

# Zeitliche Entwicklung der NO<sub>2</sub> – Immissionen an verkehrsbelasteten städtischen Standorten

Bestimmung der direkten NO<sub>2</sub> – Emissionen des Strassenverkehrs durch Auswertung von langjährigen Immissionsdaten von zwei städtischen Messstationen in Zürich

September 2016 (Aktualisierung des Berichts vom Juni 2012)

## Inhalt

Zusammenfassung .....	3
Résumé .....	5
1 Einleitung .....	7
2 Hintergrund .....	8
3 Methode .....	10
4 Resultate .....	11
5 Box- Modell zur Bestimmung der Abhängigkeit von NO <sub>2</sub> und NO <sub>x</sub> .....	19
6 Abschätzung der Emissionsentwicklung .....	22
7 Fazit .....	25
8 Danksagung .....	26
9 Literatur .....	26
10 Anhang .....	27

**Bericht:** **Zeitliche Entwicklung der NO<sub>2</sub> – Immissionen an verkehrsbelasteten städtischen Standorten**

Bestimmung der direkten NO<sub>2</sub> – Emissionen des Strassenverkehrs durch Auswertung von langjährigen Immissionsdaten von zwei städtischen Messstationen in Zürich

September 2016 (*Aktualisierung des Berichts vom Juni 2012*)

**Autor:** Christoph Hüglin

**Adresse:** Empa, Abteilung Luftfremdstoffe und Umwelttechnik  
Überlandstrasse 129, 8600 Dübendorf

**Kontakt:** christoph.hueglin@empa.ch

Dieser Bericht ist abrufbar unter: <http://www.empa.ch/web/s503/nabel>

## Zusammenfassung

Die Emissionen von Stickoxiden ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) aus dem Strassenverkehr und anderen Emissionsquellen nehmen seit Beginn der 1990er Jahre kontinuierlich ab. Die  $\text{NO}_x$ -Immissionsbelastung folgt der zeitlichen Entwicklung der Stickoxidemissionen, dagegen sind die  $\text{NO}_2$ -Belastungen an verkehrsnahen Standorten weniger stark gesunken. Ein Grund hierfür sind einerseits atmosphärenchemische Prozesse die dafür sorgen, dass sich eine Abnahme der  $\text{NO}_x$ -Immissionsbelastung nicht in gleichem Masse auf die  $\text{NO}_2$ -Konzentration in der Aussenluft auswirkt. Andererseits könnte ein Anstieg des Anteils von  $\text{NO}_2$  am gesamten Stickoxid im Abgas der Fahrzeuge zu einem Anstieg der direkten  $\text{NO}_2$ -Emissionen des Strassenverkehrs geführt haben. Das Ziel dieser Studie ist es, die zeitliche Entwicklung des  **$\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses ( $f\text{-NO}_2$ )** des innerstädtischen Strassenverkehrs anhand von Immissionsmessungen in der Stadt Zürich zu bestimmen, sowie die Bedeutung der Entwicklung von  $f\text{-NO}_2$  für die  $\text{NO}_2$ -Immissionen an verkehrsbelasteten städtischen Standorten zu untersuchen.

Die Auswertungen zeigen, dass das  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnis des innerstädtischen Strassenverkehrs von etwa 7% in den 1990er Jahren auf etwa 13% im Jahr 2015 angestiegen ist. Die Gründe hierfür sind der gestiegene Anteil von Dieselfahrzeugen sowie die Einführung von neuen Abgasreinigungssystemen bei Dieselfahrzeugen. Der in Zürich ermittelte Anstieg des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses ist grundsätzlich in Übereinstimmung mit Untersuchungen in anderen europäischen Ländern. Allerdings sind die in dieser Studie ermittelten Werte von  $f\text{-NO}_2$  tiefer als solche, die aufgrund von Emissionsabschätzungen zu erwarten wären.

Der Anstieg des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs kann nur zu einem kleinen Teil die immer noch zu hohen  $\text{NO}_2$ -Belastungen an strassennahen städtischen Standorten erklären. Die Auswertungen in Zürich zeigen, dass an einer stark befahrenen Strasse in Zürich die direkten  $\text{NO}_2$ -Emissionen des lokalen Strassenverkehrs im jährlichen Mittel ungefähr 14% zur  $\text{NO}_2$ -Belastung beitragen (Mittelwert von 2013-2015). Die  $\text{NO}_2$ -Belastung am Standort Zürich-Schimmelstrasse ist massgeblich durch den städtischen  $\text{NO}_2$ -Hintergrund und dem lokal aus  $\text{NO}$  gebildeten  $\text{NO}_2$  (sog. lokal gebildetes sekundäres  $\text{NO}_2$ ) bestimmt. Die mittleren jährlichen Beiträge dieser beiden Faktoren betragen an diesem strassennahen Standort ungefähr 70% bzw. 16% (jeweils Mittelwert der Jahre 2013-2015). Die zeitliche Entwicklung der Aufteilung dieser verschiedenen Beiträge zu den  $\text{NO}_2$ -Immissionen am strassennahen städtischen Standort in Zürich ist in der Abbildung Z.1 dargestellt.

Bei Witterungslagen, welche an verkehrsbelasteten Standorten zu erhöhten  $\text{NO}_2$ -Immissionen führen, ist die lokale sekundäre  $\text{NO}_2$ -Bildung häufig gering. Der Anteil der primären  $\text{NO}_2$ -Emissionen an der  $\text{NO}_2$ -Belastung ist an solchen Standorten während diesen Phasen überdurchschnittlich hoch. Entsprechend würde sich ein verminderter Anteil von  $\text{NO}_2$  im Abgas der Fahrzeuge bei den kurzzeitigen  $\text{NO}_2$  Spitzen stärker auswirken als im jährlichen Mittel. Im Jahr 2015 trugen am strassennahen Standort in Zürich die primären  $\text{NO}_2$  Emissionen des lokalen Verkehrs an einem Tag 51% zum  $\text{NO}_2$ -Tagesmittelwert bei, an 10% der Tage war der Beitrag von primärem  $\text{NO}_2$  grösser als 30%.

Eine Reduktion des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs alleine hätte nur geringe Auswirkungen auf die mittlere jährliche  $\text{NO}_2$ -Konzentration an den stark belasteten städtischen Standorten. Für eine wirkungsvolle Minderung der  $\text{NO}_2$ -Immissionen sind weitere Reduktionen der  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs sowie anderer wichtiger Emittenten notwendig. Die Prognosen für die zukünftigen  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs zeigen für die Zeit bis 2030 kontinuierlich abnehmende Emissionen, so dass eine weiter anhaltende Abnahme der  $\text{NO}_2$ -Belastung in den kommenden Jahren an den verkehrsbelasteten städtischen Standorten in der Schweiz eintreten sollte. Dies setzt allerdings voraus, dass die erwartete

Abnahme der NO<sub>x</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs auch tatsächlich erfolgt. Dazu ist es zwingend erforderlich, dass die neuen Generationen von Fahrzeugen (Personenwagen und Nutzfahrzeuge) die geltenden Abgasvorschriften auch im realen Einsatz erfüllen.

Dieser Bericht behandelt die NO<sub>2</sub>-Belastung an den am stärksten belasteten Standorten an stark befahrenen städtischen Strassen. Es sollte hier erwähnt werden, dass es neben der Minderung der NO<sub>2</sub>-Belastung an diesen Standorten weitere wichtige Gründe für eine generelle Reduktion der NO<sub>x</sub>-Emissionen durch den Strassenverkehr wie auch durch andere Emissionsquellen gibt: Abnehmende NO<sub>x</sub>-Emissionen tragen zu einer Minderung der Ozon- und Feinstaubbelastung bei, sowie zu einer Reduktion des Eintrages von Stickstoffverbindungen in naturnahe Ökosysteme.

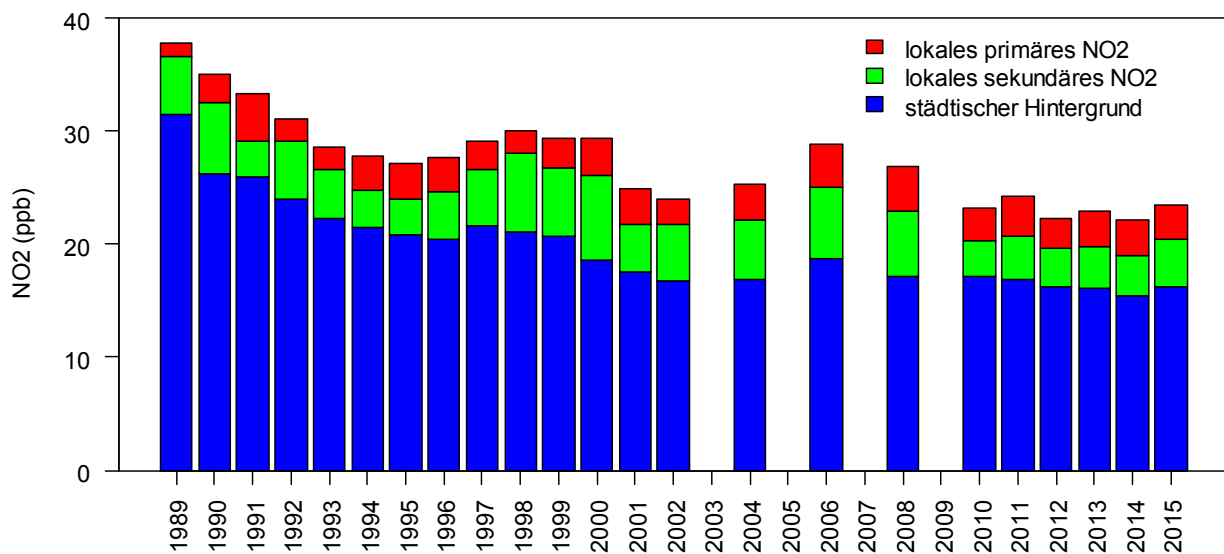


Abbildung Z.1: Aufteilung der jährlichen NO<sub>2</sub>-Immissionen am Standort Zürich-Schimmelstrasse in die Beiträge des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes sowie lokal gebildetem sekundärem NO<sub>2</sub> und lokal emittiertem primärem NO<sub>2</sub>.

## Résumé

Les émissions d'oxydes d'azote ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) en provenance du trafic routier et d'autres sources sont en diminution constante depuis le début des années 1990. L'évolution temporelle des immissions de  $\text{NO}_x$  suit celle de leurs émissions; par contre les concentrations de  $\text{NO}_2$  sur les sites exposés au trafic routier diminuent moins fortement. Une des raisons à cela réside d'une part dans les processus de la chimie atmosphérique qui font qu'une diminution des immissions de  $\text{NO}_x$  ne se répercute pas dans la même mesure sur la concentration de  $\text{NO}_2$  dans l'air extérieur. D'autre part, une augmentation de la proportion de  $\text{NO}_2$  dans les oxydes d'azote totaux dans les gaz d'échappement des véhicules pourrait avoir conduit à une augmentation des émissions directes de  $\text{NO}_2$  du trafic routier. Le but de la présente étude est de déterminer l'évolution temporelle du **ratio des émissions  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  (f- $\text{NO}_2$ )** du trafic routier urbain à l'aide de mesures d'immissions effectuées dans la ville de Zurich et d'analyser l'importance de l'évolution du f- $\text{NO}_2$  pour les immissions de  $\text{NO}_2$  sur les sites urbains exposés au trafic routier.

L'analyse de mesures d'immissions réalisées durant plusieurs années en ville de Zurich montre que le ratio d'émissions  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  du trafic urbain a passé d'environ 7% dans les années 1990 à environ 13% en 2015. La cause de cette augmentation est due à l'accroissement du nombre de véhicules diesel ainsi qu'à l'introduction de nouveaux systèmes d'épuration des gaz d'échappement sur ces véhicules. L'augmentation du f- $\text{NO}_2$  constatée à Zurich correspond en grande partie avec les résultats d'études effectuées dans d'autres pays d'Europe. Toutefois, les valeurs f- $\text{NO}_2$  de cette étude sont plus basses que celles qui sont calculées sur la base des estimations d'émissions.

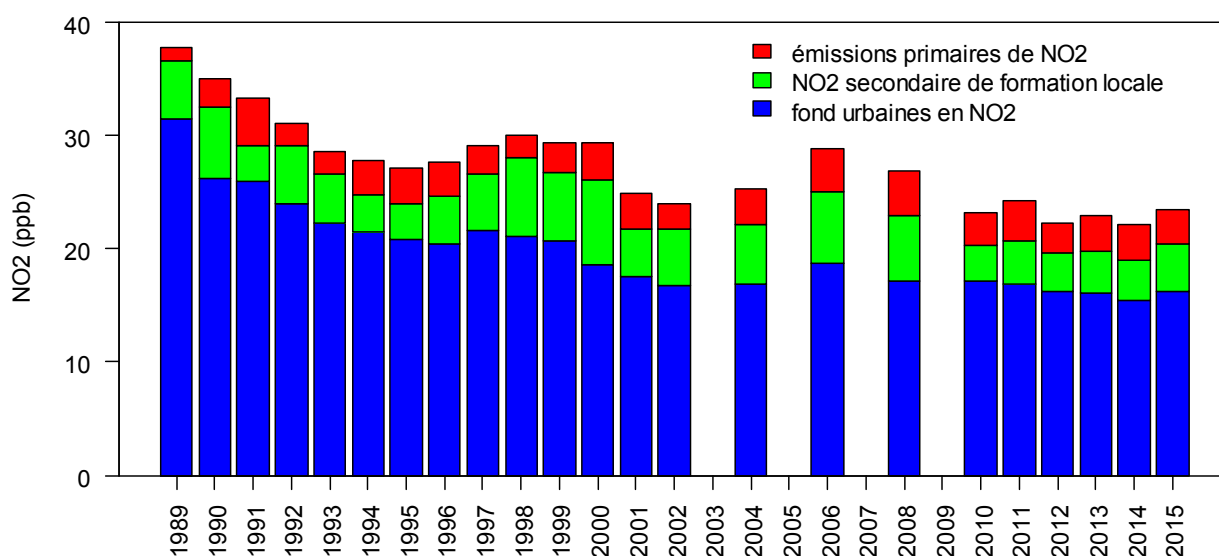
L'augmentation du ratio d'émissions  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  du trafic routier n'explique que très partiellement les charges de  $\text{NO}_2$  encore trop élevées constatées sur les sites urbains exposés au trafic routier. L'analyse effectuée pour Zurich montre que dans une rue à fort trafic, les émissions primaires de  $\text{NO}_2$  du trafic local contribuent en moyenne annuelle pour environ 14% au  $\text{NO}_2$  total (moyenne 2013-2015). La charge de  $\text{NO}_2$  sur le site de la Schimmelstrasse à Zurich est essentiellement déterminée par les concentrations de fond urbaines en  $\text{NO}_2$  et par le  $\text{NO}_2$  formé localement à partir du NO ( $\text{NO}_2$  secondaire de formation locale). Les contributions annuelles moyennes de ces deux facteurs sur ce site exposé au trafic sont d'environ 70 %, respectivement d'environ 16% (moyenne des années 2013 à 2015). L'évolution temporelle de la répartition des différentes immissions de  $\text{NO}_2$  mesurées sur un site urbain proche du trafic à Zurich est présentée dans le graphique R.1.

Lors des situations météorologiques qui conduisent à des immissions accrues de  $\text{NO}_2$  sur les sites exposés au trafic routier, la formation locale de  $\text{NO}_2$  secondaire est souvent faible. Lors de ces situations, la part des émissions primaires de  $\text{NO}_2$  dans la charge de  $\text{NO}_2$  est ainsi augmentée. Il s'ensuit qu'une réduction de la teneur en  $\text{NO}_2$  des gaz d'échappement des véhicules aurait un effet plus marqué sur ces brèves pointes de  $\text{NO}_2$  que sur la moyenne annuelle. En 2015, sur ces sites exposés au trafic routier de Zurich, la contribution des émissions primaires de  $\text{NO}_2$  du trafic local a atteint au maximum 51% d'une moyenne journalière de  $\text{NO}_2$ , et lors de 10% des jours la contribution du  $\text{NO}_2$  primaire excède les 30%.

