

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe im PM10 an ausgewählten Stationen des NABEL sowie der Kantone

Messbericht 2021

Andrea Fischer und Christoph Hüglin

Empa, Abteilung Luftfremdstoffe/Umwelttechnik
Überlandstrasse 129, 8600 Dübendorf

Dübendorf, August 2022

Impressum

Auftraggeber: Bundesamt für Umwelt (BAFU), Abteilung Luftreinhaltung und Chemikalien,
Sektion Luftqualität, 3003 Bern

Auftragnehmer: Empa, Abteilung Luftfremdstoffe/Umwelttechnik
Überlandstrasse 129, 8600 Dübendorf

Autoren: Andrea Fischer, Christoph Hüglin

Kontakt: andrea.fischer@empa.ch

Dieser Bericht ist abrufbar unter: <http://empa.ch/web/s503/weitere-dokumente>

Dübendorf, August 2022

Inhaltsverzeichnis:

1	Zusammenfassung	2
2	Résumé	4
3	Messkonzept	6
	3.1 Messstationen und Messbetrieb	6
	3.2 Probenahme	9
	3.3 Analytik	10
	3.4 Toxizität	10
4	Resultate der PAK-Analysen	12
5	Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren	19
6	Literaturverzeichnis	30
	Anhang	33

1 Zusammenfassung

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) stellen wegen ihrer kanzerogenen und mutagenen Wirkung eine Gefahr für die menschliche Gesundheit dar (WHO Regional Office for Europe 2021 + 2013; EEA 2021; BAG 2020; IARC 2013). PAK entstehen bei der unvollständigen Verbrennung von organischen Materialien wie Holz, Kohle, Benzin, Tabak, Heiz- und Dieselöl oder Lebensmitteln. In der Natur entstehen PAK z.B. durch Waldbrände und Steppenbrände oder auch Vulkanaktivität. Die WHO (WHO Regional Office for Europe 2021) hat im Jahr 2021 einen Bericht zum Thema "Auswirkungen polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe als Luftschadstoffe auf die menschliche Gesundheit" veröffentlicht, in welchem Messresultate aus der Schweiz verwendet wurden (Fallstudie 2). Zudem stellt die WHO eine Software (AirQ+) zur Verfügung, mit dem die gesundheitlichen Risiken aufgrund der Exposition gegenüber karzinogenen Luftschadstoffen (einschliesslich B(a)P) berechnet werden kann (WHO 2020). Aufgrund der Gesundheitsgefährdung durch PAK hat die Europäische Union in ihrer Richtlinie 2004/107/EC vom 15. Dezember 2004 (EU-Commission 2004) einen Zielwert (Jahresmittelwert) für das krebserregende Benzo(a)pyren (BaP) im atmosphärischen Feinstaub (PM10) von 1 ng/m³ festgelegt. Zudem sollen gemäss EU-Richtlinie eine Reihe weiterer polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe im Feinstaub analysiert werden, und zwar Benz(a)anthracen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(j)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Indeno(1,2,3-cd)pyren, Dibenzo(a,h)anthracen und Fluoranthen. Die Emissionen von PAK sind in Europa rückläufig. Gemäss EEA 2021b haben die Gesamtemissionen von BaP in Europa in den Jahren 1990 – 2019 um 50% abgenommen. Im Jahr 2019 waren 15 % der Bevölkerung der EU Konzentrationen von Benzo(a)pyren über dem europäischen Zielwert ausgesetzt (EEA 2021b). Im Jahr 2018 wurde an 27% der 722 Messstellen in Europa für Benzo(a)pyren (BaP) ein Jahresmittel über dem Zielwert von 1 ng/m³ registriert (EEA 2020).

Mit der Analyse der Proben von 2021 auf PAK wurde wie in den vergangenen Jahren das Gewässerschutzlabor des Kantons Zürich beauftragt. Die Analysen wurden gemäss der EN-Norm (CEN 2008) durchgeführt. Zusätzlich zu den von der europäischen Richtlinie geforderten PAK wurden Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylen bestimmt.

Die Schweiz legt für krebserregende Substanzen keine Immissionsgrenzwerte fest, da für deren Emissionen unabhängig von den auftretenden Immissionen gemäss der Luftreinhalte-Verordnung das Minimierungsgebot gilt. Um einen Überblick über die in der Schweiz auftretenden

Immissionskonzentrationen von PAK im PM₁₀ zu erhalten, werden seit 2006 Analysen an ausgewählten NABEL-Stationen durchgeführt. Im Jahr 2019 wurden erstmalig PAK-Messungen der Messstation Beromünster in das Messprogramm aufgenommen. Als Ergänzung zur Messstation Magadino-Cadenazzo wurden seit 2007 auch einige kantonale Stationen ins Messprogramm genommen, welche ebenfalls zeitweise stark durch Emissionen aus Holzfeuerung beeinflusst sind: San Vittore (GR) im Misox, seit 2007; Ebnat-Kappel (SG) im Toggenburg, 2020-2021 und 2010 – 2012; Grabs (SG), 2009 und 2017 – 2019; Appenzell (AI), 2011 - 2013 und 2016; Altstätten (SG), 2014 - 2015; Flums (SG), 2015 - 2017; Braunwald (GL), 2015 (Detaillierte Angaben siehe Tab. 2).

Die Resultate der Messungen 2021 zeigen, dass die Standorte sich in ihrer relativen Zusammensetzung der verschiedenen PAK nicht wesentlich unterscheiden (Abb. 1 und 3) und somit auch die Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM₁₀ an allen Stationen sehr ähnlich ist (Abb. 5 und Tabelle 5). Eine Auswertung zur relativen Toxizität der gemessenen PAK-Konzentrationen von 2021 zeigt, dass Benzo(a)pyren allein für rund 57 % der Toxizität der gemessenen PAK im Feinstaub verantwortlich ist.

Im Jahr 2021 wurden an den beiden Stationen der Alpensüdseite (San Vittore und Magadino-Cadenazzo) sowie an der Station im Wallis (Sion-A1) deutlich höhere Konzentrationen von BaP als in den Vorjahren registriert. In San Vittore wurde mit 1.12 ng/m³ der höchste Jahresmittelwert gemessen. An allen anderen untersuchten Stationen lag die BaP-Belastung zwischen 0.05 (Beromünster) und 0.71 ng/m³ (Ebnat-Kappel) und somit deutlich unter 1 ng/m³ (Abb. 7). Die ländlichen Standorte San Vittore, Ebnat-Kappel und Magadino-Cadenazzo sind stark von Emissionen aus der Holzverbrennung beeinflusst und zeigen deshalb im Vergleich zu den anderen Stationen klar höhere Messwerte.

Die Benzo(a)pyren Belastung hat an allen untersuchten NABEL-Standorten seit Messbeginn im Jahr 2006 abgenommen (Abb. 8 und Abb. 9). Der langjährige Verlauf der Quartalswerte der BaP-Konzentrationen weist an allen Messstationen eine ausgeprägte Saisonalität auf, mit hohen Werten im Winter und deutlich tieferen Werten im Sommer (Abb. 12).

Dieser Bericht gibt eine Übersicht über das Messprogramm, die angewendeten Messverfahren und über die Resultate im Zeitraum 2006 – 2021.

2 Résumé

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) représentent un danger pour la santé en raison de leur caractère cancérigène et mutagène (OMS Office Régional pour l' Europe 2021 + 2013; BAG 2020; IARC 2013). Ils se forment lors de la combustion incomplète de matériaux organiques, tels que le bois, le charbon, l'essence, le tabac, le diesel, le mazout ou la nourriture. Dans la nature, les HAP sont émis lors des incendies de forêt, des feux de steppe ou de l'activité volcanique. L'OMS (WHO Regional Office for Europe 2021) a publié en 2021 un rapport sur le thème: "Les effets des HAP dans l'air sur la santé.", utilisant des résultats de mesures suisses. (Étude de cas n° 2). En lien avec ce rapport, l'OMS met à disposition un programme informatique (AirQ+) permettant de calculer les risques pour la santé liés à l'exposition aux polluants atmosphériques cancérigènes (y compris BaP) (OMS 2020). En raison de ce risque pour la santé, l'Union européenne a adopté la directive 2004/107/CE le 15.12.2004 (EU-Commission 2004) et y a établi une valeur cible de 1 ng/m³ en moyenne annuelle pour le benzo(a)pyrène cancérigène (BaP) présents dans les poussières fines. De plus, selon la directive européenne, plusieurs autres HAP contenus dans les particules fines sont également à surveiller. Il s'agit des composés suivants: benz(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(j)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, indeno(1,2,3-cd)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène et fluoranthène. Les émissions de HAP déclinent en Europe. Selon le rapport EEA 2021b, les émissions totales de BaP en Europe ont diminué de 50 % entre 1990 et 2019. En 2019, 15 % de la population de l'UE a été exposée à des concentrations de benzo(a)pyrène supérieures à l'objectif européen (EEA 2021b). En 2018, 27 % des 722 sites de surveillance en Europe ont enregistré une moyenne annuelle pour le benzo(a)pyrène (BaP) supérieure à la valeur cible de 1 ng/m³ (EEA 2020).

Les analyses d'échantillons d'HAP de 2021 sont confiées, comme les années précédentes, au Laboratoire de protection des eaux du canton de Zürich. Les analyses ont été menées conformément aux normes européennes en la matière (CEN 2008). En plus des HAP recommandés par la directive européenne les concentrations de pyrène, chrysène et de benzo(ghi)perylène ont également été mesurées.

La Suisse n'a pas établi de valeur limite d'immission pour les substances cancérigènes mais limite les émissions autant que possible, indépendamment des immissions enregistrées (limitation préventive en fonction du principe de précaution conformément à l'ordonnance sur la protection de l'air). Afin d'obtenir une vue d'ensemble des concentrations de HAP contenus dans les PM10 en

Suisse, des analyses ont été effectuées, depuis 2006, dans des stations NABEL sélectionnées. En 2019, les mesures de HAP à Beromünster ont été intégrées pour la première fois dans le programme. Dans le réseau NABEL, Magadino-Cadenazzo est l'unique station qui soit particulièrement exposée aux émissions des chauffages à bois, parfois même de manière dominante. C'est la raison pour laquelle depuis 2007, le programme de mesure a été étoffé par certaines stations cantonales additionnelles, également exposées aux émissions de chauffages à bois: San Vittore (GR) dans le Val Mesolcina, depuis 2007; Ebnet-Kappel dans le Toggenburg, 2020 – 2021 et 2010 - 2012; Grabs (SG), 2009 et depuis 2017; Appenzell (AI), 2011 - 2013 et 2016; Altstätten (SG), 2014 - 2015; Flums (SG), 2015 - 2017; Braunwald (GL), 2015; (Pour des informations détaillées, voir tab. 2).

Les résultats des mesures de 2021 montrent que les sites ne diffèrent pas significativement dans leur composition relative des différents HAP (Fig. 1 et 3) et que les contributions des HAP individuels à la toxicité des PM₁₀ sont donc très similaires dans toutes les stations (Fig. 5 et Tableau 5). Une évaluation de la toxicité relative des concentrations de HAP mesurées en 2021 montre que le benzo(a)pyrène est responsable à lui seul d'environ 57 % de la toxicité des HAP mesurés dans les particules.

En 2021, des concentrations de BaP nettement plus élevées que les années précédentes ont été mesurées par les deux stations du versant sud des Alpes (San Vittore et Magadino-Cadenazzo) et par la station du Valais (Sion-A1). La valeur moyenne annuelle la plus élevée de 1.12 ng/m³ a été mesurée à San Vittore. Dans toutes les autres stations examinées, la concentration en BaP était comprise entre 0.05 (Beromünster) et 0.71 ng/m³ (Ebnet-Kappel) et donc bien inférieure à 1 ng/m³ (Fig. 7). Les stations rurales de San Vittore, Ebnet-Kappel et Magadino-Cadenazzo, qui sont largement influencées par les émissions de chauffages à bois, font apparaître des moyennes clairement plus élevées que les autres stations rurales.

La charge en benzo(a)pyrène a diminué dans toutes les stations NABEL depuis le début des mesures en 2006 (Fig. 8 et Fig. 9). L'évolution à long terme des valeurs trimestrielles des concentrations de BaP montre une saisonnalité prononcée dans toutes les stations de mesure, avec des valeurs élevées en hiver et des valeurs plus faibles en été (Fig. 12).

Ce rapport donne une vue d'ensemble du programme de mesures, en décrit la méthodologie appliquée et les principaux résultats de mesures entre 2006 et 2021.

