
Forschungsvorhaben

**Vergleich der Wirkungseigenschaften
und der Wirkungsstärke von Dieselmotorabgasen
der 1960er Jahre und heute**

Endbericht vom Dezember 2003

Erstellt von

**Prof. Dr. med. Helmut Greim, Dr. Wolfgang Hillesheim,
Dr. Harald Esch, Dr. Hartmut Höke, Dr. Iris Zwirner Baier**

**Institut für Toxikologie und Umwelthygiene
Technische Universität München**

im Auftrag des

**Bayerischen Staatsministeriums
für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz**

Inhaltsverzeichnis

1	Aufgabenstellung des Forschungsvorhabens.....	1
2	Projektstruktur	5
3	Bildung und Ausbreitung von Dieselmotoremissionen.....	1
3.1	Entstehung und Zusammensetzung von Dieselmotoremissionen.....	7
3.1.1	Motorkonzepte: Verbrennungstechnik und Kraftstoffe	9
3.1.1.1	Ottomotor	9
3.1.1.2	Dieselmotor	9
3.1.1.3	Kraftstoffe für Otto- und Dieselmotoren.....	11
3.1.2	Emissionen.....	12
3.1.3	Partikelbildung und -alterung	15
3.1.3.1	Partikelbildung	15
3.1.3.2	Partikelalterung	18
3.1.4	Charakterisierung und Analytik von Dieselmotoremissionen	19
3.1.4.1	Emissionsmessungen.....	19
3.1.4.2	Immissionsmessungen.....	21
3.2	Grenzwerte zur Emissionsbeschränkung.....	25
3.2.1	Personenkraftwagen mit Dieselmotoren.....	26
3.2.2	Nutzfahrzeuge	27
3.2.3	Kraftstoffqualität.....	28
3.3	Messtechnik	29
3.3.1	Messmethoden für die Emission.....	29
3.3.2	Messmethoden für die Immission.....	35
3.3.3	Arbeitsplatzmessungen	36
3.4	Ergebnisse von Emissionsmessungen.....	38
3.4.1	Grenzwerte und Emissionsfaktoren	38
3.4.2	Einflüsse der Motortechnik auf Emissionen	41
3.4.2.1	Vergleich mit Emissionsfaktoren	42
3.4.2.2	Vergleich mit Grenzwerten	44
3.4.2.3	Konkrete Beispiele der Reduktion von Emissionen.....	48
3.4.3	Einflüsse des Kraftstoffs	54
3.4.4	Untersuchungen zu Partikelgröße und Partikelanzahl	58

3.4.4.1	Personenkraftwagen	58
3.4.4.2	Nutzfahrzeuge	63
3.4.5	Tunnelmessungen	65
3.4.6	Zusammenfassung der Ergebnisse von Emissionsmessungen.....	67
3.5	Emissionsmodellierungen.....	68
3.5.1	Emissionsmodellierung des Umweltbundesamt (TREMODO).....	69
3.5.2	Emissionsmodellierung bei Lenz und Prüller (2003)	70
3.5.3	Emissionsmodellierung der European Environment Agency (COPERT).....	71
3.5.4	Modellierung der Emission einzelner Abgaskomponenten 1960 bis 2020	72
3.5.4.1	Jährliche Fahrleistungen.....	76
3.5.4.2	Gesetzlich limitierte Emissionen.....	78
3.6	Immissions- und Arbeitsplatzmessungen	85
3.6.1	Ergebnisse von Immissionsmessungen.....	85
3.6.1.1	Partikel- und Rußmessungen.....	85
3.6.1.2	Messung der Ultra-Feinpartikel.....	93
3.6.1.3	Stickstoffoxide.....	99
3.6.1.4	Ozon	100
3.6.1.5	Schwefeldioxid.....	101
3.6.2	Immissionsmodellierungen.....	102
3.6.3	Konzentrationen in der Luft am Arbeitsplatz	107
3.6.4	Marker für die Exposition gegenüber DMA.....	109
3.7	Technische Entwicklungen für zukünftige Emissionsminderungen.....	111
3.7.1	Anforderungen an zukünftige Kraftstoffe.....	111
3.7.1.1	Schwefelarmer Dieselmotorkraftstoff.....	111
3.7.1.2	Alternative Kraftstoffe	112
3.7.2	Innere motorische Maßnahmen	114
3.7.2.1	Personenkraftwagen	114
3.7.2.2	Nutzfahrzeuge	114
3.7.3	Techniken zur Abgasreinigung.....	116
3.7.3.1	Oxidationskatalysator.....	116
3.7.3.2	Partikelfilter.....	117
3.7.3.3	Reduktion von Stickstoffoxiden.....	123
4	Aspekte zur Toxikologie von Dieselmotorabgasen.....	126
4.1	Chemische Stoffe in der Gasphase	127
4.2	Partikelphase.....	130
4.2.1	Partikeldurchmesser.....	130

4.2.2	Chemische Stoffe in der Partikelphase	130
4.3	Inhalative Aufnahme und Ablagerung.....	133
4.4	Kanzerogene Wirkungen im Tierexperiment	135
4.4.1	Tierexperimentelle Befunde	135
4.4.1.1	Gasphase.....	135
4.4.1.2	Partikuläre Phase / Gesamt-Dieselmotoremissionen.....	135
4.5	Nicht kanzerogene Wirkungen im Tierexperiment	138
4.5.1	Lokale Reaktionen	138
4.5.2	Systemische Wirkungen	139
4.6	Ergebnisse Epidemiologische Studien.....	140
4.6.1	Kanzerogene Wirkungen	140
4.6.2	Nicht kanzerogene Wirkungen	143
4.7	Zusammenfassung des aktuellen Stands zur Toxikologie und Epidemiologie.....	144
4.7.1	Schlussfolgerungen aus Tiermodellen	144
4.7.2	Schlussfolgerungen aus Erkenntnissen am Menschen.....	148
5	Risikoabschätzungen	150
5.1	MAK-Kommission (1987).....	150
5.2	IARC (1989)	151
5.3	WHO (1996)	151
5.4	Valberg und Watson (1996).....	151
5.5	US EPA (2002)	152
5.6	Health Effects Institute/USA (HEI) 2003	152
5.7	Arbeitsgruppe „Krebsrisiko durch Luftverunreinigungen“ des Länderausschusses für Immissionsschutz (LAI 1991).....	153
5.8	Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU 1994).....	156
5.9	Umweltbundesamt 1999	158
5.10	Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN.....	160
5.11	Risikoabschätzung Wichmann (2003).....	162

5.12	Risikoabschätzung nach Rösli et al. (2003)	167
6	Zusammenfassung	171
6.1	Qualitative und quantitative Veränderungen der Dieselmotoremissionen im Laufe der letzten 40 Jahre	172
6.2	Aktuelle toxikologische Bewertungen der veränderten Emissionen	175
6.3	Verfügbarkeit von Partikelfiltern.....	181
6.4	Abschließende Bewertung	183
7	Anhänge	184
7.1	Zeitreihen Immissionsmessungen.....	185
7.2	Grenz- und Leitwerte bei Immissionsmessungen.....	190
7.3	Position des Umweltbundesamtes (www.uba.de).....	194
7.4	Internationaler Grenzwertevergleich	197
7.5	Übersicht Partikelmessstechnik.....	202
7.6	Emissions-Minderungspotentiale (aus CONCAWE 1999)	206
7.7	Emissionsfaktoren historische amerikanische Nutzfahrzeuge 1952 - 1975	209
7.8	HEI Studien zur Wirkung von Partikeln und deren Bestandteile (HEI 2002a).....	211
8	Referenzen	212
8.1	Literaturverzeichnis Technik	212
8.2	Literaturverzeichnis Toxikologie.....	224

Abkürzungsverzeichnis

Häufig gebrauchte Abkürzungen und Symbole

ACEA	European Automobile Manufacturers Association (Association des Constructeurs Européens d' Automobiles); Europäischer Automobilverband
AGS	Ausschuß für Gefahrstoffe
B[a]P	Benzo[a]pyren
BImSchG	Bundes-Immissionsschutzgesetz
BImSchV	Verordnungen zum Bundes-Immissionsschutzgesetz
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
BUWAL	Bundesamt für Umwelt und Landschaft, Bern, Schweiz
CAFE	Clean Air For Europe; Luftreinhalteprogramm der EU
ChemG	Chemikaliengesetz
CO	Kohlenmonoxid
CO ₂	Kohlendioxid
CONCAWE	Conservation of Clean Air and Water in Europe. The Oil Companies' European Organization for Environment, Health and Safety
CPC	Kondensationszähler (<i>condensation particle counter</i>)
CR	Common-Rail
DeNOx	Technik zur Entfernung von Stickstoffoxiden, z.B. Speicherkatalysator
DI	Direkte Dieseleinspritzung
DIW	Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung
DK	Dieselmotorabgas
DMA	Dieselmotorabgas
DMPS	Messgerät zur Bestimmung von Partikelgrößenverteilung und Partikelanzahl (<i>Differential Mobility Particle Sizing</i>)
DPF	Dieselpartikelfilter
EC	elementarer Kohlenstoff (= Ruß), <i>elemental carbon</i>
ECE	United Nations Economic Commission for Europe (http://www.unece.org)
ESC	European Steady-state Cycle; stationärer Test für die Prüfung von Nutzfahrzeugmotoren ab 2000
ETC	European Transient Cycle; Fahrzyklus für die Prüfung von Nutzfahrzeugmotoren ab 2000
EU	Europäische Union
GefStoffV	Gefahrstoff-Verordnung
HEI	Health effects institute, Boston, USA (http://www.healtheffects.org)
HC	Kohlenwasserstoffe (<i>hydrocarbons</i>)
IDI	Indirekte Dieseleinspritzung
IFEU	Institut für Energie- und Umweltforschung GmbH, Heidelberg
KBA	Kraftfahrt-Bundesamt
KI	Konfidenzintervall
KRdL	Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN

λ	Luftverhältniszahl; Verhältnis zwischen vorhandener Luftmenge und Mindestluftmenge. Zahlenwerte <1 zeigen Luftmangel („fettes Gemisch“) und Werte >1 Luftüberschuss („mageres Gemisch“) an.
LAI	Länderausschuss für Immissionsschutz
MAK	Maximale Arbeitsplatzkonzentration
MWV	Mineralölwirtschaftsverband
NEFZ	Neuer Europäischer Fahrzyklus
NMHC	Nicht-Methan Kohlenwasserstoffe (<i>non-methane hydrocarbons</i>)
nm	Nanometer; $1 \text{ nm} = 1 \times 10^{-9} \text{ m}$; $1000 \text{ nm} = 1 \text{ }\mu\text{m}$
μm	Mikrometer; $1 \text{ }\mu\text{m} = 1 \times 10^{-6} \text{ m}$; $1 \text{ }\mu\text{m} = 1000 \text{ nm}$
Nfz	Nutzfahrzeug (INfz, sNfz: leichte bzw. schwere Nutzfahrzeuge)
NO_x	Stickstoffoxide
OC	organischer Kohlenstoff (<i>organic carbon</i>)
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
OxiKat	Oxidationskatalysator für Dieselfahrzeuge
PAK	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe
Pkw	Personenkraftwagen
PM_{10}	Partikel- Masse (PM = Particulate Matter) der Teilchen mit einem aerodynamischen Durchmesser von $\leq 10 \mu\text{m}$
$\text{PM}_{2,5}$	analog zu PM_{10} , aerodynamischer Durchmesser $\leq 2,5 \mu\text{m}$
RR	Relatives Risiko
SCR	Kurzform von SCNR
SCNR	Selektive katalytische Stickstoffreduktion
SMPS	Messgerät zur Bestimmung von Partikelgrößenverteilung und Partikelanzahl (<i>Scanning Mobility Particle Sizing</i>)
SRU	Der Rat von Sachverständigen für Umweltfragen
StMUGV	Bayerisches Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz
TREMOD	Transport Emission Estimation Modell (Rechenmodell zu Schadstoffemissionen des Verkehrs in Deutschland im Auftrag des UBA)
TRGS	Technische Regeln für Gefahrstoffe
TRK	Technische Richtkonzentration
TSP	Gesamtschwebstaub (<i>total suspended particulates</i>)
UBA	Umweltbundesamt, Berlin
UF	Ultra-Feinpartikel
UR	Unit Risk
US EPA	US Environmental Protection Agency
VDA	Verband der Deutschen Automobilindustrie
VDI	Verein Deutscher Ingenieure
VOC	Flüchtige organische Kohlenwasserstoffe (<i>volatile organic compounds</i>)

1 Aufgabenstellung des Forschungsvorhabens

Die Abgase von dieselgetriebenen Fahrzeugen (Pkw, Nutzfahrzeuge, Schienenfahrzeuge, Schiffe, Landmaschinen) und von stationären Dieselmotoren (Kraftwerke, Baumaschinen und sonstige Arbeitsgeräte) enthalten gasförmige und partikuläre Komponenten als Produkte der vollständigen oder auch unvollständigen Kraftstoffverbrennung, die mit gesundheits-schädigenden Wirkungen in Verbindung gebracht werden. Dieselmotorabgase (DMA) werden ebenso wie andere Pyrolyseprodukte aufgrund tierexperimenteller und epidemiologischer Studien als kanzerogen angesehen und sind 1987 von der MAK-Kommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) als krebserzeugend der Kategorie IIIA2 (im Tierversuch erwiesenermaßen krebserzeugend) eingestuft worden. Die Ergebnisse der tierexperimentellen Studien und von epidemiologischen Studien wurden von verschiedenen Experten stets auch als Hinweis auf eine krebserzeugende Wirkung von Dieselmotorabgasen für den Menschen diskutiert.

Die Frage der krebserzeugenden Wirkung beim Menschen ist auch heute noch offen. Sie wird jedoch immer wieder kontrovers diskutiert, insbesondere im Zusammenhang mit den verkehrsbedingten Immissionen. Dies ist insofern verständlich, als der Gesetzgeber die zum Schutz der Gesundheit der Bevölkerung erforderlichen Maßnahmen zu treffen hat. Die Zulassungszahlen für dieselgetriebene Pkw (aktuell liegt der Anteil bei ca. 40 % der Neuzulassungen in Deutschland) und die Fahrleistungen dieselgetriebener Fahrzeuge steigen kontinuierlich an, und dementsprechend werden steigende Emissionen und Immissionen angenommen. In Deutschland hat 1994 der Sachverständigenrat für Umweltfragen auf die krebserzeugende Wirkung von Dieselmotorabgasen hingewiesen und schätzte aufgrund halbquantitativer Emissionsangaben für einige ausgewählte Schadstoffe eine ca. 20-fach höhere kanzerogene Wirkungsstärke von Dieselmotoremissionen gegenüber den Emissionen von Ottomotoren ab (SRU 1994).

In jüngerer Zeit werden insbesondere die partikulären Anteile stark diskutiert. Es wird z.B. seitens des Umweltbundesamtes in Berlin (UBA) argumentiert, dass in Abgasen neuerer Motoren die Partikeldurchmesser soweit abgenommen haben sollen, dass sie in die tiefsten Bereiche der Lunge, die Alveolen, gelangen und dort Schaden anrichten können. Diese Einschätzung basiert auf früheren tierexperimentellen Befunden, Messungen der Anzahlkonzentration von Ultrafeinpartikeln 10 – 30 nm in Erfurt zwischen Winter 1990/91 und 2000/01 (Kreyling et al. 2003) und auf Ergebnissen aus epidemiologischen Erhebungen, insbesondere des im Auftrag des Umweltbundesamtes von Wichmann (2003) erstellten Gutachtens über die positiven gesundheitlichen Auswirkungen durch die Verwendung von Partikelfiltern bei Dieselfahrzeugen. Es wurden dabei insbesondere pulmonale und kardiovaskuläre Erkrankungen bei empfindlichen oder vorgeschädigten Bevölkerungsgruppen, daneben in geringerem Ausmaß auch Lungenkarzinome, mit einer Exposition gegenüber Feinstäuben (PM_{2,5}) in Verbindung gebracht. Dieselmotorabgase leisten einen Beitrag zu dieser Feinstaubfraktion. Wichmann hat versucht, diesen Anteil abzuschätzen und er bringt damit jährlich 10 000 bis 19 000 vorzeitige Todesfälle in der Bundesrepublik in Verbindung. Nach seinen Berechnungen ließe sich dies durch die Einführung des Dieselpartikelfilters

vermeiden. Daraus würde dann eine Lebenszeitverlängerung von ca. 1.9 Monaten bezogen auf die Gesamtbevölkerung resultieren (Wichmann 2003). Weitere Studien, wie z.B. APHEA, auf die im Rahmen dieses Berichts jedoch nicht näher eingegangen wird, weisen ebenfalls auf einen Zusammenhang zwischen der Feinstaubbelastung und der Mortalität bzw. Morbidität hin.

Darüber hinaus ergibt sich für den Gesetzgeber aus dem Bundes-Immissionsschutzgesetz (23. BImSchV; Verordnung über die Festlegung von Konzentrationswerten (Stickstoffdioxid, Ruß und Benzol)) und aus der Umsetzung der Europäischen 1. Tochterrichtlinie 99/30/EG zur Rahmenrichtlinie 96/62/EG zur Kontrolle und Verbesserung der Luftqualität (22. BImSchV) ein erheblicher genereller Handlungsbedarf für Maßnahmen zur Reduktion der Immissionskonzentrationen von Stickstoffdioxiden und Partikeln. Dies betrifft zu Teilen auch den Verkehrssektor.

Daher geht das UBA angesichts der steigenden Zahlen der Dieselfahrzeuge von einer steigenden Exposition der Bevölkerung und einer nicht weiter hinnehmbaren Gesundheitsgefährdung aus, zu deren Abwendung als gesetzgeberische Maßnahme verschärfte Grenzwerte gefordert werden.

Der Vorschlag des Umweltbundesamtes sieht vor (UBA 2003):

- eine 90 %ige Absenkung des massebezogenen Partikelgrenzwertes für Pkw (EURO 5, ab 2010) und Nutzfahrzeuge (EURO V, ab 2008).
- eine 50 %ige Absenkung der Stickstoffdioxid-Emission für Nutzfahrzeuge (EURO VI, ab 2010) gegenüber EURO V.
- verschärftes Prüfverfahren für Dieselmotoren.
- Option auf Regelungen zur Begrenzung der Partikelanzahl zu einem späteren Zeitpunkt.

Allerdings bleiben einige Fragen strittig und bedürfen weiterer Klärung. Es ist beispielsweise zu prüfen,

- ob sich Dieselmotorabgase heute qualitativ und quantitativ gegenüber denjenigen aus früheren Jahren unterscheiden,
- wie es um den absoluten oder relativen Anteil von Dieselausgaskomponenten an den Gesamtmissionen bestellt ist,
- ob es eine Bestätigung für eine Verminderung der Partikelgrößen bei neueren Motoren gibt, und
- inwieweit die von Wichmann (2003) genannten Zusammenhänge zwischen Lebenszeitverkürzung und Dieselmotorausmissionen tatsächlich gegeben sind.

Damit ist auch fraglich, inwieweit die Forderung nach noch strengeren gesetzlichen Regelungen zur Begrenzung der Emissionen von Dieselfahrzeugen angezeigt und angemessen ist, da sich die Abgase neuerer Dieselmotoren durchaus gravierend von denen der älteren Fahrzeuge sowohl hinsichtlich der Menge als auch hinsichtlich der Zusammensetzung unterscheiden können.

Sollte sich eine signifikante Änderung der Dieselmotorabgase bestätigen, dann wäre in einem zweiten Schritt die Auswirkungen auf die aktuelle Bewertung der tierexperimentellen Daten zur krebsauslösenden Wirkung und die Übertragung auf den Menschen zu prüfen. Gleiches gilt für die epidemiologischen Studien, die häufig Beziehungen zwischen Feinstaub und Dieselmotorabgasen und Lungenkrebserkrankungen sowie nicht-maligne Erkrankungen der Lunge und des Herz-Kreislaufsystems ergaben. Die Angemessenheit strengerer Emissionsbeschränkungen für Kraftfahrzeuge wird nur dann gegeben sein, wenn deren Emissionen noch immer einen relevanten Anteil an den Immissionen darstellen, und nur dann ist zu erwarten, dass aus Emissionsbeschränkungen auch tatsächlich eine relevante Verminderung der Exposition der Bevölkerung resultiert.

Eine signifikante Änderung der Dieselmotorabgase dürfte vermutet werden, denn immerhin sind über die Jahrzehnte ganz wesentliche motortechnische Fortschritte und Verbesserungen erzielt worden, die zusammen mit Verbesserungen der Kraftstoffqualität zu einer optimierten Verbrennung geführt haben. In der Summe haben diese Fortschritte die Einhaltung der kontinuierlich verschärften gesetzlichen Emissionsbeschränkungen ermöglicht. Darüber hinausgehend befinden sich seit einigen Jahren sowohl für Personenkraftwagen (Pkw) als auch für Nutzfahrzeuge (Nfz) verschiedene Verfahren zur Abgasnachbehandlung in der Entwicklung. Davon haben einige bereits ihre Praxistauglichkeit unter Beweis gestellt und kommen in zunehmend größeren Stückzahlen bei Neufahrzeugen zur Anwendung, so z.B. der Dieselpartikelfilter beim Diesel-Pkw, den Peugeot als erster Hersteller bereits seit dem Jahr 2000 in einigen wenigen Modellen einbaut. Das System filtert Partikel sehr effektiv und bis Herbst 2003 wurden ca. 500.000 Fahrzeuge mit Dieselpartikelfilter (DPF) ausgeliefert.

In der heftig geführten Diskussion im Sommer 2003 wurde seitens des Umweltbundesamtes (UBA) sehr nachdrücklich darauf verwiesen und die Einführung des Partikelfilters für Dieselfahrzeuge auch von anderen Herstellern gefordert (UBA 2003). Diese Initiative erfolgte im Einklang mit dem Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU 2003) und stützte sich im wesentlichen auf Ergebnisse früherer im Auftrage des Umweltbundesamtes durchgeführte Risikoabschätzungen (UBA 1999) und das Wichmann-Gutachten (Wichmann 2003) als Beleg für die Gesundheitsschädlichkeit. Es geschah dies auch unter Hinweis auf die künftigen verschärften Immissionsgrenzwerte für Partikel sowie die Verfügbarkeit von Partikelfiltern. Eine weitere Reduktion der Partikelgrenzwerte EURO 4 für Pkw und EURO IV/V für Nutzfahrzeuge um den Faktor 10 wird seitens des UBA prinzipiell zur Erreichung der Ziele des Gesundheitsschutzes als ausreichend erachtet, wenn die Minderung der Partikelzahlen alle Partikelgrößen einschließlich der Nanopartikel umfasst. Das UBA hält daher die Einführung von Partikelfiltern für zwingend geboten und hinsichtlich der damit verbundenen Kosten auch für angemessen. Das UBA behält sich darüber hinaus vor, künftig Grenzwerte auf der Basis der Partikelanzahl statt der Partikelmasse zu formulieren, um damit die Nanopartikel mit zu erfassen (UBA 2003).

In einer gemeinsamen Initiative haben Deutschland und Frankreich ihren Vorschlag für neue Diesel-Kfz-Grenzwerte im März 2003 auf dem EU-Umweltrat eingebracht und als Einföhrungstermin das Jahr 2010 vorgeschlagen. Die EU-Kommission hat zwischenzeitlich

erklärt, an der Fortschreibung der ab 2005 gültigen Grenzwerte EURO 4 für Pkw und der ab 2008 geltenden EURO V Grenzwerte für Nutzfahrzeuge zu arbeiten. Allerdings will sie frühestens im April 2005 konkrete Vorschläge vorlegen, da zunächst Ergebnisse des CAFE-Programms (Clean Air For Europe) abgewartet werden sollen, in dem das Erreichen von Immissionsgrenzwerten überprüft wird. Das Umweltbundesamt hält dies wegen der besonderen Bedeutung der Partikel für eine nicht akzeptable Verzögerung (BMU 2003).

Vor diesem Hintergrund war die Zielsetzung dieses Forschungsvorhabens, zu prüfen,

- ob durch den technologischen Fortschritt bedingte qualitative und quantitative Veränderungen der Dieselmotoremissionen eingetreten sind,
- ob diese Veränderungen toxikologisch von Interesse sind und eventuell eine Neubewertung erforderlich machen, und
- ob Veränderungen, sofern solche bestehen, für eine eventuelle Neubewertung qualitativ und quantitativ beschrieben werden können.

In diesem Zusammenhang war es also erforderlich, neben den eher fahrzeug- und messtechnischen Fragen auch die Toxikologie der relevanten Komponenten von Dieselmotorabgasen, Ergebnisse der epidemiologischen Forschung und darauf gestützte Bewertungen und Risikoabschätzungen aufzugreifen. Eine weitergehende Beschäftigung mit diesen Themen war dagegen nicht Gegenstand der vorliegenden Ausarbeitung. Dies kann ggf. in einem zweiten Schritt im Rahmen einer toxikologischen Neubewertung von Dieselmotorabgasen vorgenommen werden, wenn der Vergleich alter und neuer Daten dies nahe legt und eventuelle Unterschiede ausreichend beschrieben werden können, so dass Aussicht auf eine erfolgreiche Neubewertung besteht.

2 Projektstruktur

Das Forschungsvorhaben „Vergleich der Wirkungseigenschaften und Wirkungsstärke von Dieselmotorabgasen der sechziger Jahre und heute“ wurde von Prof. Dr. med. Helmut Greim, Direktor des Instituts für Toxikologie und Umwelthygiene der Technischen Universität München, unter Mitarbeit von Dr. Wolfgang Hillesheim, Dr. Hartmut Höke, Dr. Harald Esch, und Dr. Iris Zwirner-Baier im Auftrag und mit Mitteln des Bayerischen Staatsministeriums für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (StMUGV) im Zeitraum August 2002 bis 31. Dezember 2003 durchgeführt.

Die wissenschaftlichen Sekretariate des Beratergremiums für Altstoffe (BUA) und der DFG-Senatskommission für gesundheitsschädliche Arbeitsstoffe am Institut für Toxikologie und Umwelthygiene der Technischen Universität München waren bei der Recherche sowie der Beschaffung und Auswertung von Literatur beteiligt und wirkten bei der Erstellung des vorliegenden Endberichts redaktionell mit.

Zur Informationsbeschaffung wurden Recherchen der wissenschaftlichen Literatur insbesondere zu Ergebnissen von Emissions- und Immissionsmessungen, Toxikologie und gesundheitlichen Wirkung von Dieselmotorabgasen und dessen Einzelkomponenten wie z.B. Partikel, polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe usw. durchgeführt und ausgewertet.

Hinsichtlich Fahrzeugtechnik, Grenzwertsetzung, Emissionen und Immissionen, Toxikologie und Risikobewertung sowie zur Epidemiologie ergab sich über das Internet Zugang zu zahlreichen nationalen und internationalen Datenquellen. Hier ist insbesondere als zentrales Forum „Dieselnet“ (www.dieselnet.com) zu nennen, bei dem zeitnah über alle wesentlichen globalen Entwicklungen in Industrie, Behörden und Wissenschaft berichtet wird und das Zugangsmöglichkeiten zu den jeweiligen Institutionen oder primären Informationsquellen bereitstellt.

Das Umweltbundesamt in Berlin (UBA) stellte umfangreiche Informationen zu „TREMODO“ bereit, einem Rechenmodell zur Modellierung von Fahrzeugemissionen, das gleichermaßen von der deutschen Umweltbehörde und der Automobilindustrie gepflegt und genutzt wird. Die Datenbestände und Rechenverfahren sind daher gegeneinander abgeglichen und werden wechselseitig anerkannt.

Auf den Datenbeständen von „TREMODO“ aufbauend wurden von der IFEU GmbH, Heidelberg, Immissionskonzentrationen modelliert. Das UBA stellte hierzu ebenfalls umfangreiche Informationen bereit, die in einem eigenen Abschnitt kurz vorgestellt werden.

Für den Verband der Deutschen Automobilindustrie (VDA) unterstützte Herr Dr.-Ing. Norbert Metz, BMW AG, in seiner Funktion als langjähriger Leiter des Arbeitskreises „Auto und Umwelt“ in der Forschungsvereinigung Automobiltechnik im VDA das Forschungsvorhaben dankenswerterweise mit wertvollen Informationen zur Entwicklung der Dieselmotor- und Verbrennungstechnik, zu Messtechnik, Emissionen, und zum Stand der

Entwicklung von Emissionsminderungstechniken. Herr Dipl.-Ing. Uwe Wagner vom Institut für Kolbenmaschinen der Universität Karlsruhe (TH) stellte grundlegende technische Informationen zur Verfügung. Experten der Automobil- und der Zulieferindustrie wurden zu speziellen Fragestellungen gehört und unser Dank geht daher auch an Herrn Dr. Stein (DaimlerChrysler AG), an Mitarbeiter der Firmen Peugeot und HJS sowie an Herrn Dr. Höpfner von der Firma IFEU GmbH.

Herrn Dr.-Ing. Norbert Metz haben wir ganz besonders zu danken. Er steuerte nicht nur eine Fülle von wertvollen Sachinformationen bei, sondern vermittelte auch die Kontakte zu den Ansprechpartnern in der Industrie.

3 Bildung und Ausbreitung von Dieselmotoremissionen

3.1 Entstehung und Zusammensetzung von Dieselmotoremissionen

Für Fahrzeugantriebe kommen ganz überwiegend Verbrennungsmotoren zum Einsatz, die ihre Energie aus der Verbrennung von Mineralölen beziehen. Dabei dominieren ganz eindeutig Otto- und Dieselmotoren. Verbrennungsmotoren für gasförmige Kraftstoffe (Erdgas, Propan, Wasserstoff) sind jüngere Entwicklungen für spezielle Anwendungen. Zahlenmäßig spielen Straßenfahrzeuge mit gasmotorischem Antrieb noch keine Rolle. Für die Zukunft besitzen sie ein großes Potential aufgrund der sehr sauberen Verbrennung der gasförmigen Kraftstoffe. Dagegen benötigen Otto- und Dieselmotoren flüssige Treibstoffe, deren Verbrennungsprozesse und Kraftstoffe sich wesentlich voneinander unterscheiden.

Der Dieselmotor wurde in den Jahren 1892-1897 durch Rudolf Diesel erfunden und seitdem ständig weiter entwickelt. Dieselmotoren gelten als sehr effizient, zuverlässig und robust und daher auch kostengünstig. Sie fanden deshalb eine weltweite Verbreitung und dienen in unterschiedlichsten Anwendungen. Kraftwerke und Notstromaggregate, Baumaschinen, landwirtschaftliche Maschinen, und nicht zuletzt Fahrzeuge zu Lande (Personenkraftwagen, Nutzfahrzeuge, Schienenfahrzeuge) und zu Wasser werden von Dieselmotoren unterschiedlichster Leistungsklassen angetrieben. Der Dieselmotor ist konkurrenzlos, wenn gleichzeitig Mobilität, hohe Leistung und Zuverlässigkeit gefordert sind, wie dies bei Schiffen, Lokomotiven und schweren Nutzfahrzeugen der Fall ist.

Im Straßenverkehr dominiert der Dieselmotor bei den leichten und schweren Nutzfahrzeugen schon lange, während die Verwendung in Personenkraftwagen bis ca. 1975 eher unbedeutend war. Seitdem stieg der Anteil der dieselgetriebenen Pkws insbesondere in Europa kontinuierlich an. In jüngster Zeit liegt der Anteil bei ca. 40 % der Neuzulassungen in Deutschland mit weiter steigender Tendenz. Dies resultiert im wesentlichen aus der Entwicklung leistungsfähiger und sehr sparsamer Dieselmotoren. Für den Verbraucher ergeben sich damit Kostenvorteile. Auch das Umweltverhalten der Dieselmotoren wurde durchaus positiv eingeschätzt. Im Vergleich zu Ottomotoren ist der Verbrauch an Treibstoff geringer, d.h. die Mineralölreserven werden geschont und es wird weniger Kohlendioxid (CO₂) freigesetzt. Die Emissionen der giftigen und an der Bildung des Sommersmogs beteiligten Stoffe Kohlenmonoxid (CO), Benzol und sonstigen flüchtigen Kohlenwasserstoffe (volatile organic compounds, VOC) sind wesentlich geringer als bei Ottomotoren, allerdings sind die Emissionen von Stickoxiden und Partikeln höher. Im Hinblick auf das politische Ziel der Bundesregierung, die CO₂-Emissionen zur Reduzierung des Treibhauseffekts zu vermindern, leisten die Automobilhersteller mit der Senkung der Kraftstoffverbräuche durch die Dieselmotorenteknik einen wesentlichen Beitrag.

Die nachfolgende Abbildung 3.1-1 gibt einen Überblick über die zeitliche Entwicklung der Anwendung von Dieselmotoren und Meilensteine der Wirkungsforschung und Regelsetzung in den USA (HEI 1995). Für die Situation in Deutschland ist hinzuzufügen, dass seit etwa Mitte der 1970er-Jahre Diesel-Pkw in höheren Stückzahlen zugelassen werden. Der Anteil betrug 1990 ca. 10 % und 2002 ca. 40 % der Neuzulassungen (ACEA 2003), während Diesel-Pkw in den USA noch immer von untergeordneter Bedeutung sind.

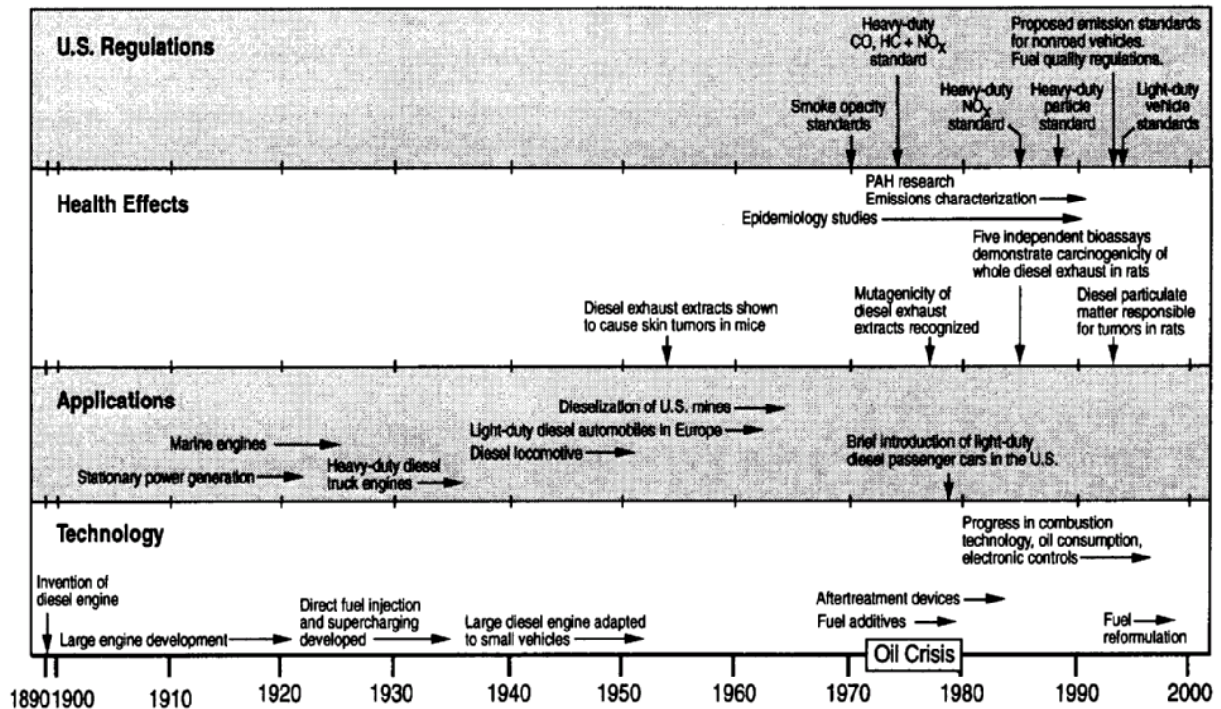


Abb. 3.1-1: Entwicklung des Dieselmotors in den USA (HEI 1995).

3.1.1 Motorkonzepte: Verbrennungstechnik und Kraftstoffe

3.1.1.1 Ottomotor

Der Ottomotor benötigt Ottokraftstoff, das ist im wesentlichen ein Gemisch aus leichtsiedenden Alkanen und Monoaromaten, dem zur Verbesserung von Klopfestigkeit, Lagerfähigkeit oder zum Korrosionsschutz Additive zugesetzt sind. Industrienormen regeln die Anforderungen an die Kraftstoffqualität (z.B. DIN 51 607 für unverbleiten und DIN 51 600 für verbleiten Ottokraftstoff). Der Gehalt an Additiven kann aus Gründen der Luftreinhaltung in entsprechenden nationalen oder internationalen Vorschriften geregelt sein, so z.B. für den Gehalt an Bleitetramethyl (Antiklopfmittel) oder Schwefel. Ottokraftstoffe werden bei den älteren Saugmotoren vergast und in den Zylinder gesaugt und bei der neueren Einspritzmotorentechnik unter Druck eingedüst. In jedem Fall wird das Gemisch durch den Kolben auf bis zu 25 bar komprimiert und dann durch die Zündkerze gezündet. Bei der Verbrennung entstehen Temperaturen von 2000 – 2500 °C und Drücke bis 70 bar, wodurch der Kolben nach unten gedrückt wird und Arbeit verrichten kann.

Für einen runden Lauf ist die Einhaltung eines engen Luftverhältnissbereiches λ des Kraftstoff-Luft-Gemisches erforderlich. Die Leistungsregelung erfolgt mit Hilfe einer Drosselklappe, die den Luftmassenstrom in den Motor auf die benötigte Menge reduziert (Quantitätsregelung). Bei Motoren älterer Bauart übernimmt ein Vergaser die Zumessung der exakten Kraftstoffmenge, so dass sich ein Luftverhältnis in einem Bereich von $0.9 < \lambda < 1.1$ einstellt. Bei Fahrzeugen mit elektronischen Einspritzsystemen und geregelter Abgaskatalysator wird die erforderliche Kraftstoffmenge mit Hilfe eines Luftmassenmessers und einer Lambda-Sonde im Abgastrakt bestimmt und über ein elektronisches Steuergerät in engen Grenzen ($0.98 < \lambda < 1.02$) geregelt, da der Katalysator nur in diesem Bereich voll wirksam ist und die Emissionen von Kohlenmonoxid (CO), Kohlenwasserstoffen (HC) und Stickstoffoxiden (NO_x) um rund 90 % reduzieren kann.

3.1.1.2 Dieselmotor

Dagegen arbeitet der Dieselmotor als Selbstzünder nach einem anderen Funktionsprinzip: durch den Kolben wird zunächst Luft stark komprimiert (>35 bar) und dadurch auf 700 – 900 °C erhitzt. Anschließend wird Dieselmotorkraftstoff eingespritzt, der verdampft und sich selbst entzündet. Der Dieselmotor kommt also ganz ohne Zündkerze aus. Bei der Verbrennung entstehen hohe Drücke (ca. 120 bar bei Pkw-Motoren und 170 bis 200 bar bei Nutzfahrzeugmotoren) und Temperaturen um 2000 bis 2500 °C.

Dieselmotoren arbeiten heute vorwiegend als 4-Takter mit 2 Kurbelumdrehungen je Arbeitszyklus. Zweitakt-Dieselmotoren waren in früheren Jahren noch in Nutzfahrzeugen

z.B. in den USA verbaut und sind inzwischen weltweit durch 4-Takter abgelöst. In Deutschland fanden 2-Takt-Dieselmotoren keine nennenswerte Verwendung als Fahrzeugantrieb (Dr. Stein, Daimler Chrysler G, persönliche Mitteilung). Heute arbeiten nur noch Großmotoren (Leistungsbereich ca. 1 – 30 Megawatt, Einsatz in Kraftwerken und als Lokomotiv- und Schiffsmotoren) nach dem 2-Taktprinzip. Vorteil der Zweitakter ist, dass die Ventile für die Zu- und Abluft durch fest am Zylinder angebrachte Einström- und Auslasskanäle ersetzt sind, die durch den Kolben geöffnet oder geschlossen werden. Dies reduziert die bewegten Massen und es kann auch kein Ventilverschleiß eintreten.

Wesentliche Fortschritte wurden bei der Einspritz- und Zerstäubungstechnik erzielt. Die Entwicklung des Dieselmotors startete mit der **Indirekten Dieseleinspritzung (IDI)**, bei der der Kraftstoff in eine Vor- oder Wirbelkammer eingespritzt wurde, von wo aus die Flamme dann in den eigentlichen Brennraum überschlug. Beim ersten, ab 1936 in Serie gebauten Diesel-Pkw, dem Mercedes 260D, wurde der Kraftstoff von einer Verteilerpumpe eingespritzt, die von der Nockenwelle gesteuert war. Moderne Varianten solcher Pumpen werden auch heute noch z.B. bei Opel oder Audi in einigen Motoren verwendet. Sie erreichen Spitzendrücke bis 1700 bar und erlauben auch eine zweistufige Einspritzung zur Verbesserung der Laufruhe. Für eine weitere Absenkung der Schadstoffemissionen sind Verteilerpumpen allerdings kaum geeignet, weil dafür höhere Drücke und Mehrfacheinspritzungen erforderlich sind. Die nächste Entwicklungsstufe war die **Dieseldirekteinspritzung (DI)** in den Hauptbrennraum (ca. 1995).

Bei **Common-Rail Systemen (CR)**, ca. 1997 eingeführt) steht der Kraftstoff in einer gemeinsamen Zuleitung für alle Zylinder unter sehr hohem Druck bereit (ca. 1400 bar bis 1800 bar). Die von Volkswagen verwendeten **Pumpe/Düse-Systeme** mit einer elektronisch gesteuerten Einspritzeinheit je Zylinder liefern ebenfalls sehr hohe Drücke bis über 2000 bar. Elektronische Steuergeräte erlauben bei diesen Hochdrucksystemen, die Einspritzmengen, Einspritzdauer und Einspritzzeiten frei zu wählen und den Betriebszuständen des Motors anzupassen. Mehrloch-Düsen und Piezoinjektoren mit elektronisch geregelten Mehrfach-Einspritzungen im untersten μl -Bereich (bis zu 5 Einspritzungen pro Arbeitstakt anstelle einer einzigen Einspritzung) führen bei den Hochdrucksystemen zu einer optimierten Vernebelung des Diesels. Dies ist eine Voraussetzung für eine weitgehend homogene Reaktion des Kraftstoffs mit dem Luftsauerstoff, die wesentlich zur Einhaltung der zukünftigen EURO 5-Norm beitragen könnte (Eberl 2003). „Fette“ Bereiche werden so weitgehend vermieden. Dies verbessert die Kraftstoffausnutzung und reduziert dementsprechend sowohl den Kraftstoffverbrauch als auch die Bildung von Rußpartikeln mit anhaftenden Kraftstoffanteilen. Dieselmotoren werden generell mager betrieben, d.h. bei Werten von $\lambda > 1$. Insofern ist eine Regelung wie oben für den Ottomotor beschrieben nicht erforderlich.

Leistung, Kraftstoffverbrauch und Emissionsverhalten von Dieselmotoren konnten durch weitere technische Entwicklungen verbessert werden. Die **Turboaufladung**, bei der zusätzliche Luft unter Überdruck in die Verbrennungskammer geblasen wird, erhöht die Luftverhältniszahl λ und senkt daher die Partikelemissionen. Gleichzeitig steigen Leistung und Drehmoment rapide an, da bei gleichem λ aufgrund der höheren Luftmasse auch mehr Kraftstoff verbrannt werden kann. Dadurch wurde der zuvor eher träge Dieselmotor im

Bereich der Pkw zu einer attraktiven Alternative zum Ottoantrieb mit entsprechenden Steigerungen der Produktions- und Zulassungszahlen. Die **Abgasrückführung** (AGR) wurde etwa seit 1995 mit dem DI-Motor eingeführt. Dies bewirkt eine Absenkung der Verbrennungstemperatur auf ca. 1900 °C, d.h. in einen Temperaturbereich mit sehr geringer NO_x-Bildung. Der **Oxidationskatalysator** zur Reduzierung von CO und HC ist bei Pkw-Dieselmotoren Stand der Technik.

Weitere Entwicklungen wie Partikelfilter, Selektive Katalytische Stickstoffreduktion (SCNR) usw. werden teilweise bereits in Serienfahrzeugen installiert oder stehen kurz vor der Markteinführung. In Abschnitt 3.7 wird auf diese Minderungstechniken eingegangen.

3.1.1.3 Kraftstoffe für Otto- und Dieselmotoren

Die Kraftstoffe unterscheiden sich erheblich hinsichtlich der stofflichen Zusammensetzung und ihrer physikalisch-chemischen Eigenschaften. Das Verhalten der Kraftstoffe kann durch Additive bzgl. Lagerfähigkeit, Zünd- und Brandverhalten, Korrosionsschutz, Viskosität bei unterschiedlichen Temperaturanforderungen usw. beeinflusst werden. Aus diesem Grunde gibt es weltweit sehr viele unterschiedliche Kraftstoffqualitäten.

Grundsätzlich sind jedoch die Hauptkomponenten bestimmend. Für die flüchtigeren Benzine (unverbleit) ist in der DIN EN 228 (DIN 51 607) ein Siedeverlauf vorgegeben, demzufolge bei 180 °C mindestens 85 % des Benzins verdampft und das Siedeende bei max. 215 °C erreicht sein muss.

Dagegen liegen die Siedebereiche der Inhaltsstoffe von Dieselmotorkraftstoff im Bereich von 170 bis 360 °C. Die Mindestanforderungen sind in DIN EN 590 (früher DIN 51 601) niedergelegt. Ein wichtiges Kriterium ist dabei die Cetanzahl; sie muss mindestens 45 betragen und gilt als Maß für die Zündwilligkeit und somit auch für das Startverhalten. Sie wird relativ zum sehr zündwilligen Cetan (Hexadecan; Cetanzahl 100) mit Hilfe von Prüfmotoren ermittelt. Analog wird bei Benzin die Klopfintensität mit einer Mischung aus Iso-Oktan und n-Heptan als relative Oktanzahl (ROZ) bestimmt.

Der Schwefelgehalt des Dieselmotorkraftstoffs ist für das Emissionsverhalten der Motoren ebenfalls eine wichtige Größe. Eine hohe Cetanzahl, hohe Anteile niedrigsiedender Inhaltsstoffe und niedriger Schwefelgehalt begünstigen niedrige Emissionen (Johnson 1988).

3.1.2 Emissionen

Zu einer ersten Orientierung sind nachfolgend die Größenordnungen der mengenmäßig dominierenden Abgasbestandteile eines modernen Ottomotors mit 3-Wege-Katalysator denen eines Nfz-Dieselmotors gegenübergestellt. Demnach bestehen die Abgase zu ca. 99,9 % aus Stickstoff, Edelgasen und restlichem Sauerstoff der Luft, sowie aus Kohlendioxid und Wasserdampf. Reaktionsprodukte aus der unvollständigen Kraftstoffverbrennung (CO, HC, Partikel) bzw. Nebenprodukte (SO₂, NO_x) machen rund 0,1 % aus (Abb. 3.1.2-1).

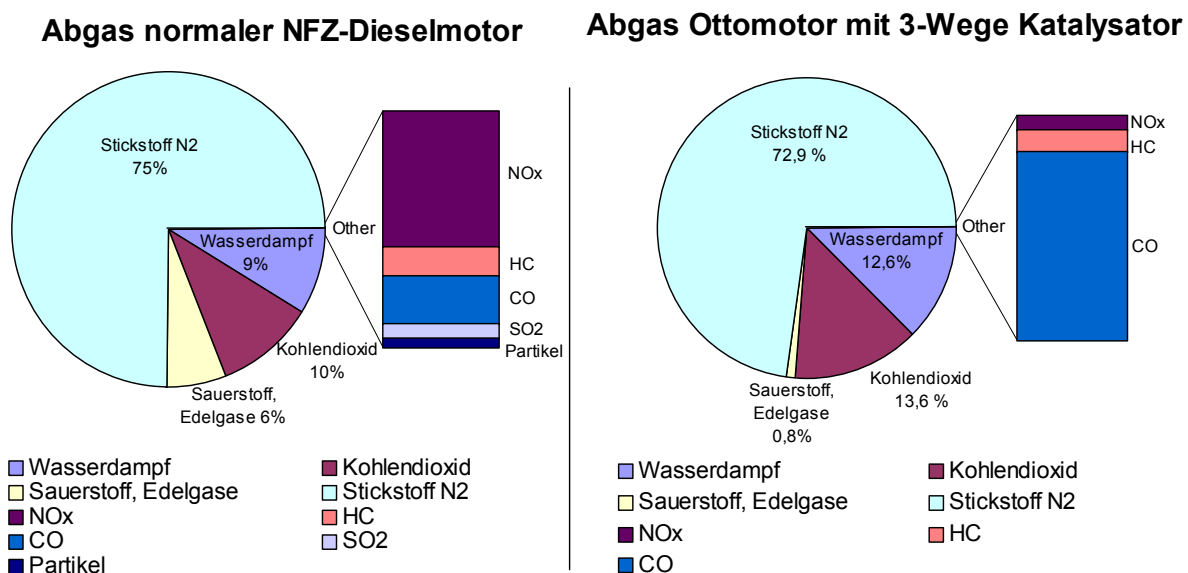


Abbildung 3.1.2-1: Abgaszusammensetzung von Verbrennungsmotoren (Mutart 1993).

Automobilabgase enthalten stets Hunderte von Verbindungen. Emissionen von CO, HC, NO_x und Partikel sind gesetzlich limitiert. Im Gegensatz dazu sind Schwefel, Benzol, PAK usw. im Abgas nicht limitiert sondern nur als Bestandteil der Kraftstoffe begrenzt.

Wie die limitierten stammen auch die anderen Stoffe im Abgas von Diesel- und Ottomotoren entweder aus der partiellen Verbrennung der Kraftstoffe oder aus Neubildungsprozessen durch Reaktionen radikalischer Bruchstücke. Es handelt sich dabei z.B. um aliphatische Kohlenwasserstoffe, aliphatische Carbonylverbindungen (Aldehyde, Ketone), PAKs (Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe) sowie einfach oder mehrfach substituierte PAKs (z.B. carboxyliert, nitriert, hydroxyliert), Amine und Ammoniak, und Polyhalogenierte Dibenzodioxine und Furane (PXDD/F) (Johnson 1988, SRU 1994, US EPA 2002). In Abhängigkeit von ihren physikalisch-chemischen Eigenschaften, insbesondere ihrem Siedepunkt, können diese Stoffe im Abgas sowohl gasförmig als auch

partikulär vorliegen. Bei der Abkühlung des Abgases auf die niedrigen Außentemperaturen kondensieren die weniger flüchtigen Stoffe und lagern sich zusammen oder adsorbieren an emittierte Partikel.

Im Vergleich zu Ottomotoren mit 3-Wege-Katalysator emittieren Dieselmotoren nach einer Sammlung halbquantitativer Daten aus der Zeit vor 1993 wesentlich höhere Mengen an Partikeln (35-fach), PAK (20-fach), Nitroaromaten (100-fach) sowie von Acet- und Formaldehyd (ca. 3-fach), während die Benzolemission bei Ottomotoren etwa verdoppelt war (Tab. III.8 in SRU 1994; Werte gerundet).

Die Veränderungen im Emissionsverhalten der Pkw- und Nutzfahrzeugmotoren seit Mitte der 1980er-Jahre bis heute spiegeln die Emissionsfaktoren des Umweltbundesamtes für die Berechnung der Emissionen von Otto- und Diesel-Pkw (Tabelle 3.4.1-1) wider. Bei neueren Fahrzeugen, die den Grenzwerten EURO 3 entsprechen („Jahr 2000“), emittieren Dieselmotoren gegenüber Ottomotoren rund 3- bis 4-fache Mengen an Acetaldehyd, Formaldehyd und Stickstoffoxiden, etwa das 100-fache an Gesamtpartikeln, und ca. das 250-fache an Partikelkernen (elementarer Kohlenstoff, EC). Die Emission von Benzo[a]pyren (Marker für die PAKs) liegt geringfügig (- 25 %) unterhalb der Emissionen von Ottomotoren. Der geregelte 3-Wege-Katalysator brachte dem Ottomotor gegenüber dem Emissionsverhalten „Mitte der 1980er“ deutliche Verbesserungen bzgl. der Emissionen von CO, HC und NO_x (s. Tabelle 3.4.1-1, UBA 1999).

Schwefeldioxid (SO₂) stammt aus der Oxidation der Schwefelverbindungen im Kraftstoff. Stickstoffoxide (NO_x) entstehen dagegen sowohl bei Otto- wie bei Dieselmotoren aus dem Stickstoff der Luft bei hohen Temperaturen und ausreichend Sauerstoff (Lenz und Prüller 2003). Im Bereich der maximalen Bildung von NO_x ist die Bildung von HC und CO minimal, steigt aber an, wenn zur Veränderung des Luftverhältnisses die Luftversorgung zur Minderung der NO_x-Bildung gedrosselt oder erhöht wird (Abb. 3.1.2-2).

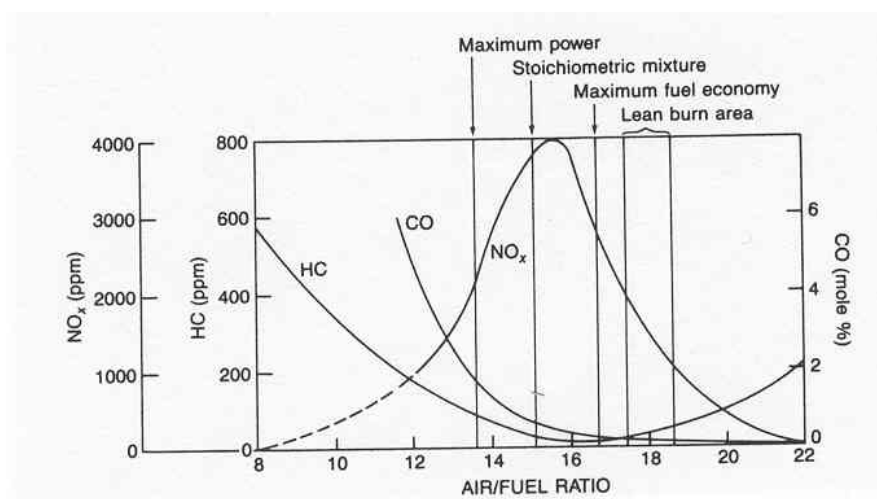


Abbildung 3.1.2-2: Bildung von NO_x , CO und HC als Funktion der Luftversorgung beim Ottomotor (Heinen 1980).

Insofern gibt es bei der Optimierung der Emissionen einen Zielkonflikt. Bei Ottomotoren ist dieser Konflikt durch den 3-Wege-Katalysator gelöst, der im Bereich von $\lambda = 1 \pm 0.05$ die Abgaskomponenten CO, HC und NO_x optimal entfernt (Abb. 3.1.2-3).

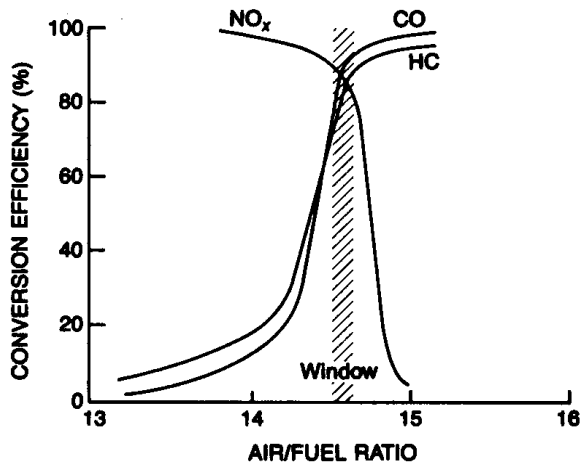


Abbildung 3.1.2-3: Reinigungsleistung des 3-Wege-Katalysators bzgl. NO_x , CO und HC als Funktion der Luftversorgung beim Ottomotor (Amann 1985).

3.1.3 Partikelbildung und -alterung

3.1.3.1 Partikelbildung

Wie oben ausgeführt werden Partikel sowohl beim Otto- als auch beim Dieselmotor gebildet. Der Bildungsmechanismus wird nachfolgend am Beispiel des Dieselmotors näher betrachtet.

Zunächst wird Dieselkraftstoff in die Vorkammer oder Wirbelkammer (ältere Motoren; Indirekteinspritzer IDI) oder in den Brennraum (neuere Motoren; Direkteinspritzer, DI) eingespritzt und verteilt. In der hoch komprimierten und hoch erhitzten Luft verdampft der Kraftstoff und entzündet sich. Bei den Wirbelkammermotoren schlägt dabei die Flamme aus der Vorkammer in den Hauptbrennraum über, beim Direkteinspritzer findet der ganze Ablauf im Hauptbrennraum statt. Bei der Verbrennung liegt ein komplexes Gemisch aus Gasen, Kraftstofftröpfchen, Radikalen und Verbrennungsprodukten vor, die miteinander reagieren und sich zusammenlagern können und bei den hohen Temperaturen verbacken werden. Ausgangspunkt dieser „Nukleation“, einer Umwandlung von Gasen zu Partikeln, sind also die Produkte einer unvollständigen Verbrennung, d.h. Radikale, teiloxydierte Bruchstücke der Inhaltsstoffe und unverbrannter Kraftstoff, die sich zunächst als Moleküle zusammenlagern. Bei der weiteren Abkühlung kondensieren die weniger flüchtigen Stoffe und lagern sich an. Der Zusammenhalt des Partikels ist durch eine vollständige Verschmelzung (Sinterung) gegeben (Abb. 3.1.2-1).

Die Aggregation ist innerhalb der Aufenthaltsdauer im Zylinder von ca. 1 bis 4 ms abgeschlossen. Es haben sich in dieser Zeit die **Primärpartikel** (Durchmesser 10 bis 30 nm) und daraus kettenförmige **Agglomerate** (Mobilitätsdurchmesser ca. 50 bis 120 nm) gebildet, die als feste Teilchen emittiert werden. Mit weiterer Abkühlung des Abgases im Auspuff oder in der Umgebungsluft können noch weitere Stoffe auskondensieren (Kohlenwasserstoffe, Metalloxide, Wasser und Schwefelsäure) und sich an die Partikel anlagern. Am Motorausstritt (Auspuff) treten daher vorwiegend die Agglomerate in Erscheinung, die eigentlichen **Dieselpartikel**. Der Durchmesser dieser Dieselpartikel beträgt 50 - 200 nm mit einem Maximum bei ca. 80 bis 100 nm (Franke et al. 1998, Metz et al. 1999, Metz et al. 2000). Agglomerate von Primärpartikeln werden durch van-der-Waals-Kräfte zusammengehalten. Bei Anlagerungen an Oberflächen (Auspuffrohr, Partikelfilter) können Agglomerate auch bis zu 10 µm anwachsen. Die Bildung der Partikel ist damit zunächst abgeschlossen (IFEU 2000, Koch 2003, US EPA 2002). Allerdings unterliegen Partikel in den Stunden und Tagen nach ihrer Freisetzung weiteren Veränderungen (s.u.).

Die so genannten **Sekundärpartikel** entstehen bei der sog. Gas-zu-Partikel Umwandlung gasförmiger Stoffe (Nukleation) und enthalten keinen Rußkern. Der Durchmesser dieser Partikelklasse liegt bei 10 bis 30 nm (Abb. 3.1.3-2). Die Partikel entstehen durch Kondensation beim Abkühlen z.B. im Auspuff oder in der Atmosphäre. Es kann sich dabei um sehr unterschiedliche Stoffe handeln: Wassertropfchen, Schwefelsäure, Salpetersäure, Kraftstofftröpfchen usw. wurden nachgewiesen. Diese Ultra-Feinpartikel (UF) neigen wegen

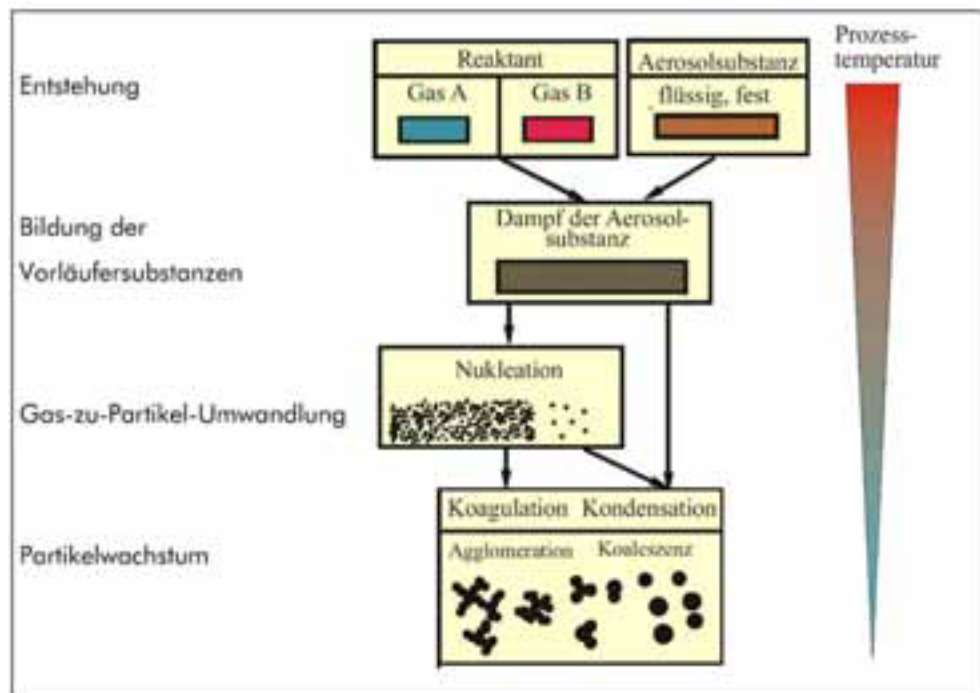


Abbildung 3.1.3-1: Partikelentstehung (Koch 2003).

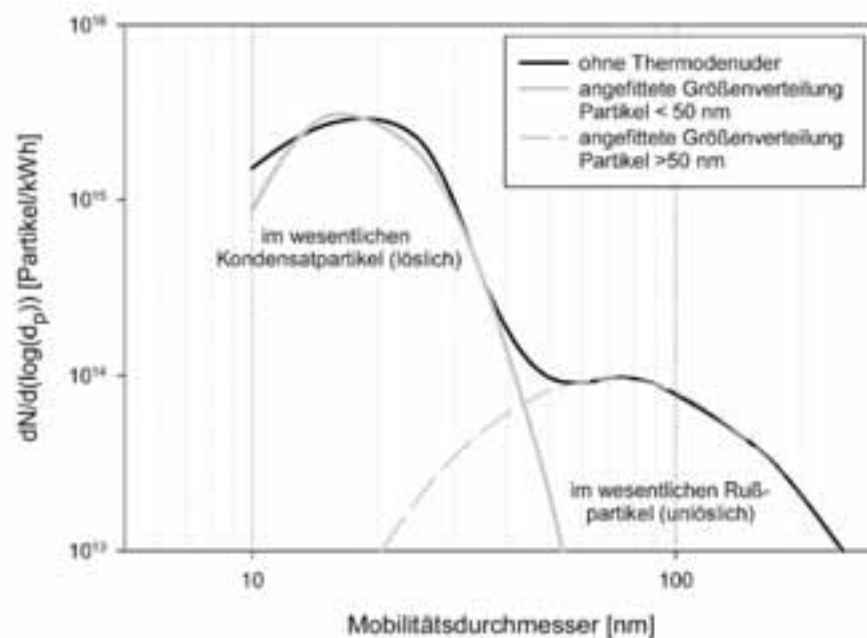


Abbildung 3.1.3-2: Dieselmotorabgas: Partikelgrößenverteilung für Rußpartikel und Kondensatpartikel (Koch 2003).

der hohen Verdünnung in der Luft kaum zur Agglomeration, sedimentieren nur sehr langsam und halten sich bis zu mehreren Wochen und Monaten in erdnahen Luftschichten auf (UBA-Texte 69/02). Dementsprechend können sie über sehr weite Strecken transportiert werden, so dass auch weit entfernte Quellen signifikant zur lokalen Hintergrundbelastung beitragen können. Wegen des geringen Durchmessers treten Sekundärpartikel bei Emissions- oder Immissionsmessungen im wesentlichen aufgrund einer hohen Anzahl in Erscheinung während ihr Beitrag zur Partikelmasse meist sehr gering ist.

Partikelentstehung und -abbau kann durch katalytische Wirkungen beschleunigt werden. Die Katalysatoren, meist Beschichtungen mit Edelmetallen oder Oxiden von Übergangsmetallen oder als Brennstoff-Additiv zugesetzt, können ihrerseits ebenfalls Partikel bilden (Additiv-, Oxidpartikel).

Emittierte Partikel können auf einem Filter gesammelt und elektronenmikroskopisch vermessen werden. Die Primärpartikel haben unter dem Elektronenmikroskop einen Durchmesser von ca. 10 - 30 nm und besitzen einen Kern aus elementarem Kohlenstoff (Ruß; auch als elementarer Kohlenstoff (EC) oder im englischen Schrifttum als „soot“ bezeichnet). Dieser Rußkern ist für Dieselpartikel typisch, allerdings nicht einzigartig. In Verbindung mit dem geringen Durchmesser kann der Rußkern dennoch als der zur Zeit beste verfügbare Marker für Dieselpartikel betrachtet werden (HEI 2003).

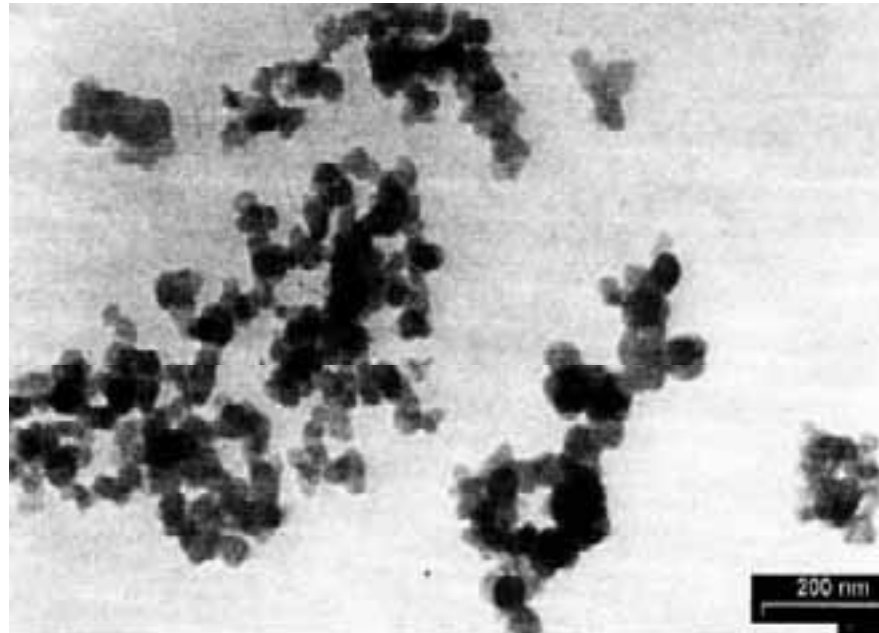


Abbildung 3.1.3-3: Elektronenmikroskopische Aufnahme von Dieselpartikel-Agglomeraten (Franke et al. 1998).

3.1.3.2 Partikelalterung

Die Alterung von Partikeln setzt unmittelbar nach deren Freisetzung ein. Meteorologische und photochemische Einflüsse, Vergrößerung durch die Anlagerung von Schwefelsäure und Nitrat aus der Reaktion von Stickstoffoxiden mit Luftfeuchtigkeit oder durch eine Zusammenlagerung mit weiteren Partikeln oder ein Schrumpfen durch Verdampfen flüchtiger Stoffe sind beschrieben (Koch 2003, US EPA 2002, Lenz und Prüller 2003, UBA 1999, Kohoutek et al 1999, Metz et al. 2000, Metz et al. 1999). Diese Vorgänge bewirken Veränderungen der Größe und der chemischen Zusammensetzung. Hieraus resultieren nicht nur Diskrepanzen beim Vergleich von Emissionsprognosen mit Immissionsmessungen (IFEU 2000), sondern es ergeben sich auch erhebliche Schwierigkeiten, gemessene Immissionen zweifelsfrei bestimmten Emissionsquellen zuzuordnen.

3.1.4 Charakterisierung und Analytik von Dieselmotoremissionen

Bei der chemischen und physikalischen Charakterisierung von Partikeln ist zwischen Emissionsmessungen (und daraus abgeleiteten Emissions- und Immissionsprognosen) und Immissionsmessungen zu unterscheiden.

3.1.4.1 Emissionsmessungen

Für die Homologation neuer Motoren (Feststellung der Erfüllung der Abgasnormen) und für die Ermittlung von Emissionsfaktoren für Emissionsprognosen werden standardisierte Prüfstandmessungen durchgeführt. Dazu wird der Motor oder das Fahrzeug auf einen Prüfstand montiert, der die Simulation unterschiedlicher Betriebszustände erlaubt. Das Abgas wird einem Verdünnungstunnel zugeleitet, in dem es mit reiner Umgebungsluft im Verhältnis von ca. 1:10 bis 1:50 verdünnt wird. Sensoren oder Sammelbeutel erlauben die Messungen der gasförmigen Komponenten im verdünnten Abgas. Die Partikel werden unter festgelegten Bedingungen einem Glasfaserfilter zugeleitet, dort abgeschieden und anschließend gravimetrisch bestimmt. Dabei wird als Partikelmasse die Gesamtheit der festen und flüssigen Komponenten definiert, die bei 52 °C aus dem mit Umgebungsluft verdünnten Abgas auf dem Probefilter abgeschieden werden. Eine Differenzierung nach Größe oder Form erfolgt bei diesem Verfahren nicht.

Zur Analyse der abgeschiedenen Partikel können anschließend Elektronenmikroskopie, Spektroskopie, nasschemische Verfahren usw. angewandt werden. Der Ermittlung des Rußanteils kommt besondere Bedeutung zu, weil dieser als Marker für Dieselpartikel angesehen werden kann (s. vorangegangenen Abschnitt) und dementsprechend auch bei Immissionsmessungen nach der 23. BImSchV zu analysieren ist.

Die Partikelmasse setzt sich im Wesentlichen aus dem inerten Rußkern (EC; von 20 bis 90 %) und anhaftenden organischen Stoffen (organischer Kohlenstoff, OC) sowie einer Reihe weiterer anorganischer Stoffe (4 - 7 %) wie Metalloxide, Sulfat, Nitrat usw. zusammen. Die lösliche OC-Fraktion besteht vorwiegend aus unverbranntem Kraftstoff (Paraffine C₉ bis C₄₀, 52-70 % der OC-Fraktion), polare neutrale Verbindungen (Aldehyde, Ketone; 10 % der OC-Fraktion), sauren Verbindungen (Säuren, Phenole; 10 % der OC-Fraktion) und PAKs (7 % der OC-Fraktion) zusammen (Rauterberg-Wulff, 1998). Die Abbildung 3.1.4-1 zeigt diese Zusammenhänge schematisch auf, darf also nicht als räumliche Darstellung eines Partikels missverstanden werden.

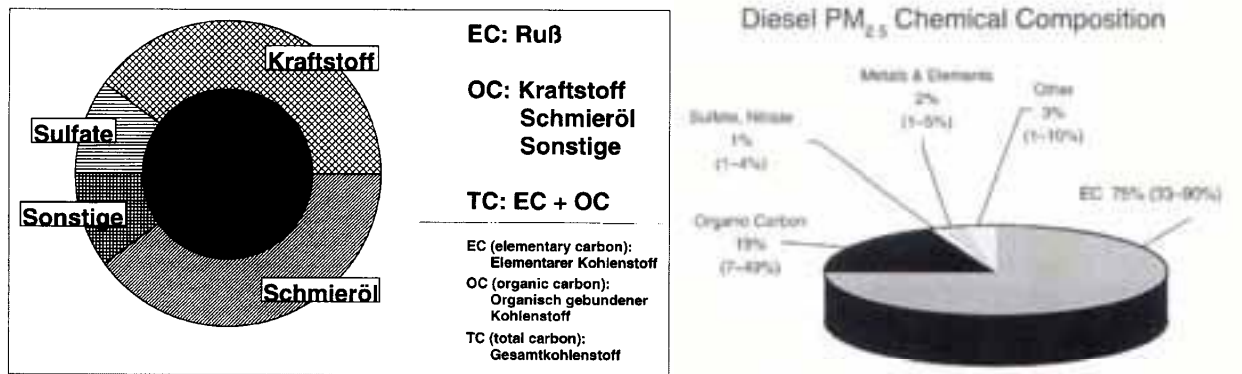


Abbildung 3.1.4-1: Bestandteile und chemische Zusammensetzung eines Dieselpartikels (Lindecke 1994, HEI 2003).

IFEU (2000) weist auf vielfältige Einflußgrößen beim Standardverfahren hin, die zu Artefakten bei der Ermittlung von Partikelmasse und Partikelgröße von Dieselpartikeln führen kann.

Die geringe Verdünnung im Standardmessverfahren wirkt sich z.B. sehr stark auf die Größe von Sulfatpartikeln aus. Bei sauberen Motoren (2 mg Partikel/m³) begünstigt eine niedrige Verdünnung (1:10) das Wachstum großer Teilchen (ca. 75 nm), während unter realen Bedingungen (Verdünnung 1:1000) der Durchmesser nur ca. 5 nm beträgt. Demgegenüber waren bei den schmutzigen Motoren (10 und 50 mg Partikel/m³) unter Prüfbedingungen des Standardverfahrens kaum Sulfatpartikel messbar, während unter realen Bedingungen wiederum Durchmesser um 5 nm gemessen wurden (Kittelson, in IFEU 2000).

3.1.4.2 Immissionsmessungen

Die Partikelmesstechnik liefert Aussagen zu Größenverteilung, Masse, Oberfläche und Anzahl. Dabei werden Partikel mit einem Vorfilter nach Größe diskriminiert und auf einem Filter abgeschieden.

In früheren Jahren (z.B. seit 1960 (Metz 1999)) wurden mit dem Gesamtschwebstaub (TSP, *Total suspended particles*) feine und grobe Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser $< 57 \mu\text{m}$ ermittelt. Etwa seit Mitte der 1990er Jahre wird die Fraktion PM_{10} routinemäßig gemessen. Die Messung kleinerer Fraktionen ($\text{PM}_{2,5}$, Ultra-Feinpartikel) ist zur Zeit noch nicht Standard, d.h. dazu liegen lediglich zeitlich und regional begrenzte Einzelmessungen vor, während Zeitreihen oder flächendeckende Messergebnisse fehlen. Die Fraktionen PM_{10} , $\text{PM}_{2,5}$ und $\text{PM}_{0,1}$ werden auf einem Filter gesammelt, dem ein Vorabscheider mit einer definierten Abscheidecharakteristik vorgeschaltet ist. Der Vorabscheider schließt mindestens 50 % der Partikel mit Durchmesser $> 10 \mu\text{m}$ (bzw. 2,5 und $0,1 \mu\text{m}$) aus, die damit nicht auf dem Filter abgeschieden werden, während kleinere Partikel passieren können. Davon abgeleitet werden die in Tabelle 3.1.4-1 dargestellten Partikelklassen definiert.

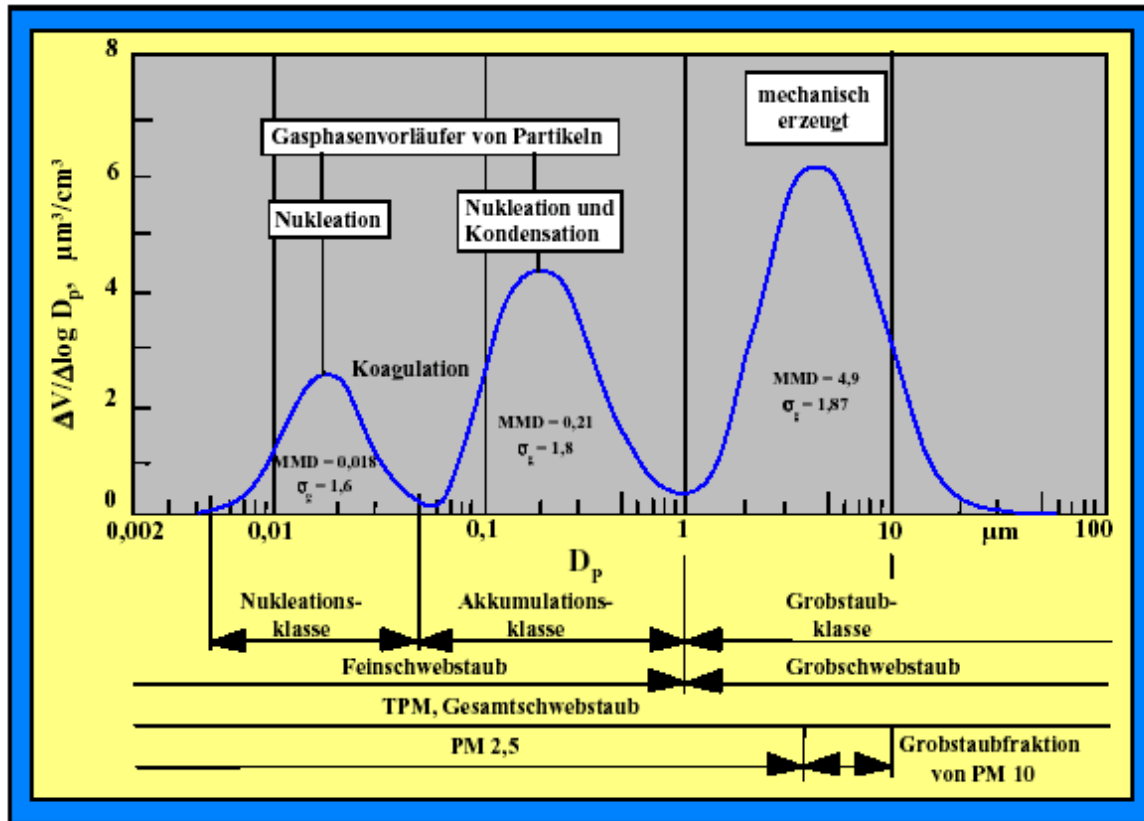
Tabelle 3.1.4-1: Gängige Definitionen von Partikelgrößenklassen*

Begriff	Gängige Definition
TSP (total suspended particulate matter)	Schwebestaub-Teilchen mit einer Sinkgeschwindigkeit $< 10 \text{ cm/s}$ und einem aerodynamischen Durchmesser** von $< 57 \mu\text{m}$
Grobe Partikel PM_{10}	aerodynamischer Durchmesser $> 2,5 \mu\text{m}$ Partikel, die durch einen Filter abgeschieden werden, dessen Abscheide-Charakteristik ihren 50 %-Durchgang bei $< 10 \mu\text{m}$ hat
Feine Partikel $\text{PM}_{2,5}$	aerodynamischer Durchmesser $< 2,5 \mu\text{m}$ analog PM_{10}
Ultra-Feinpartikel Nanopartikel $\text{PM}_{0,1}$	aerodynamischer Durchmesser $< 0,1 \mu\text{m}$ (100 nm); analog PM_{10}
Aerosol im Atembereich	Messtechnische Fraktionen**: Einatembare Fraktion, $< 100 \mu\text{m}$ Thoraxgängige Fraktion; $< 10 \mu\text{m}$ Alveolengängige Fraktion, $< 2,5 \mu\text{m}$

* Hinweis: $1 \mu\text{m}$ entspricht 1 000 nm

** Größenangaben: 50% Abscheidegrad der Trennkurve (DFG 2003, (DIN EN 481 9/93))

Die Abbildung 3.1.4-2 zeigt die Beziehungen zwischen Partikeln unterschiedlicher Herkunft und den verschiedenen messtechnischen Partikelgrößenklasse auf.



nach Whitby (1978) und John (1993)

Abbildung 3.1.4-2: Definition von Partikelgrößenklassen.

In Abbildung 3.1.4-3 sind zusätzlich die Bildungsmechanismen von Dieselpartikeln, Sekundärpartikeln und mechanisch erzeugten Partikeln dargestellt. Es ist ersichtlich, dass Partikel aus Dieselaabgasen in den Fraktionen PM_{2,5} und PM₁₀ gefunden werden. Demgegenüber stammen gröbere Partikel nicht aus Verbrennungsprozessen:

- Nukleationsbereich: Partikel (Nuklei) aus der Dampfphase mit einem Durchmesser bis ca. 50 nm.
- Akkumulations-Bereich: Aus Nuklei entstehen durch lockere Verbindung (van der Waals Kräfte) Agglomerate, die im Abgas typischerweise einen Durchmesser von ca. 60 nm bis 1 µm besitzen. An Oberflächen können die Partikel bis zu einem Durchmesser von 10 µm anwachsen.

- Mechanisch erzeugte Partikel: Durch Zerkleinerung und Abrieb werden Grobpartikel erzeugt, mit einem Durchmesser $> 2,5 \mu\text{m}$.