A lui seul, un abaissement du ratio d'émissions  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  du trafic routier n'aurait qu'un effet limité sur la concentration annuelle moyenne de  $\text{NO}_2$  sur les sites urbains fortement exposés au trafic routier. Un abaissement efficace des immissions de  $\text{NO}_2$  nécessite de réduire encore davantage les émissions de  $\text{NO}_x$  du trafic routier et des autres sources. Les pronostics des émissions de  $\text{NO}_x$  pour la période allant jusqu'en 2030 prévoient une diminution continue de ces émissions de sorte qu'une baisse sensible de la pollution par le  $\text{NO}_2$  devrait se produire au cours des prochaines années en Suisse sur les sites urbains exposés au trafic

routier. A la condition toutefois que la diminution attendue des émissions de NO<sub>x</sub> du trafic routier se produise effectivement. Pour cela il est absolument nécessaire que les nouvelles générations de véhicules (voitures de tourisme et poids lourds) satisfassent en circulation les prescriptions sur les gaz d'échappement.

Ce rapport traite de la pollution par le NO<sub>2</sub> sur les sites urbains les plus fortement exposés au trafic routier. Il faut relever ici qu'à côté de la réduction de la charge en NO<sub>2</sub> sur ces sites les plus fortement exposés, d'autres arguments importants plaident en faveur d'une réduction générale des émissions de NO<sub>x</sub> dues au trafic routier ainsi qu'à d'autres sources: la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> contribue à la diminution de la pollution par l'ozone et les poussières fines ainsi qu'à la réduction de l'apport de composés azotés dans les écosystèmes naturels et semi-naturels.



Graphique R.1: Répartition des immissions annuelles de NO<sub>2</sub> sur le site de Zürich-Schimmelstrasse sous forme de concentrations urbaines de fond, ainsi que de concentrations secondaires de formation locale et primaires directement émises.

# 1 Einleitung

Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO<sub>2</sub>) werden als Stickoxide (NO<sub>x</sub>) bezeichnet. Stickoxide sind Luftschadstoffe, die hauptsächlich durch Verbrennungsprozesse emittiert werden. Sie sind einerseits als Vorläuferschadstoffe an der Bildung von Ozon (O<sub>3</sub>) und Feinstaub beteiligt, andererseits schädigen erhöhte NO<sub>2</sub>-Belastungen die Gesundheit der Menschen. Aufgrund der gesundheitsschädigenden Wirkung sind in der Schweiz (und z.B. auch in der EU) Immissionsgrenzwerte für NO<sub>2</sub> festgelegt.

In der Schweiz ist eine kontinuierliche Abnahme der NO<sub>x</sub>-Belastung zu beobachten. An innerstädtischen und verkehrsbelasteten Standorten ist die Abnahme der NO<sub>2</sub>-Immissionen weniger deutlich oder gar stagnierend. Der Jahresgrenzwert für NO<sub>2</sub> wird an diesen Standorten immer noch zum Teil deutlich überschritten. Abbildung 1 zeigt als Beispiel die Jahresmittelwerte von NO<sub>x</sub>, NO und NO<sub>2</sub> an den innerstädtischen und stark verkehrsbelasteten NABEL-Stationen in Bern und Lausanne, die Zeitverläufe der anderen NABEL-Stationen finden sich in BAFU (2015). Ähnliche zeitliche Entwicklungen der NO<sub>x</sub>- und NO<sub>2</sub>-Immissionen werden auch in anderen europäischen Ländern beobachtet (z.B. Grice et al., 2009; Kurtenbach et al., 2009; Henschel et al., 2015).

NO<sub>2</sub> wird einerseits direkt von Emissionsquellen emittiert (direkt emittiertes NO<sub>2</sub>, oder synonym auch primäres NO<sub>2</sub>), andererseits zu einem grossen Anteil erst in der Atmosphäre durch Reaktion von NO mit Ozon (O<sub>3</sub>) gebildet (sekundäres NO<sub>2</sub>). Aus diesem Grund sind in der schweizerischen Luftreinhalteverordnung Emissionsgrenzwerte für NO<sub>x</sub> (NO + NO<sub>2</sub>) angegeben. In diesem Bericht wird für NO<sub>2</sub> im Abgas von Emissionsquellen der Begriff direkt emittiertes NO<sub>2</sub>, oder gleichbedeutend auch primäres NO<sub>2</sub> verwendet.

Obwohl die NO<sub>x</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs seit Anfang der 1990er Jahre stark abgenommen haben stellt der Verkehr nach wie vor die Hauptquelle von Stickoxiden dar (BUWAL, 2005). Neben den gesamten NO<sub>x</sub>-Emissionen hat sich beim Strassenverkehr auch das NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis (Anteil des direkt emittierten NO<sub>2</sub> an den gesamten NO<sub>x</sub>-Emissionen) geändert, der Anteil von NO<sub>2</sub> im Abgas der Fahrzeuge hat sich erhöht. Dies liegt am gestiegenen Anteil von Fahrzeugen mit Dieselmotor, sowie an neueren Abgasreinigungssystemen mit welchen diese Fahrzeuge ausgestattet sind<sup>1</sup>.

Für die Entwicklung einer effizienten Strategie zur Reduktion der NO<sub>2</sub>-Belastung an verkehrsnahen städtischen Standorten ist es notwendig zu wissen, zu welchen Anteilen sich die NO<sub>2</sub>-Immissionen aus primär emittiertem NO<sub>2</sub>, lokal sekundär gebildetem NO<sub>2</sub> sowie einer regionalen Hintergrundbelastung zusammensetzt. Durch Auswertung der zeitgleichen Messungen von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> an einem verkehrsnahen städtischen Standort und einem nahegelegenen städtischen Hintergrundstandort können Kenntnisse über die Zusammensetzung der NO<sub>2</sub>-Immissionen gewonnen werden. In diesem Bericht werden die Resultate einer entsprechenden Auswertung von langjährigen Messreihen der beiden Stationen Zürich-Schimmelstrasse (Messstation der Stadt Zürich, Umwelt und Gesundheitsschutz Zürich, direkt an einer städtischen Hauptverkehrsachse gelegen) und Zürich-Kaserne (NABEL Messstation, BAFU/Empa, städtische Hintergrundstation) diskutiert und mit Abschätzungen der zukünftigen Entwicklung der Emissionen sowie Erkenntnissen aus anderen Studien ergänzt.

---

<sup>1</sup> Modernere Dieselfahrzeuge sind mit Oxidationskatalysator ausgestattet, diese erhöhen durch Oxidation von NO zu NO<sub>2</sub> den NO<sub>2</sub>-Anteil im Abgas. Bei Fahrzeugen mit konventionellen Dieselpartikelfiltern wird ebenfalls ein Oxidationskatalysator vorgeschaltet. Dieser wird häufig im NO<sub>2</sub>-Überschuss betrieben, das gebildete NO<sub>2</sub> wird für die Verbrennung der abgeschiedenen Russpartikel benötigt.

Insbesondere werden folgende Fragen untersucht:

1. Wie ist die langjährige Entwicklung des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs am Standort Zürich-Schimmelstrasse?
2. Wie hat sich der Beitrag des primär emittierten NO<sub>2</sub> an diesem Standort verändert?
3. Was bedeuten diese Resultate für die Planung von Massnahmen zur Minderung der NO<sub>2</sub>-Belastung an verkehrsnahen Standorten?

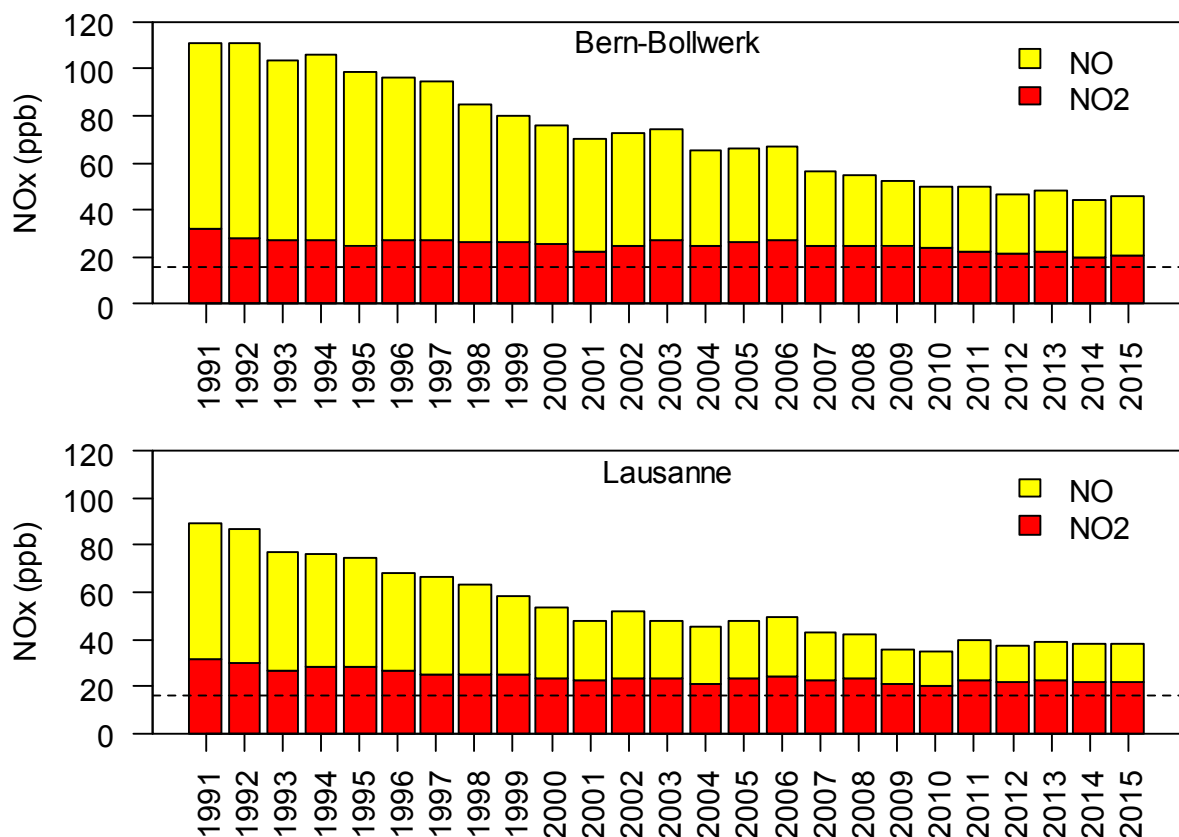


Abbildung 1: Zeitliche Entwicklung der Jahresmittelwerte von NO<sub>x</sub>, NO und NO<sub>2</sub> an den städtischen, verkehrsbelasteten NABEL-Messstationen in Bern-Bollwerk (oben) und Lausanne (unten). Die horizontalen gestrichelten Linien kennzeichnen den jährlichen Immissionsgrenzwert von NO<sub>2</sub> (30µg/m<sup>3</sup>, oder 15.7ppb).

## 2 Hintergrund

Die NO<sub>2</sub>-Konzentration in der Aussenluft wird wesentlich durch Bildungs- und Abbaureaktionen bestimmt. Insbesondere wird NO<sub>2</sub> durch die Reaktion von NO mit Ozon (O<sub>3</sub>) gebildet (sekundäres NO<sub>2</sub>)



und unter Sonneneinstrahlung wieder photolytisch abgebaut



Während des Tages stellt sich schnell ein Gleichgewicht zwischen den Reaktionen (1) und (2) ein. Es resultiert der sogenannte photostationäre Zustand



$$J_{NO_2} [NO_2] = k_1 [O_3][NO], \quad (3)$$

mit der Photolyserate  $J_{NO_2}$  und  $k_1$  der temperaturabhängigen Reaktionskonstante von (1). Die Klammern in Gleichung (3) kennzeichnen Konzentrationsangaben.

An verkehrsnahen Standorten führen die lokalen NO- und NO<sub>2</sub>-Emissionen dazu, dass der photostationäre Zustand häufig nicht erreicht wird. Dennoch spielen die Reaktionen (1) und (2) auch hier eine wichtige Rolle, sie führen dazu, dass sich in der Nähe von Emissionsquellen Veränderungen der NO- und NO<sub>2</sub>-Emissionen nicht in linearer Weise auf die NO- und NO<sub>2</sub>-Belastungen auswirken. Die Abhängigkeit der NO<sub>2</sub>-Immissionen von den NO<sub>x</sub>-Emissionen einer lokalen Quelle wird für den photostationären Zustand im Abschnitt 6 bestimmt.

Neben Reaktion (1) kann NO in der Aussenluft durch weitere Reaktionen zu NO<sub>2</sub> umgewandelt werden, insbesondere durch Reaktion mit Peroxyradikalen. In einer stärker belasteten städtischen Umgebung sind diese Reaktionen jedoch vernachlässigbar (Mannschreck et al., 2004).

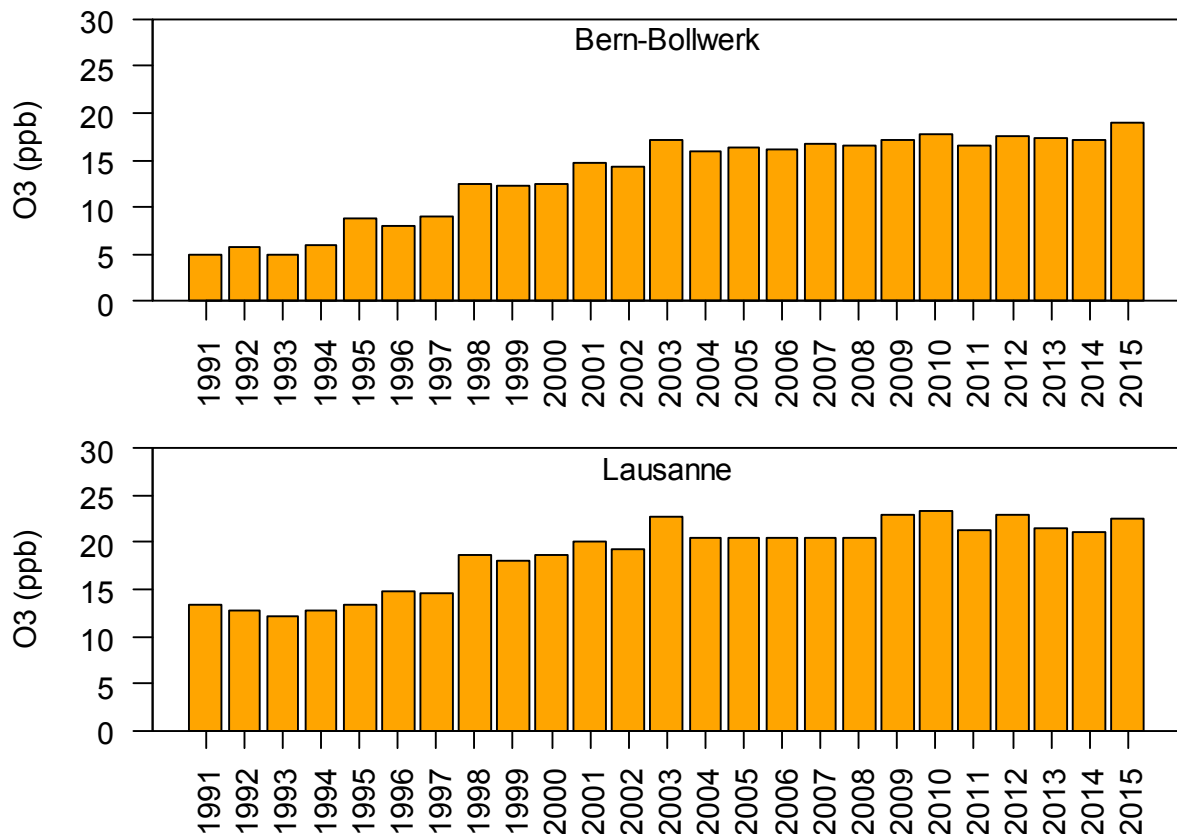


Abbildung 2: Jahresmittelwerte von Ozon an den städtischen, verkehrsbelasteten NABEL-Messstationen in Bern-Bollwerk (oben) und Lausanne (unten) für die Jahre 1991 – 2015. Der beobachtete Anstieg der mittleren jährlichen Mischungsverhältnisse von O<sub>3</sub> kann durch den Zusammenhang zwischen den Immissionskonzentrationen von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> erklärt werden (Gleichung 3).

