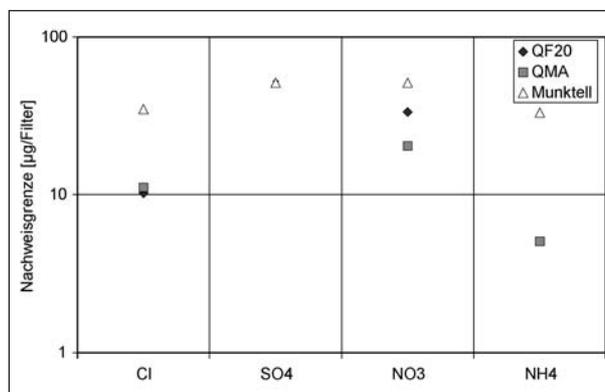
### Nachweisgrenzen

Die analytischen Nachweisgrenzen NWGANalyse wurden aus den Kalibrierkurven gemäß der in Bild 44 dargestellten Weise berechnet.

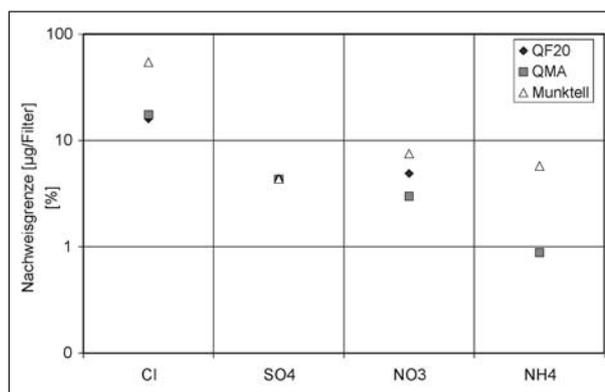
In Blindfiltern konnten, abgesehen von vereinzelt Werten, zumeist keine Gehalte oberhalb der Nachweisgrenzen nachgewiesen werden. Somit liegt bei den Ionen die Verfahrensnachweisgrenze nur geringfügig über der analytischen Nachweisgrenze. Die Unterschiede der in Bild 45 gezeigten Nachweisgrenzen beruhen daher weitgehend auf den unterschiedlichen Analysenzeitpunkten (unterschiedliche Geräteperformance, z. B. bedingt durch Säulenalterung). Das Verhältnis der Nachweisgrenzen zum Median der Analysendaten indiziert lediglich für Chlorid eine signifikante Zahl von Proben mit nicht nachweisbaren Gehalten.



**Bild 44:** Schematisches Beispiel einer Kalibrierfunktion der Ionenchromatographie



**Bild 45:** Ionenchromatographie: Verfahrensnachweisgrenzen (3fache Standardabweichung der Blindwertschwankungen) für die verwendeten Filtertypen



**Bild 46:** Ionenchromatographie: Verhältnis der Verfahrensnachweisgrenzen zum Median der blindwertkorrigierten Messwerte für die verwendeten Filtertypen

### Thermographische EC- und OC-Analysen

Die Analyse auf elementarem und organischem Kohlenstoff erfolgte nach der infrarotspektrometrischen Methode gem. Richtlinie VDI 2465 Blatt 2 (Thermographische Bestimmung des Elementaren Kohlenstoffes nach Thermodesorption des Organischen Kohlenstoffes).

<sup>24</sup> Der dieser Berechnung zugrunde liegende Algorithmus ist aufwändig und wird daher hier nicht wiedergegeben.

## Durchführung der Analysen

Die Teilprobe wurde in einem Quarzglas-Schiffchen in den temperaturprogrammierten Analyseofen eingebracht und jeweils nacheinander, wie nachfolgend beschrieben, auf OC bzw. EC analysiert. Bei der Analyse wurde mindestens eine Doppelbestimmung durchgeführt (2 Teilproben vom selben Filter).

Im ersten Teil der Analyse (OC-Bestimmung) werden in einer inerten Atmosphäre (100 % Helium oder Stickstoff) Kohlenstoffverbindungen verdampft bzw. pyrolysiert. Der im Katalysatorofen befindliche Katalysator setzt die freigesetzten Kohlenwasserstoffe zu  $\text{CO}_2$  um, welches im IR-Detektor gemessen wird. Dazu wird die Temperatur des IR-Ofens mit einem Temperaturprogramm von 80 °C auf 620 °C erhöht. Die unter diesen Bedingungen erfassten Kohlenstoffverbindungen werden in der Fraktion „Organischer Kohlenstoff (OC)“ zusammengefasst.

