

Russbelastung in der Schweiz Messungen im Rahmen des NABEL

Schlussbericht 2012

Hanna Herich, Christoph Hüglin
Abteilung Luftfremdstoffe/ Umwelttechnik
Empa, 8600 Dübendorf

13. November 2013

Impressum

Auftraggeber: Bundesamt für Umwelt (BAFU), Abt. Luftreinhaltung und NIS, CH-3003 Bern. Das BAFU ist ein Amt des Eidg. Departements für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation (UVEK).

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

Autor/Autorin: Hanna Herich, Christoph Hüglin

Begleitung BAFU: Rudolf Weber, Richard Ballaman

Hinweis: Diese Studie/dieser Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU) verfasst. Für den Inhalt ist allein der Auftragnehmer verantwortlich.

Inhaltsverzeichnis

1	Zusammenfassung	5
2	Résumé	7
3	Einleitung	9
4	Messtechnik	9
4.1	Aethalometer	10
4.2	MAAP	11
4.3	Thermisch-optische OC/EC Bestimmung	11
5	Resultate	13
5.1	Qualitätssicherung	13
5.1.1	Anbindung von Aethalometer und MAAP	14
5.1.2	Vergleich von thermisch-optischem Verfahren und Coulometrie	15
5.2	Russbelastung	15
5.2.1	Jahresgang	15
5.2.2	Zeitliche Entwicklung	17
5.2.3	Tages- und Wochengänge	19
5.3	Russ aus Verbrennung von fossilen Brennstoffen und Holzfeuerungen	20
6	Ausblick	23
	Literatur	25

1 Zusammenfassung

Die Russbelastungen in der Schweiz liegen deutlich über den für kanzerogene Luftschadstoffe tolerierbaren Werten, Russ stellt daher ein gewichtiges Risiko für Lungenkrebskrankungen dar [1]. Der Luftschadstoff Russ resultiert in der Schweiz praktisch ausschliesslich aus primären Emissionen anthropogener Verbrennungsprozesse (motorische Verbrennung und Holzfeuerungen). Russ ist daher ein geeigneter Indikator zur Beurteilung der Bedeutung dieser Quellen für die vorherrschende Luftqualität. Im Rahmen des Nationalen Messnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL) werden seit 2007 robuste und auf eine europaweit akzeptierte Referenz bezogene Messungen zur Russbelastung an acht ausgewählten Standorten durchgeführt (Tabelle 1).

Russ ist keine chemisch eindeutig definierte Grösse, es gibt daher kein direktes Messverfahren für Russ. Häufig wird die Russbelastung durch die Konzentration von elementarem (hitzebeständigem und graphitähnlichem) Kohlenstoff (EC) angegeben. Für die Messung von EC im Feinstaub gilt jedoch, dass der Messwert vom angewendeten Messverfahren abhängt, weil bei den verfügbaren Messverfahren die Auftrennung der Kohlenstofffraktion in elementaren Kohlenstoff und organischen Kohlenstoff (OC) unterschiedlich realisiert wird. Um die Vergleichbarkeit von Messwerten sicherzustellen ist es daher notwendig, dass sich die Russdaten auf das selbe, eindeutig definierte, Messverfahren beziehen.

An den NABEL-Stationen werden automatische und kontinuierliche Instrumente zur Messung der Lichtabsorption des Feinstaubes eingesetzt. Parallel dazu werden regelmässig Feinstaubproben gesammelt. Von diesen wird im Labor mittels thermisch-optischer TOT-Methode die Konzentration von EC bestimmt (Temperaturprotokoll EUSAAR-2). Die kontinuierlich gemessene Lichtabsorption wird aufgrund der stationsabhängigen linearen Beziehung zur thermisch-optischen Methode in EC bzw. EBC (angelehnt an die international vorgeschlagene Terminologie "equivalent black carbon", bzw. äquivalenter schwarzer Kohlenstoff) umgerechnet, siehe [2]. Die manuelle Methode mit EUSAAR-2 Temperaturprotokoll dient somit im NABEL als Referenz für die Russmessungen.

Station	Jahresmittelwert ¹ [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Standorttyp
Bern-Bollwerk	2.75	Stadt, verkehrsbelastet
Härkingen	1.90	Ländlich, an Autobahn
Zürich-Kaserne	1.00	Stadt, Hintergrund
Lugano-Universita	1.48	Stadt, Hintergrund
Dübendorf	1.06	Vorstädtisch
Basel-Binningen	0.86	Vorstädtisch
Magadino-Cadenazzo	1.33	Ländlich, Alpensüdseite
Payerne	0.55	Ländlich, Alpennordseite

Tabelle 1: Jahresmittelwerte von Russ in PM2.5.