Aus Abbildung 1 wird deutlich, dass das Verhältnis von NO<sub>2</sub> zu NO in der Aussenluft an den beiden verkehrsbelasteten Standorten Bern-Bollwerk und Lausanne in den vergangenen zwei Jahrzehnten angestiegen ist. Nach Gleichung (3) führt ein höheres Verhältnis von NO<sub>2</sub> zu NO in der Aussenluft auch zu einer hö-

heren Konzentration von O<sub>3</sub>. Entsprechend sind seit 1991 an beiden Standorten die O<sub>3</sub>-Jahresmittelwerte deutlich angestiegen (Abbildung 2). Abbildungen des zeitlichen Verlaufes von NO, NO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> am städtischen, verkehrsbelasteten Standort Zürich-Schimmelstrasse, sowie am städtischen Standort Zürich-Kaserne finden sich im Anhang (Abbildung A.1).

### 3 Methode

Zeitgleiche Messungen von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> an den Messstationen Zürich Kaserne (städtischer Hintergrund) und Zürich Schimmelstrasse (städtisch, stark verkehrsbelastet) wurden entsprechend der Methode in Abbott (2005) ausgewertet. Es wurden Stundenmittelwerte aus der Zeit vom 01.01.1988 bis 31.12.2015 verwendet.

In Abbott (2005) wird hergeleitet, dass der Anteil von primärem NO<sub>2</sub> an den NO<sub>x</sub>-Emissionen des lokalen Verkehrs beim verkehrsnahen Standort (bezeichnet durch α) gemäss

$$[O_x]_v - [O_x]_h = \alpha \cdot ([NO_x]_v - [NO_x]_h) + \beta \quad (4)$$

abgeschätzt werden kann. Dabei ist [O<sub>x</sub>]<sub>v</sub> die Konzentration der Summe der am verkehrsnahen Standort gemessenen Konzentrationen von NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> (O<sub>x</sub> = NO<sub>2</sub> + O<sub>3</sub>), [O<sub>x</sub>]<sub>h</sub> ist die entsprechende Konzentration am städtischen Hintergrundstandort. Entsprechend sind [NO<sub>x</sub>]<sub>v</sub> und [NO<sub>x</sub>]<sub>h</sub> die zeitgleich gemessenen NO<sub>x</sub>-Konzentrationen an den beiden Standorten, β repräsentiert den Effekt von anderen Reaktionen als (1) und (2) sowie Prozessen wie z.B. Deposition.

Gleichung (4) kann umgeschrieben werden zu

$$[NO_2]_v = [NO_2]_h + ([O_3]_h - [O_3]_v) + \alpha \cdot ([NO_x]_v - [NO_x]_h) + \beta. \quad (5)$$

Die NO<sub>2</sub>-Belastung am verkehrsnahen Standort kann somit aufgeteilt werden in einen städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrund ([NO<sub>2</sub>]<sub>h</sub>), einen Beitrag durch sekundäres NO<sub>2</sub> ([O<sub>3</sub>]<sub>h</sub> - [O<sub>3</sub>]<sub>v</sub>) welches durch Reaktion (1) lokal gebildet wurde, sowie α · ([NO<sub>x</sub>]<sub>v</sub> - [NO<sub>x</sub>]<sub>h</sub>), dem Beitrag von primärem NO<sub>2</sub>, welches durch den lokalen Verkehr am verkehrsbelasteten Standort emittiert wurde. Wie in Gleichung (4) repräsentiert β einen durch das Modell nicht erklärbaren Restanteil von NO<sub>2</sub>.

Der Anteil α, d.h. das mittlere NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis des lokalen Verkehrs am verkehrsbelasteten Standort, kann mittels Regression von [O<sub>x</sub>]<sub>v</sub> - [O<sub>x</sub>]<sub>h</sub> gegen [NO<sub>x</sub>]<sub>v</sub> - [NO<sub>x</sub>]<sub>h</sub> bestimmt werden (Gleichung 4). In dieser Untersuchung wird die Bestimmung von α basierend auf den nach Jahren aufgeteilten gemessenen Stundenmittelwerten durchgeführt. Dabei wurden die Daten gefiltert, es wurden nur die Messwerte vom Winter verwendet (Januar, Februar und Dezember), wenn die sekundäre NO<sub>2</sub>-Bildung gering ist. Ausserdem wurden nur die Messungen während der Hauptverkehrszeiten berücksichtigt (06-20 Uhr). Schliesslich wurden Messwerte verworfen, wenn die Konzentrationen von NO<sub>x</sub> oder O<sub>x</sub> am Hintergrundstandort Zürich-Kaserne höher waren, als am verkehrsbelasteten Standort Zürich-Schimmelstrasse ([NO<sub>x</sub>]<sub>v</sub> - [NO<sub>x</sub>]<sub>h</sub> < 0ppb und [O<sub>x</sub>]<sub>v</sub> - [O<sub>x</sub>]<sub>h</sub> < 0ppb). Abbildung 3 zeigt die jährlichen Regressionsrechnungen der so gefilterten Messwerte. Der Zweck dieser Datenfilterung ist es, diejenigen Messwerte zu selektieren, für die die Annahmen der verwendeten Methode möglichst gut erfüllt sind. Regressionsrechnungen der ungefilterten Messwerte sind im Anhang abgebildet (Abbildung A.5)<sup>2</sup>.

<sup>2</sup> In der vorherigen Version dieses Berichtes aus dem Jahr 2012 wurde keine Datenfilterung angewendet. Dadurch waren die damals ausgewiesenen Werte für f-NO<sub>2</sub> höher, siehe Abbildung A.5 im Anhang.

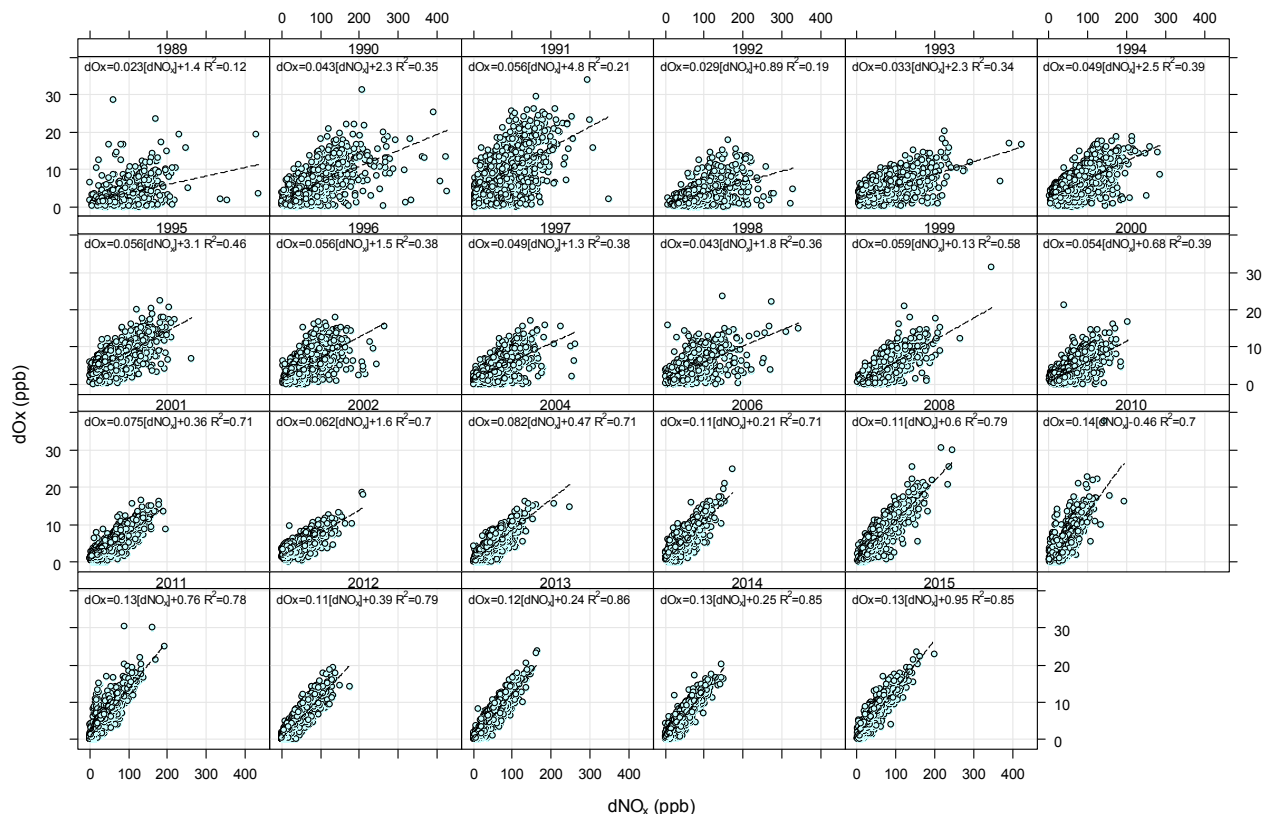


Abbildung 3: Streudiagramm und lineare Regression von  $dO_x$  ( $O_x$  Schimmelstrasse -  $O_x$  Kaserne) gegen  $dNO_x$  ( $NO_x$  Schimmelstrasse -  $NO_x$  Kaserne) der nach Jahr aufgeteilten und gefilterten Stundenmittelwerte (siehe Text Abschnitt 3). Der Anteil des primären  $NO_2$  an den  $NO_x$ -Emissionen des lokalen Verkehrs kann als die Steigung der Regressionsgeraden abgeschätzt werden (Gleichung 4). Gut erkennbar ist, dass die lineare Abhängigkeit der dargestellten Messwerte in den letzten Jahren zugenommen hat (höhere Werte für  $R^2$ ).

## 4 Resultate

In diesem Bericht wird für das  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnis auch die Kurzform  $f\text{-}NO_2$  verwendet (Grice et al., 2009). Abbildung 4 zeigt den Verlauf des  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnisses des lokalen Strassenverkehrs an der Messstation Zürich Schimmelstrasse für die Zeit von 1988 bis 2015. Dazu wurden die Stundenwerte während jeweils eines Monats mittels Regression gemäss Gleichung (4) ausgewertet. Es ist erkennbar, dass  $f\text{-}NO_2$  während der 1990er Jahre relativ konstant war, nach 2002 ist ein deutlicher Anstieg zu beobachten. Dieser Anstieg ist auf einen steigenden Anteil von Dieselfahrzeugen und die Nutzung von neuen Technologien zur Abgasreinigung von Dieselfahrzeugen zurückzuführen (siehe Einleitung). Seit 2010 hat sich das  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnis an der Messstation Zürich Schimmelstrasse stabilisiert. In Tabelle 1 sind die berechneten jährlichen  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnisse aufgelistet.

Im Jahr 2009 wurde das Verkehrsregime bei der Station Zürich Schimmelstrasse geändert. Bis zu diesem Jahr war die Schimmelstrasse Teil der Ost-West Transitachse mit nur einer Fahrtrichtung (nach Westen). Seit der Inbetriebnahme der Westumfahrung im Jahr 2010 wird die Schimmelstrasse im Gegenverkehr geführt. Die Verkehrsdichte auf der Schimmelstrasse ist nach dieser Änderung ungefähr konstant geblieben

(ca. 25'000 Fahrzeuge pro Tag), der Anteil des Schwerverkehrs hat jedoch von 9.6% im Jahr 2006 auf 5.8% im Jahr 2012 abgenommen.

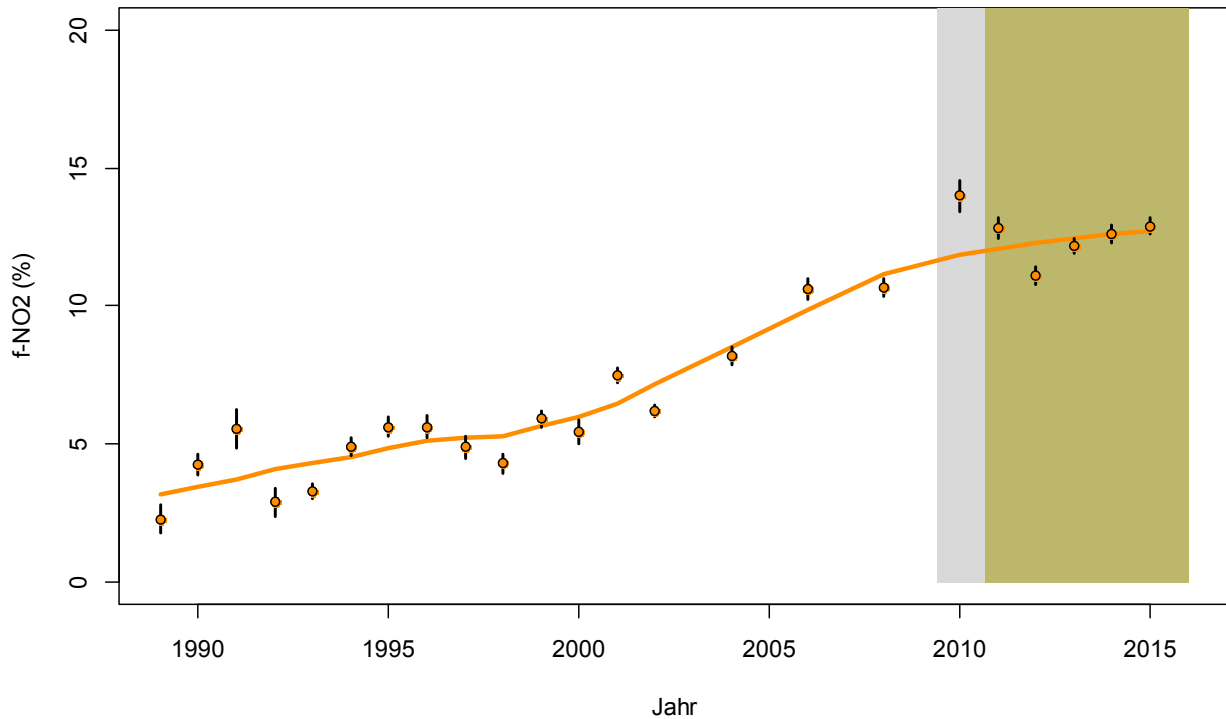


Abbildung 4: Entwicklung des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses ( $f\text{-NO}_2$ ) des lokalen Strassenverkehrs am Standort Zürich Schimmelstrasse (orange Kreise, die vertikalen schwarzen Linien kennzeichnen die zugehörigen 95%-Vertrauensbereiche). Die  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse waren während der 1990er Jahre relativ konstant bei etwa 5-7%, nach 2002 ist ein deutlicher Anstieg erkennbar (siehe Tabelle 1). Die eingezeichnete orange Linie ist eine glatte Funktion welche an die jährlichen  $f\text{-NO}_2$  Werte angepasst wurde, sie dient nur zur Verdeutlichung des Trends. Von 2003 bis 2009 wurde die Messstation Zürich Schimmelstrasse nur jedes zweite Jahr betrieben, daher fehlen die Werte für 2003, 2005, 2007 und 2009. Die graue Fläche markiert eine Zeitperiode in der aufgrund von Bauarbeiten nur eine Fahrbahn in Richtung Basel befahren werden konnte (Mai 2009 bis August 2010). Seit August 2010 wird der Verkehr auf der Schimmelstrasse auf vier Fahrbahnen im Gegenverkehr geführt (grüne Fläche). Die Verkehrszahlen auf der Schimmelstrasse haben sich durch das neue Verkehrsregime kaum verändert (ca. 25'000 Fahrzeuge pro Tag), der Anteil des Schwerverkehrs hat dagegen von 9.6% im Jahr 2006 auf 5.8% im Jahr 2012 abgenommen.