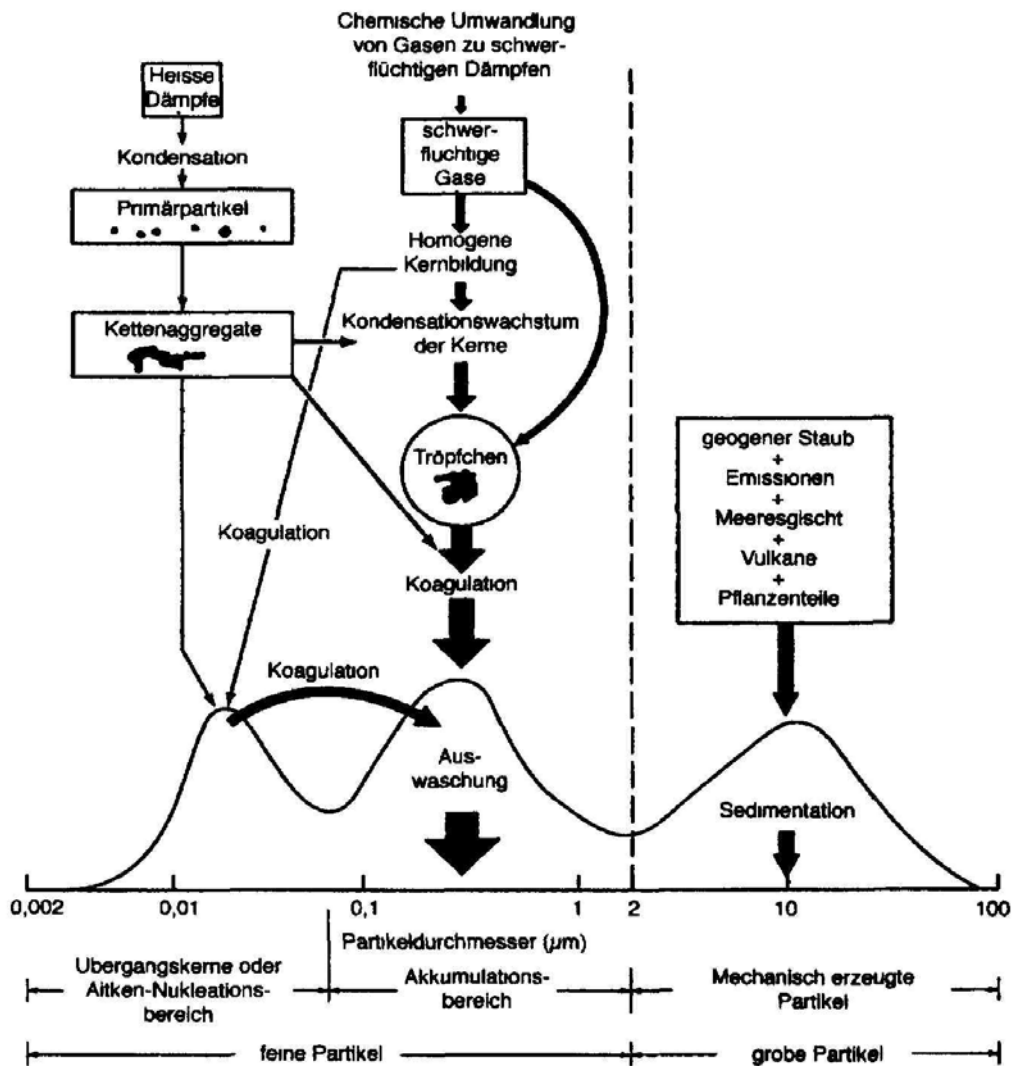


Abbildung 3.1.4-3: Bildungsprozesse und Größenverteilung von Partikeln (Spengler und Wilson 1997).

Die nachfolgende Abbildung 3.1.4-4 gibt Beispiele zu den Größenordnungen von Gasen, natürlichen und anthropogenen Partikeln und stellt sie den verkehrsbedingten partikulären Emissionen gegenüber.

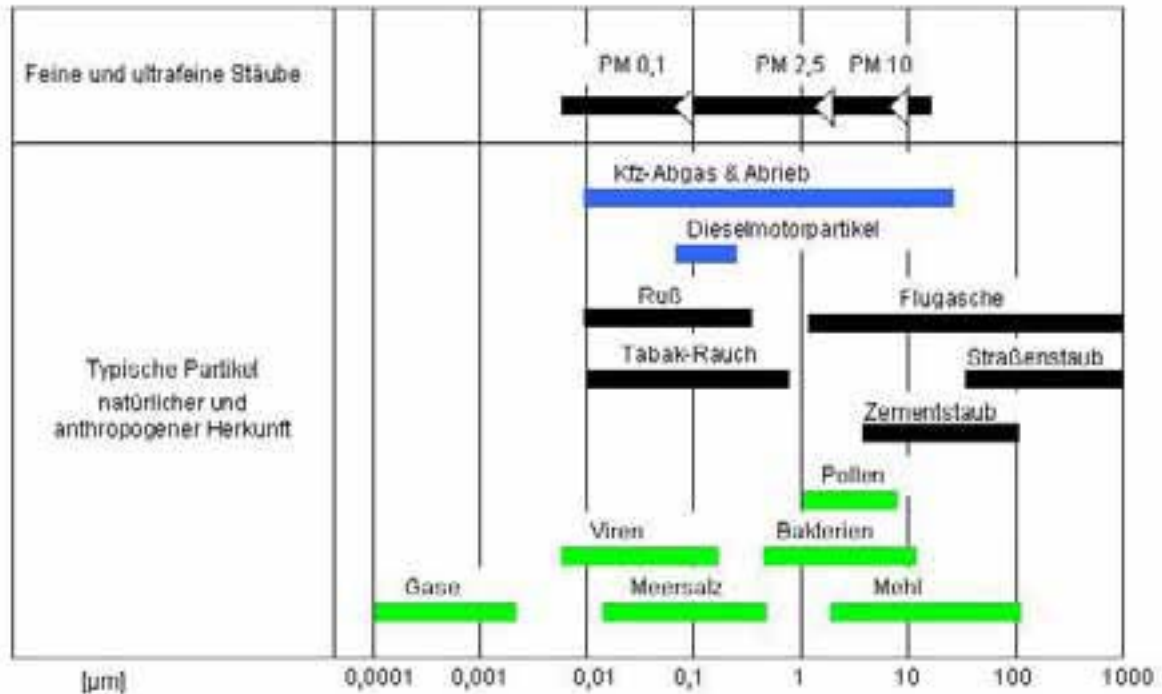


Abbildung 3.1.4-4: Größe von Partikeln aus natürlichen und anthropogenen Quellen.
(Hinweis: 1 µm = 100 nm)

Bildungsmechanismen und Zusammensetzung von Dieselpartikeln sind keinesfalls abschließend bekannt. Sie sind vielmehr Gegenstand zahlreicher Forschungsvorhaben, über die regelmäßig berichtet wird, z.B. Kittelson (1998), Jacob et al. (2003) usw.

3.2 Grenzwerte zur Emissionsbeschränkung

Die ersten Emissionsbeschränkungen für Straßenfahrzeuge kamen 1966 in Japan für Kohlenmonoxid und in den USA mit der Clean Air Act (1968) auf. Die ersten europäischen Richtlinien entstanden in 1970. Seitdem wurden die Regelwerke national und international stets fortentwickelt. Wegen der Einbeziehung unterschiedlicher Fahrzeuge und Fahrzeugklassen und wegen der häufig geänderten Prüfanforderungen, d.h. an Messtechnik, Messparameter und Testzyklen, sind die historischen und aktuellen gesetzlichen Vorgaben kaum noch zu überschauen.

Daraus folgt unmittelbar, dass Emissions-Messergebnisse kaum direkt miteinander vergleichbar sind. Die jeweiligen regionalen, zeitlichen, messtechnischen und fahrzeugtechnischen Randbedingungen und Vorgaben lassen das nicht zu. Vergleiche von Fahrzeugemissionen werden erst nach einer Reduktion auf einige wenige Kennwerte möglich.

Die nachfolgenden Tabellen geben daher die häufig verwendeten Eckdaten für Personenkraftwagen und Nutzfahrzeugen, die zu Vergleichen herangezogen werden und an denen sich die Entwicklung der europäischen Emissionsgrenzwerte nachvollziehen lässt. Die Daten sind aus den Arbeiten IFEU (2002), Kohoutek et al (1999), UBA (1999), OECD (2001), DieselNet (www.dieselnet.com) und insbesondere aus den umfassenden Übersichten von CONCAWE (1997, 2001, 2002) zusammengestellt. Der CONCAWE-Report 6/97 (1997) enthält auch eine Übersicht aller europäischen Regelungen.

Zum Vergleich mit internationalen Grenzwerten wird auf den Anhang 7.4 des vorliegenden Berichts verwiesen.

3.2.1 Personenkraftwagen mit Dieselmotoren

Die europäische Gesetzgebung reguliert Emissionen von Diesel-Pkw seit 1982 auf der Basis der US-amerikanischen Vorschriften (Kohoutek et al. 1999). Ab 1987 bis 1992 gelten die europäischen Vorschriften (83/351/EEC, Kohoutek et al. 1999). In Tabelle 3.2.1-1 sind außer den derzeit gültigen Grenzwerte auch die vorgeschlagenen verschärften Grenzwerte eingearbeitet (UBA 2003).

Tabelle 3.2.1-1: EU-Grenzwerte für Diesel-Pkw in g/km.

	Jahr der Einführung	Partikel	NO_x	HC + NO_x	CO	Testzyklus
US FTP, ECE R 15 Diesel	1982	0,37				US FTP
EURO 1 Otto Diesel	1992	- 0,18	-	1,13 1,13	3,16 3,16	ECE ₁₅ + EUDC
EURO 2 Otto Diesel ^{a)}	1996	- 0,08/0,1	-	0,5 0,7/0,9	2,2 1,0	ECE ₁₅ + EUDC
EURO 3 Otto Diesel	2000	- 0,05	0,15 0,50	- 0,56	2,3 0,64	NEFZ
EURO 4 Otto Diesel	2005	- 0,025	0,08 0,25	- 0,30	1,0 0,50	NEFZ
Vorschlag EURO 5 <i>Otto, Diesel</i>	2010	0,0025 ^{b)}	0,08	0,05 + 0,08	1,0	

^{a)} Der höhere Wert nach EURO 2 gilt für direkt-einspritzende Dieselmotoren bis zum 30.09.1999.

^{b)} In Diskussion: 0,00125 bis 0,0008 g/km (Metz, persönliche Mitteilung)

NEFZ: Neuer Europäischer Fahrzyklus – besteht aus den Testzyklen ECE₁₅ + EUDC unter Berücksichtigung der Startemissionen.

Gesetzliche Vorgaben Pkw:

Vor EURO 1: US FTP, ECE R 15 (01 bis 04) (Metz et al. 1999)

EURO 1: 91/441/EWG

EURO 2: 94/12/EWG und 96/69 EC

EURO 3: 98/69/EC

EURO 4: 98/69/EC

3.2.2 Nutzfahrzeuge

Erste europäische Regelungen zu Rauch stammen aus 1972 (72/06/EEC), weitere folgten in 1987 und 1988 (87/77/EEC und 88/77/EEC).

Tabelle 3.2.2-1: EU-Grenzwerte (g/kWh; Rauch in m⁻¹) für schwere Nutzfahrzeuge (>3,5 t) und Busse

	Jahr	Partikel	NO _x	HC	CO	Rauch ^{a)}	Testzyklus
Dimension		[g/kWh]	[g/kWh]	[g/kWh]	[g/kWh]	[m ⁻¹]	
87/77/EWG	1988	-	15,8	2,6	12,3		ECE R-49
EURO I	1992	0,4	9,0	1,23	4,9		ECE R-49
EURO II	1996 1998	0,25 0,15	7,0	1,1	4,0		ECE R-49
EURO III	2000	0,10 0,16	5,0 5,0	0,66 0,78 ^{a)}	2,1 5,45	0,8	ESC ETC
EURO IV	2005	0,02 0,03	3,5 3,5	0,46 0,55 ^{a)}	1,5 4,0	0,5	ESC ETC
EURO V	2008	0,02 0,03	2,0 2,0	0,46 0,55 ^{a)}	1,5 4,0	0,5	ESC ETC
Vorschlag EURO V	2008/ 2009	0,002 0,003	1,0 1,0	0,46 0,55 ^{b)}	1,5 4,0	--	ESC ETC ^{c)}
Vorschlag EURO VI	2010	0,002 0,003	0,5 0,5	0,46 0,55 ^{a)}	1,5 4,0	--	ESC ETC ^{c)}

a) Trübungsmessung nach ESC und ELR-Test

b) gemessen als NMHC

c) verschärfte Testzyklen

Gesetzliche Vorgaben Nutzfahrzeuge:

1982-1992: 88/77EWG
 EURO I: 91/542/EWG A EURO II: 91/542/EWG B
 EURO III, IV, V: 1999/96/EC

Rauch (opacity) wird über die Trübung mit dem ELR- Test (European Load Response Test) gemessen. Bei den niedrigen vorgeschlagenen Partikel-Werten für Nfz gibt der Test keine Ergebnisse und entfällt daher zukünftig.

3.2.3 Kraftstoffqualität

Kraftstoffeigenschaften beeinflussen Ausmaß und Zusammensetzung von Dieselmotor-emissionen. Dazu zählen die Zündwilligkeit (Cetanzahl), ein gutes Fließverhalten, Aromaten- und Polyaromatengehalt, und insbesondere der Schwefelgehalt. In Europa wurde der Schwefelgehalt von Dieselmotorkraftstoffen zunächst in 1987 auf 3000 ppm begrenzt und seitdem um rund 99 % reduziert (Tabelle 3.2.3-1).

Tabelle 3.2.3-1: Anforderungen an die Zusammensetzung von Dieselmotorkraftstoff (OECD 2001, CONCAWE 1997, 2001, 2002).

Vorschrift	Jahr	Schwefel (mg/kg)	Cetanzahl (min)	PAK (Masse-%)
85/716/EEC	1987	3000		
93/12/EEC	1994	2000		--
Deutschland freiwillig	1995	500		
93/12/EEC	1996	500		--
98/70/EC EURO 3	2000	350	51.0	11
98/70/EC EURO 4	2005	50		11

Ab dem 1.1.2003 werden in Deutschland alle Benzin- und Dieselsorten praktisch schwefelfrei (≤ 10 ppm) angeboten. Für Qualitäten, die heute noch die für 2005 vorgeschriebenen Schwefelgehalte überschreiten, werden zusätzliche Steuern in Höhe von 0,015 €/l erhoben (StMUGV, persönliche Mitteilung).

Zum Vergleich: in den USA wurde 1993 von der EPA landesweit ein Schwefelgehalt von 500 mg/kg eingeführt (Federal Highway Diesel Fuel Standard). Californien übernahm den Schwefelgehalt von 500 mg/kg und limitierte den Aromatengehalt auf 10 Vol-%. Die Cetanzahl kann dabei bis auf 40 sinken (CONCAWE 1997, 2001, 2002).

Diese Anforderungen waren in 2001 noch gültig. Zusätzlich hat die EPA für die Bundesautobahnen die schrittweise Einführung von Niedrig-Schwefel-Diesel (15 mg/kg) bis 2006 vorgeschlagen. Weiter soll die Cetanzahl mindestens 40 betragen oder der Aromatengehalt auf max. 35% begrenzt werden (CONCAWE 2002).

3.3 Messtechnik

3.3.1 Messmethoden für die Emission

Emissionsmessungen werden durchgeführt, um die Einhaltung von gesetzlichen Grenzwerten zu gewährleisten, oder für die Ableitung von Emissionsfaktoren, die dann für Emissionsmodellierungen eingesetzt werden können.

Bei der Messung von Fahrzeugemissionen werden auf einem Rollenprüfstand möglichst wirklichkeitsnahe Fahrzustände simuliert und die Emissionen als Gramm pro Kilometer (g/km), für Nfz teilweise auch als Gramm pro Kilowattstunde (g/kWh) berechnet. Bei gesetzlichen Abgasuntersuchungen werden für Pkw definierte Fahrzyklen durchgeführt, für Nfz werden bestimmte Lastzustände an den Motoren vermessen. Die Abgase werden gemäß der EU-Richtlinie 88/77/EWG aus dem Jahre 1987 (EU 1987) verdünnt und gemessen. Unterschieden wird zwischen Vollstromverdünnung (Abb. 3.3.1-1), bei der das gesamte Abgas in einem Verdünnungstunnel mit gefilterter Umgebungsluft verdünnt wird, und Teilstromverdünnung, bei der nur ein Teil des Abgasstromes verdünnt wird.

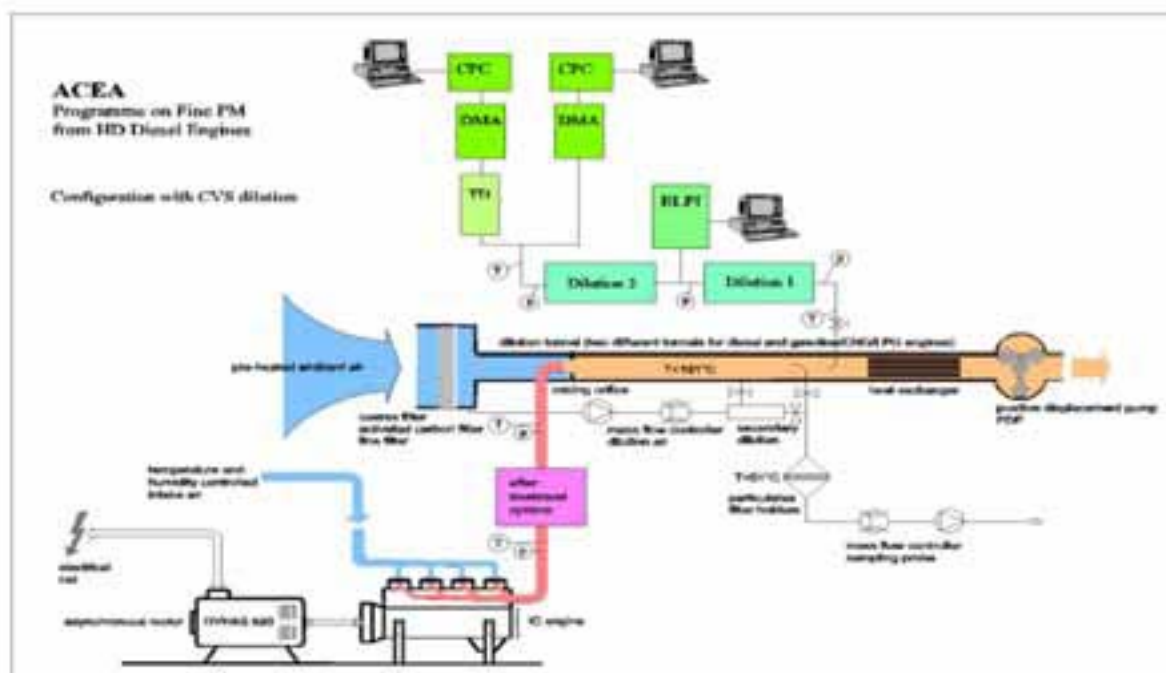


Abbildung 3.3.1-1: Prüfstand mit Vollstromverdünnung (Stein 2001).

Messmethoden für die Gasphase

Die Bestandteile der Gasphase werden in einer Abgasanalyseanlage (Analysatoren), die an die Abgassammelanlage gekoppelt ist (Abb. 3.3.1-1), mit Messtechniken bestimmt, die denen der Immissionsmessungen entsprechen. Kohlenmonoxid (CO) und Kohlendioxid (CO₂) werden mittels Infrarotspektrometrie, Stickstoffoxide mittels Chemolumineszenz-Analysatoren und Kohlenwasserstoffe (HC) und einzelne HC-Komponenten mittels Gaschromatographie mit Flammenionisationsdetektor bestimmt.

Messmethoden für Dieselpartikel

Im Gegensatz zu gasförmigen Komponenten lassen sich Dieselpartikel nicht eindeutig durch eine Messung bestimmen. Für die Messung bzw. Analyse von Partikeln muss deshalb zunächst festgelegt werden, welche Partikeleigenschaft charakterisiert werden soll. Bei der gesetzlich vorgeschriebenen Abgasprüfung ist nur die Partikelmasse erforderlich, während in der Forschung weitere physikalischen Eigenschaften (Anzahl, Größenverteilung, Oberfläche, Morphologie) und die chemische Zusammensetzung von Interesse sein können.

1. Standardverfahren

Unter der Partikelemission eines Fahrzeuges wird im allgemeinen die mit dem Abgas emittierte Gesamt-Partikelmasse verstanden. Diese Partikelmasse ist definiert über das Messverfahren. Die EU-Richtlinie 88/77/EWG definiert den Begriff Partikelmasse als die Gesamtheit jener festen und flüssigen Abgasbestandteile, die dem Abgas isokinetisch entnommen, mit gefilterter Umgebungsluft verdünnt (1:5 bis 1:10) und auf maximal 51,7°C abgekühlt auf einem definierten Probefilter abgeschieden werden. Die Bestimmung der Masse erfolgt durch Wägung nach vorgeschriebener Konditionierung (Temperatur und Feuchte).

Die nach diesem weltweit gültigen gesetzlichen Verfahren (Standardmessverfahren) gravimetrisch ermittelte Partikelmasse (PM) ist bezüglich der chemischen Zusammensetzung, der Größenverteilung und Anzahl der Partikel nicht weiter spezifiziert.

Zahlreiche Untersuchungen von Kittelson (1999a, 1999b, 1999c), Gruber et al. (1999) und Mayer (1999) weisen übereinstimmend darauf hin, dass unter den vorgeschriebenen Messbedingungen des Standardverfahrens gasförmige Kohlenwasserstoffe und Schwefelsäureprodukte kondensieren und als Partikelmasse erfasst werden, und dass dieser Anteil wegen der wesentlich höheren Verdünnung unter realen Verkehrsbedingungen wahrscheinlich wesentlich geringer ist (IFEU 2000). Gerade bei emissionsärmeren Fahrzeugen (z.B. mit Partikelfilter), bei denen die Nachweisgrenze des Verfahrens erreicht wird, kann diese Kondensation den Messwert stark beeinflussen. Nach ACEA (2002) ist eine zuverlässige Bestimmung unterhalb von 10 mg Partikelmasse auf dem Filter nicht möglich.

2. Alternativen zum Standardverfahren

Derzeit wird diskutiert, ob die massenbezogene Partikelbegrenzung auch in der Zukunft der geeignete Parameter für die Grenzwertfestlegung ist. Deshalb wurde im Jahr 2001 auf Ebene der UNECE (<http://www.unece.org>) die Expertengruppe „Particle measurement Programme (PMP)“ unter Vorsitz von Großbritannien gegründet, die sich unter anderem mit der Validierung von Partikelmessstechniken beschäftigt, mit denen dann auch die Emissionen von Fahrzeugen mit Partikelfilter zuverlässig bestimmt werden können.

Diese Expertengruppe kam im Juni 2003 zu dem Ergebnis, dass unter den derzeit verfügbaren Methoden die Bestimmung von geringen Partikelmassen, wie sie nach den zukünftigen Richtlinien zu erwarten sind, am zuverlässigsten auf der Basis eines modifizierten US 2007 Verfahrens („Modified 2007 PM“) durchzuführen sind. Für die Messung der Partikelanzahl wird der Kondensationspartikelzähler (CPC) vorgeschlagen. Erste Messungen der Partikelmasse mit dem neuen Verfahren, durchgeführt von Industrie und RWTÜV Essen bestätigen übereinstimmend, dass Grenzwerte von 0,0025 g/km und 0,002 g/kWh zuverlässig bestimmt werden können, obwohl Wiederholbarkeit und Reproduzierbarkeit die heutigen Werte nicht mehr erreichen. Die Nachweisgrenze des neuen Verfahrens liegt nach Industrieangaben bei etwa 1 mg/km (UBA 2003).

Ein Vergleich zwischen dem Standardmessverfahren und dem zukünftigen Messverfahren zeigte, dass unabhängig vom Fahrzyklus die mit dem neuen Verfahren gefundene Partikelmasse etwa 50 % geringer ist (Ricardo 2003). Die Vergleichbarkeit der Messergebnisse zwischen derzeitigem und zukünftigem Verfahren ist damit nicht mehr gegeben.

3. Neuere Entwicklungen

Neuere Entwicklungen in der Aerosolmesstechnik ermöglichen seit Ende der 80er Jahre eine größenfraktionierte Bestimmung der Schwebstaubmasse und deren Inhaltsstoffe sowie die Partikelanzahl (Kuhlbusch et al. 2000 und <http://www.tsi.com>). Diese weitaus komplexeren Methoden ermöglichen eine zeitaufgelöste Messung der Kenngrößen und erfordern darüber hinaus eine stärkere Abgas-Verdünnung als im oben beschriebenen Standardverfahren.

Generell können die Verfahren der Partikelmessstechnik in Sammelverfahren und *in situ* Verfahren unterteilt werden (Burtscher 2001, IFEU 2000).

3.1 Sammelverfahren

Bei den Sammelverfahren werden Partikel auf einem Filter abgeschieden und anschließend physikalisch und chemisch analysiert (Gravimetrie, Mikroskopie, Spektroskopie u.a.). Zu den Sammelverfahren gehören neben dem Standardmessverfahren (s.o.) Schwärzungsmessungen wie das Bosch-Verfahren (Reflexion von eingestrahlt sichtbarem Licht wird zur Berechnung einer Schwärzungszahl herangezogen) oder beim Aethalometer-Verfahren (Schwächung eines durchtretenden Lichtstrahls). Die älteren Schwärzungszahlen

können nicht oder nur sehr ungenau in die neueren Emissionsfaktoren umgerechnet werden (Wagner, persönliche Mitteilung).

Bei der Verwendung von Impaktoren werden Partikel einer bestimmten Größenfraktion unter Ausnutzung von Trägheitseffekten auf einer Kaskade hintereinander geschalteter Platten gesammelt und anschließend analysiert (Andersson Impaktor, Berner Impaktor). Bei niedrigen Drücken kann der Größenmessbereich nach unten erweitert werden (Niederdruck-Impaktor). Wenn die Partikel vorher elektrisch geladen werden, liefert die elektrische Ladung ein Echtzeitsignal (*Electrical Low Pressure Impactor*, ELPI). Die Darstellung der Größenverteilung erfolgt dabei durch den aerodynamischen Durchmesser.

Die Spezifizierung auf elementaren Kohlenstoff erfolgt entweder nach Abtrennung des organischen Kohlenstoffs mittels Flüssigextraktion und anschließender Verbrennung zu CO₂ (coulometrisches Verfahren) oder durch Anwendung eines Temperaturprogramms, bei der die Partikelmasse entsprechend der Verdampfungstemperatur der jeweiligen Partikelbestandteile Wasser, Sulfate Kohlenwasserstoffe abnimmt (thermographisches Verfahren). Die Äquivalenz beider Messverfahren ist durch Parallelmessungen sichergestellt (UMEG 1999). Mit beiden Verfahren wird nach Aussagen von Experten eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse erreicht (IFEU 2000). Für weitere Analysen der chemischen Zusammensetzung stehen die Atomabsorption, die Massenspektrometrie, die Totalreflexions-Röntgenfluoreszenzanalyse und die partikelinduzierte Röntgenemission zur Verfügung (BIA 2003).

3.2 Insitu-Verfahren

Bei *in situ* Verfahren werden Partikelanzahl und Partikelgrößenverteilung direkt, d.h. ohne vorgeschalteter Anreicherung charakterisiert. Dadurch sind Echtzeitmessungen mit zeitlichen Auflösungen <1 Sekunde möglich. Eine konventionelle Analytik wie bei Sammelverfahren ist allerdings nicht mehr möglich, jedoch ist durch den Einsatz von Thermodesorbern eine Unterscheidung von flüchtigen (Wasser, Kohlenwasserstoffe, etc.) und nicht-flüchtigen Bestandteilen aufgrund derer unterschiedlichen Siedepunkte möglich.

Die bekannteste Methode in der Echtzeitmessung ist die Opazimetrie, die in der gesetzlich vorgeschriebenen Abgasuntersuchung (72/306/EWG) in allen Werkstätten durchgeführt wird. Dabei wird die Trübung eines Lichtstrahls durch das Abgasaerosol gemessen. Dem Verfahren werden hohe Fehlerbreiten zugeschrieben und es ist für kleine Partikel unempfindlich (Burtscher 2001; IFEU 2000).

Neuere und empfindlichere Messmethoden zur Bestimmung der Partikelanzahl sind der Kondensationszähler (CPC) und der aerodynamische Partikelzähler (APS). Der APS misst Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser zwischen 0,5 – 20 µm in einem optischen Verfahren (Lichtstreuung und Sinkgeschwindigkeit) und kann sowohl die Anzahl, als auch den Partikeldurchmesser bestimmen. Partikel mit einem kleineren Durchmesser können nicht mehr direkt durch optische Verfahren vermessen werden. Daher werden beim CPC die Partikel durch Anlagerung an n-Butanol in einer übersättigten Gasphase vergrößert und

anschließend mit optischen Verfahren gezählt. Die Bestimmung der ursprünglichen Partikelgröße ist selbstverständlich nicht mehr möglich.

Für die Bestimmung von Partikelanzahl und Partikelgrößenverteilungen von Ultra-Feinpartikel *in situ* werden deshalb die weit verbreiteten SMPS (Scanning Mobility Particle Sizing) und DMPS (Differential Mobility Particle Sizing) Geräte eingesetzt. SMPS und DMPS sind gleich aufgebaut (Differenzieller Mobilitätsanalysator DMA, CPC) und unterscheiden sich nur in der elektronischen Steuereinheit. Der DMA trennt in einem elektrischen Feld die Partikel aufgrund ihrer Größe, die dann in einem CPC gezählt werden. Dadurch können die Partikel in sehr kleine größenabhängige Fraktionen unterteilt werden und durch die Veränderung von Geräteeinstellungen ist die Messung im Größenbereich von 3 nm to 1 µm möglich (ACEA 2002; Burtscher 2001). Die Partikelgrößenverteilung wird dabei durch den Beweglichkeitsdurchmesser beschrieben, der nicht mit dem aerodynamischen Durchmesser vergleichbar ist (ACEA 2002). Die mit dem Mobilitätsdurchmesser charakterisierten Teilchen haben bei Kontrollmessungen mit dem Mikroskop einen um ca. 30 % größeren geometrischen Durchmesser (Metz, persönliche Mitteilung).

Eine kurze Gegenüberstellung gängiger Methoden der Partikelmesstechnik mit den jeweiligen Nachweisgrenzen findet sich in der nachfolgenden Tabelle. Detailliertere Informationen zu diesen und weiteren Messverfahren und Messgeräten finden sich im Anhang 7.5.

Tabelle 3.3.1-1: Gegenüberstellung von gängigen Messverfahren in der Partikelanalytik. bezüglich Messparameter und Größenbereich der erfassten Partikel.

Messverfahren	Gemessener Parameter	Größenbereich	Berechnete Einheit
Standardmessverfahren	Partikelmasse	unspezifisch, Nachweisgrenze 10 mg/Filter	g/km; g/kWh
Alternative:			
Modified 2007 PM	Partikelmasse	unspezifisch Nachweisgrenze 1 mg/km	g/km; g/kWh
Neuere Methoden			
CPC (in situ-Verfahren)	Partikelanzahl	unspezifisch mind. ab 3 nm Nachweisgrenze 0,007 Part./cm ³	Partikel/cm ³
SMPS/DMPS (in situ-Verfahren)	Größenverteilung, Partikelanzahl	3–1000 nm; Beweglichkeitsdurchmesser	1/km; 1/s
ELPI (Sammelverfahren)	Größenverteilung	46 – 863 nm; aerodynamischer Durchmesser	1/km

Werden Messungen mittels CPC, SMPS und ELPI mit und ohne einen Thermodesorber (TD) durchgeführt, so kann aus der Differenz der gemessenen Partikelzahlen u.U. auf die Chemie der Partikel rückgeschlossen werden. Der Thermodesorber besteht im wesentlichen aus einem regelbar beheizten Rohr und einer Kammer aus Aktivkohle. Wird das zu messende Aerosol durch den Thermodesorber geleitet, so verdampfen die flüchtigen Anteile mehr oder weniger stark in Abhängigkeit von der gewählten Temperatur, binden an die Aktivkohle, und werden dann nicht als Partikel erfasst. Aus der Differenz der Messergebnisse mit und ohne TD können daher die Partikel ermittelt werden, die aus flüchtigen Stoffen bestehen. Messungen bei verschiedenen Temperaturen des Thermodesorbers geben dabei Hinweise zum Siedebereich dieser Stoffe und damit indirekt auch zur chemischen Natur. Rußkerne überstehen den Thermodesorber und können mit daher getrennt von Flüssigkeitspartikeln erfasst werden.

3.3.2 Messmethoden für die Immission

Immissionsmessungen werden mit dem Ziel festgelegt und durchgeführt, die relevanten Parameter für die Gesundheitsbelastung des Menschen und für die Umweltbelastung zu erfassen. Festlegungen von Messmethoden und Bewertung für Immissionen erfolgen in Verordnungen zum Bundes-Immissionsschutzgesetz. Mit der 22. BImSchV in der Fassung vom 11. September 2002 wurden Vorgaben der europäischen Luftqualitätsrichtlinien zur Begrenzung von Schadstoffkonzentrationen sowie Vorgaben zum Messverfahren in deutsches Recht umgesetzt (Tabelle 7.2-1 im Anhang 7.2). Die Leitwerte der WHO, die als Hilfestellung bei der Risikobewertung von Luftschadstoffen und bei der Festlegung von Grenzwerten dienen sind in Tabelle 7.2-3 im Anhang 7.2 aufgelistet.

Messmethoden für die Gasphase

Die gasförmigen Luftbestandteile werden halbstündlich über das ganze Jahr gemessen. Die vorgeschriebenen Messverfahren und deren Nachweisgrenzen sind in Tabelle 3.3.2-1 zusammengefasst.

Tabelle 3.3.2-1: Im Rahmen der gesetzlichen Immissionsmessungen erfassten gasförmigen Luftschadstoffe, Messverfahren und Nachweisgrenzen (UMEG 2002).

Verbindung	Messverfahren	Nachweisgrenze
Stickstoffdioxid (NO ₂)	Chemilumineszenz	2,5 µg/m ³
Stickstoffmonoxid (NO)	Chemilumineszenz	2,5 µg/m ³
Schwefeldioxid (SO ₂)	UV-Fluoreszenz	2,0 µg/m ³
Kohlenmonoxid (CO)	IR-Absorption	125 µg/m ³
Ozon (O ₃)	UV-Verfahren, Chemilumineszenz	2,0 µg/m ³ 2,0 µg/m ³
Gesamtkohlenwasserstoffe (HC)	Gaschromatographie	Keine Angaben

Messmethoden für Partikel

Bei der PM₁₀-Partikelmessung nach dem festgelegten Verfahren (22. BImSchV) werden große Luftmengen der Umgebungsluft durch einen PM₁₀-Vorabscheider geführt, der bei einem aerodynamischen Durchmesser von 10 µm einen Abscheidegrad von 50 % aufweist. Für die Bestimmung der PM₁₀-Konzentration wird die auf dem Filter abgeschiedene Gesamtmasse bestimmt und auf die Luftdurchflussrate bezogen. Je nach eingesetztem Gerät unterscheiden sich die Messungen in der Anzahl der Proben pro Jahr und aufgrund unterschiedlichen Volumenstroms bezüglich der Probennahmedauer. Die gesetzlich zugelassenen Geräte zeigen nach Aussagen von Experten (UMEG 1997, IFEU 2000) eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Von einer zusätzlicher Kondensatbildung während der Messung, wie bei der Emission (s.o.), ist nicht auszugehen (IFEU 2000).

Für weiterführende Untersuchungen können auch kleinere Vorabscheider ($PM_{2,5}$ oder $PM_{0,1}$) eingesetzt werden, bei Routinemessungen kommen diese jedoch nicht zum Einsatz. Die in der Vergangenheit durchgeführten Schwebstaubmessungen (TSP) wurden mit einem Ringspaltvorabscheider durchgeführt (UMEG 2002).

Ultra-Feinpartikel werden im UBA-Messnetz mit einem hochauflösenden Teilchenzahlmessgerät (SMPS) in einem Größenbereich von 8 – 250 nm (elektrodynamischer Mobilitätsdurchmesser) gemessen (UBA-Texte 69/02). Bei den Messungen in Erfurt (Kreyling et al. 2003) wurden mobile Aerosolspektrometer eingesetzt, bestehend aus einem DMPS für Partikelgrößen von 0,01 – 0,5 μm und einem optischen Laseraerosolspektrometer für Partikelgrößen von 0,1 – 2,5 μm .

Der Anteil von EC am Feinstaub wird überwiegend thermogravimetrisch (Nachweisgrenze 0,4 $\mu g/m^3$, Messmethode: VDI 2465) bestimmt. Weitere untersuchte Inhaltsstoffe des Schwebstaubs sind Benzo[a]pyren, Benzol, Metalle (Blei, Cadmium, Arsen, Nickel), Toluol und Xylol (UMEG 2002).

Zu Forschungszwecken werden für die Differenzierung der Partikel nach Größenklassen Impaktoren eingesetzt (Rauterberg-Wulff, 1998), und um eine höhere zeitliche Auflösung zu erreichen bedient man sich z.B. dem Aethalometer (s.o.) (IFEU 2000). Zimmermann (2001) bietet eine Übersicht der analytischen Methoden.

3.3.3 Arbeitsplatzmessungen

Grenzwerte für die Konzentration von Stoffen in der Luft am Arbeitsplatz sind mit Bezug auf den „Einatembaren Staub (E)“ oder den „Alveolengängigen Staub (A)“ definiert und werden mit entsprechend festgelegten Verfahren (DIN/EN 481, 1993) gemessen. Diese Verfahren unterscheiden sich von denen, die bei Immissionsmessungen für die Ermittlung von PM_{10} oder $PM_{2,5}$ zur Anwendung kommen. PM_{10} entspricht der „Thoraxgängigen Fraktion“ und $PM_{2,5}$ der „Alveolengängigen Fraktion“. Die Verfahren zur Ermittlung der Arbeitsplatzkonzentration erfassen auch den nicht deponierten und wieder ausgeatmeten Anteil des Aerosols (DFG, MAK-Kommission 2003).

FAZIT

- Emissionsmessungen für gasförmige und feste Komponenten von Motorabgasen werden seit über 25 Jahren durchgeführt.
- Seit 1988 gibt es für die Emission von Partikelmasse ein europaweit vorgeschriebenes Standardverfahren, dessen Ergebnisse nicht mit denen anderer Verfahren vergleichbar sind.
- Das Standardmessverfahren liefert keine Aussagen über Partikelanzahl und –größe.
- Artefaktbildung kann beim Standardverfahren nicht ausgeschlossen werden.
- Um die geringen Partikelemissionen von Fahrzeugen mit Partikelfilter erfassen zu können wird ein neues Verfahren basierend auf dem Standardmessverfahren erprobt.
- Das Verfahren das zur Erfassung von PM₁₀-Immissionskonzentrationen verwendet wird unterscheidet sich grundsätzlich vom Standardmessverfahren der Emissionsmessung.
- Messung von Partikelgrößen und Partikelanzahl finden immer mehr Anwendung.

3.4 Ergebnisse von Emissionsmessungen

Ein Vergleich des Emissionsverhaltens von Fahrzeugen mit Grenzwerten und Emissionsfaktoren ist nicht nur für die Zulassung der jeweiligen Fahrzeugmuster erforderlich sondern bietet für unsere Zwecke einen bis in die Mitte der 1980er Jahre zurückreichenden Maßstab, der nachvollziehbar und nach festen Kriterien entwickelt worden ist. Auf diese Weise werden Unterschiede und Abweichungen in der Methodik erheblich minimiert und es ergibt sich über ein größeres Zeitfenster ein fester Maßstab (Abschnitte 3.4.1 bis 3.4.2.2.2).

Für weiter zurückliegende Zeiträume ergibt sich beim Vergleich von Einzelarbeiten das Problem der Vergleichbarkeit von Messergebnissen. Die Einflüsse von Fahrzyklus, Kraftstoff und Messtechnik auf das Ergebnis sind ganz erheblich. Daher werden hier solche Arbeiten bevorzugt, bei denen die untersuchende Stelle längere Zeitreihen bearbeitet hat, damit eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse gegeben ist. Allerdings sind nicht in jedem Fall die gewünschten Zeitreihen auch verfügbar, so dass gelegentlich auf Einzelarbeiten zur Abrundung eines Gesamtbildes zurückgegriffen wird (Abschnitt 3.4.3 bis 3.4.5).

3.4.1 Grenzwerte und Emissionsfaktoren

Neben den Abgas-Grenzwerten (Abschnitt 3.2) können Emissionsfaktoren zum Vergleich mit Abgasmessungen herangezogen werden. Diese Faktoren wurden für Modellierungen ausgehend von einigen wenigen Abgasmessungen von einer Expertengruppe festgelegt und dienten zur Abschätzung künftiger Emissionen. Diese Prognosen waren wiederum Entscheidungsgrundlage für die Grenzwertfindung, insofern ergänzen sich in Deutschland Grenzwerte und Emissionsfaktoren. Beide können zum Vergleich mit gemessenen Emissionen herangezogen werden, sie unterscheiden sich geringfügig, weil bei den Abgas-Grenzwerten ein anderer Fahrzyklus zugrunde liegt.

Metz (2003a) hat aus Prüfstandsmessungen von 1970 bis 1990, also aus dem Zeitraum vor der EU-Grenzwertsetzung, Partikel- und NO_x-Emissionsfaktoren zusammengestellt. Demnach ergibt sich in diesem Zeitraum bei Pkws für die **Partikelemission** eine Reduktion um ca. 80 % und bei Nutzfahrzeugen um ca. 20 – 25%. Die **Stickstoffoxidemissionen** der Pkws reduzierten sich demnach um rund 65 % von 0,9 in 1970 auf etwa 0,3 g/km in 1990; für Nutzfahrzeuge sind keine Vergleichswerte angegeben (Abbildung 3.4.1-2).

Anhand dieser Daten sollen nachfolgend exemplarisch die Probleme aufgezeigt werden, die beim Vergleich von Daten aus unterschiedlichen Quellen auftreten können. Werden nämlich die Angaben aus 1970 mit den aktuellen Grenzwerten verglichen, resultieren geringere Fortschritte: der aktuelle Grenzwert EURO 3 für Pkw limitiert seit dem Jahr 2000 die Stickoxide auf 0,5 g/km, d.h. gegenüber dem Ausgangswert von 0,9 g/km in 1970 würde dies einen Rückgang um nur 45% bedeuten. Diese geringe Verbesserung ist allerdings nicht sonderlich realistisch, weil die von Industrie und UBA verwendeten Emissionsfaktoren alleine im Zeitraum „Mitte der 1980er Jahre“ bis EURO 3 eine Verbesserung um rund 55% ausweisen (s. Tabelle 3.4.1-1).

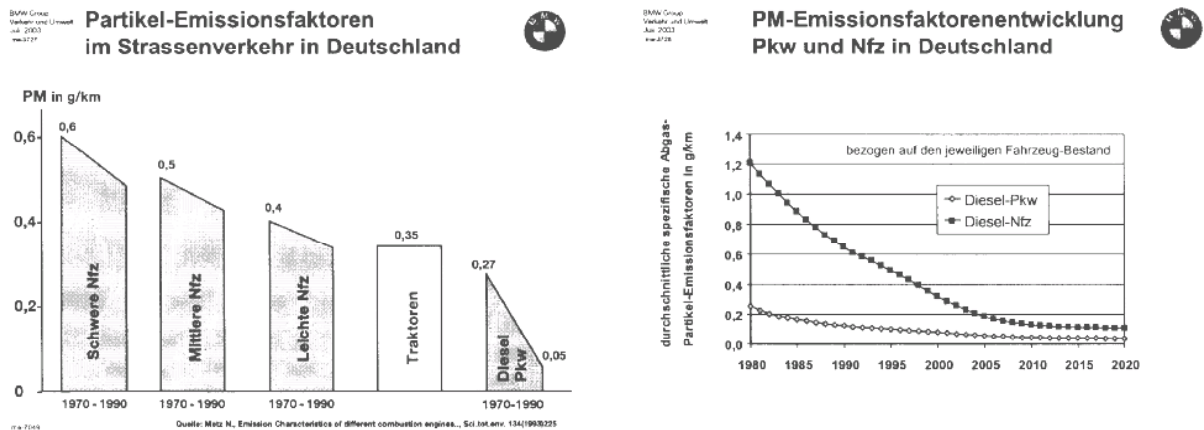


Abbildung 3.4.1-1: Entwicklung der PM-Emissionsfaktoren (Metz 2003a).
Links: Daten 1970 gegenüber 1990 für Pkw und Nutzfahrzeuge.
Rechts: Modellerte Daten für die Diesel-Fahrzeugflotte im Zeitraum 1980-2020.

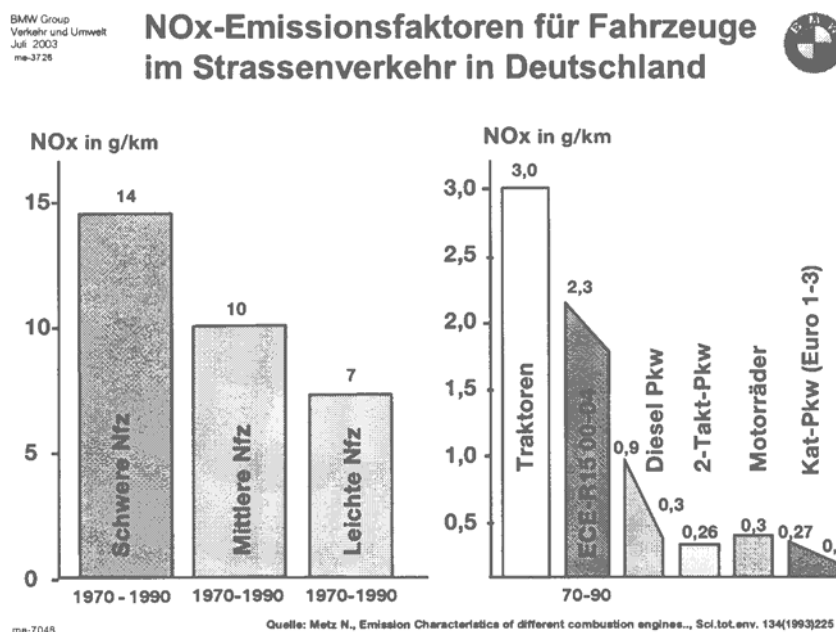


Abbildung 3.4.1-2: Entwicklung der NO_x-Emissionsfaktoren (Metz 2003a). **Pkw** (rechts): Daten 1970 gegenüber 1990. **Nutzfahrzeuge** (links): Stand von ca. 1987.

Nachfolgend sind die Emissionsfaktoren für Mittelklassewagen mit Otto- bzw. Dieselmotor sowie für Diesel-Busse (Nutzfahrzeug) für den Innerortverkehr aufgeführt, die das UBA bei seiner Risikoabschätzung in UBA 2/1999 verwendet hat (Tabelle 3.4.1-1). Bei Modellrechnungen mit TREMOD werden abweichende Faktoren verwendet.

Tabelle 3.4.1-1: Emissionsfaktoren für Diesel- und Otto-Pkw im Innerortsverkehr bei verschiedenen Grenzstufen (nach UBA 2/99).

		ECE R 15/04 „Mitte 80er“	EURO 2 1998	EURO 3 2000	EURO 4 2005	EURO 4 + PF
Partikel (mg/km)	Diesel-Pkw	320	75	51	27	10
	Otto-Pkw	14	0,5	0,5	0,5	
	Diesel-Bus	780	240	160	78	31
Partikelkern (mg/km)	Diesel-Pkw	190	60	41	21	2,0
	Otto-Pkw	8,4	0,15	0,15	0,15	
	Diesel-Bus	310	94	63	31	6,3
NO _x (g NO ₂ /km)	Diesel-Pkw	0,91	0,55	0,42	0,28	
	Otto-Pkw	1,7	0,24	0,12	0,08	
	Diesel-Bus	18	11	7,1	3,6	
Benzol (mg/km)	Diesel-Pkw	11	1,9	1,7	1,4	
	Otto-Pkw	220	35	14	8,0	
	Diesel-Bus	42	21	17	15	
Benzo[a]pyren (µg/km)	Diesel-Pkw	6	0,9	0,8	0,7	
	Otto-Pkw	20	2,5	1,1	0,8	
	Diesel-Bus	7,2	3,6	2,9	2,5	
Formaldehyd (mg/km)	Diesel-Pkw	56	13	11	9,7	
	Otto-Pkw	55	6,3	2,9	1,9	
	Diesel-Bus	130	63	51	44	
Acetaldehyd (mg/km)	Diesel-Pkw	39	7,2	6,2	5,3	
	Otto-Pkw	26	3,8	1,7	1,2	
	Diesel-Bus	47	23	19	16	
1,3-Butadien (mg/km)	Diesel-Pkw	10	2,0	1,8	1,5	
	Otto-Pkw	19	30	1,2	0,8	
	Diesel-Bus	44	22	18	16	

Gegenüber den Faktoren von Metz (2003a) sind die Tabellenwerte geringfügig erhöht, weil sie sich nicht auf einen Fahrzyklus beziehen, sondern die spezielle Situation des städtischen Innerortsverkehrs mit Stop-and-Go und geringen Geschwindigkeiten bezieht.

3.4.2 Einflüsse der Motortechnik auf Emissionen

Bis zur Stufe EURO 3 und bei den kleineren Motoren bis zu EURO 4, die heute teilweise schon am Markt sind, erreichen Dieselmotoren die Einhaltung von Grenzwerten mit innermotorischen Maßnahmen in Verbindung mit verbesserten Kraftstoffe. Bei hubraumstärkeren Modellen geht die Industrie von der Notwendigkeit zusätzlicher Abgasreinigungstechniken aus.

Die Entwicklung des Emissionsverhaltens von Diesel-Pkws seit Ende der 1980er Jahre ist in der nachfolgenden Grafik skizziert (Abb. 3.4.2-1), die die Verminderung der Emissionsfaktoren widerspiegelt.

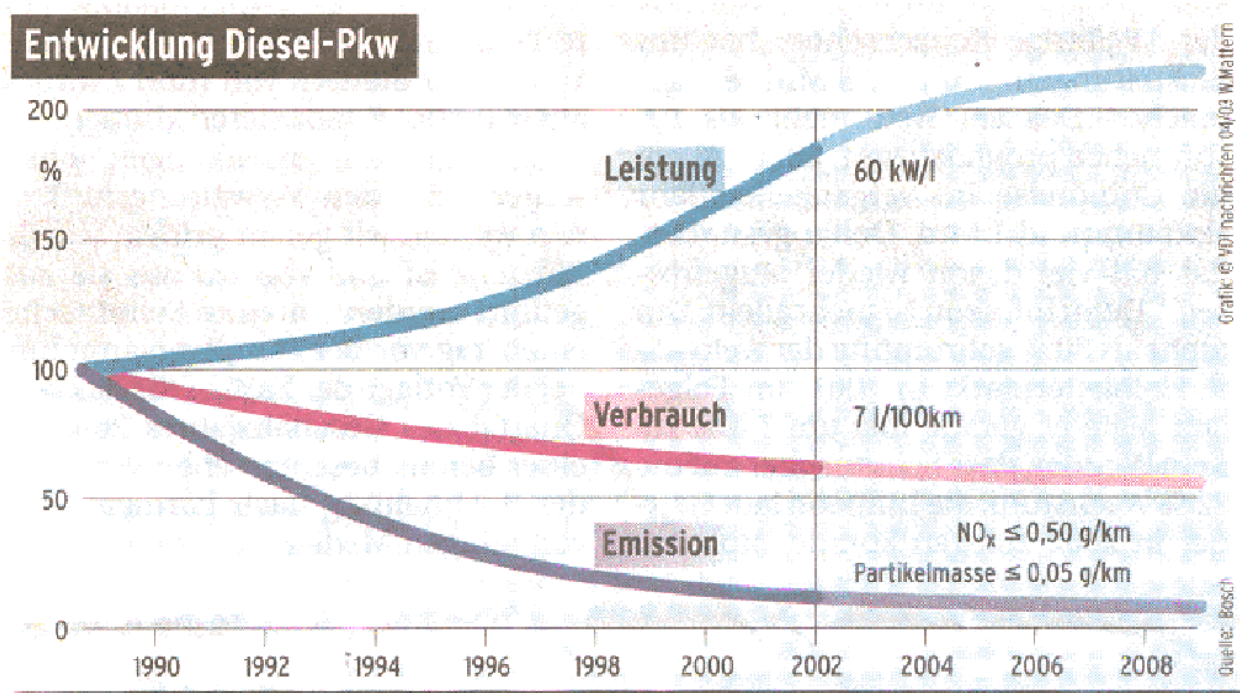


Abbildung 3.4.2-1: Dieselmotorentwicklung seit Ende der 1980er Jahre (VDI-Nachrichten 04/2003).

3.4.2.1 Vergleich mit Emissionsfaktoren

3.4.2.1.1 Personenkraftwagen

Je nach Schadstoff sind die Emissionen von Fahrzeugen der Stufe EURO 4 (2005) um 70 - 90 % gegenüber den Ausgangswerten Mitte der 1980er Jahre vermindert (Tab. 3.4.2-1). Der größte Fortschritt von ca. 90 % wird dabei beim Ausstoß von Partikeln bzw. beim Partikelkern (EC) erreicht, und zwar bei Pkw und Nutzfahrzeug gleichermaßen. Bei NO_x fällt die Minderung mit 70 % deutlich geringer aus.

Tabelle 3.4.2-1: Reduktion der Emissionsfaktoren für Diesel-Pkw im Innerortsverkehr (nach UBA 2/99).

		ECE R 15/04 „Mitte 1980er“	EURO 4 2005
Partikel	Diesel-Pkw	100 %	- 92 %
Rußkern (EC)	Diesel-Pkw	100 %	- 89 %
NO_x	Diesel-Pkw	100 %	- 70 %
Benzol	Diesel-Pkw	100 %	- 87 %
Benzo[a]pyren	Diesel-Pkw	100 %	- 88 %
Formaldehyd	Diesel-Pkw	100 %	- 83 %
Acetaldehyd	Diesel-Pkw	100 %	- 86 %
1,3-Butadien	Diesel-Pkw	100 %	- 85 %

Die Partikelgesamtmasse und die Masse des Partikelkerns korrelieren in Abhängigkeit der Versuchs- und Messbedingungen mehr oder weniger gut (IFEU 2000). Der EC-Gehalt (Partikelkern) beträgt nach Auswertung von Daten aus der Literatur (UBA 2/99) bei den älteren Diesel-Pkw ohne Oxidationskatalysator (OxiKat) 40 - 80 % der Partikelmasse mit einem Schwerpunkt bei 60 %. Fahrzeuge der Stufen EURO 2 und EURO 3 verfügen in der Regel über einen OxiKat. Bei diesen Fahrzeugen liegt der EC-Anteil bei ca. 80 %. Diese Verhältnisse sind in die oben stehenden Emissionsfaktoren eingerechnet (UBA 2/99).

Der OxiKat vermindert die Emissionen an CO und HC und beeinflusst damit die Voraussetzungen für den OC. Im Hinblick auf die chemische Zusammensetzung bedeutet dies, dass der Anteil des Partikelkerns (EC) mit der Einführung des OxiKats zugenommen und der Anteil der löslichen organischen Kohlenstoffverbindungen (OC) gegenüber früher abgenommen hat.

3.4.2.1.2 Nutzfahrzeuge

Analog zu den Pkw haben die Autoren der Studie (UBA 2/99) bei Diesel-Nutzfahrzeugen mit Direkteinspritzung ohne Abgasnachbehandlung (also auch ohne Oxidationskatalysator, der bei Nutzfahrzeugen generell nicht zum Einsatz kommt) für den Anteil von EC an den Partikelemissionen eine Bandbreite von 25 - 75 % mit einem Schwerpunkt bei 40 % ausgemacht. Daher wurde für Nutzfahrzeuge generell 40 % der Partikelmasse als Emissionsfaktor für den Partikelkern festgelegt (UBA 2/99), d.h. bei Nutzfahrzeugen ist der Anteil der löslichen organischen Kohlenstoffverbindungen (OC) an der emittierten Partikelmasse gegenüber den Verhältnissen Mitte der 1980er Jahre nicht verändert.

Absolut vermindern sich die Emissionen von Nutzfahrzeugen, für die der Diesel-Bus stellvertretend steht, seit Mitte der 1980er Jahre bis 2005 (EURO IV) um ca. 90 % (Partikel, Partikelkern) bis 65 % (Aldehyde, 1,3-Butadien). NO_x wird mit der Stufe EURO IV um 80 % vermindert (Tabelle 3.4.2-2)

Tabelle 3.4.2-2: Reduktion der Emissionsfaktoren für Diesel-Nutzfahrzeuge im Innerortverkehr (nach UBA 2/99).

		ECE R 15/04 „Mitte 80er“	EURO 4 2005
Partikel	Diesel-Bus	100 %	- 90 %
Partikelkern (EC)	Diesel-Bus	100 %	- 90 %
NO_x	Diesel-Bus	100 %	- 80 %
Benzol	Diesel-Bus	100 %	- 65 %
Benzo[a]pyren	Diesel-Bus	100 %	- 65 %
Formaldehyd	Diesel-Bus	100 %	- 65 %
Acetaldehyd	Diesel-Bus	100 %	- 65 %
1,3-Butadien	Diesel-Bus	100 %	- 65 %

3.4.2.2 Vergleich mit Grenzwerten

3.4.2.2.1 Personenkraftwagen

Die Abgas-Grenzwerte für Diesel-Pkw wurden bereits in Abschnitt 3.2 dargestellt. Durch motortechnische Maßnahmen und eine gleichzeitige Verbesserung der Kraftstoffe gelang es, mit den bisherigen Grenzwertabsenkungen Schritt zu halten (Abb. 3.4.2-2).

Demnach wurde der Partikelgrenzwert für Pkw innerhalb von rund 20 Jahren von 0,37 g/km in 1982 um rund 86 % (2000, EURO 3) bzw. 94 % (2005, EURO 4) herabgesetzt. Kohlenmonoxid ist mit EURO 4 um rund 85 % gegenüber 1992 reduziert, und HC und NO_x um rund 75 % im gleichen Zeitraum.

Bei NO_x wurden bisher ein geringerer technischer Fortschritt erreicht. Dies resultiert aus der vorrangigen Reduzierung der Partikel gegenüber den Stickstoffoxiden. Weiter unten wird auf den bestehenden Zielkonflikt näher eingegangen.

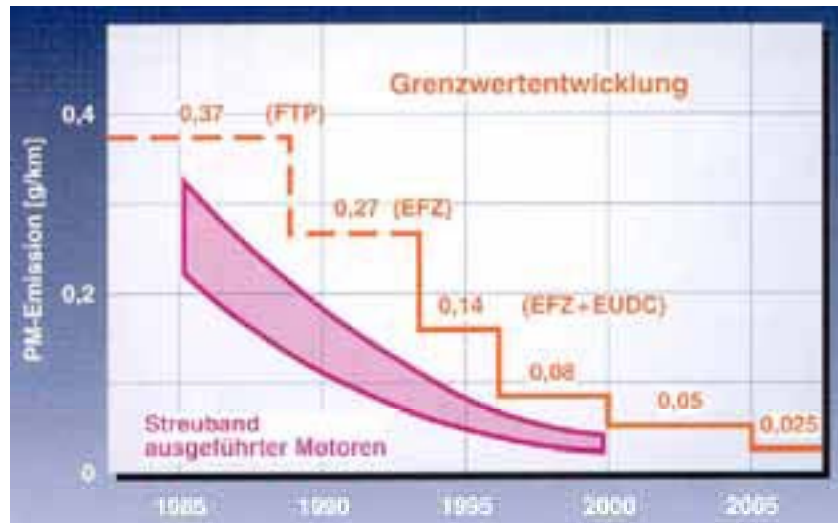
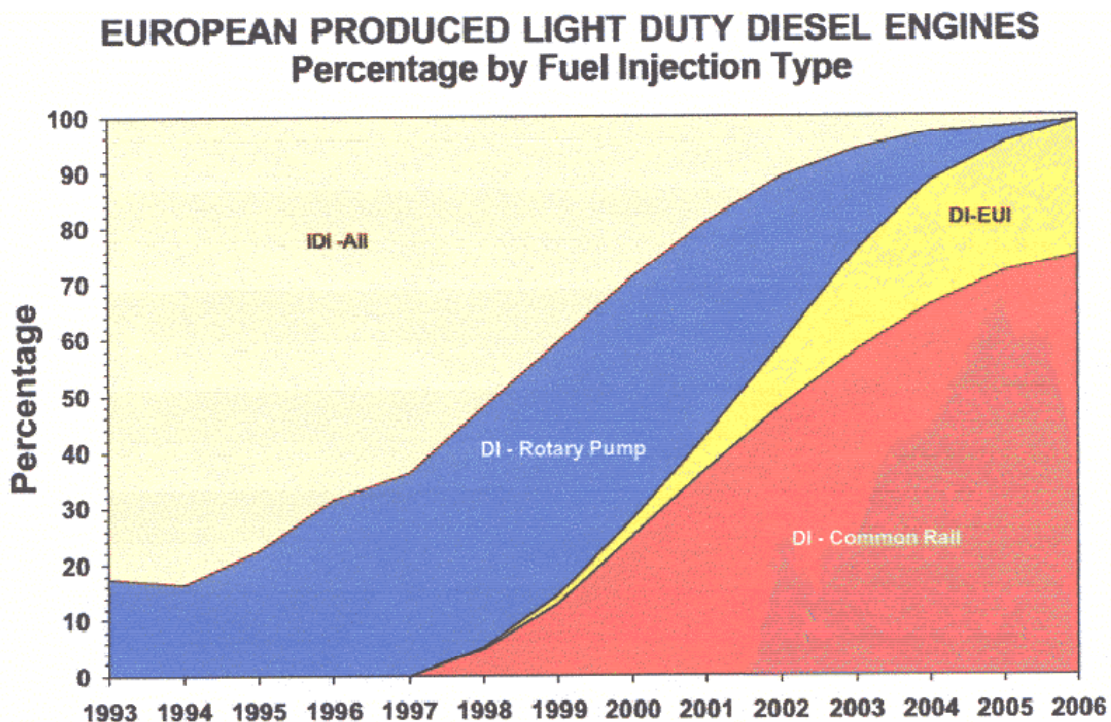


Abbildung 3.4.2-2: Absenkung der Partikelgrenzwerte für Diesel-Pkw (Metz et al. 2000).

Die Stufe EURO 4 sieht eine weitere erhebliche Senkung der Dieselpartikelemission ab 2005 vor. Partikelfilter sind nach Ansicht der Industrie bei hubraumstärkeren Modellen sicher erforderlich, bei kleineren Motoren kann das Ziel offenbar durch weiter verbesserte Motoren- und Steuer- und Regeltechnik im Zusammenwirken mit besseren Kraftstoffen erreicht werden (UBA 2003, VDI 2002, Metz und Wagner, persönliche Mitteilung).

Fahrzeuge mit Hockdrucksystemen zur Dieseleinspritzung (Common-Rail, Pumpe-Düse (engl. Electronic Unit Injector, EUI) lösen die ältere Technik ab und gewinnen zunehmend Anteile am Fahrzeugbestand (Abb. 3.4.2-3). Seit Herbst 2003 befinden sich bereits die ersten Diesel-EURO 4-Fahrzeuge ohne Partikelfilter am Markt (z.B. Honda Accord mit 2.2i-CDT; ein Turbo-Diesel mit Common-Rail, Abgasrückführung, Ladeluftkühlung und NO_x-Katalysator, Partikelemission mit 0,0133 g/km ca. 50 % unterhalb der EURO 4 Anforderung).



Data Source: PSR to 1999 - Ricardo projection from 2000.

Abbildung 3.4.2-3: Stand der Dieselmotorentechnik bei europäischen Pkws (Ricardo 2001).

Das UBA sieht „...zur knappen Einhaltung der ab 2005 gültigen EURO 4-Grenzwerte ... sowohl bei Pkw- als auch bei Nutzfahrzeugmotoren ..“ im Einzelfall Minderungspotentiale von 30-50 % und favorisiert klar den Partikelfilter mit Minderungsraten >90 %. Der Partikelfilter ist gewollt (UBA 2003) und es wird für EURO 5 ab 2010 ein Wert gefordert, der nur mit Partikelfilter erreichbar ist (UBA 2003). Gegenüber EURO 4 entspricht dieser Vorschlag einer weiteren Reduktion um 90 %, und bezogen auf die Ausgangssituation in 1982 einer Reduktion um 99 %. Das UBA hält dies nicht nur für den Rückgang der Partikelmasse, sondern auch zur Reduzierung der emittierten Partikelanzahl für erforderlich (UBA 2003).

Seitens der Industrie wird kritisiert, dass damit eine bestimmte Technik statt eines bestimmten Zielwerts gefordert wird und motortechnische Maßnahmen außen vor bleiben.

Auch die gegenüber früher abgesenkten Grenzwerte für NO_x , Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxid (CO) werden von Neufahrzeugen eingehalten. Dazu verfügen EURO 2- und EURO 3-Fahrzeuge meist über einen Oxidationskatalysator für CO und HC. Die Absenkung von NO_x bereitet Probleme, wenn gleichzeitig die Partikelbildung unterdrückt werden soll, und umgekehrt. Insofern gibt es einen Zielkonflikt zwischen NO_x - und Partikelbildung. Die neueren Entwicklungen der Motorentechnik haben diesen Konflikt bereits entschärft (Abb. 3.4.2-4).

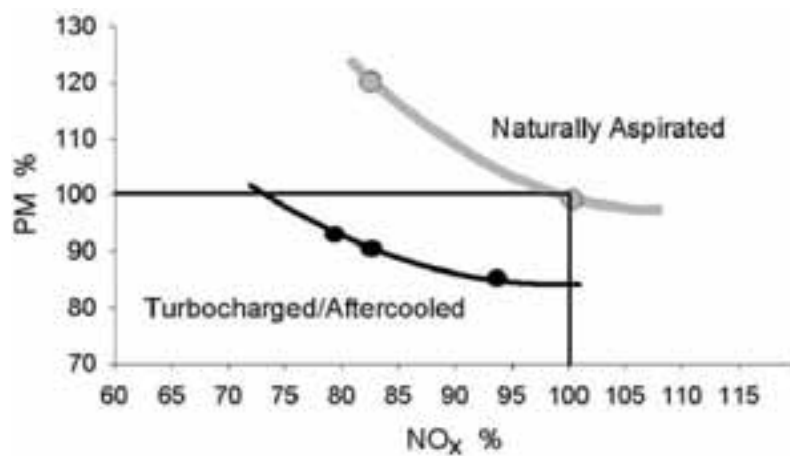


Abbildung 3.4.2-4: Zielkonflikt Partikel- und NO_x -Bildung bei Dieselmotoren (US EPA 2002).

3.4.2.2.2 Nutzfahrzeuge

So wie bei den Pkws konnte bisher auch bei den Nutzfahrzeugen mit motortechnischen Veränderungen die Einhaltung neuer Grenzwerte bewerkstelligt werden, d.h. die Grenzwerte (vorgestellt in Abschnitt 3.2.2) wurden stets unterschritten.. Die Grenzwertabsenkungen führten in den letzten ca. 15 Jahren bei allen regulierten Abgaskomponenten zu erheblichen Emissionsminderungen.

Bei den Partikeln wurde der Grenzwert von 1992 (0,4 g/kWh) bis zum Jahr 2000 um 75% gesenkt, und EURO IV (0,02 g/kWh) wird ab 2005 für eine Grenzwertabsenkung um 95% seit 1992 sorgen.

Für die anderen regulierten Stoffe bedeuten die Grenzwerte EURO IV (gültig ab 2005) Verminderungen um 78 bis 88% gegenüber den ersten europäischen Grenzwerten aus 1988.

EURO V (gültig ab 2008) sieht für NO_x eine weitere Verschärfung auf dann 2 g/kWh vor. Dies entspricht ca. 12 % des Ausgangswertes von 1988.

Insgesamt ist also das Emissionsverhalten von Neufahrzeugen bezüglich der geregelten Schadstoffe im Zeitraum 1988 bis 2000 um 70 – 83 % verbessert worden. Mit Einführung der Stufe EURO IV im Jahre 2005 werden gegenüber der Situation in 1988 Minderungen um 78 – 95 % realisiert werden.

Die neuen Vorschläge des Umweltbundesamtes (UBA 2003) zu *EURO V* (2008) und *EURO VI* (2010) zielen auf eine vollständige bzw. weitgehende Eliminierung der Partikel (99,5 % vs. 1992) und von NO_x (97 % vs. 1988).

3.4.2.3 Konkrete Beispiele der Reduktion von Emissionen

Die zum Vergleich herangezogenen Grenzwerte und Emissionsfaktoren reichen nur bis in die Mitte der 1980er Jahre zurück. Anhand ausgewählter Arbeiten sollen auch die Verhältnisse in weiter zurück liegenden Zeiträumen skizziert werden.

3.4.2.3.1 Personenkraftwagen

Verbesserte Motorentechnik der EURO 2-TDI-Modelle von Volkswagen (1996, Golf) führte gegenüber den ersten Golf-Diesel Modellen aus den Jahren 1978 - 85 zu verminderten Emissionen: -80 % Rußpartikel, -30 % NO_x und CO_2 , -80 % HC, mind. -95 % PAK, mind. -95 % Nitro-PAK, -80 % Benzol und Toluol, - 70 % Ethen (Kohoutek et al. 1999).

Für die beiden wesentlichen Parameter, Partikelmasse und Stickstoffoxide, ist nachfolgend der Mittelwert der Fahrzeuge der Modelljahre 1982 bis 1996 skizziert

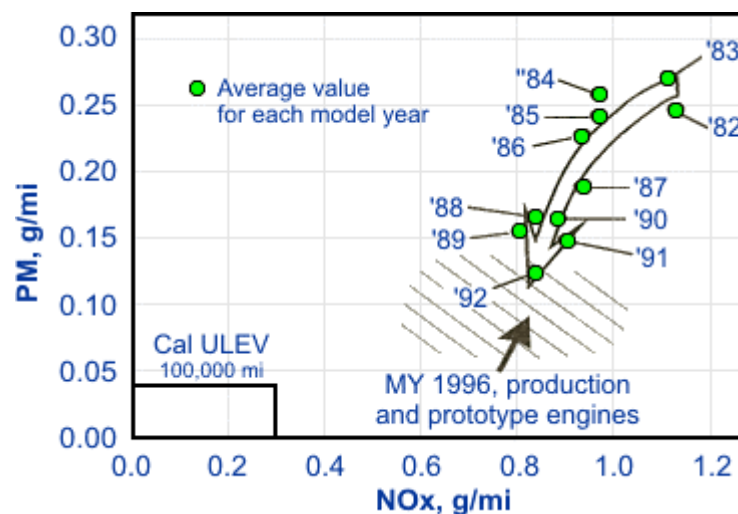


Abbildung 3.4.2-5: Historische Entwicklung der Emission von Dieselpartikeln und NO_x bei Dieselfahrzeugen (Personenkraftwagen) in US FTP-75-Fahrzyklus (Ecopoint 2003).

3.4.2.3.2 *Nutzfahrzeuge*

Fritz et al. (2000) untersuchten mit modernen Methoden einige historische amerikanische Nutzfahrzeugmotoren der Baujahre 1952 bis 1975. Die gebrauchten Fahrzeuge wurden vor Versuchsbeginn gewartet. Der Schwefelgehalt des im Test verwendeten DK betrug 2576 ppm, was in etwa den Verhältnissen in den Jahren 1950 bis 1975 entspricht. Es wurden die Emissionen von HC, CO, NO_x und Partikel gemessen (Anhang 7.7). Nach Umrechnung ergeben sich daraus die folgenden Emissionsfaktoren:

NO _x :	5,7 – 35,1 g/km	PM:	1 – 5,6 g/km
HC:	1,4 - 12,7 g/km	CO:	5,9 – 40,9 g/km

Die Partikel-Emissionsfaktoren der historischen Fahrzeuge liegen damit 6- bis 35-fach über den aktuellen Emissionsfaktoren für Nfz nach EURO III, und für NO_x wurde das 0,8 – 5-fache des EURO III-Werts gemessen. Das heißt, es wurden ganz erhebliche Fortschritte bei der Minderung der Partikelemission erzielt, aber nicht so sehr bei NO_x. Der EC-Anteil in der Partikelmasse lag bei diesen Tests mit einigen wenigen älteren Motoren zwischen 38 und 90 %. Bei neueren Fahrzeugen variiert der EC-Anteil ebenfalls über einen weiten Bereich von ca. 25 bis 75%.

Im Rahmen der Arbeit von Fritz et al. wurde kein Trend der Emissionsverbesserung mit dem Baujahr festgestellt. Die Autoren weisen allerdings darauf hin, dass jeweils nur ein Motor pro Baujahr vermessen wurde, und dass auch diese wenigen Motoren lediglich eine zufällige Auswahl darstellen und keineswegs repräsentativ sind (Fritz et al. 2000).

Nach einer Übersichtsarbeit von Johnson (1988) wurden seit 1968 die Emissionen von HC, CO und NO_x durch motortechnische Maßnahmen, Abgasrückführung und Oxidationskatalysator kontinuierlich verbessert (Abb. 3.4.2-6).

Major Emission Reduction Phases

REDUCTION (%) FROM UNCONTROLLED							
TIME FRAME	Car	Light Truck	Heavy Truck	TECHNOLOGY APPLICATIONS			
pre 1968		Phase I		Uncontrolled to		INITIAL CONTROL LEVELS ■ Closed crankcase controls (HCs) ■ Evaporative emission controls (HCs) ■ Engine modifications for improved combustion (HCs and CO) ■ Air injection (thermactor) systems (HCs and CO) ■ Exhaust gas recirculation (NO _x)	
				HCs	CO		NO _x
					72%	67%	24%
1975		Phase II				INTERMEDIATE "TECHONOLOGY-LIMITED" LEVELS ■ 1st-Phase controls ■ Oxidation catalysts (HC & CO control) ■ Early-stage electronic engine controls (optimized fuel economy, driveability, emissions control performance)	
				HCs	CO		NO _x
					86%	82%	24%
1979							
1981							
				HCs	CO	NO _x	
					96%	96%	76% (Car)
1984		Phase III				ULTIMATE CONTROL LEVELS ■ 1st-Phase controls ■ Three-way catalyst systems (HCs, CO, NO _x) ■ Advanced electronic engine controls ■ Particulate traps (diesels) ■ Refueling vapor recovery controls (HCs)	
					90%		90%
1987 and beyond							

Abbildung 3.4.2-6: Reduktion der Fahrzeugemissionen in den USA für Pkw und Nutzfahrzeuge im Zeitraum 1968 bis 1987 gegenüber früher (Johnson 1988).

Sawyer und Johnson (1995) haben in einem Übersichtsartikel aus der Literatur Emissionsfaktoren für Nutzfahrzeuge der 1970er, 1980er und 1990er Jahre zusammengestellt und nach Motorkonzept aufgegliedert. Seit den 1980er Jahren dominieren turbogeladene 4-Takt-Motoren mit Direkteinspritzung und Abgasrückführung. Die anderen Motorkonzepte sind von untergeordneter Bedeutung und in den nachfolgenden Tabellen sind jeweils nur die entsprechenden Motorkonzepte direkt miteinander vergleichbar.

Bei den Emissionen gibt es eine eindeutige Abnahme über den betrachteten Zeitraum. Bezogen auf die 1970er Jahre sind dies ca. 70 % bei den Stickstoffoxiden und ca. 85 % bei der Partikelmasse. Die Masse des organischen Kohlenstoffanteils der Partikel sank um rund 80 %. Die Emission von Sulfatpartikeln sank um rund 99,5 % (Tab. 3.4.2-3 und 3.4.2-4).

Tabelle 3.4.2-3: Entwicklung der gasförmigen Abgasbestandteile bei Nutzfahrzeugen der 1970er bis 1990er Jahre (Sawyer und Johnson 1995).

Emissions (g/kW-hr)	1970s ^{b,c}			1980s ^{b,d}			1990s ^b		
	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI
Oxides of nitrogen	6.7-12.7	6.9-16.7	21.1-27.1	5.8-10.1	11.2-12.5	6.0-7.7	3.21-3.28	3.21-3.73	3.58-3.66
Hydrocarbons	2.1-4.5	0.2-2.9	0.4-2.7	1.5-3.3	1.6-1.75	0.6-1.7	0.15-0.22	0.15-0.75	0.08-0.38
Carbon monoxide	3.5-5.5	1.5-2.4	3.0-11.3	2.7-4.8	1.5-2.1	1.3-3.8	3.21-3.28	0.89-1.72	1.12-1.19

^a Abbreviations: 4S-NA = four-stroke, naturally aspirated; 4S-TC = four-stroke, turbocharged; 2S-DI = two-stroke, direct-injected.

^b Data are from U.S. Environmental Protection Agency (1973–1993).

^c Data are from Broering and Holtman (1974).

^d Data are from Opris et al. (1993).

Tabelle 3.4.2-4: Entwicklung der emittierten Partikelmasse und deren chemische Zusammensetzung; Nutzfahrzeuge der 1970er bis 1990er Jahre (Sawyer und Johnson 1995).

Emissions (g/kW-hr)	1970s ^b			1980s ^c			1990s ^d		
	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI
Total particulate matter	2.1-3.0	0.6-2.5	0.8-1.9	0.25-0.6	0.28-0.58	0.4-0.6	0.18-0.19	0.11-0.39	0.1-0.25
Soluble organic fraction	0.22-0.31	0.08-0.28	0.08-0.2	0.05-0.36	0.07-0.26	0.03-0.06	0.03-0.09	0.03-0.09	0.03-0.09
Solids or carbonaceous fraction	1.8-2.6	0.5-2.2	0.7-1.7	0.2-0.25	0.2-0.31	0.35-0.55	0.02-0.04	0.02-0.04	0.02-0.04
Sulfates (μg/kW-hr)	20-120	40-120	20-50	15-70	27-55	20-50	< 0.5	< 0.5	< 0.5
Vapor-phase organic compounds	NA	NA	NA	0.22-0.25	0.22-0.25	0.22-0.25	0.12-0.39	0.12-0.39	0.12-0.39

^a Abbreviations: 4S-NA = four-stroke naturally aspirated; 4S-TC = four-stroke turbocharged; 2S-DI = two-stroke, direct-injected; NA = data not available.

^b Data are from Hare et al. (1975); Hare and Bradow (1979).

^c Data are from Wall and Hoekman (1984); Gratz et al. (1991); Opris et al. (1993); U.S. Environmental Protection Agency (1973–1993).

^d Data are from Pataky et al. (1994); Bagley et al. (1994).

Sawyer und Johnson geben die nachfolgende schematische Zusammenfassung zur Entwicklung der Partikelemissionen bei Nutzfahrzeugen (Abb. 3.4.2-7).

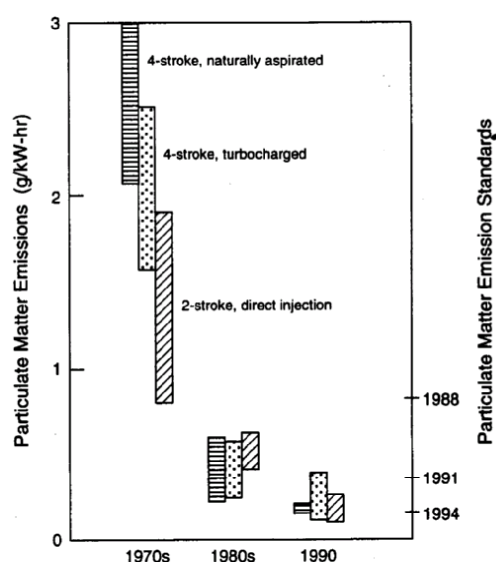


Abbildung 3.4.2-7: Reduzierung der Partikelemissionen bei Nutzfahrzeugen (USA) der 1970er bis 1990er Jahre in Abhängigkeit von der Fahrzeugtechnologie (Sawyer und Johnson, 1995).

Neben der verminderten Partikelmasse berichten die Autoren auch von einer Veränderung der Feinpartikelgröße von ca. 250 nm in den 1970er Jahren auf 150 bis 250 nm in den 1990ern, während der Durchmesser der Nanopartikel unverändert 10 bis 20 nm betrug (Tabelle 3.4.2-5).

Tabelle 3.4.2-5: Veränderungen der Partikelgröße (Sawyer und Johnson, 1995).

	1970s ^b			1980s ^c			1990s ^d		
	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI	4S-NA	4S-TC	2S-DI
Nuclei mode ^e	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02	0.01-0.02
Accumulation mode ^f	0.2-0.3	0.2-0.3	0.2-0.3	0.15-0.25	0.15-0.25	0.15-0.25	0.15-0.25	0.15-0.25	0.15-0.25

^a Abbreviations: 4S-NA = four-stroke, naturally aspirated; 4S-TC = four-stroke, turbocharged; 2S-DI = two-stroke, direct-injected.

^b Data are from Kittelson et al. (1978); Khatri and Johnson (1978).

^c Data are from Baumgard and Kittelson (1985); Opris et al. (1993).

^d Data are from Baumgard and Johnson (1992); Pataky et al. (1994).

^e 0.0075 to 0.056 μm (particles that have high percentage deposited in lungs).

^f 0.056 to 0.75 μm (agglomerated particles that are partially deposited in lungs depending on size).

Daten zur Emission der PAKs und der Nitro-PAKs in den 1980er und 1990er Jahren weisen eine Reduktion um ca. 80 bis 90 % (PAK) und 75 bis 95 % (Nitro-PAKs) aus. Dementsprechend ist die Mutagenität im Ames-Test um rund 90 % gefallen (Sawyer und Johnson 1995).

Tabelle 3.4.2-6: Veränderungen der PAK-Emissionen; Nutzfahrzeuge (USA) der 1970er bis 1990er Jahre (Sawyer und Johnson, 1995).

Emissions (ng/m ³) ^b	1970s	1980s ^c	1990s ^d
	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI
Fluoranthene	NA	590–1,300	10–250
Pyrene	NA	2,100–2,300	200–1,700
Benz[<i>a</i>]anthracene	NA	600–1,600	900–5,500
Chrysene	NA	400–1,400	130–3,400
Benzo[<i>b</i>]fluoranthene	NA	180–340	700–6,000
Benzo[<i>k</i>]fluoranthene	NA	20–200	130–1,700
Benzo[<i>a</i>]pyrene	NA	50–250	100–550

^a Abbreviations: 4S-NA = four-stroke, naturally aspirated; 4S-TC = four-stroke, turbocharged; 2S-DI = two-stroke, direct-injected; NA = data not available.

^b Concentration in the soluble organic fraction.

^c Data are from Gratz et al. (1991); Opris et al. (1993).

^d Data are from Bagley et al. (1994); Hansen et al. (1994); Pataky et al. (1994).

Tabelle 3.4.2-7: Veränderungen der Nitro-PAK-Emissionen; Nutzfahrzeuge (USA) der 1970er bis 1990er Jahre (Sawyer und Johnson, 1995).

Emissions (ng/m ³) ^b	1970s	1980s ^c	1990s ^d
	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI	4S-NA, 4S-TC, 2S-DI
2-Nitrofluorene	NA	5–600	100–3,100
1,6- and 1,8-Dinitropyrene	NA	400–800	20–400
1,3-Dinitropyrene	NA	200–600	10–150
1-Nitropyrene	NA	6–180	10–80
3-Nitrofluorene	NA	4–1,500	<17
7-Nitrobenz[<i>a</i>]anthracene	NA	1–30	<17
6-Nitrochrysene	NA	2–25	<15

^a Abbreviations: 4S-NA = four-stroke, naturally aspirated; 4S-TC = four-stroke, turbocharged; 2S-DI = two-stroke, direct-injected; NA = data not available.

^b Concentration in the soluble organic fraction.

^c Data are from Gratz et al. (1991); Bagley et al. (1994).

^d Data are from Bagley et al. (1994); Hansen et al. (1994).