Die gemessenen Russbelastungen zeigen eine deutliche Standortabhängigkeit. An den verkehrsbelasteten Standorten Bern und Härkingen sind die mittleren Russwerte am höchsten, Russ aus Dieselmotoren führt hier zu einem ganzjährig hohen Immissionsniveau. Die am wenigsten belasteten Messstandorte sind die vorstädtische Station Basel-Binningen und das ländliche Payerne. Wie stark der Einfluss des Verkehrs ist, zeigt sich auch in den Wochen- und Tagesgängen der Russkonzentrationen. Spitzenkonzentrationen der Russbelastung werden an allen Standorten an den Werktagen während der Hauptverkehrszeiten erreicht. An der verkehrsbelasteten Station Bern

¹Zeit vom 1.1.11 - 31.12.12

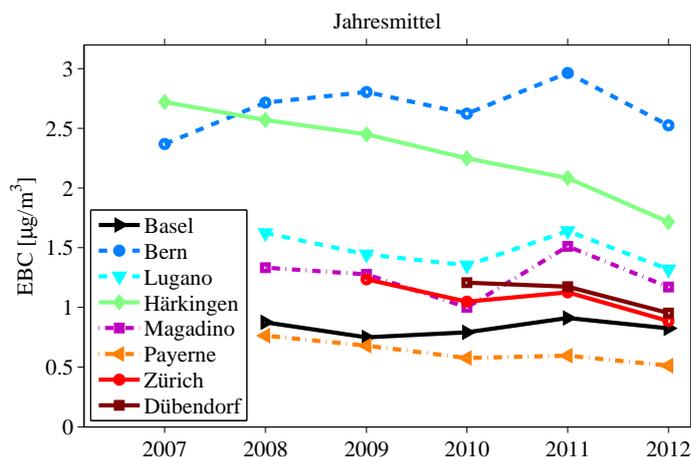


Abbildung 1: Mehrjährige Verläufe der Jahresmittelwerte von Russ (ausgedrückt durch die Konzentration von equivalent black carbon, EBC) in PM_{2.5}.

treten maximale Konzentrationen von bis zu $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gleichermaßen im Sommer und im Winter während der Hauptverkehrszeiten auf. An den anderen Standorten ist ein deutlicher Unterschied zwischen den Jahreszeiten gegeben, im Winter sind die Russkonzentrationen deutlich höher als im Sommer.

Die deutliche jahreszeitliche Abhängigkeit der Russbelastungen mit den Spitzenwerten im Winter hat zwei Ursachen. Sie ist einerseits auf den Einfluss der Witterung auf die Luftqualität zurückzuführen (Inversionswetterlagen), andererseits tragen im Winter Emissionen aus der Verbrennung von Biomasse (insbesondere Holzfeuerungen) zu einer zusätzlichen Russbelastung bei. Durch Messung der Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption von Russ kann der Beitrag dieser Emissionsquellen an der Russbelastung grob abgeschätzt werden. Solche Messungen werden an drei der NABEL-Stationen durchgeführt. Danach tragen im Winter Holzfeuerungen an den Stationen Magadino-Cadenazzo, Payerne und Zürich-Kaserne mit 23-36% zur Russbelastung bei. Im Sommer ist der Einfluss dieser Quelle hingegen vernachlässigbar.

Je nach Station umfassen die durchgeführten Russmessungen derzeit Zeitperioden von zweieinhalb bis sechs Jahre, siehe Abbildung 1. Diese Zeitperioden sind noch zu kurz um zuverlässige Aussagen zu mehrjährigen Trends zu machen. Die witterungsbedingte Variabilität der Russkonzentrationen von Jahr zu Jahr ist dafür zu gross. Dennoch deuten die verfügbaren Messungen an einigen Standorten auf leicht abnehmende Russbelastungen hin (Dübendorf, Lugano, Zürich-Kaserne, Payerne), in Magadino-Cadenazzo und Basel-Binningen erscheinen die Russkonzentrationen in den letzten Jahren dagegen konstant geblieben zu sein. Die längsten Messreihen, von 2007 bis 2012, liegen für die verkehrsbelasteten Standorte Bern-Bollwerk und Härkingen vor. Für die Station Bern-Bollwerk sind gegenwärtig Aussagen zur zeitlichen Entwicklung der Russbelastungen kaum möglich, da die Jahresmittelwerte von 2007 und 2008 aufgrund von Bauarbeiten mit stark eingeschränktem Verkehrsfluss nicht repräsentativ für diesen Standort sind. Am Standort Härkingen weisen die Messwerte auf eine Abnahme der Russbelastung hin. Die Russkonzentrationen sanken in den letzten sechs Jahren um ca. 30%. Allerdings ist auch in Härkingen zu beachten, dass die Messungen der Jahre 2011 und 2012 durch Bauarbeiten beeinflusst sein könnten, die Verkehrszahlen stiegen jedoch im betrachteten Zeitraum leicht an.