Tabelle 1: Jährliche Mittelwerte der geschätzten monatlichen  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse ( $f\text{-NO}_2$ ) an der Station Zürich Schimmelstrasse (Angabe in %).

1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2004	2006	2008
2.2	4.2	5.5	2.9	3.3	4.9	5.6	5.6	4.9	4.3	5.9	5.4	7.5	6.2	8.2	10.6	10.7

2010	2011	2012	2013	2014	2015
14.0	12.8	11.1	12.2	12.6	12.9

Die beobachtete Entwicklung des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses an der Station Zürich-Schimmelstrasse ist in Übereinstimmung mit Messungen und Modellergebnissen für  $f\text{-NO}_2$  an anderen verkehrsbelasteten Standorten in Europa. In der Studie von Grice et al. (2009) wurden Messungen von Stationen in Deutsch-

land, Frankreich, Grossbritannien, Italien, Niederlande, Österreich, Spanien und der Tschechischen Republik ausgewertet. Zudem wurden Emissionsinventare des Strassenverkehrs für diese Länder (zusätzlich Finnland und Griechenland) mit Emissionsfaktoren verschiedener Fahrzeugtypen und Fahrzeugtechnologien kombiniert. Daraus wurde die Entwicklung von f-NO<sub>2</sub> für den Zeitraum 1995-2005 berechnet, sowie Prognosen bis 2020 durchgeführt. Grice et al. (2009) fanden an den berücksichtigten verkehrsbelasteten Standorten einen Anstieg der mittleren NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisse von 8.6% im Jahr 2000 auf 12.5% im Jahr 2004. Die Modellrechnungen ergaben einen Anstieg von 6.3% im Jahr 2000 auf 10.6% im Jahr 2005. In Carslaw et al. (2016) wurde das NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis basierend auf Daten von städtischen, verkehrsbelasteten Messstationen in London (UK) für die Jahre von 1997 bis 2015 berechnet. In der Innenstadt von London stiegen die Werte für f-NO<sub>2</sub> von ca. 5% im Jahr 1997 auf ein Maximum von ca. 25% im Jahr 2010 an, in den äusseren Stadtbezirken stieg f-NO<sub>2</sub> bis auf 20%. Seit 2010 sinken die berechneten NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisse. Aufgrund von Messungen an individuellen Fahrzeugen im realen Fahrbetrieb wurde in Carslaw et al. (2016) zudem gezeigt, dass bei dieselbetriebenen Personenwagen das NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis von der Euro 4 bis Euro 6 Abgasnorm bei ca. 30% konstant geblieben ist, bei den schweren Nutzfahrzeugen hat der Anteil von primärem NO<sub>2</sub> von Euro 3 bis Euro 5 deutlich abgenommen. Carslaw et al. (2016) schliessen daher, dass die in London seit 2010 festgestellte Abnahme von f-NO<sub>2</sub> hauptsächlich auf die Entwicklung der Emissionen bei den schweren Nutzfahrzeuge zurückzuführen ist.

Abbildungen 5 und 6 zeigen die mittlere jährliche Aufteilung der NO<sub>2</sub>-Immissionen am Standort Zürich-Schimmelstrasse in die verschiedenen Anteile nach Gleichung (5). In Tabelle 2 sind die Ergebnisse der Abbildungen 5 und 6 für den Zeitraum von 1989-2015 als absolute (in ppb) und relative Zahlen (prozentualer Anteil an der gesamten NO<sub>2</sub>-Belastung) aufgelistet. Der zeitliche Verlauf der prozentualen Beiträge des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes, des lokal sekundär gebildeten NO<sub>2</sub> und des lokal primär emittierten NO<sub>2</sub> ist in Abbildung 7 dargestellt. Den grössten Beitrag zum NO<sub>2</sub> an der Station Zürich-Schimmelstrasse leistet der städtische NO<sub>2</sub>-Hintergrund. Dieser städtische Hintergrund ist vorwiegend durch Gleichgewichtsprozesse bestimmt (Gleichungen 1-3) und resultiert daher ebenfalls zu einem grossen Teil aus sekundärer Bildung. Der absolute Beitrag des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes zeigt wegen den sinkenden NO<sub>x</sub>-Emissionen einen negativen Trend, die Abnahmerate ist in den letzten Jahren jedoch deutlich kleiner geworden. Der Anteil von lokal sekundär durch Reaktion von NO mit O<sub>3</sub> gebildetem NO<sub>2</sub> zeigt einen deutlichen Jahresgang mit höherem Beitrag im Sommer (nicht dargestellt). Der mittlere jährliche Beitrag von lokal sekundär gebildetem NO<sub>2</sub> war in den vergangenen 25 Jahren recht konstant (absolut und relativ, siehe Abbildung 7). Primäres NO<sub>2</sub> (vom lokalen Strassenverkehr an der Schimmelstrasse direkt emittiert) trug im betrachteten Zeitraum im Mittel knapp 4ppb zur NO<sub>2</sub>-Belastung bei. Von 1989 bis ca. 2000 war der mittlere jährliche Beitrag ungefähr konstant, seither ist der absolute Beitrag von primärem NO<sub>2</sub> etwas angestiegen. Der prozentuale Beitrag von lokal primär emittiertem NO<sub>2</sub> ist an der Station Zürich-Schimmelstrasse seit Beginn der 2000er Jahre ebenfalls leicht angesteigend.

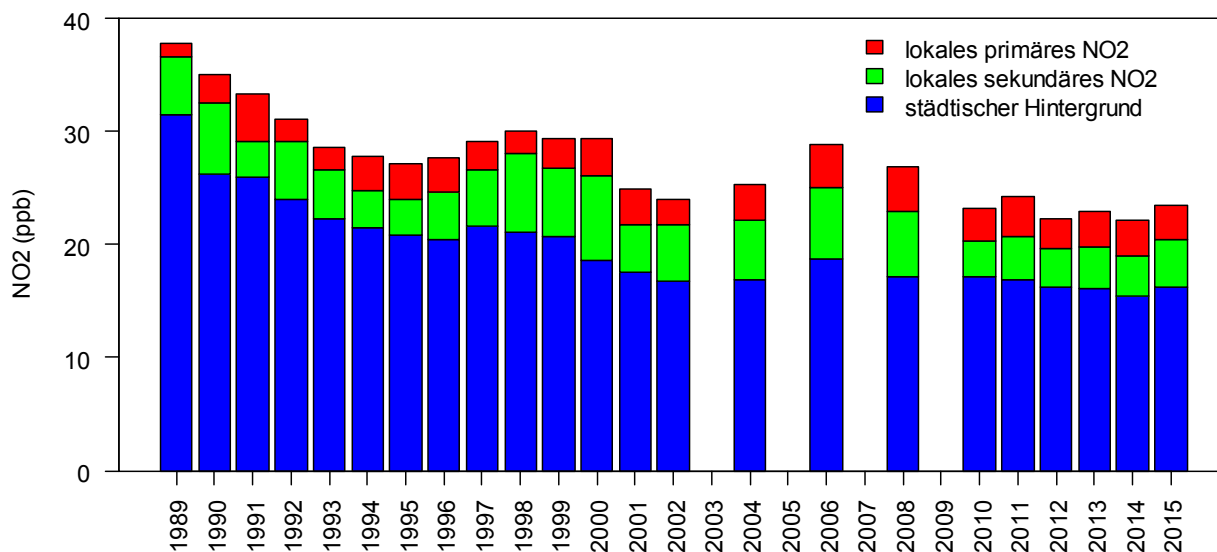


Abbildung 5: Aufteilung der jährlichen NO<sub>2</sub>-Immissionen am Standort Zürich-Schimmelstrasse in die Beiträge des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes sowie lokal gebildetem sekundärem NO<sub>2</sub> und lokal emittiertem primärem NO<sub>2</sub> gemäss Gleichung (5).

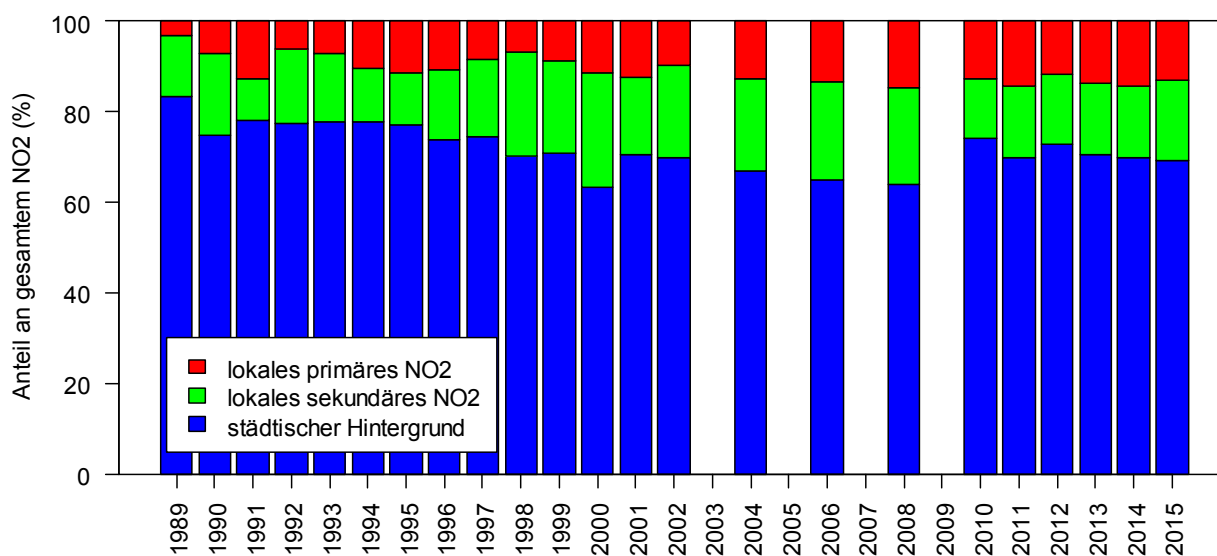


Abbildung 6: Relative Aufteilung der jährlichen NO<sub>2</sub>-Immissionen am Standort Zürich-Schimmelstrasse in die Beiträge des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes sowie lokal gebildetem sekundärem NO<sub>2</sub> und lokal emittiertem primärem NO<sub>2</sub> gemäss Gleichung (5).

Tabelle 2: Trend der mittleren Beiträge des städtischen NO<sub>2</sub>-Hintergrundes, des lokal primär emittierten NO<sub>2</sub> sowie des lokal sekundär gebildeten NO<sub>2</sub> zu den gesamten jährlichen NO<sub>2</sub>-Immissionen an der Station Zürich-Schimmelstrasse. Zudem sind die Beiträge des Restanteils (Term  $\beta$  in Gleichung 5) aufgelistet. Angegeben sind die absoluten Beiträge in ppb und in Klammern der prozentuale Anteil an der gesamten NO<sub>2</sub>-Belastung.

NO <sub>2</sub>	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2004
Hintergrund	31.5 (90)	26.2 (74)	25.9 (76)	24.1 (78)	22.3 (73)	21.4 (71)	20.9 (70)	20.4 (69)	21.6 (72)	21.2 (72)	20.8 (72)	18.6 (64)	17.5 (69)	16.8 (65)	16.9 (61)
Sekundär	5.1 (15)	6.3 (18)	3.1 (9)	5.1 (16)	4.3 (14)	3.3 (11)	3.2 (11)	4.3 (15)	5.0 (17)	6.9 (23)	5.9 (20)	7.4 (25)	4.3 (17)	4.9 (18)	5.2 (19)
Primär	1.2 (3)	2.5 (7)	4.2 (12)	1.9 (6)	2.1 (7)	2.9 (10)	3.1 (10)	2.9 (10)	2.4 (8)	2.0 (7)	2.6 (9)	3.3 (11)	3.1 (12)	2.3 (9)	3.2 (12)
Rest	-3.0 (-9)	0.5 (2)	0.9 (3)	-0.1 (0)	2.0 (6)	2.6 (9)	2.5 (8)	1.8 (6)	0.9 (3)	-0.7 (-2)	-0.5 (-2)	-0.1 (0)	0.7 (3)	2.0 (8)	2.1 (8)

NO <sub>2</sub>	2006	2008	2010	2011	2012	2013	2014	2015
Hintergrund	18.8 (64)	17.2 (64)	17.2 (74)	16.9 (69)	16.2 (72)	16.2 (71)	15.5 (69)	16.3 (72)
Sekundär	6.3 (21)	5.7 (21)	3.1 (13)	3.8 (16)	3.4 (15)	3.6 (16)	3.5 (16)	4.1 (18)
Primär	3.9 (13)	4.0 (15)	2.9 (13)	3.5 (14)	2.6 (12)	3.1 (14)	3.2 (14)	3.1 (14)
Rest	0.6 (2)	-0.2 (-1)	-0.1 (-1)	0.4 (1)	0.2 (1)	-0.2 (-1)	0.2 (1)	-0.8 (-3)

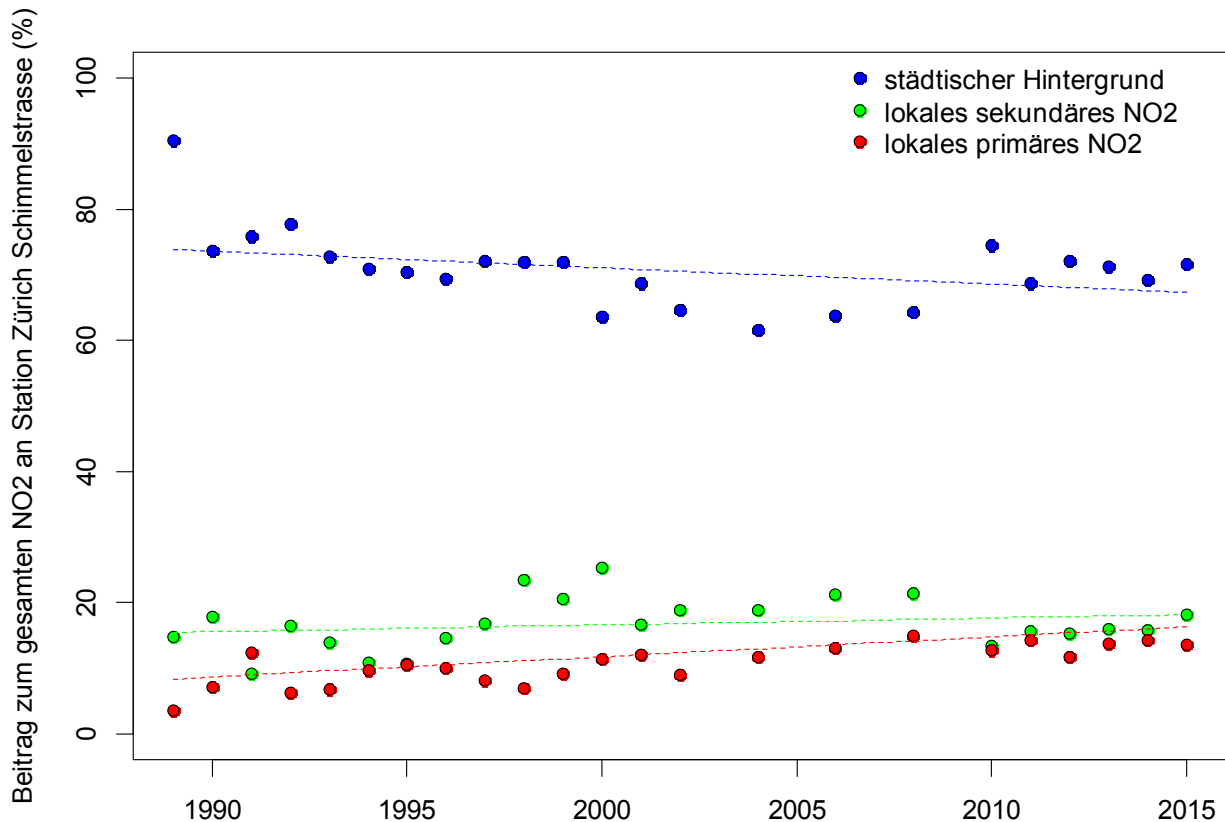


Abbildung 7: Zeitliche Entwicklung der Beiträge der städtischen NO<sub>2</sub>-Belastung, des lokal sekundär gebildeten NO<sub>2</sub> sowie des lokal primär emittierten NO<sub>2</sub> zur gesamten Immissionsbelastung an der Station Zürich-Schimmelstrasse.