Bagley et al. fanden bei Tests mit nur zwei amerikanischen Nutzfahrzeugmotoren der Baujahre 1988 und 1991 bei dem jüngeren Motor eine rund 30 bis 60-fach erhöhte Anzahl der Nuclei-Mode-Partikel <50 nm bei gleichzeitig reduzierter Gesamtpartikelmasse. Der Schwefelgehalt im DK war jeweils identisch. Die Autoren weisen allerdings darauf hin, dass es sich dabei um vorläufige und keinesfalls um repräsentative Ergebnisse handelt (HEI 1996).

3.4.3 Einflüsse des Kraftstoffs

Neufahrzeuge mit verbessertem Emissionsverhalten verdrängen wegen der langjährigen Nutzungsdauer der Fahrzeuge nur nach entsprechend langen Übergangszeiten ältere Technik und demzufolge wirkt sich dies auch verzögert auf die Gesamtemissionen bzw. Immissionen des Straßenverkehrs aus. Mit der Einführung neuer Kraftstoffe kann dagegen das Emissionsverhalten aller Dieselfahrzeuge gleichzeitig und somit schneller beeinflusst werden (Kohoutek et al. 1999). Der dominierende Einfluss der Motorentechnik gegenüber der Zusammensetzung des Kraftstoffes skizziert die nachfolgende Abbildung 3.4.3-1, bei der allerdings der Einfluss von Schwefel noch nicht untersucht wurde (CONCAWE 1987).

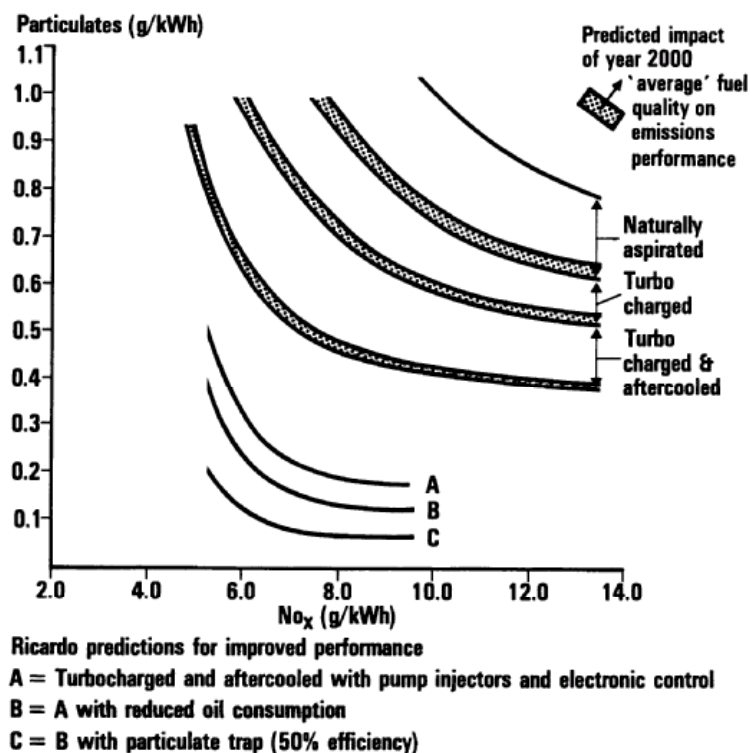


Abbildung 3.4.3-1: Partikelbildung in Abhängigkeit von Motortechnik und Kraftstoff (CONCAWE 1987).

In einer neueren Übersichtsarbeit berichtet CONCAWE, dass die Kraftstoffzusammensetzung im Vergleich zur Motortechnik bei EURO III-Nutzfahrzeugmotoren nur einen geringen Einfluss auf die Emissionen hatte. Änderungen von Cetanzahl und Polyaromatengehalt beeinflussten die Emission von NO_x und Partikelmasse nicht, während die Emissionen der EURO III-Motoren gegenüber einer EURO

II-Flotte (EPEFE, *European Programme on emissions, fuels and engine technologies*) um 25 bis 40 % reduziert waren (CONCAWE 2002a). Inzwischen ist die Bedeutung des Schwefelgehalts erkannt und Gegenstand zahlreicher Studien, z.B. von ACEA (2000, 2002), CONCAWE (1999, 2000) und HEI (1996).

In der Einführung von schwefelarmen oder schwefelfreiem Kraftstoff sehen auch Kohoutek et al. (1999) die größten Chancen für eine kurzfristige Absenkung der Emissionen. Es werden Ergebnisse aus Studien von Volkswagen mit DI- und TDI-Pkws der Baujahre 1980 bis 1988 referiert, denen zufolge die Verwendung von „Schwedendiesel“ im Vergleich zum handelsüblichen Kraftstoff mit 410 ppm Schwefel die Emissionen stark verminderte: -12 % HC, -44 % CO, -27 % Partikel, -60 % PAK, -70 % Nitro-PAK, -30 % Benzol, -40 % Formaldehyd, -30 % Acetaldehyd und 1,3-Butadien unter die Nachweisgrenze gesenkt. In diesem Zusammenhang weisen die Autoren darauf hin, dass der Schwefelgehalt zum Zeitpunkt der Studie (410 ppm) bereits erheblich unterhalb des Wertes lag, der bei der Markteinführung der getesteten Modelle vorherrschte (2300 ppm), so dass damals die Emissionen noch deutlich höher gelegen haben müssen.

Die Entwicklung des Schwefelgehalts für Dieselmotorabgasen in Europa lässt sich anhand von EU-Richtlinien nachvollziehen (CONCAWE 2003):

Oktober 1994:	max. 0,2 % (= 2000 ppm) für alle Gasöle incl. Dieselmotorabgasen
Oktober 1996:	max. 0,05 % (= 500 ppm) für Dieselmotorabgasen
Januar 2001:	max. 350 ppm und Cetanzahl >51
Januar 2005:	max. 50 ppm und Verfügbarkeit von „Schwefelfreiem Diesel“ (<10 ppm) für Straßenfahrzeuge
Januar 2009:	max. 10 ppm für Straßenfahrzeuge und sonstige Fahrzeuge

Seit Januar 2003 werden in Deutschland auf freiwilliger Basis flächendeckend schwefelfreie Benzin- und Dieselsorten (≤ 10 ppm) angeboten (StMUGV, persönliche Mitteilung). Dagegen darf der Schwefelgehalt in leichtem Heizöl derzeit noch 0,2 % (2000 ppm) betragen und wurde erst kürzlich zum 01. Januar 2008 auf 0,1 % (1000 ppm) halbiert (3. BImSchV vom 24. Juni 2002).

Kohoutek et al. (1999) verweisen darauf, dass die Bildung von Sulfatpartikeln in direktem Zusammenhang mit dem Schwefelgehalt des Kraftstoffes steht und dass 1,1 bis 1,4 % des Schwefels in Sulfat umgewandelt werden. Dies führt nach Angaben der Autoren bei einem Schwefelgehalt von 50 ppm zu ca. 0,01 g Partikelmasse/kWh, was wiederum ca. 50 % des EURO V-Grenzwertes (2005) entspricht. Aus diesem Grunde sei die Einführung schwefelarmer Treibstoffe erforderlich.

Einen geringen Schwefelgehalt erachten die Autoren auch als erforderlich, um mit Oxidationskatalysatoren eine weitere Absenkung der Partikelemissionen (-15 %) zu

erreichen. Ein niedriger Schwefelgehalt (<30 ppm) ist auch Voraussetzung, um gleichzeitig Partikelfilter und DeNO_x-Katalysator zu betreiben und so die Emission von Partikeln und NO_x jeweils um 50 - 60 % zu senken (Kohoutek et al 1999).

CONCAWE (2001a) findet mit schwefelhaltigem Dieselmotorabgas (420 und 500 ppm) gegenüber einem schwefelfreien DK (< 1 ppm) erhöhte Emissionen von Partikelmasse (bis zu ca. 30 %), NO_x (bis 15 %) und sprunghaft erhöhte Anzahl der Partikel mit Durchmessern <30 nm (ca. 2 Größenordnungen höher). Die Effekte waren bei den untersuchten EURO II- und EURO III-Motoren vergleichbar. In Bezug auf den Schwefelgehalt ergab sich eine klare Konzentrationsabhängigkeit.

ACEA (2002) findet bei höherem Schwefelgehalt ebenfalls höhere Partikelzahlen bei Diesel- und bei Ottomotoren (Abb. 3.4.3-2). Aus der stark verminderten Partikelzahl in der Vergleichsmessung bei Verwendung des Thermodesorbers (TD) ist zu schließen, dass es sich dabei weitgehend um Aerosole aus flüchtigen Stoffen ohne Rußkern handelt.

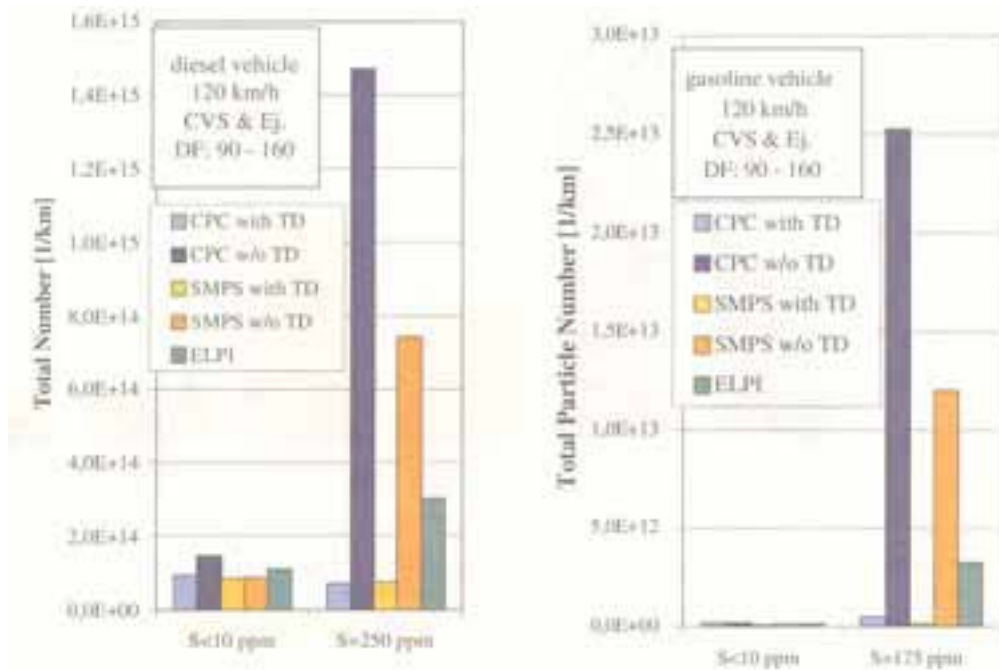


Abbildung 3.4.3-2: Erhöhte Partikelzahl bei höherem Schwefelgehalt in Diesel- und in Ottokraftstoff (ACEA 2002)

(Abkürzungen: CPC, SMPS, ELPI: Partikel-Messmethoden; TD: Thermodesorber (350°C, 1,8 Sekunden); s. dazu auch Abschnitt 3.3.1.

Der Schwefelgehalt beeinflusst nicht nur die Partikelzahl und deren chemischen Bestandteile, sondern auch die chemische Zusammensetzung der freigesetzten Partikelmasse. In Abbildung 3.4.3-3 wird dies besonders bei der hohen Motorlast (120 und 100 km/h) deutlich. Es ist außerdem darauf hinzuweisen, dass es bei dem höheren

Schwefelgehalt verstärkt zur Bildung schwefelhaltiger Sekundärpartikel kommt, die wegen ihres geringen Durchmessers nur eine geringe Masse beitragen.

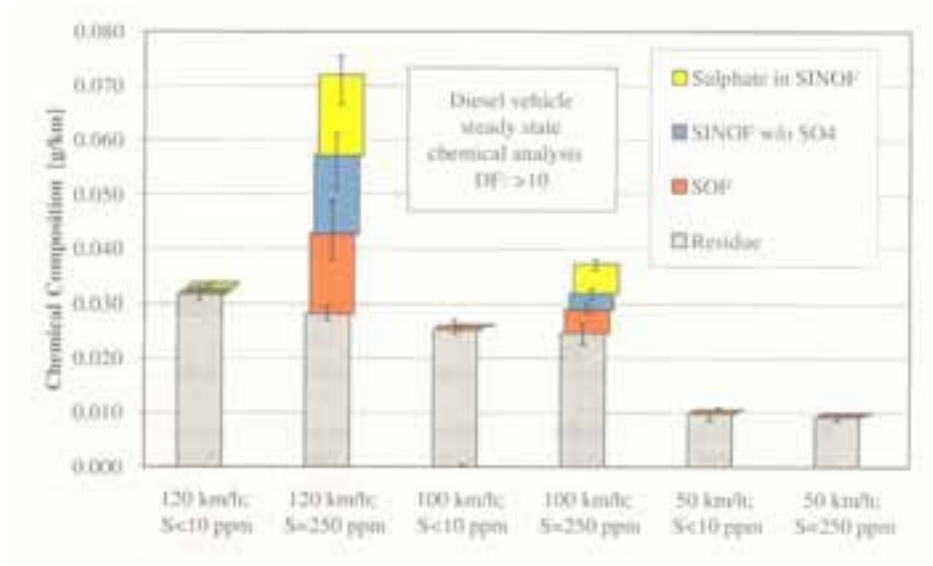


Abbildung 3.4.3-3: Einfluss von Schwefel im DK auf die chemische Zusammensetzung von PM (ACEA 2002).

(Abkürzungen: S = Schwefel, SOF = lösliche organische Fraktion, SINOX = lösliche anorganische Fraktion; DF = Verdünnungsfaktor)

Der Schwefelgehalt des Kraftstoffs bestimmt also die Partikelzahlen, die Partikelmasse und die chemische Zusammensetzung der Aerosole mit. Diese Einflüsse sind bei hoher Motorlast stärker als bei niedriger Motorlast ausgeprägt.

3.4.4 Untersuchungen zu Partikelgröße und Partikelanzahl

3.4.4.1 Personenkraftwagen

Der erzielte Rückgang der Emissionen der Partikelmasse ist dabei nicht auf die Bildung kleinerer Partikel bei den neueren Motoren zurückzuführen, wie dies häufig durchklingt (US EPA 2002, S. 2-82/83, UBA 2003, Koch 2003). Es wurde argumentiert, dass eine hohe Anzahl kleinerer Partikel emittiert würden, die nur unwesentlich zur Masse beitragen, von denen aber prinzipiell jedes einzelne Schadwirkungen auslösen kann. Daher fordert das UBA Partikelfilter, die gegenüber allen Partikelgrößen wirksam sind und behält sich vor, künftige Grenzwerte nicht mehr massenbezogen, sondern partikelbezogen zu formulieren (UBA 2003).

Metz et al. ermittelten dazu Partikelgrößenverteilungen aus Untersuchungen an 3 Motoren unterschiedlicher Bauart und bei 2 Geschwindigkeiten (50 und 120 km/h). Bei dem 525 tds handelt es sich um einen 1991 eingeführten Wirbelkammermotor (IDI) mit Niederdruckeinspritzung (500 bar), Abgasrückführung und OxiKat. 320 d und 520 d repräsentieren neue Motoren mit Hochdrucksystemen (320 d: Pumpe mit 1750 bar; 530 d: Common-Rail mit 1350 bar), Abgasrückführung und Vor- sowie Hauptkatalysator.

Abbildung 3.4.4-1 zeigt das Ergebnis der Messungen bei 120 km/h: das Maximum der Partikelgrößenverteilung des älteren IDI-Motors liegt bei 75 und 140 nm (bimodal), bei den neueren Motoren bei ca. 80 bis 90 nm). Die Partikelanzahl der neueren Motoren ist stets niedriger als beim älteren Motor.

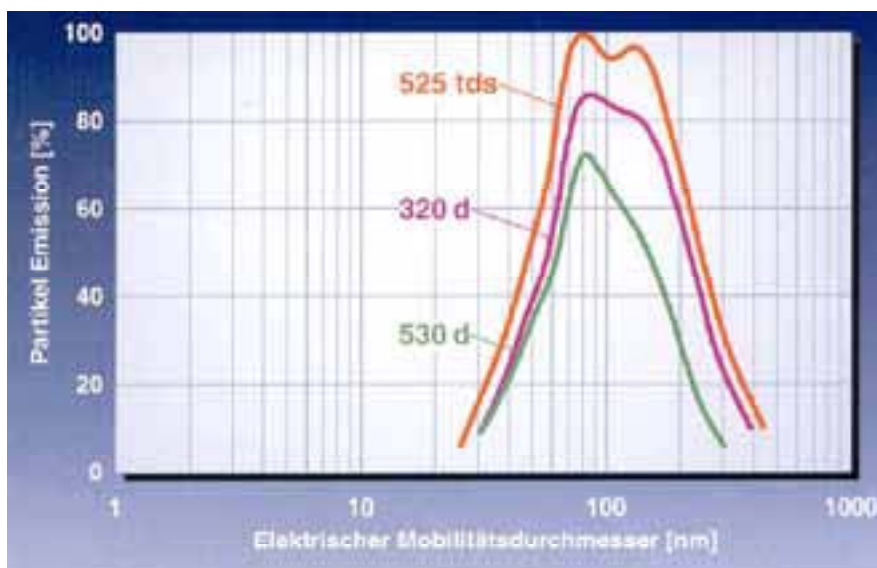


Abbildung 3.4.4-1: Partikelgrößenverteilung von drei verschiedenen Pkw-Dieselmotoren unterschiedlicher Baujahre bei 120 km/h (Metz et al. 2003).

Bei der niedrigeren Geschwindigkeit (50 km/h) zeigt der ältere Motor nur ein Maximum bei ca. 75 nm, die DI-Motoren zeigen bimodale Kurvenverläufe mit Maxima bei 90 und 160 nm, sind also gegenüber dem DI-Motor deutlich nach rechts verschoben. Die Amplitude (Partikelzahl) reicht nur zu ca. 65 % (320 d) bzw. ca. 30 % (530 d) an den Wert des IDI-Motors heran (Metz et al. 2003).

Die elektronenmikroskopische Untersuchung der Partikel ergab für die Primärpartikel Durchmesser von 10 bis 50 nm mit tendenziell größeren Durchmessern beim IDI-Motor (Tabelle 3.4.4-1).

Tabelle 3.4.4-1: Größenbereiche Primärpartikel aus der Arbeit von Metz et al. (2003).

Motor	Betriebspunkt (km/h)	Größe Primärpartikel (nm)
IDI: 525 tds	50	10 - 30
DI: 320 d	50	25 - 50
DI: 320 d	120	25-50
DI: 530 d	120	17 - 40

Diese Ergebnisse werden durch eine ACEA-Studie bestätigt, bei der Dieselmotoren für Pkw älterer und neuerer Bauart (IDI vs. DI, Niederdruckeinspritzer (<700 bar) vs. Hochdruckeinspritzer) mit Ottomotoren hinsichtlich Partikelzahl, Partikelmasse und Durchmesser der Primärpartikel bei niedriger und hoher Geschwindigkeit (50 bzw. 100 km/h) untersucht wurden (ACEA (1999)). Die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit:

- Es gab sowohl bei einer hohen Motorlast (Abbildung 3.4.4-2) als auch bei einer niedrigen Motorlast kaum Unterschiede bei den Partikelgrößenverteilungen von älteren (Wirbelkammer, EURO 2, Niederdruck) und neueren Motoren.
- Modernere Dieselmotoren emittierten eine geringere Partikelmasse.
- Modernere Dieselmotoren emittierten eine geringere Anzahl von Partikeln.

In der Testreihe mit der höheren Motorlast (100 km/h, Abb. 3.4.4-2) betrugen die mittleren Partikeldurchmesser bei den älteren Motoren 66 nm und bei den neueren Motoren 70 nm. Bei der niedrigeren Geschwindigkeit ist die Verteilung weniger uniform und die Partikelgrößenverteilung erscheint geringfügig linksverschoben zu kleineren Partikelgrößen (keine Angaben zu den Durchmessern verfügbar). Die Autoren der ACEA-Studie erklärten dazu mit Hinweis auf Burtscher (1992) und Kittelson (1998), dass Partikelzusammenstöße und die damit verbundene Agglomeration und Abnahme der Partikelanzahl von den Partikeleigenschaften und den anfänglichen Konzentrationen abhängig seien. Die Aufenthaltsdauer der Partikel im Abgassystem sei für alle getesteten Fahrzeuge ähnlich, und der Durchmesser der Primärpartikel liege stets im Bereich von 10 – 30 nm. Die anfängliche

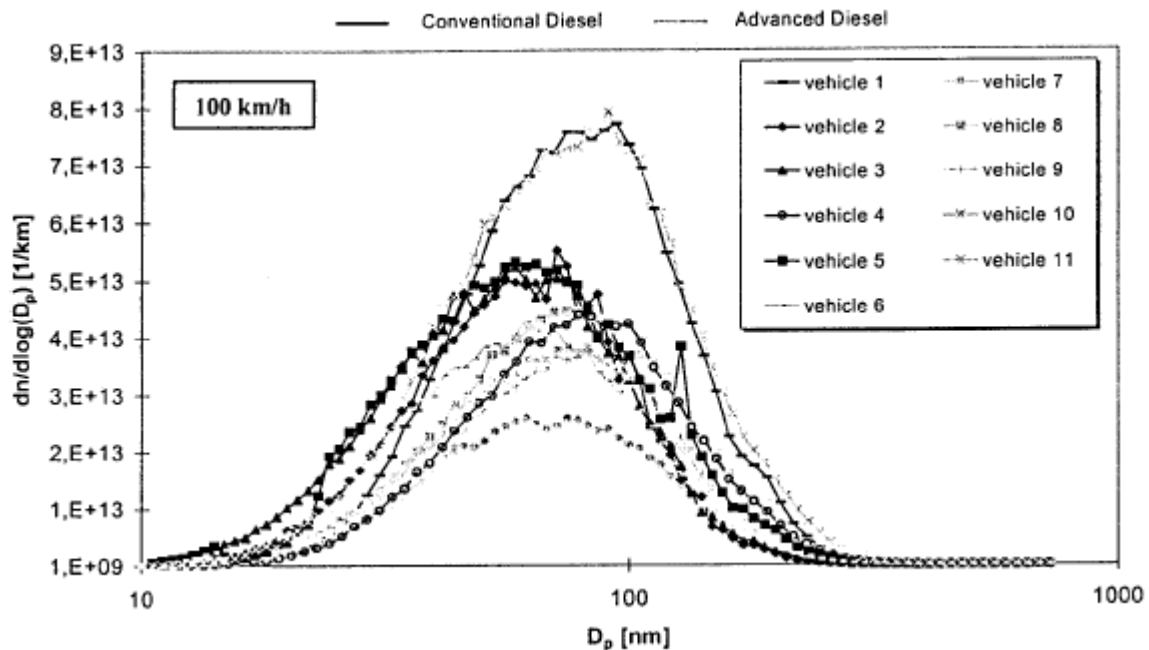


Abbildung 3.4.4-2: Größenverteilung von Feststoffpartikeln bei 11 verschiedenen Pkw-Dieselmotoren (ACEA 1999).

Partikelkonzentration sei damit der Parameter, der von Fahrzeug zu Fahrzeug verschieden sein könne und zu differierenden Partikelgrößen führen könne. Diese Unterschiede seien bei ausreichend hohen Konzentrationen jedoch nicht mehr gegeben. Dies sei bei hoher Last (100 km/h) offenbar gegeben, während bei niedriger Last und niedrigerer Partikelkonzentration weiterhin geringfügige Unterschiede zwischen den Fahrzeugen bestünden (ACEA 1999).

In einer zweiten Studie mit 4 modernen Dieselfahrzeugen, eines davon mit Partikelfilter, wurden diese Ergebnisse bestätigt (ACEA 2002). Dort beschriebene Effekte des Partikelfilters und des Schwefelgehalts im Treibstoff werden weiter unten skizziert.

Aus den Ergebnissen der vorgenannten Arbeiten sind zum Vergleich der Partikelemissionen von Dieselmotoren älterer und neuerer Bauart die folgenden Schlüsse zu ziehen:

- Die Partikelmasse ist bei neueren Motoren niedriger
- Die Partikelanzahl ist bei neuen Motoren niedriger
- Die Partikelgrößenverteilung ist bei älteren und neueren Motoren vergleichbar. Dies gilt sowohl bei niedriger und hoher Last.
- Eine mehr oder weniger uniforme Größenverteilung hängt vom Betriebszustand des Motors ab, nicht von dessen technischem Konzept.

- Es ist nicht die Verkleinerung der emittierten Partikel und eine damit verbundene Verminderung der Masse, die zur Einhaltung der strengeren Grenzwerte geführt hat.
- Die Anzahl der Partikel im Größenbereich 10 – 30 nm ist vernachlässigbar gering.

Eine CONCAWE Studie aus dem Jahr 1998 verglich die Partikelemissionen von Dieselfahrzeugen (IDI und DI, mit und ohne OxiKat) mit denen von Ottomotorfahrzeugen. Die untersuchten Dieselfahrzeuge emittierten eine 40 - 85-fach höhere Partikelmasse sowohl bei konstanter Geschwindigkeit (50 bzw. 120 km/h) als auch im Fahrzyklus (ECE/EUDC). Messungen am kalten Dieselmotor zeigten außerdem eine Zunahme der größeren Partikel. Gegenüber dem warmen Motor wird mehr Partikelmasse emittiert, was auf einer Verdoppelung der Partikel >1000 nm beruht (10,4 % der Masse beim warmen Motor, 17,8 % beim kalten Motor). Die Masse der Partikel <1000 nm blieb in etwa konstant

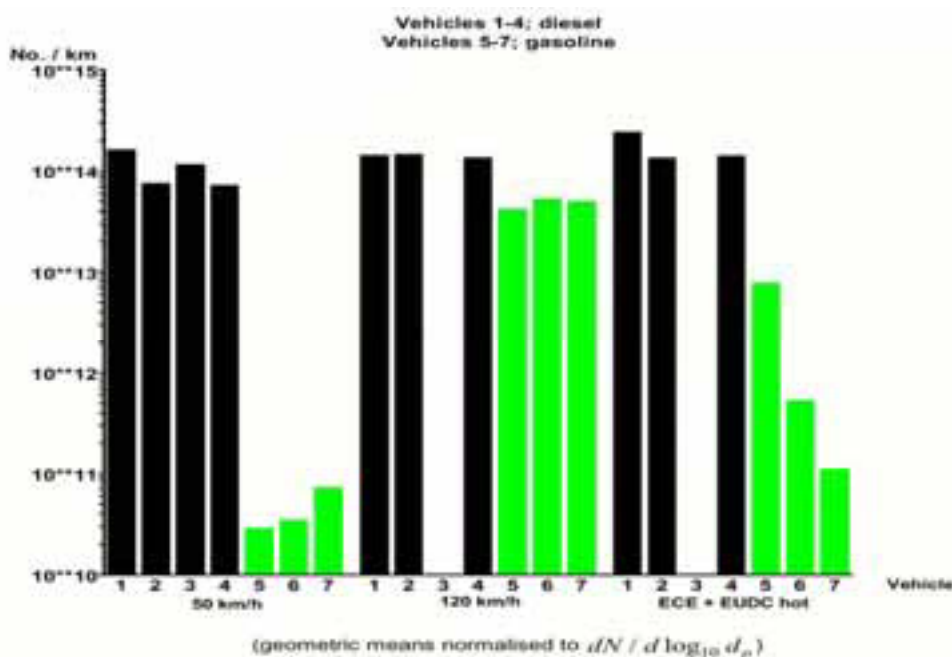


Abbildung 3.4.4-3: Partikelanzahl bei Diesel- und Ottomotoren bei unterschiedlichen Fahrzuständen (CONCAWE 1998).

Die Partikelanzahl war bei den Dieselfahrzeugen aber nur bei der geringen Geschwindigkeit um Größenordnungen höher als beim Ottomotor. Bei der höheren Geschwindigkeit war die emittierte Partikelanzahl beim Diesel unverändert, beim Ottomotor dagegen erheblich erhöht und nur noch um ca. den Faktor 3 niedriger als bei den Dieselmotoren (Abb. 3.4.4-3).

Die Messung der Partikelgrößenverteilung ergab bei den Benzinern einem sprunghaften Anstieg der Nanopartikel <50 nm bei der höheren Geschwindigkeit. Das Maximum der Partikelgrößenverteilung lag hier bei ca. 30 nm (CONCAWE 1998).

Die vorgestellten Daten belegen für den Dieselmotor eine vom Betriebszustand des Motors weitgehend unabhängige Partikelfreisetzung. Sie belegen auch, dass die Partikelfreisetzung bei Ottomotoren sehr stark vom Betriebszustand abhängt und dass unter Last die Zahl der ausgestoßenen Partikel in die Größenordnung des Dieselmotors kommt. Dies sollte sowohl bei der Interpretation von Immissionsmessergebnissen als auch bei Überlegungen zu Grenzwerten auf der Basis von Partikelzahlen angemessen berücksichtigt werden.

Mit einer außerordentlich hoch zeitauflösenden Messtechnik untersuchten Gruber et al. Änderungen der Partikelgrößenverteilung bei Lastwechseln und fanden sehr starke zeitliche Schwankungen bezüglich Partikelgrößenverteilung und Anzahlkonzentration. Beschleunigungsvorgänge und Abgasrückführung begünstigten die Bildung großer Partikel bis >200 nm. Verzögerungsphasen bei Schubabschaltung führten zur Zunahme sehr kleiner Partikel <50 nm und sehr starkem Anstieg der Partikelanzahl. Die Autoren führten dies auf eine Resorption abgelagerter Kohlenwasserstoffe und Sulfate und homogene Nukleation zurück. Beim Wiederbeschleunigen entstehen kurzzeitig hohe Konzentrationen kleiner Partikel aus der Verbrennung (Gruber et al. 2001).

Die Ergebnisse von Gruber et al. passen in das allgemeine Bild. Aufgrund der sehr hohen Zeitauflösung von 5 Scans/Sekunde, über die sonst offenbar keine andere Arbeitsgruppe verfügt, können sie das Geschehen sehr viel feiner als andere auflösen, und daher sind ihre Aussagen bisher auch nicht von anderen bestätigt.

3.4.4.2 Nutzfahrzeuge

Die Partikelgrößenverteilungen von Nutzfahrzeugmotoren sind praktisch identisch mit denen von Pkw-Motoren. Maximale Partikelzahlen werden im Bereich 50 - 150 nm gefunden, während im Bereich <50 nm die Partikelanzahl sehr gering ist. Übereinstimmende Ergebnisse mit einem EURO III-Motor finden Andersson et al. (2003), Burtcher (2001) und CONCAWE (2001a). Persönliche Mitteilungen von Experten aus Industrie und Wissenschaft (Metz, Stein und Wagner) werden damit gestützt.

CONCAWE (2001a) findet mit schwefelhaltigem Dieselmotorkraftstoff (420 und 500 ppm) einen bimodalen Verlauf mit sprunghaft erhöhten Partikelzahlen bei Durchmessern <30 nm. Gegenüber dem schwefelfreien DK (<1 ppm) ist die Partikelanzahl um 2 Größenordnungen erhöht. Generell ist die Größenverteilung jedoch ausgesprochen unempfindlich gegenüber Änderungen der Motortechnik oder der Kraftstoffzusammensetzung (CONCAWE 2001a, 1999).

Tatsächlich findet Stein beim Vergleich unterschiedlicher Motorgenerationen (EURO I, EURO II und EURO III) die höchsten Partikelzahlen stets bei ca. 60 bis 80 nm Durchmesser. Abgasnachbehandlungssysteme wie Partikelfilter und CNR haben darauf wenig Einfluss (Stein 2001). Dies entspricht auch in etwa dem in früheren Arbeiten (ca. 1979) beobachteten Maximum der Partikelgrößenverteilung für Rußpartikel bei ca. 70 bis 90 nm (Stein, DaimlerChrysler persönliche Mitteilung).

Studien von ACEA zeigen sowohl für Pkw- als auch für Nutzfahrzeugmotoren, dass der Rückgang der Partikelmasse mit einem Rückgang der Partikelzahl einhergeht (Abb. 3.4.4-4). Der Durchmesser der Primärpartikel bleibt mit 10 - 30 nm unverändert. Damit bleibt auch deren Dichte unverändert, so dass sich aus dem Rückgang der Partikelmasse direkt eine reduzierte Anzahl der Feinpartikel 50 – 200 nm ergibt. Es ist allgemeiner Konsens, dass die Nanopartikel <50 nm (Sekundärpartikel) zur Partikelmasse nur unwesentlich beitragen (Metz, persönliche Mitteilung, UBA 2003 usw.).

BMW Group
Dr. Norbert Metz
14.07.2003
Seite 49
me-3749

Verringerung der Partikelemission. Masse und Zahl von Diesel-Fahrzeugen.

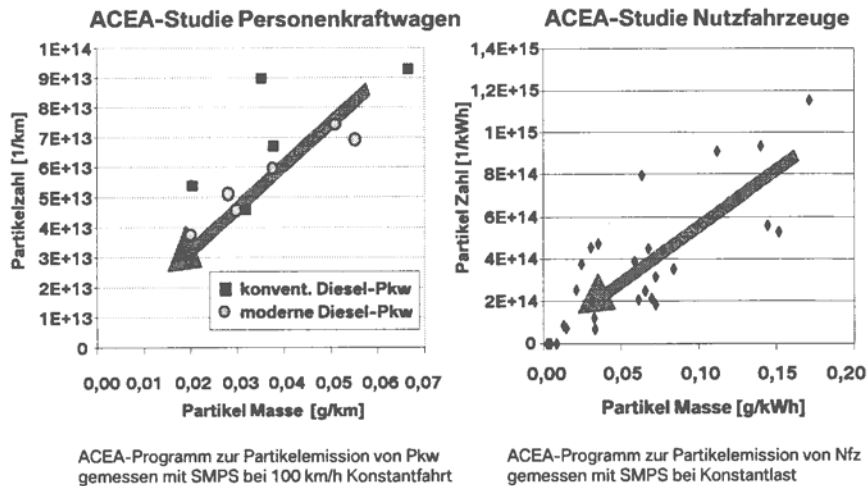


Abbildung 3.4.4-4: Paralleler Rückgang von Partikelmasse und Partikelanzahl bei Pkw und Nfz (Metz 2003a).

FAZIT

- Bei modernen Dieselmotoren sind sowohl Masse als auch Anzahl der Feinpartikel 50 – 200 nm reduziert. Dies gilt sowohl für Pkw als auch für Nutzfahrzeuge.
- Partikelgrößenverteilungen und Partikeldurchmesser von Pkw und Nutzfahrzeugen unterscheiden sich nicht.
- Die Partikelgrößenverteilung ist ausgesprochen unempfindlich gegenüber Änderungen der Motortechnik oder der Kraftstoffzusammensetzung.
- Mittlere Durchmesser betragen 50 bis 150 nm.
- Anzahl der Nanopartikel <30 nm ist gering.
- Die Anzahl der Nanopartikel <30 nm ist um eine bis zwei Größenordnungen erhöht, wenn
 - schwefelhaltiger Kraftstoff (>400 ppm) verwendet wird
 - Partikelfilter eingesetzt werden (Burtscher 2001, s. S. 120, Abschnitt 3.7.3.2.1)
- Emissionen von Nanopartikeln <30 nm sind heute gegenüber früher erheblich reduziert. Ursache ist die drastische Verminderung des Schwefelgehalts (frühere Gehalte >2000 ppm).

3.4.5 Tunnelmessungen

Tunnelmessungen haben gegenüber Prüfstandsmessungen den Vorteil, dass die Emissionen von Fahrzeugen unter realen Fahrbedingungen gemessen werden. Durch die geringen äußeren Einflüsse und der realistischeren Verdünnung der Fahrzeugabgase im Tunnel lassen sich so die durchschnittlichen Emissionen einer bestimmten Verkehrszusammensetzung beschreiben. In den USA wurden in den vergangenen 30 Jahren immer wieder Tunnelmessungen durchgeführt (HEI 2002, US EPA 2002), während aus Deutschland nur eine Studie bekannt ist (Rauterberg-Wulff 1998).

Die aus Tunnelmessungen mit überwiegendem Nutzfahrzeugverkehr für Dieselpartikel berechneten Emissionsfaktoren (Nfz, USA) verminderten sich in den letzten 30 Jahren um über 80 % (Abb. 3.4.5-1). Außerdem ist der Emissionsfaktor für leichte Nutzfahrzeuge (lNfz) etwa zehnfach geringer als der für schwere Nutzfahrzeuge (sNfz). Demnach beträgt der derzeitige $PM_{2,5}$ -Emissionsfaktor für sNfz 132 ± 17 mg/km und bei lNfz nur 13 ± 13 mg/km (HEI 2002).

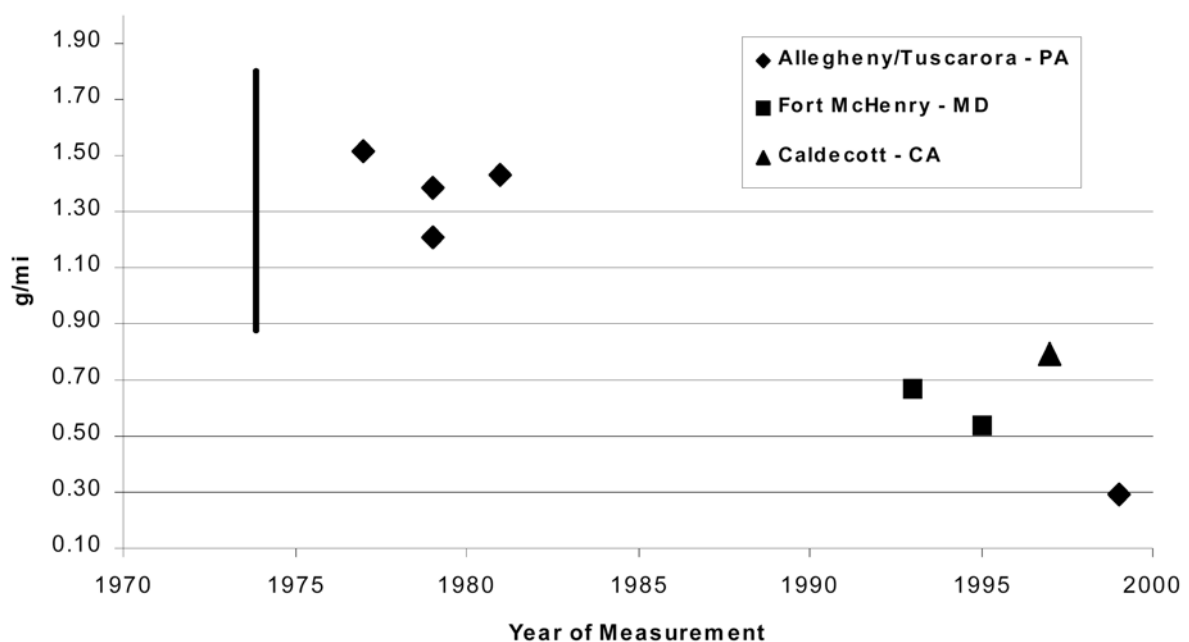


Abbildung 3.4.5-1: Zeitliche Veränderung der Emissionsfaktoren für Dieselpartikel in g/Meile (mi) von sNfz bei Messungen in drei verschiedenen Tunneln in den USA von 1970 bis 2000 (US EPA 2002).

Die Partikel ($PM_{2,5}$) aus dem Abgas von leichten und schweren Nutzfahrzeugen sind nach HEI (2002) hinsichtlich der chemischen Zusammensetzung signifikant verschieden. Bei den

schweren Nfz machen EC und OC 97 % der Gesamtmasse aus und das Verhältnis EC/OC beträgt etwa 1:1. Bei den leichten Nfz macht der EC dagegen nur etwa 11 % der Gesamtmasse aus und das Verhältnis EC/OC beträgt 1:6, es ist also ein wesentlich höherer Anteil an löslichen Stoffen gegeben.

Die Autoren der Studie weisen außerdem darauf hin, dass sich die EC/OC Verhältnisse aus Tunnelmessungen ganz deutlich von denen aus Prüfstandsmessungen unterscheiden. Der über den Rußgehalt abgeschätzte Beitrag von Dieselfahrzeugen an der PM-Immissionskonzentration ist daher mit einigen Unsicherheiten behaftet und entsprechend vorsichtig zu betrachten (HEI 2002).

Bei der Untersuchung der Partikelgrößen wurden am Tunneleingang und am Tunnelausgang bimodale Verteilungen der Partikelgröße gefunden. Die maximalen Partikelzahlen fanden sich bei Partikelgrößen von 8 bis 30 nm, während die Anzahl der Partikel mit Durchmesser 70 bis 200 nm um ca. eine Größenordnung niedriger lag. Der Anteil der Ultra-Feinpartikel lag bei ca. 96 %. Bei diesen kleinen Partikeln dominierte allerdings der Schwefelanteil und das Maximum der Größenverteilung dieser Sekundärpartikel lag bei 10 – 20 nm (HEI 2002).

Dieser Befund steht nur scheinbar im Widerspruch zu den Ergebnissen der Prüfstandsmessungen, bei denen Maxima bei ca. 100 nm beobachtet worden waren (Metz et al. 2000). IFEU weist darauf hin, dass unter den Bedingungen des Prüfstandes die Abgase nur wenig verdünnt werden und dass dies zu Artefakten führt, die bei den großen Verdünnungen in der Realität nicht gesehen werden. Dies bedeutet, dass sich unter den Bedingungen des Prüfstands feste und gasförmige Stoffe stärker zu Partikeln zusammenlagern und so größere und schwerere Partikel gebildet werden. Bei Tunnelmessungen sind die Verdünnungsraten dagegen höher und die Abgase werden stärker abgekühlt. Als Folge entstehen aus der Gas-Partikel-Umwandlung verstärkt kleine Partikel, die wegen der großen Verdünnung keine Partner für eine Zusammenlagerung und Partikelwachstum finden (IFEU 2000).

Kohlenstoff wurde in der Arbeit von HEI (2002) nicht bestimmt. Für OC könnte über den Gehalt an Wasserstoff ein Wert abgeschätzt werden. Damit ist ein Rußkern zwar nicht explizit ausgeschlossen, aber doch sehr unwahrscheinlich: die Durchmesser sind geringer als bei den EC-Primärpartikeln und es dominiert Schwefel. Damit spricht alles für eine Prävalenz von Sekundärpartikeln. Diese Interpretation stützen auch die Ergebnisse von Putaud et al. (2002, Fig. 16a). Die Autoren haben bei Immissionsmessungen in Gent zeigen können, dass der Rußanteil mit der Partikelgröße abnimmt:

Tabelle 3.4.5-1: Rußanteil in Ultra-Feinpartikeln bei Immissionsmessungen in Gent (Putaud et al. 2002).

Aerodyn. Durchmesser (µm)	0,05-0,09	0,09-0,16	0,16-0,30
EC-Gehalt (µg/m ³)	0,1	1	1,4
EC-Anteil an Gesamtmasse (%)	8	18	14

3.4.6 Zusammenfassung der Ergebnisse von Emissionsmessungen

Das Maximum der Größenverteilung von Dieselpartikeln liegt bei etwa 70 bis 100 nm. Es bestehen bezüglich des Partikeldurchmessers keine wesentlichen Unterschiede zwischen Pkw und Nutzfahrzeugen. Die Partikelgrößenverteilung ist von der Motortechnik und Abgasreinigung weitgehend unbeeinflusst und es wird dementsprechend bei neueren Motoren keine Verschiebung zu geringeren Durchmessern beobachtet.

Bei den Nanopartikeln mit Durchmessern < 30 nm handelt es sich um Sekundärpartikel ohne Rußkern, also nicht um Diesel(ruß)partikel. Solche Partikel stammen generell aus Verbrennungsprozessen und sind nicht typisch für Dieselmotoren. Diese Partikel bestehen häufig aus Wasser, Kraftstoff oder Sulfat und stammen allgemein aus der Kondensation flüchtiger Inhaltsstoffe von Verbrennungsgasen. Erhöhte Sekundärpartikelzahlen werden mit schwefelhaltigen Kraftstoffen gemessen und wenn durch die Verwendung eines Partikelfilters eine Anlagerung der flüchtigen Stoffe an die ausgefilterten Partikel nicht mehr möglich ist.

Die Emissionen von Pkw-Dieselmotoren haben seit 1970 stark abgenommen. Mit der Einführung des OxiKats ab EURO 2 ergaben sich Änderungen in der Zusammensetzung in Form verminderter Emissionen von CO und HC. Außerdem ist der Anteil des organischen Kohlenstoffs (OC) an den Partikeln durch den OxiKat vermindert, d.h. die partikelgebundenen PAKs und Nitro-PAKs sind vermindert.

Die generelle Zusammensetzung des Abgases von Nfz-Dieselmotoren hat sich seit 1960 z.T. ebenfalls ganz deutlich verbessert, wenn auch nicht grundsätzlich geändert, die emittierten Massen haben jedoch ebenso wie bei den Pkw-Motoren stark abgenommen.

Die bisherigen Emissionsminderungen in der Zeit vor der europäischen Grenzwertsetzung als auch zur Einhaltung der EURO-Grenzwertstufen wurden bei den Nutzfahrzeugen ohne jede Abgasreinigungstechnik, d.h. nur mit innermotorischen Verbesserungen in Verbindung mit verbesserten Kraftstoffen, realisiert. Bei den Pkws kam noch eine Abgasbehandlung mittels OxiKat dazu.

Ein verminderter Schwefelgehalt im Dieselmotorkraftstoff hat wesentlich zur Reduktion der Partikelmasse beigetragen. Neuere Methoden der Entstickung des Abgases erfordern eine weitere Absenkung auf weniger als 10 ppm Schwefel.

3.5 Emissionsmodellierungen

Der Schwerpunkt von Emissionsmodellen für den (Straßen)Verkehr liegt in der Berechnung und Darstellung der direkt verursachten jährlichen Emissionen in Abhängigkeit der Verkehrstechnologie.

Die Modellierung von Emissionen erfolgt auf der Basis von Emissionsfaktoren, Verkehrsaufkommen (Fahrleistungen) und Verkehrszusammensetzung (Fahrzeugbestände). Die Problematik der Modellierung liegt in der Wahl der Eingangsparameter, deren Gewichtung und die Vorhersage der zukünftigen Entwicklung. Unter Berücksichtigung von Fahrverhaltensuntersuchungen werden die aus Prüfstandsmessungen erhaltenen Emissionsfaktoren in repräsentative Fahrmuster umgerechnet und Fahrzeuge mit ähnlichen Emissionsverhalten werden in sogenannte Fahrzeugschichten zusammengefasst. Diese sind gegliedert nach Antriebstechnologie (Diesel, Otto, Alternativ), Fahrzeugtyp (Größe, Masse) und Grenzwertstufen. Die Zusammensetzung des Straßenverkehrs, und damit der Beitrag der einzelnen Fahrzeugschichten zu den jährlichen Emissionen des Straßenverkehrs, wird über den bundesdeutschen Fahrzeugbestand (aus den Daten des Kraftfahrzeugbundesamtes) ermittelt. Die jährlichen Emissionen des Straßenverkehrs kann dann durch Aufsummieren der Emissionen der einzelnen Fahrzeugschichten, bestimmt durch deren Aktivität (jährliche Fahrleistung, jährlicher Kraftstoffverbrauch, Anzahl der Start- und Abstellvorgänge), berechnet werden.

Das Emissionsverhalten von Fahrzeugen wird über sogenannte Emissionsfaktoren beschrieben. Emissionsfaktoren sind das Ergebnis ausgiebiger und aufwändiger Einzelmessungen an Fahrzeugen in definierten Fahrzyklen oder Verkehrssituationen. Sie werden bei Pkw in Gramm pro Kilometer (g/km) angegeben, während bei Nutzfahrzeugen g/km oder Gramm pro Kilowattstunde (g/kWh) zu finden sind. Das Emissionsverhalten wird nach folgenden Parametern differenziert:

- Emissionen in warmem Betriebszustand: Diese Emissionen sind abhängig von Motortechnik, Fahrzustand (mittlere Reisegeschwindigkeit oder Verkehrssituation), Motor-Betriebszustand, Straßenlängsneigung, Kraftstoffqualität und –additivierung, Laufleistung, Außentemperatur und Höhe über dem Meer.
- Kaltstartemissionen sind abhängig von Motortechnik, Umgebungstemperatur beim Startvorgang, Fahrtdlänge nach dem Start, Standzeit des Fahrzeugs vor dem Start und der Fahrweise nach dem Start.
- Verdampfungsemissionen entstehen nach Warm- bzw. Heissabstellen des Fahrzeuges, Tankatmung bei abgestellten Fahrzeugen und Verdampfungsverluste während der Fahrt (*Running Losses*).

Es existieren bereits zahlreiche Emissionsmodelle für den Straßenverkehr, die sich u.a. in der Palette der dargestellten Verbindungen oder in der Verknüpfung von Emissionsfaktor und

Fahrzustand unterscheiden können (mittlere Reisegeschwindigkeit, bzw. Produkt aus Geschwindigkeit und Beschleunigung). Nachfolgend werden in aller Kürze Emissionsmodelle des Umweltbundesamtes (**TREMOD**), einer **universitären Einrichtung** (Lenz und Prüller 2003) und der *European Environment Agency* (**COPERT**) vorgestellt, und die Ergebnisse aus TREMOD Berechnungen denen von Lenz und Prüller verglichen.

3.5.1 Emissionsmodellierung des Umweltbundesamt (TREMOD)

TREMOD (**TR**ansport **E**mission **E**stimation **MO**del) wird seit dem Jahr 1993 im Auftrag des Umweltbundesamtes vom IFEU (Institut für Energie- und Umweltforschung, Heidelberg) entwickelt. Das Modell ist öffentlich nicht zugänglich, wird aber in Kooperation mit Politik und Wirtschaft (Verband der Deutschen Automobilindustrie (VDA), Mineralölwirtschaftsverband (MWV), Deutsche Bahn AG, Lufthansa u.a.) kontinuierlich weiterentwickelt. Die aktuellen Erweiterungen und Fortschreibung liegt mit der TREMOD-Version 3.0 vom 31.10.2002 vor. Vom Umweltbundesamt wurden uns die Berichte aus den Jahren 1997, 1999, 2000 und 2002 zugesandt, in denen TREMOD vorgestellt (IFEU 1997) und die vorgenommenen Ergänzungen und Aktualisierungen (IFEU 1999, 2000, 2002) beschrieben sind. Außerdem erhielten wir die Berechnungen mit der aktuellsten TREMOD-Version (Stand 31.10.2002) zur Entwicklung des Fahrzeugbestandes, der jährlichen Fahrleistungen und den damit verbundenen jährlichen Emissionen.

TREMOD wird von Industrie und Behörden (Umweltbundesamt, Bundesministerien, VDA, MWV u.a.) gleichermaßen anerkannt und zur Verkehrsplanung und zur Berechnung der Luftschadstoffemissionen aus dem motorisierten Verkehr in Deutschland genutzt. Diese herausragende Bedeutung von TREMOD als Prognose- und Entscheidungsinstrument in Deutschland macht eine detaillierte Betrachtung des Modells erforderlich, die den Rahmen dieses Forschungsauftrags sprengen würde. Der interessierte Leser wird deshalb auf die Literatur verwiesen (IFEU 1999, 2000, 2002; Infras 1999).

Mit TREMOD steht ein komplexes Rechentool zur Verfügung, mit dem die Emissionen aller wesentlichen Verkehrsmittel in Deutschland (Pkw, Nfz, Zweikrafträder, Bahn, Schiff, Flugzeug) für die Jahre 1960 – 2020 modelliert werden können. Der motorisierte Straßenverkehr ist wegen seiner hohen Bedeutung für die Belastung des Menschen und der Natur sehr ausführlich bilanziert. Dabei werden für benzin- und dieselbetriebene Fahrzeuge die Fahrleistungen, Energieverbräuche und Emissionen in der größtmöglichen Differenzierung nach Technik, Fahrzeuggröße (Hubraum, Masse), Fahrzeugalter, Beladungsgrad, Straßenkategorie, Verkehrssituation, Steigung/Gefälle des Fahrweges, Nutzungsmuster (Starttemperatur, Fahrtstreckenlänge, Standzeit) usw. erfasst und bei Bedarf auch so differenziert ausgegeben. Darüber hinaus können Straßenverkehrsemissionen auch in Abhängigkeit der Zusammensetzung der Fahrzeugflotte modelliert werden (IFEU 2002).

Datengrundlage für TREMOD sind umfangreiche Messungen zum Emissionsverhalten von Kraftfahrzeugen, die im Zeitraum von 1988 bis 1995 vom TÜV Rheinland und Rheinisch-Westfälischer TÜV durchgeführt wurden (UBA-Berichte 8/94 und 8/95), sowie

Untersuchungen zum Fahrverhalten und Fahrleistungserhebungen von Heusch-Boesefeldt (IFEU 1997).

Die gemessenen Emissionsfaktoren beziehen sich auf den technischen Standard, der in den Kfz bis 1989 und zum Teil bis 1994 (Otto-Pkw) realisiert war (EURO 1, Otto-Pkw mit und ohne G-Kat). Zum Emissionsverhalten nachfolgender Fahrzeugkonzepte und Grenzwertstufen und den Einfluss einer veränderten Kraftstoffqualität (z.B. Schwefelgehalt) auf die Schadstoffemission wurden keine Messdaten erhoben. Um dennoch eine Abschätzung der Auswirkung geänderter Grenzwerte auf die verkehrsbedingten Emissionen geben zu können, wurde Anfang 1998 ein Vorschlag für die mögliche Entwicklung der Emissionen neuer Fahrzeugschichten nach EURO 2, 3 und 4-Standard zwischen dem UBA und dem VDA abgestimmt (IFEU 2002). Bilanziert werden die direkten Emissionen einschließlich der Verdunstungsemissionen und diejenigen Emissionen, die in der dem Endenergieverbrauch vorgelagerten Prozesskette entstehen. Der Kraftstoffverbrauch wird in TREMOD ebenfalls modelliert und zu einem späteren Zeitpunkt mit Verkaufszahlen abgeglichen.

Mit TREMOD können die folgenden Komponenten der Abgasemissionen modelliert werden:

- aus umfangreichen und gut fundierten Messprogrammen:
Dieselmotorpartikel, Stickstoffoxide (NO_x), Gesamt-Kohlenwasserstoffe (Gesamt-HC), Kohlendioxid (CO_2 , berechnet als Gesamt- CO_2 aus dem Kraftstoffverbrauch), Kohlenmonoxid (CO).
- aus ergänzenden Messprogrammen und/oder zahlreichen Literaturrecherchen:
Blei, SO_2 , Methan (berechnet aus Gesamt-HC), Nicht-Methan-HC, Benzol, Toluol, Xylol (alle berechnet aus Gesamt-HC).

3.5.2 Emissionsmodellierung bei Lenz und Prüller (2003)

Die von Lenz und Prüller (2003) durchgeführten Berechnungen der Emissionen des Personenkraftwagen- und Nutzfahrzeugverkehrs basieren auf einer am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Kraftfahrzeugbau (IVK) der TU Wien entwickelten Datenbank zur Ermittlung von Emissionsfaktoren. Im Vergleich zu TREMOD sind in dieser Datenbank sehr viel mehr Messdaten zu einzelnen Komponenten über einen längeren Zeitraum vorhanden. Der Datenbestand ist daher verlässlicher und realitätsnaher. Die größte Datenmenge bezieht sich auf die limitierten Komponenten Kohlenmonoxid, Kohlenwasserstoffe, Stickstoffoxide (jeweils 40.000 bis 50.000 Messwerte) und Partikel (etwa 9.000 Messwerte). Auch Datensätze zu nicht limitierten Schadstoffen (Kohlendioxid, Benzol, Formaldehyd, 1,3-Butadien u.v.a.m.) sind enthalten.

3.5.3 Emissionsmodellierung der European Environment Agency (COPERT)

COPERT (COmputer Programme to Calculate Emissions from Road Transport) ist ein von Ntziachristos und Samaras im Auftrag des *European Topic Center on Air Emissions* der *European Environment Agency* entwickeltes Programm zur Quantifizierung von Verkehrsemissionen in verschiedenen europäischen Ländern. Die Berechnung der Emissionen erfolgt dabei mit Hilfe geschwindigkeitsabhängiger (mittlere Reisegeschwindigkeit) Emissionsfaktoren, die im wesentlichen im Rahmen eines europäischen Projektes (MEET, Methodologies for Estimating Air Pollutant Emissions from Transport) ermittelt wurden.

Die gegenwärtig aktuellste Version ist COPERT III, mit der die Berechnung zahlreicher Abgaskomponenten möglich ist:

CO, NO_x, VOC, CH₄, CO₂, N₂O, NH₃, SO₂, Dieselpartikel, PAH und POPs (*persistent organic pollutants*), Dioxine, Furane, NMHC und Schwermetalle, die im Treibstoff vorhanden sind (Blei, Cadmium, Kupfer, Chrom, Nickel, Selen und Zink).

Eine detaillierte Auflistung der NMHC zur separaten Betrachtung von Alkanen, Alkenen, Alkinen, Aldehyden, Ketonen und Aromaten ist ebenfalls möglich.

Der Benutzer muss allerdings für ein bestimmtes Analysenjahr die Zusammensetzung der Fahrzeugflotte selbst definieren. Daher sind Berechnung und insbesondere Zeitreihenbetrachtungen mit COPERT nicht bzw. nur mit außerordentlich hohem Aufwand möglich. Im Rahmen dieser Arbeit wird COPERT nicht weiter betrachtet.

3.5.4 Modellierung der Emission einzelner Abgaskomponenten 1960 bis 2020

Mit Hilfe von Modellierungen werden Veränderungen in der Emission bestimmter Abgaskomponenten im Zeitraum 1960 bis 2000 abgeschätzt und darüber hinaus eine Prognose bis zum Jahr 2020 vorgenommen. Außerdem lässt sich der Anteil des Straßenverkehrs oder Diesel-Fahrzeugen an der jeweiligen Emissionsmenge ermitteln.

In den nachfolgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der TREMOD Berechnung (Stand 31.10.2002) für Dieselpartikel, NO_x, Gesamt-HC, und CO für die Jahre 1960 bis 2020 vorgestellt und mit den Modellierungen von Lenz und Prüller (2003) verglichen. Auf eine Darstellung von SO₂ wird verzichtet, da durch die Reduktion des Schwefelgehaltes im Treibstoff der Anteil des Straßenverkehrs am SO₂-Gesamtausstoß nur bei etwa 2 % liegt (UBA 1999a). Korrekturen für die Einflüsse einer erhöhten Neuzulassung von Diesel-Pkw, die Gegenstand aktueller Diskussionen sind (Stellungnahme des UBA im November 2003, Kapitel 7.3), sind in den hier vorgestellten Berechnungen bereits berücksichtigt.

Die in TREMOD aktuell verwendeten Emissionsfaktoren für Dieselfahrzeuge werden von Knörr et al. (IFEU 2002) aufgrund der geringen Anzahl von durchgeführten und berücksichtigten Emissionsmessungen (34 Diesel-Pkw von 286 Pkw für die Baujahre 1986-90 (UBA-Berichte 8/94); 36 unterschiedliche Dieselmotortypen bei Nfz für das Bezugsjahr 1990 (UBA-Berichte 5/95) als problematisch eingestuft. Dennoch werden die Berechnungsergebnisse von Industrie und Behörden gleichermaßen anerkannt und genutzt. Angaben des Umweltbundesamtes (UBA 2001) und anderer Quellen zum Anteil des Straßenverkehrs an den Gesamtemissionen in Deutschland sind in Tabelle 3.5.4-1 gegenübergestellt.

Tabelle 3.5.4-1: Geschätzte Anteile des Straßenverkehrs an den Gesamtemissionen in Deutschland nach Umweltbundesamt (UBA) und Lenz und Prüller (2003); k.A.: keine Angabe

	UBA	Lenz&Prüller	Andere Abschätzungen
Bezugsjahr	1999	2000	2000
Stäube (TSP)	20 %	38 %	
PM ₁₀	k.A.	25 %	
PM _{2,5}	k.A.	25 %	
Stickstoffoxide	61 %	43 %	43 %
Flüchtige HC	23 %	16 %	
Kohlenmonoxid	52 %	43 %	
Kohlendioxid	21 %		
Referenz	UBA (2001)	Lenz und Prüller (2003)	(KRdL, 2003b)

Die Angaben weichen bei ein einigen der Parameter z.T. erheblich voneinander ab, soweit Angaben aus unterschiedlichen Quellen vorliegen. Schwefeldioxid (SO₂) wurde ausgeklammert, weil der Beitrag der Verkehrsemissionen zu dessen Gesamtemissionen mit rund 2% unerheblich ist. Von allen mobilen Emissionsquellen (Straßen-, Schienen-, Luft-, Schiffsverkehr) ist dabei der Straßenverkehr die mit Abstand dominierende Quelle.

Daten zur zeitlichen Veränderung der jährlichen Gesamtemissionen in Deutschland im Zeitraum von etwa 1970 bis 2000 und der jeweilige Anteil der wesentlichen Emissionsquellen einschließlich des Straßenverkehrs finden sich in den Jahresberichten des UBA (Daten zur Umwelt 1990, 2000) und bei Lenz und Prüller (2003). Aus dem sehr umfangreichen verfügbaren Datenmaterial wurde eine kompakte Übersichtsdarstellung ausgewählt, aus der die wesentlichen Entwicklungen zu entnehmen sind (Abbildung 3.5.4-1, aus Lenz und Prüller, 2003¹). Demnach sind die Emissionen seit Ende der 1980er Jahre je nach betrachteter Komponente um 60 % (Kohlenmonoxid, HC, NO_x) bis 80 % (TSP, PM₁₀) zurückgegangen.

Über den Anteil von Otto-Fahrzeugen an den Partikelemissionen liegen in Deutschland keine Untersuchungen vor. Eine amerikanische Studie beziffert den Anteil von Otto-Kraftfahrzeugen an den PM_{2,5} Emissionen auf etwa 30 % (Bailey et al. 2002).

¹ Diese Abbildung bietet eine beispiellose Übersichtlichkeit, die die geringe Auflösung der Schwarz-Weiß-Vorlage nach unserer Auffassung bei weitem kompensiert. An Details Interessierte finden in den angegebenen Referenzen eine außerordentliche Fülle von Informationen, die mit der hier wiedergegebenen zusammenfassenden Darstellung aus Lenz und Prüller (2003) in den wesentlichen Punkten sehr gut übereinstimmen.

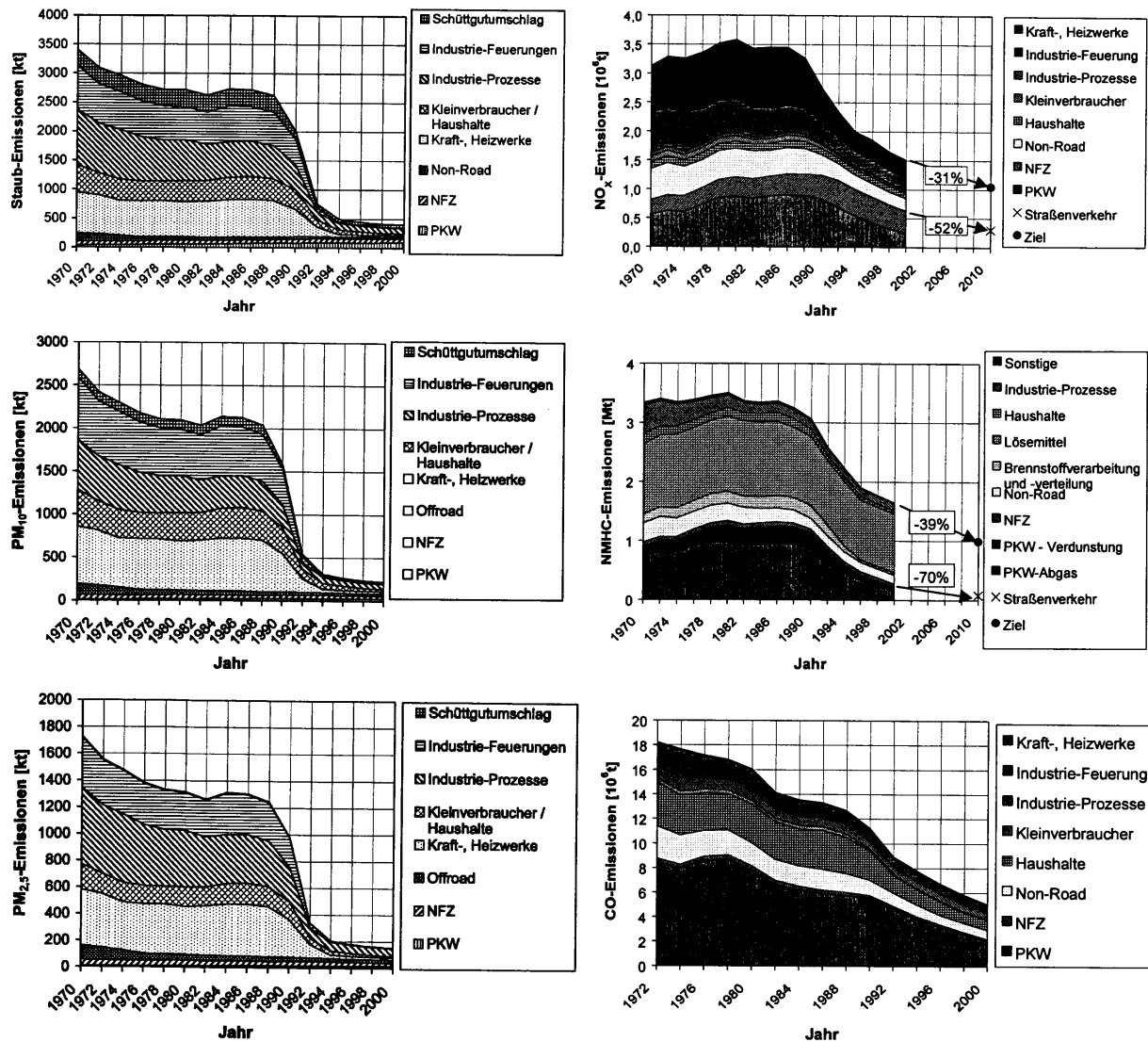


Abbildung 3.5.4-1: Zeitliche Änderung der jährlichen Gesamtemissionen von Staub (Gesamtschwebstaub), PM₁₀, PM_{2.5}, Stickstoffoxiden (NO_x), Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) und Kohlenmonoxid (CO) nach Lenz und Prüller (2003).

Seit Beginn der 90er Jahre sind die Emissionen des Straßenverkehrs und anderer Emittenten mithin stark rückläufig (Abb. 3.5.4.-1). Die Veränderungen der Emissionen des Straßenverkehrs im Jahr 2000 gegenüber 1990 verdeutlicht nochmals die nachfolgende Abbildung 3.5.4-2. Der gestiegene Ausstoß von Kohlendioxid korreliert dabei mit einem Anstieg der Fahrleistungen bei Pkws (von rund 714 Mrd. Personenkilometer in 1991 auf ca. 740 Mrd. Personenkilometer in 2000, Zuwachs ca. 3,6%) und insbesondere bei den Nutzfahrzeugen (von ca. 246 auf 347 Mrd. Tonnenkilometer, ein Zuwachs von ca. 41%). Die Emissionen von Dieselpartikeln, NO_x, CO und der flüchtigen Verbindungen (NMVOC) konnten trotzdem erheblich gesenkt werden (alle Angaben aus UBA 2002).



Abbildung 3.5.4-2: Prozentuale Veränderungen der Emissionen des Straßenverkehrs insgesamt von 1990 bis 2000 (UBA 2002).

Bei den Pkws konnte von 1990 bis 2000 eine erhebliche Minderung der Emissionen durch eine stufenweise Verschärfung der Abgasvorschriften für Neufahrzeuge und durch eine Nachrüstung von Altfahrzeugen mit Katalysatoren erreicht werden (CO: -65%, NO_x: -64%, NMVOC: -84%), obwohl die Fahrleistung etwas zunahm (UBA 2002; vergl. auch Abschnitt 3.5.4.1). Bei den Dieselpartikeln setzte ein Rückgang erst Mitte der 90er Jahre mit der Einführung schwefelreduzierter Dieselmotorabgasen und verschärfter Grenzwerte für die Partikelemission ein (Abbildung 3.5.4-4).

Die Emissionen des Nutzfahrzeugverkehrs sind durch fahrzeugtechnische Maßnahmen in den 90er Jahren ebenfalls z.T. erheblich zurückgeführt worden, nämlich die von Partikeln (-19 %), Kohlenmonoxid (-49 %) und von NMVOC (-33 %). Dagegen wurden die technischen Wirkungen zur Minderung der Stickstoffoxidemissionen durch die überaus starke Zunahme der Fahrleistungen überkompensiert, so dass die Emissionen von NO_x im betrachteten Zeitraum anstiegen (+14 %) (alle Angaben aus UBA 2002). Der Anteil des Nutzfahrzeugverkehrs an den Stickstoffoxidemissionen des Verkehrs liegt derzeit nach übereinstimmenden Berechnungen des Umweltbundesamtes sowie von Lenz und Prüller bei über 50 % (s. Abb. 3.5-5).

3.5.4.1 Jährliche Fahrleistungen

Die Fahrleistungen des Straßenverkehrs in Deutschland basierend auf den oben genannten Berechnungsgrundlagen sind in Abbildung 3.5.4-3 dargestellt. Weitere Details zur Berechnung der Fahrleistung können dem Endbericht von IFEU an das Umweltbundesamt (IFEU 2002) entnommen werden.

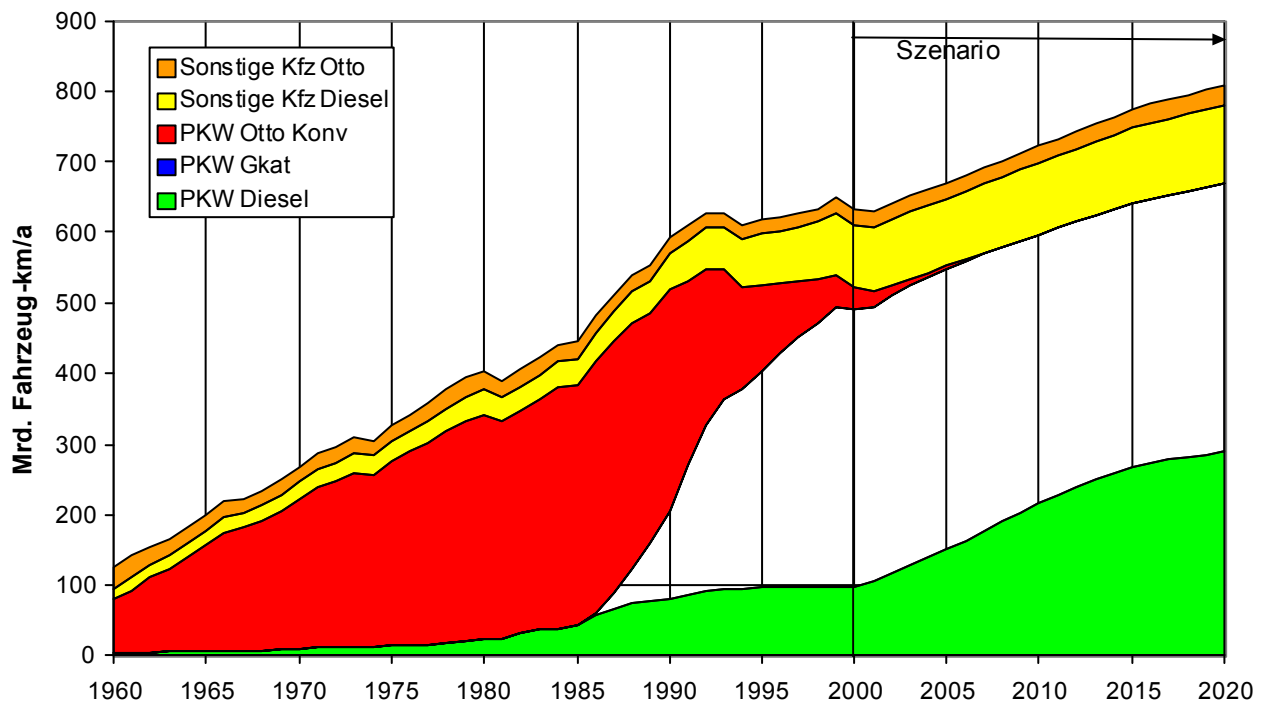


Abbildung 3.5.4-3: Entwicklung der Fahrleistungen des Straßenverkehrs in Deutschland 1960 bis 2020. „Pkw“: Pkw und Kombi; „Sonstige Kfz Otto“: benzinbetriebene INfz, Motorräder; „Sonstige Kfz Diesel“: dieselbetriebene leichte und schwere Nfz und Busse (IFEU 2002).

Die Fahrleistungen sind nach TREMOD im Zeitraum von 1960 bis 1990 um den Faktor 5 angestiegen und bewegen sich seither auf einem Plateau. Für den Zeitraum 2000 bis 2020 wird ein weiterer Anstieg um 30 % prognostiziert.

Der starke Anstieg der Fahrleistung bis 1990 ist vor allem auf die Zunahme des Pkw-Verkehrs zurückzuführen, während der Verkehr mit übrigen Kfz (v.a. schwere und leichte Nutzfahrzeuge) etwa konstant blieb. Zwischen 1990 und 2000 hat sich der Pkw-Verkehr nicht mehr wesentlich verändert während der Güterverkehr leicht zugenommen hat. Mitte der 80er Jahre kommt es im Pkw-Bereich zu einer Veränderung: Zum Einen verdrängen die Fahrzeuge mit geregelten Dreiwege-Katalysatoren zunehmend die konventionellen Otto-

Pkw (Abb. 3.5-3), gleichzeitig nimmt der Anteil an Diesel-Pkw bis 1990 bis auf 15 % zu. Bis zum Jahr 2000 verändert sich dann der Anteil an Diesel-Pkw kaum noch.

In den TREMOD-Berechnungen bis zum Jahre 2020 wird von einer Zunahme der Jahresgesamtfahrleistung von etwa 29 % gegenüber 1997 ausgegangen. Der Anteil von Diesel-Pkw an der jährlichen Fahrleistung wird demnach auf mindestens 35 % im Jahre 2020 ansteigen, während beim Anteil von Otto-Pkw ein Rückgang von 69 % auf 47 % vorhergesagt werden. Bei Nutzfahrzeugen wird eine leichte Zunahme der Fahrleistung von Diesel betriebenen Fahrzeugen von 12 auf 14 % angenommen, bei Otto-Nutzfahrzeugen wird keine Veränderung prognostiziert (IFEU 2002).

3.5.4.2 Gesetzlich limitierte Emissionen

Bei den gesetzlich limitierten Emissionen des Straßenverkehrs (Dieselpartikel, Stickstoffoxide (NO_x), Kohlenwasserstoffe (HC)) wird mit TREMOD von 1960 bis etwa 1990 ein genereller Anstieg der Emissionen berechnet, während bei Lenz und Prüller (2003) die Emissionen in diesem Zeitraum eher leicht fallend waren. Seit Beginn der 90er Jahre verzeichnen die Berechnungen generell einen Rückgang der Emissionen, der vor allem auf die Einführung von Grenzwertstufen (EURO 1:1992) zurückgeführt werden kann. Bei Kohlenmonoxid (CO) wird ein Rückgang der Emissionen bereits ab 1980 berechnet.

3.5.4.2.1 Dieselpartikelemissionen

In TREMOD werden ausschließlich Fahrzeuge mit Dieselmotor als Verursacher für Partikelemissionen im Straßenverkehr aufgeführt. Emissionen von Partikeln aus Otto-Fahrzeugen wurden in den bisherigen TREMOD-Versionen aufgrund der schlechten Datenlage nicht berücksichtigt. Die Ableitung von Emissionsfaktoren für Partikel aus Otto-Fahrzeugen verschiedener Grenzwertstufen wurde 1999 von den Autoren einer weiterführenden Arbeit für das UBA (UBA 2/99) vorgenommen, sind aber bisher nicht in TREMOD berücksichtigt.

Bezüglich der Dieselpartikel wird nur die bei der Emissionsmessung übliche Größe „Partikelmasse“ dargestellt, die nach der gesetzlich vorgegebenen Verdünnungstunnelmethode ermittelt wurde (Kap. 3.3.1). Der Einfluss der Kraftstoffqualität wird nur beim Schwefelgehalt berücksichtigt und durch Annahmen modelliert, der Einfluss von Motorenöl u.a. auf die Dieselpartikelemissionen wurde nicht berücksichtigt. Weitere Partikelcharakteristika wie Größenverteilung, Partikelzusammensetzung, Morphologie u.a. wurden bei der Erstellung der Basisdatensätze (UBA-Berichte 8/94 und 5/95) ebenfalls nicht berücksichtigt.

Mit TREMOD wird bis zu Beginn der 1990er Jahre eine starke Zunahme von Dieselpartikelemissionen des Straßenverkehrs berechnet (Abb. 3.5.4-4). Diese wird vor allem mit der starken Zunahme der Fahrleistung von Dieselfahrzeugen (Abb. 3.5.4-3) in Zusammenhang gebracht. Die sichtbaren Emissionsminderungen um etwa 50 % in den vergangenen 5 bis 10 Jahren sind vor allem auf regulatorische Maßnahmen (EURO 1 und EURO 2) und auf Veränderungen der Kraftstoffzusammensetzung zurückzuführen. Nach Lenz und Prüller (2003) sind die Partikelemissionen von Dieselfahrzeugen seit Beginn der 1970er Jahre fallend. Die Prognose bis zum Jahr 2020 stimmt mit der aus TREMOD in etwa überein.

Nach TREMOD Berechnungen betrug im Jahr 1990 der Anteil von Diesel-Pkw an den gesamten Dieselpartikelemissionen etwa 25 %. Bis zum Jahr 2000 bleibt demnach der Anteil der Diesel-Pkw an diesen Emissionen konstant und soll dann, v.a. aufgrund der prognostizierten Steigerung der Fahrleistungen, bis zum Jahr 2020 auf 70 % ansteigen.

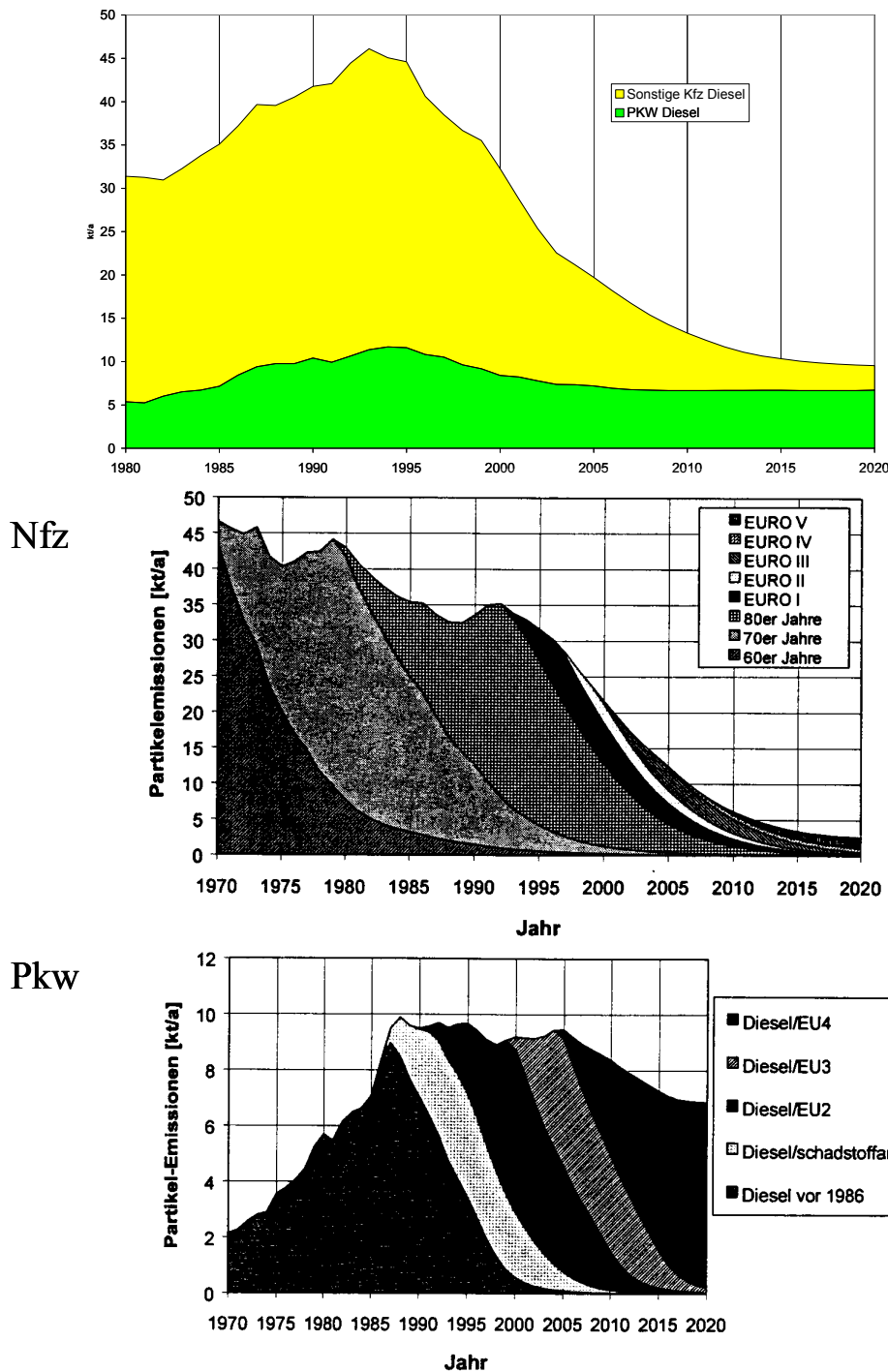


Abbildung 3.5.4-4: Oben: Entwicklung von Dieselpartikelemissionen des Straßenverkehrs in Deutschland 1960 bis 2020 nach TREMOD. „Pkw“: Pkw und Kombi; „Sonstige Kfz Otto“: benzinbetriebene Infz, Motorräder; „Sonstige Kfz Diesel“: dieselpetriebene leichte und schwere Nfz und Busse (IFEU 2002). **Mitte und Unten:** Entwicklung der Dieselpartikelemissionen für Nfz und Pkw nach Lenz und Prüller (2003).

IFEU schätzt allerdings die Datengrundlage für die Emissionsfaktoren für Dieselpartikel in TREMOD aus folgenden Gründen als problematisch ein (IFEU 2002, 2000):

- Geringe Anzahl von durchgeführten Emissionsmessungen,
- Abschätzung von Emissionsfaktoren für noch nicht repräsentativ vermessene Fahrzeuge (EURO 2, EURO 3.usw.),
- Fehlende zeitliche Auflösung der Partikelemissionen (integrale statt sekundliche Messweise).