3 Messkonzept

3.1 Messstationen und Messbetrieb

In Tabelle 1 sind die Stationen aufgeführt und kurz charakterisiert, an denen 2021 PAK-Analysen durchgeführt wurden. Eine zeitliche Darstellung des Messbetriebes an den verschiedenen Standorten seit Messbeginn im Jahr 2006, sowie Angaben über den Messbetreiber zeigt Tabelle 2. Eine detaillierte Charakterisierung der NABEL-Stationen findet sich im Technischen Bericht zum NABEL (Empa 2020). Die Lage der Station San Vittore ist auf der Webseite des Amtes für Natur und Umwelt des Kantons Graubünden näher beschrieben (www.luft.gr.ch). Im PAK Messprogramm 2021 war auch die von Ostluft (www.ostluft.ch) betriebene Station Ebnat-Kappel (Höhe: 630 m ü.M.; Koordinaten: 2727350/1236350) im Toggenburg (SG). Die Station befindet sich im Dorfzentrum von Ebnat-Kappel, an einer Nebenstrasse, und repräsentiert eine Situation in einer ländlichen Gemeinde mit hohem Holzfeuerungsanteil. In Ebnat-Kappel wurden bereits von 2010 bis 2012 Messungen durchgeführt. Die von Oktober 2011 bis Ende 2013 und 2016 – 2017 im Messprogramm vorhandene Station Appenzell (Höhe: 775 m ü.M.; Koordinaten: 2748735/1244230) lag im Dorfzentrum beim Feuerschaugebäude und wies einen geringen Verkehrseinfluss auf. Diese Station repräsentierte die Situation in einem Wohnquartier eines grösseren Dorfes in ausgeprägter Tallage. Die Messstation Altstätten (Höhe: 451 m ü.M.; Koordinaten: 2759025/1249860) war von Januar 2014 bis März 2015 in Betrieb und repräsentierte die Situation einer ländlichen Gemeinde mit einem erhöhten Holzfeuerungsanteil. Altstätten liegt in einer Randlage des St. Galler Rheintals, und die Station befand sich an einer Hauptverkehrsstrasse im Dorfzentrum. Im Jahr 2015 war die Station Braunwald (Höhe: 1256 m ü.M.; Koordinaten: 2718725/1199807) im Kanton Glarus im PAK-Messprogramm. Die Messstation befand sich direkt bei der Bergstation Braunwaldbahn im autofreien Kur- und Fremdenverkehrsort Braunwald. Von April 2015 bis Ende 2017 war die Hintergrundstation Flums im Kanton St. Gallen in Betrieb (Höhe: 469 m ü.M.; Koordinaten: 744135/218550), die Station lag im Seeztal auf dem Gelände der ARA Flums-Seez, abseits von verkehrsreichen Strassen und Siedlungen. In Grabs (Höhe: 469 m ü.M.; Koordinaten: 2752175/1227830) im St. Galler Rheintal wurden von 2017 - 2019 und im Jahr 2009 in einem Wohnquartier im Dorfzentrum von Grabs, rund 50 m von einer Verkehrsachse entfernt, Messungen durchgeführt.

Tab. 1: Charakterisierung der Stationen, an welchen 2021 PAK-Analysen durchgeführt wurden.

Basel-Binningen	BAS	vorstädtisch, am Stadtrand von Basel auf dem Gebiet der Gemeinde Binningen
Bern-Bollwerk	BER	städtisch, direkt an Hauptverkehrsachse, ca. 3 m vom Strassenrand in Strassenschlucht
Beromünster	BRM	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Dübendorf-Empa	DUE	vorstädtisch, ca. 150 m von Hauptverkehrsstrasse entfernt
Härkingen-A1	HAE	ländlich, ca. 20 m nördlich der Autobahn A1
Lausanne-César-Roux	LAU	städtisch, verkehrsbelastet
Lugano-Università	LUG	städtisch, in relativ offener Hofsituation
Magadino-Cadenazzo	MAG	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M., Alpensüdseite
Payerne	PAY	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Sion-Aéroport-A9	SIO	ländlich, an der Autobahn A9
Tänikon	TAE	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Zürich-Kaserne	ZUE	städtisch, Hofsituation, nicht unmittelbar verkehrsbelastet
San Vittore	SANV	Dorfzentrum, im Talboden eines Alpentals, . 280 m ü.M.
Ebnat-Kappel	EBK	Dorfzentrum, Nebenstrasse, Ländliche Gemeinde im Toggenburg, 630 m ü.M.

Tab. 2: Zeitliche Darstellung der durchgeführten PAK-Messungen.

Messnetzbetreiber		2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021
Basel-Binningen	NABEL																
Bern-Bollwerk	NABEL																
Beromünster	NABEL																
Dübendorf-Empa	NABEL																
Härkingen-A1	NABEL																
Lausanne-César-Roux	NABEL																
Lugano-Università	NABEL																
Magadino-Cadenazzo	NABEL																
Payerne	NABEL																
Sion-Aéroport-A9	NABEL																
Tänikon	NABEL																
Zürich-Kaserne	NABEL																
San Vittore	Kt. Graubünden																
Grabs	Ostluft																
Ebnat-Kappel	Ostluft																
Appenzell	Ostluft																
Altstätten	Ostluft																
Flums	Ostluft																
Braunwald	Ostluft																
		2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021

3.2 Probenahme

An den ausgewählten Stationen wurden die PAK-Konzentrationen in PM₁₀ quartalsweise analysiert. Dazu wurde aus den täglichen Feinstaubfiltern (Pallflex Tissuquarz), nach erfolgter Massenbestimmung, eine Rondelle von 14 mm Durchmesser ausgestanzt und quartalsweise zu einer Probe vereinigt. Von der Station San Vittore standen Filter von jedem 12. Tag zur Verfügung. Um etwa dieselbe Probenmenge zu erreichen, wurden hier pro Filter je 4 Rondellen mit einem Durchmesser von 25 mm zu Quartalsproben vereinigt. Von Ebnet-Kappel standen Filter von jedem 4. Tag (Q1 und Q4) bzw. jedem 12. Tag (Q2 und Q3) zur Verfügung und es wurden je 22 (Quartal 1), 24 (Quartal 2), 21 (Quartal 3) und 23 (Quartal 4) Rondellen mit einem Durchmesser von 20 mm zu einer Quartalsprobe vereinigt. Detaillierte Angaben über die Messmethodik zur Sammlung von Feinstaub auf Filtern sind im Technischen Bericht zum NABEL (Empa 2020) enthalten.

Aus den Siedepunkten der PAK kann abgeschätzt werden, bei welchen PAK Sammelverluste durch Verflüchtigung vom Filter auftreten können. Bei den üblichen Sammeltemperaturen muss unterhalb eines Siedepunkts von rund 450 °C (entsprechend den Verbindungen mit 4 oder weniger Ringen) mit merklichen Verlusten gerechnet werden. Die Ergebnisse der PAK bis und mit Chrysen haben deshalb nur orientierenden Charakter. Bei den Verbindungen mit 5 und mehr Ringen sind die Sammelverluste durch Verflüchtigung bei den üblichen Sammeltemperaturen kleiner als 10 % (Schauer et al. 2003).

Ein weiteres Problem der PAK-Messung stellt die teilweise Oxidation der gesammelten PAK auf dem Probefilter durch Ozon dar (Schauer et al., 2003; Liu K. et al. 2013). Vergleichsmessungen in München und Karlsruhe, mit einer Probenahme mit und ohne Ozondenuder, zeigten einen klaren Zusammenhang zwischen Ozonkonzentrationen und PAK-Verlusten. Gemäss Schauer *et al.* (2003) können bei der Sammlung von Tagesproben auf dem Filter z.B. bei Ozonkonzentrationen über 120 µg/m³ 40 % und mehr des Benzo(a)pyrens verlorengehen. Da aber an den hier untersuchten Standorten erhöhte Konzentrationen von PAK praktisch nur im Winter bei tiefen Ozonkonzentrationen auftreten, spielt dieses Problem bei den hier präsentierten Daten zumindest für die Winter- und Jahresmittelwerte kaum eine Rolle.

3.3 Analytik

Mit der Analyse der Proben des Jahres 2021 auf PAK wurde wie in den Vorjahren das Gewässerschutzlabor des Kantons Zürich beauftragt. Dieses Labor hat grosse Erfahrung in solchen Analysen und folgte methodisch den Vorgaben der EN-Norm 15549 (CEN 2008). Zusätzlich zu den von der europäischen Richtlinie geforderten PAK bestimmte das Labor auch Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylene (Tab. 3).

Als wichtiges Element der Qualitätssicherung wurde wiederum der zertifizierte PM10-Referenzstaub ERM-CZ100 des European Institute for Reference Materials and Measurements (Geel, Belgium) mitanalysiert. Die Wiederfindungsraten bewegten sich zwischen 78 – 106 %, die analytische Messunsicherheit beträgt rund 20 %.

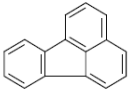
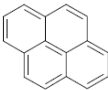
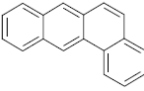
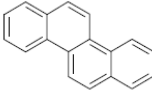
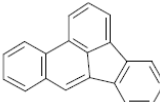
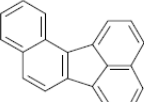
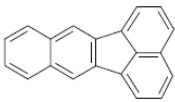
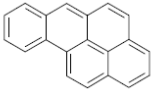
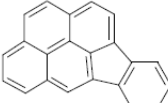
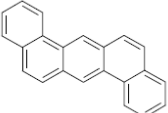
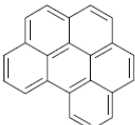
3.4 Toxizität

Die analysierten PAK mit ihren Siedepunkten, den zugehörigen Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (Nisbet and LaGoy 1992; Collins et al. 1998) sowie ihren Strukturformeln sind in Tabelle 3 ersichtlich. Die Toxizitäts-Äquivalentfaktoren geben die relative Toxizität im Vergleich zu Benzo(a)pyren (TEF = 1) an. Benzo(b)fluoranthren und Benzo(j)fluoranthren konnten chromatografisch nicht getrennt werden und resultieren daher als Summe. Da beide Substanzen identische TEF-Werte aufweisen gehen keine Toxizitätsinformationen verloren.

Samburova et al. kommen in ihrer Studie von 2017, in welcher Daten von 88 verschiedenen gas- und partikelförmigen PAK-Verbindungen aus 13 verschiedenen Projekten analysiert wurden, zum Schluss, dass in Bezug auf die Toxizität TEF-Werte von weiteren PAK-Verbindungen bestimmt werden sollten. Bis anhin existieren TEF-Werte für 17 verschiedene PAK-Verbindungen. In der Studie wird auch auf die Bedeutung von Messungen von gasförmigen PAK-Verbindungen hingewiesen.

Im WHO Bericht (WHO Regional Office for Europe 2021,) wird auf einen neuen möglichen Ansatz der Abschätzung der Toxizität hingewiesen, dieser Ansatz steht jedoch noch nicht zur Verfügung.

Tab. 3: Gemessene PAK mit ihren Siedepunkten (°C), Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (TEF) (Nisbet and LaGoy 1992; Collins et al. 1998) und Strukturformeln.

Verbindung	Siedepunkt	TEF	Struktur
Fluoranthren	384	0.001	
Pyren	364	0.001	
Benz(a)anthracen	435	0.1	
Chrysen	441	0.01	
Benzo(b)fluoranthren	481	0.1	
Benzo(j)fluoranthren	481	0.1	
Benzo(k)fluoranthren	481	0.1	
Benzo(a)pyren	496	1	
Indeno(1,2,3,cd)pyren	534	0.1	
Dibenzo(ah)anthracen	535	1	
Benzo(ghi)perylen	542	0.01	

4 Resultate der PAK-Analysen

Einen Überblick über die Resultate von 2021 an allen Messstellen gibt die Tabelle 4. Grafisch sind die Jahresmittelwerte der Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10 in der Abbildung 1 dargestellt. Es werden jene 6 PAK gezeigt die mehr als 1 % zum toxischen Potential beitragen. Abbildung 3 zeigt die prozentuale Verteilung der 2021 gemessenen PAK an den verschiedenen Messstationen, wobei Fluoranthen, Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylen wegen ihrer geringen toxikologischen Relevanz ($TEF \leq 0.01$) in einer Gruppe zusammengefasst wurden. Aus den beiden Abbildungen 1 und 3 ist ersichtlich, dass sich die Standorte in ihrer relativen Zusammensetzung der verschiedenen PAK nicht wesentlich unterscheiden. In Abbildung 2 sind die Jahresmittelwerte der gemessenen Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10 in 4 Gruppen (Verkehr, Städtisch/Vorstädtisch, Ländlich und Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung) mit jeweils ähnlicher Luftbelastung zusammengefasst. In der Gruppe "Verkehr" sind die stark verkehrsbelasteten Standorte Bern-Bollwerk, Härkingen-A1 und Lausanne-César-Roux vertreten. In der Gruppe Städtisch/Vorstädtisch sind die Messstationstypen Städtischer Hintergrund und Vorstädtisch (Lugano-Università, Zürich-Kaserne, Basel-Binningen und Dübendorf-Empa) enthalten. Die beiden ländlichen Messstationen Magadino-Cadenazzo und San Vittore weisen einen hohen Anteil an Holzheizungen auf und wurden daher in der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung" vereinigt. Die Gruppe "Ländlich" umfasst die restlichen ländlichen Messstationen (Beromünster, Payerne und Tänikon). Die Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" zeigt gegenüber den übrigen drei Gruppen stark erhöhte Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10.

Im Anhang in der Tabelle A1 sind alle Quartalsmittelwerte der PAK-Konzentrationen der NABEL-Stationen und in der Tabelle A2 die entsprechenden Resultate der kantonalen Messstationen notiert. Deutlich zu erkennen sind die saisonalen Variationen zwischen Sommer- und Winterquartalen. Es fällt auf, dass für alle relevanten PAK die höchsten Konzentrationen nicht an den stark verkehrsbelasteten Stationen Bern-Bollwerk, Lausanne-César-Roux oder Härkingen-A1, sondern an ländlichen Stationen wie San Vittore, Ebnet-Kappel und Magadino-Cadenazzo gemessen wurden. Dies ist ein klares Indiz für den wesentlichen Beitrag von Holzfeuerungen zur PAK-Belastung in den Wintermonaten. Darauf weist auch die Untersuchung von Zotter et al. (2014) hin, welche für San Vittore aufgrund von ^{14}C -Messungen im Feinstaub einen grossen Einfluss der Biomassenverbrennung aufzeigt. Die vorhandenen Resultate der Winter-Quartalsmittelwerte von

Ebnat-Kappel zeigen, dass auch in Tälern der Alpennordseite erhöhte PAK-Werte auftreten können. Die nur mässig hohen PAK-Konzentrationen in Lugano-Universität zeigen zudem, dass die Alpensüdseite nicht generell erhöhte Werte aufweist.