Der Beitrag von primärem NO<sub>2</sub> zur gesamten NO<sub>2</sub>-Belastung an einem strassennahen Standort kann kurzzeitig deutlich höher sein als im jährlichen Mittel. Abbildung 8 zeigt die Abhängigkeit zwischen den verschiedenen NO<sub>2</sub>-Anteilen und der gesamten NO<sub>x</sub>-Belastung für die Jahre 1991-1993 und den Jahren 2013-2015. Für diese Abbildung wurden die gemessenen täglichen NO<sub>x</sub>-Immissionen an der Station Zürich-Schimmelstrasse in Belastungsklassen mit einer Breite von 10ppb zusammen gefasst und die zugehörigen Mittelwerte der verschiedenen NO<sub>2</sub>-Anteile bestimmt. Bei Situationen mit höheren NO<sub>x</sub>-Tagesmittelwerten nimmt der Anteil an sekundärem NO<sub>2</sub> ab. Dies liegt daran, dass hohe NO<sub>x</sub>-Belastungen häufig auftreten, wenn die O<sub>3</sub>-Konzentration tief ist (insbesondere im Winter) und NO nicht vollständig durch Reaktion mit O<sub>3</sub> in NO<sub>2</sub> umgewandelt werden kann. Der Beitrag von primärem NO<sub>2</sub> nimmt dagegen mit steigendem NO<sub>x</sub> absolut und auch relativ zu. Abbildung 9 zeigt eine gleiche Darstellung wie Abbildung 8, jedoch für Stundenmittelwerte der Jahre 1993 und 2015. Wegen der grösseren Anzahl von Messungen mit hohen NO<sub>x</sub>-Werten ist hier deutlicher erkennbar als in Abbildung 8, dass der mittlere Beitrag von primärem NO<sub>2</sub> bei hohen NO<sub>x</sub>-Belastungen derzeit deutlich grösser ist als zu Beginn der 1990er Jahre. Dies ist eine Folge des höheren NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs im Jahr 2015 gegenüber 1993 (siehe Tabelle 1). Aus den Abbildungen 8 und 9 lässt sich schliessen, dass der beobachtete Anstieg des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisses zu vereinzelt zusätzlichen Überschreitungen des 24h-Immissionsgrenzwertes führen kann. Aus den Histogrammen der Abbildungen 8 und 9 ist ebenfalls gut erkennbar, dass die Häufigkeit von hohen NO<sub>2</sub>-Immissionsbelastungen im betrachteten Zeitraum zurückgegangen ist.



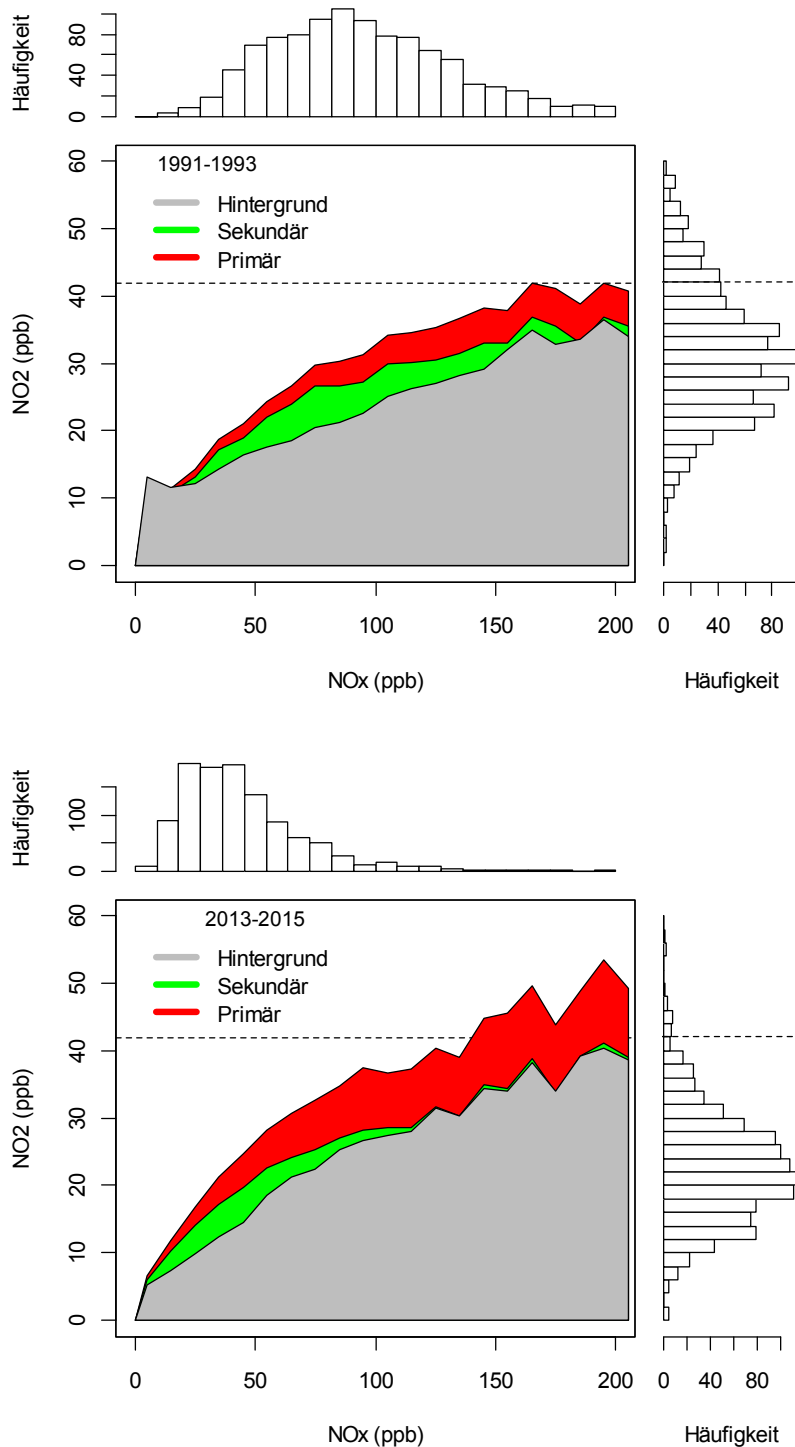


Abbildung 8: Mittlere NO<sub>2</sub>-Konzentration am Standort Zürich-Schimmelstrasse in Abhängigkeit von der NO<sub>x</sub>-Belastung an diesem Ort in den Jahren 1991-1993 (oben) und 2013-15 (unten). Die NO<sub>2</sub>-Mittelwerte wurden aus Tagesmittelwerten berechnet, welche in NO<sub>x</sub>-Intervalle von 10ppb eingeteilt wurden. Die Verteilungen der NO<sub>x</sub>-Tagesmittelwerte (Histogramm oberhalb x-Achse) sowie der NO<sub>2</sub>-Tagesmittelwerte (Histogramm rechts der y-Achse) sind ebenfalls dargestellt. Die gestrichelten horizontalen Linien kennzeichnen den 24h-Immissionsgrenzwert von 80µg/m<sup>3</sup> (1ppb = 1.91µg/m<sup>3</sup>).

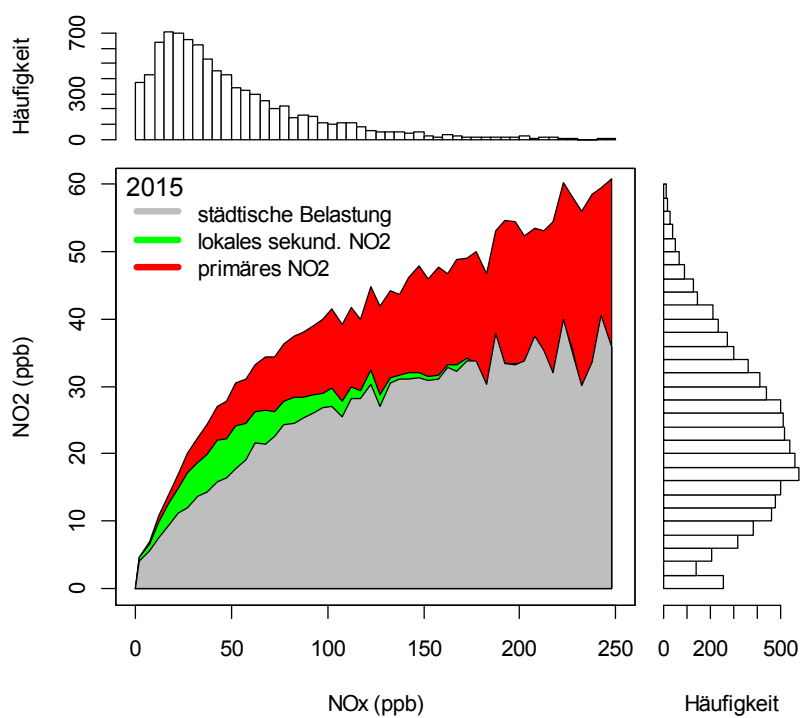
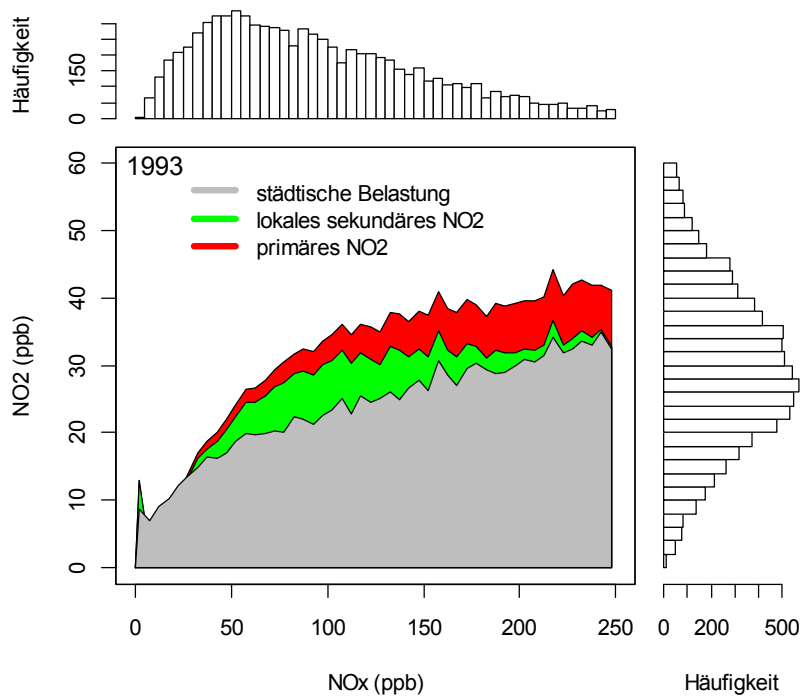


Abbildung 9: Mittlere NO<sub>2</sub>-Konzentration am Standort Zürich-Schimmelstrasse in Abhängigkeit von der NO<sub>x</sub>-Belastung an diesem Ort in den Jahren 1993 (oben) und 2015 (unten). Die NO<sub>2</sub>-Mittelwerte wurden aus Stundenmittelwerten berechnet, welche in NO<sub>x</sub>-Intervalle von 5ppb eingeteilt wurden. Die Verteilungen der NO<sub>x</sub>-Stundenwerte (Histogramm oberhalb x-Achse) sowie der NO<sub>2</sub>-Stundenwerte (Histogramm rechts der y-Achse) sind ebenfalls dargestellt.

## 5 Box- Modell zur Bestimmung der Abhängigkeit von NO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub>

Mit einer einfachen Box-Modellrechnung wurden die NO<sub>2</sub>-Konzentrationen abgeschätzt, welche sich an einem verkehrsbelasteten Standort bei Verkehrsemissionen mit verschiedenen NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnissen einstellen. Dabei wurde angenommen, dass die Reaktionen (1) und (2) die Immissionskonzentrationen von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> bestimmen und dass der photostationäre Zustand (Gleichung 3) erreicht wird. Dieses Box-Modell ist sicherlich eine stark vereinfachte und unvollständige Beschreibung der am verkehrsbelasteten Standort ablaufenden luftchemischen Prozesse. Es ist jedoch geeignet, um den Zusammenhang zwischen NO<sub>x</sub> und NO<sub>2</sub>-Immissionen zu beschreiben und dadurch Erkenntnisse für Strategien zur Reduktion der NO<sub>2</sub>-Belastung an verkehrsbelasteten Standorten abzuleiten.

Für die Modellrechnungen wurde eine Photolyserate  $J_{NO_2}$  von  $0.0045s^{-1}$  angenommen (Düring et al., 2011), für die Reaktionskonstante wurde  $k_1 = 1.4 \cdot 10^{-12} \cdot \exp(-1310 / T) \text{ cm}^3 (\text{molec} \cdot \text{s})$  mit  $T=298K$  gewählt.

Aufgrund der Erhaltung des Stickstoffs bei den Reaktionen (1) und (2) sowie der Stöchiometrie von Reaktion (1) gelten (Seinfeld und Pandis, 1998):

$$[\text{NO}] + [\text{NO}_2] = [\text{NO}]_0 + [\text{NO}_2]_0 \quad (6)$$

und

$$[\text{O}_3]_0 - [\text{O}_3] = [\text{NO}]_0 - [\text{NO}] \quad (7)$$

mit  $[\text{NO}]_0$ ,  $[\text{NO}_2]_0$  und  $[\text{O}_3]_0$  als den Konzentrationen von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> zum Startzeitpunkt der Reaktionen (1) und (2). Gleichung (3) wurde schliesslich mit Hilfe der Gleichungen (6) und (7) nach  $[\text{NO}_2]$  aufgelöst. Für eine O<sub>3</sub>-Startkonzentration von  $[\text{O}_3]_0 = 40\text{ppb}$  sowie typischen städtischen Hintergrundkonzentrationen von NO und NO<sub>2</sub> (10 bzw. 20ppb) denen NO<sub>x</sub>-Emissionen des Verkehrs mit verschiedenen NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnissen überlagert wurden, ergibt sich die in Abbildung 10 gezeigte Abhängigkeit der NO<sub>2</sub>-Konzentration ( $[\text{NO}_2]$ ) von NO<sub>x</sub> ( $[\text{NO}] + [\text{NO}_2]$ ). Die mit dem Box-Modell berechnete Abhängigkeit von NO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> sind qualitativ sehr ähnlich zu der am Standort Zürich-Schimmelstrasse beobachteten und in den Abbildungen 8 und 9 dargestellten Abhängigkeiten (ein absoluter Vergleich von Modell und Beobachtung ist nicht sinnvoll, da das Box-Modell wie erwähnt eine starke Vereinfachung darstellt).