Die daraus resultierenden Unsicherheiten sind bei der Berechnung der Partikelemissionen größer als bei anderen limitierten Stoffen. Die Berechnung der Emissionen in der Zeit vor 1980 sind aufgrund der dünnen Datenlage mit weiteren großen Unsicherheiten behaftet.

In jedem Fall aber sind sich Behörden und Industrie darüber einig, dass die strengen Abgasvorschriften der Stufen EURO 4 (2005) und EURO V (ab 2008) zu einer weiteren deutlichen Verringerung der Partikelemissionen bis 2020 führen werden.

3.5.4.2.2 Stickstoffoxidemissionen

Der Rückgang bei den Stickstoffoxidemissionen des Straßenverkehrs zu Beginn der 1990er Jahre (Abb. 3.5.4-5 oben) beginnt mit der Einführung des Drei-Wege-Katalysators bei Pkw und der Abgasnormen für schwere Nutzfahrzeuge. Gegenüber 1990 sind die Emissionen bis 1997 um 30 % zurückgegangen und werden unter den Randbedingungen der TREMOD-Berechnungen bis 2020 um weitere 68 % absinken (IFEU 2002). Prüller und Lenz (2003) schätzen die Stickstoffoxidemissionen vor 1990 höher ein, bestätigen aber den Rückgang der Emissionen zu Beginn der 1990er Jahre (Abb. 3.5.4-5 Mitte und unten).

Vor der Einführung des 3-Wege-Katalysators waren die Pkw mit Otto-Motoren die Hauptverursacher von NO_x-Emissionen im Straßenverkehr. Mit dem Verschwinden der Otto-Pkw ohne Katalysator (Abb. 3.5.4-5 oben, rote Fläche) aus der Fahrzeugflotte wurden die Fahrzeuge mit Dieselmotoren (Pkw und Nutzfahrzeuge) mit mehr als 70 bis 80 % die Hauptverursacher der NO_x-Emissionen. Der Anteil der Diesel-Pkw am gesamten NO_x-Ausstoß des Straßenverkehrs betrug demnach in den 1990er Jahren 7 – 8 % mit steigender Tendenz bis auf 14% in 2020, während der Nfz-Anteil seit der Einführung des 3-Wege-Katalysators bei den Ottomotoren von rund 40 auf 60 % im Jahr 2000 anstieg. Bis zum Jahr 2020 wird der Lkw Anteil unverändert bei etwa 55 % prognostiziert (gelbe Fläche im oberen Teil der Abb. 3.5-5).

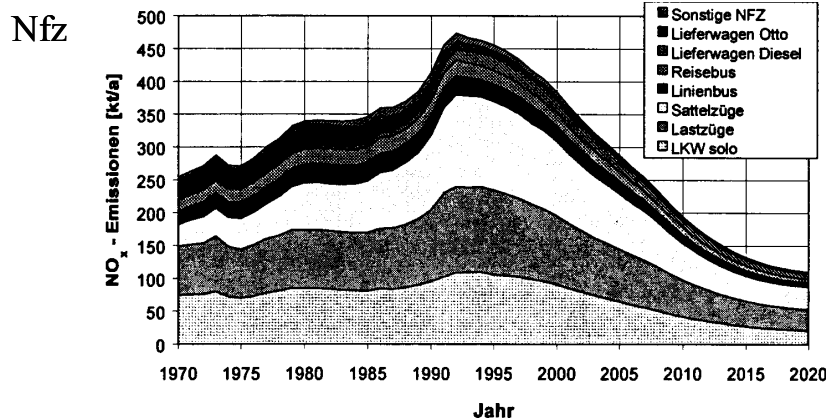
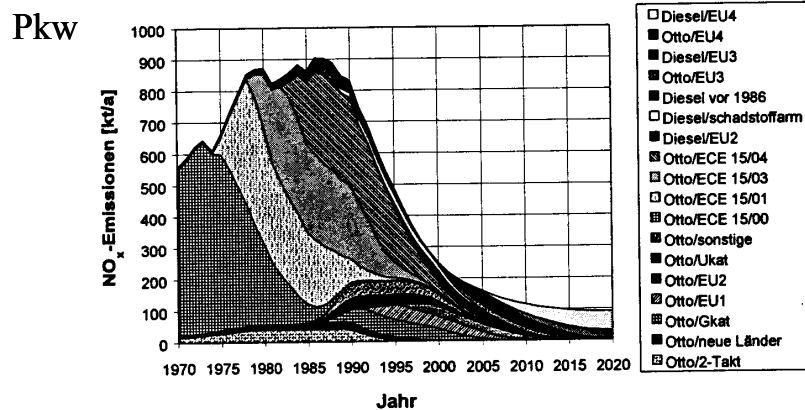
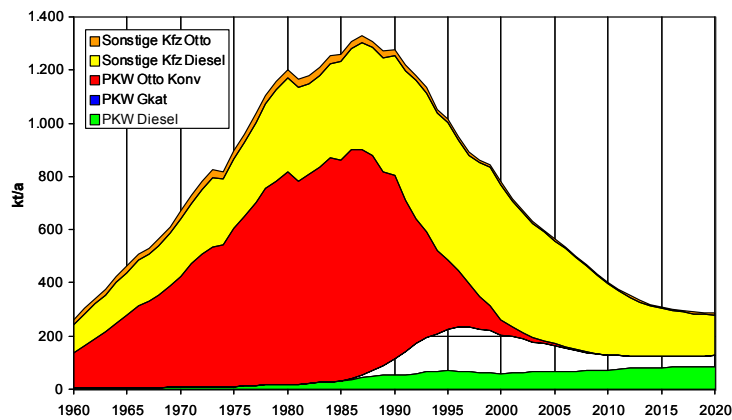


Abbildung 3.5-5: Oben: Entwicklung der Stickstoffoxidemissionen des Straßenverkehrs in Deutschland 1960 bis 2020. „Pkw“: Pkw und Kombi; „Sonstige Kfz Otto“: benzinbetriebene Nfz, Motorräder; „Sonstige Kfz Diesel“: dieselbetriebene leichte und schwere Nfz und Busse (IFEU 2002) **Mitte und Unten:** Entwicklung der Stickstoffoxidemissionen für Pkw und Nfz nach Lenz und Prüller (2003).

3.5.4.2.3 Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxid (CO)

Hauptverursacher der HC und CO Emissionen des Straßenverkehrs waren früher die benzinbetriebenen Fahrzeuge. Seit Beginn der 1990er Jahre sind die Emissionen für HC und CO aufgrund regulatorischer und technischer Maßnahmen ganz drastisch zurückgegangen (geregelter 3-Wege-Katalysator; EURO 3 und 4) und werden nach TREMOD-Berechnungen für das Jahr 2020 mehr als 70 % unter dem Wert von 1997 liegen. Bei den CO-Emissionen sind weiterhin die Otto-Fahrzeuge die Hauptemittenten, bei den HC-Emissionen sind dies mit der Einführung des 3-Wege-Katalysators die Dieselfahrzeuge geworden (Abb. 3.5.4-6 und 3.5.4-7), obgleich die HC-Emissionen bei Diesel-Pkw seit den späten 1990er Jahren rückläufig und bei Nutzfahrzeugen konstant geblieben sind.

Nach Ansicht von IFEU (2002) unterschätzt TREMOD allerdings die Emissionen von HC (Abb. 3.5.4-6) und CO (Abb. 3.5.4-7) für die 1960er und 1970er Jahre (wegen der zugehörigen Basisdaten; siehe Modellbeschreibung im Anhang) und nimmt deshalb an, dass das durchschnittliche Emissionsniveau dieser beiden Komponenten im Jahre 2000 bereits deutlich unter dem von 1960 liegt.

Lenz und Prüller (2003) sehen das ähnlich. Sie berechnen den Beitrag des Straßenverkehrs in den 1970er Jahren zu den CO-Emissionen (8000 kt/a) und HC-Emissionen (800 kt/a) (jeweils ohne Abbildung) und bestätigen damit eine Unterschätzung der Emissionen aus den 1970er Jahren bei den Berechnungen mit TREMOD. Den starken Rückgang der Emissionen seit Beginn der 1990er Jahre für HC und seit Beginn der 1980er Jahre für CO bestätigt auch ihr Modell.

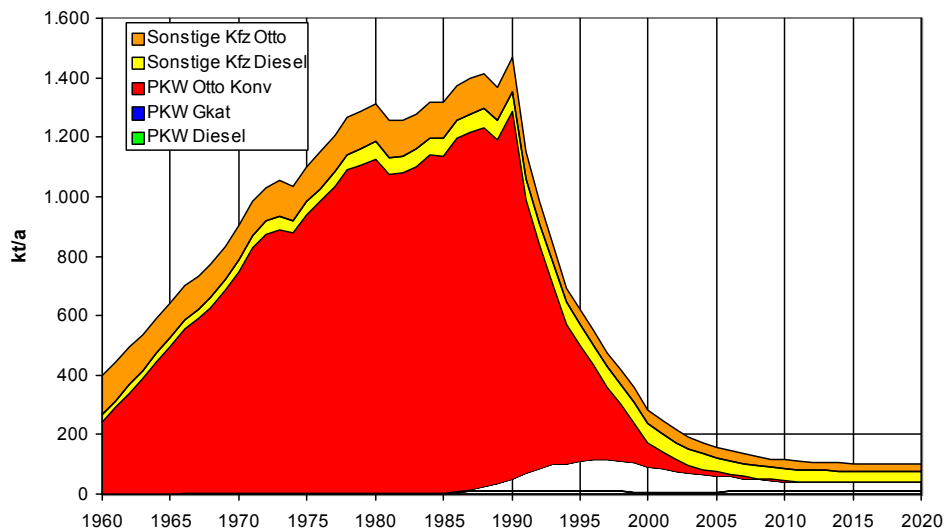


Abbildung 3.5.4-6: Entwicklung der Kohlenwasserstoffemissionen des Straßenverkehrs in Deutschland 1960 bis 2020. „Pkw“: Pkw und Kombi; „Sonstige Kfz Otto“: benzinbetriebene Infz, Motorräder; „Sonstige Kfz Diesel“: dieselbetriebene leichte und schwere Nfz und Busse (IFEU 2002).

Basierend auf einer Literaturrecherche von IFEU aus dem Jahre 1995 werden die Anteile der HC-Komponenten Methan, Benzol, Toluol und Xylol über die Jahre als konstant betrachtet. Über den Anteil anderer organischer Verbindungen (Aldehyde, Benzo[a]pyren, Nitroarene) wird keine Aussage gemacht (IFEU 2002).

Nach TREMOD ist der Beitrag von Dieselfahrzeugen zur CO-Emission vernachlässigbar (max. 12 %). Hauptemittenten sind Ottofahrzeuge ohne und mit geregelten Katalysator (Abb. 3.5.4-7).

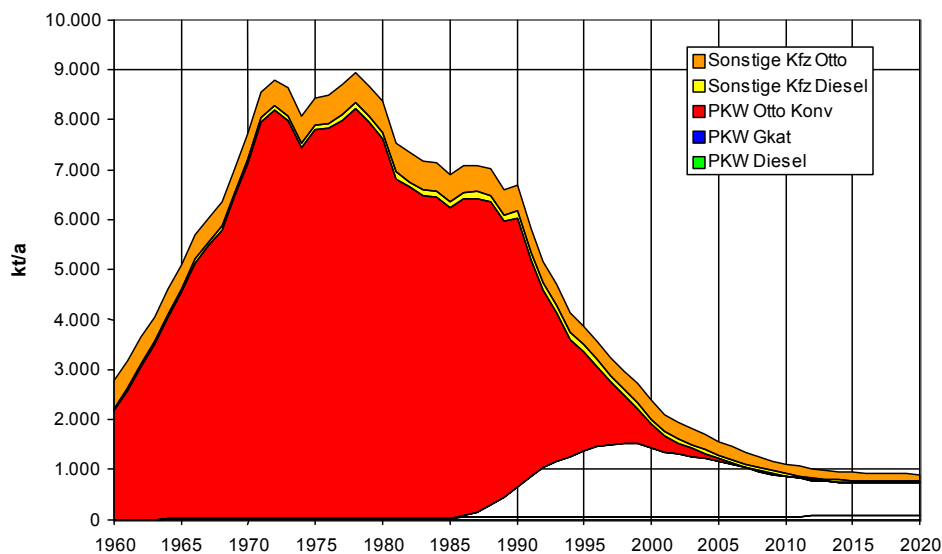


Abbildung 3.5.4-7: Entwicklung der Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs in Deutschland 1960 bis 2020 (IFEU 2002).

FAZIT

- TREMOD ist ein Werkzeug zur Berechnung verkehrsbedingter Emissionen. Es wird seit 1993 gleichermaßen von Behörden und Industrie entwickelt, genutzt und anerkannt.
- Die Berechnungen und Ergebnisse mit TREMOD im Zeitraum 1980 bis 2020 stimmen im wesentlichen mit denen des Modells von Lenz und Prüller überein.
- Demnach sind die jährlichen Fahrleistungen im Zeitraum von 1960 bis 1990 vor allem durch die Zunahme des Pkw Verkehrs um den Faktor 5 angestiegen und bewegen sich seither auf einem Plateau. Für den Zeitraum 2000 bis 2020 wird ein weiterer Anstieg um 30 % prognostiziert, der vor allem auf die Zunahme von dieselbetriebenen Kfz zurückgeführt wird.
- Nach den Berechnungen sind Emissionen durch den gesamten Straßenverkehr trotz steigender Fahrleistungen seit Ende der 1980er Jahre um 50 % (Partikelmasse) bis 60 % (Kohlenmonoxid, HC, NO_x) bis zurückgegangen.
- Bei Berücksichtigung der aktuell gültigen Grenzwertregelungen bis 2020 werden die Emissionen von NO_x und Partikelmasse mindestens um weitere 65 % absinken.
- Der Anteil von Diesel-Pkw am Verkehrsaufkommen steigt seit Beginn der 80er Jahre. Derzeit beträgt der Anteil Diesel-Pkw etwa 15 % und soll bis zum Jahr 2020 auf mindestens 35 % ansteigen.
- Die Emission von Partikelmasse der Dieselfahrzeugflotte (Pkw und Nfz) ist in den letzten 5 bis 10 Jahren um etwa 50 % zurückgegangen. Dies wird auf die Einführung schwefelreduzierter Dieselmotorkraftstoffe und verbesserte Motortechnik zurückgeführt.
- Dieselbetriebene Fahrzeuge produzieren rund 70 bis 80 % der derzeitigen NO_x-Emissionen, wobei der Hauptanteil auf Nutzfahrzeuge entfällt.
- Kohlenmonoxid- und u.U. auch Kohlenwasserstoffemissionen werden heute trotz 3-Wege Katalysator hauptsächlich von Fahrzeugen mit Ottomotor emittiert.

3.6 Immissions- und Arbeitsplatzmessungen

Das Bundes-Immissionschutzgesetz verlangt zum Schutz der menschlichen Gesundheit und der Umwelt die fortlaufende Überwachung und Bewertung der Luftqualität. Diese Aufgabe obliegt den Ländern, die zur Erfüllung der gesetzlichen Vorgaben Messnetze eingerichtet haben. Darüber hinaus werden vom Umweltbundesamt an fünf Messstationen in ländlichen Regionen Immissionsdaten zur Untersuchung der weiträumigen Luftverunreinigung erhoben (Hintergrundbelastung).

Für die verkehrsrelevanten Luftschadstoffe Schwebstaub (TSP), PM₁₀, NO_x, SO₂ und Ozon sind flächenhafte Darstellungen der Daten aus den Messnetzen für die Jahre 1985 bis 2001 (Ozon: 1990 – 2000) verfügbar und im Anhang (Kap. 7.1 Zeitreihen Immissionsmessungen) aufgeführt.

Rußmessungen werden dagegen erst mit der 23. BImSchV vom Dezember 1996 verlangt, und dementsprechend liegen hierzu auch erst seit ca. 1996 erste Messergebnisse vor, die den im Anhang zur 23. BImSchV vorgegebenen Messverfahren entsprechen. Eine Überwachung der Fraktion PM_{2,5} wird zur Zeit nicht verlangt, dementsprechend ist die Datenlage hierzu noch lückenhafter. Dennoch sehen Experten keine Notwendigkeit für einen Grenzwert für PM_{2,5} und ein entsprechendes Messprogramm, da PM_{2,5} und PM₁₀ in Deutschland in einem relativ konstanten Verhältnis zu einander stehen (PM_{2,5} ca. 90 % von PM₁₀). Nach einer Umstellung des Messverfahrens liegen zudem erst seit einem Jahr flächendeckende Werte für PM₁₀ vor (KRdL 2003a).

3.6.1 Ergebnisse von Immissionsmessungen

3.6.1.1 Partikel- und Rußmessungen

Seit Beginn der 1970er Jahre werden in Deutschland Messungen zur Immissionsbelastung durch Staubpartikel durchgeführt. Zunächst wurde nur der Gesamtschwebstaub (TSP, *total suspended particulates*) mit einem aerodynamischer Durchmesser < 50 µm bestimmt (UBA 2001, UMEG 2002). Im Rahmen gesundheitspolitischer Diskussionen traten TSP Messungen immer mehr in den Hintergrund, dafür rückten die Schwebstaubkomponenten PM₁₀, PM_{2,5} und Ultra-Feinpartikel immer mehr in den Vordergrund des Interesses. Um den neueren Erkenntnissen und Richtlinien (1999/30/EG) zu genügen, werden deshalb seit 1999 in Deutschland die flächendeckenden TSP-Messungen schrittweise eingestellt und dafür PM₁₀-Messungen vorgenommen.

Mitte der 1990er Jahre wurde in einzelnen Ländermessnetzen mit der Messung von PM₁₀ begonnen. Im Jahr 1998 wurden erstmals flächendeckende Messungen zur PM₁₀-Konzentration in Deutschland durchgeführt (UBA 2001). Derzeit werden an ca. 420

Messstationen der Länder, des Bundes und einigen Forschungsstationen Daten zur PM_{10} Luftbelastung erfasst (KRdL 2003a).

Messungen zur $PM_{2,5}$ -Belastung in Deutschland werden in nennenswertem Umfang erst seit Ende der 90er Jahre durchgeführt (UBA Texte 69/02). Derzeit stützt sich die Datenbasis auf etwa 20 Messstationen im Bundesgebiet, die im wesentlichen im ländlichen Raum verteilt sind. In verkehrsnahen und industriell belasteten Gebieten befinden sich nur 2 Messstationen, eine davon seit Mitte 1997 in Berlin (UBA 2001, KRdL, 2003a). Die älteste Messstation befindet sich in Erfurt (seit 1991), mit der allerdings erst seit 1995 kontinuierliche Messungen durchgeführt werden.

Im Gegensatz zur PM_{10} - und $PM_{2,5}$ -Immissionsbelastung, die über die Partikelmasse bestimmt wird, werden von Ultra-Feinpartikel die Partikelgrößenverteilungen und die Partikelanzahlkonzentrationen (Anzahl der Partikel eines bestimmten Größenbereichs pro cm^3 Luft) gemessen, da ihr Beitrag zur Partikelmasse sehr gering ist. In Deutschland gibt es derzeit weniger als 10 Messstellen für die Messung von Ultra-Feinpartikeln. Messungen über einen längeren Zeitraum stehen nur für Erfurt (1991, 1995-2001) und Leipzig (seit 1997) zur Verfügung (KRdL, 2003).

3.6.1.1.1 Messung der Partikelfractionen PM_{10} und $PM_{2,5}$

Zur Messung der Immissionskonzentration von PM_{10} und $PM_{2,5}$ werden heute überwiegend gravimetrische Staubsammler, die der EN 12341 (CEN 1998) entsprechen, eingesetzt. Zusätzlich kommen bei einigen PM_{10} Messungen noch kontinuierliche Messgeräte (β -Absorption und TEOM) zum Einsatz, deren Ergebnisse durch Vergleichsmessungen mit dem Referenzverfahren nach EN 12341 korrigiert werden, um Minderbefunde gegenüber dem gravimetrischen Referenzverfahren auszugleichen (KRdL 2003a, UMEG 2002, Internetseite des UBA: <http://www.uba.de>).

Daten für eine repräsentative flächenhafte Darstellung der bundesweiten Luftbelastung der letzten Jahrzehnte durch Staubpartikel liegen demnach nur für TSP vor (Abb. 7.1-1 im Anhang 7.1). Für eine flächenhafte Darstellung der Belastung durch PM_{10} , $PM_{2,5}$ oder ultrafeine Partikel ist die Datenlage nicht ausreichend. Vergleichende Messungen zur Partikelverteilung von TSP und PM_{10} des UBA haben jedoch gezeigt, dass im Mittel 83 % des Gesamtstaubes auf den Feinstaub PM_{10} entfallen (UBA-Texte 69/02, UBA 2001), so dass damit auf der Basis der TSP Messungen die flächendeckende Darstellung der PM_{10} Belastung für die Jahre 1986 bis 1998 berechnet werden konnte (Abb. 7.1-2 im Anhang 7.1).

Die bundesweiten TSP-Messungen zeigen einen deutlichen Rückgang der Belastung seit 1980 (Abb. 7.1-1 im Anhang 7.1). Besonders deutlich wird dies anhand von Messungen des UBA im ländlichen Raum zur Ermittlung der weiträumigen Schwebstaubbelastung (Abb. 3.6.1-1). Bis 1998 ist ein Rückgang der Belastung um etwa 50 % in stark und gering belasteten ländlichen Gebieten zu verzeichnen. Die Streubreite zwischen stark und gering belasteten ländlichen Gebieten beträgt demnach im Jahr 1998 nur noch $15 \mu g/m^3$, während sie 1980 noch bei $35 \mu g/m^3$ lag.

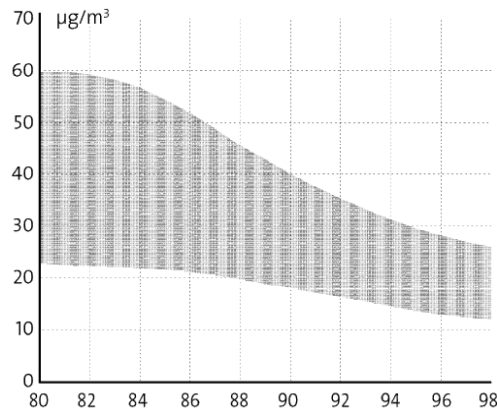


Abbildung 3.6.1-1: Jahresmittelwerte der TSP-Konzentrationen im ländlichen Raum (UBA 2001).

Die PM_{10} -Belastung zeigt für das Gebiet der alten Bundesländer seit Ende der 1980er Jahre eine rückläufige Tendenz auf Jahresmittelwerte $\leq 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In den neuen Bundesländern wird diese Tendenz erst ab 1993 sichtbar. Seither treten bundesweit großräumig nur noch Jahresmittelwerte zwischen 25 und $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf (Abb. 7.1-2). Die ab 2005 gültigen Grenzwerte der EU in Höhe von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Jahresmittelwert und mit einem Tagesmittelwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit max. 35 Überschreitungen p.a. werden zur Zeit noch nicht bundesweit eingehalten (Tabelle 3.6.1-1). Ein Vergleich der PM_{10} -Immissionen mit den berechneten jährlichen Partikelemissionen aus TREMOD (Abb. 3.5.4-4) zeigt, dass der Rückgang der großflächigen PM_{10} -Belastung zum Ende der 1980er / Beginn der 1990er Jahre eingetreten ist. Damit hat sich offenbar eine Verbesserung der Immissionssituation bereits deutlich vor der Einführung der Grenzwertstufen EURO 1 (Pkw) und EURO I (Nfz) für Dieselfahrzeuge im Jahre 1992 ergeben und diese Beobachtung legt nahe, dass auch andere Emittenten als der Straßenverkehr die Immissionen entscheidend mitgeprägt haben.

Die Konzentrationen von PM_{10} und $\text{PM}_{2,5}$ hängen stark von meteorologischen Bedingungen, der Entfernung zu Emittenten und von der umgebenden Bebauung an der Messstation, z.B. Straßenschlucht, ab (UBA 1999a, KRdL 2003a). Es hat sich daher bewährt, die Messstationen in die Kategorien „ländlicher Hintergrund“, „städtischer Hintergrund“, „verkehrsnahe“ und „industriell“ (mit Nähe zur Schwerindustrie: Stahlwerke, Kokereien, Umschlag staubender Güter) einzuteilen. Tabelle 3.6.1-1 gibt einen Überblick über die im Jahr 2001 gemessenen Konzentrationsbereiche für PM_{10} und $\text{PM}_{2,5}$ in den entsprechenden Kategorien. Die PM_{10} -Konzentrationen stimmen sehr gut mit Werten überein, die im Rahmen eines immissionsnahen Risikovergleichs für Diesel- und Ottomotorabgase vom Ifeu-Institut aus Literaturdaten zusammengestellt wurden. Die Daten überstreichen den Zeitraum von 1992 bis 1998 (UBA 1999a).

Tabelle 3.6.1-1: Typische Konzentrationsbereiche von PM₁₀ und PM_{2,5} im Jahr 2001 an deutschen Messstationen in den Kategorien Land (ländlicher Hintergrund), Stadt (städtischer Hintergrund), verkehrsnah und industriell (nach KRdL (2003a) aus dem Internet-Angebot der Messnetze deutscher Bundesländer).

		Land	Stadt	Verkehrsnah	Industriell
Jahresmittel [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	PM ₁₀	10 - 18	20 - 30	30 – 45	30 – 40
	PM _{2,5}	10 -15	15 - 20	25 – 30	15 – 25
Anzahl der Tage mit Tagesmittel > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ *	PM ₁₀	0 - 5	5 - 20	15 – 100	50 – 90
	PM _{2,5}	Keine Angaben			
Spitzenwerte, Tagesmittel [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	PM ₁₀	50 - 70	60 - 100	70 - 150	100 – 200
	PM _{2,5}	40 - 70	50 - 70	70 - 150	50 – 80
Verhältnis PM _{2,5} /PM ₁₀ (Jahresmittel)**		0,9	0,9	0,75 – 0,9	0,7 – 0,9

*) Ab 2005 auf max. 35 Tage p.a. beschränkt. **Fett:** oberhalb der künftigen Grenzwerte

**) Zur Bewertung des PM_{2,5}/PM₁₀ Verhältnis siehe Erläuterungen im Text.

Demnach kann die Staubbelastung (PM₁₀ und PM_{2,5}) vom ländlichen Hintergrund zu verkehrsnahen und industriell geprägten Messstellen auf das doppelte bis dreifache ansteigen. Aufgrund von Ferntransporten kann es auch im ländlichen Raum zu Überschreitungen von 50 μg PM₁₀/m³ kommen. Die ab 2005 geltenden Grenzwerte der EU für PM₁₀ von 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahresmittel und bis zu 35 Tagesmittelwerten >50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ werden an Messstellen in städtischen Wohngebieten in der Regel eingehalten, während es an hoch belasteten Messstellen, wie beispielsweise die UBA Messstelle in Berlin, zu Überschreitungen der ab 2005 gültigen Grenzwerte für PM₁₀ (Jahresmittelwerte und Anzahl der Tagesmittelwerte >50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) kommt (Abb 3.6.1-2).

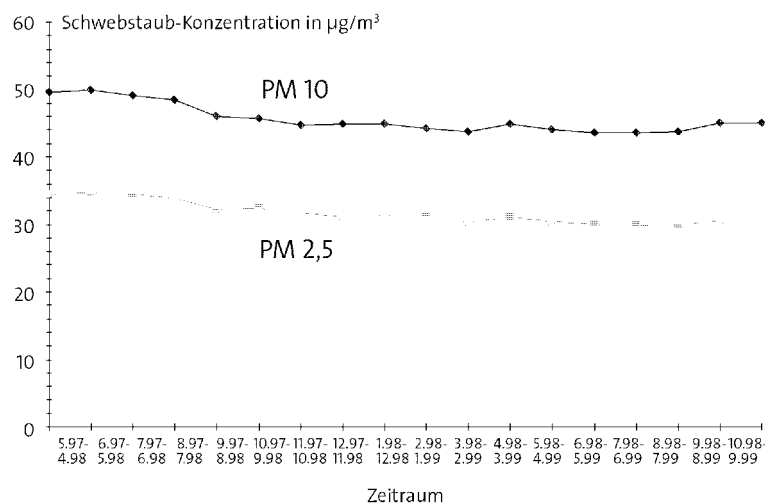


Abbildung 3.6.1-2: PM₁₀- und PM_{2,5}-Konzentrationen an einer hochbelasteten Verkehrsmessstelle in Berlin (UBA 2001).

Außerdem unterliegt die Partikelkonzentration auch klimatisch bedingten jahreszeitlichen Schwankungen und es werden im Winter generell höhere PM_{10} -Konzentrationen als in den Sommermonaten gemessen (UBA-Texte 69/02, Putaud et al. 2003; KRdL 2003a).

Im Rahmen des europäischen Forschungsprojektes EUROTRAC, das sich mit der Zusammensetzung und der Größe von Sekundärpartikel in der Erdatmosphäre beschäftigte und Messungen von PM_{10} , $PM_{2,5}$ und Ultra-Feinpartikeln aus Forschungsprojekten der letzten 10 Jahre in Westeuropa zusammenfasst, wurde gefunden, dass die PM_{10} -Belastung im Jahresmittel nur an wenigen, hoch belasteten Stellen den künftigen EU-Grenzwert von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (ab 2005) überschritten hat. Darüber hinaus hat diese Forschergruppe einen europaweiten Wert für die durchschnittliche jährliche Hintergrundbelastung mit PM_{10} ($7,0 \pm 4,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und $PM_{2,5}$ ($4,8 \pm 2,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$) ermittelt (Abschlussbericht 2003 im Internet unter <http://aerosol.web.psi.ch> verfügbar oder in gekürzter Form bei Putaud et al. 2002).

Für belastbare Aussagen sind die gemessenen Zeitreihen der deutschen Messstationen für PM_{10} und $PM_{2,5}$ in der Regel zu kurz. Die wenigen Stationen mit längeren Zeitreihen (Abb. 3.6.1-3) zeigen jedoch einen Trend zu einer mehr oder weniger deutlichen Abnahme der PM_{10} - und $PM_{2,5}$ -Konzentrationen (KRdL, 2003a). In dieses Bild fügt sich ein, dass der Jahresmittelwert der $PM_{2,5}$ -Fraktion nach der Einschätzung des Sachverständigenrates für Umweltfragen von $77 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 1978 auf $22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 1998 um rund 70% abgenommen hat (SRU 2002).

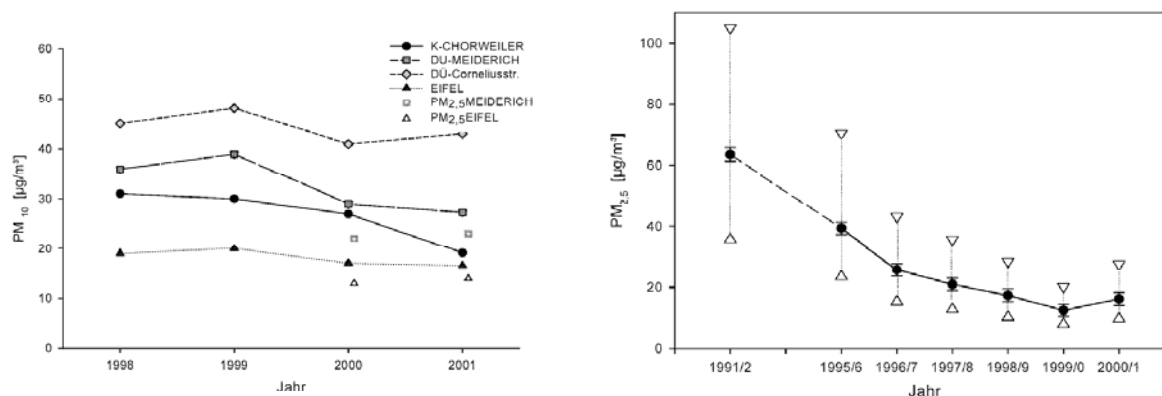


Abbildung 3.6.1-3: Links: Entwicklung der PM_{10} -Immissionen seit 1997 an verschiedenen Messstationen in Nordrhein-Westfalen. Für 2 Messstationen sind für 2000 und 2001 auch die entsprechenden $PM_{2,5}$ -Werte eingetragen (KRdL 2003a).

Rechts: $PM_{2,5}$ -Immissionen an einer städtischen Station in Erfurt. Angegeben sind das geometrische Mittel des Winterhalbjahrs Oktober bis März, die geometrische Standardabweichung und der Interquantilbereich zwischen dem 25. und 75. Perzentil (Kreyling et al., zitiert nach KRdL 2003).

Sowohl die WHO (2002) als auch der Länderausschuss für Immissionsschutz (LAI) gehen davon aus, dass der Straßenverkehr mit ca. 45 bis 65 % an den in Verkehrsnähe auftretenden PM_{10} -Spitzenbelastungen beteiligt ist (UBA, 2003). Eine Abschätzung des verkehrs-

bedingten Anteils an der PM_{10} -Hintergrundbelastung wurde nach unserer Kenntnis nur vom IFEU-Institut vorgenommen (Ergebnis: 18 %; UBA 1999a). Weitere Abschätzungen mit Quellenangaben finden sich in Tabelle 3.6.1-2.

Tabelle 3.6.1-2: Abschätzung des Straßenverkehrsanteils an den Feinstaubimmissionen (k.A. keine Angaben).

Referenz	Bezugsjahr	Anteil des Straßenverkehrs an	
		PM_{10}	$PM_{2,5}$
LAI (UBA 2003)	k.A.	45 – 65 %	k.A.
Prüller und Lenz (2003)	2000	25 %	25 %
IFEU (1999b)	1997	18 % (Land) – 51 % (Stadt)	k.A.
WHO (2002)	k.A.	40 – 60 %	k.A.

Aus Tunnel- und Straßenmessungen abgeleitete Staubherkunftsanalysen schätzen die Anteile von Dieselabgasemissionen, Reifenabrieb und Aufwirbelung am Beitrag des Straßenverkehrs zur PM_{10} und Ruß-Immission wie folgt ab (Rauterberg-Wulff 1998, UBA 2003, IFEU 2000):

Dieselabgasemissionen:	etwa 40 %
Reifenabrieb:	7 – 25 %
Aufwirbelung/Straßenabrieb:	40 – 53 %

Zusätzlich geht der LAI davon aus, dass verkehrsbedingte Nitrate ca. 10 – 15 % zur PM_{10} -Belastung beitragen (LAI zitiert in UBA 2003).

Über den Beitrag des Straßenverkehrs zur $PM_{2,5}$ -Konzentration liegen für europäische Länder bisher wenige Studien vor. In welchem Ausmaß Reifen-, Brems- und Kupplungsabrieb einen Beitrag zur Immissionskonzentration liefern muss noch genauer quantifiziert werden, da sich erste Annahmen, dass dieser Abrieb größer als $10\ \mu m$ ist (Rauterberg-Wulff, 1998) nicht ganz bestätigt haben (Metz, 2003; persönliche Mitteilung).

Die Jahresmittelwerte und Tagesspitzenwerte von PM_{10} und $PM_{2,5}$ unterscheiden sich nicht wesentlich voneinander (Tabelle 3.6.1-1). Dies zeigt, dass die PM_{10} -Fraktion im wesentlichen aus solchen Partikeln besteht, die auch bei der Messung von $PM_{2,5}$ erfasst werden. Nach der Auswertung von $PM_{2,5}$ - und PM_{10} -Messungen über einen Zeitraum von 2 Jahren weisen Mitarbeiter des UBA (UBA-Texte 69/02) übereinstimmend mit Putaud et al. (2003) darauf hin, dass die Angabe eines mittleren Verhältnisses $PM_{2,5} : PM_{10}$ wenig Sinn macht, und dass daher auf Umrechnungen von PM_{10} in $PM_{2,5}$ generell verzichtet werden sollte. Der Massenanteil von $PM_{2,5}$ an der PM_{10} Fraktion variiert zu sehr in Abhängigkeit von der Lage der Messstation (verkehrsnahe, ländlich) und den meteorologischen Bedingungen (UBA-Texte 69/02, Putaud et al. 2003). Putaud et al. weisen auch darauf hin, dass es keinen generellen, einfachen Zusammenhang zwischen Partikelmasse, Partikelgrößenverteilung und Partikelanzahl gibt. Zum Einen können Ultra-Feinpartikel in genügend großer Anzahl sehr wohl einen relevanten Beitrag zur Partikelmasse liefern und zum Anderen werden bei den Verfahren zur Bestimmung von Fraktionen wie $PM_{0,1}$, $PM_{2,5}$

oder PM_{10} jeweils auch größere Partikel miterfasst, bedingt durch den Abscheidegrad des Messkopfes von 50% (Putaud et al. 2003). Es wurde bereits eingangs (Abschnitt 3.6) erwähnt, dass Experten daher keine Notwendigkeit für einen Grenzwert für $PM_{2,5}$ sehen sondern für die Fortführung der PM_{10} -Messungen plädieren (KRdL 2003a).

3.6.1.1.2 Chemische Zusammensetzung von PM_{10} und $PM_{2,5}$

Literaturangaben zur chemischen Zusammensetzung der Partikelfractionen unterscheiden sich sehr stark (HEI 2002; Putaud et al. 2003, KRdL 2003a) und sind vor allem von der Lage der Messstation beeinflusst, wie in Abb. 3.6.1-4 beispielhaft an zwei Standorten in Baden-Württemberg gezeigt werden konnte.

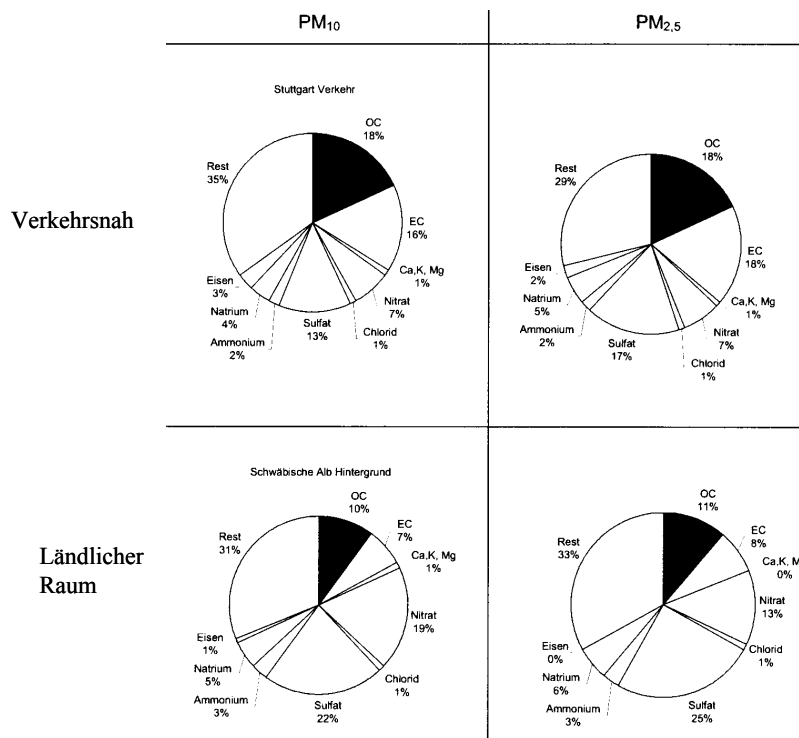


Abbildung 3.6.1-4: Chemische Zusammensetzung einzelner Schwebstaubfraktionen an unterschiedlichen Messstationen in Baden-Württemberg (UMEG 1997). Kategorien: Verkehrsnah (oben) und Land (unten).

Die chemische Analyse der einzelnen Staubfraktionen liefert eine umfangreiche Palette von Inhaltsstoffen. Neben elementarem Kohlenstoff spielen vor allem löslicher organischer Kohlenstoff (OC), Nitrat und Sulfat eine Rolle.

Ein erheblicher Teil der Masse kann keinem der untersuchten Elemente und Verbindungen zugeordnet werden und könnte beispielsweise aus leichtflüchtigen, schwer erfassbaren anorganischen Verbindungen (z.B: Ammoniumnitrat) bestehen. Der Anteil von elementarem

Kohlenstoff an der Gesamtpartikelmasse schwankt zwischen 5 und 20 % (KRdL, 2003; Putaud et al. 2003).

3.6.1.1.3 Rußmessungen

Die Gehaltsbestimmung von elementarem Kohlenstoff (EC oder Ruß) in der Partikelfraktion wird seit 1996 zur Einhaltung von Luftqualitätszielen (Grenzwert $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 23. BImSchV) in verkehrsnahen Gebieten durchgeführt. Darüber hinaus wird über den EC-Gehalt der Partikelfraktion auch der Anteil von dieselbetriebenen Kraftfahrzeugen an der PM_{10} -Belastung abgeschätzt (UBA 2003; US EPA 2003; UBA 1999a). Jedoch haben bisherige Modelle die Tatsache, dass auch von Otto-Fahrzeugen Partikel und elementarer Kohlenstoff in erheblichem Maß emittiert werden können nicht berücksichtigt. Berechnungen durch das IFEU-Institut ergaben einen Anteil der Otto-Fahrzeuge an den EC-Emissionen im verkehrsnahen Bereich von 5 % (UBA 1999a).

EC-Messungen in der PM_{10} -Fraktion aus den Ländermessnetzen und aus der UBA-Messstelle in Berlin zeigen übereinstimmend einen Rückgang der EC-Konzentration in verkehrsnahen Gebieten im Zeitraum von 1998 bis 2002 um teilweise bis zu 40 % (Abb. 3.6.1-5). Zusätzlich konnte an der Berliner Messstelle gezeigt werden, dass auch der EC-Gehalt in der $\text{PM}_{2,5}$ -Fraktion rückläufig ist (Abb. 3.6.1-5 links).

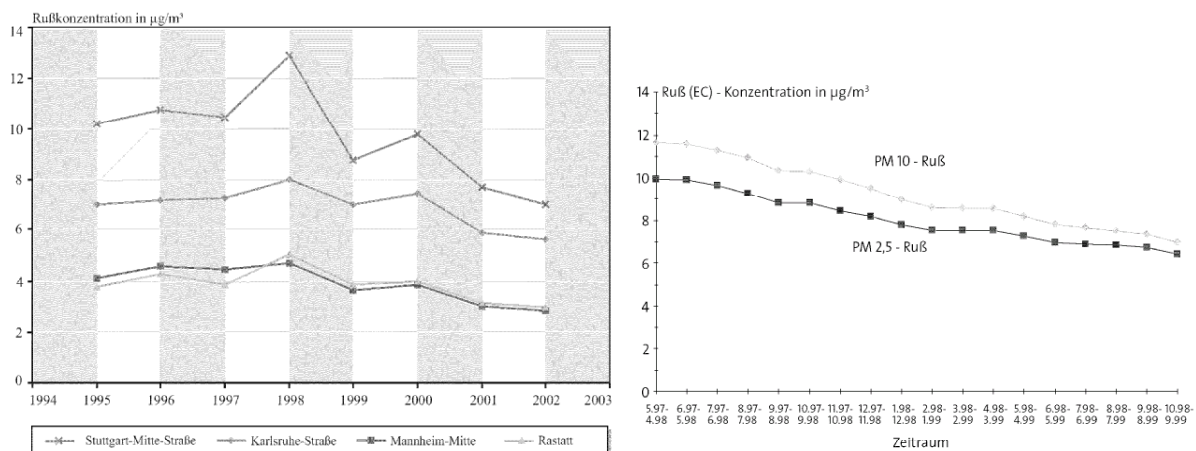


Abbildung 3.6.1-5: Links: Jahresmittelwerte 1995 – 2002 der EC-Konzentration in der PM_{10} -Fraktion aus dem Messnetz Baden-Württemberg (UMEG 2002). **Rechts:** EC-Gehalte der PM_{10} und $\text{PM}_{2,5}$ -Fraktion einer hoch belasteten Straße in Berlin (UBA2001).

3.6.1.2 Messung der Ultra-Feinpartikel

3.6.1.2.1 Partikelgrößenverteilung

Messungen zur Partikelgrößenverteilung (Abb. 3.6.1-6) haben gezeigt, dass 70 – 80 % der Partikel in der Außenluft einen Mobilitätsdurchmesser kleiner als 100 nm besitzen (Putaud et al. 2003, UBA-Texte 69/02, Pitz et al. 2003).

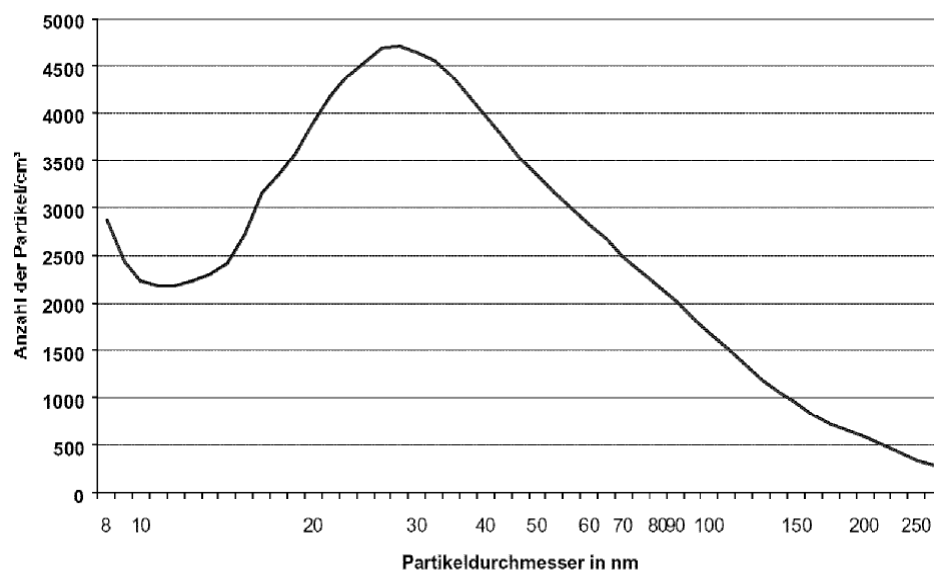


Abbildung 3.6.1-6: Anzahl-Größenverteilung der Ultra-Feinpartikel (8-250 nm) in der Außenluft am UBA-Dienstgebäude in Langen. Mittelwert über einen Messzeitraum von 49 Tagen zwischen August 2000 und Januar 2001 (UBA-Texte 69/02).

Die Auswertung europaweiter Messungen an 18 Messstationen im Zeitraum von 1997 bis 2000 zeigen außerdem, dass die Größenverteilung von der Tageszeit unabhängig ist und dass das Maximum der Größenverteilung in Abhängigkeit von der Lage der Messstation (Land, Stadt, Verkehrsnähe, Straßenschlucht) variieren kann. Das Maximum der Größenverteilung liegt generell unterhalb von 200 nm und liegt in den Kategorien „Straßenschlucht“ und „Verkehrsnähe“ der Städte London, Leipzig und Kopenhagen unterhalb von 50 nm (Putaud et al. 2003). Bei Tunnelmessungen in den USA mit überwiegendem Nutzfahrzeugverkehr wurde dies bestätigt. Am Tunneleingang und am Tunnelausgang wurden bimodale Verteilungen der Partikelgrößen mit einem Maximum bei Partikelgrößen von 8 bis 30 nm beobachtet (HEI 2001).

Der Vergleich mit Größenverteilungen von Dieselmotoremissionen (Maximum bei ca. 80-100 nm und geringer Anzahl bei Durchmessern unterhalb von 30 nm (Metz et al. 2000)) zeigt, dass Partikelemissionen aus Dieselfahrzeugen nur eine untergeordnete Rolle in der

Herkunft von Ultra-Feinpartikel spielen können. Bei den Ultra-Feinpartikeln handelt es sich vielmehr um Sekundärpartikel, die sich aus gasförmigen Abgasbestandteilen (SO_2 , NO_x , NH_3 und VOC) durch Gas-zu-Partikel-Konversion bilden (Putaud et al. 2003, Koch 2003, UBA-Texte 69/02).

3.6.1.2.2 Chemische Zusammensetzung

Eine Quellenzuordnung von Ultra-Feinpartikeln aufgrund ihrer chemischen Zusammensetzung ist allerdings relativ schwierig. Bei der Messung der Partikelanzahl mit SMPS oder DMPS werden die Partikel nicht für eine chemische Analyse angereichert und bei der Messung selbst kann dementsprechend auch nicht zwischen Flüssigkeits- und Feststoffaerosolen unterschieden werden. Soweit zur chemischen Zusammensetzung Daten verfügbar sind dominiert Schwefel als Hauptkomponente (HEI 2002; Putaud et al. 2003). In Verbindung mit dem geringen Durchmesser, der in der Regel geringer als der von Primärpartikeln ist, lässt dies auf einen größeren Anteil von Flüssigkeitströpfchen ohne Rußkern schließen. Der Rußkern ist jedoch (in Verbindung mit Angaben zum Partikeldurchmesser) zur Zeit der einzige Indikator für Dieselpartikel.

Eine Quellenzuordnung wird auch durch den Umstand erschwert, dass Teilchen mit einem Durchmesser <50 nm nur sehr langsam sedimentieren und aufgrund ihrer langen Aufenthaltszeit von mehreren Wochen und Monaten (UBA-Texte 69/02) in der Troposphäre weiträumig über Ländergrenzen hinweg transportiert werden und deswegen bei Immissionsmessungen mit erfasst werden. Bei Tunnelmessungen sind solche Kreuzkontaminationen weitgehend reduziert.

3.6.1.2.3 Partikelanzahl

Erste orientierende Messungen zur Partikelanzahlkonzentration (Tabelle 3.6.1-3) zeigen, dass die Belastung durch Partikel < 250 nm in Ballungszentren höher ist als in ländlichen

Tabelle 3.6.1-3: Anzahlkonzentration von Partikel mit einem Durchmesser kleiner als 250 nm.

Standort	Partikelanzahl pro cm^3 Luft	Referenz
Großstadt Frankfurt/Main-City	100.000 – 200.000	UBA-Texte 69/02
Straßenschlucht (London, Leipzig)	6.000 – 80.000	Putaud et al., 2003
Kleinstadt Langen	50.000 – 100.000	UBA-Texte 69/02
Erfurt	10.000 – 30.000	Kreyling WG, 2003
Stadtgebiet (London, Leipzig, Marseille, Mailand)	6.000 – 31.000	Putaud et al., 2003
Mittelgebirge, Schauinsland	5.000 – 50.000	UBA-Texte 69/02
Land	2.000 – 4.000	Putaud et al., 2003
Hintergrundstationen	$<<2.000$	Putaud et al., 2003

Gebieten (UBA-Texte 69/02; Putaud et al. 2003).

Zeitreihen aus Erfurt über einen Zeitraum von ca. 10 Jahren (Abb. 3.6.1-7) und aus Leipzig zeigen einen rückläufigen Trend der regionalen Partikelzahlen (Kreyling 2003).

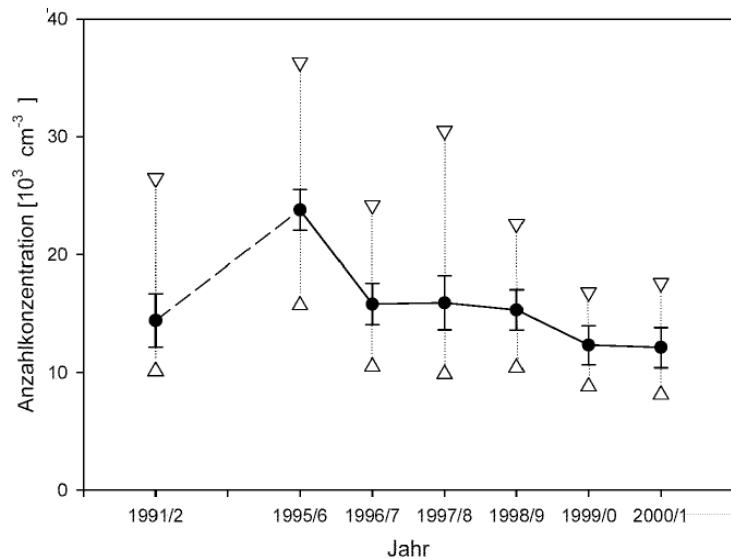


Abbildung 3.6.1-7: Trend der Partikelanzahlkonzentration der Partikel mit aerodynamischen Durchmesser 0,01 bis 2,5 µm in Erfurt, Winter 1991/92 bis 2000/01. Angegeben sind das geometrische Mittel der Messperiode (jeweils Oktober bis März), die Standardabweichung und der Interquantilbereich zwischen 25. und 75. Perzentil (Kreyling et al., zitiert in KRdL 2003a).

In Erfurt beobachteten Kreyling et al. in einer längeren Messreihe vom Winter 1991/92 bis Winter 2000/2001 eine Abnahme der Massenkonzentration der Partikelfraktionen $PM_{2,5}$ um ca. 75 % und der Fraktion $PM_{0,1 - 0,5}$ um ca. 80 % (Kreyling et al. 2003). Der gleiche Trend wurde für diese Fraktionen auch bei Messungen an drei Standorten in Sachsen-Anhalt (Zerbst, Bitterfeld, Hettstedt) gefunden, mit einem Rückgang der Masse um 50 % in 1999 gegenüber einer früheren Messung in 1993 (Pitz et al. 2003).

Gleichzeitig fand sich an allen drei Standorten eine Zunahme der Partikelanzahl für die Fraktion 10-30 nm um den Faktor 1,4 (Mittel aller drei Standorte), die mit Veränderungen der Emittentenstruktur nach der deutschen Wiedervereinigung und verbesserten Verbrennungsverfahren (Industrie, Heizanlagen, moderne Fahrzeuge) in Verbindung gebracht wurden (Pitz et al. 2003). Eine Veränderung der Partikelgrößenverteilung hin zu Partikeln mit kleinerem Durchmesser fanden auch Kreyling et al. (2003) in Erfurt (Abb. 3.6.1-8, links). Diese lokalen Befunde entsprechen also einander, sie können allerdings nach Expertenansicht trotzdem nicht großflächig generalisiert werden (KRdL 2003a).

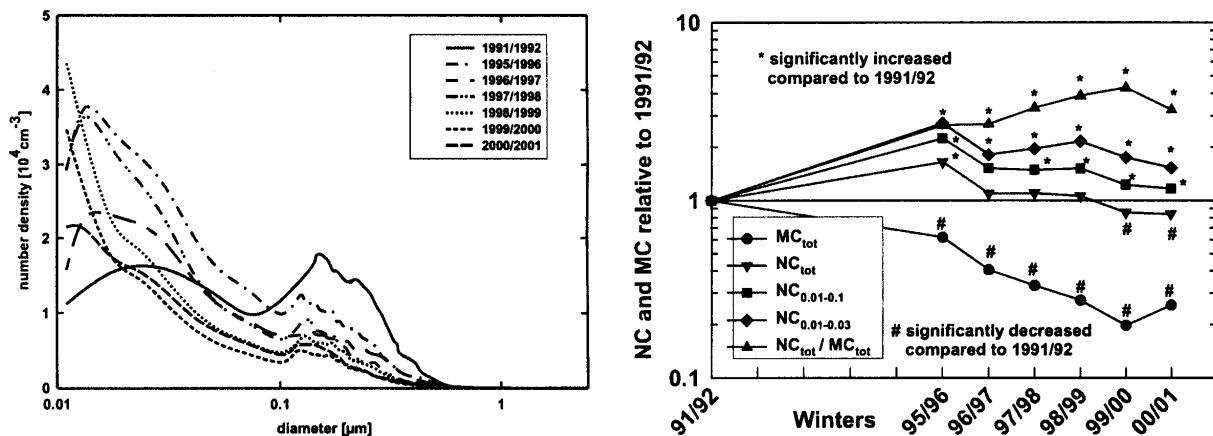


Abbildung 3.6.1-8: Veränderung der Partikelgrößenverteilung in den Wintermonaten von 1991 bis 2001 in Erfurt (rechts) und die daraus resultierenden Veränderungen in der relativen Massenkonzentration (MC) und Anzahlkonzentration (NC) bezogen auf den Winter 91/92 (Kreyling et al. 2003).

Anders als in Sachsen-Anhalt nimmt in Erfurt die Anzahl der Partikel von 10 - 30 nm seit 1995/96 kontinuierlich ab, d.h. sowohl die Partikelmasse (s.o.) als auch die Partikelanzahl sind dort rückläufig (s. Abb. 3.6.1-8, rechts). Die Autoren weisen jedoch darauf hin, dass der relative Anteil der Partikel 10 - 30 nm zugenommen habe. Dies erklärt sich durch eine stärkere Abnahme der größeren Partikel mit Durchmesser von 10 – 100 nm ($\text{NC}_{0.01-0.1}$) gegenüber den kleineren Partikeln ($\text{NC}_{0.01-0.03}$). Deswegen steigt das Verhältnis der Partikelzahl zu Partikelmasse, in Abb. 3.6.1-8 (rechts) ist dies durch die Kurve $\text{NC}_{\text{tot}}/\text{MC}_{\text{tot}}$ dargestellt. Die Autoren leiten daraus ab, dass für den Gesundheitsschutz eine Kontrolle der Partikelmasse unzureichend und zusätzlich eine Kontrolle der Partikelanzahl erforderlich sein könnte (Kreyling et al. 2003).

Eine chemische Analyse der Partikel 10 - 30 nm war den Autoren beim gewählten Messverfahren nicht möglich, d.h. es liegen keine Angaben z.B. über EC oder OC vor, aus denen ein Einfluss von Dieselmotorabgasen abgeleitet werden könnte. Kreyling geht dennoch von einem Einfluss der Dieselmotorabgase aus, weil erhöhte Ultra-Feinpartikelzahlen mit hohem Verkehrsaufkommen und erhöhten NO_x -Konzentrationen assoziiert waren (Tuch et al. 2003), und weil die Partikelemissionen bei Dieselmotoren höher seien als bei Ottomotoren (Kreyling, persönliche Mitteilung).

Kreyling und Wichmann äußerten wiederholt ihre Vorstellungen, Dieselmotoren emittierten zunehmend kleinere Partikel und seien für einen Anstieg der Fraktion 10 - 30 nm bei Immissionsmessungen verantwortlich, und daher sei zukünftig die Messung von Partikelmasse unzureichend und müsse durch Messungen der Partikelanzahl ergänzt werden (Kreyling 2003a, Wichmann 2003 und 2003a). Das Umweltbundesamt hat diese Position

aufgegriffen und behält sich vor, zukünftige Grenzwerte ggf. auch an der Partikelanzahl auszurichten (UBA 2003, 2003a).

Aus unserer Sicht kann dem aus den nachfolgenden Gründen nicht zugestimmt werden:

- Der Rückgang von PM_{2,5} um 75 % in Erfurt im Zeitraum 1991/92 bis 2000/2001 (Kreyling et al. 2003) und um 50 % in Sachsen-Anhalt (Messungen in 1993 und 1999; Pitz et al. 2003) zeigt eine bemerkenswerte Verminderung der Staubbelastung der Luft und damit einhergehend eine ganz außerordentliche Verbesserung der Luftqualität an diesen Messstellen in den neuen Bundesländern innerhalb weniger Jahre nach der deutschen Wiedervereinigung.
- Diese Veränderungen gehen auf eine veränderte Emittentenstruktur zurück, die nicht näher bezeichnet werden kann. Einflüsse von Industrie und veränderter Heiztechnik sowie des Straßenverkehrs sind plausibel. In diesem Zusammenhang kann auch ein hoher Gehalt von Schwefel in Heizöl (Grenzwert bis 2008: 2000 ppm; 3. BImSchV (2002)) eine Rolle spielen: die Messungen 1990/91 bis 2000/01 in Erfurt fanden stets im Winter und somit in der Heizperiode statt.
- Eine Zunahme der Partikelanzahl der Fraktion 10-30 nm um ca. 40% an drei Standorten in Sachsen-Anhalt (Pitz et al.) kann ebenfalls keiner bestimmten Quelle zugeordnet werden.
- In Erfurt haben die Partikel**massen** und die Partikel**zahlen** aller Fraktionen inkl. der Fraktion 10-30 nm abgenommen (Kreyling 2003).
- Mit der Abnahme der Partikelmasse und der Partikelzahl vermindert sich die Exposition der Bevölkerung, die Situation verbesserte sich also. Der von Kreyling, Wichmann und UBA stets betonte relative Anstieg der Fraktion 10 - 30 nm ist toxikologisch ohne Bedeutung.
- Der von den genannten Autoren vermutete Zusammenhang von Dieselmotoremissionen und Partikeln der Fraktion 10 - 30 nm wird nicht durch chemische oder elektronenmikroskopische Untersuchungen gestützt, d.h. es fehlt der Nachweis eines Rußkerns (EC) als Marker für die Herkunft aus Dieselmotorabgasen.
- Aus Prüfstandsmessungen ist bekannt, dass partikuläre Emissionen von Dieselmotoren untergeordnet aus Primärpartikeln (Rußpartikel) mit Durchmesser 10-30 nm und ganz überwiegend aus Agglomeraten mit Durchmesser 70 - 160 nm bestehen (ACEA 1999, 2002, Koch 2003, Metz 1999).
- Die Bildung von Sekundärpartikeln mit Durchmesser 10-30 nm durch Kondensation heißer gasförmiger Stoffe ist ebenfalls gut bekannt (Koch 2003). Es kann sich dabei um Wassertröpfchen, Sulfat- oder Nitratpartikel, Kraftstofftröpfchen, Öl usw. handeln. Ruß spielt bei den Sekundärpartikeln keine Rolle. Tunnelmessungen (HEI

2002) und Immissionsmessungen (Putaud et al. 2002) haben dies hinsichtlich Partikelzahl, -durchmesser und chemischer Zusammensetzung bestätigt.

- Eine Zuordnung von Sekundärpartikeln zu Dieselmotoremissionen ist bisher nicht nachgewiesen. Sekundärpartikel entstehen bei der Abkühlung heißer Abgase und z.B. durch Resuspension, Koagulation von Luftschadstoffen in der Atmosphäre. Dementsprechend vielfältig können die Quellen sein und schließen u.a. Industrieabgase, die Abluft häuslicher Heizanlagen sowie die Abgase von Dieselmotoren und von Ottomotoren ein.
- Partikelfilter sind durchaus geeignet, Dieselpartikel zurückzuhalten. Eine Sekundärpartikelbildung wird dadurch jedoch nicht verhindert, weil heiße Gase den Filter ungehindert durchströmen und bei der anschließenden Abkühlung dann Sekundärpartikel bilden. Die Zahl der Sekundärpartikel ist bei Verwendung eines Partikelfilters erhöht, weil die ausgefilterten Partikel dann nicht mehr zur Anlagerung der Sekundärpartikel zur Verfügung stehen.
- Die toxikologischen Eigenschaften der Sekundärpartikel werden z.Zt. verstärkt diskutiert (BIA 2003). Wenn auch Vieles noch unverstanden scheint, so ist doch gesichert, dass (1) Partikel mit Durchmesser 10 - 30 nm alveolär verfügbar sind und (2) die chemische Zusammensetzung die Art der Wirkung wesentlich bestimmt. Säurehaltige Partikel dominieren offenbar und können zu lokalen Reizungen führen. Wassertröpfchen dürften kaum eine nennenswerte Wirkung entfalten. Biopersistente Rußkerne, wie sie für Dieselmotoremissionen typisch sind, sind bei den Sekundärpartikeln bisher nicht nachgewiesen.
- Vor diesem Hintergrund ist die These des Umweltbundesamtes nicht nachvollziehbar, jedem Partikel sei eine schädigende Wirkung zuzuschreiben (UBA 2003), und dass dementsprechend künftige Grenzwerte auf die Partikelanzahl abheben sollen. Es ist mit dem Partikelfilter keine Absenkung der Sekundärpartikel (Fraktion 10 - 30 nm) herbeizuführen. Aus Literaturdaten geht hervor, dass durch den Einsatz des Partikelfilters die Anzahl der Sekundärpartikel 10-30 nm sogar um ca. Faktor 10 ansteigt, weil sich Sekundärpartikel nicht mehr an die ausgefilterten Dieselpartikel anlagern können (Burtscher 2001).

Ein Grenzwert auf der Basis von Partikelanzahlkonzentrationen wäre aus diesen Gründen weder toxikologisch, technisch noch wirtschaftlich sinnvoll.

3.6.1.3 Stickstoffoxide

Stickstoffoxide (NO , NO_2) werden überwiegend als NO emittiert, das schnell von Luftsauerstoff und Ozon zu NO_2 oxidiert wird. Unter dem Einfluss von UV(B)-Strahlung wird NO_2 in den Sommermonaten zersetzt.

Messungen der letzten Jahre (Abb. 7.1-3 im Anhang 7.1) haben gezeigt, dass in den ländlichen Gebieten außerhalb der Ballungsräume die Jahresmittel selten $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreichen, Messungen an Hintergrundstationen überschreiten selten $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In den Ballungsräumen werden zwischen 30 und $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Belastungen an industrienahen Messpunkten unterscheiden sich in der Regel nicht signifikant vom städtischen Hintergrund, da die industriellen Emissionen über hohe Schornsteine ausgestoßen werden. Da die Emissionen des Straßenverkehrs überwiegend bodennah auftreten, tragen die Verkehrsemissionen stärker zu den Immissionen bei, als es ihrem Emissionsanteil entspricht. Folglich treten hohe Schadstoffbelastungen fast ausschließlich in Straßennähe auf und können dort Konzentrationen bis $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreichen (UBA 2001, KRdL 2003b).

Die Zeitreihe der Messungen im ländlichen Raum zur weiträumigen NO_2 Belastung (Umweltdaten 2000) zeigt, dass für stärker belastete Regionen von 1985 bis 1998 ein Rückgang von 30 % zu verzeichnen ist, während in niedrig belasteten Gebieten keine nennenswerte Veränderungen zu erkennen sind (Abb. 3.6.1-9). Die Streubreite zwischen niedrig und stark belasteten Stationen des ländlichen Raums ist auf 10 bis $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zurückgegangen.

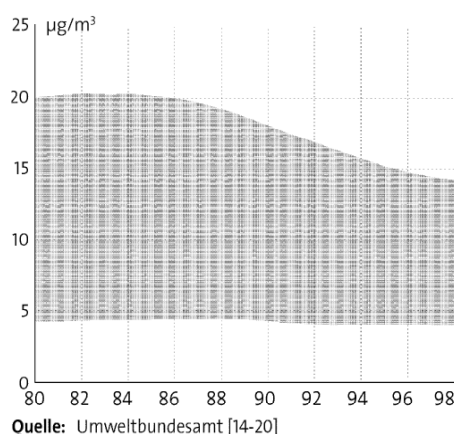


Abbildung 3.6.1-9: Jahresmittelwerte der NO_2 Konzentrationen im ländlichen Raum (UBA 2001).

3.6.1.4 Ozon

Die Konzentration des bodennahen Ozons ist wegen seines Bildungsmechanismus abhängig von der Konzentration der Vorläufersubstanzen NO_x und HC (flüchtige organische Verbindungen) sowie von den meteorologischen Gegebenheiten (v.a. Verlauf des Sommers). Eine wichtige Quelle für die Emission der Vorläufersubstanzen stellt der Kfz-Verkehr dar, im Falle des NO_x sind dies insbesondere die Emissionen dieselbetriebener Fahrzeuge.

Die großflächige Darstellung der Jahresmittelwerte einzelner Messstationen (Abb. 7.1-5 im Anhang 7.1) oder ein daraus berechneter bundesweiter Jahresmittelwert (Abb. 3.6.1-10), können für die Beurteilung der allgemeinen Immissionssituation verwendet werden.

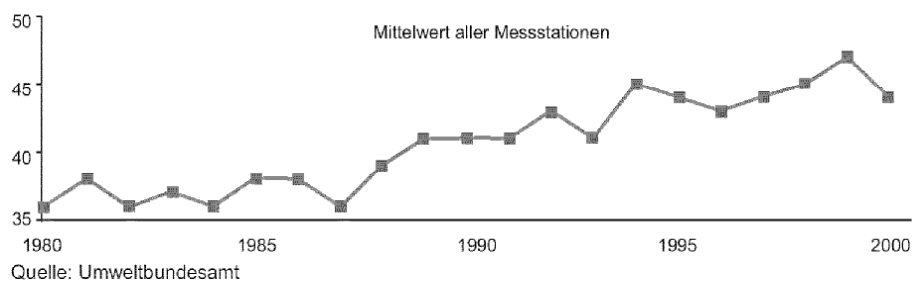


Abbildung 3.6.1-10: Jahresmittelwerte der bodennahen Ozonkonzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Umweltbundesamt 2002).

Allerdings ist trotz des Rückgangs der Emissionen der Vorläufersubstanzen in Deutschland seit 1990 ist eine entsprechende Abnahme der Ozonbelastung nicht zu beobachten. Die Ursachen dafür sind angesichts der vielen Einflüsse unklar. Emissionen des Straßenverkehrs könnten daran beteiligt sein. Die geschätzte jährliche Fahrleistung (Abb. 3.5.4-3) stieg im gleichen Zeitraum an, in dem auch Ozonkonzentrationen zunahmen.

Ein direkter und kausaler Zusammenhang mit der Emission von Dieselaabgasen ist damit jedoch noch nicht nachgewiesen, denn im gleichen Zeitraum (1980 bis 2000) sind z.B. die NO_x -Emissionen stetig zurückgegangen, und zwar um ca. 70 % (Abbildung 3.5-5, IFEU 2002).

3.6.1.5 Schwefeldioxid

Die flächenhafte Darstellung der SO_2 -Jahresmittelwerte auf der Basis der Ergebnisse von ca. 500 Messstationen der Länder und etwa 30 Stationen des UBA in Abb. 7.1-4 (im Anhang 7.1) zeigt einen deutlichen Rückgang der SO_2 -Belastung in Deutschland. In den alten Bundesländern bestand Mitte der 1980er Jahre bis Anfang der 1990er Jahre ein großräumiges Konzentrationsniveau von etwa $25 - 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit regionalen Spitzen von $50 - 75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Ruhrgebiet, Rhein-Main-Gebiet). Heute liegen flächendeckend Immissionskonzentrationen unter $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahresmittel vor.

In den neuen Bundesländern kam es vor allem in Industrieregionen bis Anfang der 1990er Jahre zu extremen SO_2 Belastungen. Im Jahresmittel wurden großräumig Werte über $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ festgestellt. Mitte der 1990er Jahre setzte ein deutlicher Rückgang der Immissionswerte ein und seit Ende der 1990er Jahre liegen die Jahresmittelwerte ebenfalls unter $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Jahresmittelwerte sind seit Mitte der 1980er Jahre um 75 % gefallen. Auch die Streubreite der Konzentrationen unterschiedlich belasteter Regionen ist deutlich von $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zurückgegangen (Abb. 3.6.1-11).

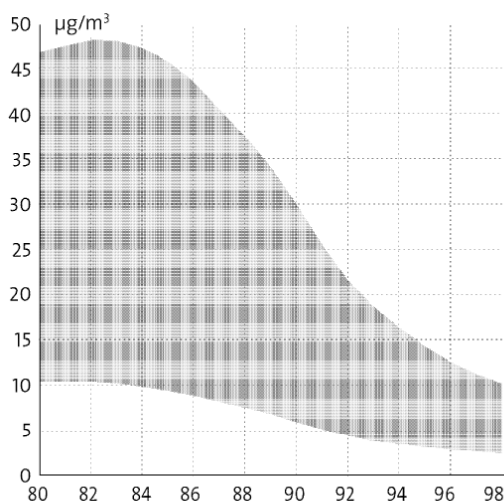


Abbildung 3.6.1-11: Jahresmittelwerte der SO_2 Konzentrationen im ländlichen Raum (UBA 2001).

Der Anteil des Straßenverkehrs an den SO_2 -Emissionen im Jahre 2000 betrug nach unabhängigen Schätzungen nur noch etwa 2 % (IFEU 1999; Lenz und Prüller 2003). Eine Absenkung des Schwefelgehalts von Dieselmotorabgasen kann hier also nicht viel bewirken, ist aber für die Verminderung von Partikel- und Stickstoffoxidemissionen erforderlich.

3.6.2 Immissionsmodellierungen

Das Ziel von Immissionsmodellierungen ist auf der einen Seite die Berechnung der zukünftigen Belastung mit luftgetragenen Schadstoffen und auf der anderen Seite die Abschätzung des Beitrags einzelner Emissionsquellen an den jeweiligen Immissionskonzentrationen, damit entsprechend gegengesteuert werden kann.

Bei einem einfachen linearen Modell zur Abschätzung von verkehrsbedingten Immissionskonzentrationen wird davon ausgegangen, dass eine Änderung der ortsrelevanten Emissionen zu einer prozentual gleichen Änderung der Immissionskonzentration führt. Dies setzt gleichbleibende meteorologische Bedingungen und chemische Umwandlungsprozesse voraus. Wenn die Emissionen mit hoher Qualität modelliert werden können, dann lässt sich ein direkter linearer Zusammenhang zwischen den berechneten Emissionen und der Immissionskonzentration herstellen. Dies wurde in einem Projekt für das Land Baden-Württemberg für die Schadstoffe NO_x und CO bestätigt (IFEU 2000a).

Zur Modellierung der zukünftigen verkehrsbedingten Luftbelastung müssen demnach folgende Schritte durchgeführt werden (Abb. 3.6.2-1):

- Ermittlung der typischen aktuellen Immissionskonzentrationen für eine Belastungsklasse (Straßenschlucht, Stadtverkehr, Außerortsverkehr, usw.) (blauer Balken).
- Abschätzung des Anteils des Straßenverkehrs an dieser Immissionskonzentration (roter Balken).
- Durchführung der Emissionsberechnung für den Straßenverkehr im selben Jahr, in der Zukunft (Trend) und für verschiedene Szenarien in der Zukunft. Ermittlung der Minderungsraten der Emissionen in diesem Zeitraum (oberer Teil, magenta und gelber Balken).
- Anwendung dieser Minderungsraten auf den Verkehrsanteil der Immissionskonzentration.

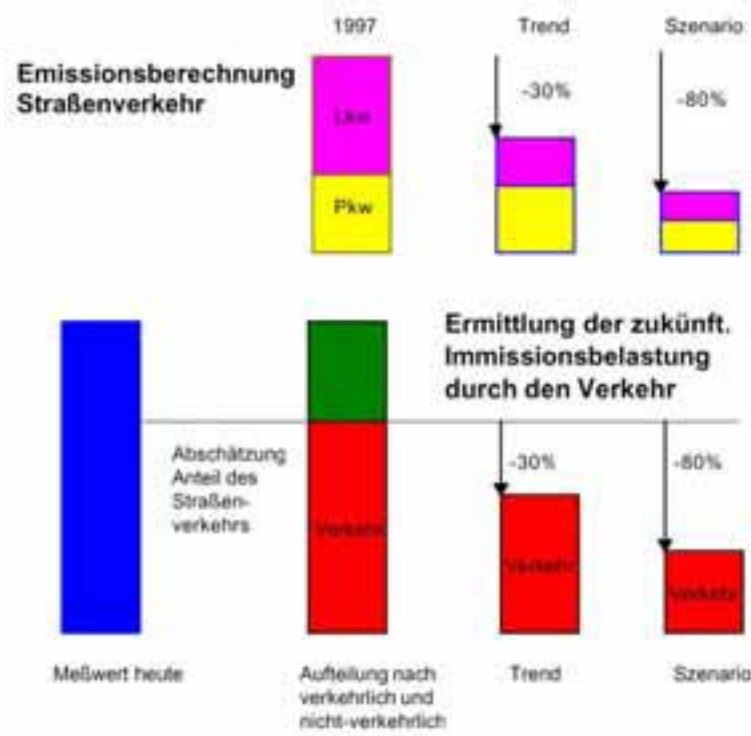


Abbildung 3.6.2-1: Schematische Darstellung der vereinfachten Abschätzung zukünftiger verkehrsbedingter Immissionskonzentrationen (IFEU 1999).

Die Abschätzung des Verkehrsanteils an den Immissionskonzentrationen ist mit einigen Unsicherheiten behaftet. Die verkehrsbedingte Immissionskonzentration ist an jedem Messort von diversen Faktoren abhängig wie z.B. Verkehrsstärke, Emissionsmenge, Windrichtung und Einflüsse anderer Emittenten (Quellstärke, Entfernung usw.). Zur Abschätzung des Verkehrsanteils stehen mehrere Methoden zur Verfügung:

Emissionsberechnungen geben Auskunft über den Anteil des Verkehrs an den Gesamtemissionen eines ausgewählten Gebietes. Diese Emissionsbilanzen liefern nur für größere Gebiete Aussagen. Lokale Einflüsse durch starke Emittenten können sich davon stark unterscheiden. Zudem liefert der Straßenverkehr aufgrund der geringen Emissionshöhe einen höheren Beitrag zur bodennahen Luftbelastung als beispielsweise Kraftwerke, und damit ist der Anteil des Straßenverkehrs an der bodennahen Immissionskonzentration größer als sein entsprechender Anteil an den Gesamtemissionen.

Ausbreitungsrechnungen modellieren ausgehend von den Emissionen der relevanten Quellen die Ausbreitung und gegebenenfalls die Umwandlung der Komponenten und ermöglichen eine Abschätzung des Anteils verschiedener Quellen an den Immissionen.

In **Rezeptormodellen** werden aus Charakteristika der chemischen Zusammensetzung, der Morphologie oder auch der Partikelgröße verschiedener Quellen Rückschlüsse auf den

Beitrag der einzelnen Quellen an der Immissionskonzentration gezogen (kann hier nur bei der Analyse von Partikeln bzw. PM_{10} angewendet werden).

Jede dieser Methoden ist mit großen Unsicherheiten behaftet. So sind bei der Emissionsberechnung Daten zur Aktivität der einzelnen Quellen und Emissionsfaktoren sehr wichtig, bei den Ausbreitungsrechnungen darüber hinaus noch exakte Informationen zur Meteorologie und Bebauung nötig. Bei den Rezeptormodellen müssen sehr spezifische Stoffe pro Quellengruppe in bekannter Konzentration vorliegen, um eine Zuordnung vornehmen zu können. Je nach Datenlage wird die Abschätzung nach der einen oder anderen Methode vorgenommen.

Es besteht eine starke Abhängigkeit der Immissionskonzentration von der Messhöhe (Höhe der Probenahme über dem Erdboden) und der lateralen Entfernung zum Fahrbahnrand. Daher ist der Zusammenhang zwischen den Verkehrsemissionen und den resultierenden Immissionswerten weitaus komplexer als erwartet, und eine einfache Korrelation zwischen Konzentration und beispielsweise durchschnittlicher täglicher Verkehrsstärke oder Straßengeometrie ist nicht gegeben.

Ausbreitungsmodelle sind komplexere Modelle, bei denen im Idealfall die Stärke und Entfernung der Emissionsquellen, Verkehrsmodus, bauliche Gegebenheiten, meteorologische Bedingungen und die chemischen und physikalischen Umwandlungen von emittierten Stoffen berücksichtigt werden. Wegen großer Unsicherheiten bei den Eingangsparametern und den notwendigen Vereinfachungen und Annahmen führt die Benutzung von Ausbreitungsmodellen zu ergeben sich oft erhebliche Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Modellierung und der Messung (UBA 2000a).

Metz (1999) berechnete mit Hilfe eines mathematischen Luftqualitätsmodells (SEM, Seika M) die Immissionskonzentrationen von Gesamtschwebstaub (TSP), PM_{10} , $PM_{2,5}$ und elementarem Kohlenstoff (EC) für Deutschland (Abb. 3.6.2-2). Die Basis seiner Berechnungen waren bundesweite TSP-Messungen aus den Jahren 1968 bis 1998 und regionale PM_{10} und EC-Messungen aus den Jahren 1995 bis 1998. Der Verlauf der Immissionen vor 1967 und die Vorhersage bis 2010 wurde aufgrund von Emissionsmodellierungen abgeschätzt. Demnach reduzierten sich die bundesweiten Jahresmittelwerte für TSP zwischen 1960 und 1990 um mehr als 80 %, die der anderen betrachteten Luftschadstoffe um etwa 50 %. Damit stimmen die Berechnungen im wesentlichen mit den Immissionsmessungen der Ländermessnetze und des UBA (Kapitel 3.6.1) überein. Die zukünftigen Maßnahmen zur Reduktion von Emissionen werden nach den Prognosen von Metz (Abb. 3.6.2-2) zu einer wesentlich geringeren Abnahme der durchschnittlichen jährlichen Immissionskonzentration führen.

Zum gleichen Ergebnis kommen auch Mitarbeiter des UBA, die darauf hinweisen, dass der Abfall der Staubkonzentrationen (TSP) in der Luft nach 1988 wesentlich langsamer erfolgt, als der starke Rückgang der Emissionen in Deutschland (UBA-Texte 69/02).

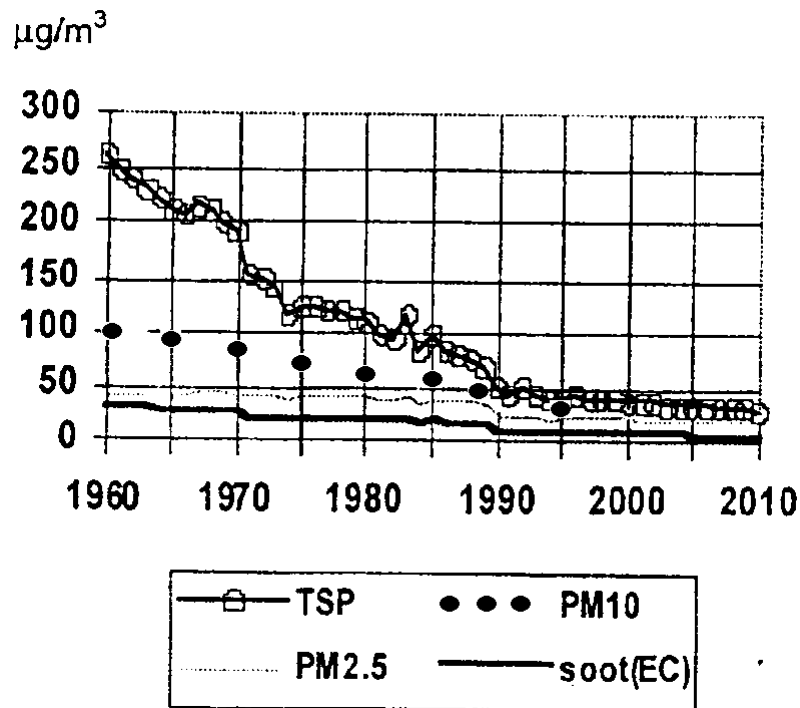


Abbildung 3.6.2-2: Typische Jahresmittelwerte von Gesamtschwebstaub (TSP), PM₁₀, PM_{2,5} und elementarem Kohlenstoff (EC) von 1960 bis 2010 in Deutschland aus Metz (1999).