Mit den im NABEL aufgenommenen und auf einer international akzeptierten Messmethode basierenden Russmessungen kann die zukünftige Entwicklung der Russbelastung in der Schweiz zuverlässig verfolgt werden. Diese Messungen werden eine Beurteilung des Erfolges von Massnahmen zur Minderung der Russbelastung ermöglichen.

2 Résumé

En Suisse, la charge polluante due aux particules de suie dépasse nettement les valeurs tolérables pour les polluants atmosphériques cancérogènes. Il en résulte que la suie représente un facteur de risque important pour le développement des cancers des poumons [1]. Selon le principe de la minimisation des émissions de polluants cancérogènes, il est donc urgent de réduire les émissions de suies afin d'en diminuer les immissions. Dans notre pays, la suie provient pratiquement exclusivement des émissions primaires des processus de combustion anthropogènes (moteurs à combustion et chauffages au bois). Ceci en fait un indicateur adéquat pour l'appréciation de l'impact de ces sources sur la qualité de l'air. Le réseau national d'observation des polluants atmosphériques NABEL fournit depuis 2007 sur huit sites choisis à cet effet des mesures robustes de la pollution due à la suie (tableau 1).

La suie n'étant pas une substance chimique nettement définie, il n'existe pas de méthode directe pour la mesurer. La charge polluante due à la suie est fréquemment exprimée sous forme de concentration en carbone élémentaire EC (résistant à la chaleur et similaire au graphite). Toutefois les valeurs de mesure obtenues dépendent de la méthode utilisée, cela parce que les méthodes actuellement disponibles diffèrent entre elles dans la manière dont elles séparent le carbone élémentaire du carbone organique (OC). Pour assurer la comparabilité des valeurs de mesure de la suie, il est donc indispensable que ces valeurs se réfèrent à la même méthode bien définie. Les stations NABEL sont équipées d'instruments automatiques pour la mesure en continu de l'absorption lumineuse des poussières fines. Parallèlement à cela, des échantillons de poussières fines sont prélevés régulièrement. Sur ces échantillons, on détermine en laboratoire la concentration en EC au moyen de la méthode thermo-optique TOT (protocole de température EUSAAR-2). L'absorption lumineuse mesurée en continu sur les stations est convertie en EC ou EBC (pour «équivalent black carbon », équivalent de carbone noir selon la proposition de terminologie internationale) avec la méthode thermo-optique sur la base de la relation linéaire spécifique pour chaque station [2]. La méthode manuelle avec le protocole de température EUSAAR-2 sert ainsi de référence pour les mesures de la suie sur le réseau NABEL.

Station	Moyenne annuelle ² [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Type de site
Bern-Bollwerk	2.75	urbain, trafic routier
Härkingen	1.90	région rurale, autoroute
Zürich-Kaserne	1.00	urbain, niveau de fond
Lugano-Universita	1.48	urbain, niveau de fond
Dübendorf	1.06	suburbain
Basel-Binningen	0.86	suburbain
Magadino-Cadenazzo	1.33	rural, sud des Alpes
Payerne	0.55	rural, nord des Alpes

Tableau 1: Moyennes annuelles de la suie dans les PM_{2.5}.

Les charges de suie mesurées varient nettement selon les sites de mesure. Les valeurs moyennes de la concentration de suie sont les plus élevées sur les sites de mesure exposés à un fort trafic routier de Berne et d'Härkingen. Là la suie émise par les moteurs diesel conduit durant toute l'année à un niveau d'immission élevé. Les sites subissant la charge la moins élevée sont le site suburbain de Basel-Binningen et le site rural de Payerne.