Abbildung 10 zeigt, dass bei mittleren NO<sub>x</sub>-Konzentrationen (wie z.B. im Bereich des Medians der NO<sub>x</sub>-Stundenwerte an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse) die NO<sub>2</sub>-Belastung unter den vorgegebenen Bedingungen und den getroffenen Annahmen nur schwach vom NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis abhängt. Bei höheren NO<sub>x</sub>-Konzentrationen steigt die Abhängigkeit der NO<sub>2</sub>-Belastung vom NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis. Bei den an verkehrsbelasteten Standorten in der Schweiz zurzeit vorherrschenden NO<sub>2</sub>-Immissionsbelastung (vgl. Abbildungen 1, 4, 8, 9) hat eine Reduktion des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisses keine starke Auswirkung auf die mittlere NO<sub>2</sub>-Konzentration. Die NO<sub>x</sub>-Konzentration und somit die NO<sub>x</sub>-Emissionen müssen weiter reduziert werden, damit eine deutliche Abnahme von NO<sub>2</sub> erreicht werden kann.

Abbildung 10 ist zu entnehmen, dass bei hohen NO<sub>x</sub>-Konzentrationen eine Reduktion von NO<sub>x</sub> nur eine geringe Auswirkung auf die NO<sub>2</sub>-Immissionen hat. Dies bedeutet, dass das Verhältnis von NO<sub>2</sub> zu NO in der Aussenluft mit abnehmendem NO<sub>x</sub> ansteigt. Dadurch steigt auch die Ozon-Konzentration an (siehe Abbildung 11, vgl. Abschnitt 2). Eine höhere O<sub>3</sub>-Belastung hat wiederum einen Einfluss auf die Abhängigkeit der NO<sub>2</sub>-Konzentration von NO<sub>x</sub>. Abbildung 12 zeigt diese Abhängigkeit für unterschiedliche O<sub>3</sub>-Hintergrundkonzentrationen. Bei gleicher NO<sub>x</sub>-Belastung stellt sich bei einem höheren O<sub>3</sub>-Hintergrund eine höhere NO<sub>2</sub>-Konzentration ein. Dies bedeutet, dass eine Reduktion von NO<sub>x</sub> aufgrund des damit verbundenen Anstieges

der  $O_3$ -Belastung zu einer etwas geringeren Abnahme von  $NO_2$  führt, als dies durch die in Abbildung 10 eingetragenen Kurven beschrieben wird.

Grundsätzlich kann festgehalten werden, dass die an den verkehrsbelasteten Standorten beobachteten stagnierenden  $NO_2$ -Immissionen (Abbildungen 1 und 4) durch den beschriebenen Zusammenhang zwischen den Aussenluftkonzentrationen von  $NO$ ,  $NO_2$  und Ozon erklärt werden können.

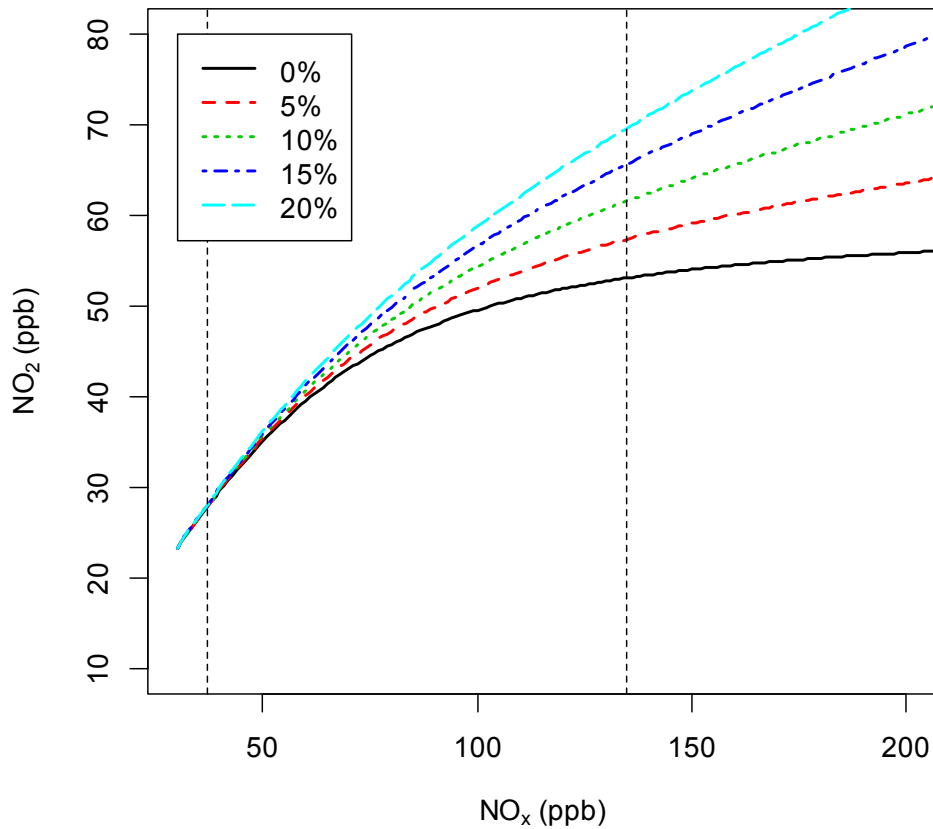


Abbildung 10:  $NO_2$ -Konzentration gegen  $NO_x$  für verschiedene  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnisse bei einer  $O_3$ -Hintergrundbelastung  $[O_3]_0 = 40\text{ppb}$  (siehe Text). Zur Orientierung sind der Median und das 95-Perzentil der  $NO_x$ -Stundenwerte 2015 an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse als vertikale gestrichelte Linien eingezeichnet.

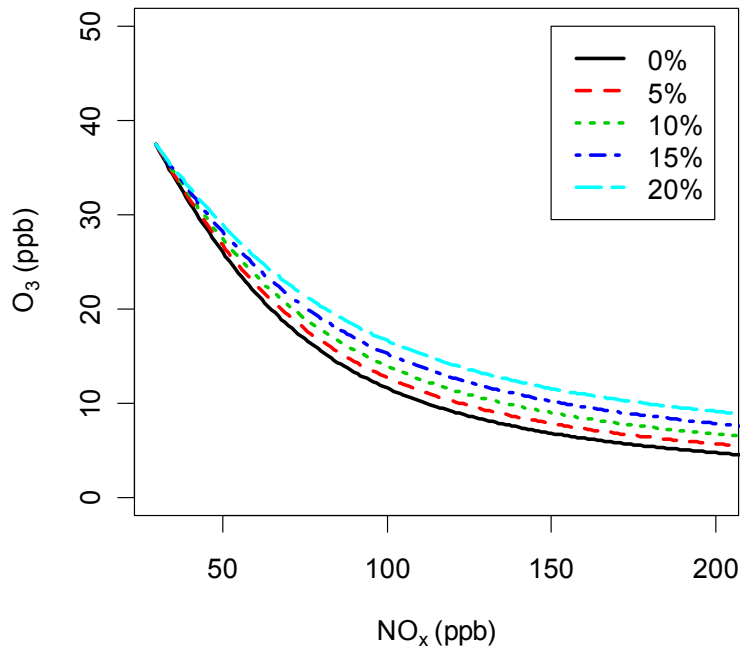


Abbildung 11: O<sub>3</sub>-Konzentration gegen NO<sub>x</sub> für verschiedene NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisse. Als Startbedingungen wurde eine O<sub>3</sub>-Hintergrundbelastung [O<sub>3</sub>]<sub>0</sub> = 40ppb angenommen (siehe Text).

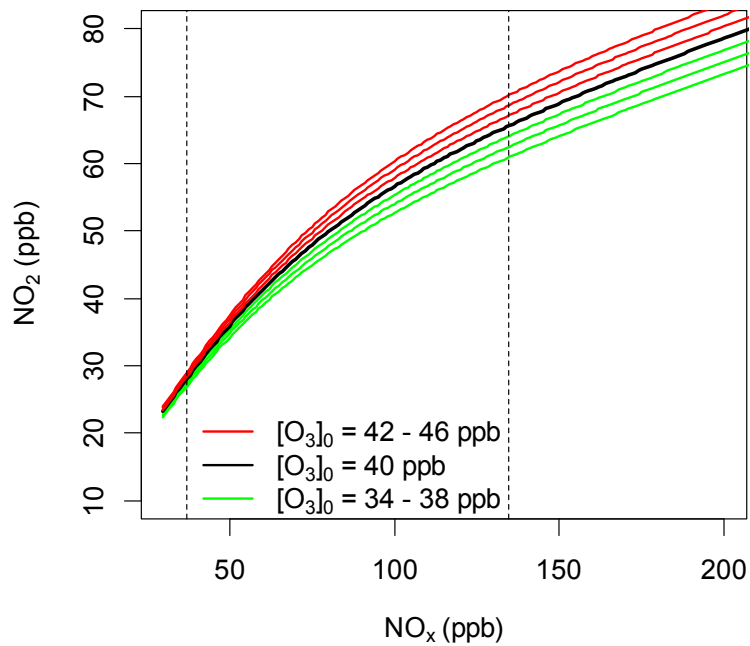


Abbildung 12: NO<sub>2</sub>-Konzentration gegen NO<sub>x</sub> für verschiedene O<sub>3</sub>-Hintergrundbelastungen [O<sub>3</sub>]<sub>0</sub> (siehe Text). Zur Orientierung sind der Median und das 95-Perzentil der NO<sub>x</sub>-Stundenwerte 2015 an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse als vertikale gestrichelte Linien eingezeichnet.

## 6 Abschätzung der Emissionsentwicklung

Die zeitliche Entwicklung der Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs kann neben anderen Luftschadstoffen auch für  $\text{NO}_2$  und  $\text{NO}_x$  (und damit auch für das mittlere  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnis) mit dem Handbuch Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs HBEFA (Version 3.2, 2014) für die korrekte Zusammensetzung der Fahrzeugflotte und für verschiedene Fahrsituationen abgeschätzt werden. Mit dem HBEFA 3.2 können zudem Prognosen für die zukünftige Entwicklung der Emissionen des Strassenverkehrs erstellt werden. Die Abbildungen 13 und 14 zeigen die zeitliche Entwicklung des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  – Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs gemäss HBEFA 3.2 (die Berechnungen wurden von Felix Reutimann (BAFU) durchgeführt). Zum Vergleich sind jeweils die an der Station Zürich-Schimmelstrasse ermittelten Jahresmittelwerte für  $f\text{-NO}_2$  (Werte aus Tabelle 1) eingetragen.

Abbildung 13 zeigt die Entwicklung der  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse, die aus dem Verhältnis der gesamten jährlichen Emissionen von Personenwagen, leichten und schweren Nutzfahrzeugen, Reisebussen und Motorrädern berechnet wurden. Abbildung 13 zeigt bis 2006 eine gute Übereinstimmung zwischen den in diesem Bericht beschriebenen Abschätzungen von  $f\text{-NO}_2$  an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse und den Berechnungen mit dem Handbuch Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs. Danach flacht der Anstieg der an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse abgeschätzten  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse stark ab, die auf dem HBEFA 3.2 beruhenden Werte steigen dagegen bis 2020 weiter an. Entsprechend deutlich ist die Diskrepanz zwischen den aktuellen Abschätzungen an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse und den auf den Emissionszahlen des HBEFA 3.2 beruhenden  $f\text{-NO}_2$ . Abbildung 14 zeigt die Entwicklung von  $f\text{-NO}_2$  nach HBEFA 3.2 getrennt für Personenwagen (PKW) und schweren Nutzfahrzeugen (SNF) für die Fahrsituation innerorts. Das  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnis ist gemäss HBEFA 3.2 seit dem Jahr 2000 für PKW steiler angestiegen als für SNF und ist gegenwärtig für PKW deutlich höher als für SNF. Deutlich tiefere  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse für SNF gegenüber PKW zeigen auch die Messungen von Carslaw et al. (2016). Allerdings wurden dort für schwere Nutzfahrzeuge abnehmende  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse für Euro 5 gegenüber den älteren Emissionsnormen Euro 4 und Euro 3 gefunden. Im HBEFA 3.2. wird dagegen ein kontinuierlicher Anstieg des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisse bis 2040 prognostiziert. Für die Situation an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse lässt sich schliessen, dass der geringere Anteil von schweren Nutzfahrzeugen an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse seit der Änderung der Verkehrsführung im Jahr 2010 zu einem Anstieg von  $f\text{-NO}_2$  geführt haben könnte. Eine Erklärung für das deutlich tiefere  $f\text{-NO}_2$  an der Station Zürich-Schimmelstrasse, als aufgrund des HBEFA 3.2 zu erwarten wäre, kann derzeit nicht gegeben werden.

Die Entwicklung des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses sollte nicht losgelöst von der Entwicklung der gesamten  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs betrachtet werden. Die Entwicklung der gesamten  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs in der Schweiz ist in Abbildung 15 dargestellt. Die mit HBEFA3.2 berechnete zukünftige Entwicklung der  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs zeigt bis ca. 2030 eine Fortführung des langjährigen Trends stark abnehmender Emissionen. Die erwartete Abnahme der  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Strassenverkehrs ist auf die kontinuierliche Erneuerung der Fahrzeuge und der Einführung der strengeren Abgasnormen zurückzuführen. Aus der zeitlichen Entwicklung der  $\text{NO}_x$ -Emissionen und des  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ -Emissionsverhältnisses ergibt sich der in Abbildung 16 dargestellte Verlauf der  $\text{NO}_2$ -Emissionen des Strassenverkehrs. Die  $\text{NO}_2$ -Emissionen des Strassenverkehrs sind nach HBEFA 3.2 seit 2000 wegen des Anstieges von  $f\text{-NO}_2$  deutlich angestiegen und haben gegenwärtig ein Maximum erreicht. Für die nächsten Jahre wird eine Abnahme der  $\text{NO}_2$ -Emissionen des Strassenverkehrs prognostiziert. Diese Prognose für die

Entwicklung der NO<sub>2</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs in der Schweiz ist in guter Übereinstimmung mit Prognosen für andere europäische Länder (Grice et al., 2009).

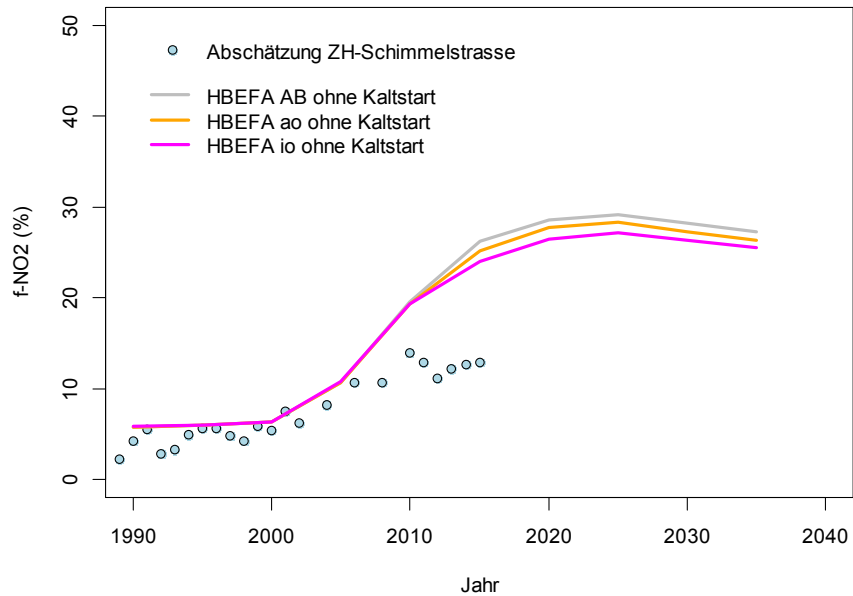


Abbildung 13: Zeitliche Entwicklung des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> – Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs gemäss HBEFA, Version 3.2 für Fahrten auf der Autobahn (AB), ausserorts (ao) sowie innerorts (io) ohne Berücksichtigung von Kaltstartemissionen. Zum Vergleich sind die Jahresmittelwerte für f-NO<sub>2</sub> an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse aus Tabelle 1 eingetragen.