(Anmerkung: Wegen einer geringen Druckqualität des Originals wurde der PM₁₀-Verlauf nachgezeichnet)

In einer Studie zur Entwicklung der gesundheitsrelevanten Emissionen des Straßenverkehrs im Jahre 2020 im Vergleich zum Jahre 1997, die im Auftrag des UBA gemeinsam von IFEU (Heidelberg), dem Institut für Toxikologie und Aerosolforschung (Hannover), FOBIG (Freiburg) und Roller (Erkrath) erarbeitet wurde (UBA 1999a), wurden zukünftige verkehrsbedingte Schadstoffkonzentrationen (Immissionen) abgeschätzt und mit Luftqualitätszielen verglichen.

Für das Jahr 1997 und für verschiedene Szenarien im Jahre 2020 wurde der Beitrag der Kfz-Abgasemissionen (Diesel und Otto) zur Immissionskonzentration von elementarem Kohlenstoff (Ruß), Benzol, und Benzo[a]Pyren (B[a]P als Leitsubstanz für PAK) in den Bereichen Straße (Straßenschlucht), Stadt (Ballungszentrum) und ländlicher Raum abgeschätzt und den aktuellen Grenz- und Zielwerten zur Luftqualität (Tabellen im Anhang 7.2) gegenübergestellt. Für eine Modellierung der zukünftigen PM₁₀-Konzentrationen war nach Aussage der Beteiligten die Datenlage im Jahr 1997 nicht ausreichend. In den Szenarien für das Jahr 2020 wurde der Anteil der Diesel-Pkw an der jährlichen Gesamtfahrleistung variiert (0 %, 16 %, 50 %), und es wurde auch eine Ausstattung der Diesel-Pkw mit Partikelfilter berücksichtigt. Nach dem damaligen Stand der Dinge wurde der Anteil von Diesel-Pkw an der Jahresgesamtfahrleistung des Straßenverkehrs im Jahr 2020 auf 16 % geschätzt, deshalb wird dieses Szenario als „Trend“ bezeichnet.

Für Benzol und B[a]P werden demnach die aktuellen Grenzwerte der 23. BImSchV in allen Bereichen erreicht, und die entsprechenden LAI-Beurteilungswerte (Benzol: $2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$; B[a]P: $1,3 \text{ ng}/\text{m}^3$) werden in der Zukunft unterschritten werden. Der festgelegte Jahresgrenzwert für elementaren Kohlenstoff ($8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wurde 1997 noch überschritten, wird aber im Szenario für das Jahr 2020 deutlich unterschritten (Abb. 3.6.2-3).

Die mittelfristigen Zielwerte werden nach diesen Berechnungen in den Ballungsräumen bei einem hohen Anteil von Diesel-Pkws ohne Partikelfilter wahrscheinlich nicht erreicht werden, und für das Erreichen der langfristigen Zielwerte ($0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) müsste entweder die Fahrleistung von Diesel-Pkw gegenüber dem Trendszenario (16 %) reduziert werden, oder es müssten Partikelfilter bei Diesel-Pkw eingesetzt werden.

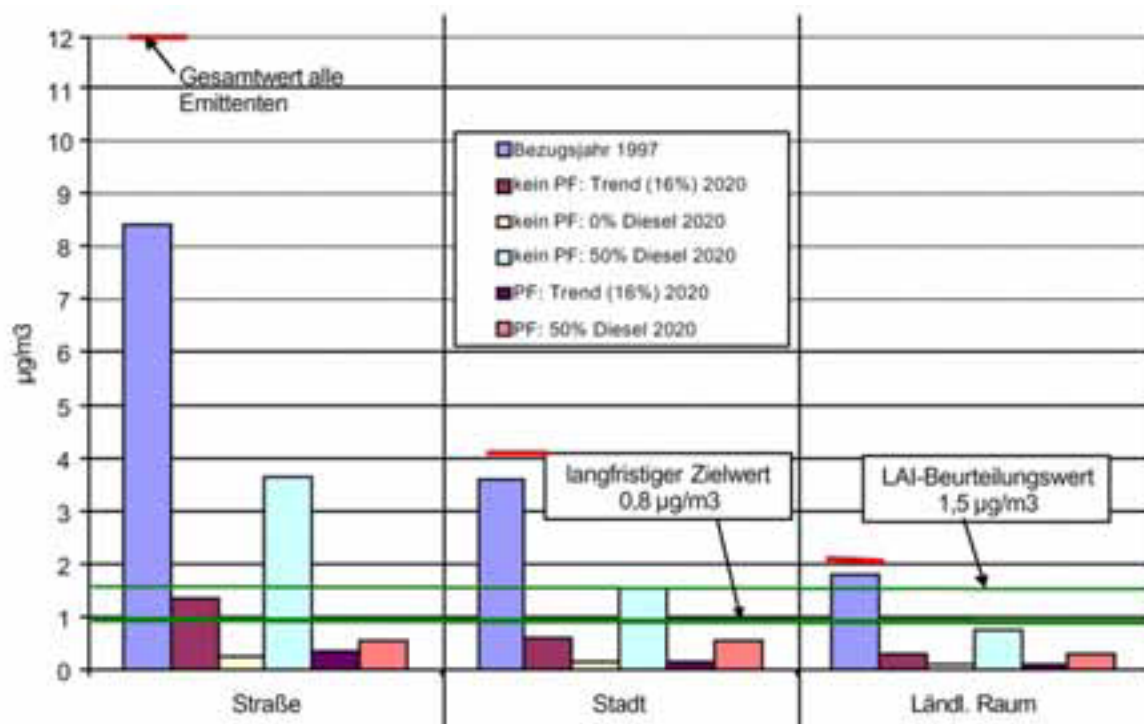


Abbildung 3.6.2-3: Verkehrsbedingte Rußbelastung (Abgase) in den Kategorien Straße, Stadt und ländlicher Raum 1997 und in einzelnen Szenarien 2020. In den Szenarien wurde der Anteil der Diesel-Pkw an der jährlichen Gesamtfahrleistung variiert (0 %, 16 %, 50 %) sowie die Ausstattung der Diesel-Pkw mit Partikelfilter UBA (1999a).

3.6.3 Konzentrationen in der Luft am Arbeitsplatz

Dieselmotorabgase (DMA) werden ebenso wie andere Pyrolyseprodukte aufgrund tierexperimenteller und epidemiologischer Studien als kanzerogen angesehen und sind 1987 von der MAK-Kommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) als krebserzeugender Stoff der Kategorie IIIA2 (im Tierversuch erwiesenermaßen krebserzeugend) eingestuft worden. Eine entsprechende Einstufung wurde ab 1987 in der TRGS 900 „Grenzwerte in der Luft am Arbeitsplatz“ (Technische Regeln für Gefahrstoffe) aufgeführt. Ab 1989 waren DMA in Anhang II der Gefahrstoffverordnung als krebserzeugend in Gefährdungsgruppe II (stark gefährdend) ohne Konzentrationsangabe aufgenommen.

Die aktuelle Einstufung von DMA als krebserzeugend ist in § 35 Abs. 4 Gefahrstoffverordnung (GefStoffV) festgeschrieben. Damit sind die speziellen Vorschriften des Abschnitts VI GefStoffV für den Umgang mit krebserzeugenden und erbgutverändernden Stoffen verbindlich zu beachten. Mit der TRGS 554 „Dieselmotoremissionen“ werden den Betrieben seit 1993 Hinweise auf die Messverfahren sowie auf Schutz- und Minderungsmaßnahmen gegeben. Die aktuelle Fassung der TRGS 554 datiert vom März 2001.

Tabelle 3.6.3-1: Exposition gegenüber Dieselmotoremissionen (DME) in Arbeitsbereichen im Zeitraum 1994 bis 2000. Werte für Kohlenstoff elementar (EC) und Gesamtkohlenstoff. (Mattenklott et al. 2002)

A (E O L Innerbetrieblicher Transport Flurförderzeuge R Pr D U G (B	Anzahl Messdaten	Anzahl Betriebe	DME (Kohlenstoff elementar)		DME (Gesamtkohlenstoff)	
			50-%-Wert in mg/m ³	90-%-Wert in mg/m ³	50-%-Wert in mg/m ³	90-%-Wert in mg/m ³
L	457	213	0,024	0,086	0,040	0,150
Innerbetrieblicher Transport	203	82	0,027	0,088	0,047	0,137
Flurförderzeuge	506	187	0,025	0,076	0,044	0,121
R	204	76	0,024	0,058	0,032	0,094
Pr	315	37	0,018	0,055	0,026	0,088
D	266	39	0,025	0,100	0,037	0,130
U						
G	698	36	0,095	0,226	0,165	0,373
(						
B	43	43	0,150	0,406	0,210	0,498

¹⁾ PND: Probennahmedauer; ExpD Expositionsdauer

²⁾ Daten für den Zeitraum 1997 bis 2000

Tabelle 3.6.3-2: Exposition gegenüber Dieselmotoremissionen (DME; Gesamtkohlenstoff) in Arbeitsbereichen in den Zeiträumen 1990-1993 und 1994-2000. (Mattenklott et al. 2002)

Arbeitsbereiche (E ≥	Anzahl Messdaten	Anzahl Betriebe	Dieselmotoremissionen (Gesamtkohlenstoff)			
			1990 - 1993		1994 - 2000	
			50-%-Wert in mg/m3	90-%-Wert in mg/m3	50-%-Wert in mg/m3	90-%-Wert in mg/m3
O						
L	18	11 213	0,08	0,30	0,04	0,15
Innerbetrieblicher Transport	19 203	10 82	0,12	0,42	0,05	0,14
Flurförderzeuge	17 506	11 187	0,08	0,14	0,04	0,12
Reparatur und Wartung	48 204	15 76	0,07	0,22	0,03	0,09
Durchlauf-Wartung	37 266	10 39	0,10	0,21	0,04	0,13
Untertägige Arbeitsbereiche						
Gleislosfahrzeuge unter Tage (ohne Steinkohlenbergbau)	115 698	4 36	0,18	0,35	0,17	0,37

1) PND: Probennahmedauer; ExpD: Expositionsdauer

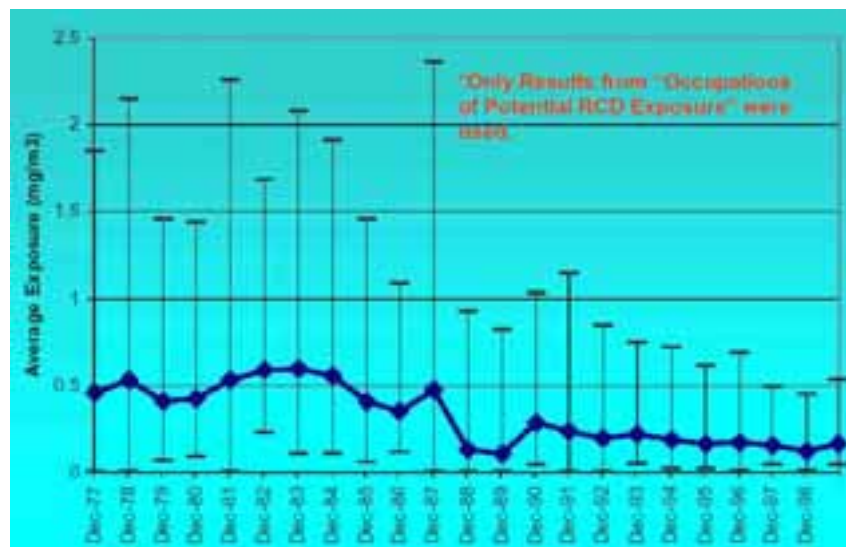


Abbildung 3.6.3-1: Verlauf der Dieselmotorkonzentration 1977 bis 1999. Mittelwerte der Einatembaren Staubfraktion bei kanadischen Minenarbeitern (Grenier 1999)

3.6.4 Marker für die Exposition gegenüber DMA

Dieselmotorabgase (DMA) bestehen aus einer Vielzahl von Einzelbestandteilen, und es ist bisher nicht gelungen, eine spezifische Komponente für die Exposition gegenüber DMA zu beschreiben.

Am weitesten verbreitet ist die Verwendung des elementaren Kohlenstoffs (EC/Ruß) als Marker für DMA. DMA sind jedoch keinesfalls die einzige Quelle für Ruß, und der EC-Anteil in Partikeln aus Dieselmotoren kann in Abhängigkeit der Messbedingungen und der Motortypen stark variieren. Es ist bisher auch noch nicht gelungen, über das Verkehrsaufkommen den EC-Gehalt in der Luft vorherzusagen (HEI, 2003).

Als weitere mögliche Marker wurden vom Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen das Coronen (ein PAK) und bestimmte Nitro-PAKs, so z.B. das 1-Nitropyren, vorgeschlagen. Diese haben sich jedoch nicht als Marker etablieren können, da diese Stoffe auch durch andere Verbrennungsprozesse (Gebäudeheizung mit Kohleöfen, Zigarettenrauch) gebildet werden, die wesentlich zur Exposition beitragen können.

Der z.Zt. beste Indikator für Dieselmotorpartikel ist daher der inerte elementare Kohlenstoffkern (EC, Ruß) in Verbindung mit einem Partikeldurchmesser von ca. 50 bis 200 nm. Bei Immissionsmessungen werden solche Partikel in der Fraktion $PM_{2,5}$ (aber auch in PM_{10}) messtechnisch erfasst und können damit prinzipiell auch einer chemisch-physikalischen Untersuchung zur weiteren Charakterisierung zugeführt werden.

FAZIT

- Seit Beginn der 1980er Jahre sind die Jahresmittelwerte der Immissionskonzentrationen von Partikel (-50 %), NO_x (-30 %) und SO_2 (-75 %) stark zurückgegangen, nur bei Ozon ist an den Messstellen des UBA-Luftmessnetzes ein kontinuierlicher Anstieg (etwa 20 – 25 % seit 1985) zu beobachten.
- Die derzeit gültigen Grenz- und Richtwerte (Jahresmittelwerte) zum Schutz der menschlichen Gesundheit sowie zum Schutz der Vegetation bzw. der Ökosysteme für Partikel (PM_{10} : $40 \mu g/m^3$), Ruß ($8 \mu g/m^3$), NO_x ($30 \mu g/m^3$) und SO_2 ($20 \mu g/m^3$) werden an den UBA-Messstellen großflächig deutlich unterschritten (vergl. dazu auch Anhang 7.1).
- Punktuell werden an innerstädtischen Messorten, insbesondere in verkehrsnahen Bereichen (Straßenschlucht), Überschreitungen des PM_{10} -Tagesgrenzwertes ($50 \mu g/m^3$) oder erhöhte NO_x -Konzentrationen (bis zu $100 \mu g/m^3$) gemessen.
- Es gibt in Deutschland keine Daten aus flächendeckenden Messungen zu $PM_{2,5}$ oder Ultra-Feinpartikel. Soweit einzelne, regional und zeitlich begrenzte Messungen

vorliegen deutet sich jedoch ein Trend an, dass auch diese Konzentrationen rückläufig sind.

- Eine Quellenzuordnung von Partikeln, wie sie beispielsweise bei Immissionsmodellierungen benötigt wird, ist äußerst problematisch und fehlerbehaftet.

3.7 Technische Entwicklungen für zukünftige Emissionsminderungen

Über die Ausführungen in den nachfolgenden Abschnitten hinaus finden sich in Anhang 7.6 tabellarische Übersichten zu den Möglichkeiten, die motortechnische Maßnahmen und Abgasreinigungstechniken für die Minderung von Motorabgasen bieten. Es handelt sich dabei um die Ergebnisse einer Literaturstudie von CONCAWE (1999, 1999a).

3.7.1 Anforderungen an zukünftige Kraftstoffe

3.7.1.1 Schwefelarmer Dieselkraftstoff

Nach vorherrschender Ansicht ist die weitere Reduzierung des Schwefelgehalts in Otto- und Dieselmotorabgasen eine unverzichtbare Voraussetzung für eine weiterhin erfolgreiche Emissionsminderung. Dies betrifft neben der Reduzierung des Ausstoßes von SO₂ und Sulfatpartikeln vor allem die Einführung von Systemen zur Reduzierung von Stickstoffoxiden (NO_x-Speicherkatalysator für Pkws, SCNR für Nutzfahrzeuge) (ACEA 2000; ACEA 2002, Kohoutek et al. 1999).

Dagegen schätzt CONCAWE die Effekte einer Absenkung des Schwefelgehalts von 50 ppm auf 10 ppm in DK auf die Emissionen von SO₂ und Sulfatpartikeln als sehr gering und in Bezug auf die anderen regulierten Abgasbestandteile als nicht signifikant ein. Die Bereitstellung schwefelfreier Kraftstoffe bereitet technisch offenbar keine Probleme, wird jedoch als kostspielig angesehen und kann nach Ansicht der Autoren zu erhöhter Freisetzung von Treibhausgasen führen (CONCAWE 2000). CONCAWE vertritt hiermit eine erheblich vom Mainstream abweichende Position. Dies ist insofern unverständlich, als ein früherer Bericht (CONCAWE 1999) eine detaillierte Auflistung der Techniken zur Emissionsminderung enthält (s. Anhang 7.6) und außerdem auch anerkannt wird, dass für effiziente DeNO_x-Techniken ein niedriger Schwefelgehalt erforderlich ist.

Zur Zeit ist eine Obergrenze von 50 ppm gesetzlich vorgeschrieben, ab 2009 liegt der Grenzwert in der EU bei 10 ppm. Schwefelarmer Diesel (≤ 10 ppm) wird lt. UmweltMagazin seit Januar 2003 von den Herstellern SHELL, DEA und ARAL angeboten (UmweltMagazin 28.12.2002). Nach anderen Angaben wird ein solcher Kraftstoff (< 10 ppm) bereits seit Januar 2003 flächendeckend und von allen Anbietern angeboten (StMUGV, persönliche Mitteilung).

3.7.1.2 Alternative Kraftstoffe

Biodiesel

Als nachwachsender heimischer Rohstoff wird Biodiesel (Rapsmethylester, RME) intensiv untersucht. Es entstehen prinzipiell die gleichen Schadstoffe wie beim fossilen Dieselmotorabgas und damit bestehen die gleichen technischen Minderungsprobleme. Es werden oft höhere Partikelemissionen (Masse) als beim herkömmlichen Diesel gefunden. Die Durchmesser der Partikel sind vergleichbar. Der Ruß von herkömmlichem Diesel und von Biodiesel scheinen sich bezüglich der anhaftenden Substanzen (organischer Kohlenstoff OC) dahingehend zu unterscheiden, dass Ruß-Extrakte von Biodiesel weniger Mutationen in bakteriellen Testsystemen (Ames-Test) auslösten (Krahl 2001, Krahl et al. 2001).

Für die Verwendung in Fahrzeugmotoren besteht offenbar noch Forschungsbedarf. Das Problem einer schwankenden Kraftstoffqualität scheint dabei eine Rolle zu spielen. Für den Betrieb von Großgeräten scheint dies weniger problematisch zu sein. Die Wismut AG hat sich kürzlich dazu entschlossen, ihre Großgeräte mit einem Jahresbedarf von 13 Mio. Litern künftig mit Biodiesel zu betreiben (UmweltMagazin 2003). Das Umweltbundesamt hat allerdings ökologische Bedenken angemeldet und weist auch auf den enormen Flächenbedarf hin (VDI-Nachrichten 16.05.2003). Die Flächen in der Bundesrepublik reichen nicht aus, den Bedarf zu decken.

DaimlerChrysler gab kürzlich den Start eines auf zunächst 5 Jahre angelegten Kooperationsvorhabens zur Produktion von schwefelfreiem Biodiesel aus Jatropha-Nüssen in Indien bekannt (UmweltMagazin 2003a).

In Deutschland entstehen zur Zeit unter Beteiligung der Volkswagen AG großtechnische Anlagen zur Produktion von schwefelfreiem synthetischen Biodiesel aus Bioabfällen. Die ersten Ergebnisse sind hinsichtlich der Qualität und des Emissionsverhaltens sehr vielversprechend.

Erdgas

Das Emissionsverhalten von Dieselfahrzeugen verbessert sich enorm (von EURO 2 auf EURO 3), wenn geringfügig modifizierte Serienfahrzeuge mit synthetischem Diesel („Synfuel“, von Volkswagen und SHELL) betrieben werden. „Synfuel“ wird aus Erdgas hergestellt, ist flüssig, kann mit Diesel gemischt und mit der bestehenden Infrastruktur verteilt werden (VDI-Nachrichten 9.05.2003).

In geringem Umfang wird Erdgas mit gutem Ergebnis auch direkt als Kraftstoff in entsprechend umgerüsteten Otto-Fahrzeugen verwendet. Allerdings handelt es sich auch bei Erdgas um einen der begrenzt verfügbaren fossilen Energieträger, den die chemische Industrie dringend als Rohstoff für die Herstellung ganzer Produktpaletten benötigt. Insofern löst eine Umstellung auf Erdgas nicht wirklich die Probleme.

Wasserstoff

Die Wasserstofftechnik befindet sich noch weitgehend in der Entwicklungsphase. Es werden sowohl Konzepte zur heißen Verbrennung im Ottomotor als auch eine „kalte Verbrennung“ (Brennstoffzelle in Verbindung mit Elektromotoren) verfolgt. Solche Motoren emittieren im wesentlichen Wasserdampf, Verbrennungsmotoren daneben auch NO_x .

Ungeklärt ist neben sicherheitstechnischen Aspekten noch, wie die immensen benötigten Mengen an Wasserstoff kostengünstig hergestellt und transportiert werden können. Kostenschätzungen für die Einrichtung der erforderlichen Infrastruktur für die Bundesrepublik liegen bei ca. 30 Mrd. Euro. Klimaeinflüsse der Wasserdampfemissionen (Treibhausgas) lassen sich noch nicht abschätzen und werden ebenfalls kontrovers diskutiert.

3.7.2 Innermotorische Maßnahmen

3.7.2.1 Personenkraftwagen

In ihrer Marktanalyse aus 2001 prognostizieren Love et al. (Ricardo 2001) eine weitere Zunahme der Hochdrucksysteme Common-Rail und Pumpe/Düse (Abb. 3.4.2-3). Diese Hochdrucksysteme erlauben eine außerordentlich feine Regelung des Kraftstoffzuflusses und eine Einspritzung in Vor- und Nachverbrennung. Die Haupteinspritzung kann mit geeigneten Einspritzsystemen in 5 – 7 Einzeleinspritzungen unterteilt werden, wobei die spezielle Geometrie der Düse eine sehr feine Vernebelung des eingespritzten Kraftstoffes erlaubt. Aus diesem Grund ist die Verbrennung sehr effektiv und das Abgas ist entsprechend rein. Die Autoren sehen weiter eine Gewichtsreduzierung der Fahrzeuge und eine Reduzierung des Hubraumes voraus, die zur Erreichung der mit EURO 4 gesetzten Werte für NO_x und das Ziel einer CO_2 -Reduktion auf 140 g/km im Jahre 2008 erforderlich sind. Mit den kleineren Pkw-Motoren wird die innere Reibung reduziert und dementsprechend werden weitere Einsparungen beim Kraftstoffverbrauch herbeigeführt.

Eine weitere Reduktion von Dieselpartikeln und NO_x von mehr als 25 % zur Erreichung der EURO 4 Stufe (2005/2007) halten Kohoutek et al. (1999) nur dann für machbar, wenn zusätzlich zu den innermotorischen Maßnahmen Abgasreinigungstechniken zum Einsatz kommen. Der Einsatz von Common-Rail-Technik und verstellbaren Turbinenrädern ist wahrscheinlich, wird aber zur Erreichung der gesetzten Ziele nicht ausreichen.

Das Umweltbundesamt sieht das Potential von weiteren innermotorischen Maßnahmen zur Reduzierung der emittierten Partikelmasse in einer Größenordnung von 30 – 50 %. Dies würde zu einer knappen Einhaltung der 2005 gültigen EURO 4 Grenzwerte führen. Allerdings sieht das Umweltbundesamt den Partikelfilter als einzige Möglichkeit für eine drastische Partikelminderung an. Die nachgewiesenen Minderungsraten, bezogen auf die Partikelmasse, liegen weit oberhalb von 90 %. Damit werden die Partikelgrenzwerte EURO 4 für Pkw und EURO V für Nutzfahrzeugmotoren nicht nur knapp, sondern erheblich unterschritten (UBA 2003). Das Umweltbundesamt sieht daher die Einführung von Partikelfiltern als zwingend an.

3.7.2.2 Nutzfahrzeuge

Bisher wurden alle Grenzwertstufen durch Optimierung der Motortechnik eingehalten. Den Hauptteil trägt die Verbrennungsoptimierung bei, aber auch die Verringerung des Ölverbrauchs durch verbesserte Kolbenringpakete hat zur Absenkung der Partikelemission beigetragen. Bei der Verbrennungsoptimierung waren hauptsächlich verbesserte Einspritzung durch den Einsatz von Motorelektronik und erhöhte Einspritzdrücke für die Absenkung der Emissionen verantwortlich, und hier wird weiteres Potential vermutet. Mit den modernen Einspritz- und Verbrennungsverfahren konnte der Verbrauch von

Nutzfahrzeugen in den letzten 30 Jahren immerhin um rund 30 % gesenkt werden, von ca. 42 l/100 km auf rund 28 l/100 km für einen 40-t-Lastzug (DaimlerChrysler 2002). Bezogen auf den Verbrauch von 50,6 l/100 km im Jahre 1967 bedeutet dies eine Verbrauchsminderung um 45 %, also fast eine Halbierung des Kraftstoffverbrauchs (VDA 1997).

2-Takter und IDI spielten in Deutschland bei Nutzfahrzeugen keine Rolle. Für die einzelnen Abgasstufen wurden die folgenden Technologien eingeführt oder sind in Vorbereitung:

Euro I (1992):	Turboaufladung (TC).
Euro II (1996):	Turboaufladung mit Ladeluftkühlung (TCI), Elektronik (ECU).
Euro III (2000):	TCI, ECU, verbesserte Kolbenmulde, teilweise Abgasrückführung (AGR), teilweise Common-Rail.
Euro IV (2005):	TCI, ECU, Common-Rail bzw. Unit Pump, AGR (teilweise), Abgasnachbehandlung (SCNR, Partikelfilter).

Für die Stufe EURO IV (ab 2005) haben Kohoutek et al. Maßnahmen der Abgasreinigung für notwendig erachtet (Kohoutek et al. 1999). Heute wird es für möglich gehalten, EURO IV und EURO V durch eine optimierte Verbrennung und eine katalytische Entstickung (SCNR) auch ohne Partikelfilter einzuhalten (Dr. Stein, DaimlerChrysler AG, persönliche Mitteilung).

3.7.3 Techniken zur Abgasreinigung

3.7.3.1 Oxidationskatalysator

Im Jahre 1997 schätzte das Umweltbundesamt ein Minderungspotential für die Emission von Kohlenwasserstoffen (HC) in Höhe von ca. 50 bis 70 % durch den Oxidationskatalysator (OxiKat) ab (UBA 1997).

CONCAWE beziffert das mögliche Reduktionspotential des OxiKats in Nutzfahrzeugen wie folgt (CONCAWE 1999a):

Partikelmasse (PM):	bis 30 %	Anteil OC in PM:	20-50 %
Stickstoffoxide:	bis 15 %	Kohlenwasserstoffe:	bis 75 %
Kohlenmonoxid:	bis 70 %		

Diese und weitere Angaben finden sich auch in den Tabellen aus CONCAWE (1999) im Anhang 7.6.

Auch Bagley et al. bestätigten eine Reduktion aller Kohlenwasserstoffe (HC, lösliche organische Stoffe (OC), PAK im Abgas von zwei amerikanischen Nutzfahrzeugmotoren der Baujahre 1988 und 1991, die mit dem OxiKat ausgerüstet waren. Dadurch war auch die Partikelmasse reduziert, nicht jedoch die Partikelanzahl. Auf den NO_x-Gehalt hatte der OxiKat keinen Einfluss, es wurde jedoch eine erhöhte Oxidation von Schwefel zu Sulfat beobachtet. (HEI 1996).

Diesel-Pkw der Stufen EURO 2 und EURO 3 sind heute ganz überwiegend mit Oxidationskatalysatoren zur Minderung von CO und HC ausgerüstet (UBA 1999). Metz schätzt, dass 60 % der Diesel-Pkw mit OxiKat ausgerüstet sind und dass Diesel-Pkw z.Zt. rund 20 % der Pkws stellen (persönliche Mitteilung). Durch den Katalysator sinkt der Anteil der löslichen Fraktion OC an der Partikelmasse und der Anteil des Rußkerns steigt infolgedessen an. Rodt fand bei Diesel-Pkw ohne Katalysator für den EC-Anteil eine Bandbreite von 40 – 80 % und einen Schwerpunkt von 60 %. Für Fahrzeuge mit OxiKat schätzt Rodt einen EC-Anteil von 80 % ab (UBA 2003).

OxiKats sind bei Nutzfahrzeugen kaum verbreitet und der Anteil des Rußkerns an der Partikelmasse wird für alte und neue Motoren einheitlich mit 80 % angesetzt (UBA 1999). Heute ist der Anteil der Nutzfahrzeuge mit OxiKat noch immer gering. Busse dürften zu ca. 10 % und sonstige Nutzfahrzeuge zu ca. 3 % entsprechend ausgerüstet sein. Künftig wird vorwiegend bei Verteilerfahrzeugen ein Zuwachs von 2 – 3 % p.a. abgeschätzt (Metz, persönliche Mitteilung) .

3.7.3.2 Partikelfilter

3.7.3.2.1 Erstausrüstung

Personenkraftwagen

Mercedes-Benz setzte Mitte der 1980er Jahre erstmals den Partikelfilter in Kalifornien ein (Johnson 1988). Es gab jedoch schwer wiegende technische Probleme (Filterbruch und –verstopfung, Beschädigung der Turbolader, Überhitzen beim Abbrennen der angesammelten Partikel), die nicht zu beherrschen waren und letztlich zum Scheitern des Vorhabens führten (Der Spiegel 2003).

Der französische PSA-Konzern hat im Jahr 2000 den Partikelfilter für Diesel-Pkws wieder eingeführt und in der Zwischenzeit ca. 500 000 Einheiten mit Partikelfilter ausgeliefert. Diese als FAP-System bezeichnete Technologie sammelt die vom Motor imitierten Dieselpartikel in einem Röhrensystem, das periodisch etwa alle 80.000 km aufgeheizt wird. Dabei werden die Dieselußpartikel verbrannt. Zur Erreichung der erforderlichen Verbrennungstemperatur wird dem Diesel ein Additiv zugesetzt und zum Anderen wird bei der Regeneration Kraftstoff in den Zylinder nachdosiert, der dann im Abgassystem verbrennt und zu der erhöhten Temperatur von ca. 450 °C führt. Aus diesem Grunde ist mit einem leicht erhöhten Kraftstoffverbrauch von ca. 3 – 5 % zu rechnen. Seit November 2002 wird eine Weiterentwicklung mit einem neuen Additiv angeboten, das bis zu 120.000 km wartungsfrei ist. Die Einführung eines wartungsfreien Systems ist für 2004 vorgesehen (Spiegel online 2003).

Die Abscheiderate dieses Systems wurde bei einem Diesel-Pkw in einem Dauertest über 80.000 km vom ADAC mit 99,99 % angegeben. Die Partikelemission des Peugeot 607 mit SAP weist nach Messungen des ADAC im neuen europäischen Fahrzyklus den Wert von 0,0010 g/km auf (UBA 2003).

In einer Studie des Europäischen Verbands der Automobilhersteller (ACEA 2002) wurde auch das Emissionsverhalten eines Fahrzeugs mit Partikelfilter (Peugeot 607 Hdi) untersucht. Partikelanzahl und Partikelmasse waren minimal und lagen in der Nähe der Nachweisgrenze. Die Emissionswerte der Vergleichsfahrzeuge (TDI, Hochdrucktechnik) ohne Partikelfilter wurden weit unterschritten (ACEA 2002, Abb. 3.7.3-1).

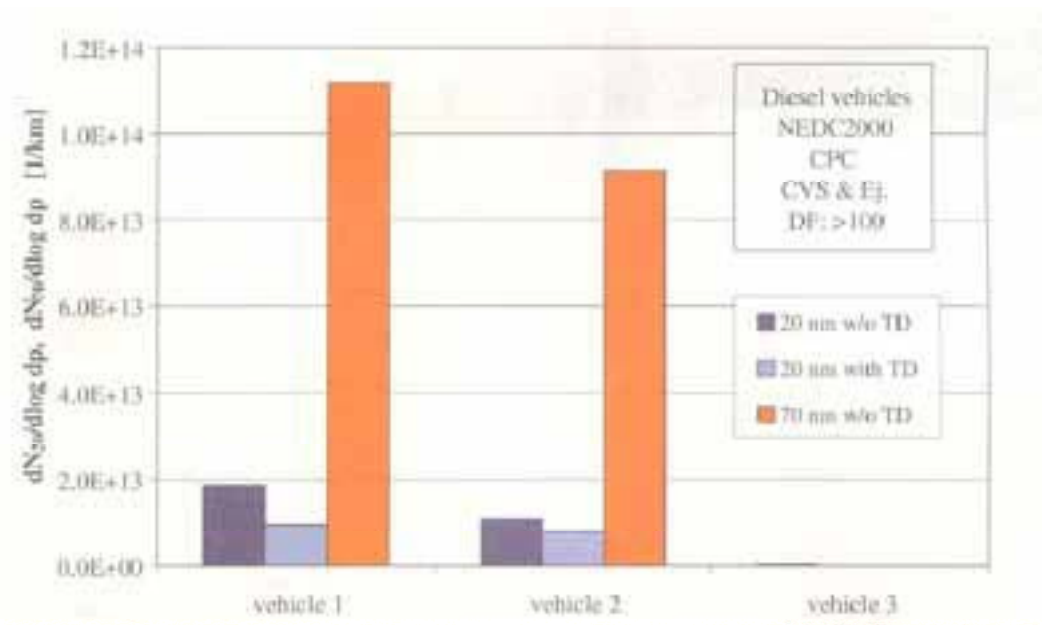


Abbildung 3.7.3-1: Partikelanzahl bei Diesel-Pkws mit Partikelfilter (vehicle 3) und ohne Partikelfilter (ACEA 2002).

TD = Thermodesorber

Ricardo rechnete ab 2003 oder 2004 mit einer weiteren Verbreitung von Partikelfiltern. Es wird mit Lösungen gerechnet, bei denen die Filter im laufenden Betrieb periodisch regeneriert werden und eine Kombination aus Partikelfilter und einer katalytischen Stickstoffreduktion ermöglichen (Ricardo 2001).

Nach verschiedenen Pressemeldungen, z.B. VDI-Nachrichten vom 01. August 2003, sind inzwischen zahlreiche Hersteller (Audi, BMW, Citroën, Fiat/Alfa, Ford, Honda, Jaguar, Mazda, Mercedes, Opel, Peugeot, Renault, Toyota, Volvo, Volkswagen) kurz davor, erstmalig bzw. weitere Modelle mit Dieselpartikelfiltern auf den Markt zu bringen. Als Einführungszeit wird der Herbst 2003 beziehungsweise das Frühjahr 2004 vorgesehen. Dies erfolgt unabhängig davon, dass viele Modelle die EURO 4 Norm auch ohne Partikelfilter einhalten (VDI-Nachrichten 26.9.2003). Einige Hersteller beziffern die Mehrpreise für den Partikelfilter zwischen 300 bis 800 Euro. Dagegen verlangt die PSA-Gruppe bisher keinen Mehrpreis für den Partikelfilter (UBA 2003).

Die Firma HJS in Menden (www.HJS.com) hat einen Dieselpartikelfilter mit elektrischen Heizelementen entwickelt, der sowohl für den Einbau in Neufahrzeuge als auch zur Nachrüstung von Altfahrzeugen angeboten wird. Das System kann sowohl für Pkw als auch für Nutzfahrzeuge verwendet werden und wird von den Firmen Robert Bosch und DaimlerChrysler in Lizenz weltweit vertrieben (persönliche Mitteilung der Firma HJS). Bei diesem Filtersystem aus Sintermetall werden die Partikel angereichert und ohne jeden Zusatz von Additiven elektrisch aufgeheizt und verbrannt. Die Wabenstruktur des Filters ist ausreichend groß ausgelegt, dass Standzeiten von 250.000 km erreicht werden. Damit ist das System wartungsfreundlich und auch für den Einsatz bei Nutzfahrzeugen mit hoher Laufleistung geeignet. Bei diesem Filterkonzept werden die Rußpartikel kurzfristig (für die Dauer von zwei Minuten) auf ca. 500 °C aufgeheizt und verbrannt.

Die Kosten für dieses System dürften aktuell bei ca. 1.000 Euro liegen. Die Kostenschätzung liegt damit also deutlich höher als vom Umweltbundesamt abgeschätzt (UBA 2003). Die Reinigungsleistung für Partikel mit Durchmessern zwischen 10 und 400 Nanometern beträgt je nach Belastung des Motors etwa einen Faktor von 1.000 bis 10.000 (Abb. 3.7.3-2). Die Reinigungswirkung ist also damit durchaus mit dem SAP-System der PSA-Gruppe vergleichbar und ist über einen sehr weiten Bereich der Partikeldurchmesser gegeben².

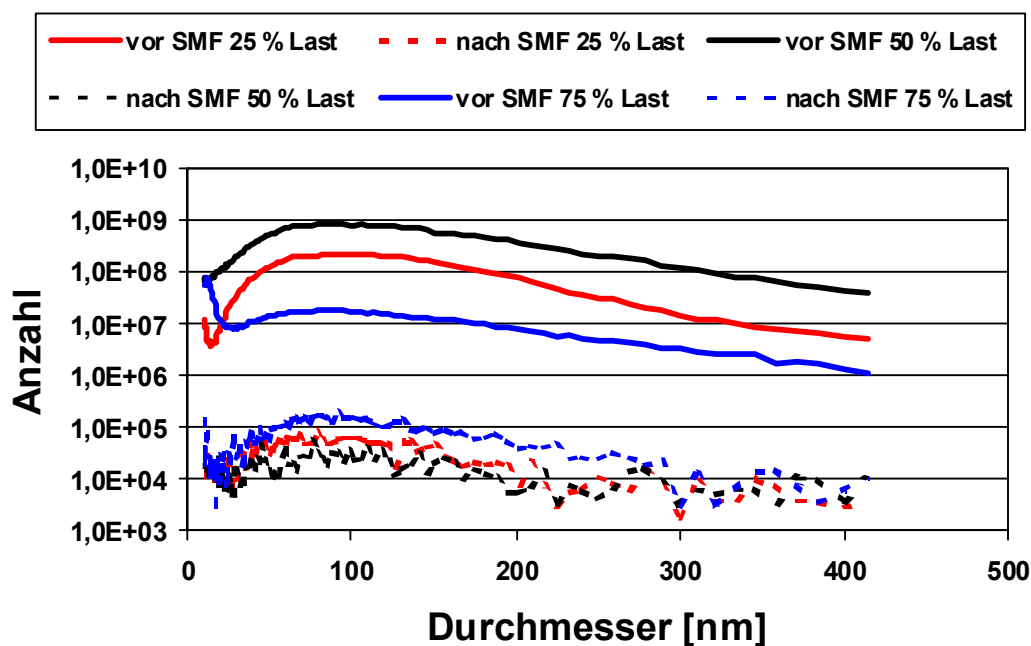


Abbildung 3.7.3-2: Partikelgrößenverteilung mit SMF[®]. Quelle: HJS Fahrzeugtechnik GmbH & Co KG, Menden.

² Die Firma HJS wurde im Oktober 2003 mit dem Umweltpreis für ihre umweltfreundliche Technologien ausgezeichnet.

Nutzfahrzeuge

Die Partikelgrößenverteilungen von Nutzfahrzeugmotoren sind praktisch mit denen von Pkw-Motoren identisch. Maximale Partikelzahlen werden im Bereich 50 – 150 nm gefunden, während im Bereich <30 nm die Partikelanzahl sehr gering ist.

Der Einsatz von Partikelfiltern wird die Emission bei Nutzfahrzeugen um ca. 70 – 85 % in Abhängigkeit des Filteraufbaues verändern (Kohoutek et al. 1999). Zum damaligen Zeitpunkt sahen die Autoren die Probleme der Filterregeneration und Standfestigkeit noch nicht als gelöst an. Die gleichzeitige Verwendung der DeNO_x-Systemen zusammen mit Partikelfilter wird als notwendig erachtet, um gleichzeitig geringe NO_x- und Partikelkonzentrationen zu erreichen. Zum damaligen Zeitpunkt wurden solche Systeme als sehr teuer betrachtet und die Reinigungsgrade werden auf ca. 50 - 60 % sowohl für Partikel als auch für NO_x abgeschätzt. Ab EURO IV (2005) oder EURO V (2008) werden jedoch zunehmend kombinierte Abgasreinigungssysteme für die gleichzeitige Einhaltung der Grenzwerte für Dieselruß und NO_x erforderlich werden, z.B. in der Kombination Partikelfilter + SCNR (Kohoutek et al. 1999). Inzwischen sind Systeme verschiedener Zulieferer auch für Nutzfahrzeuge verfügbar.

DaimlerChrysler hat seit dem Jahr 2000 rund 700 Stadtbusse auf Wunsch mit einem sog. CRT-Rußfilter ausgerüstet, der mittels eines edelmetallbeschichteten Katalysators Partikel kontinuierlich entfernt. Das System erfordert für den optimalen Betrieb schwefelarmen Treibstoff (DaimlerChrysler 2002).

Im Rahmen einer Literaturstudie weist Burtscher auf Arbeiten hin, denen zufolge bei Verwendung eines Partikelfilters bei Pkw- und Nfz-Motoren die Anzahl der typischen Dieselpartikel mit Durchmessern um 100 nm um etwa zwei Größenordnungen reduziert wird. Gleichzeitig steigt jedoch die Zahl der Sekundärpartikel mit Durchmessern <30 nm um mehr als eine Größenordnung an. Als Grund wird angeführt, dass die ausgefilterten Dieselpartikel nicht mehr zur Anlagerung der flüchtigen Stoffe bereitstehen. Daher bilden die auskondensierenden flüchtigen Stoffe eine hohe Anzahl von Sekundärpartikeln, charakterisiert durch einen geringen Durchmesser und den fehlenden Rußkern. Entsprechend der chemischen Zusammensetzung erwartet Burtscher, dass sich die Effekte dieser löslichen Sekundärpartikel völlig von denen der Partikel mit einem solidem Rußkern unterscheiden (Burtscher 2001).

Studien von CONCAWE bestätigen die effiziente Eliminierung der Feinpartikel und den Anstieg der Nanopartikel <50 nm um ca. 2 Größenordnungen bei der Verwendung eines DPF bei Nutzfahrzeugen (CONCAWE 2001a). CONCAWE hatte hierauf bereits im Jahr 2000 hingewiesen (CONCAWE 2000a).

3.7.3.2.2 Nachrüstsyste~~m~~e

Inzwischen sind auch Nachrüstsysteme auf dem Markt, beispielsweise das System der Firma HJS oder das der Firma FINN-Katalyt.

Auch Greenpeace hatte in Pressemitteilungen verlauten lassen, es sei gelungen, ein Altfahrzeug nachzurüsten, brachte jedoch selbst auf wiederholte Nachfragen keine Informationen bei und verwies an den RW TÜV. Dort sah man sich jedoch nicht autorisiert, Messergebnisse bekannt zu geben (Herr Förster, Tel. 0201—8854 159). Daher wird diese Presse-Information als unzutreffend betrachtet, solange keine überprüfbare Daten erhältlich sind.

HJS bietet ein System zur Nachrüstung vieler verschiedener Fahrzeuge an. Das Umweltbundesamt ist von der Technik so sehr überzeugt, dass seit dem Herbst 2003 ein nachgerüsteter Diesel-Pkw als Dienstfahrzeug genutzt wird (und ein weiteres, serienmäßig mit Partikelfilter ausgestattetes Dieselfahrzeug angeschafft werden soll; Umweltmed Forsch Prax 2003).

Die Firma FINN-Katalyt bietet für die integrierte Verbrennung von Partikeln aus Otto- und Dieselmotoren ein System an, das sowohl für den Einsatz bei Nutzfahrzeugen und Pkws geeignet ist, darüber hinaus auch für Motorräder, Gabelstapler, Motorsägen, Wasserfahrzeuge, Rasenmäher und andere motorbetriebene Geräte. Das Verfahren ist dabei immer gleich. Ein ungeregelter Katalysator reduziert die Schadstoffe im Abgas unter Zugabe von Luft/Sauerstoff, und beim Dieselmotor werden zusätzlich noch die Partikel verbrannt. Je nach Motor und Betriebszustand werden Reinigungsleistungen von bis zu 95 % der Kohlenmonoxid- und Kohlenwasserstoffemissionen und bis zu 65 % der Partikel angegeben. Bei Testzyklen nach internationalen Abgasdefinitionen seien durchschnittliche Emissionsreduktionen von etwa 80 - 60 % festgestellt worden. Bei der Dieselvariante wird Abgas in eine rotierende Strömung gebracht, bevor die Partikel unter Sauerstoffzufuhr verbrannt werden. Ein zusätzlicher Wärmetauscher hält die Abgastemperatur konstant, damit die erforderliche Verbrennungstemperatur erhalten bleibt.

Eine Kombination mit Vorkatalysator oder mit einem DeNO_x-Katalysator mit ca. 20 % Reinigungsleistung ist nach Herstellerangaben ebenfalls möglich. Ein Großauftrag der Umweltbehörde von Hongkong zur Nachrüstung von rund 20.000 LKWs soll im Jahre 2002 an die Firma ergangen sein. Technische Details finden sich auf der Homepage der Firma unter www.FIN-Kat.com.

Ab Januar 2004 bietet die Autofachmarkt-Kette ATU den Rußfilterkatalysator der Firma TWIN-TEC zur Nachrüstung der 1,9-Liter TDI Motoren von VW, AUDI, SEAT und SKODA zum Preis von € 580,- an. Modelle für weitere Typen sind in der Vorbereitung (<http://www.dieselußfilter.de/>).

Mayer (2003) listet geprüfte Partikelfilter auf, die aus Gründen des Arbeitsschutzes zur Nachrüstung von Baumaschinen erforderlich und auch geeignet sind. Filter für Nutzfahrzeuge sind in der Liste ebenfalls enthalten.

Andersson et al. haben mit einem EURO III-Motor, der mit Partikelfilter und SCNR-System nachgerüstet war, ohne weitere Veränderungen die EURO V-Grenzwerte um mindestens

50 % unterschreiten können (-85 % PM, -85 % NO_x, -99 % CO, -75 % HC). Die Kombination aus Filter und SCNR erbrachte diese Verbesserungen sowohl im Neuzustand (Schwefelgehalt DK 8 ppm) als auch nach einer Betriebsdauer von 1000 Stunden mit ca. 40 ppm Schwefelgehalt. Hinter dem Filter gemessene Partikel bestanden zu 40 % aus Wasser, 44 % Sulfat und 12 % HC aus dem Kraftstoff. Rußkerne waren nicht messbar (Andersson et al. 2003).

Andersson und Wedekind untersuchten den Einfluss von Schwefelgehalt im DK und Dieselpartikelfilter (DPF) auf das Emissionsverhalten von leichten und schweren Nutzfahrzeugen. Mit dem DPF wurden die Feinpartikel ausgefiltert und die Partikelmasse um >87 % reduziert. Dementsprechend wurde die Partikelzusammensetzung verändert. Ohne Filter ist Elementarer Kohlenstoff mit 75 bis 80 % Hauptbestandteil, wird aber durch den Filter um >95 % reduziert. Dadurch dominieren Nanopartikel, bestehend aus Öl und Sulfat, mit ca. 50 bis 70 % der Masse. Auch in dieser Studie wurde eine Zunahme der Anzahl der Nanopartikel <50 nm bei der Verwendung des Dieselpartikelfilters beobachtet (RICARDO 2001a).

Chatterjee et al. (2001) untersuchten die Möglichkeiten der Nachrüstung von Bussen und schweren Nutzfahrzeugen mit einer Kombination von OxiKat und Partikelfilter in einem Ein-Jahres-Praxistest in Kalifornien. Sie verwendeten Dieseldieselkraftstoffe mit einem Schwefelgehalt von 7,3 und 120 ppm. Sie fanden eine Reduktion >90 % für die Partikelmasse, HC und CO. NO_x blieb unverändert. Bei der Partikelgröße fanden sie eine bimodale Verteilung. Der mittlere Durchmesser der Nanopartikel war bei dem niedrigeren Schwefelgehalt kleiner (33 nm) als bei dem höheren Schwefelgehalt (56 nm), während der mittlere Durchmesser der Feinpartikel unverändert bei ca. 100 nm lag. Durch die Nachrüstung wurde der Kraftstoffverbrauch nicht signifikant erhöht und es gab keine besonderen Vorkommnisse oder Einschränkungen der Einsatzbereitschaft der Fahrzeuge (Chatterjee et al. 2001).

3.7.3.3 Reduktion von Stickstoffoxiden

Für eine Minderung von NO_x-Emissionen bei Diesel- und Nutzfahrzeugmotoren sieht das Umweltbundesamt folgende Möglichkeiten gegeben:

Beeinflussung der motorischen Verbrennung	20 - 30 %
Abgasrückführung, elektronisch gesteuert	20 - 50 %
NO _x -Speicher-katalysatoren	70 - 90 %
Selektive katalytische Reduktion (SCR)	70 - 95 %

Die genannten Maßnahmen sind nach Ansicht des UBA (2003) technisch weitgehend entwickelt und werden heute (2003) z.T. bereits serienmäßig eingebaut. Es handelt sich dabei um die Maßnahmen: Hochdruckeinspritzung und gesteuerter Einspritzverlauf, mit Piloteinspritzung, 4-Ventil-Technik, Turbolader mit variabler Geometrie usw. Die Abgasrückführung wird seit langem in verschiedenen Varianten eingesetzt und kann künftig mit elektronischer Steuerung eventuell auch als gekühlte Abgasrückführung optimiert werden.

3.7.3.3.1 NO_x-Speicher-katalysatoren für Personenkraftwagen

NO_x-Speicher-katalysatoren kamen bisher noch nicht zum Einsatz. Hier sieht das Umweltbundesamt eine hervorragende Möglichkeit zur Verwendung in Kombination mit dem Partikelfilter, wie er von der Firma Toyota im Jahre 2002 unter der Bezeichnung DPNR im Welteinsatz in mehreren Ländern geprüft worden ist. Nach Firmenangaben reduzierte dieses DPNR-System im Neuzustand die NO_x- und Partikelemissionen gleichermaßen um über 80 %. Mit einem gealterten DPNR-System wurden 0,13 g/km NO_x und 0,005 g/km Partikel im NEFZ (Neuen Europäischen Fahrzyklus) mit einem Pkw erreicht. Veröffentlichungsfähige Prüfwerte waren seitens der Firma Toyota noch nicht verfügbar, aber das Umweltbundesamt geht davon aus, dass dieses System geeignet ist, die vorgeschlagenen Grenzwerte zur Fortführung von EURO 4 beziehungsweise EURO 5 einzuhalten. Laut Umweltbundesamt plant die Firma Peugeot im Jahre 2003 eine ähnliche Technik einzuführen (UBA 2003).

Bei der Stickstoffspeichertechnik von Toyota wird NO_x an einen bariumhaltigen Katalysator absorbiert und reduziert. Dies erfordert eine kurzfristige fette Gemischaufbereitung, die schwierig zu handhaben ist, ohne dass gleichzeitig in verstärktem Maß Rußpartikel freigesetzt werden. Daher wird der Dieselpartikelfilter als Technologie angesehen, die diese Stickstoffspeichertechnik erst ermöglicht. Allerdings ist ein weiterer Nachteil, dass die Stickstoffspeichersysteme Schwefelgehalte unterhalb von 50 ppm erforderlich machen (Ricardo 2001).

3.7.3.3.2 Selektive katalytische Reduktion (SCR) für Nutzfahrzeuge

Die Verwendung von selektiver katalytischer Reduktion (SCNR oder auch SCR) wird am ehesten bei LKWs gesehen. SCNR benötigt für die Reduktion von NO_x Ammoniak, der aus Harnstoff generiert wird. Diese Technologie erfordert einen Vanadium-Katalysator, der bei einer Temperatur oberhalb von 350 Grad betrieben wird. Diese aufwendige und kostenintensive Einrichtung wird daher voraussichtlich auf Nutzfahrzeuge beschränkt bleiben (Ricardo 2001). Laut einer neueren Pressemitteilung des Europäischen Verbands der Automobilhersteller haben sich zwischenzeitlich die meisten europäischen Hersteller (DAF, DaimlerChrysler, IVECO, MAN, Renault, Scania und Volvo) für SCNR entschieden (ACEA 2003a).

Das SCNR-System besteht aus einem zusätzlichen Tank für eine wässrige Harnstofflösung und einer elektronischen Dosiereinheit für das Reduktionsmittel sowie einem Katalysator, der sich im Schalldämpfer befindet. Im Katalysator werden Stickstoffoxide mit Ammoniak reduziert, der durch die heißen Motorabgase aus Harnstoff erzeugt wird. Die Dosiermenge beträgt ca. 6 % des Dieselmotorkraftstoffs. Wegen Gewicht und aus Kostengründen erscheint das System eher für Nutzfahrzeuge geeignet zu sein (UBA 2003). In der Kombination mit Partikelfiltern scheint es geeignet, die Schere zwischen Ruß- und NO_x -Bildung zu schließen. In einem vom bayerischen Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (StMUGV) geförderten Feldversuch wurde die Praxis-tauglichkeit unter Beweis gestellt. Zehn Mercedes-Benz-Nutzfahrzeuge absolvierten insgesamt 3,2 Mio. Streckenkilometer. An einer Einführung und flächendeckenden Versorgung mit Harnstoff wird gearbeitet. Eine erste Zapfstelle wurde im Herbst 2003 in Berlin eingerichtet (UmweltMagazin 13.10.2003).

Insbesondere für Nutzfahrzeuge sieht das Umweltbundesamt die selektive katalytische Reduktion mit Minderungsraten von über 95 % als interessante Technik an, da hier nicht nur hohe Minderungsraten, sondern auch ein bis zu 10 % günstigerer Kraftstoffverbrauch und damit entsprechend geringere CO_2 -Emissionen möglich werden. Der günstige Kraftstoffverbrauch führe zu laufenden Kosteneinsparungen und kompensiere insofern zumindest teilweise die Anschaffungskosten. In Zusammenarbeit mit Ricardo Consulting Engineers hat der Verband der europäischen Hersteller Abgasnachbehandlungssysteme (AECC) die Dauerhaltbarkeit eines unregelmäßigen SCR-Systems in Kombination mit einem Partikelfilter an einem Nutzfahrzeugmotor der Stufe EURO III in einem Test über 1000 Stunden nachgewiesen. Als Ergebnis wurde mitgeteilt, dass ein NO_x Wert von 1,0 g/kWh zusammen mit einem Partikelwert unter 0,01 g/kWh im ESP und im ETC ohne wesentliche Verschlechterung problemlos eingehalten werden konnten. Es wurden insgesamt also Minderungsraten von jeweils über 85 % auf Dauer realisiert. Dies bedeutet, dass ein so ausgerüsteter EURO III-Motor einen Grenzwert von 1,0 g/kWh mit genügendem Sicherheitsabstand einhalten kann. Durch den Einsatz eines NO_x Sensors und einer Regelung der SCR-Anlage kann die Minderungsrate weiter auf über 95 % gesteigert werden (UBA 2003).

Schwefel vergiftet allerdings den Katalysator und daher wird eine Absenkung auf <10 ppm Schwefel erforderlich sein. Unter diesen Voraussetzungen eröffnet die SCNR-Technik die

Möglichkeit, dass Nutzfahrzeugemissionen die Grenzwerte EURO IV und EURO V auch ohne Partikelfilter erfüllen. Eine erste Zapfanlage für Harnstoff wurde im Oktober in Berlin in Betrieb genommen (UmweltMagazin 13.10.2003). Testfahrzeuge unterbieten mit dieser Technik (schwefelfreier Diesel <10 ppm; gesteuerte Katalysatoren) heute schon die EURO V Grenzwerte von 2009, indem mit hohem Luftüberschuss die Partikelbildung unterbunden wird und dabei entstehende Stickstoffoxide katalytisch eliminiert werden (VDI-Nachrichten 26.09.2003).

FAZIT

- Zu Dieselmotoren und Dieseldieselkraftstoff gibt es in absehbarer Zeit keine tragfähige Alternative.
- Zur Verbesserung der Emissionen wird schwefelarmer Diesel benötigt. Für die EU ist ab 2009 ein Wert von 10 ppm verbindlich vorgeschrieben. Die Umstellung ist in 2003 bereits angelaufen.
- Schwefelfreier Diesel ist erforderlich, um
 - die emittierte Partikelmasse zu reduzieren
 - die Bildung von Sekundärpartikeln (10 - 30 nm) zu minimieren
 - Katalysatortechnik zur Reduzierung von Stickoxyden zu ermöglichen.
- Regenerative Kraftstoffe ergänzen zunehmend Diesel aus fossilen Quellen.
- Bei Pkws wird anstelle von SCNR der Speicherkatalysator alleine oder in Kombination mit Partikelfilter zur Einhaltung des EURO 5 Grenzwertes führen. EURO 4 Werte können von einzelnen Modellen schon heute um 50 % unterschritten werden.
- Die Kombination SCNR und schwefelfreier Diesel ermöglicht heute auch ohne Partikelfilter die Einhaltung der EURO V Grenzwerte für Nutzfahrzeuge.

4 Aspekte zur Toxikologie von Dieselmotorabgasen

Bei Dieselmotorabgasen handelt es sich um ein sehr komplexes Gemisch aus Partikeln, Gasen und Dämpfen. Die Immissionskonzentration und damit die inhalative Exposition des Menschen variiert sehr stark in Abhängigkeit von Betriebszustand, örtlichen Gegebenheiten, meteorologischen Bedingungen usw. Die einzelnen Bestandteile erreichen in Abhängigkeit von ihrem aerodynamischen Durchmesser unterschiedliche Kompartimente des Atemtrakts. Gase, Dämpfe und sehr kleine Partikel dringen bis in die Alveolen vor, während größere Partikel in höheren Abschnitten deponiert werden können. Abbildung 4-1 zeigt diese Zusammenhänge schematisch auf und gibt die Depositionswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser wider. Nicht deponierte Partikel und Gase werden wieder ausgeatmet (Kreyling 2003, Metz 2003).

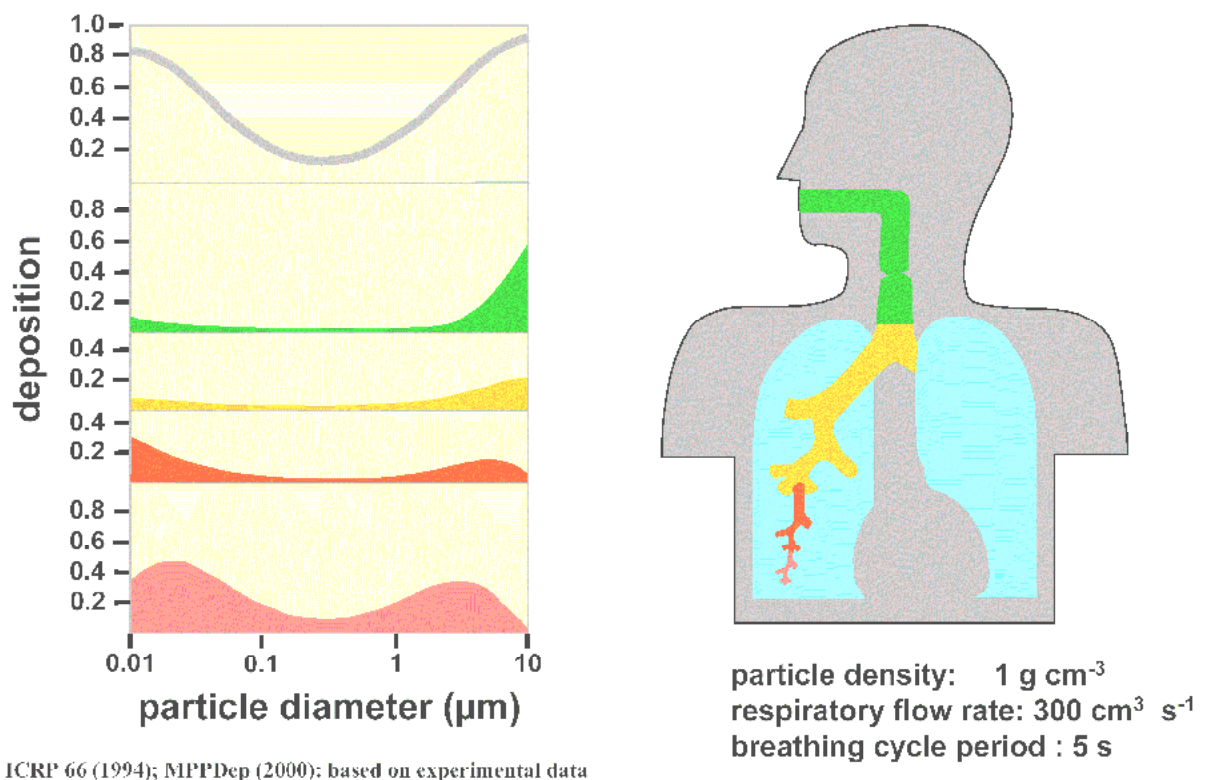


Abbildung 4-1: Depositionswahrscheinlichkeit für Partikel im menschlichen Atemtrakt. Aus Kreyling (2003).

4.1 Chemische Stoffe in der Gasphase

Schwefeldioxid

Schwefeldioxid (SO_2) ist ein farbloses, in hohen Konzentrationen stechend riechendes Gas, das bei der Verbrennung fossiler Energieträger wie Erdöl (ca. 16 %) und Kohle (ca. 70 %) entsteht. In der Atmosphäre ist SO_2 einer Reihe von Umwandlungsprozessen unterworfen, bei denen schweflige Säure, Schwefelsäure, Sulfite und Sulfate entstehen können. SO_2 gilt als wesentlicher Mitverursacher von Smog. Mit zunehmender Entschwefelung des Dieselmotorabgases sinkt der Ausstoß an SO_2 . Es wurde in diesem Bericht in früheren Abschnitten bereits mehrfach erwähnt, dass der verkehrsbedingte Anteil an den SO_2 -Gesamtemissionen lediglich 2 % beträgt und damit eher unbedeutend ist.

SO_2 wirkt in erster Linie auf die Schleimhäute des Auges und der oberen Atemwege. Das Gas wird zu 99 % im Nasenrachenbereich adsorbiert und reizt das Gewebe durch Bildung von schwefliger Säure. SO_2 wirkt auch auf die glatte Gefäßmuskulatur, was zur Verengung der Bronchien führt.

Für SO_2 gilt ein MAK-Wert von $1,3 \text{ mg/m}^3$ (DFG 2003). Die neue TA Luft vom 24. Juli 2002 regelt die Immissions-Grenzwerte für die Langzeitbelastung (Jahresmittelwert: $50 \text{ }\mu\text{g/m}^3$) und Kurzzeitbelastung (Tagesmittelwert: $125 \text{ }\mu\text{g/m}^3$; 1-Stundenwert: $350 \text{ }\mu\text{g/m}^3$) für die menschliche Gesundheit (1. BImSchV 2002). Die WHO empfiehlt einen Jahresmittelwert von $50 \text{ }\mu\text{g/m}^3$ und einen Tagesmittelwert von $125 \text{ }\mu\text{g/m}^3$, bei Überschreitung ist mit gesundheitlichen Problemen zu rechnen (WHO 2000).

Stickstoffoxide

Unter dem Begriff Stickstoffoxide (NO_x) versteht man die Summe der Gase NO_2 und NO . Diese entstehen bei hohen Temperaturen von Verbrennungsprozessen. Stickstoffmonoxid (NO) wird bei gewöhnlicher Temperatur schnell zu Stickstoffdioxid NO_2 oxidiert, so dass in der Umgebung im wesentlichen NO_2 vorherrscht. Dieses reagiert mit Wasser zur salpetrigen Säure und Salpetersäure.

Ein Großteil von NO_2 wird beim Einatmen im oberen Atemtrakt entfernt (40 %), ein erheblicher Teil gelangt bis in die Lungenperipherie. NO_2 ist ein Reizgas und kann in Tier und Mensch langfristig zu Lungenemphysemen führen. Empfindliche Personen reagieren bereits auf akute Konzentrationen von etwa $0,3\text{-}0,4 \text{ mg/m}^3$. Epidemiologische Studien zur Belastung der Außenluft weisen ab Jahresmittelwerten von $50\text{-}75 \text{ }\mu\text{g NO}_2/\text{m}^3$ auf eine Zunahme der Atemwegserkrankungen hin.

Experimentelle Untersuchungen gaben keine Hinweise auf ein mutagenes und kanzerogenes Potential (UBA 1999, S. 179, WHO 2000). Dementsprechend schlug die WHO einen Jahresmittelwert von $40 \text{ }\mu\text{g/m}^3$ und einen Tagesmittelwert von $200 \text{ }\mu\text{g/m}^3$ vor (WHO 2000).

TA Luft vom 24. Juli 2002 sieht für die Langzeitbelastung (Jahresmittelwert: $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Kurzzeitbelastung (1-Stundenwert: $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$) zum Schutz der menschlichen Gesundheit vergleichbare Regelungen vor (1. BImSchV 2002). Allerdings liegen inzwischen Anhaltspunkte für eine krebserzeugende Wirkung vor, die zu einer Einstufung nach 3B in der MAK- und BAT-Werte Liste 2003 geführt haben (3B = Anhaltspunkte aus in-vitro- oder aus Tierversuchen für eine krebserzeugende Wirkung, aber noch ohne ausreichende Kenntnis zur Einstufung in eine andere Kategorie). Der frühere MAK-Wert von $9,5 \text{ mg}/\text{m}^3$, der noch in der MAK-Liste 2002 aufgeführt war, wurde ersatzlos gestrichen (DFG 2003).

Formaldehyd

Formaldehyd wird in der Atmosphäre aufgrund seiner Reaktivität schnell abgebaut (Halbwertszeit einige Stunden). Die Reizwirkung des Stoffes steht im Vordergrund. Reizungen der Augen und der oberen Atemwege setzen im Bereich von $0,6 - 1,2 \text{ mg}/\text{m}^3$ ein, können bei empfindlichen Personen aber schon bei deutlich niedrigeren Konzentrationen auftreten (WHO 1989). Beim Nager, besonders Ratte, weniger ausgeprägt bei der Maus, induzieren hohe, stark reizende Konzentrationen an Formaldehyd ($>10 - 20 \text{ mg}/\text{m}^3$) Karzinome in der Nasenhöhle.

Aus epidemiologischen Untersuchungen liegen uneinheitliche Ergebnisse über ein mögliches erhöhtes Krebsrisiko nach jahrelanger beruflicher Exposition gegenüber Formaldehyd vor: Wegen fehlender Übereinstimmung der Beobachtungen in den positiven Fall-Kontroll-Studien einerseits und negativen Kohortenstudien andererseits wertet die IARC (1995) diese Daten lediglich als möglichen Hinweis auf einen positiven Trend.

Formaldehyd ist als krebserzeugender Arbeitsstoff der Kategorie 4 eingestuft, d.h. der gentoxischen Wirkung von Formaldehyd wird eine untergeordnete Rolle zugesprochen. Es wird keine nennenswerte Risikoerhöhung erwartet, wenn der MAK-Wert in Höhe von $0,37 \text{ mg}/\text{m}^3$ eingehalten wird (DFG 2003). Die WHO schlug $0,1 \text{ mg}/\text{m}^3$ als 30 min-Kurzzeitwert vor (WHO 2000).

1,3-Butadien

1,3-Butadien unterliegt in der Atmosphäre einem raschen oxidativen Abbau durch OH-Radikale oder in Wechselwirkung mit Ozon (Halbwertszeiten 5-6 h bzw. 1,5 d). Dabei treten als Reaktionsprodukte Formaldehyd und Acrolein auf.

In Untersuchungen an Ratten und Mäusen hat sich Butadien nach inhalativer Exposition als krebserzeugend erwiesen (IARC 1992). In Kanzerogenesestudien waren Mäuse um etwa zwei Größenordnungen empfindlicher als Ratten: weibliche Mäuse entwickelten ab $6,25 \text{ ppm}$ (6 h/d, 5 d/w) vermehrt Lungentumoren, bei höheren Konzentrationen traten Tumoren in unterschiedlichen Geweben beider Geschlechter auf. Unterschiede im Metabolismus sowie der Verfügbarkeit von Epoxybutan und Diepoxybutan bei Maus und Ratte spielen dabei eine wichtige Rolle.

Eine krebserzeugende Wirkung beim Menschen war bei der Berücksichtigung der Befunde neuerer epidemiologischer Studien als wahrscheinlich anzusehen (UBA 1999) und inzwischen ist Butadien als Humankanzerogen erkannt und dementsprechend auch als krebserzeugender Arbeitsstoff der Kategorie I eingestuft (DFG 2003). Allerdings hat der Gehalt an Butadien im Abgas von Dieselfahrzeugen stark abgenommen und ist fast nicht mehr nachweisbar.

4.2 Partikelphase

Im Abgas von Dieselmotoren finden sich neben wenigen groben Rußpartikeln vorwiegend feine Partikel oder auch Ultra-Feinpartikel. Dies ist von vielen Parametern wie z.B. Motortyp, Betriebszustand, Dieselmotorkraftstoff usw. abhängig (s. Abschnitt 3.1)

4.2.1 Partikeldurchmesser

In tierexperimentellen Untersuchungen finden sich leider nicht immer verwertbare Angaben zur Charakterisierung der Aerosole. Die Autoren einer im Auftrag des Umweltbundesamtes durchgeführten Arbeit gaben an, dass in den meisten tierexperimentellen Studien Partikel mit einem mittleren Durchmesser von 0,1 - 0,4 µm vorlagen, mit Abweichungen bis zu 10 % der Partikelmenge hin zu kleineren (<0,05) oder größeren (1,0 µm) Durchmessern (UBA 1999). Aufgrund der eigenen Recherchen können wir den genannten Größenbereich bestätigen. Es finden sich jedoch kaum genauere Angaben zur Messtechnik, so dass nicht zu klären ist, aus welchem Grunde in den toxikologischen Studien so viel größere Partikeldurchmesser berichtet werden als in den sehr genau beschriebenen ingenieurtechnischen Studien.

4.2.2 Chemische Stoffe in der Partikelphase

Neben dem aerodynamischen Durchmesser ist die chemische Zusammensetzung von Bedeutung, und hier ist zwischen dem unlöslichen Anteil der Partikelmasse, dem Rußkern, mit 33 bis 90 % Masseanteil und dem löslichen Anteil zu unterscheiden, der auch als Organic Carbon (OC) oder Soluble Organic Fraction (SOF) bezeichnet wird und einen stark variablen Massenanteil von ca. 7 bis 50 % stellt (s. auch Kapitel 3.1.4 und Abb. 3.1.4-1).

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK), zusammengefasst als Substanzklasse mit mehr als zwei aromatischen Ringen, entstehen bei unvollständigen Verbrennungsprozessen. Nachgewiesen wurden eine Vielzahl an Substanzen, darunter Fluoranthren, Phenanthren, Anthracen, Pyren, Chrysen, Benzo(a)fluoranthren, Benzo(e)pyren, Benzo(a)pyren, Perylen, Benzo(g,h,i)perylen, Coronen und deren alkylsubstituierte Derivate sowie oxidierte Derivate. (Tong und Karasek, 1984). Hauptsächlich entstehen Substanzen mit höher kondensierten Ringsystemen, d.h. 4- bis 6-Ringe, die an die Partikel adsorbiert sind. Benzo(a)pyren, als bekanntester Vertreter, wird häufig als Leitsubstanz für die Belastung mit PAK verwendet (HEI, 1995).

Die Resorption von PAK ist bei allen Aufnahmepfaden gut. Durch Metabolisierungsreaktionen an einer Doppelbindung durch Cytochrom P450 abhängige Monooxygenasen entstehen zuerst Epoxide und Diolepoxide, die für die gentoxische kanzerogene Wirkung verantwortlich gemacht werden, dann Phenole und Diole. Bekannt ist

die Kanzerogenität im Tierversuch einiger in Verbrennungsaerosolen vorhandener polyzyklischer PAK wie Benzo[a]pyren, Dibenz(a,l)pyren und Dibenz(a,h)anthracen. Einige Vertreter wie z.B. Pyren waren im Tierversuch negativ (UBA, 1999). Verschiedene Risikoabschätzungen für Benzo[a]pyren anhand von Tierversuchen und epidemiologischen Daten werden in UBA 1999 zusammengefasst. Mauderly (1999) berechnete für amerikanische Verhältnisse eine lebenslange Gesamtdosis an PAK von 18 mg durch Dieselabgasbelastung. Hierbei legte er eine Konzentration von $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Dieselmotorabgase in der Umgebungsluft mit einem organischen Anteil von 50 % und einem PAK-Gehalt von 10 % zugrunde. Weitere Annahmen sind Ablagerungsrate von 20 % der PAK in der Lunge und davon sind 100 % bioverfügbar. Es liegen keine ausreichenden Daten vor, zu welchem Anteil die an Partikel adsorbierten PAK im Organismus bioverfügbar werden.

Der PAK-Ausstoß ist aufgrund von verbesserten Verbrennungsvorgängen im Motor erheblich gesunken (Sawyer und Johnson 1995, Tabelle 3.4.2.-6).

Nitroaromaten

Nitroaromaten (Nitro-PAK) entstehen bei der Verbrennung von Dieselmotorabgas durch die Reaktion von PAK mit NO_x . Der Nitro-PAK-Gehalt ist umso höher, je höher der Aromatengehalt im Kraftstoff ist und je höher die NO_x -Konzentration im Abgas ist. Eine große Anzahl an polyzyklischen Nitroaromaten, die in der Regel stärker mutagen und kanzerogen sind als die ursprünglichen PAK, wurden sowohl in der Gasphase als auch in der Partikelphase von Dieselabgasen gefunden (HEI, Research Report Nr. 56, 1993). Es wurden einfach nitrierte aber auch doppelt nitrierte Polyzyklen nachgewiesen, darunter stark mutagene oder kanzerogene Substanzen wie 2-Nitrofluoren, 1,3-, 1,6- und 1,8-Dinitropyren (Schuetzle and Frazier, 1986, IARC, 1986). Vor einiger Zeit wurde eine stark mutagene Substanz im Dieselruß gefunden, das 3-Nitrobenzanthron (Enya et al. 1997). Als Leitsubstanz für Dieselabgase wurde 1-Nitropyren vorgeschlagen und auf seine Eignung als Expositionsmarker für Dieselabgasbelastung am Arbeitsplatz in verschiedenen Biomonitoringstudien mit unklarem Ergebnis geprüft (Scheepers et al. 1995, Zwirner-Baier und Neumann, 1999). Nach Aufnahme in den Körper werden Nitroaromaten zu aromatischen Aminen reduziert, von dieser Substanzklasse sind viele Vertreter als gentoxische Kanzerogene in Mensch und Tier bekannt (Neumann, 1988).

Die Nitro-PAK im Dieselabgas von Personenkraftwagen sind aufgrund von verbesserten Verbrennungsvorgängen im Motor erheblich gesunken (Sawyer und Johnson 1995, Tabelle 3.4.2.-7).

Sulfat und Nitrat

Sulfate und Nitrate werden hauptsächlich durch Oxidationsprozesse von SO_2 und NO_2 gebildet und treten daher bei Immissionsmessungen in Erscheinung. Wasserlösliche Sulfat- und Nitrationen werden als nicht kanzerogen angesehen. Der angelagerte Sulfatanteil, der

insbesondere aufgrund des Schwefelgehaltes im Kraftstoff eine Rolle spielt, lässt sich über die wasserlösliche Fraktion der Partikel bestimmen.

Metalle

Angelagerte Metalloxide stellen nur etwa 2 % der Partikelmasse. Metalle können jedoch durch Redoxreaktionen die Bildung reaktiver Sauerstoffspezies katalysieren und so lokale Reizungen und Entzündungen im Lungengewebe begünstigen.

4.3 Inhalative Aufnahme und Ablagerung

Die wesentlichen Mechanismen einer Ablagerung von Partikeln im Respirationstrakt sind Impaktion, Sedimentation und Diffusion. Schwebstäube bis zu 10 µm Durchmesser werden weitgehend im Nasen-Rachenraum zurückgehalten. Partikel im Größenbereich 5-10 µm lagern sich im tracheobronchialen Bereich ab und werden in ein bis drei Tagen durch den in diesem Abschnitt befindlichen mukoziliären Selbstreinigungsmechanismus der Lunge vollständig entfernt (Abbildung 4-1).

Experimentelle Daten belegen, dass bei der Ratte eine Überladung der Lunge bei einem Gehalt von 0,5 bis 1,5 mg/g Lungengewebe einsetzt (z.B. Muhle et al. 1990a,b; Morrow 1988, von US EPA 2002, S. 3-28/29).

Vergleichende kinetische Modellrechnungen zur Retention von inhalierten Partikeln (DME mit 0,2 µm MMAD), basierend auf tierexperimentellen Daten und physiologischen Humanparametern, kommen zu vergleichbaren Ergebnissen über die Deposition in den verschiedenen Abschnitten der Lunge (US EPA 2002, S. 3-50). Nach Yu und Xu (1987) und Yu und Yoon (1991) kommt es bei einer kontinuierlichen Exposition gegenüber Dieselemissionen von 50 µg/m³ zu keiner merklichen Reduktion der Lungenclearance und keiner Anreicherung von Partikeln in der menschlichen Lunge. Ein signifikanter Abfall der Gesamt-Clearance würde erst oberhalb von 100 µg/m³ erkennbar, eine etwa 10-%ige Beeinträchtigung bei 0,4–0,5 mg/m³ über 10 Jahre (Yu und Yoon, 1991, Abb. 19). Ergebnisse von Berechnungen auf den Menschen bezogen unter Verwendung dieses Modells finden sich bei US EPA (2002, Tab. A-4, S. A-29). Sie zeigen einen nicht-linearen Verlauf der Lungenbeladung bei hohen Expositionen (US EPA, S. 6-13).

Für Feinstaub (0,1-1 µm) sind Sedimentation und Diffusion von Bedeutung für die Abscheidung in Bronchien und Alveolen. Die Gesamtdeposition im Respirationstrakt sinkt ausgehend von einem Durchmesser von 10 µm bis zu ca. 0,5 µm ab und steigt bei Ultrafeinpartikeln wieder an (Heyder et al. 1986). Für Ultrafeinpartikel mit einem Durchmesser <0,1 µm ist die durch Diffusion bedingte alveoläre Deposition vorherrschend: 20–50 % werden in den Alveolen abgeschieden bei gleichzeitiger leichter Zunahme des Abscheidegrades in den oberen Atemwegen (Kappos et al. 2003, S. 16).

Die Verweildauer von Partikeln im alveolären Bereich kann je nach Löslichkeit Monate bis Jahre betragen. Die Säuberung dieses Bereichs geschieht in der Regel durch die Phagozytoseaktivität von wandernden Makrophagen. Über die Bronchien werden die Partikel (0,3–2,0 µm Optimum) mit dem gesamten Makrophagen über den Mukoziliartransport zum Kehlkopf und in den Magen-Darm-Trakt transportiert. Auf diese Weise wird beim Menschen innerhalb eines Jahres ungefähr ein Drittel der unlöslichen Partikel aus dem Alveolarbereich eliminiert. Der Rest verbleibt auf dem Alveolarepithel oder wird interstitiell, subpleural oder in Lymphknoten des Thorax zurückgehalten. Ultrafeinpartikel werden wahrscheinlich zu einem erheblichen Teil von Epithelzellen aufgenommen. Durch Epithelzellen aufgenommene Partikel können grundsätzlich im Epithel

verbleiben, weiter in das Bindegewebe oder die Blutbahn transportiert werden (Kappos et al. 2003, S. 17/18).

Partikel in Dieselmotorabgasen zeigen typischerweise aerodynamische Durchmesser $\leq 0,1 \mu\text{m}$, sind damit alveolengängig und praktisch vollständig in der Fraktion $\text{PM}_{2,5}$ zu finden. Pott und Roller (2003) rechnen sie eher der Feinstaub- als der Ultrafeinstaubfraktion zu, aber es wurde schon mehrfach in Abschnitten weiter oben auf widersprüchliche und abweichende Definitionen verschiedener Autoren und Institutionen hingewiesen. Der Masseanteil der Dieselpartikel an PM_{10} wird auf 20-30 % geschätzt. HEI schätzt den Anteil von Dieselabgasen an der $\text{PM}_{2,5}$ Fraktion auf 3-12 %, belegt durch Studien in den 90er Jahren, durchgeführt in Boston: $0.8\text{-}1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Rochester: $1.0\text{-}2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und Washington : $2.4\text{-}4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

4.4 Kanzerogene Wirkungen im Tierexperiment

4.4.1 Tierexperimentelle Befunde

4.4.1.1 Gasphase

Dieselmotorabgas (DMA), das nach Behandlung mit Filtern rußpartikelfrei war, hat in zwei Inhalationsexperimenten bei Ratten keine Lungentumoren erzeugt (Heinrich et al. 1986, Brightwell et al. 1986).

4.4.1.2 Partikuläre Phase / Gesamt-Dieselmotoremissionen

Da die meisten Studien zur Kanzerogenität von Dieselabgasen mit nicht fraktioniertem Abgas aus dem Auspuff gemacht wurden, ist es nicht möglich die unterschiedlichen Wirkstärken der verschiedenen Partikel zweifelsfrei zu charakterisieren.

Üblicherweise lagen in den meisten Studien die Abgaspartikel mit einem mittleren Durchmesser von 0,1-0,4 µm vor, mit Abweichungen von bis zu 10 % der Partikelmenge hin zu kleineren (<0,05 µm) oder größeren (1,0 µm) Durchmessern (UBA, 1999).

Eine Vielzahl von Inhalationsstudien an Nagern, meist Ratten, belegte die kanzerogene Wirkung von Dieselabgasen im Tier. Studien über mindestens 24 Monate zeigten übereinstimmend ab Partikelkonzentrationen von ca. 2 mg/m³ die Entstehung von Lungentumoren in Ratten. Darunter ließ sich keine statistisch signifikante Erhöhung der Lungentumorhäufigkeit nachweisen (Ishinishi et al. 1986; Kaplan et al. 1983; Lewis et al. 1986; Nikula et al. 1997). Als häufigste Tumortypen wurden Adenome, Plattenepitheltumoren und Adenokarzinome festgestellt (Heinrich et al. 1986, 1995, Ishinishi et al. 1986, 1988, Brightwell et al. 1986, 1989).