²période du 1.1.11 - 31.12.12

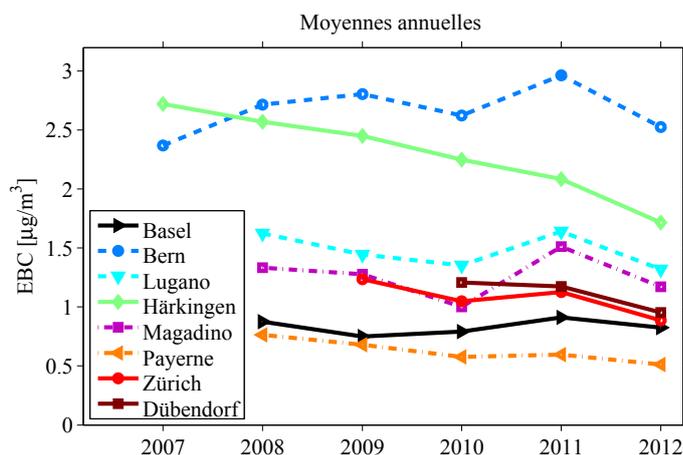


Figure 1: Courbes pluriannuelles des moyennes annuelles de la suie (exprimées sous forme de concentration de «equivalent black carbon» EBC) dans les PM2.5.

L'ampleur de l'influence du trafic routier apparaît aussi dans les variations hebdomadaires et quotidiennes des concentrations de suie. Les pointes de concentrations de suie sont atteintes sur tous les sites les jours ouvrables durant les heures de grand trafic. Sur la station de Berne exposée à un fort trafic routier, durant les heures de pointe des concentrations maximales atteignant jusqu'à $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sont enregistrées aussi bien en été qu'en hiver. Sur les autres sites, on relève une différence nette entre les saisons, en hiver les concentrations de suie sont nettement plus élevées qu'en été.

La nette dépendance saisonnière des charges de suie avec des pointes en hiver a deux causes. Elle est due, d'une part, à l'influence des conditions atmosphériques (situation d'inversion) et d'autre part, les émissions résultant de la combustion de biomasse (et en particulier les chauffages au bois) contribuent à accroître la charge de suie. La mesure de l'absorption lumineuse de la suie en fonction des longueurs d'onde permet d'estimer grossièrement la contribution de ces sources à la charge totale de suie. De telles mesures réalisées sur les trois stations NABEL de Magadino-Cadenazzo, de Payerne et de Zürich-Kaserne, montrent qu'en hiver les chauffages au bois contribuent pour 23-36% à la charge de suie. En été, l'influence de ces sources est par contre négligeable.

Suivant les stations, les mesures de la suie réalisées s'étendent sur des périodes variant entre deux ans et demi et six ans (voir figure). Ces périodes sont trop courtes pour pouvoir tirer des conclusions fiables sur les tendances pluriannuelles car la variabilité d'une année à l'autre des concentrations de suie, due aux conditions météorologiques, est trop grande. Toutefois les mesures disponibles indiquent sur quelques sites une légère diminution des charges de suie (Zürich-Kaserne, Dübendorf, Lugano, Payerne); à Magadino-Cadenazzo et Basel-Binningen les concentrations de suie semblent être restées constantes ces dernières années. Les séries de mesures les plus longues, de 2007 à 2012, sont celles recueillies sur les stations de Bern-Bollwerk et Härkingen. Pour la station de Bern-Bollwerk, il n'est actuellement guère possible d'émettre un avis sur l'évolution temporelle de la charge de suie car les moyennes annuelles de 2007 et 2008 ne sont pas représentatives de ce site du fait de travaux réalisés durant ces années là qui ont entraîné une forte diminution du trafic routier. Sur le site d'Härkingen, les mesures indiquent une diminution de la charge de suie d'environ 30% au cours des six dernières années. Il faut toutefois relever qu'à Härkingen, les mesures des années 2011 et 2012 pourraient aussi avoir été influencées par des travaux, bien que l'on constate une légère augmentation du trafic routier sur la période considérée.

Les mesures de la suie effectuées sur le réseau NABEL, qui sont basées sur une méthode de mesure reconnue au plan international, permettent de suivre de manière fiable l'évolution de la charge de suie en Suisse et elles permettront aussi d'évaluer le succès des mesures prises pour sa réduction.