Bereits 1995 ging aus einer Untersuchung der Kantone Zürich, Schaffhausen und Luzern hervor, dass Emissionen von Holzfeuerungen tatsächlich bedeutende Mengen von PAK enthalten (Schläpfer 1995). Damals wurden die höchsten BaP-Werte nicht in Zürich oder Luzern, sondern während einer Winterkampagne im ländlichen Dorf Hemmental (SH) gemessen. Auch ein Bericht über die Benzo(a)pyrenbelastungen 2013 und 2014 im Bundesland Tirol (Österreich) zeigt höhere Belastungen in Siedlungsgebieten als an verkehrsexponierten Standorten (Krismer, 2015). Eine Fallstudie aus Schweden im neuen WHO Bericht (WHO Regional Office for Europe, 2021) zeigt deutlich, dass Holzfeuerungen dominante Quellen für PAK Emissionen sind. Messungen in Athen (Griechenland) von Dezember 2016 bis Januar 2018 haben deutlich gezeigt, dass die Verbrennung von Biomasse in Privathaushalten eine erhebliche Quelle für krebserregende PAK in einer der am stärksten bevölkerten Region des Mittelmeerraums ist. Die übermässige Nutzung der Holzverbrennung während der wirtschaftlichen Rezession hält auch heute noch an, trotz der verbesserten Wirtschaftslage, was zu einem erheblichen Anstieg der jährlichen städtischen Hintergrundwerte führt (Tsiodora et al., 2021).

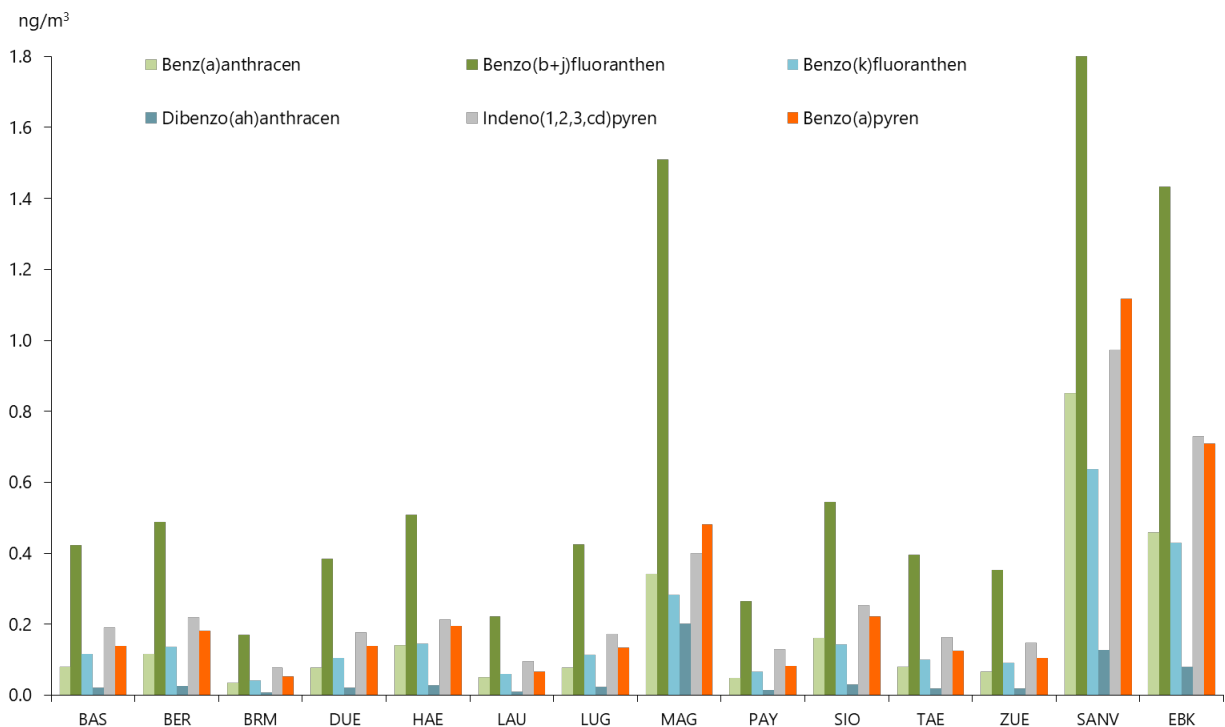


Abb. 1: Jahresmittelwerte 2021 der Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10 an den einzelnen Messstationen.

Tab. 4: Jahresmittelwerte 2021 der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3).

Messstelle	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)*	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylene
Basel	12.35	0.16	0.14	0.08	0.16	0.42	0.12	0.14	0.19	0.02	0.20
Bern	17.53	0.34	0.22	0.12	0.22	0.49	0.14	0.18	0.22	0.03	0.24
Beromünster	9.80	0.13	0.13	0.04	0.06	0.17	0.04	0.05	0.08	0.01	0.08
Dübendorf	12.78	0.16	0.15	0.08	0.14	0.38	0.11	0.14	0.18	0.02	0.18
Härkingen	14.02	0.24	0.21	0.14	0.23	0.51	0.15	0.20	0.21	0.03	0.23
Lausanne	13.82	0.13	0.10	0.05	0.11	0.22	0.06	0.07	0.10	0.01	0.11
Lugano	15.91	0.13	0.11	0.08	0.16	0.43	0.11	0.14	0.17	0.02	0.19
Magadino	15.53	0.22	0.26	0.34	1.02	1.51	0.28	0.48	0.40	0.20	0.61
Payerne	10.98	0.15	0.15	0.05	0.08	0.27	0.07	0.08	0.13	0.01	0.14
Sion	15.70	0.23	0.23	0.16	0.23	0.55	0.14	0.22	0.25	0.03	0.28
Tänikon	10.77	0.20	0.20	0.08	0.13	0.39	0.10	0.13	0.16	0.02	0.17
Zürich	12.92	0.17	0.16	0.07	0.12	0.35	0.09	0.10	0.15	0.02	0.17
San Vittore	19.06	0.29	0.37	0.85	1.02	2.22	0.64	1.12	0.97	0.13	0.98
Ebnat-Kappel	10.76	0.78	0.90	0.46	0.57	1.43	0.43	0.71	0.73	0.08	0.74

Bemerkung:

*Um einen korrekten Vergleich der PAK-Konzentrationen mit den PM10-Konzentrationen zu gewährleisten, bzw. um die korrekten PAK Gehalte zu bestimmen, wurden für die Berechnungen der PM10 Jahresmittelwerte nur die Tageswerte jener Tage verwendet die in die Bestimmung der PAK-Konzentrationen einfließen.

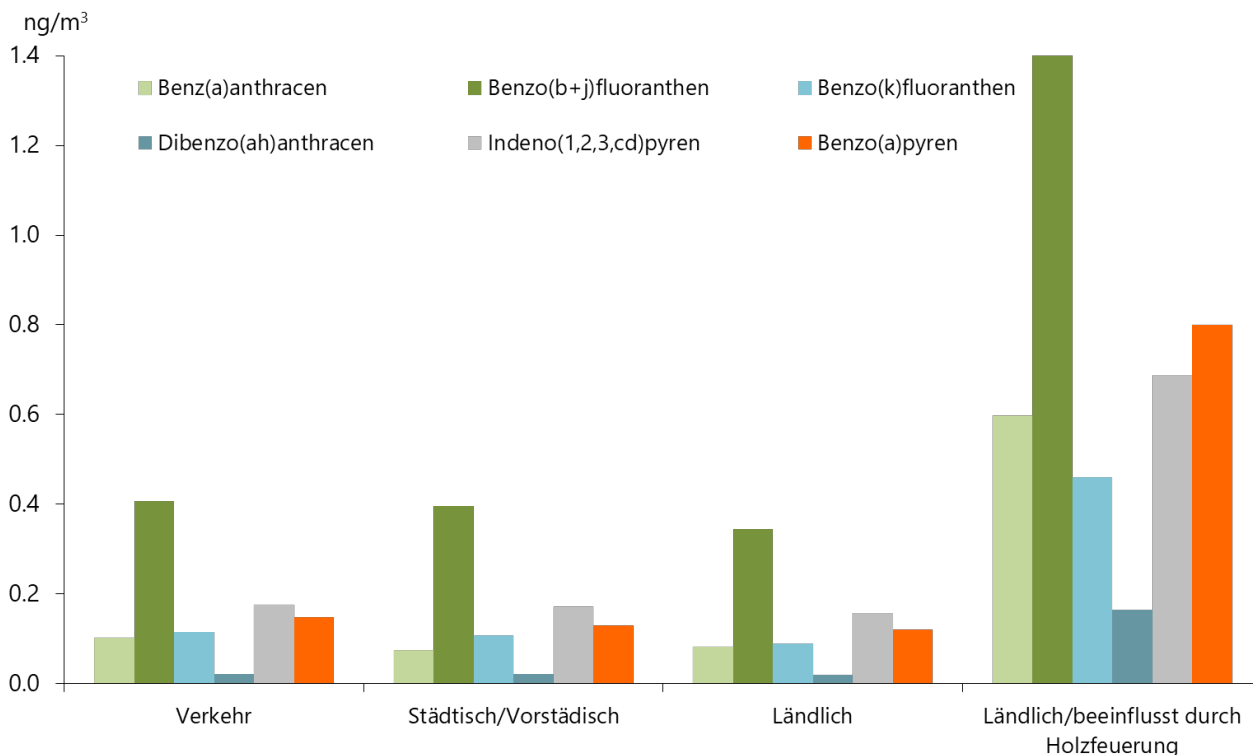


Abb. 2: Jahresmittelwerte 2021 der Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10 in Gruppen gleicher Luftbelastung zusammengefasst

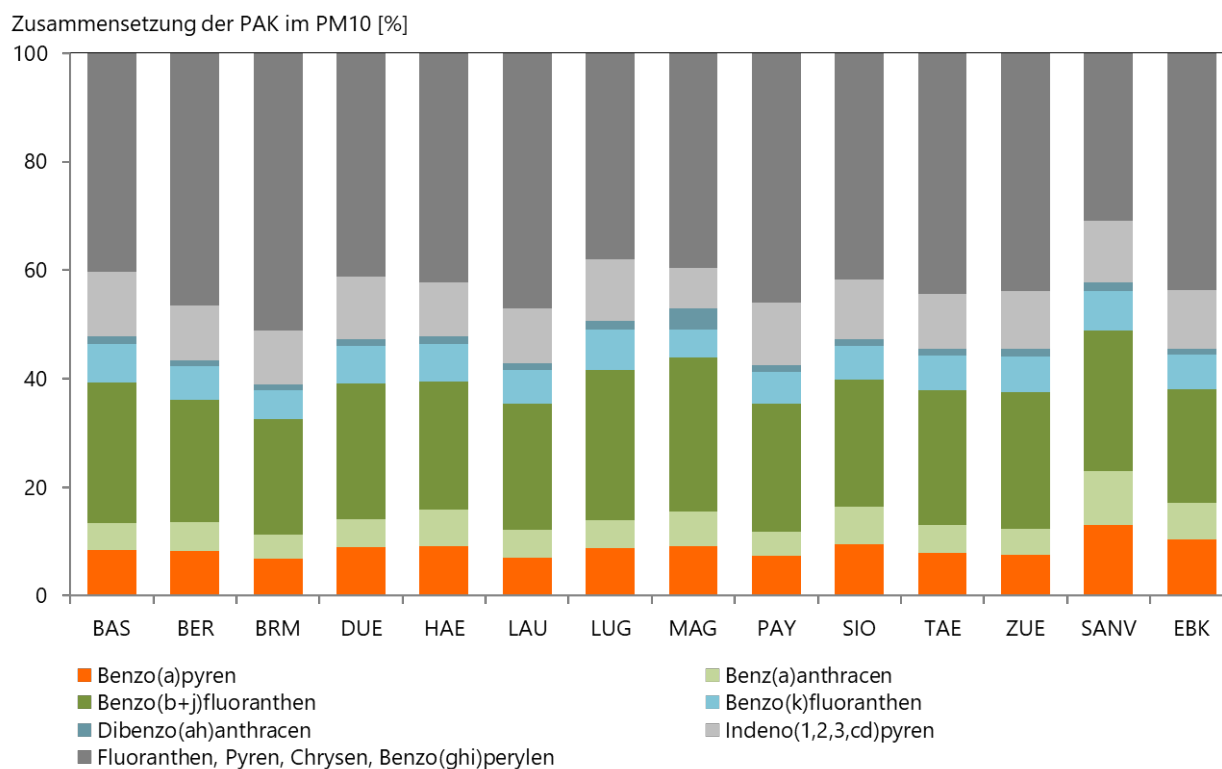


Abb. 3: Relative Zusammensetzung der 2021 gemessenen PAK im PM10.

Eine Auswertung zur relativen Toxizität der gemessenen PAK-Konzentrationen von 2021 zeigt, dass Benzo(a)pyren allein für rund 57 % der Toxizität der PAK im Feinstaub verantwortlich ist. Bei der Gewichtung der gemessenen PAK-Konzentrationen mit den Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (TEF) tragen neben Benzo(a)pyren zusätzlich im Mittel Benzo(b+j)fluoranthren, Dibenzo(ah)anthracen, Indeno(1,2,3,cd)pyren zu rund 16, 10, 7 % sowie Benzo(k)fluoranthren und Benz(a)anthracen zu je 4 % zur Toxizität bei (Abbildung 4). Die Resultate in Tabelle 5 und Abbildung 5 zeigen deutlich, dass die relativen Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 an allen Stationen sehr ähnlich sind. Bei den Standorten San Vittore und Ebnat-Kappel haben die stark erhöhten Winter-Quartale einen grossen Einfluss auf die Verteilung der relativen Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität. In Abbildung 6 ist ein Vergleich der durch PAK bedingten Toxizität von PM10 an den einzelnen Messstationen im Jahr 2021 dargestellt. Gegenüber den anderen Stationen zeigen San Vittore, Ebnat-Kappel und Magadino-Cadenazzo deutlich erhöhte Werte. Die Toxizitätsäquivalente werden als Summenprodukte aus den einzelnen PAK-Konzentrationen und den dazugehörigen Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (TEF) berechnet.