Zur EC-Analyse wird bei einer Temperatur von 300 °C vom Inertgasstrom auf reinen Sauerstoff umgeschaltet. Dann wird die Temperatur des IR-Ofens mittels Temperaturprogramms von 300 °C auf 700 °C erhöht. Der noch auf dem Filter befindliche „elementare Kohlenstoff (EC)“ wird dadurch kontrolliert zu  $\text{CO}_2$  verbrannt, welches dann über IR-Detektion erfasst wird.

Die geräteinterne Software integriert die jeweiligen Signale und gibt die Gehalte der Teilproben in  $\mu\text{g}/\text{Teilprobe}$  aus, die anhand einer zuvor erstellten und in der Software gespeicherten Kalibrierfunktion errechnet werden.

Aus dem Ergebnis für die Teilprobe wird die Kohlenstoffmenge des gesamten Filters rechnerisch über die Flächenverhältnisse Teilprobe/Gesamtfilter ermittelt, wobei die bestaubte Gesamtfläche durch die Geometrie des Filterhalters definiert ist.

## Methodenkalibrierung

Die Kalibrierung dieses Verfahrens und des Gerätes erfolgt mit einer Oxalsäure-Stammlösung der Konzentration  $\beta = 0,10$  Gew.-% Kohlenstoff für einen Messbereich von 5,0-50,0  $\mu\text{g C}$  absolut. Dazu werden in Doppelbestimmungen jeweils 5, 10, 15, 20, 25, 35, 40, 45 und 50  $\mu\text{l}$  der Oxalsäure-Stammlösung auf ausgestanzte, vorgeglühte Quarzfilterscheiben mit dem gleichen Durchmesser wie bei den Teilproben aufgetropft. Zur Bestimmung

eines etwaigen Lösungsblindwertes werden anstelle der Oxalsäurelösung 50  $\mu\text{l}$  destilliertes Wasser verwendet. Die Auswertung der Messung erfolgt mit Hilfe der Software des thermographischen Kohlenstoffanalysators im Kalibriermodus.

Die Kalibrierfunktion wird nach jedem längeren Gerätestillstand sowie bei Anzeichen für eine Dejustierung aufgenommen. Während einer Messserie erfolgt wiederholt eine Prüfung der Justierung durch Vermessen einer einzelnen Kalibrierprobe mit 50,0  $\mu\text{g C}$  abs.

Zur zusätzlichen Qualitätskontrolle wird zu Beginn einer jeden Messreihe und nach jeder 10. Probe 25  $\mu\text{l}$  (entspricht 25  $\mu\text{g C}$ ) einer Ethylenglycol-Stammlösung (0,1 Gew.-%) vermessen.

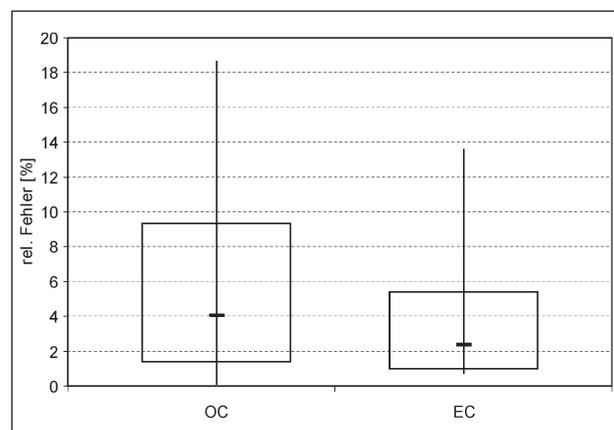
## Statistische Kenngrößen

### Standardabweichungen

Die aus Doppelbestimmungen von belegten Filtern ( $N = 28$ ) resultierenden relativen Fehler (= Standardabweichungen) sind im Box-Plot-Diagramm in Bild 47 dargestellt.

### Nachweis- und Bestimmungsgrenze

In ausgeglühten Quarzfaserfiltern sind keine nachweisbaren Kohlenstoffmengen vorhanden. Die Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen werden daher aus der Variabilität der Kalibrierfunktion ermittelt. Sie betragen typischerweise 1  $\mu\text{g C}$  (NWG) bzw. 3.3  $\mu\text{g C}$  (BG) absolut. Bezogen auf ein 14 mm Filter-Stanzstück, den Sammelfilter mit einer belegten Fläche von 139 mm Durchmesser und ein Pro-



**Bild 47:** Box-Whisker-Plot der relativen Fehler aus Doppelbestimmungen für OC und EC; Balken: Median, Box: 10- bzw 90-Perzentil, Whisker: Minimal- bzw. Maximalwerte

benvolumen von 720 m<sup>3</sup> entsprechen diese Werte einer NWG von 0,14 µg/m<sup>3</sup> bzw. einer BG von 0,48 µg/m<sup>3</sup>.

