Photokatalytische Oberflächen zur Minderung von Stickoxidbelastungen an Verkehrswegen

Luftschadstoffmessungen im gesamten Bundesgebiet zeigen, dass der seit 01.01.2010 geltende NO_2-Jahresmittelgrenzwert der 39. BImSchV [1] insbesondere an verkehrsnahen Standorten zum Teil stark überschritten wird. Obwohl Stickoxide (NO_x) von Fahrzeugen durch innermotorische Maßnahmen sowie Abgasnachbehandlungen seit einigen Jahren deutlich reduziert wurden, nehmen die Stickstoffdioxidimmissionen nicht oder nicht in dem erwarteten Umfang ab. Kurz- und mittelfristig werden daher neben diesen direkten auch indirekte (passive) Maßnahmen erwogen. Hierzu zählt der Einsatz von Titandioxid (TiO_2), das als Suspension auf Oberflächen aufgetragen oder direkt als Zusatzstoff zum Beispiel während der Betonherstellung in den Zement beigegeben werden kann. Durch Lichteinwirkung (UV(A)-Strahlung) kann das TiO_2 aktiviert und Schadstoffe wie Stickoxide reduziert werden. Titandioxid ist ein Photokatalysator, der während der Reaktion nicht verbraucht wird, so dass die Oxidationsprozesse beliebig oft wiederholbar sind. Bei vollständiger Reaktion bilden sich aus Stickoxiden wasserlösliche Nitrate und aus organischen Schadstoffen Kohlendioxid und Wasser. Unter Laborbedingungen konnte diesbezüglich ein hohes Minderungspotential gegenüber Stickoxiden nachgewiesen werden. Versuche in situ sind jedoch die Ausnahme, zudem kommen diese zu ganz unterschiedlichen Aussagen und Wirkungsgraden.

Innerhalb eines umfangreichen Pilotprojektes wurde daher das Stickoxid-Minderungspotential von Titandioxid unter Realbedingungen an einer Lärmschutzwand einer hoch frequentierten Bundesautobahn quantifiziert. Vor dem Einsatz der photokatalytischen Materialien wurden diverse Voruntersuchungen durchgeführt, wie Modellrechnungen oder Schalluntersuchungen, um ausschließen zu können, dass die für die Lärmschutzwand gewählte TiO_2-Suspension die akustischen Eigenschaften des offenporigen Wandmaterials beeinflusst. Während der Laufzeit fanden wiederum verschiedene projektbegleitende Untersuchungen statt, zum Beispiel Bodenanalysen, Bewitterungen von Prüfkörpern oder eine Bilanzierung des Abbauproduktes Nitrat im Abflusswasser der Wand.

Design und Standort der Studie an der Lärmschutzwand

Das Untersuchungsgebiet liegt an der Bundesautobahn A 1 zwischen den Anschlussstellen Osnabrück-Nord und Osnabrück-Hafen und umfasst eine Länge von rund zwei Kilometern. Die 6-streifige Bundesautobahn ist in diesem Abschnitt auf beiden Seiten mit einer Lärmschutzwand (LSW) eingefasst, auf die im September 2011 auf einer Länge von einem Kilometer beidseitig eine TiO_2-haltige Suspension im Airless-Verfahren aufgetragen wurde. Die beschichtete Fläche beträgt circa 20.000 bis 30.000 Quadratmeter. Ein ein Kilometer langes Teilstück ohne Suspension diente im Zuge der Untersuchung als Referenzfläche. Die Bestimmung der Luftschadstoffkonzentrationen erfolgte an vier Standorten auf der verkehrszugewandten Seite der Lärmschutzwand, wobei zwei Messcontainer am beschichteten Abschnitt und zwei am unbeschichteten Abschnitt installiert wurden.