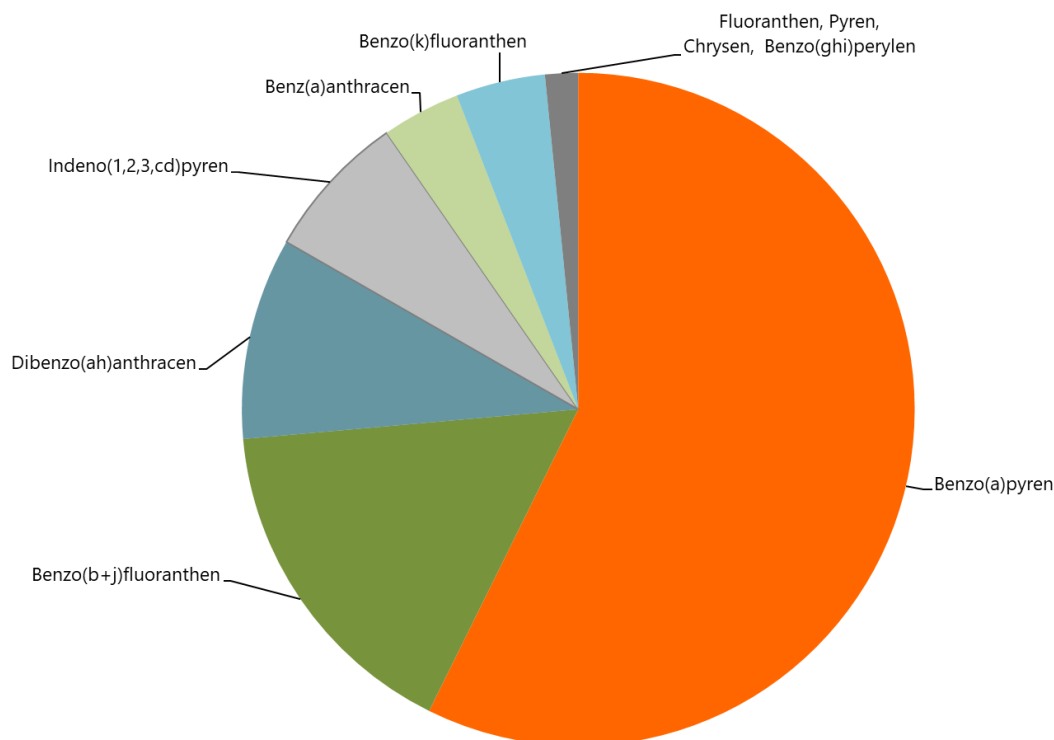


Abb. 4: Mittlere Beiträge der einzelnen PAK an der gesamten Toxizität der 2021 im PM10 gemessenen polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (Mittelwerte aller Messstationen).

Tab. 5: Relative Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 in % im Jahr 2021.

Messstelle	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+j)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylene
Basel	0.1	0.1	3.2	0.6	17.3	4.7	56.2	7.8	9.2	0.8
Bern	0.1	0.1	3.8	0.7	15.9	4.4	58.8	7.1	8.4	0.8
Beromünster	0.1	0.1	3.7	0.6	17.4	4.4	55.4	8.1	9.3	0.8
Dübendorf	0.1	0.1	3.3	0.6	16.3	4.4	58.3	7.5	8.7	0.8
Härkingen	0.1	0.1	4.3	0.7	15.4	4.4	59.3	6.4	8.7	0.7
Lausanne	0.1	0.1	4.1	0.9	18.0	4.8	54.0	7.9	9.2	0.9
Lugano	0.1	0.0	3.2	0.7	17.6	4.7	56.1	7.2	9.7	0.8
Magadino	0.0	0.0	3.6	1.1	15.8	3.0	50.5	4.2	21.2	0.6
Payerne	0.1	0.1	3.3	0.6	17.7	4.4	54.7	8.6	9.6	0.9
Sion	0.1	0.1	4.4	0.6	14.8	3.9	60.1	6.9	8.4	0.8
Tänikon	0.1	0.1	3.6	0.6	17.8	4.5	56.4	7.3	8.8	0.8
Zürich	0.1	0.1	3.4	0.6	18.2	4.7	54.2	7.7	10.1	0.9
San Vittore	0.0	0.0	4.9	0.6	12.8	3.7	64.4	5.6	7.4	0.6
Ebnat-Kappel	0.1	0.1	4.1	0.5	12.9	3.9	64.0	6.6	7.2	0.7

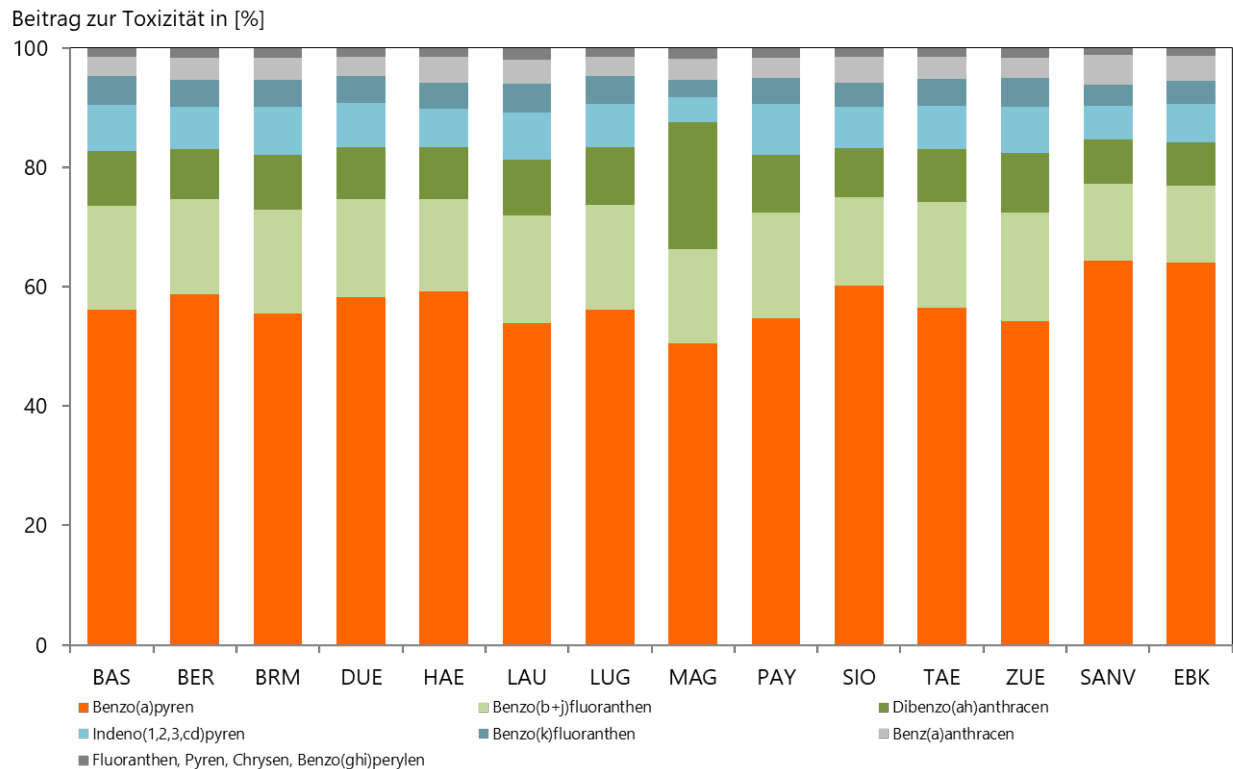


Abb. 5: Relative Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 im Jahr 2021.

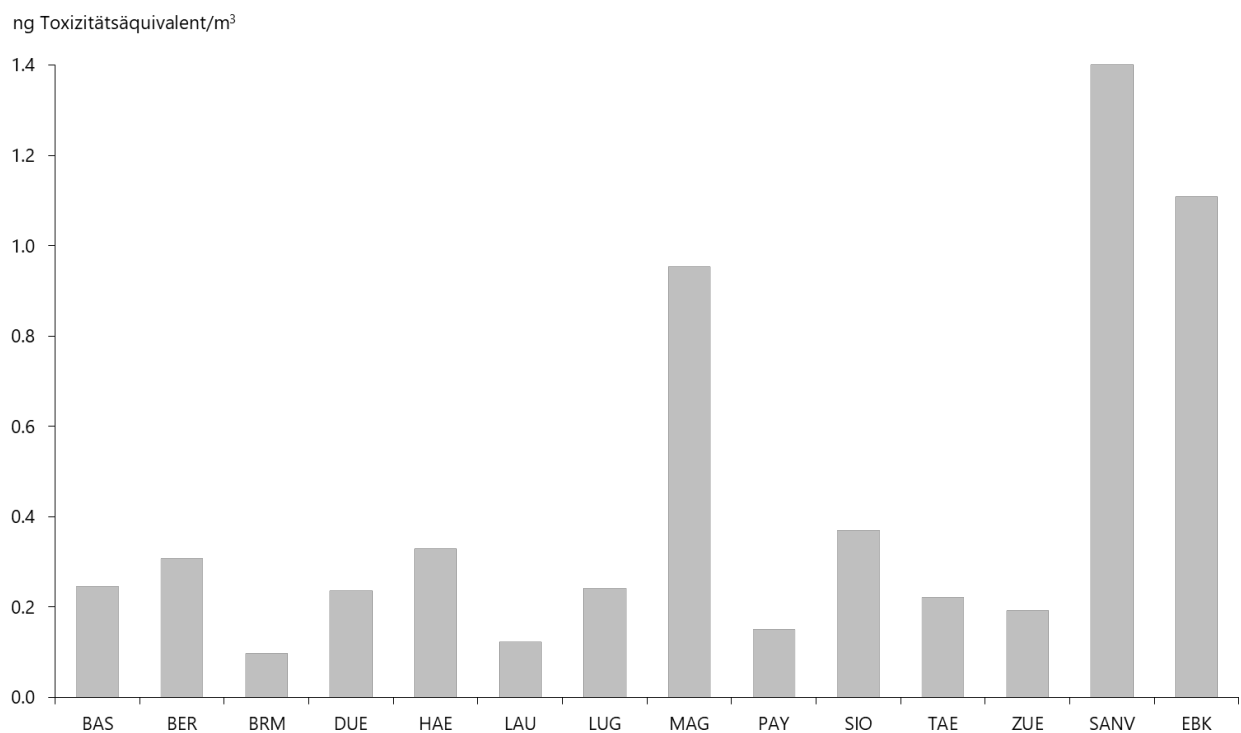


Abb. 6: Vergleich der durch PAK bedingten Toxizität von PM10 an den einzelnen Messstationen im Jahr 2021

5 Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren

Die Abbildungen 4 und 5 und die Resultate in Tabelle 5 zeigen deutlich, dass Benzo(a)pyren (BaP) der mit Abstand wichtigste Indikator für die Toxizität der PAK im Feinstaub ist. Deshalb werden in diesem Kapitel die Ergebnisse der Messungen von BaP detaillierter analysiert und dargestellt.

Abbildung 7 zeigt die Jahresmittelwerte 2021 der Konzentrationen von BaP, sowie die entsprechenden PM₁₀ Konzentrationen an den verschiedenen Stationen. In San Vittore, jener Messstation mit den höchsten Konzentrationen, wurde ein Jahresmittelwertwert von 1.12 ng/m³ gemessen. Die Station San Vittore ist wegen ihrer Lage im Talgrund während winterlicher Inversionslagen besonders schlecht durchlüftet. Zudem sind in den Dörfern des Misox Holzfeuerungen sehr verbreitet. An allen anderen untersuchten Stationen liegen die BaP-Konzentrationen 2021 zwischen 0.05 (Beromünster) und 0.71 µg/m³ (Ebnat-Kappel) und sind damit deutlich unterhalb des europäischen Zielwertes.

Das höchste Verhältnis im Jahr 2021 von BaP/PM₁₀ (0.066) weist der Messstandort Ebnat-Kappel auf und in San Vittore wurde mit 0.059 das höchste Verhältnis der vollständigen Messreihen registriert. Es folgt das Verhältnis von der Station Magadino (0.031), auch dies ein Indiz für den wesentlichen Beitrag von Holzfeuerungen zur PAK-Belastung an diesen Standorten.