### NCBA (N-Cyclohexyl-2-benzothiazolamin)

Für die NCBA-Analytik wurde vom Institut für Umweltanalytik an der Universität Duisburg-Essen in Anlehnung an bestehende Arbeitsvorschriften die nachfolgende GC-MS-Methode ausgearbeitet:

### Probenaufarbeitung

Das zu analysierende Feststoffmaterial (Filter- bzw. Reifenproben) wird einer Mikrowellenextraktion (Mars 5, CEM GmbH, Kamp-Lintfort) mit 15 ml Toluol/Methanol (6:4) unterzogen<sup>25</sup>. Anschließend Zugabe von 2 x 15 ml H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (0,18 molar) und Zentrifugation (5 Min.) 2.000 U<sup>-1</sup>. Sammeln der wässrigen Extrakte und Zugabe von 1,3 ml NaOH (10,7 molar/pH > 12). Die basischen Extrakte wurden 2mal mit Dichlormethan ausgeschüttelt, und das Dichlormethan bis auf etwa 0,5 ml eingeeengt. Das restliche Lösungsmittel wurde mit einem Argonstrom abgeblasen. Der Rückstand wurde in 100 µl Isooctan aufgenommen und in ein 0,5-ml-GC-Auto-sampler-Vial überführt.

### Messung

Die Messung erfolgt nach Zugabe eines internen Standards (D11-NCBA) mittels GC-MS unter Verwendung einer 30-m HP-MS-5-Trennkapillare Agilent Technologies, 0,25 mm iD, 250 µm Schichtdicke). Als Trägergas wurde Helium verwendet. Detektiert werden die Sekundärionenmassen mit m/z von 232 und 150.

### Nachweisgrenze

Die Nachweisgrenze, basierend auf der Analyse von ausgeglühten Leerfiltern, liegt bei 0,4 ng/µl Injektionslösung bzw. bei 4 ng/Probe.

## 6 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

An der Autobahn A 61 wurden über einen Zeitraum von mehr als einem Jahr in zwei Messabschnitten (01.09.2005 bis 31.03.2006 und 15.06.2006 bis 07.01.2007) Luv-Lee Messungen von Partikelkonzentrationen (PM<sub>10</sub>, PM<sub>1</sub> kontinuierlich und diskontinuierlich) und Stickstoffoxiden durchgeführt. Anhand von am Standort aufgezeichneten meteorologischen Daten wurden für trockene Witterung Situationen mit Windrichtung quer zur Fahrbahn ausgewählt und aus der gemessenen Zusatzbelastung mittels der NO<sub>x</sub>-Tracer-Methode die in Tabelle 22 wiedergegebenen Emissionsfaktoren ermittelt.

Die Werte für PM<sub>10</sub> sind gut vergleichbar mit Ergebnissen anderer Studien [GEHRIG et al., 2003] bzw. im Fall von PM<sub>1</sub> mit den mittels HBEFA errechneten Emissionsfaktoren für die vorliegende Verkehrssituation (Autobahn ohne Geschwindigkeitseinschränkung, DTV 72.000, 20 % Lkw-Anteil). Deutliche Unterschiede ergaben sich für die auf Messung beruhenden Emissionsfaktoren der Fraktion PM<sub>1-10</sub> im Vergleich zu den Standard-Emissionsfaktoren nach [DÜRING und LOHMEYER, 2004]. Letztere führen für die vorliegende Verkehrssituation zu einer Überschätzung der Emission von mehr als einem Faktor 2.

Zur Ermittlung spezifischer Emissionsfaktoren für die diffusen Emissionsprozesse Bremsabrieb, Reifenabrieb und Straßenabrieb/Aufwirbelung wurde die multivariate statistische Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF) auf die in ausgewählten PM<sub>10</sub>-Filterproben (N = 68) gemessenen chemischen Inhaltsstoffe (insgesamt 22 Stoffe) angewendet. Bei der Analyse des vollständigen Datensatzes konnten acht Faktoren aufgelöst werden, von denen einige nur geringfügige Zusatzbelastungen aufwiesen und

	Kfz* [g/vkm] <sup>26</sup>	Pkw* [g/km*Pkw]	Lkw* [g/km*Lkw]	Kfz** [g/vkm] (Analysentage)
EF PM <sub>10</sub>	0,067	0,033	0,187	0,066
EF PM <sub>1</sub>	0,039	0,017	0,119	0,030
EF PM <sub>1-10</sub>	0,027	0,016	0,068	0,035
* bestimmt aus den Halbstundenwerten (TEOM), mittlerer Lkw-Anteil 28 %				
** bestimmt aus den Tageswerten (Filter), mittlerer Lkw-Anteil 20 %				

Tab. 22: Emissionsfaktoren für PM<sub>x</sub> (Autobahn, DTV 72.000 Fzg/d, trockene Witterung)

<sup>25</sup> Temperaturprogramm: in 10 Minuten auf 120 °C, Haltezeit

<sup>26</sup> vkm: Vehikel-km

somit dem Hintergrundaerosol zuzuordnen waren. Die mit diesen Faktoren hauptsächlich assoziierten Stoffe wurden daher für die weiteren Auswertungen aus der Datenmatrix entfernt. Da sich aus dem Verhältnis Gesamtkohlenstoff zu  $PM_{10}$  auf das Abgas als dominierende Kohlenstoff-Quelle in der Feinfraktion schließen ließ, wurden ebenfalls EC und OC ( $PM_{10}$ ) nicht weiter berücksichtigt.