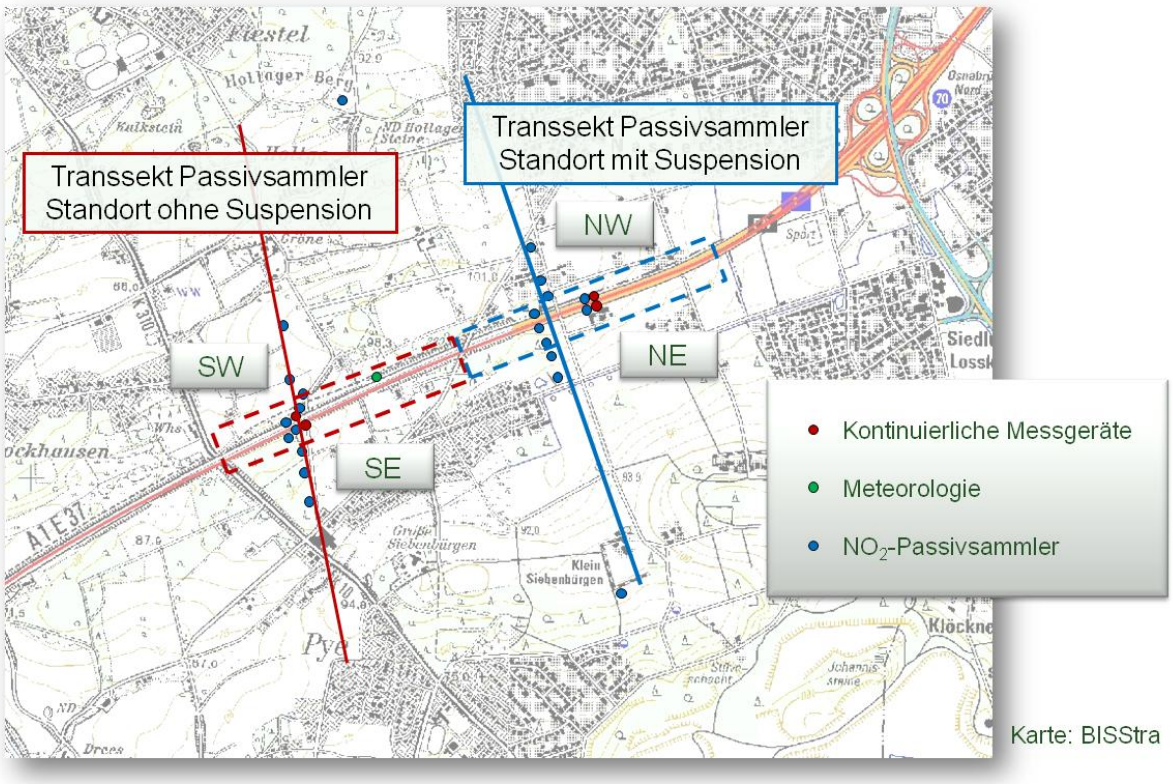

Abbildung 1: Untersuchungsgebiet und Standorte der Messgeräte an der Bundesautobahn A 1 zwischen AS Osnabrück Nord und AS Osnabrück Hafen (Karte: BISStra).

Es kamen kontinuierliche Messgeräte zur Bestimmung der Konzentrationen von Ozon und Stickoxiden sowie diverse Geräte zur Aufnahme der meteorologischen Parameter Windrichtung, Windgeschwindigkeit, UV(A)-Strahlung, Globalstrahlung, Niederschlag, Luftfeuchtigkeit und Temperatur zum Einsatz. Darüber hinaus wurden auf der verkehrszugewandten und der verkehrsabgewandten Seite der Lärmschutzwand in unterschiedlichen Entfernungen zum Straßenbauwerk 22 NO_2-Passivsammler aufgestellt.

Zur Bestimmung der Verkehrsstärke wurden Daten der nahegelegenen automatischen Dauerzählstelle „Holdorf“ herangezogen.

Schalluntersuchungen

Vor dem Einsatz der TiO_2-haltigen Suspension auf der LSW wurde durch akustische Messungen untersucht, ob sich die TiO_2-Suspension negativ auf die Schallabsorption der hoch absorbierenden Lärmschutzwand auswirken könnte. Dies konnte sowohl durch Impedanzrohrmessungen (Kundtsches Rohr; siehe Abbildung 2 oben links) als auch durch Bestimmung des Absorptionsvermögens im Hallraum (siehe Tabelle 1 und Abbildung 2 oben rechts) ausgeschlossen werden.

Der beschichtete Prüfkörper weist zwar eine geringere Schallabsorption auf als der unbeschichtete, aber beide Körper sind gemäß DIN EN 1793-1 [2], Anhang A den Schallabsorptionseigenschaften A3 (DLa 8 … 11 dB) zuzuordnen und besitzen gemäß der ZTV-Lsw 06 [3] hoch absorbierende Eigenschaften. Die untersuchte Suspension konnte somit zum Einsatz kommen.

Tabelle 1: Einzahl-Angabe der Schallabsorption DLa nach DIN EN 1793-1 für die untersuchten Prüfkörper im Hallraum.