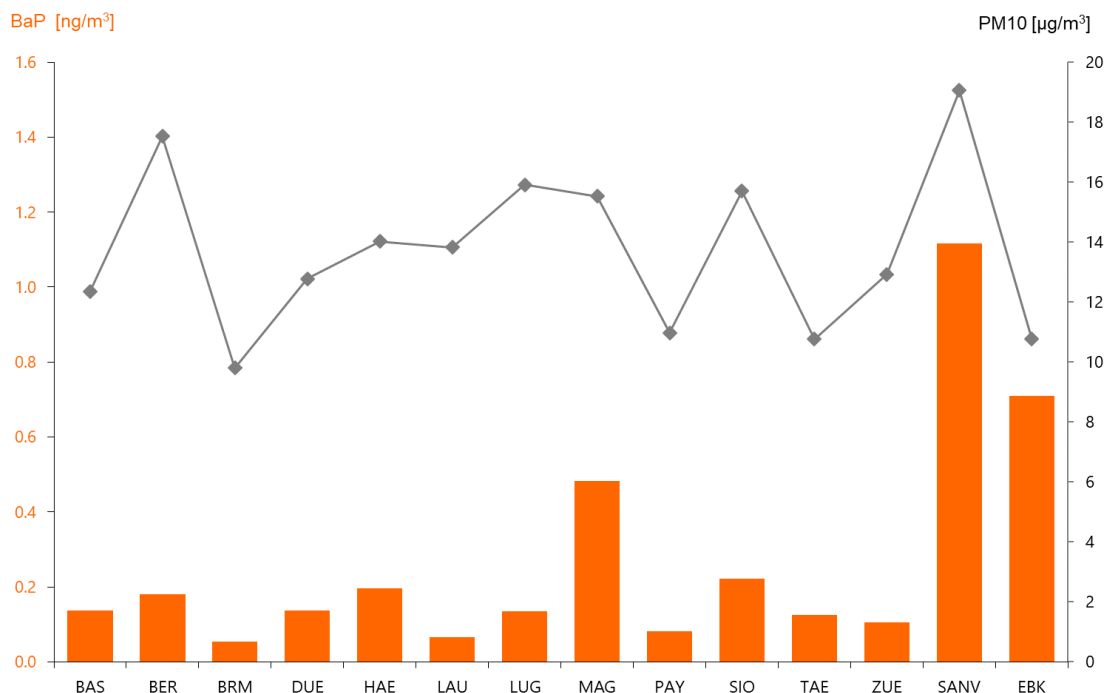


Abb. 7: Jahresmittelwerte 2021 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren und PM₁₀.

In den Abbildungen 8 und 9 ist der langjährige Verlauf der Jahresmittelwerte der Benzo(a)pyren-Konzentrationen an den verschiedenen Stationen seit Messbeginn im Jahre 2006 dargestellt. Die Benzo(a)pyren Belastung hat an allen untersuchten Standorten seit 2006 abgenommen und liegt inzwischen für alle Stationen deutlich unter dem europäischen Zielwert von 1 ng/m^3 . Die einzige Ausnahme ist San Vittore, an diesem Standort liegt der Jahresmittelwert für 2021 nach 5 Jahren unter dem Zielwert erstmals mit 1.12 ng/m^3 wieder im Bereich des Zielwerts (Anmerkung: Da der europäische Zielwert für BaP ohne Dezimalstelle festgelegt wurde gilt der Zielwert bis zu einem Jahresmittelwert von 1.49 ng/m^3 als eingehalten). Am Standort Ebnet-Kappel wurde 2021 mit 0.71 ng/m^3 ein Jahresmittel im Bereich der letzten durchgeführten Messungen an dieser Station in den Jahren 2010 – 2012 registriert. Abbildung 10 zeigt den Verlauf der Jahresmittelwerte von BaP im PM10 in 4 Gruppen (Verkehr, Städtisch/Vorstädtisch, Ländlich und Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung) zusammengefasst. Wie schon in Abbildung 2 zeigt sich auch im langjährigen Verlauf der Jahresmittelwerte, dass die Konzentrationen der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" stark erhöhte Messwerte gegenüber den Resultaten der übrigen drei Gruppen aufweisen. Während in den übrigen drei Gruppen die Konzentrationen seit 2013 stagnieren, wurde in der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" 2015 und im vergangenen Jahr 2021 ein Anstieg verzeichnet. In Abbildung 11 sind die Perzentile der Jahresmittelwerte aller Messstationen (inkl. San Vittore) zusammengefasst. Auch in dieser Grafik ist die deutliche Abnahme der Immissionen von BaP, mit einer Stabilisierung der Mittelwerte in den vergangenen 5 Jahren, an allen Standorten klar ersichtlich. Die Minimalwerte der vergangenen 9 Jahre sind stabil und die tiefsten BaP Jahresmittelwerte wurden jeweils an der Station Payerne (und seit 2012 auch am Standort Lausanne, sowie seit 2019 in Beromünster) gemessen. Die maximalen Jahresmittelwerte wurden in allen Jahren am Standort San Vittore registriert. In den ersten 6 Jahren nach Messbeginn wurde der europäische Zielwert von 1 ng/m^3 jeweils überschritten. In den vergangenen 7 Jahren kam es einzig in den Jahren 2015 und 2021 zu einer Überschreitung, ansonsten lag der Jahresmittelwert jeweils unter 1 ng/m^3 .

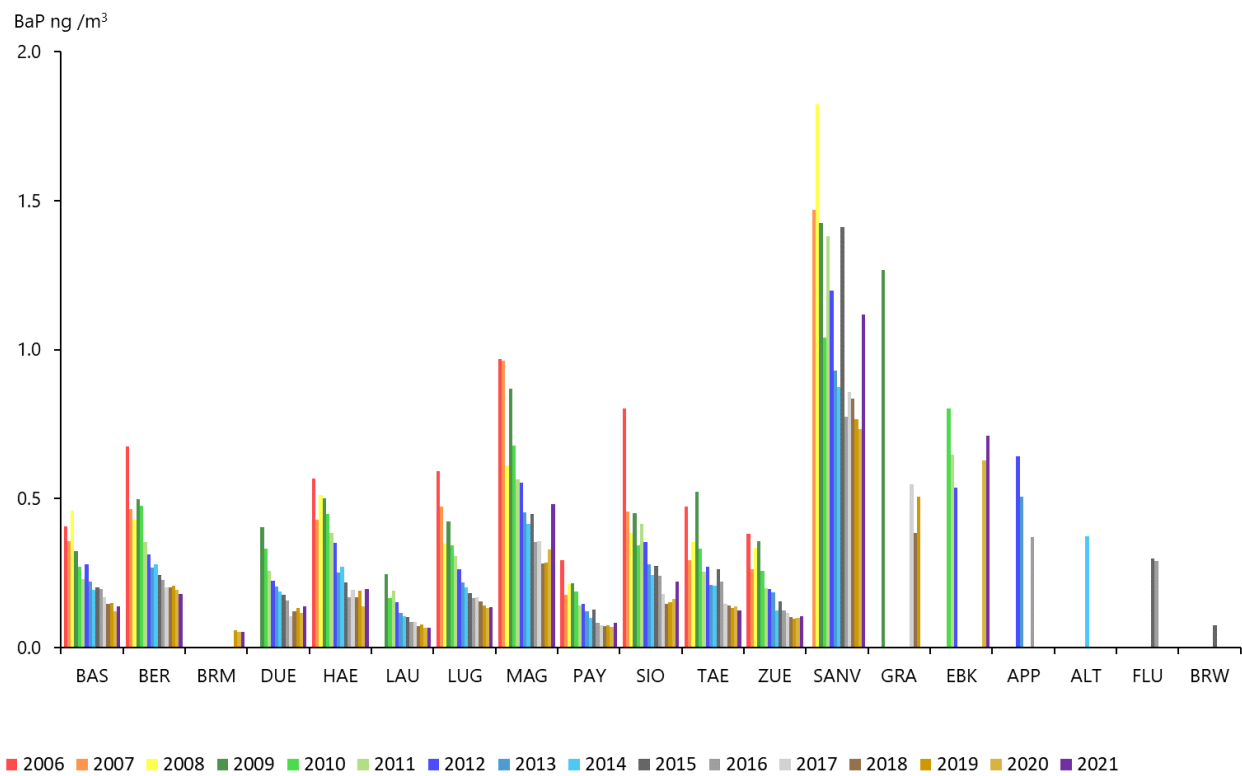


Abb. 8: Jahresmittelwerte 2006 bis 2021 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. (Ebnet-Kappel, Grabs, Flums, Appenzell, Altstätten und Braunwald unvollständige Messreihe, siehe Tab. 2).

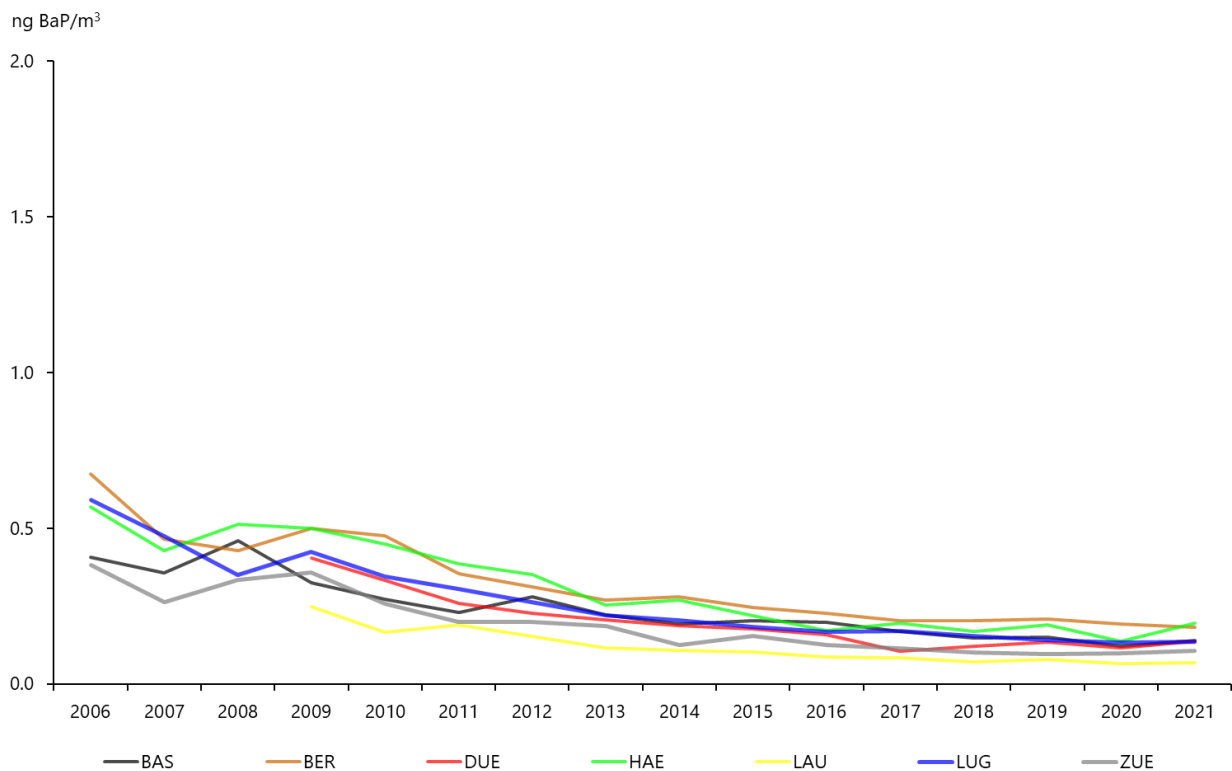


Abb. 9: Jahresmittelwerte 2006 bis 2021 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte (Ebnet-Kappel, Grabs, Flums, Appenzell, Altstätten und Braunwald unvollständige Messreihe, siehe Tab. 2).

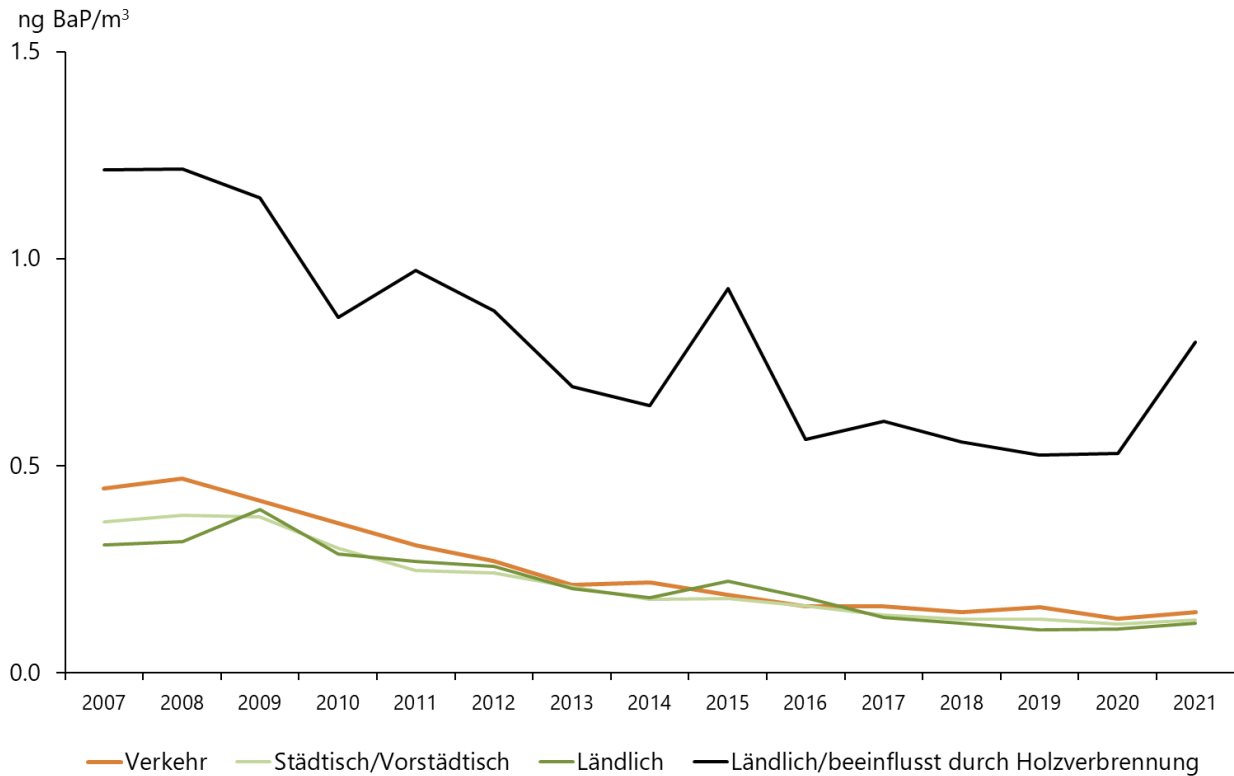


Abb. 10: Jahresmittelwerte 2007 bis 2021 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10.