Mit dem so eingeschränkten Datensatz konnten vier Faktoren quantifiziert werden, die aufgrund der in ihnen zusammengeführten Komponenten als See-/Tausalz- (Na, Cl), Bremsabrieb- (Sb, Fe, Cu, Ba, EC und  $OM_{1-10}$ ), Reifenabrieb (Zn, Mo, EC und  $OM_{1-10}$ ) und Aufwirbelung/Straßenabrieb-Faktor (Al, Ca, Fe, EC und  $OM_{1-10}$ ) identifiziert wurden.

Die prozentualen Anteile der Faktoren an der gemessenen mittleren  $PM_{10}$ -Zusatzbelastung ( $3,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) wurden ermittelt und mit dem  $PM_{10}$ -Emissionsfaktor von  $0,066 \text{ g}/\text{vkm}$  multipliziert, um die in Tabelle 23 aufgeführten, quellprozessspezifischen Emissionsfaktoren zu erhalten. Dabei wurde der See-/Tausalzfaktor differenziert für die Periode mit Winterdienst, in der die wesentliche Zusatzbelastung auftrat, und die übrige Zeit ohne Zusatzbelastung behandelt.

Diese, erstmals für die Verkehrssituation „Frei angeströmte Autobahn“ mittels multivariater Faktoranalyse ermittelten Emissionsfaktoren waren im Rahmen der erzielbaren Genauigkeit mit Werten von Innerorts- bzw. Tunnelstudien [RAUTTERBERG-WULFF, 2000, LUHANA et al., 2004] vergleichbar, lagen dabei aber z. T. am unteren Ende des berichteten Wertespektrums. Das Verhältnis von motorischen zu nicht-motorischen Emissionen ergab sich zu ca. 60:40. Bei Winterdienst mit Tau-

Quellprozess	Anteil an $PM_{10}$ -Gesamtemission [%]	Emissionsfaktor [ $\text{mg}/\text{vkm}$ ]
Bremsabrieb	14	9
Reifenabrieb	3	2
Aufwirbelung, Straßenabrieb	7	5
Motorische Emissionen	57	38
Nicht durch PMF zugeordnet, überwiegend Aufwirbelung	6-19	3-12
Tausalz-Aufwirbelung (nur bei Winterdienst)	13	9

**Tab. 23:**  $PM_{10}$ -Emissionsfaktoren für verkehrsbedingte Quellprozesse (Autobahn, DTV 72000 Fzg/d, 20 % Lkw-Anteil, trockene Witterung)

salzaufwirbelung erhöhten sich die nicht-motorischen Emissionen signifikant, und das Verhältnis ist dann eher mit 50:50 zu beziffern. Diese Resultate bestätigen damit die Signifikanz der nicht-motorischen Partikelemissionen auch für den Autobahnverkehr.

## 7 Literatur

- ABU-ALLABAN, M., GILLIES, J. A., GERTLER, A. W., CLAYTON, R., PROFFITT, D. (2002): Tailpipe, resuspended road dust, and brake wear emission factors from on-road vehicles. *Atmospheric Environment*, Vol. 37 (1), pp 5283-5293
- BÄCHLIN, W., FRANTZ, H., LOHMEYER, A., DREISEIDLER, A., BAUMBACH, G., THEURER, W., HEITS, B., MÜLLER, W. J., GIESEN, K.-P.: Feinstaub und Schadgasbelastungen in der Göttinger Straße, Hannover. Bericht an das Niedersächsische Landesamt für Ökologie, Hannover, April 2003
- BAEKKEN, T. (1993): Environmental effects of asphalt and tyre wear by road traffic. Nordisk Seminar-og Arbejdsrapporter 1992:628. Copenhagen, Denmark. In Norwegisch
- CADLE, S. H., WILLIAMS, R. L. (1979): Rubber Chemistry and Technology. Vol. 51 (7)
- CADLE, S. H., MULAWA, P., HUNSANGER, E. C., NELSON, K., RAGAZZI, R. A., BARRETT, R., GALLAGHER, G. L., LAWSON, D. R., KNAPP, K., SNOW, R. (1999): Light-duty motor vehicle exhaust particulate matter measurement in the Denver, Colorado, Area. *J. Air Waste Manage. Assoc.* Vol. 49, p164
- Carbotech (1999):  $PM_{10}$ -Emissionsfaktoren: Mechanischer Abrieb im Offroad-Bereich; Arbeitsunterlage 17 im Auftrag des BUWAL, Basel, Dezember. Zit. in LUKEWILLE et al. (2001)
- CHA, S., CARTER, P., BRADOW, R. L. (1983): Simulation of automobile brake wear dynamics and estimation of emissions. SAE Transactions Paper 831036, Society of Automotive Engineers, Warrendale, Pennsylvania
- DÜRING, I., JACOB, J., LOHMEYER, A., LUTZ, M., REICHENBÄCHER, W. (2002): Estimation of the „non exhaust pipe“  $PM_{10}$  emissions of streets for practical traffic air pollution modelling.