Prüfkörper	Schallabsorption
unbeschichtet	10 dB
beschichtet	9 dB

Modellrechnungen

Darüber hinaus sollten Modellrechnungen das maximal zu erwartende Minderungspotential abschätzen. In einer ersten Modellstudie vor Beginn der Standortauswahl wurde ein Minderungspotential von bis zu sieben Prozent unter Idealbedingungen (kontinuierlich 10 W/m² UV(A)-Strahlung und ein idealisierter Aufbau der Lärmschutzwand) festgestellt. Eine weitere Simulation wurde mit den tatsächlich vor Ort herrschenden Umgebungsbedingungen und Abmaßen durchgeführt. Hierbei zeigte sich eine Minderung der Stickoxidbelastung NO_x von etwa ein bis 3,6 Prozent im Nahbereich der Lärmschutzwand. Die höchsten Minderungen wurden auf der Ostseite der Autobahn beobachtet. Grund hierfür ist die Ausrichtung der Autobahn zur Hauptwindrichtung an diesem Standort.

Abbildung 2: oben links: Kundtsches Rohr; oben rechts: beschichteter Prüfkörper im Hallraum; Mitte links: Bewitterungsgestelle mit Prüfkörpern an der A1; Mitte rechts: Nahaufnahme Bewitterungsgestell; unten links: Messcontainer und Passivsammler an einer der vier Standorte der kontinuierlichen Messungen; unten rechts: Messcontainer für die Nitratbilanzierung (Bilder: BASt (oben, unten links), KRONOS (Mitte), UIT (unten rechts)).

Der Wind kommt hier vermehrt aus südöstlichen Richtungen und bildet daher in der kleinräumigen Schlucht der beidseitigen Lärmschutzwand eine Walze aus, die die schadstoffbelastete Luft an der östlichen Seite anreichert und somit an die photokatalytische Oberfläche heranträgt (siehe Abbildung 3). Auch halten sich die Schadstoffe so länger an der TiO_2-Suspension auf und haben mehr Zeit für die chemischen Reaktionen, die für den Abbau des NO_x sorgen.

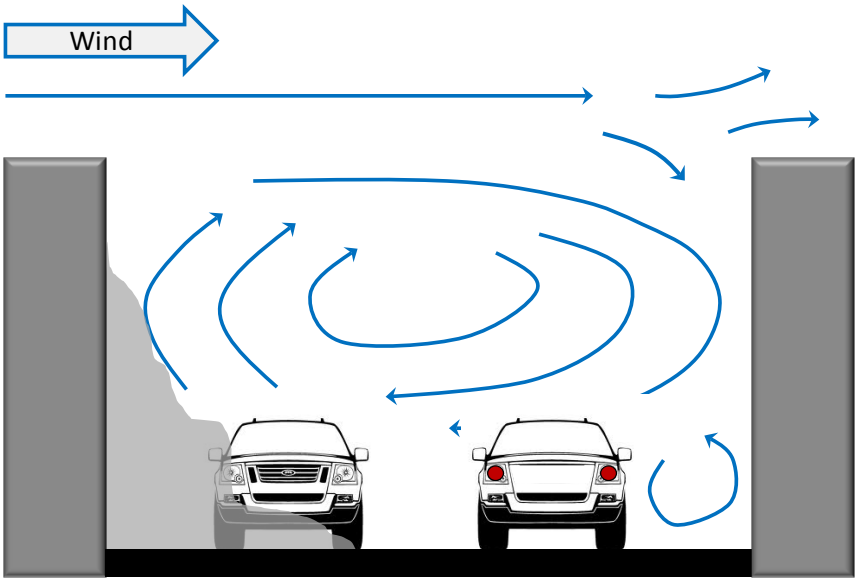

Abbildung 3: Schematische Darstellung einer sich ausbildenden Luftwalze an einem schluchtartig eingefassten Verkehrsweg. Am Standort A1 wäre hier der Blick in Richtung Südwest. Auf der linken Bildseite würden sich die östlichen Messpunkte befinden, auf der rechten Seite die westlichen.

Bewitterungen

Neben den akustischen Untersuchungen und den Modellrechnungen wurden Prüfkörper aus dem Material der Lärmschutzwand sowie aus Faserzement hergestellt, mit der verwendeten TiO_2-Suspension beschichtet und in Bewitterungsgestellen an dem Standort an der A1 aufgestellt (siehe Abbildung 2 Mitte). Die so in situ bewitterten Prüfkörper wurden in unregelmäßigen Abständen aus den Bewitterungsgestellen herausgenommen und im Labor hinsichtlich ihrer photokatalytischen Aktivität untersucht, da bei einer Suspension eine gewisse Zeit vergeht, bis die oberen TiO_2-Partikel durch Photokatalyse das sie umgebende organische Bindemittel abgebaut haben. Erst dann kann die photokatalytische Reaktion mit den Schadstoffen in der Umgebungsluft einsetzen. In den Wintermonaten wurden hierbei die Abstände zur Einholung der Prüfkörper verlängert und in den Sommermonaten verkürzt, da die UV(A)-Strahlung in den Sommermonaten höher ist als in den Wintermonaten. Daher waren deutlichere Effekte bei der Aktivitätssteigerung der TiO_2-Oberfläche im Sommer zu erwarten.