3 Einleitung

Eine Abnahme der Russmissionen ist in der Schweiz dringend notwendig, da die Russkonzentrationen in der Aussenluft zu hoch sind. Russ wirkt schädigend auf die menschliche Gesundheit (Begünstigung von Krebserkrankungen) und ist daher ein wichtiger Indikator für die Luftqualität. Zudem hat der lichtabsorbierende Russ einen Einfluss auf den Strahlungshaushalt der Erde und somit auf das Klima. Eine Schätzung der Eidgenössischen Kommission für Lufthygiene (EKL) beziffert den bevölkerungsgewichteten Mittelwert der Russbelastung (in Form von elementarem Kohlenstoff, EC) derzeit auf 2-3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ein Zielwert von 0.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ wäre jedoch nötig, um den Schutz der Bevölkerung zu gewährleisten [1].

Die Hauptquellen von Russ sind Dieselmotoren und unvollständige Biomasseverbrennung. Bei diesen Quellen setzen deshalb auch die Massnahmen zur Reduktion der Russbelastung an. Im Rahmen dieses Projektes wurden zwischen 2008 und 2012 umfassende und qualitativ hochstehende Russimmissionsdaten an acht verschiedenen NABEL Standorten erhoben. Die Standorte repräsentieren die wichtigsten Belastungssituationen in der Schweiz und bieten eine Grundlage zur Beurteilung der bisher umgesetzten Massnahmen zur Immissionsminderung. Dieser Bericht diskutiert die Resultate der bis Dezember 2012 durchgeführten Messungen.

4 Messtechnik

Russ ist keine chemisch eindeutig definierte Grösse, es gibt daher kein direktes Messverfahren für Russ. Häufig wird die Russbelastung durch die Konzentration von elementarem Kohlenstoff (EC) oder lichtabsorbierendem Kohlenstoff (black carbon - BC) angegeben. Für die Messung von EC und BC als Indikatoren für die Russbelastung stehen unterschiedliche Messmethoden zur Verfügung. EC wird mit thermischen Methoden bestimmt, bei welchen die unterschiedliche Hitzebeständigkeit der verschiedenen kohlenstoffhaltigen Feinstaubbestandteile ausgenutzt wird. Die Bestimmung von BC erfolgt dagegen mit optischen Methoden, bei welchen die Absorption oder Reflektion von Licht durch eine Feinstaubprobe gemessen wird. Die Messwerte für EC und BC sind typischerweise nicht gleich, da gefärbte oder hitzebeständige Anteile der organischen Kohlenstoffverbindungen (OC) nicht in gleichem Masse zu den verschiedenen Messverfahren beitragen, siehe Abbildung 2.

Damit Russimmissionsdaten schweizweit und international verglichen werden können, ist es notwendig, die Daten auf ein einheitliches und klar definiertes Messverfahren zu beziehen. Als geeignetes einheitliches Verfahren hat sich die sogenannte thermisch-optische Methode mit einem definierten Temperaturprotokoll (siehe 4.3) etabliert. Es handelt sich hierbei um eine thermische Methode zur Bestimmung von EC, bei der mittels optischem Verfahren eine Pyrolysekorrektur durchgeführt wird (siehe 4.3). In diesem Projekt wird Russ grösstenteils mit kontinuierlichen optischen Methoden als schwarzer Kohlenstoff (englisch black carbon, BC) gemessen. Durch regelmässige Vergleichsmessungen (jeden zwölften Tag) mit thermisch-optischen EC-Messungen wird der Zusammenhang zwischen den beiden Messmethoden an allen Standorten bestimmt. Basierend auf diesen Vergleichsmessungen werden die kontinuierlich gemessenen BC Werte umgerechnet, so dass die ausgewiesenen Messwerte konsistent mit thermisch-optisch gemessenem EC sind. Die so bestimmten BC Werte werden im folgenden als EBC bezeichnet (angelehnt an die international vorgeschlagene Terminologie "equivalent BC", bzw. äquivalenter schwarzer Kohlenstoff), siehe [2].

Bei den verwendeten optischen Geräten handelt es sich um Multi-angle Absorption Photometer (MAAP, fünf Stationen) und sogenannte Aethalometer (drei Stationen), siehe Abbildung 3. Diese

optischen Messverfahren können mit einem vergleichsweise geringen Aufwand betrieben werden. An allen bisher untersuchten Stationen zeigten sich lineare Beziehungen zwischen BC und dem thermisch-optisch gemessenen EC, die ermittelten Umrechnungsfaktoren sind dabei standortspezifisch. Die Messungen sowohl von BC als auch von EC können durch andere Feinstaubkomponenten als lichtabsorbierender bzw. hitzebeständiger Kohlenstoff beeinflusst werden. Die Messung von BC kann insbesondere durch lichtabsorbierende mineralische Bestandteile beeinflusst werden, auf der anderen Seite kann in Karbonaten gebundener Kohlenstoff zum EC Messignal beitragen. Durch Verwendung von PM1 bzw. PM2.5 Vorabscheidern wird der Einfluss solcher störenden Feinstaubkomponenten minimiert.