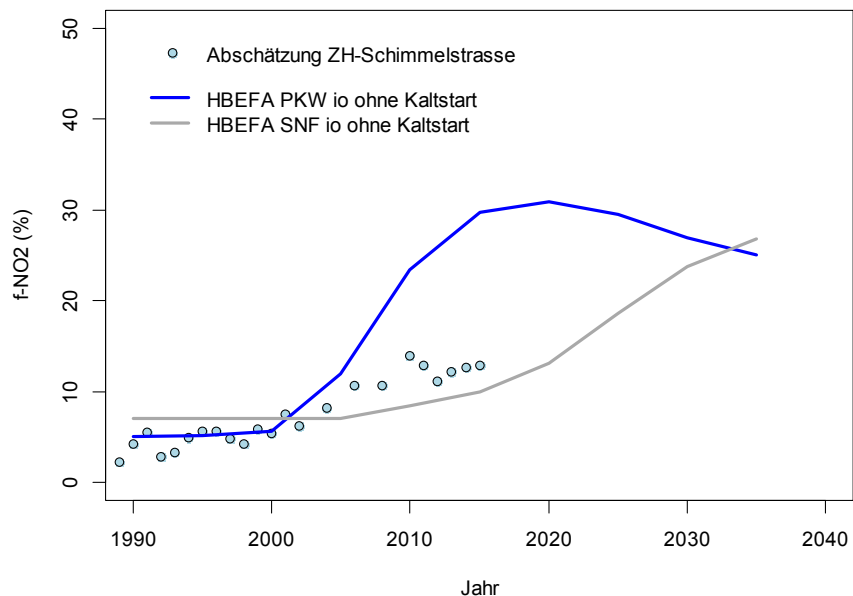


Abbildung 14: Zeitliche Entwicklung des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> – Emissionsverhältnisses von Personenwagen (PKW) und schweren Nutzfahrzeugen (SNF) für Fahrten innerorts (io) gemäss HBEFA, Version 3.2. Zum Vergleich sind die Jahresmittelwerte für f-NO<sub>2</sub> an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse aus Tabelle 1 eingetragen.

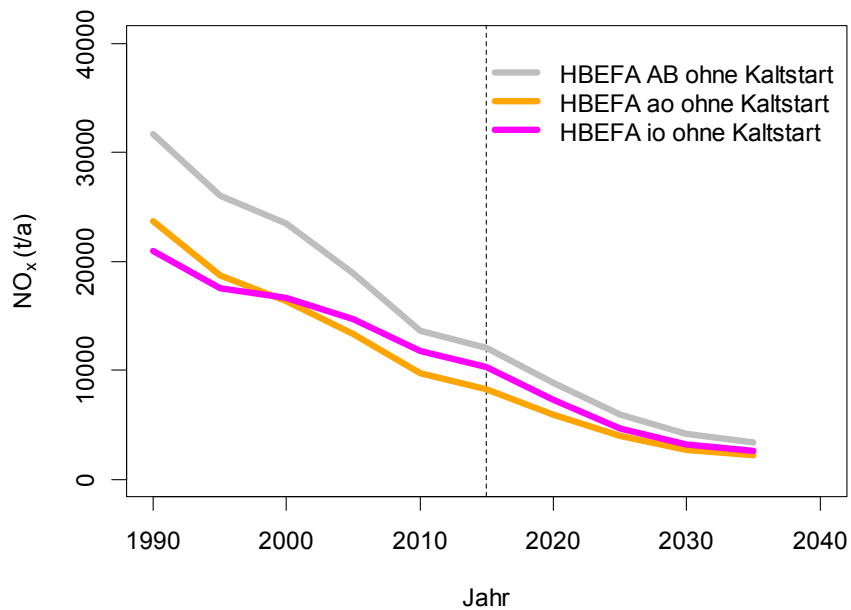


Abbildung 15: Zeitliche Entwicklung der NO<sub>x</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs nach HBEFA Version 3.1 für verschiedene Verkehrssituationen (Autobahn (AB), ausserorts (ao) sowie innerorts (io) ohne Berücksichtigung von Kaltstartemissionen). Die gestrichelte vertikale Linie markiert das Jahr 2015.

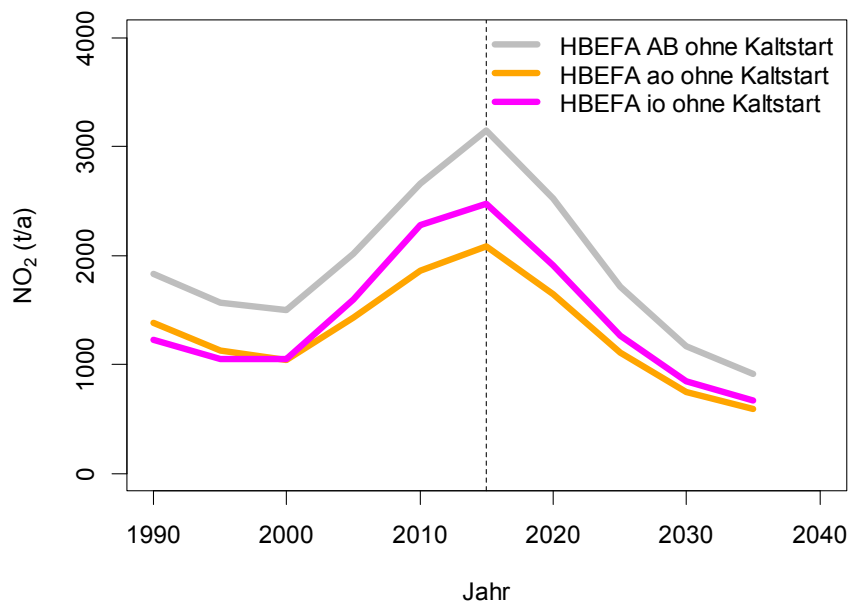


Abbildung 16: Zeitliche Entwicklung der NO<sub>2</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs nach HBEFA v3.1 für verschiedene Verkehrssituationen (Autobahn (AB), ausserorts (ao) sowie innerorts (io) ohne Berücksichtigung von Kaltstartemissionen). Die gestrichelte vertikale Linie markiert das Jahr 2015.



## 7 Fazit

Die NO<sub>2</sub>-Belastung an der Messstation Zürich-Schimmelstrasse ist wie an anderen verkehrsbelasteten städtischen Standorten der Schweiz immer noch zu hoch, die Grenzwerte werden regelmässig überschritten.

Das NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnis des Strassenverkehrs am Standort Zürich-Schimmelstrasse ist von etwa 7% in den 1990er Jahren auf etwa 13% im Jahr 2015 angestiegen. Dadurch ist der absolute Beitrag von primärem NO<sub>2</sub> an diesem Standort ebenfalls leicht angestiegen: Von 2.7ppb (bzw. 5.2µg/m<sup>3</sup>; Mittelwert 1991-1993) auf 3.1ppb (bzw. 5.9µg/m<sup>3</sup>; Mittelwert 2013-2015). Der NO<sub>2</sub>-Beitrag des städtischen Hintergrundes hat dagegen seit Beginn der 1990er Jahre von 24.1ppb (bzw. 46.0µg/m<sup>3</sup>; Mittelwert 1991-1993) auf 16.0ppb (bzw. 30.6µg/m<sup>3</sup>; Mittelwert 2013-2015) abgenommen. Im jährlichen Mittel tragen die direkten NO<sub>2</sub>-Emissionen am Standort Zürich-Schimmelstrasse aktuell etwa 14% zur gesamten NO<sub>2</sub>-Immissionsbelastung bei (Mittelwert 2013-2015). Der Beitrag durch lokal sekundär gebildetes NO<sub>2</sub> ist etwas grösser als der Beitrag durch primär emittiertes NO<sub>2</sub> (ca. 17%, Mittelwert 2013-2015), den deutlich grössten Beitrag liefert der städtische NO<sub>2</sub>-Hintergrund (ca. 71%, Mittelwert 2013-2015).

Eine Reduktion des NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Emissionsverhältnisses des Strassenverkehrs würde an diesem Standort folglich nicht zu einer wesentlichen Entlastung der mittleren jährlichen NO<sub>2</sub>-Immissionen führen. Da an einem verkehrsbelasteten Standort der relative Anteil von primärem NO<sub>2</sub> an Tagen mit hohen NO<sub>2</sub>-Immissionen überdurchschnittlich hoch ist, würde eine Reduktion von f-NO<sub>2</sub> jedoch dazu beitragen, dass die Häufigkeit von Überschreitungen des 24h-Immissionsgrenzwertes abnimmt.

Die NO<sub>x</sub>-Belastung am Standort Zürich-Schimmelstrasse ist derzeit auf einem gegenüber den 1990er Jahren deutlich tieferen Niveau. Bei der derzeitigen NO<sub>x</sub>-Belastung an dieser verkehrsbelasteten städtischen Station sollte eine weitere Abnahme der NO<sub>x</sub>-Konzentration zu einem stärkeren Rückgang von NO<sub>2</sub> führen, als dies bei den höheren NO<sub>x</sub>-Konzentrationen der Vergangenheit der Fall war. Die mittlere jährliche NO<sub>2</sub>-Belastung am Standort Zürich-Schimmelstrasse kann wirksam gesenkt werden, wenn eine weitere Abnahme der gesamten Stickoxid-Emissionen (NO<sub>x</sub>) realisiert werden kann.

Die mit dem Handbuch Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs (HBEFA 3.2) berechneten NO<sub>x</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs sagen für die Zeit bis 2030 anhaltend rückläufige Emissionen voraus. Für die Verbesserung der NO<sub>2</sub>-Belastung am Standort Zürich-Schimmelstrasse, sowie an anderen verkehrsbelasteten städtischen Standorten in der Schweiz wird es entscheidend sein, dass diese prognostizierte Abnahme der NO<sub>x</sub>-Emissionen des Strassenverkehrs auch tatsächlich eintreten wird. Dazu müssen die zukünftigen Fahrzeuge (Personenwagen und Nutzfahrzeuge) die geltenden Abgasvorschriften auch im realen Einsatz einhalten.

## 8 Danksagung

Ein herzlicher Dank geht an den Umwelt und Gesundheitsschutz Zürich (UGZ Zürich) für die Bereitstellung der langjährigen Messwerte der Messstation Zürich-Schimmelstrasse. Vielen Dank auch an Felix Reutimann (BAFU) für die Berechnung der Emissionen des Strassenverkehrs mit dem Handbuch Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs, HBEFA 3.2.

## 9 Literatur

- Abbott, J. (2005). Primary nitrogen dioxide emissions from road traffic: analysis of monitoring data. AEA Technology, National Environmental Technology Centre, Report AEAT-1925.  
[http://www.airquality.co.uk/reports/cat05/0703151041\\_primno2v3.pdf](http://www.airquality.co.uk/reports/cat05/0703151041_primno2v3.pdf).
- BAFU (2015). NABEL- Luftbelastung 2014. Messresultate des Nationalen Beobachtungsnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL), <http://www.bafu.admin.ch/publikationen/publikation/01822/index.html?lang=de>.
- BUWAL (2005). Stickstoffhaltige Luftschadstoffe in der Schweiz. Status-Bericht der Eidg. Kommission für Lufthygiene. Schriftenreihe Umwelt Nr.384, Luft. Hrsg. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, Bern.
- Carslaw D.C., Murrells T.P., Andersson J., Keenan M. (2015) Have vehicle emissions of primary NO<sub>2</sub> peaked? Faraday. Discuss. 189(0): 439-454.
- Düring I., Bächlin W., Ketzler M., Baum A., Friedrich U., Wurzler S. (2011). A new simplified NO/NO<sub>2</sub> conversion model under consideration of direct NO<sub>2</sub>-emissions. Meteorologische Zeitschrift, 20, 67-73.
- Grice S., Stedmann J., Kent A., Hobson M., Norris J., Abbott J., Cooke S. (2009). Recent trends and projections of primary NO<sub>2</sub> emissions in Europe. Atmospheric Environment, 43, 2154-2167.
- HBEFA (2014). Handbuch für Emissionsfaktoren des Strassenverkehrs, Version 3.2. Infrac Bern, Verfügbar unter <http://www.hbefa.net>.
- Henschel, S., A. Le Tertre, R. W. Atkinson, X. Querol, M. Pandolfi, A. Zeka, D. Haluza, A. Analitis, K. Katsouyanni, C. Bouland, M. Pascal, S. Medina and P. G. Goodman (2015). Trends of nitrogen oxides in ambient air in nine European cities between 1999 and 2010. Atmospheric Environment 117: 234-241.
- Kurtenbach, R., Becker, K.-H., Bruckmann, P., Kleffmann, J., Niedofadlo, A., Wiesen, P. (2009). Das innerstädtische „Stickstoffdioxid (NO<sub>2</sub>)-Problem“. Gefahrenstoffe - Reinhaltung der Luft, 69, 146-149.
- Manschreck, K., Gilge, S., Plass-Duelmer, C., Fricke, W., Berresheim, H. (2004). Assessment of the applicability of NO-NO<sub>2</sub>-O<sub>3</sub> photostationary state to long-term measurements at the Hohenpeissenberg GAW Station, Germany. Atmos. Chem. Phys., 4, 1265-1277.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S. (1998) Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change, John Wiley and Sons, Inc.

## 10 Anhang

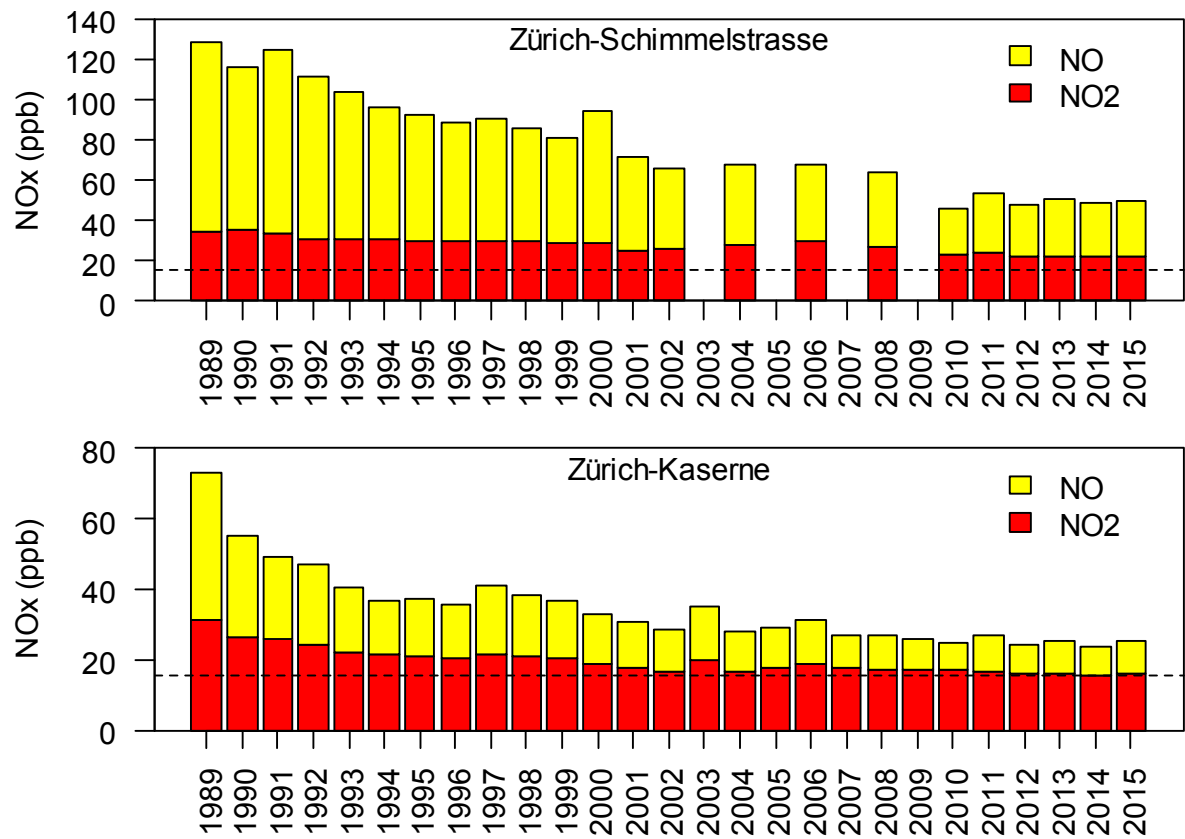


Abbildung A.1: Zeitverlauf der jährlichen Konzentrationen von NO<sub>x</sub> (NO + NO<sub>2</sub>) an den beiden Messstationen Zürich-Schimmelstrasse (oben) und Zürich-Kaserne (unten). Die horizontalen gestrichelten Linien kennzeichnen den jährlichen Immissionsgrenzwert von NO<sub>2</sub> (30µg/m<sup>3</sup>, oder 15.7ppb).