- 11<sup>th</sup> International Symposium Transport and air pollution in Graz. VKM-TH'D, University of Technology. Proceedings, Volume 1, 309-316
- DÜRING, I., LOHMEYER, A. (2001): Validierung von PM<sub>10</sub>-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen. Bericht für Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin, und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden
- DÜRING, I., LOHMEYER, A. (2004): Modellierung nicht motorbedingter PM<sub>10</sub>-Emissionen von Straßen. KRdL-Expertenforum Staub und Staubinhaltsstoffe 10/11. November 2004. KRdL-Schriftenreihe 33, 131-138
- EEA (2003): Emission Inventory Guidebook, SNAP Code 070700
- EMPA (2000): siehe HÜGLIN, C. et al.
- FAUSER, P. (1999): Particulate air pollution with emphasis on traffic generated aerosols. Riso-R-1053(EN), Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark
- GARG, B. D., CADLE, S. H., MULAWA, P. A., GROBLICK, P. J., LAROO, C., PARR, G. A. (2000): Brake wear particulate matter emissions. *Environmental Science & Technology*, Vol. 34 (21), pp 4463
- GEHRIG, R., HILL, M., BUCHMANN, B., IMHOF, D., WEINGARTNER, E., BALTENSBERGER, U.: Verifikation von PM<sub>10</sub>-Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. S. Bericht von PSI und EMPA zum Forschungsprojekt ASTRA 2000/415, Dübendorf und Villingen, Juli 2003
- HÜGLIN, C.: Anteil des Straßenverkehrs an den PM<sub>10</sub>- und PM<sub>2.5</sub>-Immissionen. Bericht C4 des NFP41 „Verkehr und Umwelt“ im Auftrag vom Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern 2000
- IJIMA, A., SATO, K., YANO, K., TAGO, H., KATO, M., KIMURA H., FURUTA, N. (2007): Particle size and composition distribution analysis of automotive brake abrasion dusts for the evaluation of antimony sources of airborne particulate matter *Atmospheric Environment*, Vol. 41, 4908-4919
- KETZEL, M., OMSTEDT, G., JOHANSSON, Chr., DÜRING, I., GIDHAGEN, L., LOHMEYER, A., BERKOWICZ, R., WÄHLIN, P.: Estimation and validation of PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> exhaust and non-exhaust emission factors for street pollution modelling. 5<sup>th</sup> Symposium on Urban Air Quality (UAQ5), March 2005
- KOSCHUTNIG, W., EHRENBURG, C., HÖFLINGER, W. (2004): Untersuchung diffuser Staubemissionen an befestigten Straßen in Wien; Bestimmung des Staubbelages (sL-Wert) vor und nach der Straßenreinigung. Bericht an den Magistrat der Stadt Wien MA 22 – Umweltschutz und MA 48 – Abfallwirtschaft, Straßenreinigung und Fuhrpark, Wien Juni 2004
- LOHMEYER, A., DÜRING I., BÄCHLIN, W. (2003): Quantifizierung der PM<sub>10</sub>-Emissionen durch Staubaufwirbelung und Abrieb von Straßen auf Basis vorhandener Messdaten. Ministerium für Umwelt und Verkehr, Baden-Württemberg, Report Februar 2003
- LUHANA, L., SOKHL, R., WARNER, L., MAO, H., BOULTER, P., McCRAE, I., WRIGHT, J., OSBORN, D.: Characterisation of Exhaust Particulate Emissions from Road Vehicles (PARTICULATES), October 2004
- NICHOLSON, K. W. (2000): Traffic generated resuspension as a source of airborne particles. DETR Workshop on Particles Research, London, 24-25 May
- NILU (1996): Norwegian Institute for Air Research Annual Report 1996
- PAATERO, P. (1997): Least squares formulation of robust non-negative factor analysis. *Chemometrics and Intelligent laboratory Systems* 37 (1997), 23-35
- PAATERO, P. (1999): The Multilinear Engine – a table-driven, least squares program for solving multilinear problems, including the n-way parallel factor analysis model. *Journal of Computational and Graphical Statistics*, 1 (1999), 854-888
- RAUTERBERG-WULFF, A. (1999): Determination of emission factors for tyre wear particles up to 10 µm by tunnel measurements. Proceedings of 8<sup>th</sup> International Symposium Transport and Air Pollution
- RAUTERBERG-WULFF, A. (2000): Untersuchung über die Bedeutung der Staubaufwirbelung für die PM<sub>10</sub>-Immission an einer Hauptverkehrs-