4.1 Aethalometer

Mit einem Aethalometer (Typ Magee AE-31) wird die Absorption von Feinstaubpartikeln bei sieben verschiedenen Wellenlängen vom nahen Ultraviolett (UV) bis ins nahe Infrarot (IR) gemessen. Die Feinstaubpartikel werden dazu auf einem Quarzfaserfilter gesammelt. Durch Messen des transmittierten Lichts durch das Filter kann der Lichtabsorptionskoeffizient des Feinstaubes kontinuierlich bestimmt werden.

Die Aethalometerdaten erlauben es zudem, den Anteil von Russ aus Holzfeuerungen und Dieselmotoren zu unterscheiden [4]. Dies liegt am Einsatz der unterschiedlichen Wellenlängen: Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe, sonstige Aromaten und andere organische Verbindungen absorbieren verstärkt Licht im ultravioletten Bereich, während die Absorption im nahen IR von schwarzem (graphitähnlichem) Kohlenstoff dominiert wird. Ein Nachteil des Aethalometers ist, dass aus der gemessenen Lichtabsorption nicht direkt der Absorptionskoeffizient der luftgetragenen Aerosolpartikel abgeleitet werden kann. Lichtstreuung durch das Filtermedium und durch transparente Aerosolpartikel beeinflussen die Messungen. Zudem zeigt das Messsignal des Aethalometers eine Abhängigkeit von der Filterbelegung. Für eine präzise Bestimmung des Aerosolabsorptionskoeffizienten und damit von (BC) ist eine nachträgliche Korrektur der Messwerte notwendig [5].

Aethalometer werden an den Stationen Magadino, Payerne und Zürich eingesetzt, die Geräte

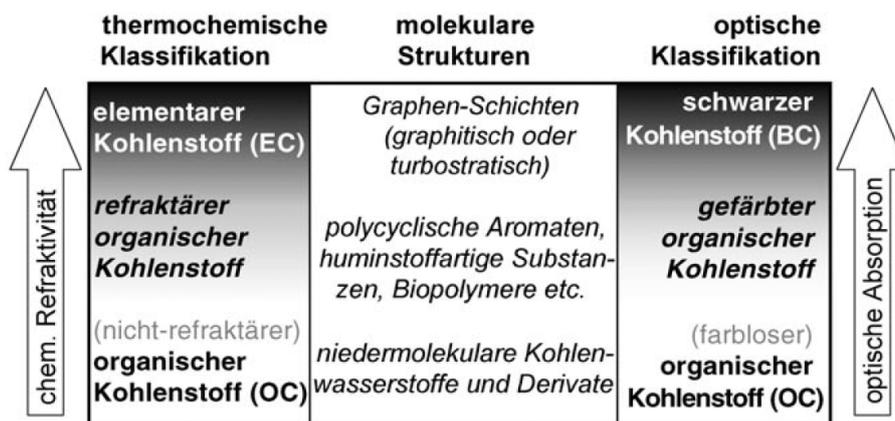


Abbildung 2: Optische und thermische Klassifizierung sowie molekulare Strukturen von BC oder EC und organischem Kohlenstoff. Je nach Analyseverfahren beinhalten BC bzw. EC unterschiedliche Mengen von Kohlenstoff aus refraktiven (hitzebeständigen) und gefärbten organischen Verbindungen. Aus [3].