Nitratbilanzierung

Des Weiteren wurde an allen vier Standorten der kontinuierlichen Luftschadstoffmessungen eine Nitratbilanzierung im Abflusswasser der Lärmschutzwand durchgeführt (siehe Abbildung 2 unten links), da das bei der Photokatalyse anfallende Nitrat ebenfalls ein Umweltschadstoff sein kann, zum Beispiel für durch die FFH-Richtlinie besonders geschützte Magerstandorte

oder für das anstehende Grundwasser. Dafür wurden Temperatur, pH-Wert, Chlorid- und Nitratgehalt erfasst.

Ergebnisse der Luftschadstoffmessungen

Eine besondere Problematik stellte die Bestimmung der genauen Aktivierungsdauer der TiO_2-Suspension dar. Laut Herstellerangaben lag diese bei etwa drei Monaten. Die Bewitterungsuntersuchungen zeigten jedoch, dass die Aktivierung mit etwa einem Jahr sehr viel länger dauerte. Grund hierfür war wahrscheinlich der Zeitpunkt der Auftragung der Suspension. Diese fand im Herbst statt. Somit hatten die TiO_2-Partikel über die Wintermonate hinweg nur sehr geringe UV(A)-Strahlungsintensitäten, um das sie umgebende Bindemittel durch Photokatalyse abzubauen und somit an die Oberfläche der Suspension zu treten.
Die Messungen begannen im Juli 2011 und die Beschichtungsarbeiten wurden vom 14.09. bis 29.10.2011 durchgeführt. Aufgrund der durch die Bewitterungsversuche nachgewiesenen Aktivierungsdauer von rund einem Jahr wurden die Messdaten für die im Folgenden dargestellte Auswertung in folgende Untersuchungsabschnitte eingeteilt:

Vor Aktivierung:	01.10.2011 – 30.09.2012
1. Jahr nach Aktivierung:	01.10.2012 – 30.09.2013
2. Jahr nach Aktivierung:	01.10.2013 – 30.09.2014

Die vier verschiedenen Standorte NE, NW, SE, SW (siehe Abbildung 1) wiesen über die gesamte Projektlaufzeit hinweg systematische Unterschiede auf. Dabei lagen insbesondere die Daten der Station SE zumeist sehr viel höher als die Daten an den anderen drei Stationen. Hinzu kam eine gleichmäßige Zunahme des Durchschnittlichen Täglichen Verkehrs DTV über die betrachteten Jahre 2011 bis 2014 (siehe Abbildung 4). Dies könnte daran gelegen haben, dass der Verkehr, der sich insbesondere durch die Arbeitsstellen des Konjunkturpakets II in den Jahren 2009 und 2010 von der A1 auf die A7 verlagert hatte, nach und nach wieder auf die A1 zurückkehrte.
Für die Auswertungen wurde zunächst eine Delta-Betrachtung durchgeführt, um systematische Unterschiede der vier Standorte der kontinuierlichen Messgeräte heraus rechnen zu können. Dazu wurde für die westlichen Standorte SW und NW berechnet:

$\Delta_{W,vor}$ = SW (vor Aktivierung) – NW (vor Aktivierung)
$\Delta_{W,nach}$ = SW (nach Aktivierung) – NW (nach Aktivierung)