Im Hinblick auf die **Dosisabhängigkeit** der Tumorausbeute ergab sich ein weitgehend einheitliches Bild in drei Langzeitinhalationsuntersuchungen an Ratten über 24 Monate (Wistar- und Fischer-344-Ratten, 18 h/d bzw. 16 h/d, jeweils 5 d/Wo) mit DMA und Ruß (Heinrich et al. 1995; Nikula et al. 1995) sowie über 30 Monate (7 h/d, jeweils 5 d/Wo) mit DMA (Mauderly et al. 1987): Die Lungentumorraten in den jeweiligen Untersuchungen zeigten für DMA einerseits und Ruß (nur EC) andererseits übereinstimmende Werte, und gleiche Konzentrationen an DMA und Ruß führten zu ähnlichen Tumorausbeuten. Die niederen Konzentrationen (0,35 und 0,80 mg/m³) induzierten keine Tumoren, die mittleren (2,5–3,5 mg/m³) 4–6 % sowie die hohen Konzentrationen (6,3–7,0 mg/m³) 13–22 % Lungentumoren.

Analoge Untersuchungen an Mäusen zeigten –wenn überhaupt- nur eine schwach signifikant erhöhte Lungentumorausbeute, Goldhamster erwiesen sich in dieser Beziehung als völlig refraktär gegenüber DMA (Mauderly 1997).

In Strain-A- und Sencar-Mäusen waren die Lungentumorraten erhöht, in CD-1-, MNRI- oder C57BL/6N-Mäusen dagegen nicht (Heinrich et al. 1985; Mauderly 1992).

Ratten und Mäuse unterschieden sich in der Stärke der proliferativen Antwort der epithelialen Zellen nach 18-monatiger Exposition (7h/d, 5d/Woche) mit $7,1 \text{ mg/m}^3$ Dieselruß-Partikeln: So ist die Proliferationsrate der Alveolarzellen vom Typ II in der Ratte 8-fach und in der Maus nur 2-fach gegenüber nicht behandelten Kontrollen erhöht (Mauderly 1997).

In einer vergleichenden Zwei-Jahres-Inhalationsstudie an Ratte und Affe wurden keine erhöhten Lungentumorraten bei einer Konzentration von 2 mg/m^3 Dieselruß oder Kohlenstaub (nur EC) gefunden (Nikula et al. 1997). Allerdings war beim Affen die Expositionsdauer vergleichsweise zu kurz.

In weitergehenden Untersuchungen wurde die Rolle der Beladung der Partikel mit bioverfügbaren, kanzerogenen PAK geprüft: Dasenbrock et al. (1996) instillierten sowohl mit Toluol extrahierten als auch nativen Dieselruß ($0,25 \mu\text{m}$, ca. 47 % organischer Anteil, 15-17 Applikationen; je 1x/Woche, 15 mg insgesamt) an Ratten mit dem Ergebnis, dass der extrahierte Dieselruß (15 mg) um einen Faktor 4 weniger kanzerogen war. Die höhere Tumorraten bei unter realen Bedingungen gesammeltem Dieselruß [$8/48 = 17 \%$] wird auf den PAK- und Nitro-PAK-Gehalt zurückgeführt. Mit Benzo(a)pyren beladene Partikel [$165 \mu\text{g B(a)P pro } 15 \text{ mg}$] wiesen jedoch kein signifikant erhöhtes kanzerogenes Potential gegenüber extrahiertem Dieselpartikeln auf [$8/48 = 8 \%$ vs. $4/48 = 4 \%$].

Auf der anderen Seite gab es in vergleichenden Inhalationsuntersuchungen an Ratten keine signifikanten Unterschiede in den Lungentumorraten zwischen nativem Dieselruß und Industrieruß ohne OC-Gehalt (u.a. Heinrich et al. 1995; Nikula et al. 1995).

Im Verhältnis zur Partikelmasse in der Lunge waren künstlicher Ruß (hohe spezifische Oberfläche) und TiO_2 (kleine spezifische Oberfläche) eher wirksamer als Dieselpartikel (s. auch UBA 1999, S. 81/82; Tab. 3-15, S. 72/73), was auf einen vernachlässigbaren Adsorptions-/Desorptionseffekt von Partikel-gebundenen Stoffen hindeutet.

Der Einfluss der **Partikelgröße** wurde mit unlöslichen TiO_2 -Partikeln mit unterschiedlichem Durchmesser in zwei Zweijahresinhalationsstudien an Ratten gezeigt (Heinrich et al. 1995; Lee et al. 1985): Ultra-Feinpartikel aus TiO_2 (ca. 20 nm) verursachten mehr Lungentumoren in der Ratte bei niedrigen Dosen und niedrigeren Lungenbeladungen (39 mg) als größere TiO_2 -Partikel (200-300 nm) mit einer Lungenbeladung von 665 mg. Der Unterschied in der Lungentumorraten zwischen ultrafeinen und feinen Partikeln lag bei 10:1 bis 20:1. Insgesamt liegen auf diesem Gebiet zu wenige Untersuchungen vor.

Pott und Roller (2003) führen neben der Partikelgröße das Partikelvolumen (Masse/Dichte) als weiteren, aus ihrer Sicht wichtigen Parameter für die Höhe des kanzerogenen Potentials von Stäuben ein: sie zeigen in ihrer vorläufigen Auswertung von Rattenuntersuchungen nach intratrachealer Instillation von bio-beständigen Stäuben, dass – bezogen auf das retinierte Gesamtstaubvolumen - vier Ultrafeinstäube mit mittlerem Durchmesser von 0,01-0,03 µm 2,5mal stärker kanzerogen wirkten als vier Feinstäube mit mittlerem Durchmesser von 0,09-0,20 µm und achtmal stärker als acht Feinstäube mit einem mittleren Durchmesser von 1,8-4,0 µm. Die mittleren TD25 %-Dosen für die jeweiligen Partikelgrößenbereiche lagen bei etwa 2, 5 und 16 µl (Potter und Roller 2003, Tab. 4, S. 13). In diesen Versuchen korrelierten außerdem die Tumorinzidenzen besser mit der **Partikeloberfläche** als mit dem **Partikelvolumen**. Allerdings waren die Dosierungen in den ausgewerteten Studien (zwischen 1 x 5 mg und 6 x 20 mg) um viele Größenordnungen höher als die Belastungen im Umweltbereich.

4.5 Nicht kanzerogene Wirkungen im Tierexperiment

4.5.1 Lokale Reaktionen

Die Inhalation schwer löslicher oder unlöslicher Schwebstaubpartikel, auch so genannter „inert“ Stäube, können unabhängig von ihrer Zusammensetzung, Entzündungsreaktionen in den Lungenalveolen hervorrufen.

In der akuten Wirkung gab es dabei deutliche quantitative Unterschiede zwischen feinen und Ultra-Feinpartikeln im Tierversuch: z.B. lösten gleiche Massedosierungen von 20nm-TiO₂-Partikeln eine stärkere Entzündungsreaktion aus als eine von 250nm-TiO₂-Partikeln. Die physiologische Aktivität des Staubs soll am besten mit der spezifischen Oberfläche des Partikelmaterials korrelieren (Muhle, 2002).

Ab etwa 0,75-0,80 mg/m³ wurde in den Langzeituntersuchungen mit Dieselmotorabgasen (DMA) bei der Ratte eine verringerte Clearance beobachtet. Höhere Expositionen führten zur Zunahme des Lungengewichts und der Zahl der alveolären Makrophagen und Leukozyten sowie zur Vermehrung der Alveolarzellen vom Typ II.

Bei chronischer Exposition gegenüber 0,11–0,35 mg DMA/m³ (Ratte) und 0,25 mg/m³ (Meerschweinchen) waren weder eine entzündliche Reaktion in der Rattenlunge noch eine Einschränkung der Partikelclearance aus dem Respirationstrakt festzustellen (UBA 1999, S. 37).

Aus der Zusammenschau aller histopathologischen Befunde an männlichen und weiblichen Ratten (aus Mauderly et al. 1987, Ishinishi et al. 1986, 1988, Nikula et al. 1995, Heinrich et al. 1995) errechnet sich nach US EPA (2002, S. 6-11/6-12) eine wahrscheinlichste noch wirksame Grenzkonzentration von 0,37 mg/m³, bei der mit einer 10-%igen Inzidenz von chronischen Entzündungsreaktionen der Lunge zu rechnen ist (definiert als BMCL₁₀, untere „Benchmark“-Konzentration des 95-%-Konfidenzbereichs).

Vergleichende Langzeitinhalationsuntersuchungen an Ratten, Mäusen und Hamstern zeigten, dass das Lungengewebe der verschiedenen Tierarten im Grunde ähnlich auf hohe chronische Expositionen an DMA (≥ 4 mg/m³) reagierte, allerdings in unterschiedlicher Ausprägung: Vermehrung von Leukozyten und Granulozyten, bronchio-alveoläre Hyperplasien, teilweise fibrotische Veränderungen, Anstieg der Lungengewichte. Die Reihenfolge der Betroffenheit und Empfindlichkeit war Ratte > Maus > Hamster (Heinrich et al 1986, 1995; Henderson et al. 1988; Brightwell 1986, 1989).

In keiner der Untersuchungen, die mit den partikelfreien Gasphasen durchgeführt worden waren, zeigten sich signifikante pathologische Effekte an irgendeiner Tierspezies.

Hohe alveolengängige Rußdosierungen, die eindeutig inflammatorisch in der Rattenlunge wirkten, erhöhten die Zahl der Mutationen in den Alveolarzellen, jedoch gab es eine untere

inflammatorische Dosis, für die keine mutagene Reaktion nachzuweisen war: In einem Inhalationsversuch, in dem F344-Ratten 13 Wochen (6h/d; 5d/Wo) 1,1; 7,1 und 58 mg/m³ industriellem Ruß (also hier nicht Deselemissionsruß) ausgesetzt wurden, wurde die Mutationshäufigkeit (HPRT-Test) in isolierten Alveolar-Typ-II-Zellen direkt nach Beendigung der Exposition und nach Erholungsphasen von 12 und 32 Wochen untersucht. Es fanden sich konzentrationsabhängige Erhöhungen in den beiden oberen Gruppen, wobei die Mutationsfrequenz in der 7,1 mg-Gruppe nach einer Erholungsphase von 12 Wochen wieder auf Hintergrundniveau abfiel. Kein Effekt wurde nach 1 mg/m³ beobachtet (Driscoll et al. 1996). Dies liegt deutlich über der Entzündungsschwellendosis in Ratten.

Zu ähnlichen Hinweisen gelangten Seiler et al (2001) in Instillationsversuchen an der Ratte: Die differenzierte und vergleichende Betrachtung eines biochemischen Markers für Entzündungsreaktion auf der einen und für Gentoxizität auf der anderen Seite legte die Vermutung nahe, dass es eine untere Quarzpartikel-Dosis (hier 0,3 mg) gab, die zwar noch eine signifikante Entzündungsreaktion auslöste, aber das Niveau der Indikatoren für DNA-Schädigungen nicht beeinflusste: Es kam bei der Dosis von 0,3 mg weder zu einer signifikanten Erhöhung der Oxoguanin-Bildung noch zu einer erhöhten Mutationsrate im p53-Tumorsuppressor-Gen. [Es sei allerdings auf die Störanfälligkeit und die damit begrenzte Verlässlichkeit der Oxoguanin-Messung hingewiesen.] Die nächst höheren Dosierungen (1,5 und 7,5 mg) führten zu einer vermehrten Bildung von 8-Oxoguanin und erst bei der höchsten Dosierung zu einem Anstieg der Mutationen im p53-Tumorsuppressor-Gen. Diese Beobachtungen sprechen dafür, dass das Abwehr- und Reparatursystem der Zellen die zusätzliche Bildung an reaktivem Sauerstoff tolerierte, die durch 0,3 mg Quarz induziert worden waren, bei höherer Belastung jedoch überfordert war.

In weiteren mechanistisch ausgerichteten In-vitro-Modelluntersuchungen an isolierten Alveolarmakrophagen war nachzuweisen, dass ultrafeine Kohlenstoffpartikel mit den Zellen in Wechselwirkung traten und – abhängig von der Partikelkonzentration und -oberfläche sowie deren Potentialzustand – *antiinflammatorische* (Unterdrückung oxidativen Stresses bei niedriger spezifischer Oberfläche/Konzentration) oder *proinflammatorische* Reaktionen (Aktivierung oxidativen Stresses bei höherer spezifischer Oberfläche/Konzentration) auslösten. Dies scheint einem angepassten Reaktionsmuster zu entsprechen, wie das Lungenepithel auf den Befall von Fremdpartikeln, einschließlich Fremdkeimen, antwortet (Beck-Speier et al. 2002).

4.5.2 Systemische Wirkungen

Neben den lokalen Wirkungen wird in zahlreichen Studien auch über systemische Effekte von Partikeln, insbesondere auf das Herz-Kreislaufsystem, berichtet. Wegweisend für die Aufklärung der zugrunde liegenden Mechanismen sind Arbeiten an Tiermodellen für kardiopulmonale Erkrankungen mit aus der Umgebungsluft angereicherten Partikeln (Kappos et al. 2003, S. 20/21). Es gibt zunehmende Hinweise darauf, dass neutrophile Granulozyten eine Schlüsselrolle bei Funktionsveränderungen des Herzens und einer Erhöhung der Blutviskosität als Teil der systemischen Antwort auf die Entzündung innehaben.

4.6 Ergebnisse Epidemiologische Studien

4.6.1 Kanzerogene Wirkungen

In allen epidemiologischen Studien ist von einer Mischexposition auszugehen, neben Dieselaabgas trat auch Exposition durch Quarz, Kohlestaub, Asbest oder Radon auf. In den meisten Fällen gibt es keine Expositionsdaten weder über Dauer noch Höhe und/oder keine verlässlichen Angaben zum Rauchverhalten. Daher wurden Studien aus dem Bergbau, Studien mit fraglicher Exposition, Untersuchungen mit zu geringer Fallzahl und unklaren Angaben zum Rauchen nicht berücksichtigt.

Städtische Umgebungsbedingungen

In drei großangelegten Kohortenstudien in den USA (s. unten 4.4.2), die als prospektive Schlüsselstudien anzusehen sind, wurde neben der Morbidität und Mortalität auch die Krebsmortalität im Verhältnis zur Exposition der Stadtbevölkerung gegenüber PM_{2,5} und PM₁₀ ausgewertet.

In der „Harvard-Sechs-Städte-Studie“ (Dockery et al. 1993) und der „American Cancer Society“- (ACS) Studie (Pope et al. 1995) ergaben sich keine statistisch signifikanten Assoziationen zwischen dem Grad der PM_{2,5}-Exposition und Lungenkrebsmortalität: Die kombinierten relativen Risiken betrugen für die erstgenannte Untersuchung 1.37 (95 %-CI 0.81-2.31) und für die zweite 1.03 (0.80-1.33). Auch für einzelne Untergruppen in der ACS-Studie wurde kein erhöhtes Lungenkrebsrisiko angetroffen (US EPA 2002, S. 7-2). Allerdings verschob sich das mittlere relative Risiko (RR) in einer weiterführenden und ausgeweiteten Folgestudie und wurde mit 1,14 (95 %-CI 1,04-1,23) pro 10 µg/m³ PM_{2,5} ermittelt, was rechnerisch und statistisch zu einer Erhöhung der Lungentumorrate von 8 %/10 µg/m³ Feinstaub führte (nach Pope et al. 2002, S. 1137).

Die Signifikanz and biologische Relevanz ist wegen der Geringfügigkeit der Effekte fragwürdig und bedarf weiterer kritischer Prüfung, ebenso die scheinbare Diskrepanz zwischen der Bewertung durch US EPA 2002 und der der Arbeitsgruppe (Pope et al. 2002).

Ein ähnliches, nicht signifikantes Ergebnis kam in einer dritten Untersuchung heraus, die über 6300 nichtrauchende Erwachsene in Kalifornien erfasste („Adventisten“-Studie) (AHSMOG, Abbey et al. 1999).

Berufliche Exposition mit Dieselaabgas

In verschiedenen Studien an LKW-Fahrern, Hafenarbeitern, Baumaschinenfahrern, Busmechanikern konnte keine klare Aussage zum Lungenkrebsrisiko gemacht werden (Boffetta et al. 1988, Rushton et al. 1983, Jakobsson et al. 1997, Alberg et al., 1981, Hansen 1993, Henderson 1976).

Die Studie von Garshick et al. (1988) stützt die Annahme, dass berufliche Exposition gegenüber Dieselmotoremissionen (DMA) zu einem geringen, aber signifikant erhöhten Lungenkrebsrisiko führe. Die Kohorte umfasste 55407 weiße, männliche DMA-exponierte Eisenbahnarbeiter und wurde von 1959 bis Ende 1980 beobachtet. 1694 Personen verstarben an Lungenkrebs. Die Rauchgewohnheiten wurden anhand einer Befragung 1980/81 extrapoliert. In der Kohortenstudie wurden sie nicht abgeglichen. Daten zur individuellen Belastung lagen nicht vor, auch keine Emissionsmessungen, sie wurden aus den Berufsbezeichnungen grob abgeschätzt. Mögliche Asbestbelastung war ein Ausschlusskriterium. Eine Reanalyse der Daten ergab, dass in allen Expositionsgruppen das relative Risiko erhöht, jedoch eine Dosis-Wirkungsbeziehung nicht zu erkennen war (HEI 1999). In einer weiteren Reanalyse der Daten wurde retrospektiv nach Rauchen adjustiert. Eine Dosis-Wirkungsbeziehung ließ sich auch nach dem Adjustieren nicht ableiten (Larkin et al. 2000).

Verschiedene Reanalysen der Daten (HEI 1999, Crump 1999) kamen zu widersprüchlichen Ergebnissen und konnten keine klare Kausalität zwischen der geschätzten Höhe der DMA-Exposition und der Lungentumormortalität herausarbeiten. So fand Crump (1999) keine positive Dosis-Wirkungsbeziehung - im Gegenteil, mit vermeintlich längerer Expositionsdauer nahm die Lungentumormortalität eher ab.

Nach US EPA (2002, S. 7-22) seien die Daten für eine quantitative Risikoabschätzung ungeeignet, stützten aber qualitativ den erkennbaren Trend einer Assoziation zwischen DMA-Exposition und dem Auftreten von Lungenkrebs.

In einer Metaanalyse von Bhatia et al. (1998), in der Studien mit Dieselmotorabgas-exponierten Arbeitern berücksichtigt wurden, zeigte sich ein mittleres relatives RR von 1.33 (95 % KI 1.24-1.44) für Lungenkrebs.

Aufgeschlüsselt nach Beschäftigung ergab sich folgendes Ergebnis: Bei zehn Studien an LKW-Fahrern fand sich ein relatives Risiko von 1.49 (95% KI 1.36-1.65), bei drei Studien an Arbeitern, die schwere Baumaschinen bedienten, ein RR von 1.11 (95 % KI 0.89-1.38), bei sechs Studien mit Straßenarbeitern ein RR von 1.44 (95% KI 1.30-1.60), bei fünf Studien mit Busmechanikern ein RR von 1.24 (95 % KI 0.93-1.64) und bei vier Studien, die Dieselmotorabgas-exponierte Arbeiter einschlossen, ein RR von 1.16 (95 % KI 1.01-1.32).

Die einvernehmliche Schlussfolgerung aller oben genannten Analysen war, dass eine schwache, aber konsistente Assoziation zwischen DMA-Emissionen und der *Lungentumorhäufigkeit* beim Menschen vorliege, die nicht mit der Überlagerung durch Rauchen oder andere Störfaktoren erklärt werden könne. Die mutmaßliche Erhöhung durch DMA wurde auf 20 bis 47 % eingeschätzt (US EPA 2002, S. 7-60 bis 7-64).

Ein Zusammenhang zwischen *Blasenkrebs* und Dieselmotoremissionen ist aus epidemiologischen Studien nicht klar erkennbar. Einige Untersuchungen berichten über ein erhöhtes Blasenkrebsrisiko in Verbindung mit DMA-Exposition. Die große Mehrzahl konnte jedoch zwischen dieser Tumorlokalisation und DMA-Exposition keinen Zusammenhang herstellen (US EPA 2002, S.7-4).

Boffetta und Silverman (2001) kamen bei einer Auswertung von 21 epidemiologischen Studien auf ein relatives Risiko für Blasenkrebs von 1.29 (95 % KI 1.12-1.49) (HEI 1999). In einer Metaanalyse wurden ein relatives Risiko (RR) von 1.23 (95 % KI 1.12-1.36) bei exponierten Personen und für hohe Expositionen mit Dieselruß ein RR von 1.44 (95 % KI 1.18-1.76) ermittelt.

Studien aus der molekularen Epidemiologie beschäftigen sich hauptsächlich mit der Frage nach einem geeigneten Expositionsmarker beim Menschen und lassen keine konkrete Aussage zu.

4.6.2 Nicht kanzerogene Wirkungen

In drei Kohortenstudien, durchgeführt in den USA, wurden Aussagen zu Langzeiteffekten im Zusammenhang mit PM_{10} und $PM_{2,5}$ gemacht. Betrachtet wurden Morbidität und Sterblichkeit.

Die „Harvard-Sechs-Städte-Studie“ erfasste ca. 8000 Erwachsene über einen Zeitraum von 14-16 Jahren. Sulfat (wird als Marker für feine Partikel angesehen) und $PM_{2,5}$ zeigten die besten Korrelationen. Die Sterblichkeit in der durch $PM_{2,5}$ -Immissionen höchst belasteten Stadt lag 26% über der Sterblichkeit in der niedrigst belasteten Stadt (Dockery et al. 1993).

In der Untersuchung der ACS fanden Pope et al. (1995) einen Effekt assoziiert mit der Sulfatbelastung in der Luft. Lagen zusätzlich Messdaten für $PM_{2,5}$ -Immissionen vor, war die Korrelation damit am besten. Der Unterschied in der Sterblichkeit zwischen der Stadt mit den höchsten Immissionswerten und der Stadt mit den niedrigsten lag bei 17%. Es wurden 500.000 Erwachsene in 154 Städten über 7 Jahre beobachtet.

Beide Studien wurden von Krewski et al. (2000) reanalysiert, wobei sich die zuvor gefundenen Zusammenhänge bestätigten. Zusätzlich wurde eine Belastung mit SO_2 als schwach signifikanter Effekt festgestellt.

In der Weiterverfolgung der ACS-Studie wurde für kardiopulmonare Erkrankungen ein mittleres relatives Risiko (RR) von 1,09 (95 % KI 1,03-1,16) pro $10 \mu g PM_{2,5}/m^3$ ermittelt, was rechnerisch und statistisch zu einer Erhöhung der so verursachten Sterblichkeit von 6 % pro $10 \mu g/m^3$ Feinstaub führte (nach Pope et al. 2002). Die Signifikanz und biologische Relevanz ist wegen der Geringfügigkeit der Effekte fragwürdig und bedarf noch weiterer kritischer Prüfung.

Eine dritte Studie an 6500 nichtrauchenden Adventisten über 15 Jahre zeigte Zusammenhänge zwischen Gesamtsterblichkeit und insbesondere Sterblichkeit bei Personen mit Atemwegserkrankungen und PM_{10} bzw. Sulfat (Abbey et al., 1999, US-EPA 2002; s. auch Kappos et al. 2003).

4.7 Zusammenfassung des aktuellen Stands zur Toxikologie und Epidemiologie

4.7.1 Schlussfolgerungen aus Tiermodellen

Einfluss der Partikelgrößenverteilung

Aufnahme, Verteilung und Ablagerung eingeatmeter Partikel korrelieren mit dem aerodynamischen Partikeldurchmesser. Die toxische Wirkstärke der Partikel korreliert ebenfalls mit dem Durchmesser und noch besser mit der Partikeloberfläche. DMA-Rußpartikel mit Durchmessern von etwa 0,1 - 0,25 µm sind dem Feinstaubbereich PM_{2,5} zuzuordnen. Ultrafeine TiO₂-Partikel mit einem Durchmesser von ca. 20 nm zeigten im Tierexperiment eine stärkere Wirkung als Feinstaubpartikel in Bezug auf neoplastische und nicht-neoplastische Effekte.

Einflüsse der Dieselmotoremissionen (DMA)-Fraktionen

Pathologische Befunde im Tierversuch korrelieren mit der *Partikelfase*. Der biologisch beständige Partikelkern wurde als wesentlicher Faktor für die toxischen Wirkungen ausgemacht. Dies steht im Einklang mit Ergebnissen an anderen „inerten“, bio-beständigen Stäuben.

Die Wirkung der an die Partikel adsorbierten löslichen Stoffe (OC; SOF) ist trotz des hohen Anteils (bis 50 Masse-%) und ihrer Zusammensetzung (zum überwiegenden Teil kanzerogene PAK und zu einem geringeren Anteil ebenfalls kanzerogene Nitroaromaten) als gering einzuschätzen.

Die partikelfreie Gasphase von DMA war ohne Befund unter experimentellen Bedingungen in Tierversuchen (Ratte, Maus, Hamster). Eine Beeinflussung der Wirkstärke oder des Wirkungsspektrums von Partikeln durch Stoffe aus der Gasphase ist nicht zu erkennen.

Wirkungsprofil

Dieselschmutzpartikel zeigen im Tierexperiment ähnliche Wirkungen wie viele andere bio-beständige Feinstäube auch: Sie wirken – dosisabhängig - bei niedrigen Konzentrationen in der Lunge inflammatorisch, bei chronischer Entzündung verbunden mit kompensatorischer Zellproliferation, bei hohen Konzentrationen mit Kollagenbildung und Fibrose und langfristig Lungentumorigenese.

Allgemein können bio-beständige Feinstäube dosisabhängig gentoxische Wirkungen an Lungenalveolarzellen in Form von DNA-Basenmodifikationen (Anstieg von 8-

Hydroxyguanin) und Mutationen im p53-Tumorsuppressorgen auslösen, die ab einer unteren Exposition nicht mehr nachweisbar waren trotz noch messbarer Entzündungsreaktion. Neben den lokalen Wirkungen in der Lunge gibt es aus Tiermodellen Anhaltspunkte für systemische Effekte auf das Herz-Kreislaufsystem. Möglicherweise resultiert dies aus Wechselwirkungen von Partikeln mit dem unspezifischen Abwehrsystem des Körpers sowie einer Aufnahme von Partikeln in Blutbahn.

Wirkungsmechanismus

Die Aufnahme von Partikeln in die Lunge scheint im Lungengewebe primär eine stereotype Abwehrreaktionskette in Gang zu setzen: Phagozytose durch alveoläre Makrophagen, Bildung von Chemokinen. Entscheidend sind die dann auftretenden zellulären Entzündungsreaktionen, Ausschüttung von Wachstumsfaktoren mit nachfolgender Proliferation der Epithelzellen (Typ II Zellen), und/oder dazu parallel Bildung reaktiver Sauerstoff- oder Stickstoffspezies (chronischer „ROS-Burst“), die Mutationen hervorrufen. Beide Prozesse können einzeln oder zusammen ablaufen und zur Tumorbildung führen (Oberdörster 1997).

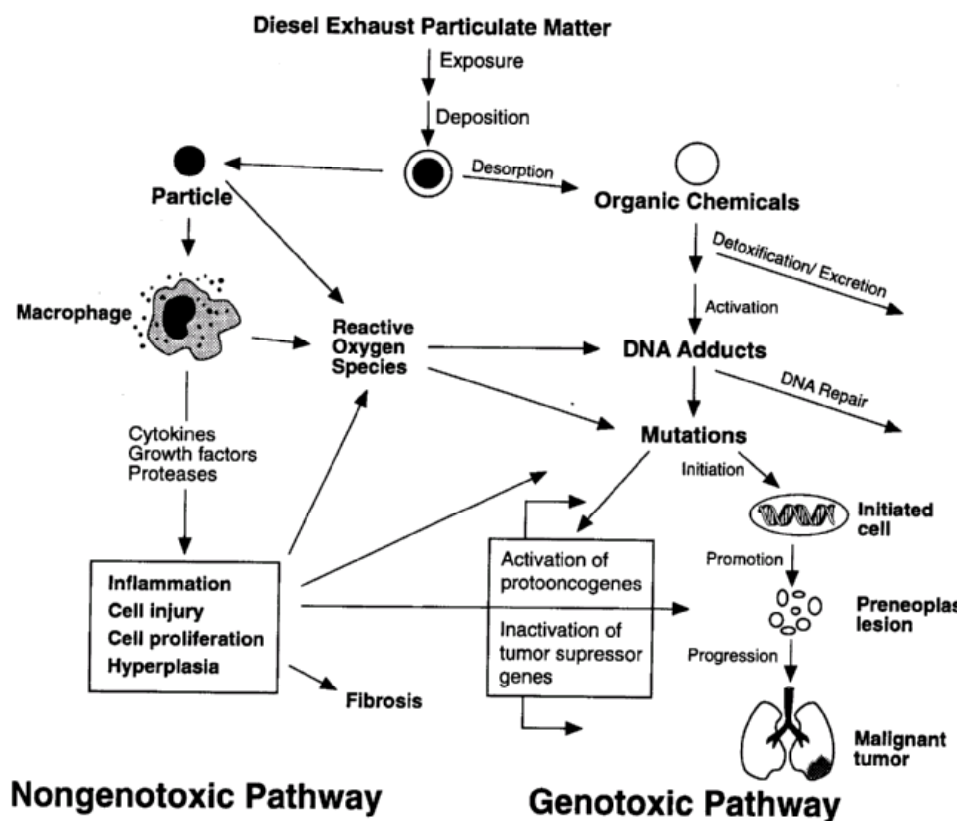


Abbildung 4.7-1: Vorgeschlagene Mechanismen zur Schädigung der Lunge durch Dieselpartikel (Nauss et al. 1995)

Als Ursache gilt eine Überladung der Lunge mit Partikeln, d.h. die Lungen Clearance durch alveolare Makrophagen ist stark eingeschränkt oder komplett ausgefallen (Morrow 1988). Da die Partikel nicht entsorgt werden und in der Lunge verbleiben, kommt es zur chronischen Entzündung in den Alveolen, die dann zur Bildung von Tumoren führen kann. Ohne das Auftreten von chronischer Entzündung wurden auch bei chronischer Inhalation von Partikeln mit Lungenüberladung keine Tumoren gebildet (Schulz 1996).

Tierspezifität

Unabhängig von physiologischen Besonderheiten, die im Detail unbekannt sind, antworten alle untersuchten Tierarten mit Entzündungsreaktionen und Gewebsveränderungen unterschiedlichen Ausmaßes auf die akute und chronische Exposition gegenüber Feinstaub. Nur die Ratte zeigt deutliche und reproduzierbare Lungentumorentwicklung, in abgeschwächter Form die Maus, der Hamster keine, nur epitheliale Hyperplasien. Die Unterschiede lassen sich mit unterschiedlichen Zielzell Dosen und/oder Intensitäten der Reaktion auf Fremdkörpereinwirkung erklären.

Das Ergebnis der physiologischen/anatomischen Unterschiede ist eine speziespezifische Empfindlichkeitsschwelle, die bei der Ratte niedrig, bei der Maus höher und beim Hamster am höchsten liegt. Die negativen Befunde im Kanzerogenitätstest mit Affen deuten zwar auf eine geringe Empfindlichkeit des Primaten hin, jedoch liegen nur wenige und nicht repräsentativ zu nennende Daten vor.

Die Befundlage am Tier spricht dafür, dass als primär zugrunde liegender Mechanismus der Partikel-bedingten Karzinogenese eine progressive Entzündungsabfolge abläuft, die bei hohen Partikelkonzentrationen das Abwehrsystem ständig fordert (vermutlich oxidative Stress-Situation und Sättigung normaler Prozess-/Reaktionswege) und schließlich überfordert. Die im Tierexperiment verwendeten hohen Dosen können darum nicht repräsentativ für den niedrigen, sehr wahrscheinlich nicht gesättigten Konzentrationsbereich sein. Eine Übertragung der tierexperimentellen Ergebnisse auf die Expositionssituation des Menschen erscheint daher kaum möglich.

Wirkkonzentrationen

Alle validen Studien, die mit Dieselmotorabgasen durchgeführt wurden, zeigten, dass Partikelkonzentrationen von $>2 \text{ mg/m}^3$ in der Ratte Lungentumoren induzierten. In Maus und Hamster traten unter entsprechenden Bedingungen keine Tumoren auf.

Ein nicht toxisch wirksamer Expositionsbereich wird mit $0,11\text{--}0,35 \text{ DMA mg/m}^3$ für die chronische Inhalation bei der Ratte angegeben (Bereich NOAEC). In diesen fällt auch ein Ergebnis am Meerschweinchen mit $0,25 \text{ mg/m}^3$ (UBA 1999).

Die niedrigsten wirksamen Partikel-Konzentrationen, die Entzündungsreaktionen in den Lungenalveolen und –bronchiolen hervorriefen (LOAEL), lagen nach chronischer Exposition bei $0,8 \text{ mg DMA/m}^3$ in der Ratte, der empfindlichsten Tierspezies (UBA 1999), also deutlich

unter dem experimentell nachgewiesenen, kanzerogenen Konzentrationsbereich von oberhalb 2 mg/m³.

Die Expositions-Wirkungskurven von acht Langzeitstudien an Ratten gehorchten am ehesten einer Null-Schwellenkonzentration von etwa 0,50 mg (DMA oder Ruß)/m³ (95 % KI 0,155 – 0,624 mg/m³), unterhalb der es zu keiner Lungentumorentwicklung in der Ratte kam, bezogen auf 30 Wochen Lebenszeit und Exposition (Meta-Analyse nach Valberg und Crouch 1999). Dieses durch die Einbeziehung einer hohen Tierzahl statistisch relativ gut abgesicherte Ergebnis spricht für einen nicht-linearen Verlauf der Dosis-Wirkungskurve bei fallenden Partikelkonzentrationen. Die beschriebene nicht-kanzerogene Schwelle liegt eindeutig im inflammatorischen Expositionsbereich der Ratte.

4.7.2 Schlussfolgerungen aus Erkenntnissen am Menschen

Nach vorherrschender Meinung der Fachwelt spiegeln gut durchgeführte und dokumentierte epidemiologische Untersuchungen eine Dosis-Wirkungsbeziehung zwischen beruflicher Exposition gegenüber Dieselmotorabgasen und Lungentumorrisiko wider. Diese Einschätzung wird von Valberg und Watson (2000) so nicht geteilt: Sie finden keine Übereinstimmung zwischen geschätzten Höhen der Exposition und dem berechneten Lungenkrebsrisiko: Die Expositionsschätzungen variieren um Größenordnungen, während sich das relative Risiko (RR) im sehr kleinen Bereich bewegt („RR cluster“).

Die biologische Relevanz des epidemiologischen Trends scheint vor dem Hintergrund der Tierbefunde eher gering zu sein oder spielt nur unter der Annahme einer viel höheren Empfindlichkeit des Menschen im Vergleich zur Ratte eine Rolle. Auch Beobachtungen, dass bei hoch exponierten Berufsgruppen (Kohlebergbau, Minenbergerbeiter) Lungenkrebs selten ist und vornehmlich auftritt, wenn Lungengewebe bereits entzündlich verändert ist (Fibrosen, Silikosen), scheinen diesen Zusammenhang wenig zu stützen. Bei der Beurteilung von Ergebnissen von diesen Berufsgruppen muss allerdings ein „Healthy-Worker-Effekt“ berücksichtigt werden.

Der Effekt ist im Grunde zu gering, als dass eine Assoziation, geschweige denn ein kausaler Zusammenhang, zu den Dieselmotorabgasimmissionen hergestellt werden könnte, besonders wegen fehlender eindeutiger Expositionsdaten über den vermeintlichen Auslöser und über andere überlagernde Effekte. Über den größten Störfaktor, das Rauchen, lagen in der Regel genauso wenig Expositionsangaben vor wie über die Höhe und Zeit der DMA-Expositionen, was ebenfalls Anlass zu Fehlklassifizierungen gegeben haben müsste (s. dazu auch MAK 1987).

Die Allgemeinbevölkerung ist gegenüber einem Gemisch aus Dieselmotorabgasen und Partikel aus anderen Quellen exponiert, deren Konzentrationen deutlich unterhalb der im Tierexperiment verwendeten und wirksamen Expositionen und unter den beruflichen Expositionen der Vergangenheit liegen. Die Mischexposition aus gasförmigen Substanzen, feinen und groben Partikeln und niedrige Konzentration schließen eine eindeutige kausale Zuordnung aus. Weiterhin scheint die Überlagerung mit flüchtigen reaktiven Stoffen bei niedrigen Partikelkonzentrationen der Umgebung weniger klar als unter experimentellen Bedingungen. Es gibt bisher keine verlässliche Messmethode, um die DMA-Partikelfraktion von den anderen Quellen abzugrenzen und zu quantifizieren. Auch Messungen von EC sind Störgrößen-behaftet.

Für die Allgemeinbevölkerung finden sich keine tragfähigen Hinweise auf eine Assoziation zwischen erhöhter städtischer, verkehrsbedingter TSP (von 5–50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und Zunahme der Lungentumorprävalenz. Laut USEPA (2002) geben die epidemiologischen Schlüsselstudien keine Anhaltspunkte für einen kausalen Zusammenhang zwischen der Höhe der Partikelimmissionen unter städtischen Lebensbedingungen und der Lungenkrebsmortalität.

Epidemiologische Studien weisen jedoch auf andere nicht kanzerogene Assoziationen zwischen dem Ausmaß von PM-Expositionen, Kurzzeit- und Langzeiteffekten insbesondere im städtischen Bereich hin: Diese umfassen Reizung der Atemwege, asthmatische Beschwerden, Verschlechterung bestehender Atemwegs- sowie Herz-Kreislauf-erkrankungen, aber auch Anstieg der Mortalität besonders bei vorgeschädigten Personengruppen.

Diese epidemiologischen Befunde gegenüber TSP wurden - zumindest für lokale Reiz- und Entzündungseffekte – auch im Tiermodell gesehen und haben auch auf dieser Grundlage eine gewisse Wahrscheinlichkeit und Plausibilität.

Doch die Beurteilung der Ursache-Wirkungs-Beziehung unter Umgebungsbedingungen ist spekulativ: Der Einfluss der Mischexposition gegenüber flüchtigen Reizstoffen, deren Konzentration parallel zur Schwebstaubkonzentration variieren, ist wenig untersucht. Eine eindeutige Dosis-Wirkungsbeziehung lässt sich auf der Grundlage der geringen gesundheitlichen Wirkungen nicht ablesen, selbst wenn die publizierten Relativen Risiken dies vortäuschen. Eine Assoziation zwischen DMA und den untersuchten Krankheitsbildern existiert nicht.

Die Gefahr einer physiologischen Beeinträchtigung der Lungenfunktion allein durch die in der Umgebung vorherrschende Höhe der Schwebstaubexpositionen scheint im allgemeinen gering zu sein: Aufgrund kinetischer Modellrechnungen unter Einbeziehung von Tierdaten und physiologischen Humanparametern würde ein signifikanter Abfall der Gesamt-Clearance oberhalb von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erkennbar, eine etwa 10-%ige Beeinträchtigung bei $0,4 - 0,5 \text{ mg}/\text{m}^3$ über 10 Jahre (Yu und Yoon, 1991, Abb. 19).

5 Risikoabschätzungen

Dieselmotoremissionen stellen eine potentielle Quelle einer Gefährdung des Menschen dar, bedingt einerseits durch Partikelbelastung, andererseits durch gasförmige und an Partikel gebundene Begleitstoffe. Die Komplexität des Abgasgemisches macht eine kausale Ursachenbeschreibung über beobachtete Effekte wegen sich überlagernder und womöglich sich verstärkender Wirkungen schwierig. Dies gilt insbesondere für eine fehlerbehaftete Kenntnis der Expositionslage, die bei den niedrigen Umweltkonzentrationen vorherrscht, deren mutmaßliche Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit aber zu beurteilen sind.

Im Folgenden werden die wichtigsten Risikobewertungen/-abschätzungen der Vergangenheit und der Gegenwart zu diesem Themenkomplex mehr oder weniger ausführlich, je nach Aktualität und öffentlichem Stellenwert, vorgestellt und diskutiert.

5.1 MAK-Kommission (1987)

In der MAK-Werte-Begründung von 1987 befasste sich das Gremium eingehend mit der Aussagekraft epidemiologischer Studien und verdeutlichte das Epidemiologie-Dilemma anhand einer Vergleichsrechnung auf der Grundlage von Inhalationsstudien an der Ratte unter folgenden Vorgaben:

- Tumorraten der Ratte bei 2 mg/m^3 betrage 2 %.
- Ratte und Mensch reagieren gleich empfindlich auf die Exposition gegenüber Dieselmotorabgas.
- Beim Mensch über 45 Jahre beträgt die Lungenkrebssterblichkeit 7 % (Ratte 1-1.5 %).

Dann würde eine Exposition gegenüber 2 mg/m^3 am Arbeitsplatz zu einer Erhöhung der Tumorraten um 2 % bei den Arbeitern führen, also insgesamt 9 %. Dies ergäbe ein relatives Risiko (RR) von 9 % dividiert durch 7 % = 1,3.

Um mit einer Wahrscheinlichkeit von 90 % tatsächlich eine statistisch signifikante Faktor-Krankheits-Assoziation nachzuweisen, bräuchte es bei einer Studiendauer über 5 Jahre mehr als 11000 Exponierte von 45 Jahren und älter. Da aber am Arbeitsplatz die tatsächlichen Konzentrationen eher unter $0,5 \text{ mg/m}^3$ gelegen haben dürften, sinke entsprechend das RR und steige der Bedarf an Exponierten. Selbst für einen Nachweis mit nur 50 %iger Wahrscheinlichkeit, würde die notwendige Zahl der Exponierten auf etwa 30000 steigen. Aussichten auf einen epidemiologischen Nachweis eines Anstiegs der Lungentumorfrequenz durch langfristige Exposition gegenüber Dieselmotorabgasen bestünden praktisch nur dann, wenn der Mensch wesentlich stärker reagieren sollte als die Ratte.

MAK-Bewertung (1987): „Aus den epidemiologischen Daten lässt sich (z.Zt.) keine quantitative Risikoabschätzung herleiten. Die durchgeführten Studien weisen weder einen statistischen oder gar ursächlich zu interpretierenden Zusammenhang nach, noch sind sie geeignet einen solchen auszuschließen.“

5.2 IARC (1989)

Dieselmotorabgase wurden als „wahrscheinliches Humankanzerogen“ (Gruppe 2A) („*probably carcinogenic to humans*“) eingestuft wegen positiver karzinogener Wirkung im Tierversuch und Verdachtsmomenten beim Menschen. Eine Neubewertung steht bevor.

5.3 WHO (1996)

Die WHO stuft vergleichbar ein (wahrscheinliches Humankanzerogen, positiv im Tierversuch). Aus Versuchen mit der Ratte resultierte ein Unit-Risk-Wert von $3.5 \times 10^{-5} \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Median aus 4 Ableitungen). Dagegen konnte aus den epidemiologischen Studien aufgrund der diffusen Datenlage kein Unit-Risk (UR) abgeleitet werden. (WHO 1996).

5.4 Valberg und Watson (1996)

Valberg und Watson (1996) fassten in ihrer Arbeit verschiedene Studien zur Unit-Risk-Abschätzung für Lungenkrebs beim Menschen, verursacht durch Dieselmotorabgase, zusammen. Alle Autorenteams verwendeten ein lineares Rechenmodell für Krebsentstehung ohne Schwelle und begründeten ihre Werte auf die Tumordaten aus dem Langzeitinhalationsversuch an Ratten von Mauderly et al. (1987). Die vorhergesagten Unit-Risk-Werte für lebenslange Exposition gegenüber $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Dieselabgas variierten um den Faktor 80, je nach verwendetem Rechenmodell („one hit“ oder „multistage“) für Dosis-Wirkungsbeziehungen, Wahl der Berechnungsgrundlage für die aufgenommene Dosis und Unterschied in der Extrapolation von der Ratte auf den Menschen (siehe Tabelle).

Tabelle 5.4-1: Studien zur Abschätzung der Wirkstärke von DMA bezüglich Lungenkrebs Erkrankungen beim Menschen

Quelle	Berechnungsgrundlage	Unit Risk (pro $\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Smith and Stayner (1991)	Konzentration in der Luft	1.5×10^{-4}
Hattis and Silver (1992)	Konzentration in der Luft	1.8×10^{-4}
	Beladung der Lunge	8.0×10^{-4}
Pepelko and Chen (1993)	Inhalierter Partikel/Körpergewicht	0.9×10^{-4}
	Partikelmenge/Lungenoberfläche	0.1×10^{-4}
OEHHA (1994)	Konzentration in der Luft	$1.2-3.4 \times 10^{-4}$
	Beladung der Lunge	$0.3-1.2 \times 10^{-4}$
USEPA (1994)	Partikelmenge/Lungenoberfläche	0.3×10^{-4}

Die US EPA sah sich aufgrund der unsicheren Datenlage im Bericht 2002 nicht in der Lage, einen Unit-Risk-Wert abzuleiten (US EPA 2002, siehe unten).

5.5 US EPA (2002)

Dieselmotorabgase wurden als „wahrscheinliches Humankarzinogen“ (Gruppe B1) eingestuft. Unsicherheiten bei der Übertragung tierexperimenteller Daten aufgrund des unklaren Wirkmechanismus und bei der Extrapolation aus dem Hochdosis- in den Niedrigdosisbereich (d.h. auf die Umwelt- und Arbeitsplatzsituation) waren so erheblich, dass von einer Einstufung als Humankarzinogen abgesehen werden musste. Die Lungentumorigenese an Ratten wurde nicht für die Bewertung des kanzerogenen Potentials beim Menschen als relevant erachtet. Aus diesem Gründen sieht die Behörde keine Möglichkeiten der Ableitung eines Unit Risk-Wertes.

Doch gibt es durchaus nach Einschätzung von US-EPA plausible Spezies-übergreifende Mechanismen im Bereich von niederen Konzentrationen, die zwar nicht ausreichen, um eine Überladung der Lunge herbeizuführen, die aber dennoch Gültigkeit für den Menschen haben könnten (US-EPA 2002, S. 7-137).

Überwiegend aufgrund der epidemiologischen Datenlage unterstellt EPA eine DMA-induzierte Kanzerogenese beim Menschen (US EPA 2002, S. 7-138/139; 7-140). Im Mittel könne ein relatives Risiko von 1,4 angenommen werden. Dieses bedeute, dass zusätzlich 2 % der von DMA-Emissionen betroffenen Arbeiter Lungenkrebs bekämen, wobei eine Lungenkrebshäufigkeit von 5 % die Hintergrundquote bildete (EPA 2002, S. 8-13/8-14). Das heißt: Von 1000 Menschen nimmt man an, dass 50 Personen Lungenkrebs während des Lebens bekommen. Von 1000 Arbeitern, die Dieselabgasemissionen ausgesetzt waren, sollen 70 Lungenkrebs bekommen (7 %), Differenz = 20 zusätzliche Krebsfälle durch Dieselmotorabgasemissionen = 2 %, was einer Zunahme der Fälle um 40 % entspräche.

Für die *nicht kanzerogenen* Wirkungen wurde mit Hilfe des Benchmark-Konzepts und unter Ableitung eines „Human-Equivalent“-NOAELs aus chronischen Untersuchungen mit Ratten ($\text{NOAEL}_{\text{HEC}} = 0,144 \text{ mg/m}^3$) und aus umfangreichen Tierdaten eine Referenzkonzentration (**RfC**) von $5 \mu\text{g/m}^3$ abgeleitet: $\text{NOAEL}_{\text{HEC}}/\text{UF} = \text{RfC}$, wobei der Unsicherheitsfaktor UF mit 30 angesetzt wurde (US-EPA 2002, S. 6-3/6-4; 6-16). Die RfC bedeutet dabei eine abgeschätzte Konzentration (Unsicherheit: eine Größenordnung), unterhalb der bei lebenslanger Exposition auch bei Subpopulationen keine nennenswerte Erhöhung nicht-maligner Erkrankungen erwartet wird.

5.6 Health Effects Institute/USA (HEI) 2003

HEI sieht die Notwendigkeit, ein Krebsrisiko für Dieselmotorabgasemissionen für den Menschen abzuschätzen, sieht sich aber momentan dazu nicht in der Lage. Die in der Literatur veröffentlichten Studien haben alle den Nachteil einer mangelhaften Bestimmung der Höhe der Dieselabgasemissionen. Zur qualitativen Risikoabschätzung waren die Expositionsdaten in den bisher veröffentlichten Studien zu ungenau. Umweltdaten für

Partikelbelastung wurden als Ersatz für individuelle Expositionen genommen, diese unterliegen allerdings örtlichen Schwankungen. Daneben sind „Confounder“ ein Problem, in erster Linie Rauchen, Nahrung, berufliche Belastung. Aus den vorliegenden Studien kann HEI keine Schwelle für nicht-kanzerogene und kanzerogene Effekte erkennen.

Aus Machbarkeitsstudien, durch HEI finanziell gefördert, ergab sich noch kein wirklich spezifischer Marker, um Dieselabgaspartikel von anderen Partikeln klar unterschieden zu können. HEI ist auch die Eindeutigkeit und Zuverlässigkeit der vorhandenen Marker für Gesamtdieselmotorabgas, wie z.B. EC, nicht ausreichend. Mehr als 50 weitere Emissionsquellen neben Dieselmotorabgas wurden bestimmt, molekulare Marker werden als aussichtsreich, aber aufwendig beschrieben. Auch die Aussagekraft für Dieselmotorabgas-bezogene Langzeiteffekte in den meisten Studien ist für HEI nicht ausreichend eindeutig. Jede der betrachteten Kohortenstudien hatte Beschränkungen, aber bei allen war die exakte Bestimmung der Expositionsdauer und Höhe der Emissionen problematisch.

HEI sieht noch weiteren Forschungsbedarf, um eine Risikoabschätzung vornehmen zu können.

5.7 Arbeitsgruppe „Krebsrisiko durch Luftverunreinigungen“ des Länderausschusses für Immissionsschutz (LAI 1991)

Eine Arbeitsgruppe des Länderausschusses für Emissionsschutz hat Ende der 80er Jahre die Ursachen für Lungenkrebserkrankungen näher untersucht und die Ergebnisse in einem Abschlussbericht 1991 vorgelegt. Anhand von Wirkungsdaten auf der einen Seite und Emissionsdaten auf der anderen Seite wurde abgeschätzt, dass folgende 7 Verbindungen für die luftgetragenen Schadstoffe von besonderer Bedeutung sind:

Arsenverbindungen, Asbest, Benzol, Cadmiumverbindungen, Dieselrußpartikel, PAK und 2,3,7,8-TCDD.

Die Jahresemissionen von Dieselrußpartikel hat die Arbeitsgruppe damals auf insgesamt ca. 70.000 Kilotonnen (kt) abgeschätzt, wobei Nutzfahrzeuge und Pkw mit 69.000 kt den weitaus überwiegenden Anteil stellen. Davon emittierten LKW und Busse mit 42 kt rund dreimal soviel wie die Pkws mit 13.000 kt. Zum damaligen Zeitpunkt betrug der Anteil der dieselbetriebenen Pkws ca. 15 %. Die Autoren merkten jedoch kritisch an, dass ihnen zum damaligen Zeitpunkt (1989) keine aktuellen Emissionsfaktoren für Pkw und Nutzfahrzeuge vorlagen, so dass ersatzweise auf Angaben in den älteren Berichten des Umweltbundesamts Nr. 7/87 (für Pkw) beziehungsweise Nr. 11/83 (für Nutzfahrzeuge) zurückgegriffen werden musste. Für die Autoren ergaben sich hieraus größere Unsicherheiten bei der Abschätzung der jeweiligen Emissionen³.

³ Im Bericht UBA 11/83 (UBA 1983) werden für leichte und schwere Nutzfahrzeuge Emissionsfaktoren für das Bezugsjahr 1980 auf der Grundlage eines Messverfahrens (Schwärzungszahl) angegeben. Ein Vergleich mit den heutigen Verdünnungstunnelmessungen ist uns nicht möglich. Zum Zeitpunkt der Veröffentlichung der Endfassung des LAI-Gutachtens lag das Bezugsjahr rund 10 Jahre zurück. Im Vergleich weist TREMOD für das Jahr 1989 Emissionen von 31 kto für Nutzfahrzeuge aus. LAI überschätzte die Emissionen um 35%.

Für die Abschätzung der Krebsrisiken in den ländlichen Bereichen, in städtischen Ballungsgebieten und an verkehrsbelasteten Schwerpunkten berechneten die Autoren das Krebsrisiko aus der Multiplikation der Unit Risk-Werte für die oben genannten Schadstoffe mit der jeweiligen Immissionskonzentration, die für Dieselruß wie folgt abgeschätzt wurde:

Ländlicher Bereich: 0,5 - 1,5 $\mu\text{g pro m}^3$ (0,9 $\mu\text{g/m}^3$ bei der Risikoberechnung verwendet)
Städtischer Ballungsraum: 5 – 10 $\mu\text{g pro m}^3$ (7,2 $\mu\text{g/m}^3$ bei der Risikoberechnung verwendet)
Verkehrsnaher Standort: 15 - 25 $\mu\text{g pro m}^3$

Die Autoren berechneten für diese Szenarien unter der Annahme eines Atemvolumens von 20m³/Tag wöchentliche Aufnahmeraten für Dieselruß in Höhe von bis zu 210 $\mu\text{g/Woche}$ beziehungsweise 1.400 $\mu\text{g/Woche}$ und 3500 $\mu\text{g/Woche}$ pro Person. Dies entspricht täglichen Aufnahmeraten pro Person von bis zu 30, 200 bzw. 500 $\mu\text{g Dieselruß pro Tag}$ für die o.g. Szenarien im ländlichen bzw. städtischen Raum.

Beim Unit Risk⁴ (UR) entschieden sich die Autoren für einen Wert von 7×10^{-5} , der aus 2 als valide angesehenen Inhalationsversuchen an der Ratte abgeleitet worden war. Da bei Goldhamstern ebenso wenig Lungentumoren gefunden wurden wie bei Ratten, die nur der Gasphase von Dieselabgas ausgesetzt waren, waren den Autoren die Hinweise auf Speziesunterschiede und eine Beteiligung unterschiedlicher Wirkmechanismen ebenso bekannt wie die große Spannweite der Unit Risk-Werte aus epidemiologischen Untersuchungen ($26-110 \times 10^{-5}$), die sämtlich als ungeeignet angesehen wurden.

Für die anderen Stoffe wurden ebenfalls UR-Werte verwendet. Auf dieser Grundlage berechneten die Autoren für ländliche Gebiete ein Risiko für Lungenkrebs Erkrankungen in Höhe von 1 : 5000 und für städtische Ballungsgebiete in Höhe von 1 : 1000. Für die Expositionssituation im städtischen Ballungsgebiet berechneten die Autoren weiterhin für Dieselrußpartikel mit 63 % einen weit überwiegenden Anteil des Gesamtrisikos. Der Anteil der Dieselrußpartikel am Gesamtrisiko betrug in ländlich geprägten Gebieten 42 %.

Insgesamt kamen die Autoren zu dem Schluss, dass das in Ballungsgebieten 5-fach erhöhte Lungenkrebsrisiko nicht hinnehmbar sei und abgesenkt werden müsse, damit zwischen Land- und Stadtgebieten vergleichbare Lebensumstände garantiert werden könnten. Aus Gründen der Machbarkeit wurde vorgeschlagen, generell ein Risiko in Höhe von 1 : 2500 anzustreben. Ein Zielwert in Höhe von 1 : 5000 erachteten die Autoren als nicht machbar, wenn die Bundesrepublik als Industriestandort erhalten bleiben soll. Aus dem Ziel der Absenkung des Risikos für Lungenkrebs Erkrankungen auf das Niveau von 1 : 2500 errech-

Allerdings war die generelle Einschätzung richtig und Nutzfahrzeuge sind nach TREMOD-Berechnungen auch heute noch die hauptsächlichen Emittenten mit einem Anteil von ca. 2/3 gegenüber 1/3 für die Pkws (BMU 2003).

⁴ Unit Risk: Einheitsrisiko [$1/(\mu\text{g/m}^3)$] ist das geschätzte Krebsrisiko eines Menschen nach konstanter lebenslanger (70 Jahre) Exposition gegenüber einer Konzentration von 1 μg des jeweiligen Stoffes/m³.

neten die Autoren die im Anhang 8.4 dargestellten Leitwerte für Immissionskonzentrationen inklusive desjenigen für Dieselrußpartikel (Leitwert Dieselpartikel: $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)

Die Autoren wiesen in ihrer Arbeit ausdrücklich auf zahlreiche und gravierende Unsicherheiten ihrer Abschätzung hin und stellten klar, dass die Verwendung von Unit Risk-Werten lediglich zur Prioritätensetzung herangezogen wird, aber nicht zur Ermittlung konkreter Krebsinzidenzen geeignet ist. Sie wiesen auch darauf hin, dass sie bei ihrer Abschätzung stets konservativ vorgehen und dass dementsprechend die tatsächlichen Risiken eher über- als unterschätzt worden sind, so dass eher der obere Rand des Risikobereichs und nicht etwa der Mittelwert angegeben worden ist. Abschließend wiesen die Autoren in ihrem Bericht von 1991 daraufhin, dass diese Unsicherheiten bei der Umsetzung der Ergebnisse der Arbeitsgruppe in gesetzgeberische Vorgaben und Verordnungen angemessen zu berücksichtigen ist.

Es ist anzumerken, dass wesentliche Grundannahmen des Gutachtens sehr konservativ gewählt und inzwischen auch überholt sind. Der Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU) wies bereits darauf hin, dass Pepelko und Chen (1993) mit 2,2 zusätzlichen Tumorfällen je 100.000 Einwohner ein rund 4-fach geringeres Risiko für Dieselruß ermittelten (SRU 1994). Die Unsicherheiten sind offenbar noch größer, denn die US EPA sieht sich auch nach langjähriger Untersuchung der Thematik außerstande, ein Unit Risk für Lungenkrebserkrankungen des Menschen durch Dieselruß anzugeben. Die tierexperimentelle Datenbasis ist aufgrund des speziellen Wirkmechanismus bei der Ratte nicht unumstritten und die Ergebnisse können nicht einfach auf den Menschen übertragen werden (US EPA 2002).

Diese Datenlage und die generelle Kritik, dass (1) Punktschätzungen bei Risikorechnungen eine Präzision vorspiegeln, die so nicht gegeben ist (oberer und unterer Wahrscheinlichkeitsbereich sollten angegeben werden) und dass (2) die multiplikative Verknüpfung mehrerer konservativer Annahmen zwangsläufig zu einer erheblichen Überschätzung des Risikos führen, werfen Fragen auf:

- Wie weit liegen die Risiken der Stadt- und Landbevölkerung tatsächlich auseinander, wie genau lassen sie sich bestimmen und voneinander abgrenzen?
- Wie groß war der Abstand vermutlich in 1990, und wie groß würde er heute geschätzt werden?

Die Datenqualität ist heute sehr viel verlässlicher, während für die Abschätzung von LAI lediglich einige wenige punktuelle Messergebnisse verfügbar waren. Insofern hatten die Arbeitsergebnisse von LAI einen orientierenden Charakter und es erscheint fragwürdig, diese weiterhin uneingeschränkt und ohne weitere Anpassungen als Grundlage administrativen Handelns zu nutzen.

5.8 Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU 1994)

Der Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU) hat in seinem Gutachten von 1994 das kanzerogene Wirkpotential der Abgase des Dieselmotors mit dem des Ottomotors (mit und ohne geregelten Drei-Wege-Katalysator) verglichen. Eingangsparameter waren Unit Risk-Werte für die als wesentlich erachteten Abgasbestandteile und halbquantitative Emissionsangaben zu Fahrzeugen aus den späten 1970er- bis frühen 1990er Jahren. Demnach war das krebserzeugende Wirkungspotential der Dieselmotorabgase rund 20fach höher als bei Ottomotoren mit Katalysator und rund 5-fach höher, wenn der Katalysator fehlte. Entscheidend waren dabei die Partikelemissionen des Dieselmotors, wobei auch bei dieser Abschätzung große Unsicherheiten bezüglich des Unit Risk-Wertes bestanden. Dementsprechend groß fiel die Schwankungsbreite des berechneten Partikel-Wirkungspotentials aus. Beim Dieselmotor war dies 3,35 bis 15,42 (Tab. 5.8-1).

Tabelle 5.8-1: Berechnung von Wirkpotentialen anhand gemessener Emissionen und Unit Risk-Faktoren (Fahrzeuge ca. 1978-1990, „Mitte der 1980er Jahre“) (SRU 1994, Tab. III.8)

Vergleich der Wirkungspotentiale von Emissionen aus Ottomotoren mit und ohne Katalysator und aus Dieselmotoren

	UNIT RISKS [1/($\mu\text{g}/\text{m}^3$)]	OTTOMOTOR OHNE KATALYSATOR		OTTOMOTOR MIT KATALYSATOR		DIESELMOTOR (gemäß Tab. III.7)	
	zusätzliche Krebsfälle bei kontinuierlicher Exposition gegenüber 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Emission [$\mu\text{g} / \text{mi}$]	Emission x Unit Risk	Emission [$\mu\text{g} / \text{mi}$]	Emission x Unit Risk	Emission [$\mu\text{g} / \text{mi}$]	Emission x Unit Risk
PARTIKEL	1 - 4,6 x 10 ⁻⁵	25080	0,25 - 1,15	10340	0,1 - 0,48	335240	3,35 - 15,42
BENZOL	0,1 - 1,08 x 10 ⁻⁵	84060	0,084 - 0,91	10510	0,01 - 0,11	5710	0,00571 - 0,0617
PAK (B[a]P)	7 x 10 ⁻²	6,28	0,44	0,39	0,027	7,64	0,535
FORMALDEHYD	1,3 x 10 ⁻⁵	38000	0,494	3500	0,0455	13040	0,17
ACETALDEHYD	2,2 - 8 x 10 ⁻⁶	10000	0,022 - 0,08	2000	0,0044 - 0,016	5050	0,011 - 0,04
TCDD	1,4	1,95 x 10 ⁻⁶	2,78 x 10 ⁻⁶	1,95 x 10 ⁻⁶	2,73 x 10 ⁻⁶	2,23 x 10 ⁻⁶	3,12 x 10 ⁻⁶
NITROAROMATEN (1-NITROPYREN)	2,2-17 x 10 ⁻⁶	0,3	0,4x10 ⁻⁶ - 3,4x10 ⁻⁶	<0,1	<1,7x10 ⁻⁶	11	24x10 ⁻⁶ - 187x10 ⁻⁶
SUMME WIRKUNGS- POTENTIAL (arithm. Mittel)			2,18		0,45		10,15
RELATIVES WIR- KUNGSPOTENTIAL (bez. auf Diesel)			21,5 %		4,4 %		100 %

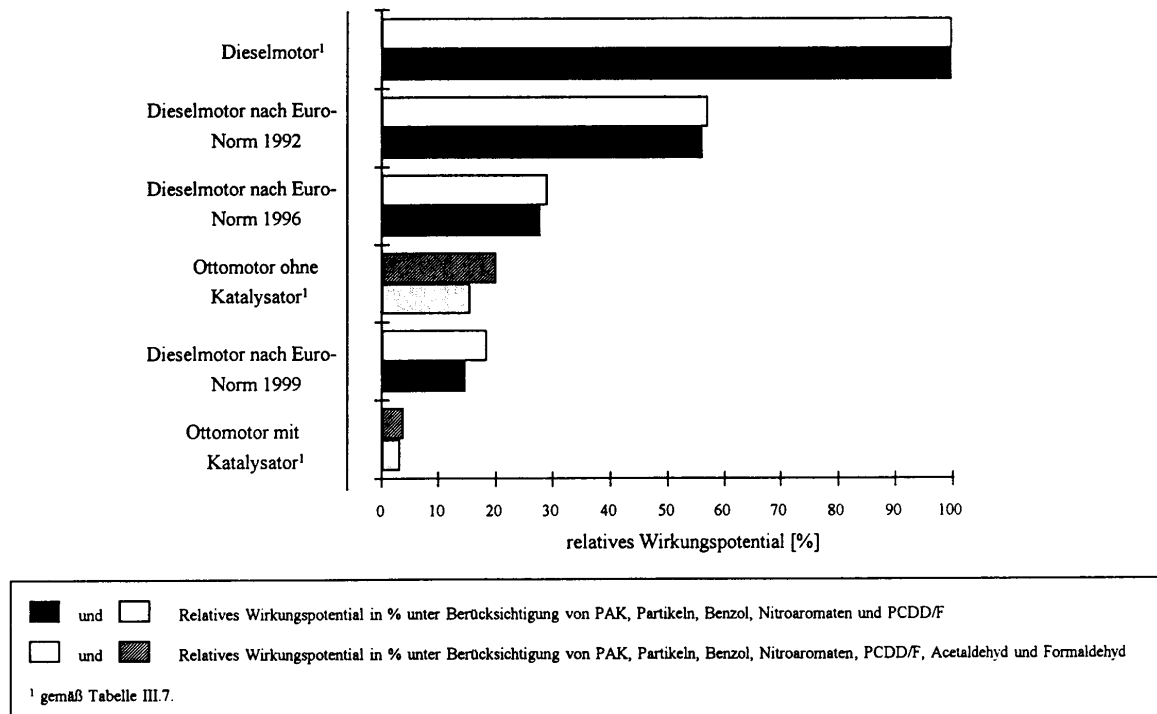
Die Tabelle dient ausschließlich dem Vergleich von Wirkungspotentialen und nicht von absoluten Risiken. Es wurden folgende einschränkende Annahmen gemacht:

1. Es wurden die Substanzgruppen ausgewählt, die wegen ihrer kanzerogenen Wirkungsstärke einerseits und der Massenanteile andererseits als die führenden Komponenten angesehen werden können.
2. Für die Substanzgruppen PAK, PXDD/F, Nitroaromaten und Aldehyde wurden Leitsubstanzen gewählt, die nach Wirkungsstärken und Menge typisch für die Gruppe sind.
3. Das Ausbreitungsverhalten der Stoffe nach der Emission bleibt unberücksichtigt.
4. Die Unit Risks wurden auf die Emission bezogen, was für den Vergleich zulässig ist, da sie die Unterschiede in der kanzerogenen Potenz der einzelnen Substanzklassen wiedergeben.
5. Die Unit Risks wurden mit den Emissionsmengen multipliziert und dann zu einem Gesamtwirkungspotential addiert, obwohl dieses Vorgehen, je nach tatsächlicher Wechselwirkung der Stoffe im Organismus, zu einer Über- oder Unterschätzung des Risikos führen kann.
6. Dieselmotorpartikel und Partikel aus Ottomotoren wurden mit dem gleichen Unit Risk belegt, obwohl sie sich in ihrer Zusammensetzung unterscheiden.

Die Unit Risks wurden z. T. vom LAI übernommen, das Unit Risk für 1-Nitropyren stammt aus der Veröffentlichung von SAITOH et al., 1990, die Unit Risks für Acet- und Formaldehyd von der US-EPA (1990a, 1990b). Die Emissionswerte sind den Veröffentlichungen von LIES et al., 1988 (Partikel, Benzol B[a]P, Acetaldehyd und Formaldehyd), EWERS U., 1991 (1-Nitropyren) und ESSERS et al., 1992 (TCDD) entnommen.

Davon ausgehend wurden Minderungspotentiale geplanter Abgasnormen bis 1999 abgeschätzt. Für den Dieselmotor ergab das ca. -80 % und >-90 % für den Ottomotor mit Katalysator (Abb. 5.8-1).

Einfluß geplanter europäischer Abgasnormen auf das relative Wirkungspotential der Emissionen aus Dieselmotoren im Vergleich zu Emissionen aus Ottomotoren mit und ohne Katalysator



SRU, 1994

Abbildung 5.8-1: Hochrechnung kanzerogener Wirkpotentiale ausgehend von „Mitte der 1980er Jahre“ unter Berücksichtigung geplanter Grenzwertabstufungen (SRU 1994).

Gegenüber LAI (1991) verwendete der SRU für die Partikel einen wesentlich geringeren Wert für das Unit Risk (1,4- bis 7-fach niedriger), und bestehende Unsicherheiten wurden durch die Angabe eines Wertebereiches anstelle eines einzigen Zahlenwertes angezeigt. In einem Nachtrag zur Standardsetzung (SRU 1994, S. 328 ff) wurde das konservative Vorgehen des LAI kritisiert. Bei sonst gleichen Vorgaben wie bei der LAI-Arbeitsgruppe leitete der Sachverständigenrat einen Leitwert von $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Dieselpartikel ab. Dieser Wert liegt wegen der geringeren Unit Risk-Werte annähernd 4-fach höher als derjenige ($1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) der LAI-Arbeitsgruppe. (SRU 1994).

Für das Ergebnis solcher Berechnungen ist daher eine genaue Kenntnis des Unit Risk-Werts von entscheidender Bedeutung und es stellen sich die gleichen grundsätzlichen Fragen, wie sie bereits im vorhergehenden Abschnitt 5.7 formuliert wurden. Daran ändert auch die Anmerkung des SRU nichts, dass in der Regel als anzustrebende Zielgröße nicht Risiken von 1:2.500 oder 1:5.000 sondern solche in der Größenordnung von 1: 100.000 diskutiert werden (SRU 1994, S 332).

5.9 Umweltbundesamt 1999

Das Umweltbundesamt geht davon aus, dass infolge des ständig steigenden Anteils an Diesel-Pkw die Partikelemissionen weiter und stärker zunehmen als erwartet, wenn nicht entsprechend gegengesteuert werde (UBA 2003). Das Umweltbundesamt sieht in DMA ein „wahrscheinliches humanes Kanzerogen“. Wesentlich sei die Frage, wie hoch das von niedrigen Umweltkonzentrationen ausgehende Risiko einzuschätzen sei.

Es wird von den Autoren in UBA (1999) die These vertreten, dass neben der epidemiologischen Evidenz auch die Ergebnisse der Inhalationsversuche an Ratten von Bedeutung für umweltrelevante Expositionen des Menschen seien: Die Rattenbefunde seien nicht als ein Hochdosisphänomen aufzufassen, und eine Wirkschwelle könne darum nicht angenommen werden.

Die Autoren von UBA (1999) rechnen durch Bemühung einer Akkumulationstheorie vor, dass das kanzerogene Potential von Partikeln in umweltrelevanten Konzentrationen über die Lebenszeit nicht zu vernachlässigen sei (S. 94):

Die Akkumulation von 2 mg DE pro Lunge (Ratte, über 2 J.) führe rechnerisch zu einer Tumorfrequenz von 1 % (nach Daten von Heinrich et al. 1995). Dies wird aber durch Ergebnisse eben derselben Studie nicht gestützt (UBA 1999, S. 73): Bei 0,8 mg/m³ war die Lungenretention 6,3 mg, aber es wurde kein Tumor in 198 Tieren gefunden. Nach UBA (1999) wären über 6 Tumoren zu erwarten gewesen.

Die Hypothese einer linearen Akkumulation von Partikeln über die Zeit, wonach es auch schon bei niedrigen Umweltkonzentrationen zu einer kritischen Anreicherung von Partikelgehalten im Lungengewebe kommen könne, ist nicht stichhaltig: siehe kinetische Modellrechnungen, basierend auf experimentellen Daten und physiologischen Humanparametern nach Yu und Xu 1987 sowie Yu und Yoon 1991. Danach kommt es bei einer DMA-Exposition von 50 µg/m³ zu keiner merklichen Reduktion der Lungenclearance und keiner Anreicherung von Partikeln in der Lunge (s. auch US EPA 2002).

Die Autoren von UBA (1999) leiten für den Menschen ein Unit Risk (UR) von 1×10^{-3} und für die Ratte ein UR von 1×10^{-4} pro µg/m³ ab (Partikelkern 70 % der Gesamtpartikelmasse) (UBA 1999, Tabelle 4-2 S. 266). Der Wert des gewählten Unit Risks für den Menschen liegt damit rund 50-fach höher als der von Pepelko und Chen abgeleitete Wert von $2,2 \times 10^{-5}$ (1993).

Auf der Grundlage dieser UR-Werte und Emissionsfaktoren werden relative kanzerogene Potenzen für Diesel-Pkw berechnet und dem Otto-Pkw gegenübergestellt. Resultat dieser Betrachtung ist ein Rückgang der kanzerogenen Potenz beim Diesel-Pkw um ca. 90 % (Vergleich ECE R 15/04 zu EURO 4) bzw. um 99 % (EURO 4 mit Partikelfilter). Mit dem Partikelfilter wären die kanzerogenen Potenzen von Diesel- und Otto-Pkw auf vergleichbar

niedrigem Niveau. Allein die Einführung des Filters unter EURO 4 würde zu einer weiteren Senkung um ca. 97 % führen (UBA 1999; s. Anhang 3.4, Abb. 5-3 unten).

Damit wiederholt das Umweltbundesamt im Grunde die Rechnungen, die früher bereits von der LAI-Arbeitsgruppe (1992) und dem SRU (1994) vorgestellt wurden. Der Vergleich des UBA fällt stärker zu Ungunsten des Dieselmotors aus, weil mit einem höheren UR von 100×10^{-5} gegenüber den früheren Arbeiten gerechnet wurde ($7,2 \times 10^{-5}$ bei LAI; 1 bis $4,6 \times 10^{-5}$ bei SRU; $2,2 \times 10^{-5}$ bei Pepelko und Chen). Demgegenüber sieht die US EPA auch nach intensiver Bearbeitung der Thematik keine Möglichkeit, ein UR für den Menschen abzuleiten (US EPA 2002).

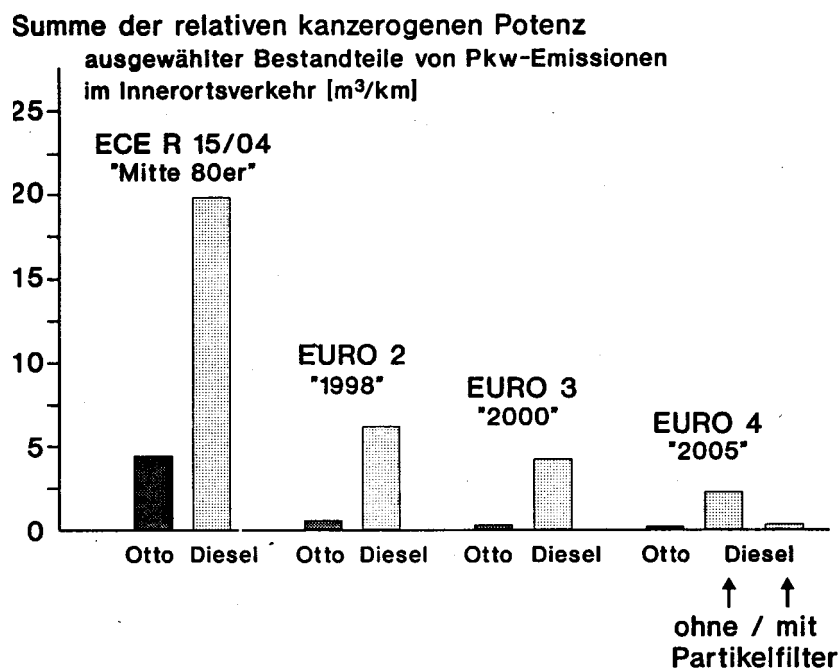


Abbildung 5.9-1: Hochgerechnete kanzerogene Potenzen im Innerortsverkehr für verschiedene Grenzwertstufen (UBA 1999, Abb. 5.3)

5.10 Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN

Schwerpunkt dieses Berichts ist die Beschreibung der Entwicklung der Umweltverschmutzung durch Schwebstaub in Deutschland sowie des Kenntnisstands über Schadwirkungen aus epidemiologischen und experimentellen Untersuchungen. Die mögliche Kanzerogenität von Schwebstaub ist nicht Gegenstand dieses Berichts und wird nur beiläufig erwähnt (KRdL 2003; Angaben zu Seitenzahlen beziehen sich auf die Publikation von Kappos et al. 2003).

Neben möglichen und nachgewiesenen lokalen Wirkungen wird besonderes Gewicht auf mögliche PM-induzierte systemische Effekte auf das Herz-Kreislaufsystem gelegt. Die epidemiologische Befundlage sei eindeutig (S. 264/268): „substantielle Evidenz für eine positive Assoziation zwischen Langzeit-Exposition gegenüber feinen Partikeln und der Gesamtmortalität, der kardio-pulmonalen Mortalität und der Lungenkrebsmortalität“. Es bestehe ein linearer Zusammenhang zwischen Exposition und gesundheitlicher Wirkung (S. 273). Für eine erhöhte Lungenkrebsmortalität sei die Evidenz jedoch wesentlich schwächer (S. 268).

Eine Übertragung der Beobachtungen der zumeist amerikanischen Studien auf europäische Verhältnisse wird im *qualitativen* Sinne als gerechtfertigt angesehen (S. 270). Basierend im wesentlichen auf den Ergebnissen der ACS-Studie (Pope et al. 1995, 2002), betrage das zusätzliche Risiko für $PM_{2,5}$ (Annahme $PM_{2,5} = PM_{10}/2$) für die kardio-pulmonale Mortalität 2 % weltweit und 1 % für Westeuropa (S. 271).

Die biologische Plausibilität der epidemiologischen Befunde werde durch toxikologische Untersuchungen gestützt, jedoch hätten diese noch keinen entscheidenden Beitrag zu der Frage erbracht, welche Partikeleigenschaften und Mechanismen die Ursache für die beobachteten Assoziationen seien (S. 264). Aufgrund kontrollierter Kurzzeituntersuchungen an Freiwilligen mit Dieselmotorabgasen und Untersuchungen am Tier sei anzunehmen, dass der Mensch empfindlicher mit entzündlichen Reaktionen reagiere als die Ratte (S. 265). Als Ergebnis stellt die Kommission fest:

„Insgesamt ergibt sich aus den vorhandenen Studien in Hinblick auf die Partikelgröße, dass grobe, feine und ultrafeine Partikel Gesundheitseffekte auf die Mortalität und die Morbidität zeigen. Die Datengrundlage ist am überzeugendsten für feine Partikel ($PM_{2,5}$) und PM_{10} . Im Hinblick auf die Quellen sind Partikel aus Verbrennungsprozessen am wichtigsten. Für grobe Partikel ($PM_{10-2,5}$) ist offen, wie stark biogene Prozesse (Endotoxine, Schimmelpilze) beitragen. Erdkrustenpartikel, die vom Wind verweht werden, tragen wahrscheinlich sehr wenig zu Gesundheitseffekten bei.“ (Kappos et al. 2003, S. 272)

Wichtig ist der Arbeitsgruppe, die ultrafeine PM-Fraktion (UF) getrennt von den gröberen Staubpartikeln zu beurteilen. Es wird hervorgehoben, dass zwar die Anzahl der Ultrafeinpartikel über die Jahre konstant geblieben sei (ca. $10^7/m^3$), aber der relative Anteil an der gesamten Partikelzahlkonzentration zugenommen habe (S. 262 / S. 272). Die Höhe

des UF-Masseanteils an der Gesamtpartikelfraktion wird nicht genannt, aber es wird auf die relativ zur Masse große Oberfläche dieser Partikelspezies hingewiesen (S. 263).

Allerdings sei die Rolle von UF-Partikeln weitgehend unklar (S. 266). Denn wegen ihrer geringen Masse könne man „spekulieren“, dass sie wahrscheinlich auch nur ein geringes toxisches Potential darstellten und kein großes Reservoir für lösliche toxische Stoffe bilden könnten (S. 267).

US EPA komme zu der Bewertung, dass neue epidemiologische Ergebnisse zeigten, dass Gesundheitseffekte mit UF-Partikeln assoziiert seien, aber nicht notwendigerweise stärker als für andere feine PM-Komponenten (S. 272).

Diese neueren epidemiologischen Daten sucht man in dem Bericht vergeblich. Auch gibt es in dem Artikel keine sonstigen Hinweise darauf, dass die umweltrelevanten UF-Partikel-Konzentrationen überhaupt an den beobachteten Gesundheitswirkungen beteiligt sind.

Auf der Grundlage von Berechnungen zur Lebenszeitverkürzung (S. 271), kommt die Kommission zu dem Schluss, „schon kleine Reduktionen der PM-assozierten respiratorischen und kardio-vaskulären Erkrankungen würde eine große Zahl von Fällen vermeiden. Die sehr jungen und die sehr Alten ebenso wie Personen mit niedrigen sozioökonomischen Status sind offenbar besonders stark betroffen von den Auswirkungen der Schwebstaubexposition.“(S. 271).

Es bleiben folgende Punkte zu dieser Arbeit festzuhalten:

- Die Rolle, die *Dieselfuß* spielen könnte, ist ungeklärt, zumal in den epidemiologischen Untersuchungen zwischen Dieselmotoremissionen und partikulärer Fraktion nicht differenziert wurde.
- Für eine Beteiligung von UF-Partikeln an einer Auslösung oder Verstärkung der beschriebenen Krankheitsverläufe beim Menschen gibt es keine Anhaltspunkte.
- Eine gesundheitsbezogene Begründung dafür, dass bereits „kleine“ Reduktionen in der Partikelkonzentration unter deutschen Verhältnissen große Wirkung auf den Gesundheitsstatus der Bevölkerung oder bestimmter Gruppen haben würde, wird nicht gegeben.
- Es ist unklar, was eine „kleine“ Reduktion ist. Die Berechnungsgrundlage für diese Aussage bedarf einer kritischen Prüfung auf ihre Aussagekraft und Tragfähigkeit.

5.11 Risikoabschätzung Wichmann (2003)

Im Auftrag des UBA sollte abgeschätzt werden, welche positive gesundheitliche Auswirkung durch den großflächigen Einsatz von Dieselfiltern in Dieselfahrzeugen zu erwarten sei. Ergebnis: Der vorzeitige Tod von 0,6 bis 3,3 % (Mittel: 1,8 %) aller Todesfälle in Deutschland gingen auf Kfz-Abgase von Dieselfahrzeugen zurück und könnten durch den Einsatz von Partikelfiltern größtenteils vermieden werden.

Die Eingangsdaten stammen aus der ASC-Studie USA (Pope et al. 1995, 2002). Weiterhin stützt Wichmann sich auf Ergebnisse einer „Dreiländerstudie“ (Frankreich, Schweiz, Österreich) (Künzli et al. 2000, 2001) und daran angelehnte Hochrechnungen für Deutschland (Lambrecht et al. 1999) (S. 23 – 25). Diese beiden Studien verwendeten auch die USA-Quellen. Das heißt: Alle Berechnungen benutzten die errechneten relativen Risiken („Effektschätzer“) aus der ACS-Studie sowie eine untere Schwellenkonzentration („Grundbelastung“) von $PM_{7,5}$ $\mu g/m^3$, unterhalb der das Risiko als vernachlässigbar angenommen wird: PM_{10} -Fraktion bei Künzli et al. (2000), S. 23; $PM_{2,5}$ -Fraktion bei Wichmann 2003, S. 31). Die einzige Variable, die noch als länderspezifisch angesehen werden kann, ist die Höhe der Staubkonzentrationen in den jeweiligen Regionen oder Ländern.