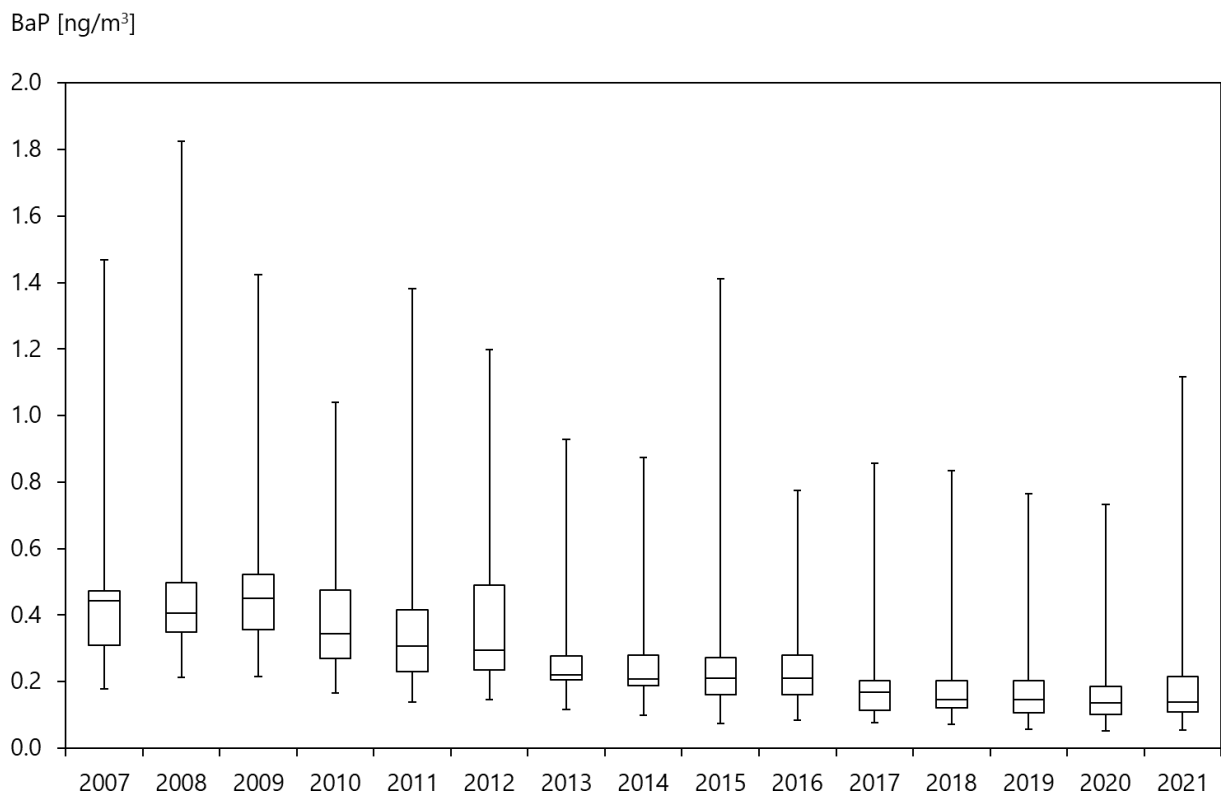


Abb.11: Jahresmittelwerte der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10 aller Stationen an denen seit 2007 Messungen in Betrieb sind, Boxplot.

Den langjährigen Verlauf der Quartalswerte der Benzo(a)pyren-Konzentrationen aller Stationen von 2006 – 2021 zeigt die Abbildung 12. In Abbildung 13 sind die Quartalswerte der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM10 aller Standorte im Beobachtungszeitraum dargestellt. Klar zum Ausdruck kommt in den beiden Abbildungen 12 und 13 die ausgeprägte Saisonalität der BaP-Belastungen. In den Monaten Oktober bis März waren die Quartalsmittelwerte am Standort San Vittore jeweils höher als der für den Jahresdurchschnitt definierte Zielwert. Diese Saisonalität kann nicht allein auf die schlechteren Ausbreitungsbedingungen im Winter zurückgeführt werden. Die folgenden Beobachtungen deuten darauf hin, dass die Biomassenverbrennung einen deutlich grösseren Beitrag leistet als der Verkehr. Die Station San Vittore weist trotz Verkehrseinfluss durch die A13 im Sommer nur sehr geringe BaP-Konzentrationen auf. Ein identisches Bild, mit Überschreitungen des Zielwerts in den Quartalswerten der Monate Oktober bis März, zeigt sich bei den Resultaten der Messstation Ebnat-Kappel (vorhandene Messungen Mitte 2010 – Mitte 2012, sowie 2020 – 2021). Zusammen mit den ebenfalls nur mässigen BaP-Konzentrationen an den stark verkehrsbelasteten NABEL-Stationen Bern-Bollwerk, Lausanne-César-Roux und Härkingen-A1 ist dies ein Hinweis für die eher geringe Bedeutung des Strassenverkehrs für die PAK-Belastungen der Aussenluft. Untersuchungen in Baden-Württemberg im Zeitraum 2008-2009 (LUBW 2010) an zwei verschiedenen Standorten haben zu einer analogen Annahme geführt, dass die verstärkte Nutzung von Holzfeuerungen an einem der Standorte zu erhöhten Benzo(a)Pyren-Konzentrationen geführt haben.

Neben San Vittore zeigen auch die deutlich erhöhten Werte bei den Winterquartalen der Stationen Magadino-Cadenazzo und Ebnat-Kappel (sowie in früheren Jahren Grabs, Flums und Altstätten), dass die zahlreichen Holzfeuerungen in Verbindung mit austauscharmen Inversionslagen zu sehr hohen PAK-Belastungen führen können und bestätigen somit den dominierenden Einfluss der Biomassenverbrennung.

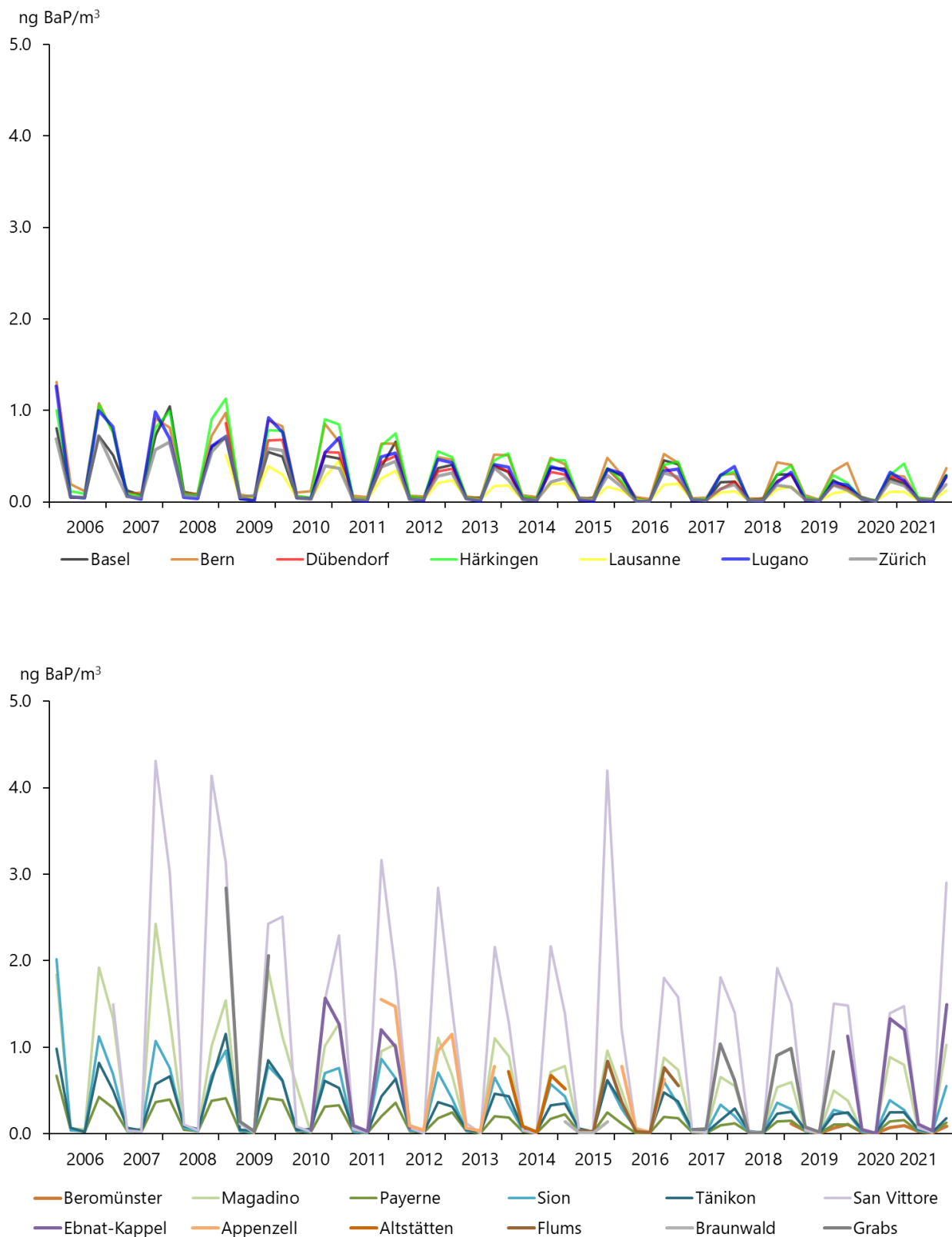


Abb. 12: Quartalswerte 2006 - 2021 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte.

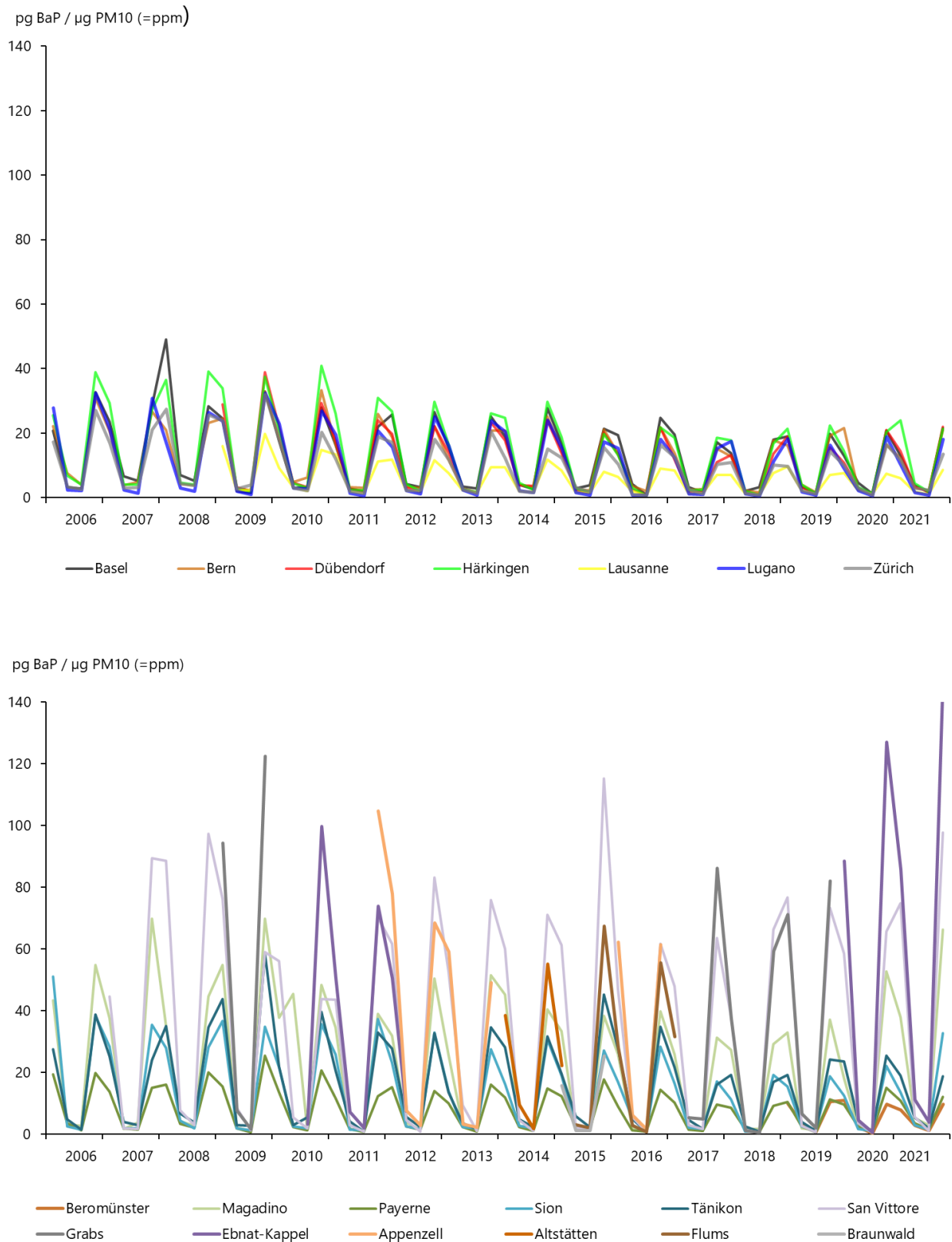
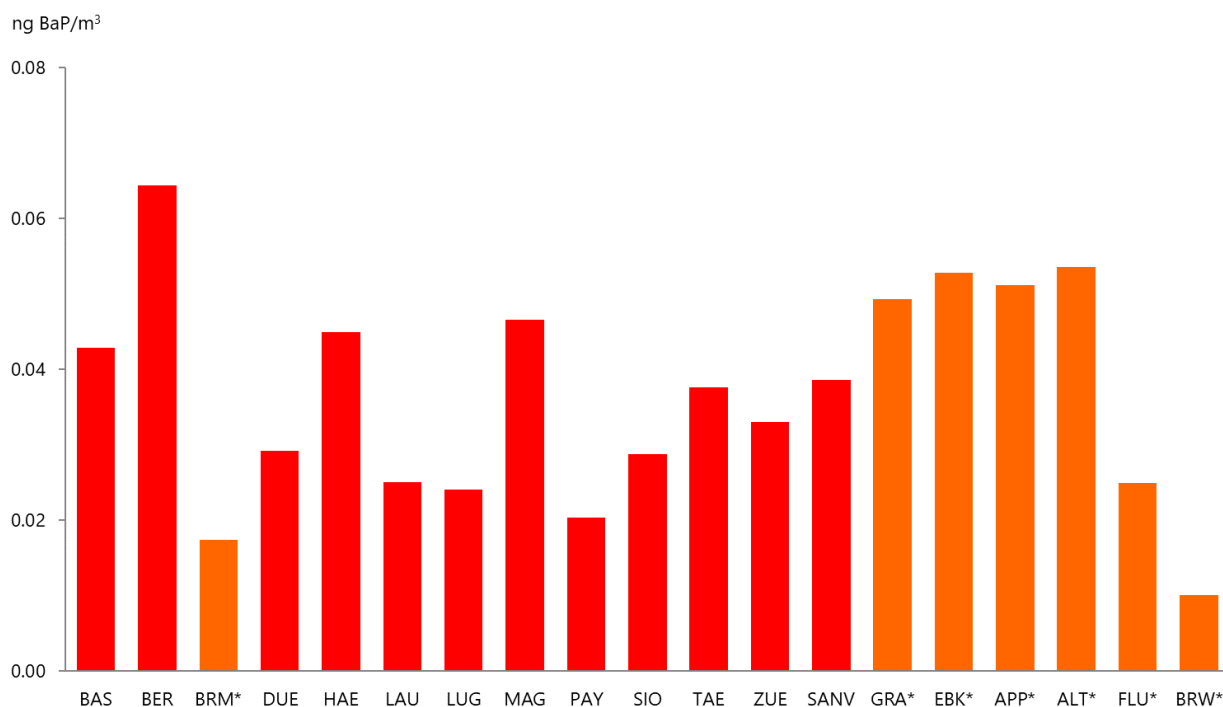