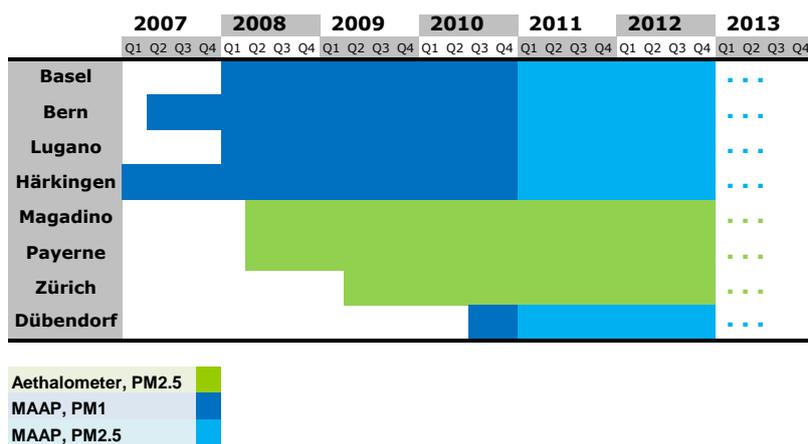


Abbildung 3: Zeitlicher Überblick der Russmessungen im NABEL

sind mit einem PM2.5 Vorabscheider ausgestattet. Seit 2013 wird zusätzlich ein Aethalometer an der NABEL-Station Rigi-Seebodenalp (ländlich, über 1000 m.ü.M.) betrieben, dieser Messbericht enthält jedoch noch keine Resultate von diesem Standort.

4.2 MAAP

Im Multi-angle Absorption Photometer (MAAP) [6] werden zwei Messverfahren kombiniert. Zum einen wird analog zum Aethalometer eine Transmissionsmessung eines mit Partikeln beladenen Glasfaserfilters durchgeführt. Zum anderen wird zusätzlich auch die Lichtreflexion unter zwei verschiedenen Winkeln gemessen. Mithilfe einer Strahlungstransferrechnung kann aus diesen gemessenen Signalen der Lichtabsorptionskoeffizient der Aerosolpartikel berechnet werden. Die Kombination von Lichttransmission und Lichtreflexion liefert gegenüber dem Aethalometer genauere Messungen der Lichtabsorption der Aerosolpartikel. Eine nachträgliche Datenkorrektur ist beim MAAP nicht erforderlich. An den NABEL Stationen Basel, Bern, Härkingen, Lugano und Dübendorf wurden bis Ende 2010 MAAP mit einem PM1-Vorabscheider eingesetzt. Seit Anfang 2011 werden wie bei den Aethalometern PM2.5-Vorabscheider verwendet.

4.3 Thermisch-optische OC/EC Bestimmung

Im Labor an der Empa wird mit einem OC/EC Analysator der Firma Sunset Labs die Konzentration von elementarem und organischem Kohlenstoff im Feinstaub (PM2.5) bestimmt. Es werden PM2.5-Proben untersucht, welche regelmässig (jeden 12. Tag) mit High Volume Sammlern auf Quarzfaserfiltern während 24 Stunden gesammelt wurden. Die Feinstaubproben stammen von denselben Messstationen, an denen zeitgleich mit den beschriebenen optischen Methoden auch der Lichtabsorptionskoeffizient von PM2.5 gemessen wird. Die thermisch-optisch bestimmten EC-Werte dienen zur Umrechnung des Lichtabsorptionskoeffizienten in die Konzentration von schwarzem Kohlenstoff (EBC), siehe Abschnitt 4.

Die thermisch-optische Bestimmung von OC und EC funktioniert wie folgt: Die PM2.5-Filterprobe wird stufenweise aufgeheizt und dabei kontinuierlich mit Licht einer Wellenlänge ($\lambda=680\text{nm}$) durchstrahlt. Das Aufheizen des Filters erfolgt zunächst unter einer inerten Heliumatmosphäre, dadurch werden organische Verbindungen in die Gasphase überführt, durch einen Katalysator geleitet und in CH_4 umgewandelt. Mit einem Flammenionisationsdetektor (FID) wird das CH_4 gemessen und so die Kohlenstoffmenge bestimmt. In einem anschliessenden zweiten Schritt wird das Filter unter einer oxidierenden Atmosphäre (He/O_2) erneut aufgeheizt, dabei verbrennen die

Station	Zeitperiode	PM10	PM2.5	PM1
Payerne	18.09.08-14.10.08	107%	100%	90%
Payerne	25.02.09-26.03.09	107%	100%	82%
Payerne	pooled	107%	100%	86%
Bern	12.08.08-26.07.09	130%	100%	96%
Basel	12.08.08-26.07.09	112%	100%	91%
Härkingen	11.01.11-25.12.11	–	100%	89%
Lugano	5.01.06-31.12.06	–	100%	91%

Tabelle 2: Russfraktion in PM1, PM2.5 und PM10.