sowie

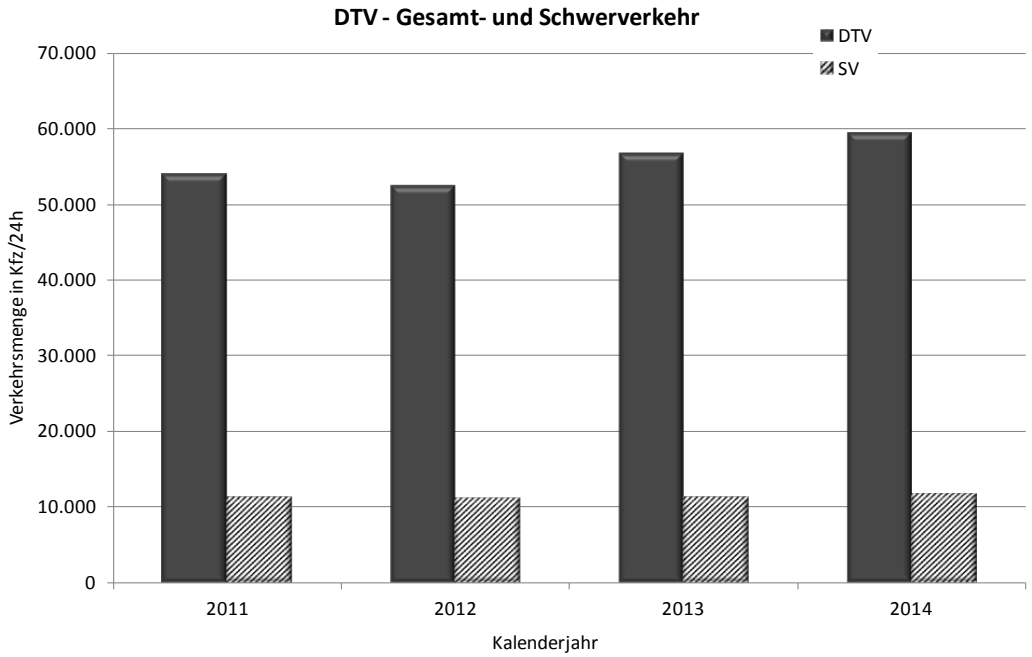

Abbildung 4: Durchschnittlicher Täglicher Verkehr für die Kalenderjahre 2011 bis 2014 an der Dauerzählstelle Holdorf, nördlich des Untersuchungsabschnittes an der A1.

$\Delta_W = \Delta_{W,vor} - \Delta_{W,nach}$

Für die östlichen Standorte SE und NE folgte gleichermaßen die Berechnung:

$\Delta_{E,vor}$ = SE (vor Aktivierung) – NE (vor Aktivierung)

$\Delta_{E,nach}$ = SE (nach Aktivierung) – NE (nach Aktivierung)

sowie

$\Delta_E = \Delta_{E,vor} - \Delta_{E,nach}$

wobei: Δ_W: Minderungswirkung auf der westlichen Seite der Autobahn (Fahrtrichtung Osnabrück)
Δ_E: Minderungswirkung auf der östlichen Seite der Autobahn (Fahrtrichtung Bremen)

Da während der Auswertungen festgestellt wurde, dass sich mit der oben beschriebenen Delta-Berechnung auch in den Nachtstunden beziehungsweise den Stunden mit einer UV(A)-Strahlung von < 1 W/m² Minderungen feststellen ließen, musste es sich bei diesen um systematische Änderungen über die Jahre hinweg handeln. Gründe hierfür können in Änderungen der meteorologischen und verkehrlichen Einflussparameter mit der Zeit liegen.

Bringt man diese systematischen Unterschiede jedoch über eine „Nachtkorrektur“ zum Abzug, erhält man den reinen Effekt der NO_2-Minderung. Als Definition für „Tag“ und „Nacht“ wurde gewählt:

UV(A) > 5 W/m²: Tag
UV(A) < 1 W/m²: Nacht

Daraus ergibt sich:

$\Delta_{W,nachtkorr} = \Delta_W$ (UV(A) > 5 W/m²) - Δ_W (UV(A) < 1 W/m²)

$\Delta_{E,nachtkorr} = \Delta_E$ (UV(A) > 5 W/m²) - Δ_E (UV(A) < 1 W/m²)

Wobei: $\Delta_{W,nachtkorr}$: reine Minderungswirkung auf der westlichen Seite der Autobahn (Fahrtrichtung Osnabrück)
$\Delta_{E,nachtkorr}$: reine Minderungswirkung auf der östlichen Seite der Autobahn (Fahrtrichtung Bremen)

Mit dieser Nachtkorrektur ergeben sich die in Abbildung 5 dargestellten Minderungen. Nach dem ersten Jahr nach Aktivierung ist auf der Westseite eine Minderung von fünf bis sechs Prozent und auf der Ostseite von ein bis zwei Prozent zu beobachten. Bei dem Vergleich zwischen dem zweiten Jahr nach Aktivierung und dem Jahr vor der Aktivierung stellt sich eine Minderung von vier bis fünf Prozent auf der Westseite und von sechs bis sieben Prozent auf der Ostseite ein.
Da die Übergänge der Aktivierung fließend sind, ist davon auszugehen, dass der Vergleich zwischen Referenzjahr und zweitem Jahr nach Aktivierung eine höhere Aussagekraft hat als der Vergleich zwischen Referenz und erstem Jahr. Darüber hinaus deckt sich das Minderungsverhalten bei letzterem Vergleich mit den Modellrechnungen, die ein deutlich größeres Minderungspotential auf der Ostseite vorhergesagt hatten.
Eine weitere Auswertemöglichkeit neben der Deltawertbildung ist der Vergleich zwischen den Steigungen in Streudiagrammen und ihre prozentuale Änderung zwischen dem Jahr vor der Aktivierung und den Jahren nach der Aktivierung. Auch bei diesen Betrachtungen kann eine „Nachtkorrektur“ durchgeführt werden, indem die prozentuale Änderung der Steigung der Nachtdaten von der prozentualen Änderung der Tag-Daten abgezogen wird.
Betrachtet man dann auch noch die Daten getrennt nach Westanströmung (295° - 25°) für die Auswertung auf der Ostseite und nach Ostanströmung (115° - 205°) für die Auswertung auf der Westseite, kann man ein Vermischen der verschiedenen Luftpakte der beiden Seiten des Untersuchungsabschnittes (mit und ohne Suspension) ausschließen.