Abb. 13: Quartalswerte 2006-2021 der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM10. Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte.

Abbildung 14 ergibt einen kompakten und durch die Mittelung über die Messjahre 2006 – 2021 für die meisten Stationen bereits recht robusten Überblick über die sehr unterschiedlichen Belastungen der BaP-Konzentrationen im Sommer und im Winter. Die dunkelrot und dunkelblau dargestellten Mittelwerte zeigen die Mittelwerte über den gesamten Messzeitraum (einzig die Stationen San Vittore (2007), sowie Dübendorf-Empa und Lausanne-César-Roux (beide 2010) weisen einen späteren Messstart auf). Die hellroten Sommerwerte und die entsprechenden hellblauen Winterwerte zeigen Mittelwerte jener Stationen, die zwischen einem und 4 Jahren, während der Messjahre 2010 bis 2021, in Betrieb waren. Die Mittelwerte über den gesamten Beobachtungszeitraum der jeweiligen Stationen liegen während der Sommermonate (April – September) im Bereich von 0.02 (Payerne) – 0.06 (Bern) und während der Wintermonate (Januar – März und Oktober – Dezember) zwischen 0.21 (Lausanne) und 2.18 ng BaP/m³ (San Vittore). Am Standort Beromünster liegen bis anhin Daten von drei Messjahren vor und diese zeigen für die Sommermonate einen Mittelwert von 0.02 und die Wintermonate einen Mittelwert von 0.09 ng BaP/m³. Die Unterschiede zwischen den Mittelwerten der Winter- und der Sommermonate über alle Messjahre entsprechen einem Faktor zwischen 8.4 (Lausanne) und 56 (San Vittore).

Abbildung 15 zeigt an den verschiedenen Standorten die mittleren Gehalte an BaP im Feinstaub für die analoge Zeitperiode im Sommer und im Winter. Die dunkelroten und dunkelblauen Messwerte repräsentieren die Mittelwerte über die gesamte Messperiode von 2006 – 2021 (Ausnahme San Vittore 2007 – 2021), während die hellen Messwerte die Mittelwerte jener Stationen zeigen, die nur während einiger Zeit (siehe Tab. 2) in Betrieb waren.

Sommer (April-September)



Winter (Januar-März und Oktober-Dezember)

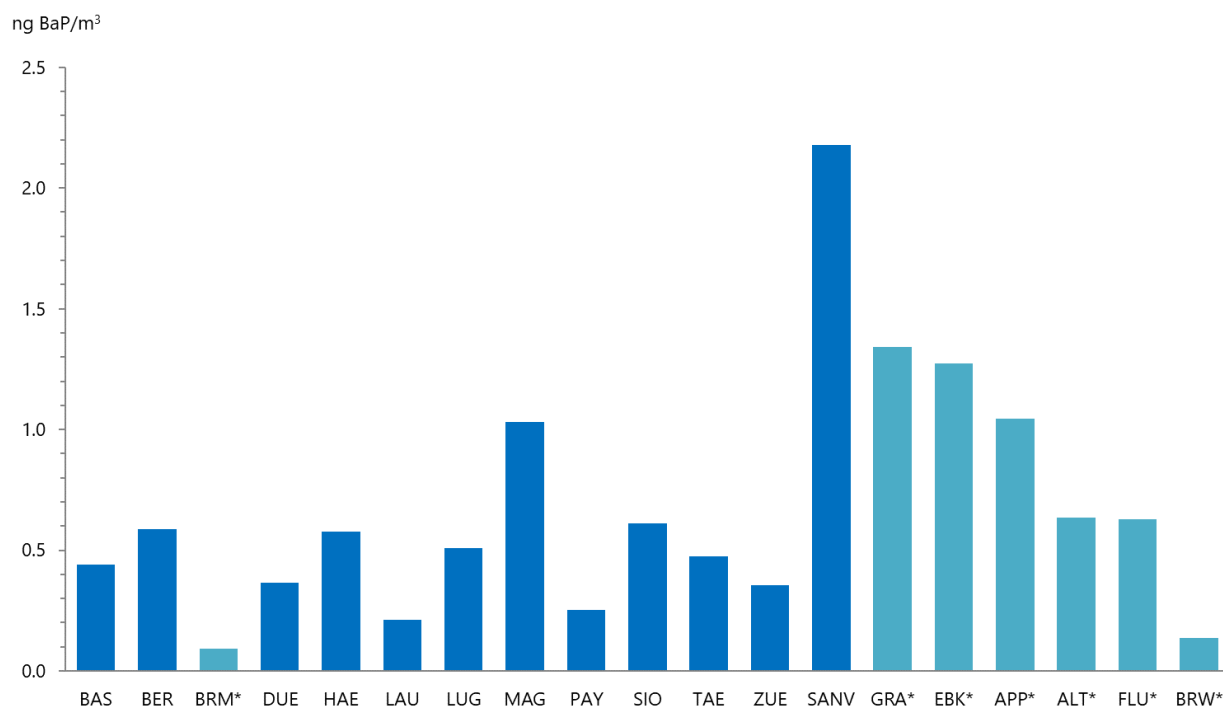
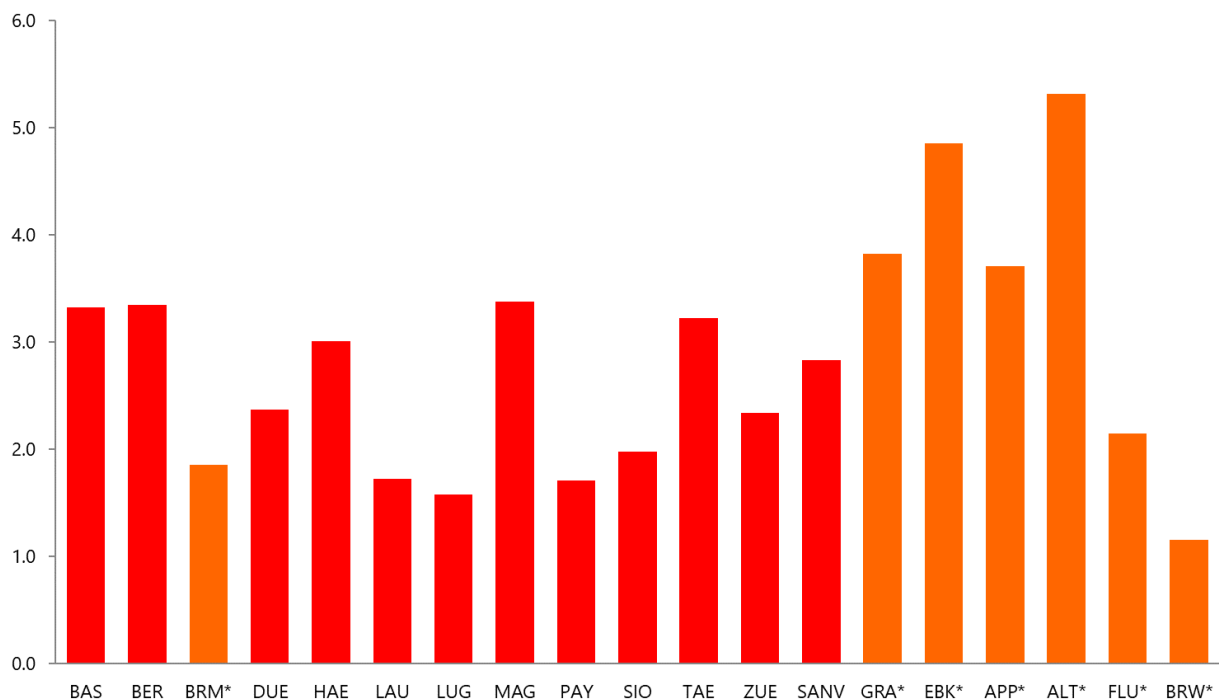


Abb. 14: Vergleich der mittleren Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10 im Sommer und im Winter von 2006-2021 (*soweit Messwerte vorhanden, siehe Tab. 2). Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Sommer- und Wintergrafiken.

Sommer (April-September)

pg BaP / $\mu\text{g PM}_{10}$ (=ppm)



Winter (Januar-März und Oktober-Dezember)

pg BaP / $\mu\text{g PM}_{10}$ (=ppm)

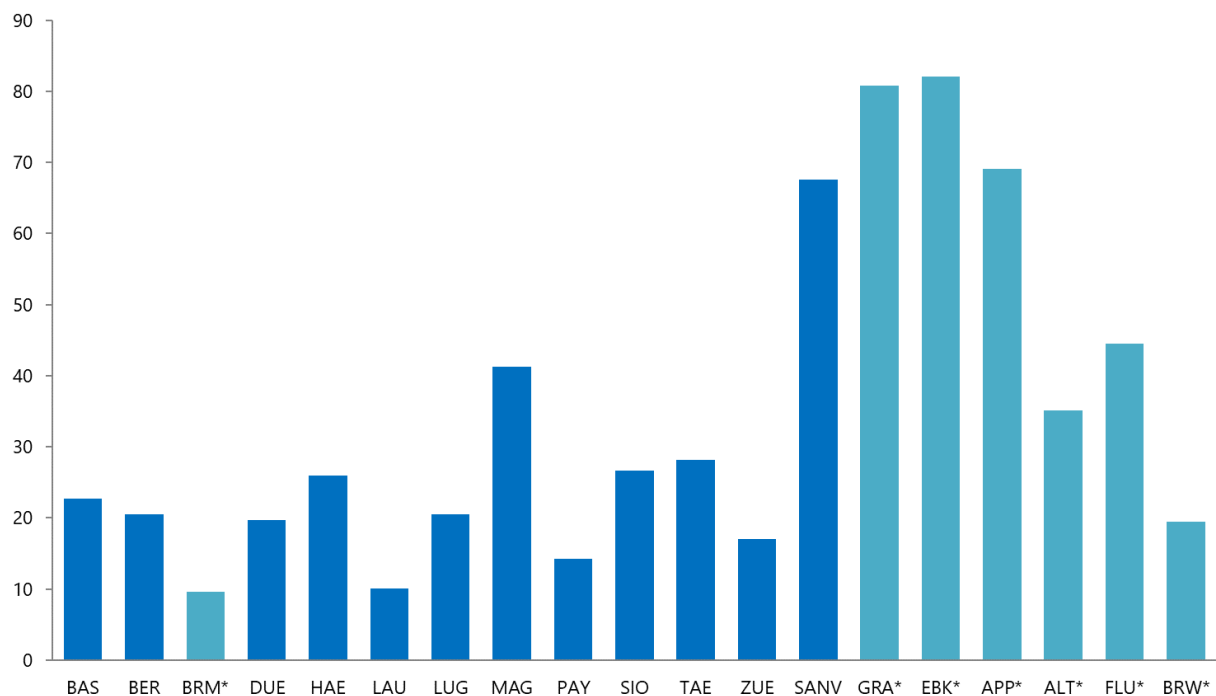


Abb. 15: Vergleich der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM_{10} im Sommer und im Winter von 2006-2021 (*soweit Messwerte vorhanden, siehe Tabelle 2). Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Sommer- und Wintergrafiken.