Angenommene Risiken

Für seine Berechnungen hat Wichmann die nachfolgenden Risiken angenommen.

Tabelle 5.11-1: Adjustierte Relative Risiken (RR) und 95 %-Konfidenzintervalle für die Mortalität, bezogen auf eine Veränderung von $10 \mu g/m^3$ $PM_{2,5}$ (Wichmann 2003)

Todesursache	1979-1983	1999-2000	Durchschnitt
Alle	1,04 (1,01-1,08)	1,06 (1,02 -1,10)	1,06 (1,02 -1,11)
Kardiopulmonal	1,06 (1,02 -1,10)	1,08 (1,02 -1,14)	1,09 (1,03 -1,16)
Lungenkrebs	1,08 (1,01-1,16)	1,13 (1,04-1,22)	1,14 (1,04 – 1,23)

(adjustiert für Alter, Geschlecht, Rasse, Rauchen, Ausbildung, Familienstand, Körpergewicht, Alkoholkonsum, berufliche Belastung, Ernährung)

Die Durchschnitt-RR hat Wichmann von Pope übernommen (Pope et al. 2002, Tab. 5).

Die Tabelle 5.11-2 listet weitere Annahmen und Eingangsdaten auf, die in die Rechnung eingeflossen sind.

Tabelle 5.11-2: Eingangsdaten in das Rechenmodell (Bundesrepublik Deutschland 2001)

Mittlere Belastung PM ₁₀	25 µg PM ₁₀ /m ³	(Mittel Stadt, Land)
Mittlere Belastung PM _{2,5}	15 µg PM _{2,5} /m ³	0,6 x PM ₁₀ angenommen
Mittlere Belastung (Diesel)	3 µg PM _{2,5} /m ³	(20 % von PM _{2,5} -Fraktion)
Potential für Reduktion Durch Partikelfilter	- 3 µg/m³	Angenommener Dieselfiltereffekt
Mittlere Belastung nach Filter	12 µg PM _{2,5} /m ³	Rest aus anderen Quellen
„Risikolose Grundbelastung“	7,5 µg PM _{2,5} /m ³	angewendet von WHO 2002
Risikobehafteter Rest-PM _{2,5} - Staub (ohne Diesel)	4,5 µg PM _{2,5} /m ³	12 – 7,5
Potentieller prozentualer Dieselfiltereffekt	(15-7,5-3)/7,5 x 100 = 40 %	40-%ige Reduktion von PM _{2,5} = 40-%ige Reduktion der angeblich PM-assozierten Todesfälle

Die Rechnung

Aus den Angaben für 10 µg/m³ von Pope et al. (2002) ergeben sich die Risikoschätzer für Todesraten bei Zunahmen von 1 µg PM_{2,5}/m³. Diese werden auf die angenommene Reduktion von PM_{2,5} von 3 µg/m³ durch Dieselfiltereinsatz hochgerechnet:

Tabelle 5.11-3: Abschätzung der absoluten Zahlen vermeidbarer vorzeitiger Todesfälle

	absolut	%-Anteil durch Reduktion = „Vermeidungspotential“ (95-% KI)	Mittlere absolute Abnahmen an Todesfällen (95-% KI)
Gesamtsterblichkeit (D)	800000	3 x 0,6 = 1,8 % (0,6 – 3,3 %)	14400 (4800-26400)
Kardiopulmonale Sterblichkeit	460000	3 x 0,9 = 2,7 % (0,9 – 4,8 %)	12420 (4140-22080)
Lungenkrebssterblichkeit	40000	3 x 1,4 = 4,2 % (1,2 – 6,9 %)	1680 (480-2760)

Auf der Grundlage von Wichmanns Annahmen ergibt sich rein rechnerisch ein mittleres „Vermeidungspotential“ durch den Einsatz des Dieselpartikelfilters von 18 vorzeitigen Todesfällen/a pro 100000 Einwohnern bezogen auf eine Reduktion des PM_{2,5}-Anteil um 20 %, d.h. um 3 µg/m³ von 15 µg/m³ (Tabelle 5.11-4).

Tabelle 5.11-4: Häufigkeitsbetrachtung, bezogen auf eine Population von 100000 Einwohnern (mittlere Exzessrisiken nach Wichmann verwendet):

auf 100000 Einwohner		1000 Tote/a (ca. 1 %/a)	vor Filter
<i>Alle Ursachen</i>		982 Tote/a	nach Filter (-1,8 %)
Mittlere Differenz (95-%KI):		minus 18 Tote/a (6 – 33)	nach Filter
<i>Kardiopulmonale Ursache</i>		575 Tote/a	vor Filter
		559 Tote/a	nach Filter (-2,7 %)
Mittlere Differenz (95-%KI):		minus 16 Tote/a (5 – 28)	nach Filter
<i>Lungenkrebs</i>		50 Tote/a	vor Filter
		48 Tote/a	nach Filter (-4,2 %)
Mittlere Differenz (95-%KI):		minus 2 Tote/a (0,6 - 3,3)	nach Filter

Die Vermeidung der vorzeitigen Todesfälle führt lt. Wichmann zu einer Lebenszeitverlängerung von lediglich 1 bis 3 Monaten. Diese relativ kurze Spanne resultiert daraus, dass vorwiegend alte und vorgeschädigte Personen betroffen sind.

Zu dem Verfahren sind allerdings folgende kritische **Anmerkungen** zu machen:

- Die Einführung einer wirkungslosen Grundlastschwelle von $7,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bedeutet den Bruch eines Prinzips, dass es nach allgemeiner wissenschaftlicher Meinung für die Beurteilung von *kanzerogenen* Stoffen einzuhalten gilt. Es gibt demnach keine Wirkungsschwelle für kanzerogene Stoffe. Hier wurde sie aber stillschweigend eingeführt, obgleich in Übereinstimmung mit der WHO. Dies bedeutet rechnerisch, dass die PM-bedingte Lungenkrebshäufigkeit mit Schwelle deutlich niedriger ausfällt als ohne. Würde man nicht so verfahren, käme man auf vermeintlich Partikel-bedingte Lungenkrebshäufigkeiten, die bar jeder Realität sind: Dieser Anteil belief sich dann auf etwa 10-11 jährliche Krebsfälle pro 100000 = 21 % von 50 tatsächlichen Lungenkrebsfällen.
- Es wurde die besagte Wirkungsschwelle auf das Partikelauftreten angewendet, aber nicht entsprechend anteilig auf die Dieselpartikel-Belastung. Die mittlere Dieselpartikel-Exposition von $3,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ging zu 100 % in die Rechnung ein, während nur 50 % der PM-Partikel berücksichtigt wurden. Letztlich dürfen auch nur 50 % der Dieselbelastung als „wirksam“ in die Rechnung eingehen, es sei denn, man unterstellt eine deutlich höhere Wirksamkeit von Dieselpartikeln.
- Für die Berechnungen wurden regionale Immissionskonzentrationen aus den Neuen Bundesländern aus 1997 auf die Fläche der Bundesrepublik übertragen. Neuere Daten aus Ost und West liegen vor, blieben aber unberücksichtigt.

- Auch in den Neuen Bundesländern sind die Immissionen seit 1997 zurückgegangen. Die Datengrundlage ist daher überholt.
- Die Übertragung punktueller oder regionaler Messergebnis auf die Fläche der Bundesrepublik führt zu fehlerhaften Berechnungen.
- Die Zuordnung von Immissionen zu bestimmten Quellen wie. z.B. Dieselfahrzeuge ist außerordentlich schwierig und fehlerträchtig (UBA 1999a).

Schlussfolgerungen:

- Das Ergebnis ist wegen methodischer Schwächen fragwürdig.
- Die Abschätzung beruht auf einer unsicheren Datenbasis und unhaltbaren Annahmen sowie zweifelhaften Rechenoperationen, die insgesamt dazu führen, dass die PM₁₀-Wirkung künstlich verkleinert, die Dieselwirkung aber relativ verstärkt wird. Trotz dieser Manipulation fällt die mutmaßlich PM₁₀-bedingte Lungenkrebshäufigkeit außerordentlich hoch aus.
- Wenn das aber so ist, dann müssen auch die für Dieselpartikel berechneten Häufigkeiten viel zu hoch sein, weil ja alle Rechenoperationen auf der angeblich epidemiologisch nachgewiesenen, krebserregenden Potenz von PM₁₀ oder PM_{2,5} aufbauen, von denen Dieselpartikel eine Teilmenge sind.
- Im übrigen wird es statistisch kaum möglich sein, das von Wichmann berechnete und wahrscheinlich zu hohe Vermeidungspotential nachzuweisen und zu messen, es sei denn, es gibt unter den höheren Belastung bis zu 50 µg/m³ „Cluster“, für die auf diese Weise ein kausaler Zusammenhang oder zumindest eine Assoziation zur Belastung durch Diesel-stämmige PM_{2,5} hergestellt werden kann.
- Die schwach ausgeprägten Tendenzen bei Pope et al. (1995, 2002) bedürfen im übrigen einer kritischen Prüfung auf ihre Tragfähigkeit als solche und auch in Bezug auf ihre Ursache.
- Es sei darauf hingewiesen, dass US EPA (2002) aus den Daten von Pope (1995) kein signifikantes Risiko für Lungenkrebs abgeleitet hat, allerdings Hinweise auf eine Mortalitätszunahme aufgrund kardiopulmonaler Erkrankungen anerkannte. Ein Blick auf die Zahlen der Relativen Risiken erhebt Zweifel daran, ob diese differenzierte Aussage überhaupt möglich ist (s. oben). Eine differenziertere Aussage lässt sich aber evtl. am Vergleich der jeweiligen Häufigkeiten festmachen, weil die Zahl der kardiopulmonalen Fälle um etwa den Faktor 10 höher liegt als die der Lungenkrebsfälle. Damit sollte eine genauere Bewertung für die ersteren Erkrankungen möglich sein. Auch die Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN stellte fest, dass die Assoziation zwischen Schwebstaub und

Lungenkrebsinzidenz weniger klar ausgeprägt sei als für die kardiopulmonalen Erkrankungen (s. Kappos et al. 2003, s. Kapitel 5.10).

- Es sei ferner darauf hingewiesen, dass zwar ein Konfidenzintervall für die belasteten Testgruppen angegeben wird, jedoch nicht für die Vergleichsgruppen, die definitionsgemäß 1,0 gesetzt sind, aber naturgemäß ebenfalls statistischen Schwankungen unterworfen sind.
- Es ist ferner zu berücksichtigen, dass sich die Datenbasis vornehmlich auf amerikanische Verhältnisse der 80er Jahre bezieht und sich nur mit großen Vorbehalten auf die Emissions- und Expositionsbedingungen in Deutschland von 2001 übertragen läßt (vergl. auch Rösli et al. 2003).

Alle genannten Einschränkungen und Fehlerquellen bringen es mit sich, dass Versuche einer quantitativen Abschätzung dieser Art zwangsläufig zum Scheitern verurteilt sind.

5.12 Risikoabschätzung nach Rösli et al. (2003)

In einer jüngeren Risikoabschätzung über den hypothetischen Einfluss von PM_{10} auf die Lungentumorhäufigkeit in der Schweiz kommen Rösli et al. (2003) zu dem Ergebnis,

- dass auf der Grundlage epidemiologischer Daten aus amerikanischen Untersuchungen im Mittel etwa **13 Lungenkrebsfälle** pro Jahr und 100000 Einwohner (im Bereich Basel) auf die Wirkung von PM_{10} -Partikeln zurückgeführt werden können;
- dass sich aber auf der Grundlage von Unit-Risk-Werten aus Tierdaten für verschiedene relevante Einzelbelastungen nur etwa **1 Fall** pro 100000 Einwohner ergibt.

Zwischen den Abschätzungen, die sich auf der einen Seite auf epidemiologische Daten und auf der anderen Seite auf „Unit-Risk“-Werte (UR) stützen liegt also mindestens ein Faktor von 10. Die aus Rattendaten abgeleiteten UR-Werte würden das Krebsrisiko vermutlich unterschätzen. Jedoch führe der epidemiologische Ansatz zu einer sehr hohen Lungenkrebshäufigkeit.

Die jährliche Gesamtlungenkrebsmortalität aufgrund des Krebsregisters wird mit **50/100000** in der Schweiz angegeben, d.h. rechnerisch 13 PM_{10} -bedingte Lungenkrebsfälle gegenüber 50 Lungenkrebsfällen, bezogen auf alle Ursachen (also ca. 25 % aller Fälle durch PM_{10} bedingt).

Berechnungsgrundlage

Rösli et al. (2003) beziehen ihre relativen Risiken für Lungenkrebs durch Belastung mit PM_{10} aus den drei großen epidemiologischen Studien aus Amerika: der Harvard-Sechs-Städte-Studie, der Studie der American Cancer Society (hier: Messparameter $PM_{2,5}$ -Immissionen wurde für Basel auf PM_{10} umgerechnet) und der Adventistenstudie. Für jede Studie wurde ein Exzessrisiko errechnet und daraus dann der Mittelwert bestimmt.

Die Exposition im Raum Basel wird mit einem Emissionsdaten-gestützten Modell auf $25 \mu g/m^3$ PM_{10} als Mittelwert berechnet. Eine Hintergrundbelastung von $7.5 \mu g/m^3$, die keine Effekte auf die Gesundheit bewirkt, wurde angenommen. Die durch Luftverschmutzung verursachten Lungenkrebsfälle wurden dann mit einer Formel berechnet, die neben dem Exzessrisiko, der mittleren Exposition mit PM_{10} minus der Hintergrundbelastung auch den Anteil der Bevölkerung >30 Jahre (= zwei Drittel der Basler Bevölkerung) berücksichtigt.

Für Dieselaabgas wurden aus Unit-Risk-Werten geometrische Mittelwerte aus publizierten Werten bestimmt, einer für die Ratte und einer für den Menschen, die dann gemittelt wurden.

Tabelle 5.12-1: Herkunft der Unit Risk-Werte für DMA (Röösli 2003)

Unit Risk für DMA (1/10 ⁵ Personen/ 1µg/m ³) (70 Lebensjahre)	LAI	IARC	EPA	OEHHA	Geom. Mittelwert
Ratte*	7	3.4	6	6	5.2
Mensch*	-	-	-	8.1-240	37

* UR-Wert berechnet als geometrisches Mittel aus einem Unit Risk-Wert aus Rattenstudien und aus einer Humanstudie (Arbeitsplatzexposition)

Ergebnisse

Die verschiedenen Rechenansätze sind weiter unten in der Tabelle 5.12-2 gegenübergestellt, wobei einige Berichtigungen gegenüber den Angaben vorgenommen wurden: Bei Röösli et al. (2003) werden „Unit Risks“ (UR) aus Human- und Tierdaten miteinander vermischt (s. Legende zur Tabelle 5.12-1 und Röösli (2003), Tab. 4). Dadurch kommt es zu einer Verzerrung des Diesel-bedingten Krebsrisikos im Vergleich zu den anderen Beiträgen auf Tierbasis (zu hoch; Röösli, Tab. 4). Für die Berechnung in der folgenden Tabelle wird entweder nur auf die Tierdaten oder auf die Humandatenbasis zurückgegriffen.

Man sieht, dass die auf *Humanbasis berechneten* Häufigkeiten 2 – 3 Lungenkrebsfälle pro 100.000 Einwohner (4-6 % aller Lungenkrebsfälle) für Dieselpartikel-Exposition ergeben, während sich auf der Basis von *Tierdaten* nur etwa 0,3 pro 100.000 ergeben. Die Ergebnisse weichen also um etwa den Faktor 10 voneinander ab.

Anmerkungen

Es sind folgende kritische Anmerkungen zum Verfahren zu machen:

- **Zur Anwendung der epidemiologischen Daten**

Röösli et al. (2003) gingen in ihrer Arbeit nicht darauf ein, dass die US EPA keine Möglichkeiten zur Ableitung eines Unit Risk-Wertes aus epidemiologischen Studien sieht (US EPA 2002)

Es wurden Ergebnisse amerikanischer Untersuchungen auf Europa übertragen und zur Berechnung verwendet: Auffallend ist, dass die allgemeine Lungenkrebshäufigkeit in der Sechs-Städte-Studie über 100 pro 100.000 Personen war, also mehr als doppelt so hoch wie bei den als Nichtraucher bekannten Adventisten und doppelt so hoch wie im Basler Raum (s. Röösli, Tab. 1). Es liegt der Verdacht nahe, dass vor allem der Einfluss des Rauchens außerordentlich hoch gewesen sein könnte und zusätzlich, wie der Name der Studie sagt, eine nur städtische Belastung vorlag, die höher liegt als auf dem Land.

Tabelle 5.12-2: Vergleich hochgerechneter Lungenkrebsinzidenzen mit tatsächlichen Inzidenzen lt. Krebsregister

Exposition	Mittlere Konzentrationen	Datenbasis		Ergebnis
		Eingangsgröße für Schätzung	Quelle	Järl. Lungenkrebs-häufigkeit [%]
A. Tatsächliche Inzidenzen				
Alle Ursachen	----		Krebsregister/-statistik	50/10 ⁵ [100 %]
B. Abschätzungen und Ursachenforschung				
(1) aus epidemiologischen Untersuchungen				
PM ₁₀	(25 – 7,5) µg/m ³ = 17,5 µg/m ³	Mittel 11,5/10 ⁵ pro Jahr pro 10 µg/m ³	Amerik. Studien (1, 2, 3)	13,3/10 ⁵ (Personen >30 J.) [26,5 %]
DMA (Anteil an PM ₁₀)	3,8 µg/m ³ (Röösli, Tab. 3)	Mittel 11,5/10 ⁵ pro Jahr pro 10 µg/m ³	Amerik. Studien (1, 2, 3)	2,8/10 ⁵ (Personen >30 J.) [5,6 %]
DMA (Anteil an PM ₁₀)	3,8 µg/m ³ (Röösli, Tab. 3)	37/10 ⁵ pro 1 µg/m ³ lebenslang (Röösli, Tab. 2)	Ableitung UR aus amerik. Studie (Diesel, Beruf)	2/10 ⁵ [4 %] (Röösli, Tab. 4)
(2) aus Tierdaten				
DMA (Anteil an PM ₁₀)	3,8 µg/m ³ (Röösli, Tab. 3)	5,2/10 ⁵ (Röösli, Tab. 2)	Ableitung UR (Rattenstudien)	0,28/10 ⁵ [0.6 %] (Röösli, Tab. 4)
DMA (Anteil an PM ₁₀) + andere relevante Belastungen (Tab. 2/3)	Siehe Röösli, Tab. 3	5,2/10 ⁵ (Röösli, Tab. 2)	Ableitung UR (Rattenstudien)	ca. 0,5/10 ⁵ [1 %]

1, 2, 3 = ACS (Pope et al. 1995, 2002); Sechs-Städte-Studie (Dockery et al. 1993); Adventisten-Studie (Abbey et al. 1999).

Die mittlere PM-bedingte Lungenkrebshäufigkeit über alle amerikanischen Studien war 11,5 pro 100.000 und diente als Eingangsgröße für die Berechnung der mutmaßlichen Schweizer Fälle. Rechnerisch ergeben sich dann aber 20 statt 13 Fälle pro 100.000. Die wahrscheinlichste Erklärung könnte sein, dass Röösli et al. (2003) die Häufigkeit auf die über 30-Jährigen bezogen (2/3 Anteil an der Bevölkerung) und durch Multiplikation mit 2/3 auf 13,3 kamen (Rechnung: $11,5 \times 17,5/10 \times 0,66 = 13,3$). Wenn der Wert so zustande kam, dann ist dies ein offensichtlicher Gedankenfehler: 20 bezieht sich auf 100.000 Personen (Gesamtbevölkerung). Da im Alter die Lungenkrebshäufigkeit zunimmt, kann die Lungenkrebsrate pro 100.000 Personen (>30 Jahre) nicht kleiner sondern nur größer als 20 sein.

Es wurde eine nicht weiter erläuterte Schwelle von 7,5 µg/m³ für PM₁₀ angenommen, unterhalb der nicht mit gesundheitlichen Effekte nicht zu rechnen sei. Die Einführung einer nicht wirksamen Hintergrundbelastung von 7,5 µg/m³ bedeutet der Bruch eines Prinzips, das es nach allgemeiner wissenschaftlicher Meinung für die Beurteilung von kanzerogenen

Stoffen einzuhalten gilt. Es gibt danach keine Wirkungsschwelle für kanzerogene Stoffe. Hier wurde sie aber stillschweigend eingeführt, obgleich in Übereinstimmung mit der WHO. Dies bedeutet rechnerisch, dass die PM-bedingte Lungenkrebshäufigkeit mit Schwelle deutlich niedriger ausfällt als ohne. Würde man einen linearen Verlauf ohne Schwelle annehmen, berechnen sich unrealistisch hohe Partikel-bedingte Lungenkrebshäufigkeiten: Dieser Anteil belief sich nach den Annahmen von Rösli et al. auf 28-29 jährliche Krebsfälle pro 100000 = 58 % von 50 tatsächlichen Lungenkrebsfällen!

Im Falle der Annahme einer Wirkungsschwelle für Partikel sind außerdem die entsprechenden Anteile der Dieselpartikel an der jeweiligen Fraktion zu beachten. Die mittlere Dieselruß-Exposition von $3,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ging zu 100 % in die Rechnung ein, während nur 70 % der PM-Partikel berücksichtigt wurden. Letztlich dürfen auch nur 70 % der Dieselbelastung als „wirksam“ in die Rechnung eingehen, es sei denn, man unterstellt eine deutlich höhere Wirksamkeit von Dieselrußpartikeln.

Die Übernahme von amerikanischen Daten zur Risikoberechnung bei europäischen Studien stellt ein Problem dar, da in Amerika eine andere Belastungssituation vorliegt (weitaus weniger Diesel-Pkw) und die „Confounder“ mit Sicherheit andere sind als in Europa.

Schlussfolgerungen:

Die Abschätzung beruht auf einer unsicheren Datenbasis und unhaltbaren Annahmen sowie unklaren Rechenoperationen, die insgesamt dazu führen, dass die PM₁₀-Wirkung niedrig gerechnet wird, die Dieselabgaswirkung aber relativ verstärkt wird. Trotz dieser Manipulation fällt die mutmaßlich PM₁₀-bedingte Lungenkrebshäufigkeit außerordentlich hoch aus.

Wenn das aber so ist, dann müssen auch die für Dieselpartikel berechneten Häufigkeiten viel zu hoch sein, weil ja alle Rechenoperationen auf der angeblich epidemiologisch nachgewiesenen, krebserregenden Potenz von PM₁₀ aufbauen, von denen Dieselpartikel eine Teilmenge sind.

▪ Zum Vergleich der epidemiologischen Datenbasis mit der Tierdatenbasis

Beide Ansätze sind mit großen Unsicherheiten behaftet und können keine hohe Präzision beanspruchen. Der Widerspruch zwischen beiden Betrachtungen ist nur scheinbar und löst sich in der Schwankungsbreite der Methode auf. Es ist zudem zweifelhaft, ob man Lebenszeitdaten einer Tierart wie z.B. die Lungentumorraten durch das Lebensalter des Menschen dividieren kann, um so zu einer Schätzung der jährlichen Krebshäufigkeit des Menschen zu gelangen.

Rösli et al. (2003) gingen in ihrer Arbeit nicht darauf ein, dass die US EPA keine Möglichkeiten zur Ableitung eines Unit Risk-Wertes aus tierexperimentellen Studien sieht und auch die Übertragung der Ergebnisse aus Rattenstudien auf den Menschen als nicht sinnvoll erachtet (US EPA 2002)

6 Zusammenfassung

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens wurden die folgenden Fragestellungen geprüft:

6.1. Qualitative und quantitative Veränderungen der Dieselmotoremissionen im Laufe der letzten 40 Jahre

6.2. Toxikologische Bewertung der veränderten Emissionen

Darüber hinaus wurde Stellung genommen zu:

6.3. Verfügbarkeit von Partikelfiltern

6.1 Qualitative und quantitative Veränderungen der Dieselmotoremissionen im Laufe der letzten 40 Jahre

Messmethoden und Testzyklen haben sich im betrachteten Zeitraum (1960 bis heute) national und international ständig verändert, so dass ein direkter Vergleich nicht ohne weiteres möglich ist. Heute sind diese Methoden weitestgehend standardisiert und dementsprechend vergleichbar. Vergleiche lassen sich anstellen, wenn die Methodik innerhalb eines Berichtes beibehalten wird und Ergebnisse über größere Zeiträume bereitgestellt werden, oder wenn die Messmethoden ähnlich sind und auf gemeinsame Bezugspunkte wie Grenzwert oder Emissionsfaktor abgehoben wird.

Daraus ergibt sich folgendes:

- Für die Emissionen der 60er Jahre gibt es nur wenige verlässliche Angaben (Kapitel 3.4.2.3.2)
- Die Emissionen von Pkw-Dieselmotoren haben seit 1970 stark abgenommen. Mit der Einführung des OxiKats ab EURO 2 ergaben sich verminderte Emissionen von CO und HC.
- Dadurch hat sich auch der Anteil des organischen Kohlenstoffs (OC) an der Partikelmasse vermindert. Das betrifft z. B. die partikelgebundenen PAKs und Nitro-PAKs.
- Die Emissionen der Nutzfahrzeugmotoren wurden ebenfalls stark vermindert. Der relative Anteil der Inhaltsstoffe des Abgases von Nfz-Dieselmotoren hat sich seit 1960 nicht so sehr wie beim Pkw geändert.
- Die vorgenannten Emissionsminderungen betreffen zunächst alle regulierten Parameter (Partikelmasse, NO_x, CO, HC), aber auch die nicht regulierten Parameter (OC, PAK, Nitro-PAK, Aldehyde, SO₂).
- Seit Einführung der europäischen Grenzwerte und unter Berücksichtigung der nationalen Prognosen ergeben sich seit „Mitte der 1980er Jahre“ je nach Substanz Emissionsminderungen zwischen 65 und 95% (Tab. 6.1.1-1)

Tabelle 6.1-1: Verbliebene Dieselmotoremissionen seit Einführung der europäischen Grenzwerte. Nach Angaben aus UBA (1999) berechnet, vergl. Tabellen 3.4.2-1 und 3.4.2-2. Die Angaben für PAK und Nitro-PAK entstammen den Arbeiten von Kohoutek et al. (1999) und Sawyer und Johnson (1995). Als Bezugsbasis für Kohlenmonoxid dient die Grenzwertstufe EURO 1.

		ECE R 15/04 „Mitte 80er“	EURO 4 bzw. EURO IV (2005)
Partikel	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	8 % 10 %
Partikelkern	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	11 % 10 %
NO _x	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	30 % 20 %
Benzol	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	13 % 35 %
Benzo[a]pyren	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	12 % 35 %
Formaldehyd	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	17 % 35 %
Acetaldehyd	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	14 % 35 %
1,3-Butadien	Diesel-Pkw Diesel-Bus	100 %	15 % 35 %
Kohlenmonoxid	Diesel-Pkw Diesel-Bus	EURO 1 100 %	15 % <15 %
PAK	Diesel-Pkw LKW (US)	100 %	< 5 % 15 %
Nitro-PAK	Diesel-Pkw LKW (US)	100 %	< 5 % 5 %

Für die Partikel ergibt sich folgendes:

- Das Maximum der Größenverteilung von Dieselpartikeln liegt bei etwa 70 bis 100 nm. Es bestehen bezüglich des Partikeldurchmessers keine wesentlichen Unterschiede zwischen Pkw und Nutzfahrzeugen (Kapitel 3.4.4).
- Die Partikelgrößenverteilung ist von der Motortechnik und Abgasreinigung weitgehend unbeeinflusst und es wird auch bei neueren Motoren keine Verschiebung zu geringeren Durchmessern beobachtet (Kapitel 3.4.4).
- Bei den Nanopartikeln mit Durchmessern <30 nm handelt es sich weitestgehend um Sekundärpartikel ohne Rußkern, also nicht um Diesel(ruß)partikel (Kapitel 3.4.5 und 3.6.1.2.2). Solche Partikel stammen generell aus Verbrennungsprozessen und sind nicht typisch für Dieselmotoren (Kapitel 3.4.4 und 3.4.5). Diese Partikel bestehen häufig aus Wasser, Kraftstoff oder Sulfat. Erhöhte Zahlen werden mit schwefelhaltigen Kraftstoffen gemessen oder wenn Partikelfilter verwendet werden (Kapitel 3.4.3 und 3.7.3.2). Wegen ihrer geringen Biobeständigkeit besitzen diese Partikel kein oder nur geringes kanzerogenes Potential.
- Bisherige Emissionsminderungen resultierten bei Pkws aus innermotorischen Maßnahmen und aus der Abgasnachbehandlung, und bei Nutzfahrzeugen weitgehend aus innermotorischen Verbesserungen. Dies gilt sowohl für die Zeit vor der europäischen Grenzwertsetzung als auch seit Einführung der EURO-Grenzwerte (Kapitel 3.4.2).
- Ein verminderter Schwefelgehalt im Dieselmotorkraftstoff hat zur Reduktion der Partikelmasse wesentlich beigetragen (Kapitel 3.5.3). Neuere Methoden der Entstickung des Abgases erfordern eine weitere Absenkung auf weniger als 10 ppm Schwefel (Kapitel 3.7.1.1).
- Die Emissionsminderungen bei Pkw und Nutzfahrzeugen führte nach Berechnungen des UBA mit dem Emissionsmodell TREMOD trotz gesteigerter Fahrleistung in den letzten 20 Jahren zum Rückgang der Gesamtemissionen um 50 - 60 %. Für die nächsten 10 bis 15 Jahre wird eine weitere Verminderung der Emissionen um ca. 50 % prognostiziert (Kapitel 3.5).

6.2 Aktuelle toxikologische Bewertungen der veränderten Emissionen

Die Verminderung der Inhaltstoffe von Dieselmotorabgasen ist erheblich und lässt generell eine entsprechende Verminderung des damit verbundenen gesundheitlichen Risikos erwarten. Bewertungen der US-Environmental Protection Agency (US EPA) und des Umweltbundesamtes kommen zu den folgenden Ergebnissen, die durch eine eigene Bewertung ergänzt wird.

US-Environmental Protection Agency (US EPA):

Die amerikanische Umweltbehörde legte im Mai 2002 nach rund 10-jähriger Bearbeitungsdauer einen sehr umfangreichen Abschlußbericht zur Bewertung von Dieselmotorabgasen (DMA) mit folgendem Ergebnis vor (US EPA 2002).

- Dieselmotorabgase werden als „Wahrscheinliches Humankanzerogen“ (Gruppe B 1) angesehen.

Wegen des unklaren Wirkmechanismus bestehen Unsicherheiten bei der Extrapolation vom Hochdosisbereich im Tierversuch auf Immissions- oder Arbeitsplatzkonzentrationen sowie der Übertragung tierexperimenteller Daten auf den Menschen. Aus diesen Gründen konnte kein Unit Risk-Wert abgeleitet werden.

Für nicht-kanzerogene Wirkungen wurde für den Menschen aus Tierversuchen eine Referenzdosis von 5 µg Dieselpartikel/m³ abgeleitet. Dies bedeutet, dass bei lebenslanger Exposition unterhalb dieser Referenzdosis auch bei Subpopulationen keine signifikante Erhöhung nicht-maligner Erkrankungen erwartet wird. Die von Wichmann (2003) auf der Basis der Abschätzung von Lambrecht (UBA 1999a) abgeschätzte mittlere PM_{2,5}-Immissionskonzentration liegt mit 3,1 µg/m³ unter dieser Referenzdosis.

Die Behörde bezieht ihre Aussagen auf Emissionen aus der Zeit vor 1995. Eine Überprüfung dieser Einschätzung ist vorgesehen, wenn sich die Zusammensetzung der DMA verändert. Das amerikanische Gegenstück zur deutschen MAK-Kommission, die ACGIH, hat daraufhin ihre geplante Überprüfung von DMA ausgesetzt. Eine Neubewertung durch IARC ist geplant.

Umweltbundesamt:

Das Umweltbundesamt legte im Sommer 2003 Vorschläge für neue Grenzwerte für Diesel-Pkw und –Nutzfahrzeuge vor und forderte die Einführung des Partikelfilters (UBA 2003). Der Vorschlag des Umweltbundesamtes sieht vor:

- Eine 90 %ige Absenkung des massebezogenen Partikelgrenzwertes für Pkw (EURO 5, ab 2010) und Nutzfahrzeuge (EURO V, ab 2008).
- Eine 50 %ige Absenkung der NO_x-Emission für Nutzfahrzeuge (EURO VI, ab 2010) gegenüber EURO V.
- Verschärftes Prüfverfahren für Dieselmotoren.
- Option auf Regelungen zur Begrenzung der Partikelanzahl zu einem späteren Zeitpunkt

Das Umweltbundesamt begründet diese Vorschläge auf unterschiedliche Weise:

- **Politisch:** Vorgaben der Umweltministerkonferenz, Verweis auf die 22. BImSchV und auf EG-Richtlinien.
- **Wissenschaftlich:**
 - o **Ökotoxikologie:** Klimawirksamkeit von DMA (UBA 2003)
 - o **Toxikologie:**
 - Kanzerogenität von Dieselpartikeln (UBA 2003, UBA 1999)
 - Kanzerogenität: Forderung, die Risiken von Landbevölkerung (1:5000) und Stadtbevölkerung anzugleichen (LAI-Gutachten 1991)
 - Relativer Anstieg von Ultra-Feinpartikeln (Kreyling 2003)
 - Verfrühte Mortalität: Gutachten Wichmann (2003)
- **Technisch:** Verfügbarkeit von Partikelfiltern für Dieselfahrzeuge

Die Argumentation des UBA ist allerdings in verschiedenen Punkten schwer nachvollziehbar:

Kanzerogenität und Wirkstärke von DMA

Trotz der von der EPA dargestellten Probleme bei der Ableitung eines Unit Risks für DMA wird unter Bezugnahme auf UBA 2/99 (1999) für Partikel ein relativ hohes Unit Risk von 100×10^{-5} abgeleitet. Demgegenüber rechneten SRU (1994), Pepelko und Chen (1993) und die LAI-Arbeitsgruppe (1991) mit Unit Risk-Werten von 1 bis $7,2 \times 10^{-5}$. Die Ableitung des UBA bezieht sich direkt auf das Gutachten der LAI-Arbeitsgruppe (1991) (UBA 2003, S. 21 und S. 29), das sich auf die Ende der 1980er Jahre bestehende begrenzte Datenlage stützt. Die Autoren selbst kennzeichneten ihre Arbeit als konservative und orientierende Abschätzung für eine Prioritätensetzung, und gehen von einer Überschätzung der tatsächlich bestehenden Risiken aus (LAI 1991).

Der SRU wies bereits 1994 darauf hin, dass das Risiko evtl. um den Faktor 4 zu hoch geschätzt sei und dass wegen der bestehenden Unsicherheiten für Berechnungen eine Bandbreite von Unit Risk-Werten anstelle eines Einzelwertes besser geeignet sei. Die Unsicherheiten bestehen auch heute noch (US EPA 2002).

Nichtkanzerogene Wirkungen von Partikeln

Das Umweltbundesamt stützt sich hierzu auf die Arbeiten von Wichmann (2003) und von Kreyling et al. (2003).

Wichmann (2003) versuchte, die Immissionskonzentration der Rußpartikel aus Dieselmotoren abzuschätzen und berechnete daraus mit Hilfe von Effektschätzern Inzidenzen für vorzeitige Todesfälle durch Herz-Kreislaufkrankungen, Atemwegserkrankungen und Lungenkrebs. Er kommt zu dem Ergebnis, dass sich in Deutschland durch den Partikelfilter jährlich rund 10.000 bis 19.000 vorzeitige Todesfälle vermeiden ließen. Da vorwiegend Ältere oder Vorgeschädigte betroffen seien, resultiere aus der Vermeidung der vorzeitigen Todesfälle für die Gesamtbevölkerung eine mittlere Lebenszeitverlängerung von ca. 1 bis 3 Monaten. Ähnliche Ergebnisse sind kürzlich von HEI (2003a, b) publiziert worden.

Die Methodik der Berechnungen ist grundsätzlich nicht anzugreifen, die Berechnungen stützen sich allerdings auf eine fragwürdige Datenbasis:

- Es handelt sich um veraltete Zahlen aus den neuen Bundesländern aus dem Jahre 1997. Es liegen dazu durchaus neuere Daten vor, die die inzwischen erheblich verbesserte Luftqualität widerspiegeln.
- Es ist eine einfache Übertragung punktueller oder regionaler Messergebnisse auf die Fläche der Bundesrepublik erfolgt, und zwar entgegen den Empfehlungen von Lambrecht, der die Messwerte mit vereinfachenden Annahmen in PM_{10} -Werte umgerechnet hat (UBA 1999a). Ein solches Vorgehen führt zwangsläufig zu fehlerhaften Ergebnissen.
- Es wurde eine grobe, überschlägige Abschätzung des Anteils von Dieselmotoren vorgenommen. Nach Lambrecht ist eine solche Quellenzuordnung jedoch außerordentlich schwierig vorzunehmen und fehlerträchtig.

Aus den vorgenannten Gründen ist anzunehmen, dass das spektakuläre Rechenergebnis die tatsächlichen Gegebenheiten weit überschätzt..

Weiterhin bezieht sich das Umweltbundesamt in „Future Diesel“ (UBA 2003) auf den von Kreyling et al. (2003; Abschnitt 3.6.1.2.3) im Zeitraum 1991 – 2001 in Erfurt gemessenen relativen Anstieg der Nanopartikel <30 nm. Ausgehend von der These, jedem lungengängigen Partikel <5 μm sei „eine spezifische Wirkung zuzuschreiben“, wird

dargelegt, dass eine Minderung der Partikelmasse nicht ausreichend sei und dass zukünftige Grenzwerte eben auch die Partikelanzahl regulieren müssten (UBA 2003). Nun hat in Erfurt allerdings nicht nur die Partikelmasse erheblich abgenommen, sondern nach den Daten von Kreyling et al. ist offenbar auch die Anzahl der Partikel inklusive derjenigen mit Durchmesser 10-30 nm gefallen (Abbildung 3.6.1-8). Daher liegt hier offenbar eine Fehlinterpretation der Ergebnisse vor: Die Abnahme von Partikelmasse und Partikelzahlen bedeutet aus unserer Sicht eine abnehmende Exposition. Eine dabei aufgetretene relative Zunahme der kleineren Partikel ergibt sich lediglich rechnerisch aus dem stärkeren Rückgang der größeren Partikel gegenüber den Sekundärpartikeln mit Durchmesser . Toxikologisch ist aber nur die Abnahme der Exposition von Bedeutung.

Außerdem handelt es sich bei den in Erfurt gemessenen Nanopartikeln (10 – 30 nm) um Sekundärpartikel, so dass für uns - im Gegensatz zu den genannten Autoren und zum Umweltbundesamt - keine unmittelbare Verbindung zu Dieselmotorabgasen besteht. Sekundärpartikel kondensieren vielmehr aus den Abgasen aller Verbrennungsvorgänge, d.h. Industrie, Heizung und Fahrzeugmotoren tragen dazu bei, und bei den Fahrzeugen sind dies sowohl der Ottomotor als auch der Dieselmotor.

Aus Tunnelmessungen (HEI 2002) und Immissionsmessungen (Putaud et al. 2002) ist zur chemischen Zusammensetzung von Sekundärpartikeln bekannt, dass Sulfate, Nitrate und Kraftstoff die vorherrschenden Komponenten darstellen und Rußkerne von nachgeordneter Bedeutung sind. Soweit bekannt sind die kanzerogenen Eigenschaften biobeständiger lungengängiger Rußpartikel an die Präsenz des Rußkerns gebunden.

Aus Prüfstandsmessungen ist bekannt, dass bei Dieselmotoren mit Partikelfiltern höhere Anzahlen an Sekundärpartikeln von 10 bis 30 nm Durchmesser gemessen werden. Als mögliche Erklärung wurde in der Literatur dazu gefunden, dass die ausgefilterten Partikel nicht mehr zur Anlagerung von auskondensierenden flüchtigen Stoffen bereitstehen, so dass die Zahl der Sekundärpartikel ansteigt (Burtsch 2001). Denkbar ist auch, dass die flüchtigeren Stoffe von der Oberfläche der ausgefilterten Partikel desorbieren, im Verdünnungstunnel anschließend sofort wieder kondensieren und als Sekundärpartikel erfasst werden. Auf diese Weise könnten Sekundärpartikel mit einer veränderten chemischen Zusammensetzung gebildet werden (ohne soliden Rußkern, aus flüchtigen und löslichen Stoffen bestehend), die ohne den Partikelfilter nicht oder in geringerem Umfang auftreten.

Wegen dieser Unsicherheiten sind die vom Umweltbundesamt in den Pressemitteilungen und auch in „Future Diesel“ (UBA 2003) dargestellten jährlichen Todesfälle durch Dieselpartikel wissenschaftlich wenig belastbar.

Eigene Bewertung

Für die Emissionen von Dieselmotoren der 60er Jahre gibt es keine verlässlichen Angaben. Es ist jedoch offensichtlich, dass die Emissionen seit 1970 stark abgenommen haben. Allerdings hat sich dabei die relative Zusammensetzung des Abgases von Nfz-

Dieselmotoren seit 1960 nicht wesentlich geändert. Wenn auch Partikelanzahl und Partikelmasse zurückgegangen sind, ist der Partikeldurchmesser unverändert geblieben.

In seinem Umweltgutachten hat der Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU 1994) bereits 1994 festgestellt, dass die krebserzeugende Wirkungsintensität der Abgase von Kraftfahrzeugen mit Dieselmotoren zu mehr als 90% auf den Partikelanteil zurück zu führen ist (siehe Tabelle 5.8-1). Mit der schrittweisen Emissionsminderung bis zum Jahre 2005 (EURO 4), durch die alle krebserzeugenden Bestandteile in etwa gleichem Maße reduziert werden, nimmt die krebserzeugende Wirkungsstärke der Emissionen von Dieselmotoren entsprechend ab, laut Tabelle 6.1-1 seit Mitte der 80er Jahre in etwa 10fach.

Da der Partikeldurchmesser unverändert blieb und bisher nicht ausgeschlossen werden kann, dass an Partikeln anhaftende genotoxische Substanzen bioverfügbar sind und auch der Wirkungsmechanismus der Partikel-Kanzerogenität unklar ist, muss von einer linearen Dosis-Wirkungsbeziehung auch der Partikel-Kanzerogenität ausgegangen werden. Obwohl neuere Erkenntnisse durchaus für einen indirekten genotoxischen Wirkungsmechanismus sprechen, ist für Partikel die Ableitung einer Exposition ohne Wirkung gegenwärtig aus wissenschaftlicher Sicht nicht vertretbar.

Bei diesem Kenntnisstand kann nur die Aussage getroffen werden, dass sich das Krebsrisiko von Dieselmotoremissionen seit Mitte der 80er Jahre etwa 10fach vermindert hat und sich - wie vom Umweltbundesamt prognostiziert – ausgehend vom heutigen Niveau nochmals um das 10fache reduzieren wird. Dieser generelle Trend ist insofern zu begrüßen, als dadurch trotz prognostizierter Zunahme von Kraftfahrzeugen mit Dieselmotor mit einer Abnahme der Menge an emittierten Partikeln zu rechnen ist.

Allerdings erlaubt die komplizierte Datenlage keine korrekte Risikoabschätzung und die von einzelnen Gremien oder Behörden vorgelegten Daten zum Krebsrisiko sind fehlerhaft. Die US-EPA sieht sich daher nicht in der Lage, eine Abschätzung des Krebsrisikos vorzunehmen. Eine verlässlichere Abschätzung des Krebsrisikos muss die folgenden Parameter berücksichtigen:

- Charakterisierung der Partikel (Durchmesser, chemische Zusammensetzung), weil davon die Expositionshöhe, Ort der Deposition im Atemtrakt, und Wirkmechanismus gravierend beeinflusst werden.
- Die Bezeichnung „Ruß“ sollte auf den inerten Rußkern aus Elementarem Kohlenstoff (EC) beschränkt bleiben so wie dies in der 23. BImSchV festgelegt ist.
- Beim Vergleich mit anderen Emittenten von Partikeln, bei Emissionsmessungen, Immissionsmessungen, bei Inhalationsversuchen und epidemiologischen Studien müssen vergleichbare Partikeldefinitionen verwendet werden.
- Die Definition von Diesel(-Ruß)partikeln muss unterscheiden zwischen Primärpartikeln mit Rußkern (Durchmesser 10 bis 30 nm) und Agglomeraten aus solchen Primärpartikeln (Durchmesser 60 bis 200 nm, maximale Anzahlen bei 60 bis

100 nm Durchmesser) einerseits, und Sekundärpartikeln ohne einen solchen Rußkern andererseits. Die genannten Partikel liegen in Aerosolen in der Regel nebeneinander vor.

- Laut Definition handelt es sich bei Ultra-Feinpartikeln um Partikel mit einem Durchmesser $< 0,1 \mu\text{m}$. Diese Definition erlaubt leider keine Differenzierung zwischen den Dieselpartikeln mit Rußkern (und Durchmessern von 60-100 nm) und den Sekundärpartikeln (nucleation mode particles, Durchmesser 10-30 nm), die in der Regel keinen Rußkern besitzen.

Zweifelhaft bleibt, ob Nanopartikeln bei der Risikoabschätzung eine gewichtige Rolle zukommt. Auch wenn noch nicht alle Fragen geklärt sind, lässt sich aus den Messergebnissen aus Erfurt und den Kenntnissen der chemischen Zusammensetzung kein akuter Handlungsbedarf ableiten. Dies entspricht auch den von HEI veröffentlichten Ergebnissen einer niederländischen 3-Jahresstudie, bei der die Assoziation von Kurzzeiteffekten (Mortalität) mit gasförmigen Stoffen und Partikeln (PM_{10} , Sulfate und Nitrate) untersucht wurde. Die beste Assoziation wurde für Ozon gefunden, gefolgt von Sulfaten und Nitraten (HEI 1999, Seite 5), nicht mit Nanopartikeln. Da die Emission der Ozonvorläufersubstanzen NO_x und Kohlenwasserstoffe durch Dieselmotoren abgenommen haben, lässt sich auch für die Ozonproblematik ein Erfolg der emissionsmindernden Maßnahmen verzeichnen.

6.3 Verfügbarkeit von Partikelfiltern

Die Praxistauglichkeit von Partikelfiltern wurde in den USA in Versuchsreihen mit Nutzfahrzeugen nachgewiesen. Sie sind auch bei Nutzfahrzeugen deutscher Hersteller auf Wunsch verfügbar. Bei Personenkraftwagen scheiterte Mercedes-Benz Mitte der 1980er an technischen Problemen. Erst Peugeot konnte ab dem Jahr 2000 Pkws mit Partikelfiltern anbieten und hat seither über 500.000 Einheiten vermarktet. Diese Fahrzeuge haben dennoch nicht EURO 4 oder EURO 5 einhalten können, da der Partikelfilter lediglich Partikel zurückhält und andere regulierte Stoffe nicht beeinflusst.

Der Partikelfilter bietet zwei wesentliche Vorteile. Dies ist zum einen die Verminderung der Partikelemissionen um etwa den Faktor 1000 (-99.9 %) unabhängig vom Partikeldurchmesser auf Werte weit unterhalb der festgelegten Grenzwerte. Zum anderen ermöglicht der Partikelfilter eine Motorsteuerung, die zu einer geringen Stickoxidbildung und bei allerdings höheren Partikelbildung führt. Mit dem nachgeschalteten Partikelfilter führt dies im Endeffekt zu niedrigen Emissionen bei beiden Parametern. Alternativ können auch Partikelfilter und Entstickung wie SCNR zusammen eingebaut werden. Diese Kombination wird vorwiegend bei Nutzfahrzeugen zum Tragen kommen.

Inzwischen bieten auch mehrere Hersteller Partikelfilter mit unterschiedlicher Funktionsweise sowohl für die Erstausrüstung als auch für die Nachrüstung von Dieselmotoren an. Zahlreiche Fahrzeughersteller wollen ab Herbst 2003/Anfang 2004 Pkw-Modelle mit Partikelfilter auf den Markt bringen. Kleinere Fahrzeuge können allein mit innermotorischen Maßnahmen die Grenzwerte von EURO 4 einhalten, größere Pkw-Motoren benötigen dazu Abgasreinigungstechniken. EURO 4-Dieselfahrzeuge sind im Herbst 2003 bereits am Markt verfügbar, z.B. der Ford Mondeo, der die EURO 4-Norm auch ohne Partikelfilter einhält.

Im Nfz Bereich waren Abgasnachbehandlungssystem zur Einhaltung der Grenzwerte bisher nicht erforderlich. Trotzdem werden vor allem im Stadtbusbereich von allen Herstellern seit Jahren optional Partikelfilter angeboten. Diese Situation wird sich mit Euro 4 ändern. Prinzipiell werden zwei Möglichkeiten gesehen, die Euro 4 Grenzwerte einzuhalten:

- SCR (Selektive Katalytische Reduktion): Reduktion der Stickoxide durch Entstickung und Reduktion der Partikel durch Verbrennungsoptimierung.

Vorteilhaft ist der günstigere Verbrauch mit niedrigen Betriebskosten, nachteilig ist, dass eine Infrastruktur für die Verfügbarkeit von Harnstoff erst noch aufgebaut werden muss. SCNR wird als Zukunftstechnologie für EURO V angesehen.

- Abgasrückführung (AGR) plus Partikelfilter: Reduktion der Stickoxide durch AGR, Reduktion der Partikel durch Filterung.

Von Vorteil ist, dass keine zusätzliche Infrastruktur notwendig ist. Nachteilig ist ein relativ hoher Verbrauch und dadurch höhere Betriebskosten. Die Eignung zur Einhaltung von EURO V ist fraglich.

Alle europäischen Nfz-Hersteller haben sich deshalb für die SCR Technologie entschieden und werden SCR in unterschiedlichem Umfang für Euro 4 und verstärkt für Euro 5 anbieten. Die NO_x Adsorbertechnologie, die von der US EPA favorisiert wird, wird für Europa nicht für zielführend gehalten, wo Kraftstoffverbrauch und CO₂ Emission eine wesentlich größere Rolle spielen als in den USA.

Die Nutzfahrzeug-Hersteller sehen damit Möglichkeiten, EURO IV und EURO V auch mit anderen Techniken als dem Partikelfilter einzuhalten, bieten den Partikelfilter jedoch für bestimmte Fahrzeuge vor allem im Kommunalbereich an.

6.4 Abschließende Bewertung

Nach Berechnungen des UBA führten die Maßnahmen zur Emissionsminderung bei Pkw und Nutzfahrzeugen trotz gesteigerter Fahrleistung in den letzten 20 Jahren zum Rückgang der Gesamtemissionen um 50 - 60 %. Für die nächsten 10 bis 15 Jahre ist eine weitere Verminderung der Emissionen um ca. 50 % und damit auf 25% des Ausgangswertes Mitte der 80er Jahre zu erwarten.

Hinsichtlich Kanzerogenität haben beim Dieselmotor die emittierten Partikel mit Rußkern die größte Bedeutung. Für ihre Kanzerogenität lässt sich ein genotoxischer Wirkungsmechanismus nicht ausschließen, so dass jede Exposition mit einem entsprechenden Krebsrisiko verbunden ist. Da sich durch die emissionsmindernden Maßnahmen zwar die Partikelzahl vermindert hat, nicht jedoch der Partikeldurchmesser, besteht keine Möglichkeit, die Wirkungseigenschaften von Partikeln aus neueren Fahrzeugen qualitativ anders zu bewerten als die von Fahrzeugen vor Mitte der 80er Jahre. Damit führt jede Maßnahme zur Verminderung der Emission von Partikeln mit Rußkern zu einer entsprechenden Verminderung des Krebsrisikos der Bevölkerung und von exponierten Arbeitern.

Der Partikelfilter bietet dafür hervorragende Chancen und ermöglicht gleichzeitig Maßnahmen zur Absenkung der NO_x -Emissionen. Seine Verwendung ist jedoch eine Maßnahme unter vielen, denn alternative Techniken bieten weitere Emissions-Minderungspotentiale (Kapitel 3.7).

Die vorliegende Arbeit skizziert den aktuellen Stand von Technik und Wissenschaft und kann daher als gemeinsame Ausgangsbasis für die weitere Diskussion und Bearbeitung der Thematik durch Techniker, Toxikologen und Politik dienen.

7 Anhänge

7.1 Zeitreihen Immissionsmessungen

Die nachfolgenden Zeitreihen für Gesamtsschwebstaub, PM₁₀, NO_x, Ozon und SO₂ sind alle auf der Internetseite des UBA zu finden (<http://www.umweltbundesamt.de/luft/immissionen/identen-hist.htm>).

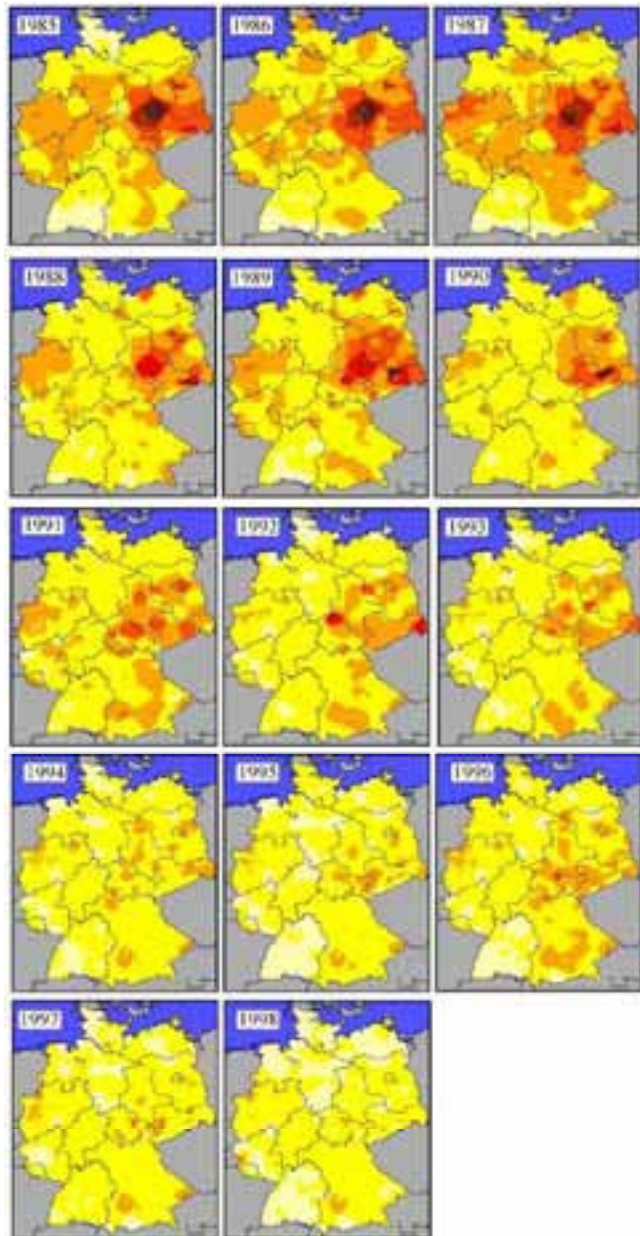


Abbildung 7.1-1: Jahresmittelwerte der Gesamtstaub-Konzentration (TSP) von 1985 bis 1998. Aufgrund des Interpolationsverfahrens ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig.

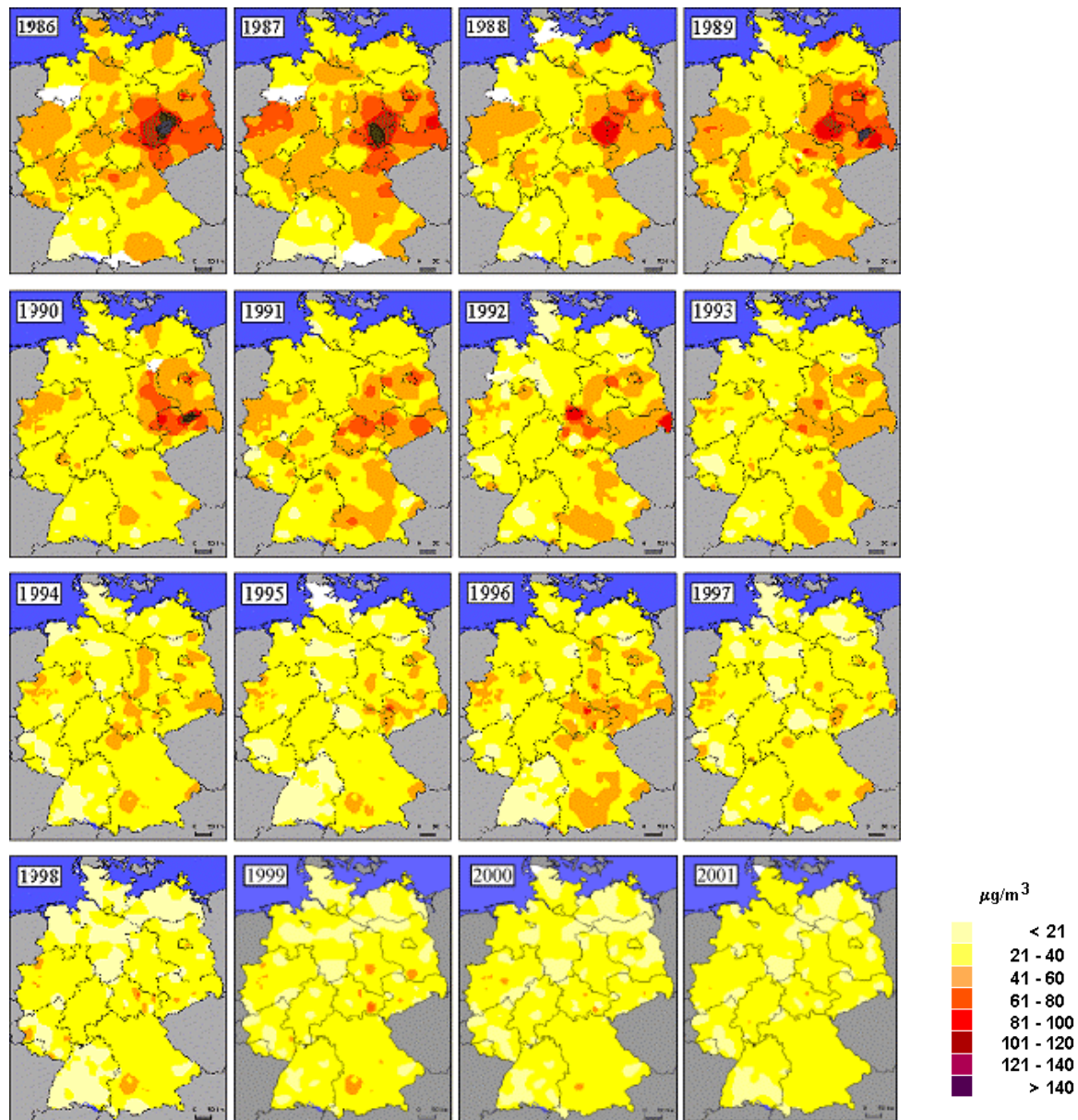


Abbildung 7.1-2: Jahresmittelwerte der PM_{10} -Konzentration von 1986 bis 2001. Seit 1999 werden in Deutschland die flächendeckenden TSP-Messungen schrittweise eingestellt und dafür PM_{10} -Messungen vorgenommen, um den neueren Erkenntnissen und Richtlinien (1999/30/EG) zu genügen. Für 1986 bis 1998 wurden die Schwebstaubdaten (TSP) zu PM_{10} -Daten umgerechnet (Faktor 0,83). Ab 1999 basierte über die Hälfte aller PM_{10} -Daten aus Messungen. Der Rest wurde wie zuvor umgerechnet. Aufgrund des Interpolationsverfahrens ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig.

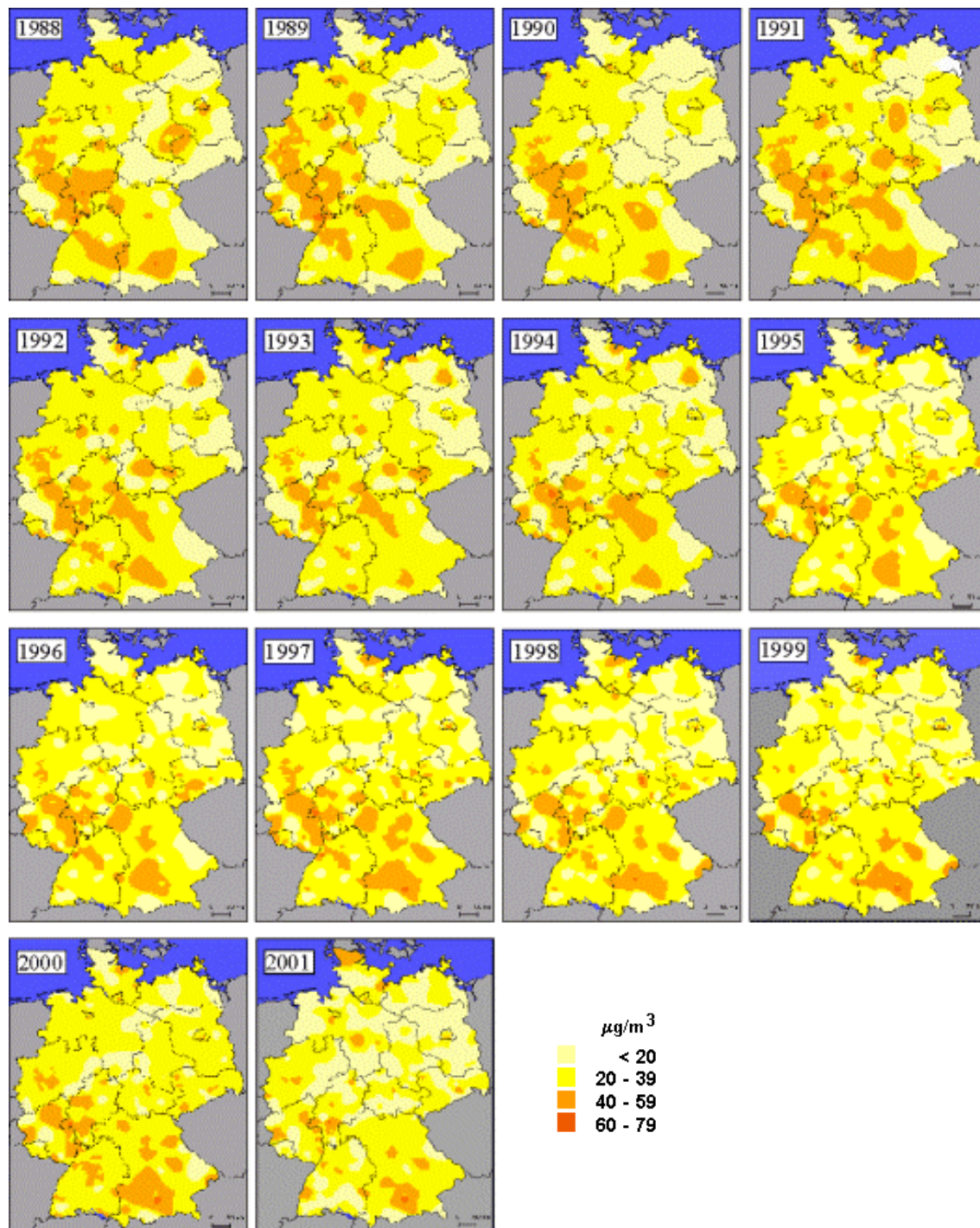


Abbildung 7.1-3: Jahresmittelwerte der NO_x -Konzentration von 1988 bis 2001. Aufgrund des Interpolationsverfahrens ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig.

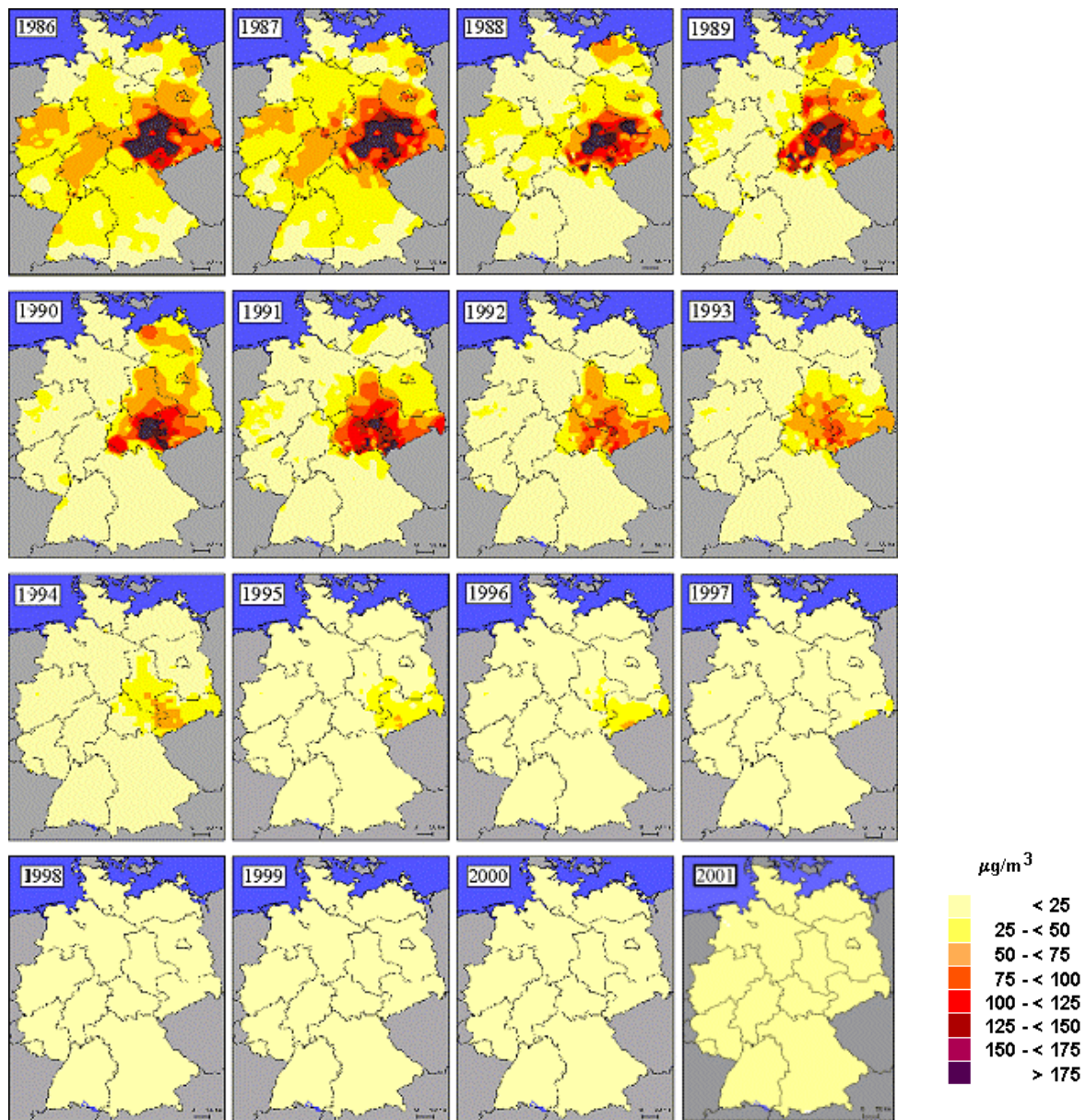


Abbildung 7.1-4: Jahresmittelwerte der SO_2 -Konzentration von 1986 bis 2001. Aufgrund des Interpolationsverfahrens ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig.

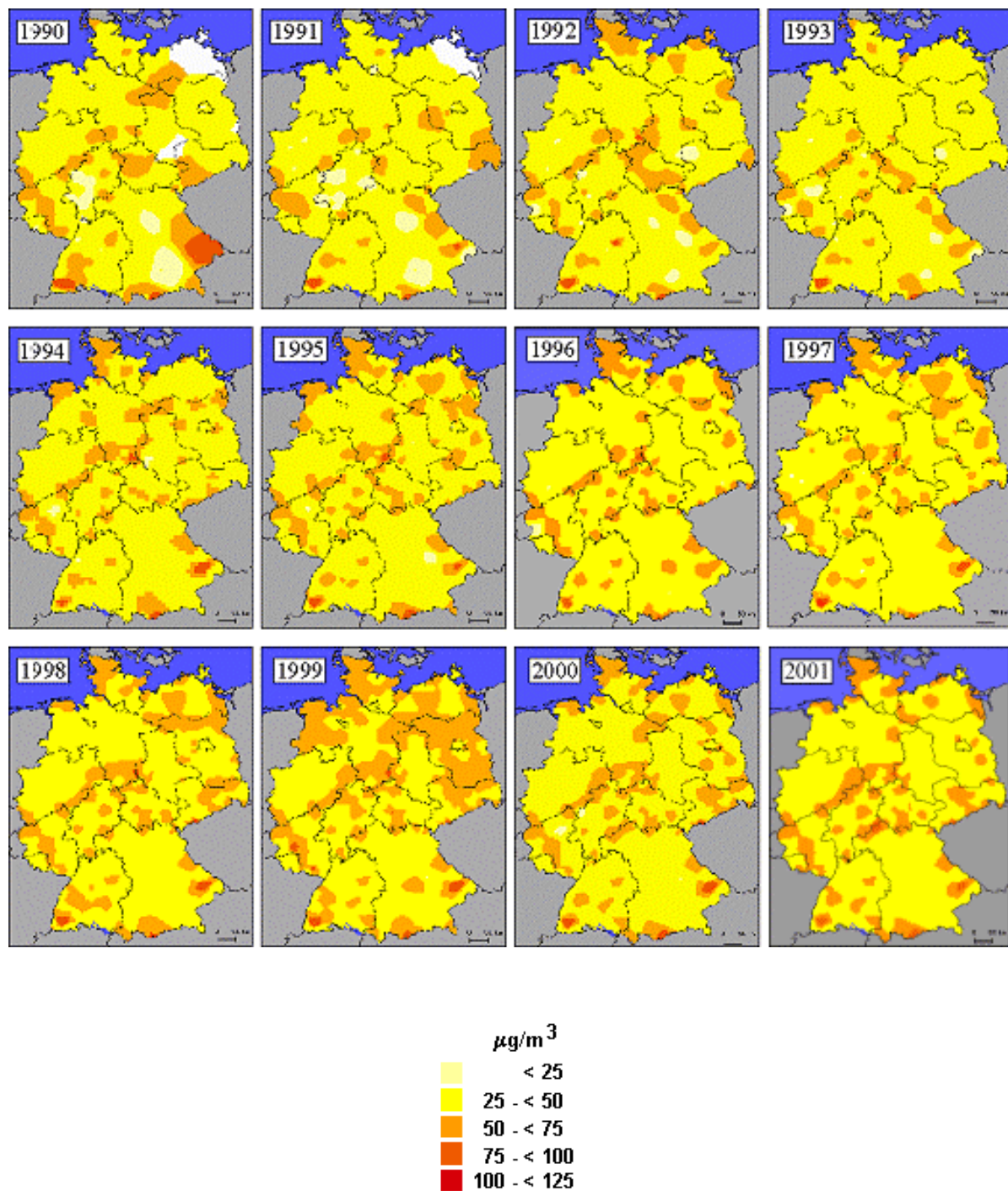


Abbildung 7.1-5: Jahresmittelwerte der Ozon-Konzentration von 1990 bis 2001. Aufgrund des Interpolationsverfahrens ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig.

7.2 Grenz- und Leitwerte bei Immissionsmessungen

Tabelle 7.2-1: Derzeit gültige Immissionsgrenzwerte (Quelle: Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie)

SO ₂ [µg/m³]	1-h- Wert	24-h- Wert	Jahres- mittel	50-%- Wert	98-%- Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 1999/30 und 22. BImSchV	500					berechnet aus Halbstundenmittelwerten	drei aufeinander- folgende Stunden (gleitender MW)	menschliche Gesundheit	A
	350 (24- mal)*					berechnet aus Halbstundenmittelwerten	volle Stunde	menschliche Gesundheit	G ab 2005
		125 (3-mal)*				berechnet aus Halbstundenmittelwerten	ein Tag	menschliche Gesundheit	G ab 2005
			20			berechnet aus Halbstundenmittelwerten	01.01.-31.12. und 01.10.-31.03.	Ökosysteme	G ab 2001
EU-Richtlinie 80/779 (gültig bis 31.12.2004)				80		wenn 50-%-Wert vom Staub >150 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.04.-31.03.	menschliche Gesundheit	G
				120		wenn 50-%-Wert vom Staub ≤150 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.04.-31.03.		G
				130		wenn 50-%-Wert vom Staub >200 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.10.-31.03.		G
				180		wenn 50-%-Wert vom Staub ≤200 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.10.-31.03.		G
					250	wenn 98-%-Wert vom Staub >350 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.04.-31.03.		G
					350	wenn 98-%-Wert vom Staub ≤350 berechnet aus Tagesmittelwerten	01.04.-31.03.		G
VDI-RL 2310	1000**	300						menschliche Gesundheit	R

O ₃ [µg/m³]	1-h- Wert	8-h- Wert	24-h- Wert	AOT 40 ***	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU- Richtlinie 2002/3		120 (25-mal)*			gleitender Mittelwert, berechnet aus Stunden-mittelwerten (höchster Wert eines Tages)	8 Stunden	menschliche Gesundheit	Z ab 2010
				18.000 µg/m³*h	berechnet aus Stundenmittelwerten (Mittelwertbildung über 5 Jahre)	Mai bis Juli (8 - 20 Uhr)	Pflanzen	Z ab 2010
		120			gleitender Mittelwert, berechnet aus Stunden-mittelwerten (höchster Wert)	8 Stunden	menschliche Gesundheit	LFZ ab 2020

				eines Jahres)			
			6.000 µg/m³*h	berechnet aus Stundenmittelwerten	Mai bis Juli (8 - 20 Uhr)	Pflanzen	LFZ ab 2020
	180			Stündlicher Mittelwert	volle Stunde	Informations- schwelle	S
	240			Stündlicher Mittelwert	volle Stunde	Alarmschwelle	S
EU- Richtlinie 92/72 und 22. BImSchV (gültig bis 09.09.2003)	180			berechnet aus Halbstundenmittelwerten	volle Stunde	Unterrichtung d. Bevölkerung	S
	200			berechnet aus Halbstundenmittelwerten	volle Stunde	Schutz der Vegetation	S
	360			berechnet aus Halbstundenmittelwerten	volle Stunde	Auslösung des Warnsystems	S
		110		berechnet aus Halbstundenmittelwerten von 0-8 Uhr, 8-16 Uhr, 16-24 Uhr und 12-20 Uhr		menschliche Gesundheit	S
			65	berechnet aus Halbstundenmittelwerten	Tag	Schutz der Vegetation	S
VDI-RL 2310	120**				Kurzzeitwert	menschliche Gesundheit	R
		100			8 Stunden	menschliche Gesundheit	R

NO [µg/m³]	½-h- Wert	24-h- Wert	Jahres- mittel	98-%- Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
VDI-RL 2310	1000	500			berechnet aus Halbstundenmittelwerten		menschliche Gesundheit	R

NO ₂ [µg/m³]	1-h- Wert	24-h- Wert	Jahres- mittel	50- %- Wert	98- %- Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU- Richtlinie 1999/30 und 22. BImSchV	400					berechnet aus Halbstundenmittelwerten	drei aufeinander- folgende Stunden (gleitender MW)	menschliche Gesundheit	A
	200 (18- mal)*					berechnet aus Halbstundenmittelwerten	volle Stunde	menschliche Gesundheit	G ab 2010
			40			berechnet aus Halbstundenmittelwerten	01.01.- 31.12.	menschliche Gesundheit	G ab 2010
EU- Richtlinie 85/203 (gültig bis 31.12.200 9)					200	berechnet aus Halbstundenmittelwerten	01.01.- 31.12.	menschliche Gesundheit und Umwelt	G
23. BImSchV					160	berechnet aus Halbstundenmittelwerten	ein Jahr	menschliche Gesundheit	P
VDI-RL 2310	200**	100				berechnet aus Halbstundenmittelwerten		menschliche Gesundheit	R

NO _x [µg/m³]	1-h- Wert	24-h- Wert	Jahres- mittel	98-%- Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
----------------------------	--------------	---------------	-------------------	---------------	-----------------------	-----------	------------	------

Vergleich von Dieselmotorabgasen der 1960er Jahre und heute

EU-Richtlinie 1999/30 und 22. BImSchV			30		berechnet aus Halbstundenmittelwerten	01.01.-31.12.	Vegetation	G ab 2001
---------------------------------------	--	--	----	--	---------------------------------------	---------------	------------	-----------

CO [mg/m³]	½-Std.-Wert	8-h-Wert	24-h-Wert	Jahresmittel	98%-Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 2000/69 und 22. BImSchV		10				gleitender Mittelwert, berechnet aus Halbstundenmittelwerten	8 Stunden	menschliche Gesundheit	G ab 2005
VDI-RL 2310	50		10	10		berechnet aus Halbstundenmittelwerten		menschliche Gesundheit	R

Benzol [µg/m³]	1-h-Wert	24-h-Wert	Jahresmittel	98%-Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 2000/69 und 22. BImSchV			5			01.01.-31.12.	menschliche Gesundheit	G ab 2010
23. BImSchV			10		berechnet aus Halbstundenmittelwerten	ein Jahr	menschliche Gesundheit	P

Schwebstaub TSP [µg/m³]	1-h-Wert	24-h-Wert	Jahresmittel	95%-Wert	98%-Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 80/779 (gültig bis 31.12.2004)			150	300		berechnet aus Tagesmittelwerten	01.04.-31.03.	menschliche Gesundheit und Umwelt	G
VDI-RL 2310	500	250	75			berechnet aus Halbstundenmittelwerten		menschliche Gesundheit	R

Schwebstaub PM ₁₀ [µg/m³]	1-h-Wert	24-h-Wert	Jahresmittel	95%-Wert	98%-Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 1999/30		50 (35-mal)*				berechnet aus Tagesmittelwerten	ein Tag	menschliche Gesundheit	G ab 2005
Stufe 1			40			berechnet aus Tagesmittelwerten	01.01.-31.12.	menschliche Gesundheit	G ab 2005
EU-Richtlinie 1999/30		50 (7-mal)*				berechnet aus Tagesmittelwerten	ein Tag	menschliche Gesundheit	G ab 2010
Stufe 2 (Prüfvorbehalt)			20			berechnet aus Tagesmittelwerten	01.01.-31.12.	menschliche Gesundheit	G ab 2010

Ruß [µg/m³]	1-h-Wert	24-h-Wert	Jahresmittel	98%-Wert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
23. BImSchV			8		berechnet aus Halbstundenmittelwerten	ein Jahr	menschliche Gesundheit	P

Pb in der Luft als Bestandteil des Schwebstaubs [µg/m³]	Jahresmittelwert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
EU-Richtlinie 1999/30 und 22. BImSchV	0,5	berechnet aus Tagesmittelwerten	01.01.-31.12.	menschliche Gesundheit	G ab 2005
EU-Richtlinie 82/884/EWG und	2	berechnet aus Tagesmittelwerten	ein Jahr	menschliche Gesundheit und	G

22. BImSchV (gültig bis 31.12.04)				Umwelt	
-----------------------------------	--	--	--	--------	--

Staubniederschlag [g/m ² * d]	Jahresmittelwert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
TA Luft	0,35	berechnet aus Monatsmittelwerten	ein Jahr	erhebliche Belästigungen	G

Pb im Staubniederschlag [µg /m ² * d]	Jahresmittelwert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
TA Luft	100	berechnet aus Monatsmittelwerten	ein Jahr	schädliche Umwelteinwirkungen	G

Cd im Staubniederschlag [µg/ m ² * d]	Jahresmittelwert	Berechnungsvorschrift	Zeitbezug	Schutzziel	Wert
TA Luft	2	berechnet aus Monatsmittelwerten	ein Jahr	schädliche Umwelteinwirkungen	G

* maximal zulässige Überschreitungshäufigkeit im Jahr ** Halbstundenmittelwert

G = Grenzwert; L = Leitwert; P = Prüfwert; R = Richtwert; S = Schwellenwert

A = Alarmwert Z = Zielwert LFZ = Langfristzielwert (ohne Termin)

Tabelle 7.2-2: Vom Länderausschuss für Immissionsschutz (LAI) erarbeitete Zielwerte für krebserzeugende Luftschadstoffe.

Schadstoff	Zielwert	Schadstoff	Zielwert
Dieselschmutz	1,5 µg/m ³	Arsen	5 ng/m ³
Benzol	2,5 µg/m ³	Cadmium	1,7 ng/m ³
Benzo[a]pyren (PAK)	1,3 ng/m ³	Nickel	10 ng/m ³
2,3,7,8 TCDD	16 fg/m ³	Asbest	88 Fasern/m ³

Diese Zielwerte basieren auf einer Risikobetrachtung. Für diese Zielwerten wurde ein Risiko des Auftretens von Lungenkrebskrankungen bei lebenslanger Exposition (70 Jahre) in Höhe von 1:2500 berechnet.

Tabelle 7.2-3: Leitwerte der WHO (sollen nicht ohne Bezug zu den Begründungen in den zugehörigen Kapiteln der *Air Quality Guidelines* benutzt werden).

		Mittelwert über							
	Einheit	10 min	15 min	30 min	1 h	8 h	24 h	1 Woche	1 Jahr
NO₂	µg/m ³				200				40
Ozon	µg/m ³					120			
CO	mg/m ³		100	60*	30*	10			
SO₂	µg/m ³	500					125		50
Toluol	µg/m ³							260	

*) Eine Exposition gegenüber dieser Konzentration sollte den angegebenen Zeitraum nicht überschreiten und sollte innerhalb von acht Stunden nicht wiederholt werden.