Mit dieser Methode erhält man die in Abbildung 6 dargestellten Minderungen. Dabei zeigt sich wieder auf der Ostseite mit fünf bis neun Prozent eine deutlich höhere Abnahme der NO_2-Konzentration als auf der Westseite mit etwa einem Prozent.

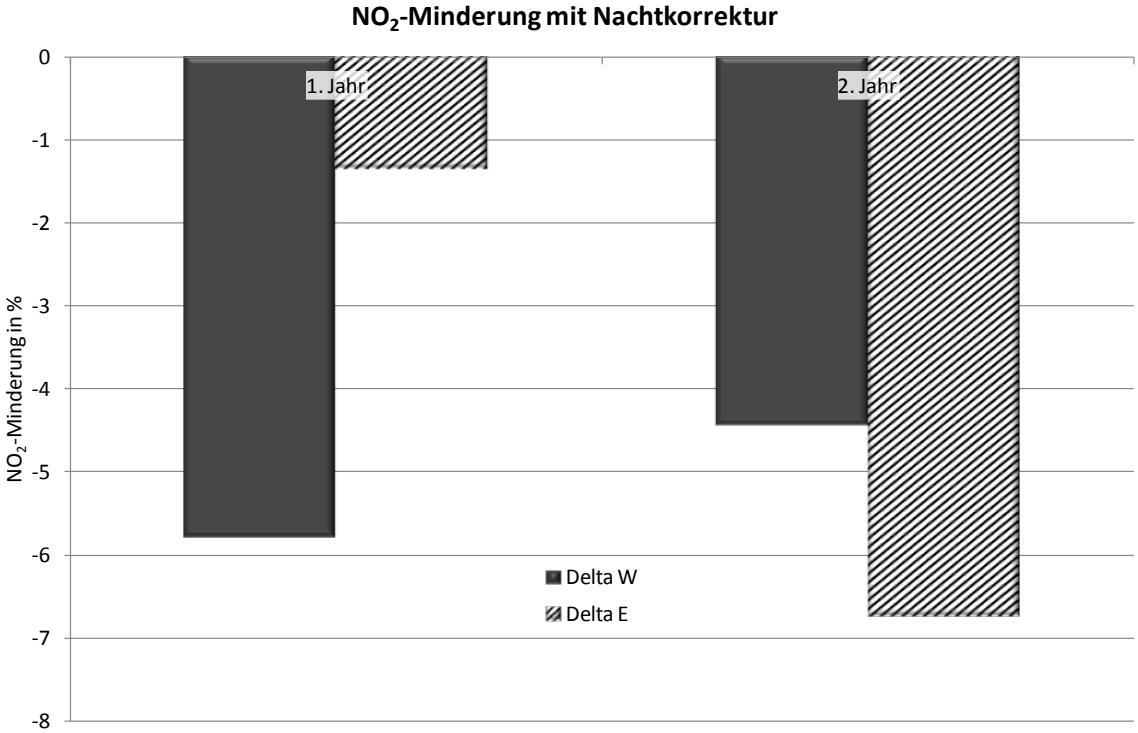

Abbildung 5: NO_2-Minderung auf den beiden Seiten der Autobahn nach Durchführen der Nachtkorrektur (Deltaberechnung wie oben beschrieben).