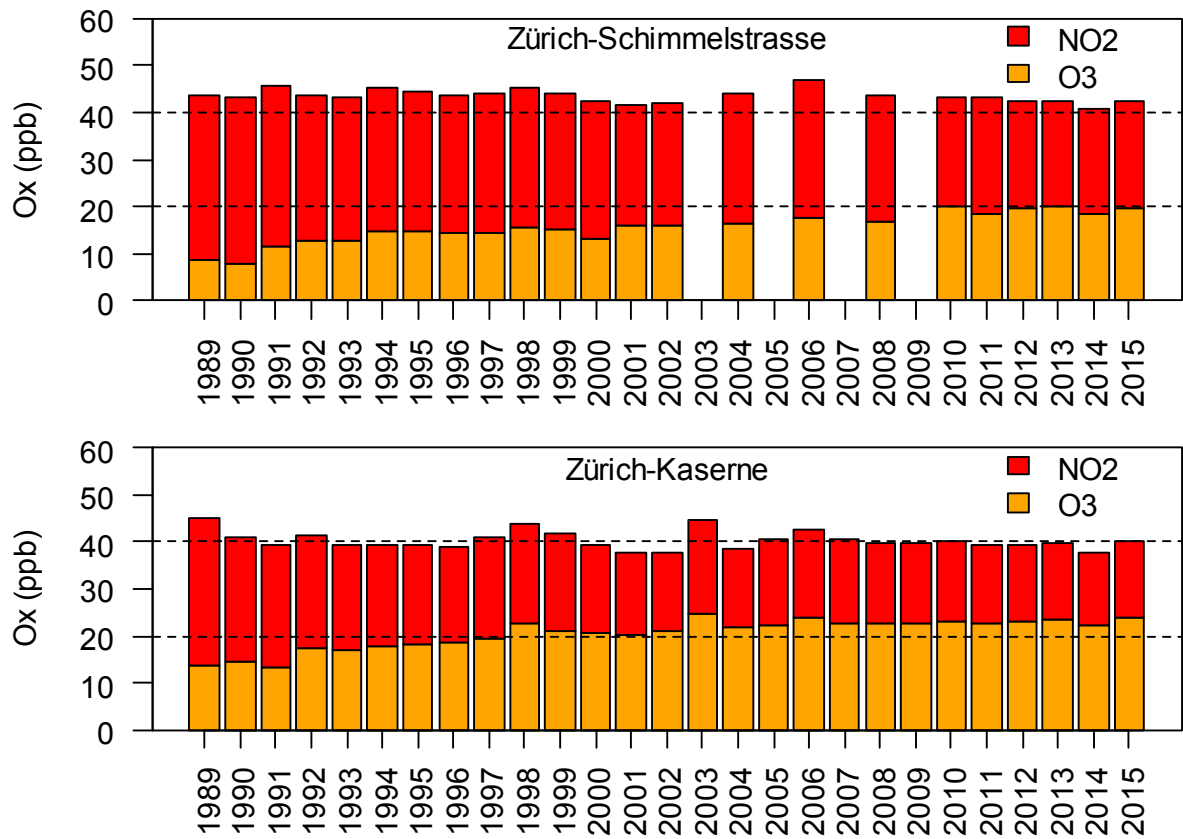


Abbildung A.2: Zeitverlauf der jährlichen Konzentrationen von O<sub>x</sub> (NO<sub>2</sub> + O<sub>3</sub>) an den beiden Messstationen Zürich-Schimmelstrasse (oben) und Zürich-Kaserne (unten). Als Referenz sind bei 20ppb und 40ppb horizontale gestrichelte Linien eingezeichnet.

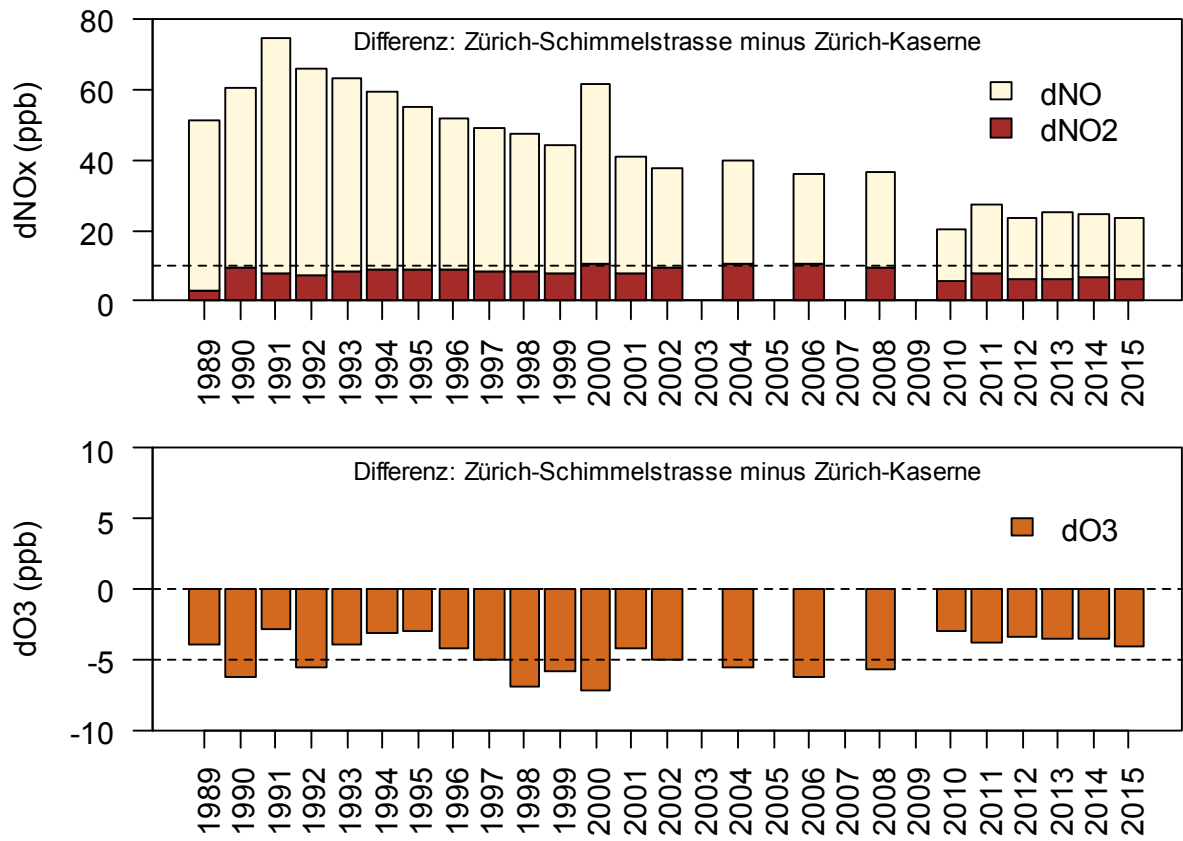


Abbildung A.3: Differenz der mittleren jährlichen Konzentrationen von NO, NO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> (oben), sowie von O<sub>3</sub> (unten) an den beiden Stationen Zürich Schimmelstrasse und Zürich Kaserne (dNO, dNO<sub>2</sub>, dNO<sub>x</sub> und dO<sub>3</sub>). Mit der Änderung des Verkehrsregimes bei der Station Zürich Schimmelstrasse im Jahr 2010 ist die Differenz der NO<sub>x</sub>-Belastung zwischen beiden Stationen etwas kleiner geworden zu sein. Die Differenz von O<sub>3</sub> an den beiden Standorten wird im angewendeten Modell als die Menge von am Standort Zürich-Schimmelstrasse lokal gebildetem sekundärem NO<sub>2</sub> interpretiert (siehe Kapitel 3, Gleichung 5). Die sekundäre Bildung von NO<sub>2</sub> durch die Reaktion  $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$  (siehe Gleichung 1) bewirkt, dass die Summe von O<sub>3</sub>- und NO<sub>2</sub>-Molekülen ( $\text{O}_x = \text{O}_3 + \text{NO}_2$ ) unverändert bleibt.

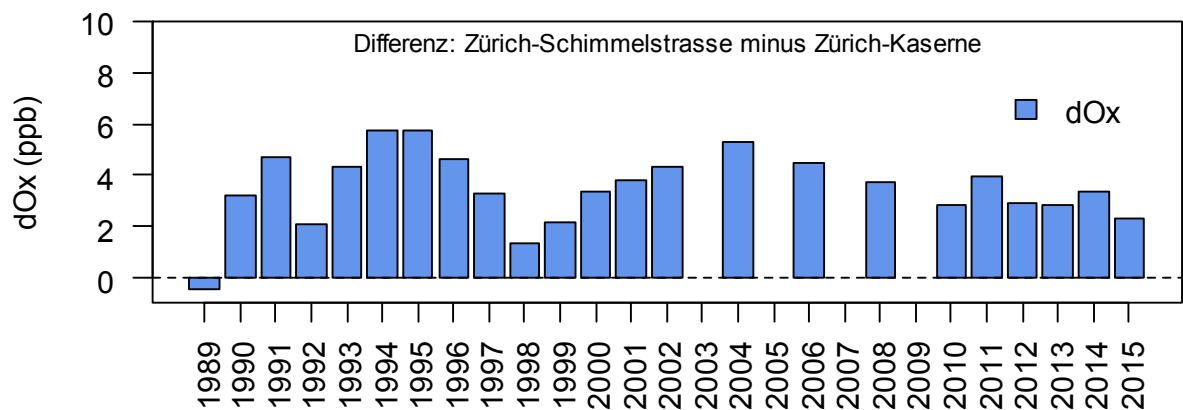


Abbildung A.4: Differenz der mittleren jährlichen Konzentrationen von O<sub>x</sub> ( $\text{O}_x = \text{O}_3 + \text{NO}_2$ ).

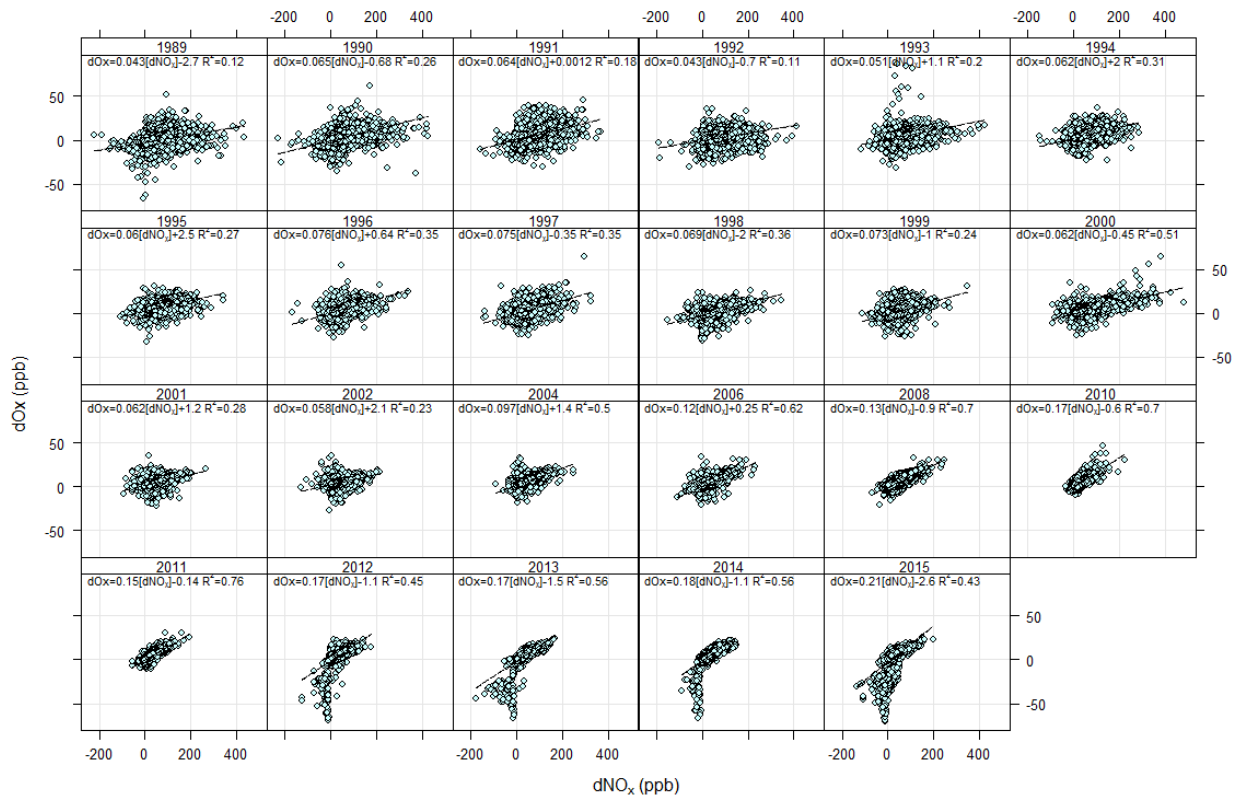


Abbildung A.5: Streudiagramm und lineare Regression von  $dO_x$  ( $O_x$  Schimmelstrasse -  $O_x$  Kaserne) gegen  $dNO_x$  ( $NO_x$  Schimmelstrasse minus  $NO_x$  Kaserne) der nach Jahr aufgeteilten und ungefilterten Stundenmittelwerte (siehe Text Abschnitt 3). Der Anteil des primären  $NO_2$  an den  $NO_x$ -Emissionen des lokalen Verkehrs kann als die Steigung der Regressionsgeraden abgeschätzt werden (Gleichung 4). Gut erkennbar ist, dass insbesondere seit 2012 vergleichsweise häufig stark negative Stundenwerte für  $dO_x$  auftreten. Diese Werte haben einerseits einen grossen Einfluss auf die Regressionsrechnung, andererseits sind sie wie auch negative  $dNO_x$ -Werte nicht verträglich mit den Annahmen der angewendeten Auswertemethode (siehe Gleichung 4). In der vorherigen Version dieses Berichtes aus dem Jahr 2012 wurde keine Datenfilterung angewendet, d.h. negative Stundenwerte für  $dO_x$  flossen in die Berechnung von  $f\text{-}NO_2$  ein, was zu höheren berechneten  $NO_2/NO_x$ -Emissionsverhältnissen führte.