6 Literaturverzeichnis

- BAG (2020). Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK). Factsheet Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK); Bundesamt für Gesundheit BAG; Oktober 2020; <https://www.bag.admin.ch/bag/de/home/gesund-leben/umwelt-und-gesundheit/chemikalien/chemikalien-a-z/polyzyklische-aromatische-kohlenwasserstoffe-pak.html>.
- CEN (2008). Air Quality - Standard method for the measurement of the concentration of benzo(a)pyrene in ambient air. EN 15549.
- Collins, J. F., Brown, J.P., Alexeef, G.V., and Salmon, A.G. (1998). Potency Equivalency Factors for Some Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Derivatives. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 28, 45 - 54.
- EEA (2021). Air Quality in Europe - 2021 Report, EEA Report No 15/2021, European Agency <https://www.eea.europa.eu/publications/air-quality-in-europe-2021>.
- EEA (2021b). European Union emission inventory report 1990-2019 under the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (Air Convention), EEA Report No 05/2021, European Agency. ISSN 1977-8449. Publications Office. <https://data.europa.eu/doi/10.2800/701303>.
- EEA (2021c). Europe's air quality status 2021- update. European Environment Agency <https://www.eea.europa.eu/publications/air-quality-in-europe-2021/air-quality-status-briefing-2021>.
- EEA (2020). Air Quality in Europe - 2020 Report, EEA Report No 09/2020, European Agency <https://www.eea.europa.eu/publications/air-quality-in-europe-2020-report>.
- Empa (2020). Technischer Bericht zum Nationalen Beobachtungsnetz für Luftfremdstoffe (NABEL) 2020; Dübendorf, Switzerland; <https://www.empa.ch/documents/56101/246436/Technischer+Bericht+2020/7d488cd6-7e74-400f-b490-0e54d798637a>.

- EU-Commission (2004). Directive 2004/107/EC of the European parliament and the council of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air. Official Journal of the European Communities L 23, 26 January 2005: 3-16. <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/en/ALL/?uri=CELEX%3A32004L0107>.
- IARC (2013). Air pollution and cancer. IARC scientific publication no 161. <http://publications.iarc.fr/Book-And-Report-Series/Iarc-Scientific-Publications/Air-Pollution-And-Cancer-2013>.
- Krismer A. (2015). Benzo(a)Pyren und Hausbrand. Amt der Tiroler Landesregierung, Abt. Waldschutz. https://www.tirol.gv.at/fileadmin/themen/umwelt/luftqualitaet/downloads/sonstige_Berichte/Benzo_a_pyren_und_Hausbrand.pdf
- Liu K., Duan F., He K., Ma Y. and Cheng Y. (2014). Investigation on sampling artifacts of particle associated PAHs using ozone denuder systems. Front. Environ.Sci. Eng. 8(2): 284-292.
- LUBW (2010). Bestimmung des Beitrags der Holzfeuerung zum PM10-Feinstaub an zwei Messstationen in Baden-Württemberg von Oktober 2008 bis Dezember 2009. LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg. Bericht 64-01/2010.
- Nisbet, I. C. T. and LaGoy, P. K. (1992). Toxic Equivalency Factors (TEFs) for Polycyclic Aromatic-Hydrocarbons (PAHs). Regulatory Toxicology and Pharmacology 16(3): 290-300.
- Samburova, V., Zielinska, B. and Khlystov, A. (2017). Do 16 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Represent PAH Air Toxicity? Toxics, 5 (3); <https://doi.org/10.3390/toxics5030017>.
- Schauer, C., Niessner, R. and Poschl, U. (2003). Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulate matter: Decadal and seasonal trends, chemical degradation, and sampling artifacts. Environ. Sci. Technol. 37(13): 2861-2868.
- Schläpfer, K. (1995). PAH-Immissionsmessungen in den Kantonen Zürich, Schaffhausen und Luzern (1994/1995); Im Auftrag des Amtes für Technische Anlagen (ATAL) Zürich, des Kant. Laboratoriums für Lebensmittelkontrolle und Umweltschutz Schaffhausen und des Amtes für Umweltschutz Luzern.

- Tsiodora, I., Grivas, G., Tavernaraki, K., Bougiatioti, A., Apostolaki, M., Paraskevopoulou, D., Gogou, A., Parinos, C., Oikonomou, K., Tsagkaraki, M., Zarmas, P., Nenes, A., and Mihalopoulos, N. (2021). Annual exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in urban environments linked to wintertime wood-burning episodes. *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 17965 -17993. <https://doi.org/10.5194/acp-21-17865-2021>.
- WHO Regional Office for Europe (2021). Human health effects of polycyclic aromatic hydrocarbons as ambient air pollutants: report of the Working Group on Polycyclic Aromatic Hydrocarbons of the Joint Task Force on the Health Aspects of Air Pollution, Copenhagen; (<https://www.who.int/europe/publications/i/item/9789289056533>).
- WHO (2020). AirQ+: software tool for health risk assessment of air pollution, Geneva (<https://www.who.int/europe/publications/i/item/WHO-EURO-2020-1561-41312-56214>).
- WHO Regional Office for Europe (2013). Review of evidence on health aspects of air pollution - REVIHAAP Project, Technical Report, Copenhagen; (https://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0004/193108/REVIHAAP-Final-technical-report.pdf).
- Zotter, P., Ciobanu, V.G., Zhang, Y.L., El-Haddad, I., Macchia, M., Daellenbach, K.R., Salazar, G.A., Huang, R.-J., Wacker, L., Hueglin, C., Piazzalunga, A., Fermo, P., Schwikowski, M., Baltensperger, U., Szidat, S., and Prévôt, A.S.H. (2014). Radiocarbon analysis of elemental and organic carbon in Switzerland during winter-smog episodes from 2008 to 2012 - Part 1: Source apportionment and spatial variability. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 15591 - 15643. doi:10.5194/acpd-14-15591-2014.

Anhang

Tab. A1: Quartalsmittelwerte der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3) des Jahres 2021 an NABEL-Stationen.

Messstelle	Quartal 2021	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3-cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylene
Basel	JFM	15.5	0.26	0.24	0.12	0.27	0.68	0.18	0.20	0.28	0.03	0.29
	AMJ	10.8	0.09	0.08	0.03	0.06	0.14	0.03	0.04	0.06	0.01	0.06
	JAS	10.4	0.05	0.04	0.01	0.02	0.07	0.02	0.02	0.03	0.00	0.03
	OND	13.5	0.22	0.22	0.16	0.27	0.81	0.23	0.29	0.40	0.05	0.41
Bern	JFM	23.1	0.40	0.33	0.18	0.38	0.77	0.21	0.28	0.32	0.04	0.34
	AMJ	14.4	0.29	0.15	0.03	0.09	0.16	0.05	0.04	0.06	0.01	0.08
	JAS	14.9	0.32	0.14	0.02	0.04	0.11	0.03	0.03	0.06	0.01	0.08
	OND	17.5	0.33	0.28	0.23	0.36	0.92	0.26	0.37	0.44	0.05	0.46
Beromünster	JFM	12.2	0.19	0.17	0.06	0.12	0.31	0.07	0.09	0.12	0.01	0.14
	AMJ	8.9	0.06	0.05	0.02	0.03	0.07	0.02	0.03	0.03	0.00	0.04
	JAS	9.0	0.10	0.12	0.01	0.02	0.04	0.02	0.01	0.02	0.00	0.02
	OND	8.8	0.19	0.20	0.06	0.08	0.25	0.06	0.08	0.14	0.02	0.13
Dübendorf	JFM	15.7	0.30	0.27	0.14	0.28	0.69	0.18	0.23	0.29	0.03	0.30
	AMJ	10.2	0.08	0.07	0.02	0.05	0.11	0.03	0.03	0.05	0.01	0.05
	JAS	11.4	0.06	0.04	0.01	0.02	0.08	0.02	0.02	0.04	0.01	0.04
	OND	12.3	0.21	0.20	0.13	0.20	0.66	0.19	0.27	0.33	0.04	0.34
Härkingen	JFM	17.3	0.51	0.46	0.34	0.53	1.04	0.31	0.42	0.43	0.06	0.44
	AMJ	11.0	0.13	0.10	0.03	0.09	0.16	0.04	0.05	0.03	0.01	0.07
	JAS	12.9	0.09	0.06	0.02	0.04	0.10	0.02	0.02	0.04	0.00	0.05
	OND	13.8	0.22	0.22	0.17	0.26	0.74	0.21	0.29	0.35	0.04	0.36
Lausanne	JFM	18.5	0.20	0.17	0.08	0.20	0.37	0.10	0.11	0.16	0.02	0.19
	AMJ	11.2	0.09	0.06	0.02	0.06	0.09	0.03	0.02	0.04	0.00	0.05
	JAS	11.6	0.08	0.05	0.01	0.03	0.06	0.01	0.01	0.02	0.00	0.03
	OND	14.0	0.13	0.12	0.08	0.14	0.37	0.10	0.12	0.17	0.02	0.19
Lugano	JFM	23.1	0.21	0.19	0.14	0.32	0.81	0.22	0.23	0.29	0.04	0.33
	AMJ	13.0	0.06	0.05	0.01	0.04	0.09	0.02	0.02	0.03	0.00	0.04
	JAS	12.5	0.04	0.03	0.01	0.02	0.05	0.01	0.01	0.02	0.00	0.02
	OND	15.4	0.19	0.18	0.15	0.25	0.76	0.20	0.28	0.35	0.05	0.36
Magadino	JFM	21.1	0.33	0.38	0.69	2.56	3.24	0.56	0.80	0.54	0.35	0.97
	AMJ	12.0	0.06	0.06	0.03	0.11	0.22	0.04	0.06	0.07	0.03	0.11
	JAS	11.9	0.08	0.09	0.02	0.07	0.17	0.02	0.03	0.04	0.04	0.07
	OND	15.5	0.39	0.51	0.63	1.35	2.41	0.51	1.03	0.96	0.39	1.30
Payerne	JFM	14.3	0.23	0.21	0.09	0.17	0.50	0.12	0.16	0.22	0.02	0.24
	AMJ	9.0	0.07	0.06	0.02	0.04	0.10	0.02	0.03	0.04	0.00	0.06
	JAS	10.2	0.09	0.09	0.01	0.02	0.05	0.01	0.01	0.03	0.00	0.04
	OND	10.6	0.21	0.22	0.07	0.11	0.41	0.11	0.13	0.22	0.02	0.22
Sion	JFM	20.5	0.31	0.30	0.22	0.38	0.78	0.21	0.28	0.31	0.04	0.34
	AMJ	12.9	0.13	0.10	0.04	0.09	0.17	0.04	0.04	0.07	0.01	0.09
	JAS	13.0	0.11	0.10	0.02	0.03	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.05
	OND	16.8	0.37	0.42	0.37	0.44	1.17	0.30	0.55	0.60	0.07	0.65
Tänikon	JFM	13.0	0.33	0.32	0.16	0.28	0.76	0.19	0.25	0.31	0.03	0.31
	AMJ	9.2	0.08	0.08	0.03	0.05	0.15	0.04	0.05	0.02	0.01	0.06
	JAS	10.4	0.12	0.13	0.02	0.02	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.03
	OND	9.8	0.26	0.28	0.11	0.18	0.60	0.15	0.18	0.29	0.03	0.27
Zürich	JFM	15.0	0.27	0.24	0.10	0.22	0.61	0.16	0.17	0.21	0.03	0.27
	AMJ	10.4	0.08	0.06	0.02	0.04	0.12	0.03	0.03	0.04	0.01	0.06
	JAS	11.4	0.11	0.11	0.03	0.04	0.13	0.03	0.03	0.06	0.01	0.06
	OND	13.8	0.22	0.22	0.12	0.17	0.55	0.15	0.19	0.29	0.03	0.28

Tab. A2: Quartalsmittelwerte der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3) des Jahres 2021 an den kantonalen Stationen.

Messstelle	Quartal 2021	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) *	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+j)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylene
San Vittore	JFM	19.7	0.35	0.44	1.06	1.47	3.52	0.93	1.47	1.51	0.20	1.49
	AMJ	12.9	0.13	0.16	0.03	0.10	0.27	0.05	0.07	0.04	0.02	0.10
	JAS	13.3	0.10	0.11	0.01	0.03	0.06	0.01	0.01	0.02	0.01	0.03
	OND	29.7	0.57	0.77	2.30	2.50	5.05	1.55	2.91	2.32	0.29	2.29
Ebnat-Kappel	JFM	14.0	1.40	1.48	0.72	1.11	2.81	0.82	1.20	1.39	0.15	1.42
	AMJ	9.5	0.29	0.36	0.08	0.10	0.26	0.08	0.11	0.14	0.01	0.14
	JAS	9.5	0.17	0.22	0.05	0.05	0.11	0.03	0.04	0.06	0.01	0.06
	OND	10.0	1.26	1.53	0.98	1.00	2.56	0.78	1.49	1.33	0.15	1.35

*Bemerkung: Um einen korrekten Vergleich der PAK-Konzentrationen mit den PM10-Konzentrationen zu gewährleisten, bzw. um die korrekten PAK Gehalte zu bestimmen, wurden für die Berechnungen der PM10-Quartalswerte nur die Tageswerte jener Tage verwendet die in die Bestimmung der PAK-Konzentrationen einfließen.