7.3 Position des Umweltbundesamtes (www.uba.de)

Dieselfahrzeuge

Letzte Aktualisierung: 14.11.2003

In Deutschland hat sich der Anteil der Diesel-Pkw an den Neuzulassungen in den vergangenen Jahren mehr als verdoppelt. Er hat inzwischen fast 40 % erreicht. Die zeitliche Entwicklung der Partikelemissionen zeigt, dass der stark steigende Anteil der Diesel-Pkw bis 2020 trotz der durch technische Maßnahmen erzielten Emissionsminderungen am einzelnen Fahrzeug zu einer Erhöhung der Partikelemissionen aus Pkw um den Faktor 2,3 und damit zu einer Erhöhung der gesamten Partikelemissionen des Straßenverkehrs gegenüber den früheren Annahmen um den Faktor 1,6 führt. An verkehrsnahen Immissionsmessstellen ist keine der bisherigen Senkung der Abgasgrenzwerte entsprechende Minderung der Feinstaubkonzentrationen erkennbar. Der Anteil der aus Diesel-Fahrzeugen stammenden ultrafeinen Partikel ist sogar gestiegen.

In den vergangenen Jahren wurden die Partikelmassenemissionen von Dieselmotoren in Pkw und Nutzfahrzeugen durch motorische Maßnahmen, z. B. durch die Verbesserung der Verbrennung, bereits erheblich gemindert. Eine wesentlich weitergehende Partikelminderung ist nach dem derzeitigen Stand der Technik nur durch eine Abgas-Nachbehandlung, d. h. durch den Partikelfilter möglich. Die für eine Reihe verschiedener Partikelfilter-Systeme nachgewiesenen Minderungsraten liegen bezüglich der Partikelmasse weit über 90 % und bezüglich der Partikelzahl über 99,99 %.

Auch bezüglich der NO_x-Emissionen haben moderne Diesel-Pkw im Vergleich zum „Benziner“ einen erheblichen Nachteil. Sie emittieren acht bis zehnmal mehr Stickstoffoxide, die u. a. zur Bildung des gesundheitsschädlichen Sommersmogs beitragen. Der NO_x-Grenzwert EURO 4 für Diesel-Pkw ist etwa dreimal so hoch wie derjenige für Otto-Pkw. Und auch bei LKW ist die reale Minderung der NO_x-Emissionen durch die Grenzwertstufen EURO II und EURO III nicht so hoch wie erwartet: Elektronische Einspritzsysteme in Schweren Nutzfahrzeugen - eingeführt ab dem Jahr 2000 mit der Grenzwertstufe EURO II - ermöglichen unterschiedliche Einspritzstrategien in den verschiedenen Bereichen des Motorkennfeldes. Neuere Untersuchungen haben gezeigt, dass EURO II-Motoren außerhalb des im gesetzlichen Prüfzyklus gefahrenen Kennfeldbereiches vielfach gezielt auf den Kraftstoffverbrauch hin optimiert werden. Dies bewirkt dann im Gegenzug einen erheblichen Anstieg der Stickstoffoxid-Emissionen. Die Folge: Für das Jahr 2003 liegen die NO_x-Emissionen der Schweren Nutzfahrzeuge um etwa 40% und für das Jahr 2010 um etwa 50 % höher, als bisher angenommen wurde.

In Deutschland versterben pro Jahr insgesamt ca. 800 000 Menschen (alle Todesursachen). Nach einem aktuellen Gutachten von Prof. Wichmann, GSF Neuherberg, sind davon etwa 10.000 bis 19.000 Todesfälle den Abgasen aus Dieselfahrzeugen als vorzeitige Todesfälle zuzuordnen. Durch die Reduktion der Partikelemissionen, zum Beispiel durch Partikelfilter,

ließe sich zum überwiegenden Teil verhindern, dass diese Personen vorzeitig versterben. Die gesundheitlichen und ökologischen Wirkungen von Partikeln und NO_x-Emissionen machen nach Auffassung des Umweltbundesamtes (UBA) eine deutliche Senkung der Grenzwerte erforderlich. Technische Minderungsmaßnahmen für ein fortschrittliches Emissionsniveau stehen schon jetzt zur Verfügung. Die Minderungskosten pro Fahrzeug/Motor sind im Verhältnis zum bewirkten Effekt gering und verhältnismäßig.

Im Juni 2003 wurden in Deutschland insgesamt 14 Pkw-Typen mit Partikelfilter von französischen und italienischen Herstellern angeboten. Für weitere 20 Pkw-Typen, auch von deutschen Herstellern, ist die Einführung des Partikelfilters für den Herbst 2003 oder für Anfang 2004 angekündigt.

Auch für Nutzfahrzeuge ist die Partikelfiltertechnik verfügbar. Bereits Anfang der 90er Jahre wurde sieben verschiedene Systeme, die teilweise Minderungsraten über 90 % aufwiesen, an 1.100 Stadtbussen im Rahmen des Rußfilter-Großversuchs des Bundesumweltministeriums in Deutschland erfolgreich erprobt. Heute laufen in Deutschland über 5.000 Stadtbusse und weltweit mehr als 50.000 Nutzfahrzeuge mit Partikelfiltersystemen. In Kalifornien wurde die Ausrüstung von 900.000 Dieselfahrzeugen im Rahmen eines Programms mit Fördermitteln in Höhe von 100 Mio. US\$ beschlossen.

Die Fortschreibung der Emissionsgrenzwerte für Pkw, leichte Nutzfahrzeuge und Nutzfahrzeugmotoren wird national und international gefordert. Die Weltgesundheitsorganisation, die EU-Kommission sowie der National Research Council und die Umweltbehörde EPA der USA stellen die Feinstäube, zu denen die Diesel-Partikel zählen, als eines der gegenwärtig vorrangigen umwelthygienischen Schwerpunktthemen in Europa und USA heraus. In den USA und in Japan wird bereits an Umsetzungskonzepten gearbeitet. Auch das Umweltbundesamt fordert eine weitere deutliche Senkung der Abgasgrenzwerte bei Fahrzeugen mit Dieselmotoren. Eine Fortschreibung der ab 2005 gültigen NO_x- und Partikelgrenzwerte - EURO 4 für Pkw und EURO IV/V für Nutzfahrzeugmotoren - ist zur Abwehr von Gefahren für die Gesundheit und für die Umwelt notwendig und technisch machbar.

Eine weitere Herabsetzung der massenbezogenen Partikelgrenzwerte um den Faktor 10 reicht prinzipiell aus, um das Ziel des Gesundheitsschutzes zu erreichen, wenn dafür effektive Partikelfilter oder gleichwertige Techniken mit einer hohen Minderungsrate über den gesamten Größenbereich der Partikel einschließlich der ultrafeinen Partikel zum Einsatz kommen. Um Zielverfehlungen in Form von technischen Entwicklungen, die hauptsächlich auf die Minderung der Masse hin optimiert sind, zu verhindern, sollte als flankierende Maßnahme eine Begrenzung der emittierten Partikelzahl erfolgen.

Der Vorschlag des UBA lautet wie folgt: Der Partikelgrenzwert EURO 5 für Pkw sollte mit 0,0025 g/km gegenüber dem EURO 4-Grenzwert einer Emissionsminderung von 90 % entsprechen. Der NO_x-Grenzwert für Diesel-Pkw sollte mit 0,08 g/km demjenigen für Otto-Pkw der ab 2005 gültigen Stufe EURO 4 entsprechen.

Für Nutzfahrzeugmotoren ist als Anpassung der Stufe EURO V ebenfalls die weitere

Minderung der Partikelemission um 90% bis auf Partikelfilter-Niveau erforderlich.. Dies erfordert einen Grenzwert von 0,002 g/kWh im stationären Test und 0,003 g/kWh im dynamischen Testverfahren. Im Hinblick auf die NO_x-Emissionen sollte der NO_x-Grenzwertes der Stufe EURO V von 2,0 auf 1,0 g/kWh angepasst werden und eine weitere Senkung auf 0,5 g/kWh ab 2010 erfolgen.

Die Mehrkosten für EURO 5-Konzepte bei Diesel-Pkw und die geeigneten Kombinationen von Maßnahmen zur Erfüllung der vorgenannten Grenzwerte sind gegenüber der EURO 4-Technik im Bereich von 200 € bis 400 € pro Fahrzeug anzusetzen. Im Fall der Nutzfahrzeugmotoren werden die Mehrkosten für eine über die verabschiedete Stufe EURO V hinausgehende Emissionsminderung und die dafür notwendigen Abgasnachbehandlungssysteme, die im wesentlichen eine weitere Optimierung der für EURO V erforderlichen Systeme darstellen, zu vernachlässigen sein. Die Gesamtkosten werden gegenüber einem EURO III-Motor je nach Motorengröße zwischen 1.500 € und 3.000 € liegen. Einige technische Konzepte ermöglichen es sogar, diese Mehrkosten durch eine gleichzeitige Minderung des Kraftstoffverbrauchs zu amortisieren.

7.4 Internationaler Grenzwertevergleich

Auszüge aus OECD (2001), Vehicle Emission Reductions

Table 6. **Passenger Car Emissions Standards**
Nitrogen Oxides (Diesel)

		Year of Introduction	g/km	Useful Life (km)
US national	Tier 1	1994	0.777	160 000
	NLEV^a	2001	0.186	160 000
	Tier 2^b	2004	0.043	193 080
California	TLEV^c	1994	0.373	160 000
	LEV	1994	0.186	160 000
	ULEV	1994	0.186	160 000
	LEV2^d	2004	0.043	193 080
	ULEV2	2004	0.043	193 080
Japan	SULEV	2004	0.012	193 080
	Japan 2002	2002	0.280	80 000
E.U.	EURO 3	2000	0.500	80 000
	EURO 4	2005	0.250	100 000

- a. These will be phased in a few Northeast states starting in 1999; nationally they go into effect in 2001.
- b. Tier 2 standards will be phased in beginning in 2004 in order to comply with EPA's declining fleet average NO_x standard as described in Annex B. 100% of the passenger car and light truck fleet operating on both diesel and gasoline will be required to comply on average by 2007; 100% of heavier trucks up to 10,000 lbs. will comply by 2009.
- c. California's LEV2, ULEV2 and SULEV will be phased in beginning in 2004 by each manufacturer in a manner sufficient to comply with the declining fleet average NMOG standard described in Annex C.
- d. California's LEV2, ULEV2 and SULEV will be phased in beginning in 2004 by each manufacturer in a manner sufficient to comply with the declining fleet average NMOG standard described in Annex C.

With regard to diesel powered passenger cars, it is clear that the EU and Japan, while substantially tightening their requirements over the next several years, will maintain substantially weaker NO_x requirements than for petrol fuelled vehicles, unlike the USA. The same is true for particulate requirements as summarised in the table below.

Table 7. **Passenger Car Emission Standards**
Particulate Matter (Diesel)

		Year of Introduction	g/km	Useful Life (km)
US national	Tier 1	1994	0.062	160 000
	NLEV^a	2001	0.050	160 000
	Tier 2^b	2004	0.006	193 080
California	TLEV^c	1994	0.050	160 000
	LEV	1994	0.050	160 000
	ULEV	1994	0.025	160 000
	LEV2^d	2004	0.006	193 080
	ULEV2	2004	0.006	193 080
	SULEV	2004	0.006	193 080
Japan	Japan 2002	2002	0.052	80 000
E.U.	EURO 3	2000	0.050	80 000
	EURO 4	2005	0.025	100 000

- a. These will be phased in a few Northeast states starting in 1999; nationally they go into effect in 2001.
- b. Tier 2 standards will be phased in beginning in 2004 in order to comply with EPA's declining fleet average NO_x standard as described in Annex B. 100% of the passenger car and light truck fleet operating on both diesel and gasoline will be required to comply on average by 2007; 100% of heavier trucks up to 10,000 lbs. will comply by 2009.
- c. California's TLEV, LEV and ULEV standards are phased in by each manufacturer in a manner sufficient to comply with the fleet average NMOG standard described in Annex C.
- d. California's LEV2, ULEV2 and SULEV will be phased in beginning in 2004 by each manufacturer in a manner sufficient to comply with the declining fleet average NMOG standard described in Annex C.

Great progress in reducing heavy-duty vehicle and engine emissions is also occurring as is illustrated in the tables below.

It seems clear that in contrast to auto standards, the EU has adopted the most stringent heavy-duty requirements in the world. The US EPA has indicated its intention to adopt an additional round of heavy-duty requirements during the next year but until it does so it will lag the EU requirements significantly.

Table 8. **Heavy-duty diesel NO_x standards**
(g/kw-hr)

Model Year	US	Likely US proposal	EU ^a	Japan
1990	8.2		15.8	
1991	7.2		15.8	
1992	7.2		15.8	
1993	7.2		9	
1994	7.2		9	6
1995	7.2		9	6
1996	7.2		7	6
1997	7.2		7	6
1998	5.8		7	4.5
1999	5.8		7	4.5
2000	5.8		5	4.5
2001	5.8		5	4.5
2002	5.8		5	4.5
2003	2.9		5	3.38
2004	2.9		5	3.38
2005	2.9		3.5	3.38
2006	2.9		3.5	3.38
2007		0.16	3.5	3.38
2008		0.16	2	3.38
2009		0.16	2	3.38
2010		0.16	2	3.38

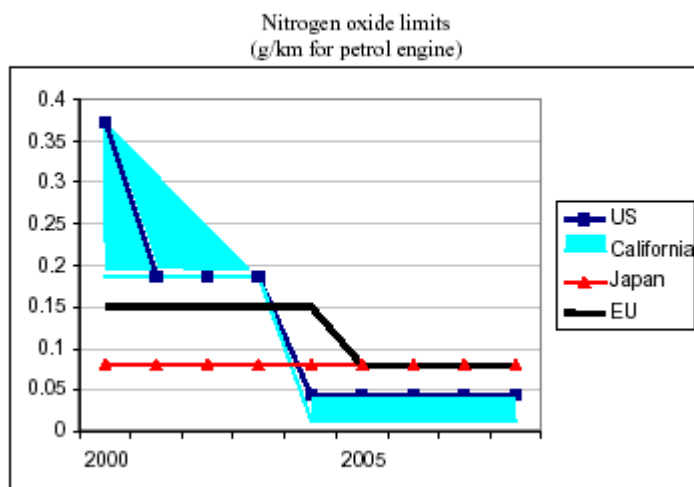
a. EURO 3 from 2005 and EURO 4 from 2008.

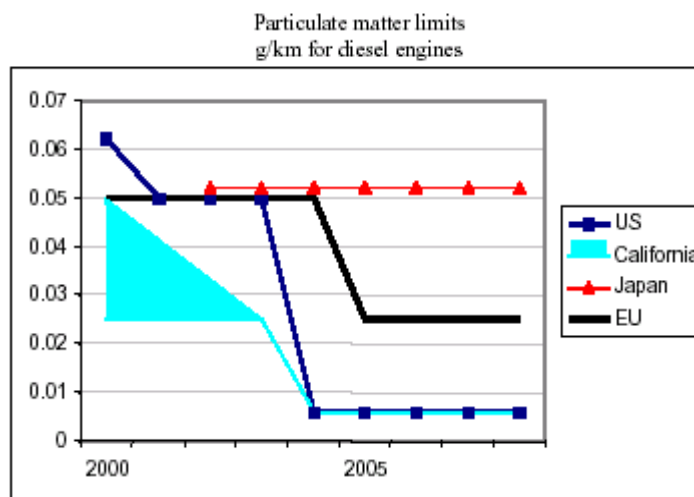
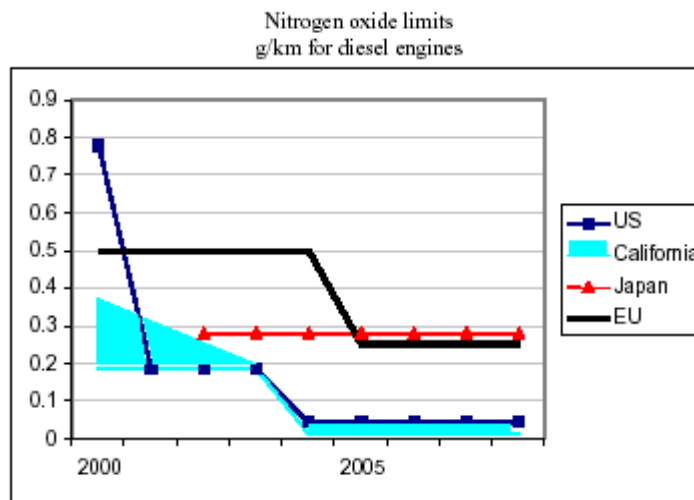
Table 9. **Heavy-duty diesel PM standards**
(g/kw-hr)

Model Year	US Trucks	Likely US proposal	US Buses	EU ^a	Japan
1993	0.3		0.15	0.4	
1994	0.15		0.105	0.4	
1995	0.15		0.105	0.4	
1996	0.15		0.075	0.15	0.25
1997	0.15		0.075	0.15	0.25
1998	0.15		0.075	0.15	0.25
1999	0.15		0.075	0.15	0.25
2000	0.15		0.075	0.1	0.25
2001	0.15		0.075	0.1	0.25
2002	0.15		0.075	0.1	0.25
2003	0.15		0.075	0.1	0.18
2004	0.15		0.075	0.1	0.18
2005	0.15		0.075	0.02	0.18
2006	0.15		0.075	0.02	0.18
2007		0.075	0.0075	0.02	0.18
2008		0.075	0.0075	0.02	0.18
2009		0.075	0.0075	0.02	0.18
2010		0.075	0.0075	0.02	0.18

a. EURO 3 from 2005 and EURO 4 from 2008.

Figure 1. **Comparison of passenger car emissions standards in the EU, USA and Japan**





7.5 Übersicht Partikelmesstechnik

Legende der nachfolgenden Übersicht zur Partikelmesstechnik:

In der nachfolgenden Tabelle werden die verschiedenen Messtechniken und Anwendungsbereiche entsprechend den nachfolgenden Kriterien verglichen:

Detection limit:	Nachweisgrenze
Cross sensitivity:	Querempfindlichkeit
Transient measurement possible:	Möglichkeit transienter Messungen
Emission, working place and ambient air measurement possible:	Emissions, Immissions- Arbeitsplatzmessungen
Stability, reproducibility:	Reproduzierbarkeit
Calibration:	Kalibrierung
Applicability for field measurements:	Mobile Feldmesstechnik

Bewertungen:

+:	gut
p:	problematisch
-:	nicht möglich
?:	unklar

Summary of techniques

Procedure/ device	quantity	range	Det. lim	Cross.Sens	Trans.	Em.-amb	Field appl.	Stabil	Calibr.	remarks
CPC	Total number	5nm -10µm 1 – 10 ⁶ #/cm ³	+	+	+	+	p	p	+	The total number conc. is dominated by the nucleation mode, can hardly be measured reproducibly. When using number concentration: condensation particles have sizes where CPC is at its lower limit, leads to uncertainty. Sensitivity sufficient for all cases, comparison difficult because total number concentration rapidly changes due to coagulation and nucleation, strongly depends on way dilution occurs after emission. Due to the limited range of operation temperature and position sensitivity the CPC is mainly a laboratory instrument.
CPC + hot dilution or thermodesorber	Number of solid particles	5nm -10µm 1 – 10 ⁶ #/cm ³	+	+	+	+	p	+	+	The problem of reproducibility can be overcome by removing the condensable fraction in a thermodesorber or by preventing nucleation by hot dilution with sufficiently high dilution factor. Comparison easier than for total number (no nucleation problem), coagulation remains.
Gravimetric analysis	Total mass	Dep. on sampling line	p	+	-	+	p	+	+	Sensitivity problem after trap, condensable material (sulphates, water...) dominates mass if trap used. Needs long sampling times for ambient air concentrations, problem with volatile material, comparison difficult.
TEOM	Total mass	< 10Mm	+	+	p	+	+	+	+	Same problems with volatile material as gravimetry, continuous measurements, but too slow for transient cycles.
Coulometric analysis	EC-mass		+	+	-	+	p	+	+	Reference method for EC-determination, high cost, EC is a very stable quantity.
Opacimetry	Light extinction		-	p	+	-	+	+	p	Sensitivity too low for low emission engines unless optical path is elongated by mirror system. Signal may be dominated by few large particles
Aethalometer	EC-mass		+	p	p	+	+	+	p	Cross sensitivity to non-EC material, continuous measurements, but too slow for transient cycles.

Procedure/ device	quantity	range	Det. lim	Cross Sens	Trans.	Em.-amb	Field appl.	Stabil	Calibr.	remarks
PAS	Elemental carbon for diesel particles	< 1 μm det. limit 100ng/m ³	+	p	+	+	+	+	p	Indirect measurement, good correlation with EC found for diesel engines, fast and simple measurement, sensitivity sufficient for ambient air in urban areas. Calibration may change due to aging processes (change on the particle surface by photochemistry...) and other processes which change the particle surface
Photoacoustic sensor	EC	not reported	p	p	+	p	+	+	p	No commercial instrument, still problems with cross-sensitivities (water, NOx), has potential to become an easy-to-use device, should be kept in mind Sensitivity for ambient air not jet sufficient
Laser induced incandescence	EC	not reported	+	+	+	?	?	?	?	Interesting for engine development, as it allows in-cylinder measurements, fast, yields primary particle size.
BET	BET surface		-	?	-	p	-	?	+	Very expensive procedure, needs much material, sensitivity problem, esp. after trap, extremely long sampling times for ambient air samples.
DC	Active surface	5 nm - 1 μm	+	+	+	+	+	+	+	Yields active surface, easy fast measurement, fast, simple, sensitivity sufficient for ambient air measurements in urban area
Epiphaniometer	Active surface	<7 μm	+	+	-	+	+	+	+	Yields active surface, time resolution limited to some minutes, very high sensitivity, requires high dilution for emission measurement, also applicable in remote areas.
SMPS	Size distribution, based on mob. diameter	10 – 700 nm	+	+	p	+	p	+	p	High-resolution instrument, scan times for emission measurement ca 1 min, not sufficient for transient measurement, very expensive, laboratory instrument, can be used for all cases, sensitivity sufficient for measurement in clean areas (with scan times of some minutes)
DMA + CPC	Number in small size interval	5nm – 700nm	+	+	+	+	p	+	+	If a size in the accumulation mode is chosen a stable measurement is possible but information is limited, as mean diameter may vary. As size changes by coagulation, no comparison possible. Parallel measurement of several intervals yields good information, but causes very high costs (several DMA+CPC), serial measurements with one system require multiple measurement cycles

Procedure/ device	quantity	range	Det. lim	Cross.Sens	Trans.	Em.-amb	Field appl.	Stabil	Calibr.	remarks
El. Diffusion battery	Size distribution, based on mob. diameter	5 – 300 nm	p	+	+	+		+	+	Fast and simple instrument, no good size resolution, but sufficient to distinguish modes, new, not much experience so far, should be commercially available in a few months. Can be used for all cases, sensitivity too low for measurement in clean areas
Impactor	Mass in size intervals	Dep. on type >30nm	p	+	-	+	p	+	+	Same problem with condensable material as gravimetric analysis, only low pressure impactors cover size range of interest, requires very long sampling times, even longer sampling times than total mass measurement by gravimetric analysis
ELPI	Size distr., based on Aerodynamic Diameter	30nm - 10µm	+	+	+	+	+	+	p	Measures aerodynamic diameter, for deposition depends on mobility diameter, problem with evaporation of volatile material Can be used for all cases, sensitivity too low for measurement in clean areas

7.6 Emissions-Minderungspotentiale (aus CONCAWE 1999)

Emission reduction potential of individual automotive technology components and their effect on fuel consumption (based on available information up to September 1998)

Table 1 Gasoline Technologies

Technology	Emissions Reduction Potential	Fuel Consumption	Availability **		
			1998 Market	Technical by 2005	2005 Market
Palladium containing catalysts	HC: ✓✓ CO: ✓✓ NOx: ✓	No effect	Yes	H	H
Catalyst formulation changes	HC, CO NOx: ✓✓✓✓	No effect	Yes	H	H
Close coupled catalysts	HC: ✓✓✓✓ CO & NOx: <10%	No effect	Yes	H	H
Catalyst physical design	HC: ✓ CO: ✓ NOx: ✓	No effect	Yes	H	H
Cold start spark retard and enleanment	Lower emissions, but no data available	No effect	Yes	H	M
Rich start and secondary air injection	Catalyst reaches light-off earlier	Small increase	Yes	H	L
Transient adaptive learning	Lower emissions, no data available	No effect	Yes	H	M
Exhaust gas recirculation	NOx: ✓✓	Small increase	Yes	H	H
Fast light-off lambda sensors	HC: ✓✓✓ CO: ✓✓✓✓ NOx: ✓✓✓	Small reduction	Yes	H	M
On-Board Diagnostics	Improvement mainly due to better I&M of vehicles	Small	Yes	H	H
Electrically Heated Cat	HC, CO: ✓✓✓✓✓	Small increase	Yes	H	L
Gasoline Burner	HC, CO: ✓✓✓✓	Small increase	No	H	L
Exhaust Gas Ignition	HC, CO: ✓✓✓✓✓	Small increase	No	H	L
HC Trapping Systems	HC: ✓✓✓✓✓	No effect ?	No	H	L
Saab "Cold Start" Bags	Can achieve ULEV levels on current cleanest US engines	No effect	No	H	L
Indirect MPI Lean Burn	No effect (w/o cat)	Reduction abt. 10%	Yes	H	M
Gasoline Direct Injection, Lean Burn	HC, CO: ✓✓✓✓✓ NOx: *	Reduction ✓	Yes	H	M
Gasoline Direct Injection Stoichiometric	HC, CO: ✓ (versus conventional) NOx: ✓✓✓ (versus lean-burn G-DI)	Reduction ✓	No	H	L
NOx Storage Catalyst	NOx: ✓✓✓✓✓	No effect	Yes	H	M
Controlled Auto-Ignition	HC, CO & NOx: ✓✓✓	Reduction ✓	No	M	L
Plasma	HC: ✓✓✓✓✓ CO: ✓✓✓ NOx: ✓✓✓✓	Small decrease	No	M	L
Variable Valve Timing	CO ₂ : ✓ NOx reduction	Reduction ✓	Yes	H	M
Variable Compression Ratio	CO ₂ : ✓✓	Reduction ✓✓	?	L ?	?

* NOx have to be further reduced by after-treatment (de-NOx catalyst)

** Has been assessed by the Task Force in mid-1998 as:

H = High : likely
M = Medium : limited
L = Low : unlikely

Key: ✓ = 10 to 20%; ✓✓ 20 to 35%; ✓✓✓ Up to 50%; ✓✓✓✓ Up to 75% ; ✓✓✓✓✓ >75% reduction potential

Table 2 LD Diesel Technologies

Technology	Emissions Reduction Potential	Fuel Consumption	Availability *		
			1998 market	Technical by 2005	2005 Market
Oxidation Catalyst	PM: ✓✓ PM(SOF): ✓✓✓ CO & HC: ✓✓✓✓ NOx: ✓	No effect	Yes	H	H
De-NOx Catalyst SCR (Urea)	NOx: ✓✓✓✓✓ (ECE+EUDC)	No effect	No	H	L
De-NOx Catalyst Passive - FWC (Four Way Catalyst)	NOx: ✓ (ECE+EUDC)	No effect	Yes (very low efficiency)	M	M
De-NOx Catalyst Active - NCR (Non-SCR)	NOx: ✓✓ (ECE+EUDC)	Small increase	Yes	H	M
NOx Storage Catalyst	NOx: > ✓✓✓ (assumed)	Small increase	No	M	L
Continuously Regenerative Trap (CRT)	PM: ✓✓✓✓✓ NOx : <5%	Some increase	No	H	L
Particulate trap (non-CRT)	PM: ✓✓✓✓✓	Some increase	No	H	M
EGR, Non-cooled	NOx: ✓✓ (MVEG) NOx: ✓✓✓✓ (Cruise)	Small increase	Yes	H	M
EGR, Cooled	NOx: ✓✓ (MVEG) NOx: ✓✓✓✓✓ (Cruise) Reduced PM & soot	Small increase	No	H	H
Basic engine design improvements)	See Table 3 (HD)	Reduced	Yes	H	H
Engine management systems & strategies	PM: ✓✓ NOx: abt. 9% (already demonstrated)	Significant reduction	Yes	H	H
New fuel injection types	PM: ✓✓✓✓ (Cruise) NOx: ✓✓✓✓ (Cruise) (with EGR)	Significant reduction	Yes	H	H
New nozzles/Rate shaped injection	NOx: ✓✓✓ (at constant soot)	Small reduction	No	H	H
Plasma	HC & NOx: ✓✓✓✓ CO: ✓✓✓ "removes soot"	No effect ?	No	M	M
Diesel/water injection and emulsions	All: ✓✓ (with 20% water)	Small increase	No	L	L
Diesel/water injection	PM: ✓ NOx: ✓✓	Small reduction	?	H	M

* Has been assessed by the Task Force in mid-1998 as:

H = High : likely
M = Medium : limited
L = Low : unlikely

Key: ✓ = 10 to 20%; ✓✓ 20 to 35%; ✓✓✓ Up to 50%; ✓✓✓✓ Up to 75% ; ✓✓✓✓✓ >75% reduction potential

Table 3 HD Diesel Technologies

Technology	Emissions Reduction Potential	Fuel Consumption	Availability *		
			1998 market	Technical by 2005	2005 Market
Oxidation Catalyst	PM: ✓✓ PM (SOF): ✓✓✓ HC & CO: ✓✓✓✓ NOx: ✓	No effect	Yes	H	M
De-NOx Catalyst - SCR (Urea)	NOx: ✓✓✓✓✓ (ECE R49)	No effect	No	H	H
De-NOx Catalyst - Passive FWC (Four Way Catalyst)	NOx: ✓ (ECE R49)	No effect	No	M	L
De-NOx Catalyst - Active NCR (Non-SCR)	NOx: ✓✓ (ECE R49)	Some increase (depends on HC/NOx ratio)	No	H	M
NOx Storage Catalyst	NOx: > ✓✓✓ (assumed, based on LD)	Small increase (depends on regeneration efficiency)	No	M	L
Continuously Regenerative Trap (CRT)	PM: ✓✓✓✓✓ NOx: <5%	Some increase	Yes	H	M
Particulate trap (non-CRT)	PM: ✓✓✓✓✓	Some increase	Yes	H	M
EGR, Non-cooled	NOx: ✓✓ (R49/13-mode)	Small increase	No	H	M
EGR, Cooled	NOx: ✓✓✓ (OICA/13-mode) NOx: > ✓✓✓ (R49/13-mode) Reduced PM/soot	Small increase	No	H	H
Basic engine design improvements	Euro 2 to Euro 4 unclear (PM, HC, PM: ✓✓✓✓ shown for Euro 1 to Euro 2)	Reduced	Yes	H	H
Engine management systems & strategies	Unclear for HD (PM: ✓✓ NOx: 9% demonstrated for LD)	Significant reduction	Yes	H	H
New fuel injection types	Significant, but % is unclear	Significant reduction	Yes	H	H
New nozzles/Rate shaped injection	NOx: ✓ (at constant soot)	Small reduction	No	H	H
Plasma	HC, NOx: ✓✓✓✓ CO: ✓✓✓, "removes soot"	No effect ?	No	M	L
Diesel/water injection and emulsions	All: ✓✓ (with 20% water)	Small increase	No	M	L
Diesel/Water injection	PM: ✓✓✓ NOx: ✓✓	Small reduction	?	H	M

* Has been assessed by the Task Force in mid-1998 as:

H = High : likely
M = Medium : limited
L = Low : unlikely

Key: ✓ = 10 to 20%; ✓✓ 20 to 35%; ✓✓✓ Up to 50%; ✓✓✓✓ Up to 75% ; ✓✓✓✓✓ >75%
reduction potential

7.7 Emissionsfaktoren historische amerikanische Nutzfahrzeuge 1952 - 1975

Engine	Model Year	Rated Power, hp	Turbo-charged	Road Load, hp	Inertia Test Weight, lb	Average HDCC Emissions, g/ml				Fuel Econ., mpg
						HC	CO	NO _x	PM	
Cummins NHB 200	1952	200	no	70	22,000	14.9	36.7	11.3	9.00	6.1
Cummins NH 220	1963	220	no	86	35,000	20.3	28.3	13.1	8.86	5.9
DDC 6L-71NA	1969	270	no	85	37,900	3.0	65.5	46.4	2.68	5.7
Cummins NTC 350	1975	350	yes	126	62,900	3.7	37.7	37.5	3.97	4.4
Mack 673 Thermodyne	1960	187	no	75	32,900	3.3	22.3	15.9	3.52	6.8
DDC 8V-71N	1974	304	no	140	62,900	4.4	27.7	52.3	3.50	3.3
Mack 673 Thermodyne	1963	187	no	75	32,900	5.6	9.5	35.9	1.58	6.8
Cummins NHRS 300	1954	300	no	126	62,900	8.8	38.6	56.2	3.54	3.4
Cummins NHC 250	1970	250	no	126	62,900	2.3	45.0	26.7	7.44	3.7
Caterpillar 1673 PCT	1967	245	yes	97	37,400	5.0	31.4	9.1	7.19	4.7

TABLE 5. PM ANALYSIS RESULTS

Test Date	Test No.	Total PM, g/mi	Dry Sulfate, mg/mi	Wet Sulfate, mg/mi	Wet Sulfate % of Total PM	% VOF	Vac. Oven VOF, g/mi	Estimated Carbon, g/mi	Estimated Carbon % of Total PM
1953 Peterbilt with Cummins NHB 200									
06/10/00	53PB-HD2	9.16	40.6	83.3	1.0	49	4.51	4.56	50
06/10/00	53PB-HD3	8.94	24.6	56.5	0.6	49	4.40	4.49	50
06/10/00	53PB-HD4	8.90	48.3	106.4	1.2	49	4.32	4.48	50
1953 Kenworth with Cummins NHB 220									
06/13/00	53K-HD-1	9.12	55.6	127.8	1.4	40	3.62	5.37	59
06/13/00	53K-HD-2	9.07	40.7	93.6	1.0	40	3.61	5.37	59
06/13/00	53K-HD-3	8.39	40.9	94.0	1.1	38	3.22	5.07	60
1969 Ward-LaFrance Fire Truck w/ DDC 6L-71 NA									
06/16/00	69FT-HD1	2.66	36.8	84.6	3.2	60	1.58	0.99	37
06/16/00	69FT-HD2	2.60	35.0	80.5	3.1	60	1.55	0.97	37
06/16/00	69FT-HD3	2.77	33.5	77.0	2.8	52	1.45	1.25	45
1953 JK Peterbilt w/ 1976 Cummins NTC350									
06/21/00	53JK-HD1	3.99	80.6	185.4	4.7	15	0.60	3.20	80
06/21/00	53JK-HD2	3.85	85.0	195.5	5.1	18	0.70	2.96	77
06/21/00	53JK-HD3	4.07	78.9	181.5	4.5	17	0.71	3.18	78
1951 Mack w/ 1960 Mack 673 Thermodyne									
06/27/00	51M-HD1	3.50	26.3	60.5	1.7	10	0.36	3.08	88
06/27/00	51M-HD2	3.58	24.5	56.3	1.6	10	0.36	3.16	88
06/27/00	51M-HD3	3.49	24.0	55.2	1.6	10	0.35	3.09	89
1974 Peterbilt w/ 1974 DDC 8V-71N									
07/01/00	74PB-HD1	3.55	65.3	150.1	4.2	56	1.97	1.43	40
07/01/00	74PB-HD2	3.56	71.6	164.8	4.6	56	1.98	1.42	40
07/01/00	74PB-HD3	3.59	70.8	162.7	4.5	55	1.97	1.46	41
1963 Mack w/ Mack END673									
07/06/00	63M-HD1	1.61	43.4	99.8	6.2	56	0.90	0.61	38
07/06/00	63M-HD2	1.53	49.2	113.1	7.4	53	0.81	0.61	40
07/06/00	63M-HD3	1.59	47.0	108.0	6.8	53	0.84	0.64	40
1954 Mack w/ Cummins NHR3 300									
07/12/00	54M-HD1	3.64	61.4	141.2	3.9	22	0.80	2.70	74
07/12/00	54M-HD2	3.47	63.2	145.4	4.2	23	0.80	2.52	73
07/12/00	54M-HD3	3.51	59.3	138.3	3.9	22	0.75	2.62	75
1970 Mack w/ Cummins NHC 250									
07/18/00	70M-HD1	7.43	57.2	131.6	1.8	8	0.62	6.66	90
07/18/00	70M-HD2	7.68	52.9	121.7	1.6	8	0.63	6.93	90
07/18/00	70M-HD3	7.21	53.9	124.1	1.7	8	0.55	6.54	91
1967 Ford w/ Cat 1673 PCT									
(as received)									
07/25/00	68F-HD1	5.21	41.5	95.3	1.8	32	1.69	3.43	66
07/25/00	68F-HD2	5.58	38.7	89.1	1.6	39	2.19	3.31	59
07/25/00	68F-HD3	4.90	37.4	85.9	1.8	31	1.52	3.29	67
(after tune up)									
07/27/00	68F-HD4	7.36	31.9	73.4	1.0	16	1.18	6.10	83
07/27/00	68F-HD5	7.27	31.8	73.1	1.0	18	1.29	5.90	81
07/27/00	68F-HD6	7.13	29.5	67.8	1.0	17	1.23	5.83	82
(after replacing 1 bad injector)									
08/08/00	68F-HD7	7.45	28.4	60.7	0.8	16	1.20	6.19	83
08/08/00	68F-HD8	7.57	29.1	67.0	0.9	14	1.09	6.41	85
08/08/00	68F-HD9	6.55	31.7	72.9	1.1	18	1.18	5.30	81

7.8 HEI Studien zur Wirkung von Partikeln und deren Bestandteile (HEI 2002a)

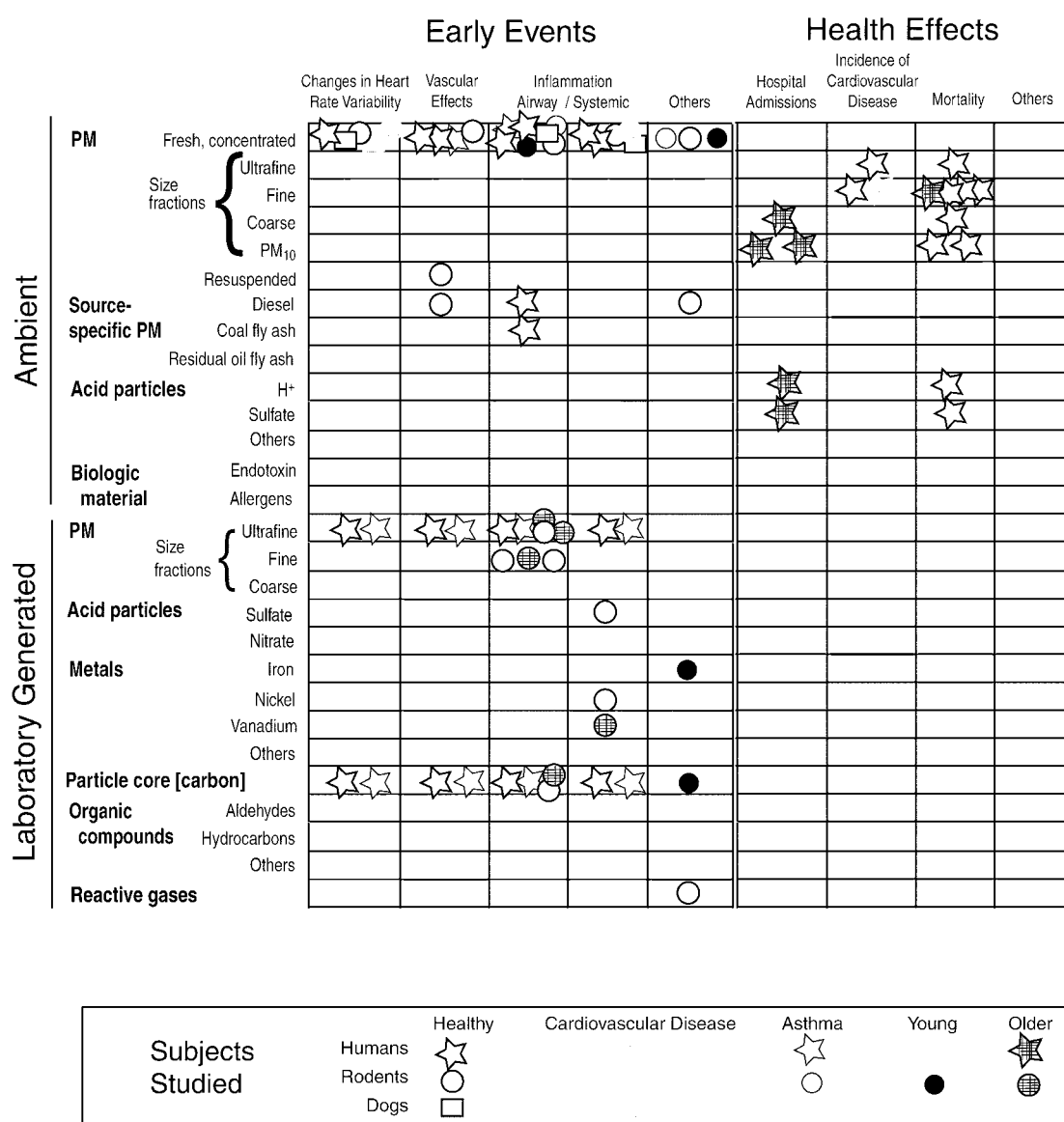


Figure 3. The complexity of studying PM effects shown using studies from HEI's PM research program. The figure illustrates some types of particles, a range of study subjects, and several health endpoints of interest. Each symbol indicates one type of subject that was included in an HEI-funded epidemiologic or experimental study.

A single study may be represented with more than one symbol; for example, the epidemiologic study by Lippmann and colleagues (17) investigated the potential associations among levels of different-sized particles, acidity, and sulfate with daily mortality in the general population and with hospital admissions among older people. For this study and other epidemiologic studies, the general population is represented by the symbol for healthy subjects; the general population, however, also contains susceptible groups.

8 Referenzen

8.1 Literaturverzeichnis Technik

1. BImSchV (2002) Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft - TA Luft) vom 24. Juli 2002. GMBL S. 511

3. BImSchV (2002) 3. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über den Schwefelgehalt bestimmter flüssiger Kraft- oder Brennstoffe) vom 24. Juni 2002. Bundes-Gesetzblatt I, S. 2243:

22. BImSchV (2002) 22. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über die Festsetzung von Konzentrationswerten) vom 11. September 2002. Bundes-Gesetzblatt I S. 3626.

23. BImSchV (1996) 23. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über die Festsetzung von Konzentrationswerten) vom 16. Dezember 1996. Bundes-Gesetzblatt I, S. 1962:

ACEA (2003) Zulassungsstatistiken (www.ACEA.be).

ACEA (2003a) ACEA statement on the adoption of the SCR technology to reduce emission levels of heavy-duty vehicles (www.ACEA.be)

ACEA (2002) ACEA Programme on the Emissions of Fine Particles from Passenger Cars [2]. ACEA-Report, July 2002.

ACEA (2000) ACEA data of the sulfur effect on advanced emission control technologies. Report July 2002.

ACEA (1999) ACEA Programme on the Emissions of Fine Particles from Passenger Cars. ACEA-Report, Dezember 1999.

ACGIH (American Conference of Governmental Industrial Hygienists) (2003) Aussetzen der Überprüfung von Dieselfuß (www.acgih.org)

AG (Arbeitsgemeinschaft) Energiebilanzen: Energiebilanzen der Bundesrepublik Deutschland. Erscheinungsweise jährlich.

Amann CA (1985) The powertrain, fuel economy and the environment, General Motors Corp. Research Publication. Zitiert in: Johnson J H (1988) Automotive Emissions, S. 39 - 75 American Conference of Governmental and Industrial Hygienists

(www.acgih.org/tlv/NIClist).

Andersson JD, Jemima CA, Bosteels D, Searles RA (2003) Particle size emissions from a EU 3 heavy-duty diesel engine with catalyst-based diesel particle filter and selective catalytic reduction system: number, mass, & chemistry. Aachener Kolloquium Fahrzeug- und Motorentechnik, 2002.

Bailey CR, Fulper CR, Baldauf RW, Somers JH (2002) Particulate Matter from Gasoline Engines. In: HEI (2003a) 121 – 134.

BIA, Berufsgenossenschaftliches Institut für Arbeitsschutz (2003) BIA-Workshop „Ultrafeine Aerosole an Arbeitsplätzen, BIA-Report 7/2003, Hauptverband der gewerblichen Berufsgenossenschaften, BIA (Hrsg.).

Borm PJA (2003) Die Toxikologie ultrafeiner Partikeln. In: BIA (2003) 41-51.

Brand P, Ruoff K, Gebhardt J (1992) Technical Note: Performance of a mobile aerosol spectrometer for in situ characterization of an environmental aerosol in Frankfurt city. Atmos. Environ 26A, 2451-2457. Zitiert in KRdL (2003a).

BMU, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (2003) Hintergrundpapier zum Thema „EURO 5-Grenzwerte Diesel-Pkw“. Stand 18.9.2003 (http://www.bmu.de/files/hintergrund_pm152.pdf).

Burtscher H (2001) Literature study on tailpipe particulate emission measurement for diesel engines. Gutachten für BUWAL/GRPE.

Burtscher H. (1992) In: ACEA (1999)

CEN (1998) Luftbeschaffenheit Ermittlung der PM₁₀-Fraktion von Schwebstaub Referenzmethode und Feldprüfverfahren zum Nachweis der Gleichwertigkeit von Messverfahren und Referenzmessmethoden. EN 12341.

Chatterjee S, McDonald C, Conway R, Windawi H, Vertin K, LeTavec CA, Clark NN, Gautam M (2001) Emission reductions and operational experiences with heavy duty diesel fleet vehicles retrofitted with continuously regenerated diesel particulate filters in southern California. SAE Technical Paper Series 2001-01-0512

CONCAWE (2003) Sulphur-free fuels are on the way. CONCAWE Review 12(1) 8-10 (www.dieselnet.com/standards/fuels/eu.html).

CONCAWE (2002) Motor Vehicle Emission Regulations and Fuel Specifications Part 1: Summary and Annual 2000/2001 Update. Report No. 3/02.

CONCAWE (2002a) Emissions from modern diesel engines. CONCAWE Review 11(1) 15-17.

CONCAWE (2001) Motor Vehicle Emission Regulations and Fuel Specifications Part 2: Detailed Information and Historic Review (1996-2000), Report No. 2/01.

CONCAWE (2001a) Measurement of the number and size distributions of exhaust particles emitted from european heavy duty engines. Report No. 01/51.

CONCAWE (2000) EU Commission „Call for evidence“ on ultra low sulfur (ULS) fuels. CONCAWE Response. July 2000.

CONCAWE (2000a) Automotive particulate matter. CONCAWE Review 9(2) 13-15.

CONCAWE (1999) Fuel quality, vehicle technology and their interactions. Report No. 99/55 May 1999.

CONCAWE (1999a) Potential of exhaust aftertreatment and engine technologies to meet future emissions limits. Report No. 99/62.

CONCAWE (1998) A study of the number, size and mass of exhaust particles emitted from European diesel and gasoline vehicles under steady-state and European driving cycle conditions. CONCAWE Report 98/51.

CONCAWE (1997) Motor Vehicle Emission Regulations and Fuel Specifications Part 2: Detailed Information and Historic Review (1970-1996), Report No. 6/97.

CONCAWE (1987) Diesel fuel quality and its relationship with emissions from diesel engines. Report No. 10/87.

DaimlerChrysler (2002) Umweltbericht 2002.

Der Spiegel (2003) Brikett unterm Bodenblech. 10.03.2003 (www.spiegel.de).

DFG (2003) Senatskommission zur Prüfung gesundheitsschädlicher Arbeitsstoffe (MAK-Kommission) MAK- und BAT-Werte-Liste 2003.

DieselNet (2003) ACGIH withdraws proposed TLV for diesel particulates. 27th February 2003 (www.Dieselnet.com).

Ecopoint (2003) Diesel emission control. Revision 08/2003 (www.DieselNet.com).

Eberl U (2003) Piezotechnik. Spektrum der Wissenschaft / VDI-Nachrichten; Innovation in Deutschland, 14-15.

EU (1987) Richtlinie des Rates vom 3. Dezember 1987 zur Angleichung der Rechtsvorschriften der Mitgliedsstaaten über Maßnahmen gegen die Emission gasförmiger

und luftverunreinigender Partikel aus Dieselmotoren zum Antrieb von Fahrzeugen (88/77/EWG, geändert durch 91/542/EWG und EWR-Abkommen von 1992).

European Commission (1997) Particles position paper (www.europa.eu.int/comm/environment/air).

European Commission (2003) Information note: Airborne particles and their health effects in Europe (www.europa.eu.int/comm/environment/air).

Finnkatalyt (2003) Produktinformation (www.finnkat.de).

Franke HU, et al. (1998) 3-D Morphology of diesel soot particles and RME soot particles. 2. ETH-Symposium on Nanoparticle Measurement, 7. August 1998.

Fritz SG, Bailey CR, Scarbro CA, Somers JH (2000) Heavy-duty diesel truck in-use emission test program for model years 1950 through 1975. SAE-Report 2001-01-1327.

Greenpaece (2003) Klima. Luft ohne Dieselruß. I212 1, Stand 4/2003

Grenier M (1999) DPM Exposure in Canadian Mines. Zitiert in: Mining Diesel Emissions Conference, November 3rd, 1999, Ontario, Canada.

Gruber M, Lenz HP, Reischl GP, Wopelka T (2001) Partikelgrößenverteilung im instationären Fahrzyklus. In: VDI (2001) 165-191.

Gruber M et al. (1999) Messung von Dieselpartikeln: Möglichkeiten und Grenzen verschiedener Verfahren; Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Kraftfahrzeugbau, TU Wien 1999. Zitiert in IFEU (2000).

Health Effects Institute (HEI) (2003) – Program Summary October 2003. Research on Diesel Exhaust and Other Particles.

Health Effects Institute (HEI) (2003a) Improving estimates of diesel and other emissions for epidemiologic studies. Proceedings of an HEI Workshop December 2002, HEI Communication 10.

Health Effects Institute (HEI) (2002) Gertler AW, Gillies, JA, Pierson WR, Rogers CF, Sagebiel JC, Abu-Allaban M, Coulombe W, Tarnay L, Cahill TA; Emissions from Diesel and Gasoline Engines Measured in Highway Tunnels. Research Report 107.

Health Effects Institute (HEI) (2002a) Understanding the health effects of components of the particulate matter mix: progress and next steps. HEI Perspectives April 2002.

Health Effects Institute (HEI) (2002b) Revised analyses of time-series studies of air pollution and health. HEI Special Report May 2002

Health Effects Institute (HEI) (1999) The health effects of fine particles: key questions and the 2003 review. HEI Communication 8.

Health Effects Institute (HEI) (1996) Characterization of fuel and aftertreatment device effects on diesel emissions. Research Report No. 76.

Health Effects Institute (HEI) (1995) Diesel Exhaust: A critical analysis of emissions, exposure, and health effects.

Heinen C M, (1980) We've done the job – What's it worth? Society of Automotive Engineers Paper. Zitiert in: Johnson J H (1988) Automotive Emissions, S. 39 - 75.

Hergersberg D (2001) Neue Filter fangen Ruß aus Dieselmotoren. Die Welt, 22.10.2001, S. 31.

HJS (2003) Produktinformation, persönliche Mitteilung (www.hjs.com).

IFEU (2002) Knörr W, Hoepfner U, et al. IFEU, Aktualisierung des Daten- und Rechenmodells: Energieverbrauch und Schadstoffemissionen des motorisierten Verkehrs in Deutschland 1980 - 2020. Endbericht. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 201 45 112, Oktober 2002.

IFEU (2000) Lambrecht U, Höpfner U, Mögliche Diskrepanzen bei der Bestimmung von Partikeln, Gutachten im Auftrag des Ministeriums für Umwelt und Verkehr des Landes Baden-Württemberg (<http://www.IFEU.de>).

IFEU (2000a) Knörr W, Hoepfner U, et al. IFEU, Fortschreibung Daten- und Rechenmodell: Energieverbrauch und Schadstoffemissionen aus dem motorisierten Verkehr. Endbericht. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 298 45 105, August 2000.

IFEU (1999) Knörr W, Fortschreibung Daten- und Rechenmodell. Teil 1: Daten. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 298 45 105, Juli 1999.

IFEU (1997) Knörr W, Lambrecht U, et al. IFEU, Daten- und Rechenmodell. Schadstoffemissionen aus dem motorisierten Verkehr in Deutschland 1980 – 2020: Endbericht. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 105 06 057, Dezember 1997.

IFEU (1992) Höpfner U, et al. IFEU Heidelberg, PROGNOSE AG, UBA, Vergleich verschiedener Emissionsmodelle: Verkehrsbedingte Stickstoffoxid- und Kohlenwasserstoffemissionen in Westdeutschland 1988 und 2000 – Kurze Darstellung der Situation in Deutschland – Zwischenbilanz für 1998. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, 1992.

Infras (1999) Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. Version 1.2, Januar 1999. Infras AG, Bern.

Jacob E, Rothe D, Schlögl R, Su DS, Müller J-O, Nießner R, Adelhelm C, Messerer A, Pöschl U, Müllen K, Simpson C, Tomovic Z (2003) Dieselruß: Mikrostruktur und Oxidationskinetik. In : VDI (2003), 19-45

Johnson JH (1988) Automotive Emissions, S. 39 – 75. In : Watson AY, Bates RR, et al. (1988).

KBA: Kraftfahrt-Bundesamt (Hrsg.) Statistische Mitteilungen, Reihe 1 und 2: Kraftfahrzeuge. Erscheinungsweise jährlich (Reihe 1) bzw. monatlich (Reihe 2), Flensburg.

Kittelson D (1999a) Influence of Sampling and Dilution Conditions on Nanoparticle Measurements, 3. International ETH Workshop on Nanoparticle Measurements 9./10. August 1999, Proceedings, ETH Zürich 1999. Zitiert in IFEU (2000).

Kittelson D (1999b) Formation on Nanoparticles during Exhaust Dilution, EFI Member Conference: "Fuels, Lubricants Engines & Emissions. Zitiert in IFEU (2000).

Kittelson D (1999c) Review of Diesel Particulate Matter Sampling Methods – Final Report, Januar 1999. Zitiert in IFEU (2000).

Kittelson D (1998) Zitiert in ACEA (1999).

Koch W (2003) Das dynamische Verhalten von ultrafeinen Aerosolen, in BIA (2003)

Kohoutek P, Metz N, et al. (1999) Particulate Matter Emissions from Modern Diesel Engines, Impact of Fuel Quality and PM-Development from Road Transport in Germany, 7th International Inhalation Symposium "Relationship between acute and chronic effects of air pollution". Hannover, 22.02.1999.

Krahl J (2001) Rapsölmethylester in dieselmotorischer Verbrennung. Emissionen, Umwelteffekte, Optimierungspotenziale. Landbauforschung Völkenrode, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Braunschweig, Sonderheft 233.

Krahl J, Baum K, Hackbarth U, Jeberien H-E, Munack A, Schütt C, Schrödter O, Walter N, Bünger J, Müller MM, Weigel A (2001) Gaseous compounds, ozone precursors, particle number and particle size distributions, and mutagenic effects due to biodiesel. Transactions of the American society of Agricultural Engineers 44(2): 179-191.

KRdL, Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN (2003a) Bewertung des aktuellen wissenschaftlichen Kenntnisstandes zur gesundheitlichen Wirkung von Partikeln in der Luft.

KRdL, Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN (2003b) Bewertung des aktuellen wissenschaftlichen Kenntnisstandes zur gesundheitlichen Wirkung von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid.

Kreyling WG (2003) Deposition, Retention, Clearance von ultrafeinen Partikeln. In: BIA (2003), 15-39.

Kreyling WG, Tuch T, Peters A, Pitz M, Heinrich J, Stölzel M, Cyrus J, Heyder J, Wichmann HE (2003) Diverging long-term trends in ambient urban particle mass and number concentrations associated with emission changes caused by the German unification. *Atm. Environm* 37: 3841 – 3848.

Kuhlbusch T, John, A, Schmidt K-G, Schmidt F, Fissan H (2000) Korngrößenabhängige Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen. Abschlussbericht für das Ministerium für Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft, NRW.

Landesumweltamt NRW, Umwelt NRW Daten und Fakten. Im Internet unter (www.lua.nrw.de/ubweb/start.htm)

LAI, Länderausschuss für Immissionsschutz (1991) Beurteilungsmaßstäbe zur Begrenzung des Krebsrisikos durch Luftverunreinigungen.

Lenz H P, Prüller S (2003) Emissionen und Immissionen von Abgaskomponenten, Fortschrittsbericht VDI Reihe 12 Nr. 528.

Lies K-H et al. (1988) Nicht limitierte Automobil-Abgaskomponenten, Volkswagen AG, Wolfsburg. Zitiert in SRU (1994).

Lindecke B (1994) Dieselmotoremissionen – Ergebnisse eines Forschungsvorhabens. *Kali und Steinsalz* 11, Nr. 7, S. 11. Zitiert in: Mattenklott M, Bagschik U, et al. (2002) Dieselmotoremissionen am Arbeitsplatz. *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 62, Nr. 1/2, S. 13-23.

Mattenklott M, Bagschik U, et al. (2002) Dieselmotoremissionen am Arbeitsplatz. *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 62, Nr. 1/2, S. 13-23.

Mayer A (2003) Geprüfte und erprobte Partikelfilter-Systeme für die Nachrüstung von Dieselmotoren. Kolloquium Filtertechnik 2003, Karlsruhe 26. März 2003.

Mayer A (1999) Ansätze zur Standardisierung der Feinpartikelemissionen. Haus der Technik e.V., Feinpartikelemissionen von Verbrennungsmotoren, 12. – 13. Oktober 1999, Tagungsband, München 1999. Zitiert in IFEU (2000).

Mayer A (1995) Gefahrstoffemissionen von Dieselmotoren im Tunnelbau. *Tiefbau* 8: 568-571.

Metz N (2003) Bewertungskriterien für die Wirkung von Dieselruß. In: VDI (2003), 1-18

Metz N (2003a) Abgasemissionen des Straßenverkehrs. VKA-RWTH – Motortechnisches Seminar Aachen 14. Juli 2003

Metz N (1999) Air Quality and Exposure for Total Suspended Particulates TSP, PM 10, PM 2.5 and Soot in German Cities, 7th International Inhalation Symposium “Relationship between acute and chronic effects of air pollution”. Hannover, 22.02.1999.

Metz N, Resch G, et al. (2000) Größenverteilung und Charakterisierung der Rußpartikel moderner Dieselmotoren, Sonderdruck aus: Motortechnische Zeitschrift 61 Heft 1.

Metz N, Resch G, Steinparzer F (1999) Characterization Of Particulate Matter Emission Of Modern Diesel Passenger Cars, Symposium „Transport and Air Pollution“ Includ. COST 319 Final Conference, Graz 31.05. – 02.06.1999.

Mücke W (2002) Wirkung und Erfassung von Fein- und Ultrafeinstäuben. Tagung 14.02.2002 Institut für Toxikologie und Umwelthygiene der Technischen Universität München.

Mutart D (1993) Dieselmotor zwischen Ökologie und Steuerschraube, VDI-Nachrichten MZ 18. Zitiert in: Lenz H P, Prüller S (2003) Emissionen und Immissionen von Abgaskomponenten, Fortschrittsbericht VDI Reihe 12 Nr. 528, S. 10.

MWV Mineralölwirtschaftsverband (Hrsg.) Mineralöl-Zahlen. Erscheinungsweise jährlich, Hamburg.

Nauss KM, Busby WF jr., Cohen AJ, Gareth MG, Higgins MWP, McClellan RO, Rosenkranz HS, Sawyer RF, Upton A, Watson AY, Watts WF jr., Winer AM (1995) Critical issues in assessing the carcinogenicity of diesel exhaust: A synthesis of current knowledge. In: HEI (1995), 11-61.

OECD (2001) (2001) Vehicle Emission Reductions, European Conference Of Ministers Of Transport (ECMT).

Pitz M, Kreyling WG, Hölscher B, Cyrys, Wichmann HE, Heinrich J (2003) Change of the ambient particle size distribution in East Germany between 1993 and 1999. Atmospheric Environment 35: 4357-4366.

Putaud J-P, van Dingenen R, Baltensperger U, Brüggemann E, Charron A, Facchini M-C, Decesari S, Fuzzi S, Gehrig R, Hansson H-C, Harrison R M, Jones A M, Laj P, Lorbeer G, Maenhaut W, Mihalopoulos N, Müller K, Palmgren F, Querol X, Rodriguez S, Schneider J, Spindler G, ten Brink H, Tunved P, Torseth K, Weingartner E, Wiedensohler A, Wahlin P, Raes F (2002) A European Aerosol Phenomenology, verfügbar auf der Internetseite der Europäischen Umweltbehörde (<http://ies.jrc.cec.eu.int/Download/cc>).

Rauterberg-Wulff A (1998) Beitrag des Reifen- und Bremsabriebs zur Rußemission an Straßen, Fortschritt-Bericht VDI Reihe 15 Nr. 202, Düsseldorf, 1998.

RICARDO (2003) UK Particle Measurement Programme Phase 2 – Heavy Duty Methodology Development Final Report.

RICARDO (2001) Diesel Passenger Car and Light Commercial Vehicle Markets in Western Europe.

RICARDO (2001a) DETR/SMMT/CONCAWE particulate research programme 1998-2001. Summary report.

Rogge WF et al. (1993) Sources of fine organic aerosol. Part 2 Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. Environmental Science and Technology 27, No. 4: 636-651.

Rogge WF et al. (1993) Sources of fine organic aerosol. Part 3. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. Environmental Science and technology 27: 636-651. Zitiert in SRU (1994).

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (www.umwelt.sachsen.de).

Sawyer RF, Johnson JJ (1995) Diesel emissions and control technology. In HEI (1995) 65-81.

Spengler J, Wilson R (1997) Particles in our air: Concentrations and health effects. Cambridge: Harvard University Press Emissions, dispersion and concentration of particles. 41-62.

Spiegel Online (2003) Diesel-Partikelfilter; www.spiegel.de vom 02. Juli 2003

SRU (2002) Der Rat von Sachverständigen für Umweltfragen, Umweltgutachten 2002, zitiert in UBA (2003).

SRU (1994) Der Rat von Sachverständigen für Umweltfragen, Umweltgutachten 1994; Verlag Metzler-Poeschel, Stuttgart.

Stein HJ (2001) Einfluß von Motortechnik und Abgasbehandlung auf Größenverteilung, Zahl und Masse der Partikeln von Nutzfahrzeug-Dieselmotoren. VDA-Kongreß 2001.

Tuch TM, Wehner B, Pitz M, Cyrus, J, Heinrich J, Kreyling WG, Wichmann HE, Wiedensohler A (2003, in press) Long-term measurements of size-segregated ambient aerosol in two German cities located 100 km apart. Atmospheric Environment.

TWIN-TEC (2003) Produktinformation; <http://www.dieselfilter.de/>

UBA (2003a) Dieselfahrzeuge; Stand 14.11.2003 (www.umweltbundesamt.de).

UBA (2003) Future Diesel. Abgasgesetzgebung Pkw, leichte Nfz und LKW - Fortschreibung der Grenzwerte bei Dieselfahrzeugen (<http://www.umweltbundesamt.org/fpdf-l/2353.pdf>)

UBA (2002) Umweltdaten Deutschland 2002

UBA (2001) Daten zur Umwelt - Der Zustand der Umwelt in Deutschland, Ausgabe 2000. Erich Schmidt Verlag, Berlin

UBA (1999) und UBA (2/99) siehe UBA-Berichte (2/99).

UBA (1999a): Lambrecht U, Höpfner U, Borken J, Voß J-U, Boehncke A, Mangelsdorf I, Heinrich U, Schneider K, Roller M (1999a) Immissionsnaher Risikovergleich von Diesel- und Ottoabgasen. Auswirkungen zukünftiger Grenzwerte auf die Luftqualität und die Gesundheit. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, November 1999.

UBA (1997) Nachhaltiges Deutschland. Wege zu einer dauerhaft umweltgerechten Entwicklung.

UBA-Berichte (2/99): Heinrich U, Mangelsdorf I, Aufderheide M, Boehncke A, Melber C, Rosner G, Höpfner U, Borken J, Patyk A, Pott, Roller M, Schneider K, Voß J-U (1999) Durchführung eines Risikovergleiches zwischen Dieselmotoremissionen und Ottomotoremissionen hinsichtlich ihrer kanzerogenen und nicht-kanzerogenen Wirkung. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 216 04 001/1, Berlin 1999.

UBA-Berichte (5/95) Hassel D, Jost P, et al. (1995) Abgas-Emissionsfaktoren von Nutzfahrzeugen in der Bundesrepublik Deutschland für das Bezugsjahr 1990. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 104 05 151/02, Berlin 1995.

UBA-Berichte (8/94) Abgas-Emissionsfaktoren von Pkw in der Bundesrepublik Deutschland – Abgasemissionen von Fahrzeugen der Baujahre 1986 bis 1990. Im Auftrag des Umweltbundesamtes UFOPLAN Nr. 104 05 152 und 104 05 509, Berlin 1994.

UBA-Berichte (7/87) Hassel D, Dursbeck F, Brosthaus J, Jost P, Hofmann K (1987) Das Abgas-Emissionsverhalten von Personenkraftwagen in der Bundesrepublik Deutschland im Bezugsjahr 1985. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Forschungsbericht 104 05 143 Berlin 1987.

UBA-Berichte (11/83) Hassel D, Brosthaus J, Dursbeck F, Jost P, Sonnborn K-S, TÜV Rheinland (1983) Das Abgas-Emissionsverhalten von Nutzfahrzeugen in der Bundesrepublik Deutschland im Bezugsjahr 1980. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Forschungsbericht 104 05 740/02. Berlin 1983.

UBA-Texte (69/02) Beilke S, Berg R, Bieber E, Uhse K, Wallasch M (2002) Jahresbericht 2001 aus dem Messnetz des Umweltbundesamtes. Kapitel 3.1 Messungen von Feinstaub im Messnetz des Umweltbundesamtes (<http://www.uba.de>)

UMEG (2002) Jahresbericht 2002, Karlsruhe, August 1999.

UMEG (1999) Rußbericht 1998 – Rußmessprogramm Baden-Württemberg – Abschlussbericht, Bericht Nr. 31-5/1999, Karlsruhe, Juni 1999.

UMEG (1997) Feinstaub im Schwebstaub – Abschlussbericht (Messzeitraum 10.10.1995 bis 30.11.1996). Auftraggeber Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg, Bericht Nr. 33/04/97, Karlsruhe, Juni 1997.

UmweltMagazin (2003) Wismut fährt mit Biodiesel. www.technikwissen.de vom 26.11.2003

UmweltMagazin (2003a) Public private partnership zur Biodieselproduktion in Indien. www.technikwissen.de vom 25.11.2003

UmweltMagazin (2003) Erste Tankstelle mit Harnstoff-Zapfanlage in Betrieb; www.technikwissen.de vom 13.10.2003

UmweltMagazin (2002) Ab Januar alle Kraftstoffe schwefelfrei; www.technikwissen.de vom 28.12.2002; 8(5), 252

Umweltmed Forsch Prax (2003) Diesel-Pkw: Nachrüstung mit Partikelfilter ist machbar- Umweltbundesamt fährt erstmals Dienstwagen mit Dieselmotor.

US EPA, U.S. Environmental Protection Agency (2002) Health Assessment Document for Diesel Engine Exhaust, Final Report EPA/600/8-90/057F (<http://www.epa.gov/ncea>).

VDA, Verband der Automobilindustrie e.V. (1997) Auto und Klima.

VDI Fortschritt-Berichte (2003) 24. Internationales Wiener Motorensymposium 15.-16. Mai 2003. Reihe 12, Nr. 539

VDI Fortschritt-Berichte (2001) 22. Internationales Wiener Motorensymposium 2001. Reihe 12 Nr., 455

VDI-Nachrichten (2003) LKW emittieren immer weniger Schadstoffe; 26.09.2003

VDI-Nachrichten (2003) Biodiesel-Boom schafft Probleme; 16.05.2003

VDI-Nachrichten (2003) Dieselfahrzeuge schlucken Erdgas; 09.05.2003

VDI-Nachrichten (04/2003) Entwicklung Dieselmotoremissionen.

VDI (2002) Dieselmotorentechnik. U. Essers (Hrsg.) Expert-Verlag, Renningen

ViZ Verkehr in Zahlen. Bearbeitet vom Deutschen Institut für Wirtschaftsforschung (DIW), Bundesverkehrsministerium (Hrsg.), Erscheinungsweise jährlich Bonn/Berlin.

Watson AY, Bates RR et al. (1988) Air Pollution, the Automobile, and Public Health. Health Effects Institute (HEI), National Academic Press.

WHO: WHO Regional Office for Europe (2002) European health report 2002. Abrufbar unter http://www.euro.who.int/europeanhealthreport/20020903_2

WHO (1996) Diesel Fuel and Exhaust Emissions. Environmental Health Criteria 171.

WHO (2000) WHO air quality guidelines for Europe, 2nd Edition. WHO regional publications, European Series No. 91

WHO (1999) Air Quality Guidelines (www.who.int)

Wichmann H-E (2003) Abschätzung positiver gesundheitlicher Auswirkungen durch den Einsatz von Partikelfiltern bei Dieselfahrzeugen in Deutschland. Stand 7.6.2003 <http://www.umweltbundesamt.org/fpdf-l/2352.pdf>

Wichmann H-E (2003a) Epidemiologie ultrafeiner Partikel. In: BIA (2003)

Wolf A et al. (1993) Platin- und Rhodiumemissionen durch Katalysatorfahrzeuge. Forschungsbericht "Edelmetallemissionen durch Personenkraftwagen mit Katalysatortechnik". Universität Hamburg, Institut für Gewerblich-Technische Wissenschaften. Zitiert in SRU (1994).

Zimmermann R (2002) Erfassung und Analytik von Fein- und Ultrafeinstäuben. In: Mücke (2002).

8.2 Literaturverzeichnis Toxikologie

- Abbey DE et al. (1999) Longterm inhalable particles and other air pollutants related to mortality in nonsmokers, *Am J. Respir. Crit. Care Med.* 159: 373-382
- Alberg J et al. (1981) Cancer in professional drivers Problem-Orientated Registry study, *Lakartidningen* 78154: 5-6
- Beck-Speier I. et al. (2002): Biochemische Mechanismen der Wirkung ultrafeiner Kohlenstoffpartikel: Einfluss von Oberfläche und oxidativem Potential, in: Mücke (2002)
- Boffetta P et al. (1988) Diesel exhaust exposure and mortality among males in the American Cancer Society prospective study, *Am. J. Ind. Med.* 14: 403-415
- Bofetta P and Silverman D.T. (2001): A meta-analysis of bladder cancer and diesel exhaust exposure. *Rev. Epidem.* 12: 125-130
- Brightwell J et al. (1986) Neoplastic and functional changes in rodents after chronic inhalation of engine exhaust emissions. In: Ishinishi, N et al. (eds) *Carcinogenic and mutagenic effects of diesel engine exhaust*, Amsterdam, Elsevier, 471-485
- Brightwell J et al. (1989) Tumors of the respiratory tract in rats and hamsters following chronic inhalation of engine exhaust emissions, *J. Appl. Toxicol.* 9: 23-31
- Crump KS (1999): Lung cancer mortality and diesel exhaust: Reanalysis of a retrospective cohort study of U.S. railroad workers. *Inhal. Toxicol.* 11: 1-17
- Daniels M et al. (2000) Estimating particulate matter-mortality dose-response curves and threshold levels: an analysis of daily time series for the 20 largest US cities. *Am. J. Epidemiol.* 152: 397-406
- Dasenbrock C et al. (1996) The carcinogenic potency of carbon particles with and without PAH after repeated intratracheal administration in the rat. *Toxicol. Lett.* 110: 1-7
- Dockery DW et al. (1993) An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *N. Engl. J. Med.* 329: 1753-1759
- Driscoll KE (1996) The role of inflammation in the development of rat lung tumors in response to chronic particle exposure. *Inhal. Toxicol.* 8 (Suppl.), 139-153
- Driscoll KE et al. (1996) Pulmonary, inflammatory, chemokine, and mutagenic responses in rats after subchronic inhalation of carbon black. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 136: 372-380

Enya T et al. (1997): 3-Nitrobenzanthrone, a powerful bacterial mutagen and suspected human carcinogen found in Diesel exhaust and airborne particulates. *Environ. Sci. Technol.* 31: 2772-2776

Garshick E et al. (1988) A retrospective cohort study of lung cancer and diesel exhaust exposure in railroad workers. *Am. Rev. Resp. Dis.* 137: 820-825

Hansen ES (1983) A follow-up study on the mortality of truck drivers. *Am. J. Ind. Med.* 23: 811-821

HEI (Health Effects Institute) (1999): Diesel emissions and lung cancer: Epidemiology and quantitative risk assessment. A special report of the institute's Diesel Epidemiology Expert Panel

HEI (Health Effects Institute) (2003): Communication 11: Assessing health impact of air quality regulations: concepts and methods for accountability research

Heinrich U et al. (1995): Chronic inhalation exposure of Wistar rats and two different strains of mice to diesel engine exhaust, carbon black, and titanium dioxide. *Inhal. Toxicol.* 7: 533-556

Heinrich U et al. (1986): Chronic effects on the respiratory tract of hamsters, mice, rats after long-term inhalation of high concentrations of filtered and unfiltered diesel engine emissions. *J. Appl. Toxicol.* 6: 383-395

Henderson RF et al. (1988) Response of rodents to inhaled diluted diesel exhaust: biochemical and cytological changes in bronchoalveolar lavage fluid and in lung tissue. *Fund. Appl. Toxicol.* 11: 456-567

Heyder J et al. (1986) Deposition of particles in the human respiratory tract in the size range 0.005-15 µm. *J. Aerosol Sci.* 17: 811-825

IARC (1992): IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Vol 54: Occupational Exposures to Mists and Vapours from Strong Acids, and Other Industrial Chemicals. WHO, Lyon

IARC (1995): IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Vol 62: Wood Dust and Formaldehyde. WHO, Lyon

IARC (1989): IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Vol. 46: Diesel and Gasoline Engine Exhaust. WHO, Lyon

Ishinishi N et al. (1986) Long-term inhalation studies on effects of exhaust from heavy and light duty diesel engines on F344 rats. In: Ishinishi, N et al. (eds) Carcinogenic and mutagenic effects of diesel engine exhaust. Amsterdam, Elsevier, 329-348

Iwai K et al. (1997) Lung tumor induced by long-term inhalation or intratracheal instillation of diesel exhaust particles. *Exp. Toxic Pathol.* 49: 393-401

Jakobsson R et al. (1997) Increased risk of lung cancer among male professional drivers in urban but not in rural areas of Sweden. *Occup. Environ. Med.* 54: 189-193

Kaplan HL et al. (1983): Studies of potential health effects of long-term exposure to diesel exhaust emissions. Final Report No. 01-0750-103 und No. 1239, South West Res. Inst., Texas (aus UBA 1999)

Kappos A et al. (2003): Bewertung des aktuellen wissenschaftlichen Kenntnisstandes zur gesundheitlichen Wirkung von Partikeln in der Luft. *Umweltmed. Forsch. Prax.* 8: 257-278

Krewski D et al. (2000) Reanalysis of the Harvard Six Cities Study and the American Cancer Society Study of particulate air pollution and mortality. HEI Cambridge MA, Special Report: 1-293

Künzli N, Medina S, Kaiser R, Quénel P, Horak F jr., Studnicka M (2001) Assessment of deaths attributable to air pollution: should we use risk estimates on time series or on cohort studies? *Am J Epidemiol* 153: 1050-1055

Künzli N et al. (2000) Public health impact of outdoor and traffic-related air pollution : A European assessment. *Lancet* 356: 795-801

Larkin EK et al. (2000) Diesel exhaust exposure and lung cancer: Adjustment for the effect of smoking in a retrospective cohort study. *Am. J. Ind. Med.* 38: 399-409

Lewis TR et al. (1986): A chronic inhalation toxicity study of diesel engine emissions and coal dust, alone and combined. In: *Carcinogenic and mutagenic effects of diesel engine exhaust* (Ishinishi, N. et al., eds.). *Develop. Tox. Environ. Sci.* 13: 329-348, Elsevier, Amsterdam (aus UBA 1999)

Lee KP et al. (1985) Pulmonary response of rats exposed to titanium dioxide (TiO₂) by inhalation for 2 years, *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 79: 179-192

MAK (1987): Senatskommission für die Bewertung von MAK-Werten: Dieselmotor-Emissionen, in: *Toxikologisch-arbeitsmedizinische Begründung von MAK-Werten* (Henschler, D., Hrsg.), VCH Weinheim

Mauderly JL (1997) Relevance of Particle-induced Rat Lung Tumors for Assessing Lung Carcinogenic Hazard and Human Lung Cancer Risk. *Environ. Health Perspectives* 105 (Suppl. 5): 1337-1346

Mauderly JL (1992) Diesel exhaust. In: *Environmental Toxicants: Human Exposures and Their Health Effects*, M Lippmann (ed) New York: Van Nostrand Reinhold: 119-162

Mauderly JL et al. (1987) Diesel exhaust is a pulmonary carcinogen in rats exposed chronically in inhalation. *Fundam. Appl. Toxicol.* 9: 208-221

Morrow PE (1988) Possible mechanisms to explain dust overloading of the lungs. *Fundam. Appl. Toxicol.* 10: 369-384

Mücke W (2002) Wirkung und Erfassung von Fein- und Ultrafeinstäuben. Tagung 14.02.2002 Institut für Toxikologie und Umwelthygiene der Technischen Universität München.

Muhle H. et al. (1990a): Dust overloading of lungs: investigations of various materials, species differences, and irreversibility of effects. *J. Aerosol Med.*, 3 (Suppl. 1): S111-S128

Muhle H. et al. (1990b): Dust overloading of lungs after exposure of rats to particles of low solubility: comparative studies. *J. Aerosol Sci.* 21: 374-377

Muhle H. (2002): Akute und chronische Toxizität von Feinstäuben; in: Mücke (2002)

Neumann H-G (1988): Hemoglobin binding in control of exposure to and risk assessment of aromatic amines. *IARC Sci. Publ.* 89: 771-778

Nikula KJ et al. (1995) Comparative pulmonary toxicities and carcinogenicities of chronically inhaled diesel exhaust and carbon black in F344 rats. *Fundam. Appl. Toxicol.* 25: 80-94

Nikula KJ et al. (1997) Lung tissue responses and sites of particle retention differ between rats and cynomolgus monkeys exposed chronically to diesel exhaust and coal dust. *Fundam. Appl. Toxicol.* 37: 37-53

Oberdörster G (1997): Pulmonary carcinogenicity of inhaled particles and the maximum tolerated dose. *Environ. Health Perspectives*: 105 (Suppl. 5): 1347 - 1355

Pope CA (1995): Particulate air pollution as predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* 151: 669- 674

Pott F und Roller M (2003): Untersuchungen zur Kanzerogenität granulärer Stäube an Ratten –Ergebnisse und Interpretationen. Kurzbericht über das Projekt F1843 der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin, veröffentlicht am 28.08.2003 im Internet unter <http://www.baua.de/fors/f1843.htm>

Röösli M et al. (2003): Single pollutants versus surrogate measure approaches: Do single pollutant risk assessments underestimate the impact of air pollution on lung cancer risks? *J. Occup. Environ. Med.* 45: 715-723

Rushton L et al. (1983): Epidemiological survey of maintenance workers in London Transport Executive bus garage sand Chiswick Works. *BrJ Ind. Med.* 40: 340-345

Samet JM et al. (2000a) National Morbidity, Mortality and Air Pollution Study, Part I: Methods and methodologic issues. HEI Cambridge MA, Nr. 94: Part I, 1-85

Samet JM et al. (2000b) National Morbidity, Mortality and Air Pollution Study, Part I: Methods and methodologic issues. HEI Cambridge MA, Nr. 94: Part II, 1-81

Seiler, F.; Rehn, B; Rehn, S.; Hermann, M.; Bruch, J. (2001): Quartz exposure of the rat lung leads to a linear dose response in inflammation but not in oxidative DNA damage and mutagenicity. *Am. J. Respir. Cell Mol. Biol.* 24: 492-498

Schuetzle D und Frazier JA (1986): Factors influencing the emissions of vapor and particulate phase components from diesel engines. In: *Carcinogenic and Mutagenic Effects of Diesel Engine Exhaust*, eds: Ishinishi N, Koizumi A, McClellan RO and Stöber W, 41-64.

Schulz M (1996): Comparative pathology of dust-induced pulmonary lesions: significance of animal studies to humans. *Inhal. Toxicol.* 8: 433-456

Snipes MD (1996) Current information on lung overload in nonrodent mammals: contrast with rats. *Inhal. Toxicol.* 8 (Suppl.): 91-109

Tong HY und Karasek FW (1984): Quantitation of polycyclic aromatic hydrocarbons in diesel exhaust particulate matter by high-liquid chromatography fractionation and high-resolution gas chromatography. *Anal. Chem.* 56: 2129-2134.

UBA (1999): Durchführung eines Risikovergleichs zwischen Dieselmotoremissionen und Ottomotoremissionen hinsichtlich ihrer kanzerogenen und nicht-kanzerogenen Wirkung. Umweltbundesamt Berlin, Berichte 2/99, Erich Schmidt Verlag Berlin

Umweltbundesamt (UBA) (2003): Future Diesel: Abgasgesetzgebung, leichte Nfz und LKW – Fortschreibung der Grenzwerte bei Dieselfahrzeugen. UBA, Berlin Juli 2003

US EPA (2002) : Health Assessment Document for Diesel Engine Exhaust. EPA/600/8-90/057F, Mai 2002

Valberg PA und Crouch EA (1999): Meta-analysis of rat lung tumors from lifetime inhalation of diesel exhaust. *Environ. Health Perspect.* 107(9): 693-699

Valberg PA und Watson AY (1996) Analysis of diesel-exhaust unit-risk estimates derived from animal bioassays. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 24: 30-44.

Valberg PA und Watson AY (2000): Lack of concordance between reported lung-cancer risk levels and occupation-specific diesel-exhaust exposure. *Inhal. Toxicol.*, 12(Suppl.1): 199-208

WHO (1989): Formaldehyde. Environmental Health Criteria 89, WHO Genf

Wichmann E: Abschätzung positiver gesundheitlicher Auswirkungen durch Einsatz von Partikelfiltern bei Dieselfahrzeugen in Deutschland. Gutachten im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin, 07. Juli 2003

Yu CP und Xu GB (1987): Predictive models for deposition of inhaled diesel exhaust particles in humans and laboratory species. Health Effects Institute (HEI), Research Rep. No. 10

Yu CP und Yoon KJ (1990): Retention modelling of diesel exhaust particles in rats and humans. Health Effects Institute (HEI), Research Rep. No. 40

Zwirner-Baier I. Neumann H-G (1999): Polycyclic nitroarenes (nitro-PAH) as biomarker of exposure to diesel exhaust. Mutation Research 441: 135-144