straße. Im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie, TU Berlin, Fachgebiet Luftreinhaltung, Januar 2000

REDDY, C. M., QUINN, J. G. (1997): Environmental chemistry of benzothiazoles derived from rubber. *Environmental Science and Technology*, Vol. 31, pp 2847-2853

SIEKER, F., GROTTKER, M. (1988): Beschaffenheit von Straßenoberflächenwasser bei mittlerer Verkehrsbelastung. Bericht der Universität Hannover, Institut für Wasserwirtschaft, Hydrologie und landwirtsch. Wasserbau, Juni 1987, Forschung Straßenbau und Straßenverkehrstechnik, Heft 530, 1988. Hrsg. BMV, Abt. Straßenbau, Bonn

UBA (2004): Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Version 2.1/April 2004. Dokumentation zur Version Deutschland erarbeitet durch INFRAS AG Bern/Schweiz in Zusammenarbeit mit IFEU Heidelberg. Hrsg: Umweltbundesamt Berlin

UMEG: PM<sub>10</sub>-Messungen an der B 10; zit. in DÜRING und LOHMEYER, 2004

USEPA (1995): Compilation of Air Pollutant Emission Factors, USEPA Report AP-42, Vol. I, 5<sup>th</sup> Edition

USEPA (2005): EPA PMF 1.1 User's Guide. <http://www.epa.gov/heads/products/pmf/pmf.htm>

WESTERLUND, K.-G. (2001): Metal emissions from Stockholm traffic – wear of brake linings. The Stockholm Environment and Health Protection Administration, 100 64, Stockholm, Sweden

## Schriftenreihe

### Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen

#### Unterreihe „Verkehrstechnik“

### 2003

V 100: Verkehrsqualität unterschiedlicher Verkehrsteilnehmerarten an Knotenpunkten ohne Lichtsignalanlage Brilon, Miltner	€ 17,00
V 101: Straßenverkehrszählung 2000 – Ergebnisse Lensing	€ 13,50
V 102: Vernetzung von Verkehrsbeeinflussungsanlagen Kniß	€ 12,50
V 103: Bemessung von Radverkehrsanlagen unter verkehrstechnischen Gesichtspunkten Falkenberg, Blase, Bonfranchi, Cossè, Draeger, Kautzsch, Stapf, Zimmermann	€ 11,00
V 104: Standortentwicklung an Verkehrsknotenpunkten – Randbedingungen und Wirkungen Beckmann, Wulfhorst, Eckers, Klönne, Wehmeier, Baier, Peter, Warnecke	€ 17,00
V 105: Sicherheitsaudits für Straßen international Brühning, Löhe	€ 12,00
V 106: Eignung von Fahrzeug-Rückhaltesystemen gemäß den Anforderungen nach DIN EN 1317 Ellmers, Balzer-Hebborn, Fleisch, Friedrich, Keppler, Lukas, Schulte, Seliger	€ 15,50
V 107: Auswirkungen von Standstreifenumnutzungen auf den Straßenbetriebsdienst Moritz, Wirtz	€ 12,50
V 108: Verkehrsqualität auf Streckenabschnitten von Hauptverkehrsstraßen Baier, Kathmann, Baier, Schäfer	€ 14,00
V 109: Verkehrssicherheit und Verkehrsablauf auf b2+1-Strecken mit allgemeinem Verkehr Weber, Löhe	€ 13,00

### 2004

V 110: Verkehrsentwicklung auf Bundesfernstraßen 2001 – Jahresauswertung der automatischen Dauerzählstellen Laffont, Nierhoff, Schmidt, Kathmann	€ 22,00
V 113: Car-Sharing in kleinen und mittleren Gemeinden Schweig, Keuchel, Kleine-Wiskott, Hermes, van Acken	€ 15,00
V 114: Bestandsaufnahme und Möglichkeiten der Weiterentwicklung von Car-Sharing Loose, Mohr, Nobis, Holm, Bake	€ 20,00
V 115: Verkehrsentwicklung auf Bundesfernstraßen 2002 – Jahresauswertung der automatischen Dauerzählstellen Kathmann, Laffont, Nierhoff	€ 24,50
V 116: Standardisierung der Schnittstellen von Lichtsignalanlagen – Zentralrechner/Knotenpunktgerät und Zentralrechner/Ingenieurarbeitsplatz Kroen, Klod, Sorgenfrei	€ 15,00
V 117: Standorte für Grünbrücken – Ermittlung konfliktreicher Streckenabschnitte gegenüber großräumigen Wanderungen jagdbarer Säugetiere Surkus, Tegethof	€ 13,50