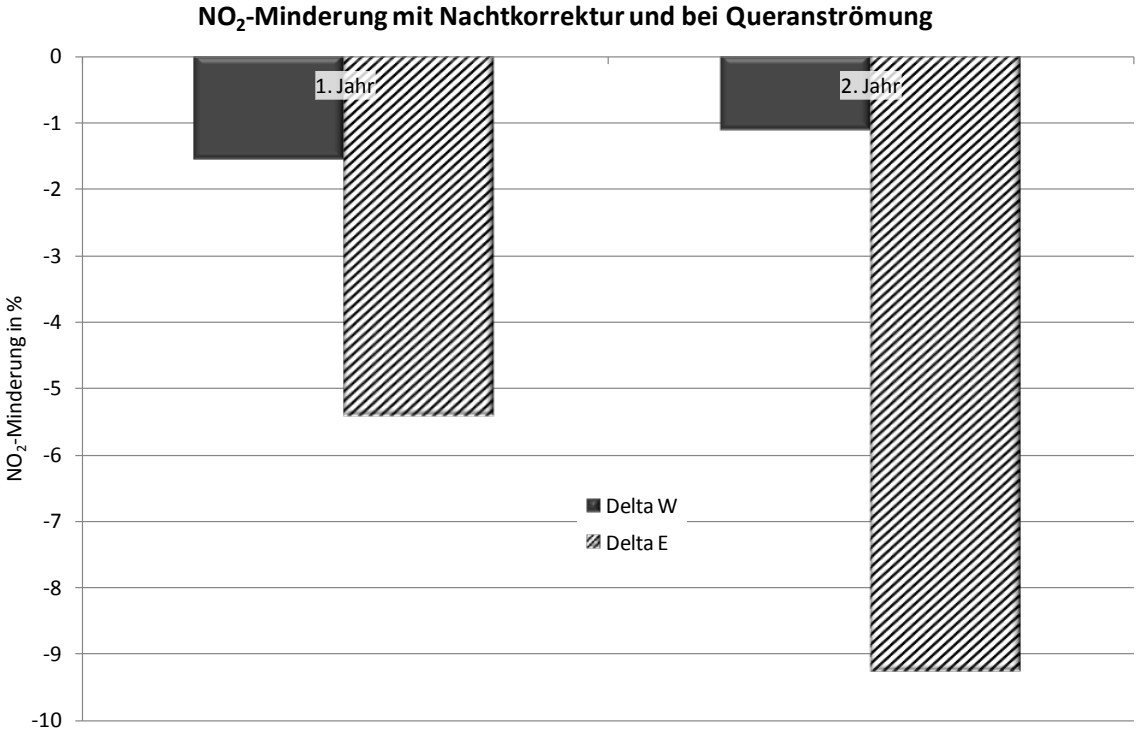

Abbildung 6: NO_2-Minderung bei jeweiliger Queranströmung auf den beiden Seiten der Autobahn nach Durchführen der Nachtkorrektur (prozentuale Änderung der Steigungen der Streudiagramme).