V 118: Einsatz neuer Methoden zur Sicherung von Arbeitsstellen kürzerer Dauer Steinauer, Maier, Kemper, Baur, Meyer	€ 14,50
--	---------

### 2005

V 111: Autobahnverzeichnis 2004 Kühnen	€ 21,50
V 119: Alternative Methoden zur Überwachung der Parkdauer sowie zur Zahlung der Parkgebühren Boltze, Schäfer, Wohlfarth	€ 17,00
V 120: Fahrleistungserhebung 2002 – Inländerfahrleistung Hautzinger, Stock, Mayer, Schmidt, Heidemann	€ 17,50
V 121: Fahrleistungserhebung 2002 – Inlandsfahrleistung und Unfallrisiko Hautzinger, Stock, Schmidt	€ 12,50
V 122: Untersuchungen zu Fremdstoffbelastungen im Straßenseitenraum Beer, Herpetz, Moritz, Peters, Saltzmann-Koschke, Tegethof, Wirtz	€ 18,50
V 123: Straßenverkehrszählung 2000: Methodik Lensing	€ 15,50
V 124: Verbesserung der Radverkehrsführung an Knoten Angenendt, Blase, Klöckner, Bonfranchi-Simović, Bozkurt, Buchmann, Roeterink	€ 15,50
V 125: PM <sub>10</sub> -Emissionen an Außererststraßen – mit Zusatzuntersuchung zum Vergleich der PM <sub>10</sub> -Konzentrationen aus Messungen an der A1 Hamburg und Ausbreitungsberechnungen Düring, Bösing, Lohmeyer	€ 17,00
V 126: Anwendung von Sicherheitsaudits an Stadtstraßen Baier, Heidemann, Klemps, Schäfer, Schuckließ	€ 16,50
V 127: Verkehrsentwicklung auf Bundesfernstraßen 2003 Fitschen, Koßmann	€ 24,50
V 128: Qualitätsmanagement für Lichtsignalanlagen – Sicherheitsüberprüfung vorhandener Lichtsignalanlagen und Anpassung der Steuerung an die heutige Verkehrssituation Boltze, Reusswig	€ 17,00
V 129: Modell zur Glättewarnung im Straßenwinterdienst Badelt, Breitenstein	€ 13,50
V 130: Fortschreibung der Emissionsdatenmatrix des MLuS 02 Steven	€ 12,00
V 131: Ausbaustandard und Überholverhalten auf 2+1-Strecken Friedrich, Dammann, Irzik	€ 14,50
V 132: Vernetzung dynamischer Verkehrsbeeinflussungssysteme Boltze, Breser	€ 15,50

### 2006

V 133: Charakterisierung der akustischen Eigenschaften offener Straßenbeläge Hübelt, Schmid	€ 17,50
V 134: Qualifizierung von Auditoren für das Sicherheitsaudit für Innerortsstraßen Gerlach, Kesting, Lippert	€ 15,50
V 135: Optimierung des Winterdienstes auf hoch belasteten Autobahnen Cypra, Roos, Zimmermann	€ 17,00
V 136: Erhebung der individuellen Routenwahl zur Weiterentwicklung von Umlegungsmodellen Wermuth, Sommer, Wulff	€ 15,00

- V 137: PM<sub>x</sub>-Belastungen an BAB  
Baum, Hasskelo, Becker, Weidner € 14,00
- V 138: Kontinuierliche Stickoxid (NO<sub>x</sub>)- und Ozon (O<sub>3</sub>)-Messwertaufnahme an zwei BAB mit unterschiedlichen Verkehrsparametern 2004  
Baum, Hasskelo, Becker, Weidner € 14,50
- V 139: Wirksamkeit und Wirtschaftlichkeit von Taumittelsprühanlagen  
Wirtz, Moritz, Thesenvitz € 14,00
- V 140: Verkehrsentwicklung auf Bundesfernstraßen 2004 – Jahresauswertung der automatischen Dauerzählstellen  
Fitschen, Koßmann € 15,50
- V 141: Zählungen des ausländischen Kraftfahrzeugverkehrs auf den Bundesautobahnen und Europastraßen 2003  
Lensing € 15,00
- V 142: Sicherheitsbewertung von Maßnahmen zur Trennung des Gegenverkehrs in Arbeitsstellen  
Fischer, Brannolte € 17,50
- V 143: Planung und Organisation von Arbeitsstellen kürzerer Dauer an Bundesautobahnen  
Roos, Hess, Norkauer, Zimmermann, Zackor, Otto € 17,50
- V 144: Umsetzung der Neuerungen der StVO in die straßenverkehrsrechtliche und straßenbauliche Praxis  
Baier, Peter-Dosch, Schäfer, Schiffer € 17,50
- V 145: Aktuelle Praxis der Parkraumbewirtschaftung in Deutschland  
Baier, Klemps, Peter-Dosch € 15,50
- V 146: Prüfung von Sensoren für Glättemeldeanlagen  
Badelt, Breitenstein, Fleisch, Häusler, Scheurl, Wendl € 18,50
- V 147: Luftschadstoffe an BAB 2005  
Baum, Hasskelo, Becker, Weidner € 14,00
- V 148: Berücksichtigung psychologischer Aspekte beim Entwurf von Landstraßen – Grundlagenstudie –  
Becher, Baier, Steinauer, Scheuchenpflug, Krüger € 16,50
- V 149: Analyse und Bewertung neuer Forschungserkenntnisse zur Lichtsignalsteuerung  
Boltze, Friedrich, Jentsch, Kittler, Lehnhoff, Reusswig € 18,50
- V 150: Energetische Verwertung von Grünabfällen aus dem Straßenbetriebsdienst  
Rommeiß, Thrän, Schlägl, Daniel, Scholwin € 18,00
- 2007**
- V 151: Städtischer Liefer- und Ladeverkehr – Analyse der kommunalen Praktiken zur Entwicklung eines Instrumentariums für die StVO  
Böhl, Mause, Kloppe, Brückner € 16,50
- V 152: Schutzeinrichtungen am Fahrbahnrand kritischer Streckenabschnitte für Motorradfahrer  
Gerlach, Oderwald € 15,50
- V 153: Standstreifenfreigabe – Sicherheitswirkung von Umnutzungsmaßnahmen  
Lemke € 13,50
- V 154: Autobahnverzeichnis 2006  
Kühnen € 22,00
- V 155: Umsetzung der Europäischen Umgebungslärmrichtlinie in Deutsches Recht  
Bartolomaeus € 12,50
- V 156: Optimierung der Anfeuchtung von Tausalzen  
Badelt, Seliger, Moritz, Scheurl, Häusler € 13,00
- V 157: Prüfung von Fahrzeugrückhaltesystemen an Straßen durch Anprallversuche gemäß DIN EN 1317  
Klößner, Fleisch, Balzer-Hebborn € 14,50
- V 158: Zustandserfassung von Alleebäumen nach Straßenbaumaßnahmen  
Wirtz € 13,50
- V 159: Luftschadstoffe an BAB 2006  
Baum, Hasskelo, Siebertz, Weidner € 13,50
- V 160: Verkehrsentwicklung auf Bundesfernstraßen 2005 – Jahresauswertung der automatischen Dauerzählstellen  
Fitschen, Koßmann € 25,50
- V 161: Quantifizierung staubedingter jährlicher Reisezeitverluste auf Bundesautobahnen  
Listl, Otto, Zackor € 14,50
- V 162: Ausstattung von Anschlussstellen mit dynamischen Wegweisern mit integrierter Stauinformation – dWiSta  
Grahl, Sander € 14,50
- V 163: Kriterien für die Einsatzbereiche von Grünen Wellen und verkehrsabhängigen Steuerungen  
Brilon, Wietholt, Wu in Vorbereitung
- V 164: Straßenverkehrszählung 2005 – Ergebnisse  
Kathmann, Ziegler, Thomas € 15,00
- 2008**
- V 165: Ermittlung des Beitrages von Reifen-, Kupplungs-, Brems- und Fahrbahnabrieb an den PM<sub>10</sub>-Emissionen von Straßen  
Quass, John, Beyer, Lindermann, Kuhlbusch, Hirner, Sulkowski, Sulkowski, Hippler € 14,50

---

Alle Berichte sind zu beziehen beim:

Wirtschaftsverlag NW  
Verlag für neue Wissenschaft GmbH  
Postfach 10 11 10  
D-27511 Bremerhaven  
Telefon: (04 71) 9 45 44 - 0  
Telefax: (04 71) 9 45 44 77  
Email: [vertrieb@nw-verlag.de](mailto:vertrieb@nw-verlag.de)  
Internet: [www.nw-verlag.de](http://www.nw-verlag.de)

Dort ist auch ein Kompletverzeichnis erhältlich.