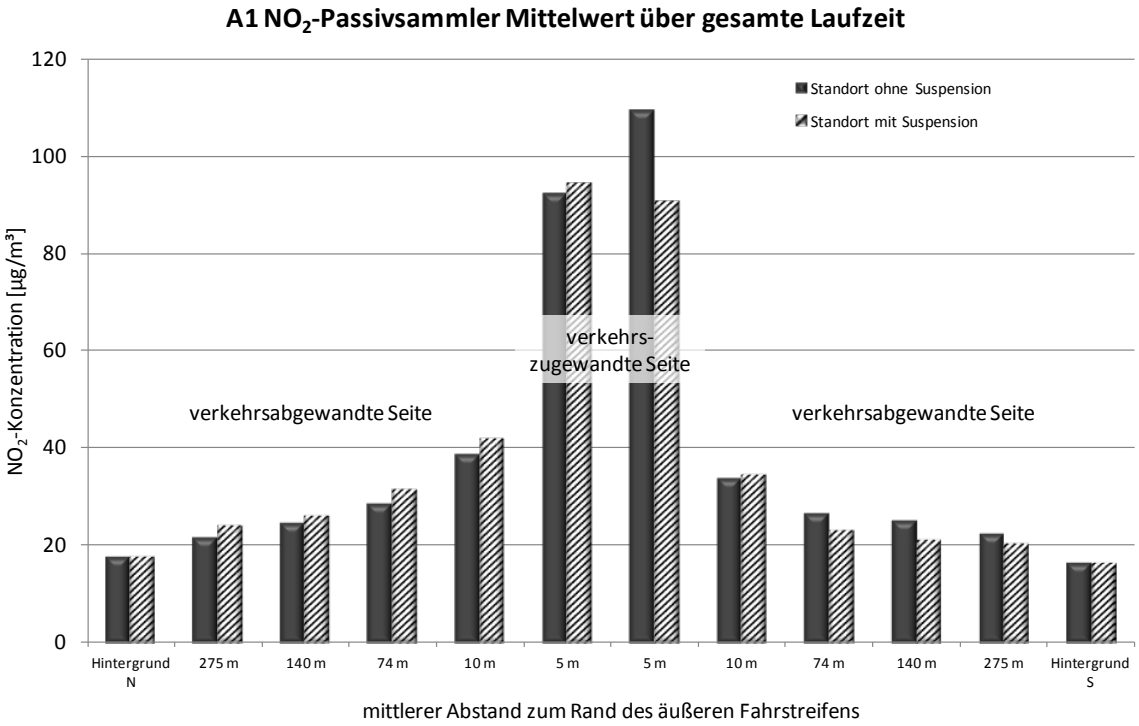

Abbildung 7: NO_2-Konzentrationen aus Passivsammlerdaten (Lärmschutzwand steht zwischen den Messpunkten, die sich circa fünf und zehn Meter entfernt zum äußeren Fahrstreifen befinden).

Die Passivsammlerdaten konnten aufgrund der langen Zyklendauer der Probenahme von zwei Wochen nicht mit einer Nachtkorrektur versehen oder die Queranströmungen zur Differenzierung betrachtet werden. Jedoch zeigen die Daten an den 22 Messpunkten vor und hinter der Lärmschutzwand auf eindrückliche Weise, dass eine Lärmschutzwand selber schon eine Minderung im mittleren zweistelligen Prozentbereich bewirken kann (Abbildung 7).

Zusammenfassung

Die bisher durchgeführten Auswertungen der Pilotstudie zur Anwendung photokatalytischer Oberflächen zur Minderung der Stickoxidbelastung haben NO_2-Minderungen von einstelligen Prozentzahlen ergeben. Dabei waren die höchsten Minderungsraten auf der Ostseite der Autobahn zu beobachten, auf der sich die Schadstoffe durch die vorherrschende Queranströmung vermutlich über längere Zeiträume an der photoaktiven Wand aufhalten konnten als auf der Westseite. Unterstützt wird diese Beobachtung durch die projektbegleitenden Modellrechnungen.

Die Entwicklung der Minderungsraten in Verbindung mit den Bewitterungsuntersuchungen über die Jahre der Messdatenaufnahme hinweg lässt vermuten, dass photokatalytische Suspensionen zum Teil mehrere Monate benötigen, um sich frei zu brennen und die aktiven

TiO_2-Partikel an die Oberfläche treten zu lassen. Kontraproduktiv wirken hier in Straßennähe sicher auch die verkehrsbedingten Verunreinigungen auf den photoaktiven Oberflächen. Bei einer Verwendung von TiO_2-Partikeln in Bau-Beton sollte dieses Phänomen jedoch nicht auftreten.

Die Betrachtung der Passivsammlermessungen zeigt darüber hinaus, dass eine Lärmschutzwand alleine schon eine deutliche Verminderung der NO_2-Konzentration im direkten Hinterland des Bauwerks ergibt. Jedoch handelt es sich hierbei nicht – wie bei der Photokatalyse – um einen Abbau oder eine Umwandlung des NO_2, sondern nur um eine Verfrachtung der Schadstoffe in höhere Luftschichten.

Literatur

[1] Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen – 39. BImSchV), Bundesgesetzblatt vom 2. August 2010, BGBl, Jahrgang 2010, Teil I. Nr. 40, 2010.

[2] DIN EN 1793-1: „Lärmschutzeinrichtungen an Straßen-Prüfverfahren zur Bestimmung der akustischen Eigenschaften - Teil 1: Produktspezifische Merkmale der Schallabsorption“, 1997.

[3] FGSV: „Zusätzliche Technische Vertragsbedingungen und Richtlinien für die Ausführung von Lärmschutzwänden an Straßen (ZTV-Lsw 06)“, FGSV-Verlag, Ausgabe 2006

Beteiligte und beauftragte Institutionen

Aachener-Verkehrs- Ingenieur-Sozietät Gmbh (AVISO), D-Tox Messlabor für Photokatalyse, Gesellschaft für Materialforschung und Prüfungsanstalt für das Bauwesen (MFPA) Leipzig mbH, Ingenieurbüro Rau, ivu Umwelt GmbH, KRONOS INTERNATIONAL, Inc., Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg (LUBW), Niedersächsische Landesbehörde für Straßenbau und Verkehr (NLStBV), Remmers Baustofftechnik GmbH, Umwelt- und Ingenieurtechnik GmbH, URBANSKI & VERSMOLD Ingenieurbüro für Geotechnik und Baustoffprüfung GmbH, WB Engineering, Ed. ZÜBLIN AG – Fertigteilwerk Gladbeck.