restlichen Kohlenstoffverbindungen, insbesondere der elementare Kohlenstoff EC. Es muss dabei berücksichtigt werden, dass nicht der gesamte, in diesem zweiten Schritt detektierte Kohlenstoff als EC aufgefasst werden kann. Während des ersten Aufheizprozesses wurde auf dem Filter auch OC in EC umgewandelt (Pyrolyse), die Menge des pyrolysierten Kohlenstoffes muss bestimmt und dem OC zugerechnet werden. Dazu wird die zu Anfangs erwähnte parallele Messung der Lichttransmission verwendet. Denn durch die Pyrolyse verringert sich die Lichttransmission des Filters während des ersten Aufheizprozesses, das Filter wird schwärzer. Erst durch das anschließende Verbrennen des EC steigt die Lichttransmission wieder an, d.h. das Filter wird optisch durchlässiger. Die Trennung zwischen OC und EC wird daher zum Zeitpunkt der Analyse gesetzt, zu dem die Transmission während der EC Verbrennung wieder der Lichttransmission vor Beginn der thermisch-optischen Analyse entspricht (sog. „split-time“). D.h., der vor der „split-time“ verbrannte EC Anteil wird dem OC zugerechnet. Das stufenweise Aufheizen des Filters ist exakt definiert und erfolgt nach dem in Europa weit verbreiteten EUSAAR2-Protokoll ([7]). Dadurch wird die Vergleichbarkeit der Resultate sichergestellt. Die beschriebene thermisch-optische Methode mit Pyrolysekorrektur durch Lichttransmissionsmessung wird auch als TOT-Methode bezeichnet (thermal optical transmission method). Häufig wird dieses thermisch-optische Verfahren auch mit einer Pyrolysekorrektur basierend auf der Messung der Lichtreflexion realisiert (TOR-Verfahren, thermal optical reflectance method). Beim Sunset-Labs Laborgerät der Empa kann die Pyrolysekorrektur gleichzeitig mittels Lichttransmission und Lichtreflexion durchgeführt werden. Aus Vergleichsmessungen ist bekannt, dass EC-Messungen mit den beiden Methoden der Pyrolysekorrektur zwar hochkorreliert sind, TOT jedoch systematisch höhere EC-Werte liefert als TOR. Gegenwärtig beschäftigt sich eine Arbeitsgruppe des Europäischen Komitees für Normierung (CEN TC264 WG35) mit der Festlegung einer Referenzmethode für EC und OC. Die Arbeitsgruppe empfiehlt das thermisch-optische Verfahren, wobei das verwendete Temperaturprotokoll und die Methode der Pyrolysekorrektur mit den Messwerten angegeben werden sollten.

Neben dem Laborgerät wurden zwischen 2008 und 2011 an den Messstationen Payerne und Rigi auch zwei automatische thermisch-optische OC/EC Analysatoren für „semi-kontinuierliche“ Messungen betrieben. Beide Geräte waren mit einem PM2.5 Vorabscheider ausgestattet und lieferten OC und EC Werte mit einer Zeitauflösung von drei Stunden. 2011 wurden die Messungen eingestellt, da es im Messzeitraum wiederholt zu Geräteproblemen und Reparaturausfällen gekommen war. Nur etwa 40% der insgesamt gemessenen Daten stellten sich als überhaupt verwertbar heraus wodurch sich das Verhältnis von Messdaten und Messaufwand nicht mehr rechtfertigen liess. Im Zwischenbericht von 2011 wurden die semi-kontinuierlich bestimmten Russdaten aus Payerne für den Zeitraum Februar 2009 bis Oktober 2010 diskutiert, da für diese Messperiode genügend verwertbare und zusammenhängende Messungen vorliegen.

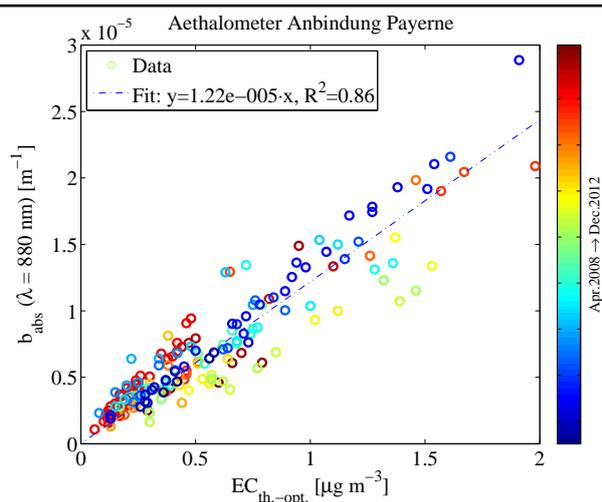


Abbildung 4: Anbindung der Aerosol-Absorptionskoeffizienten in Payerne ($\lambda=880$ nm) an thermisch-optisch bestimmte EC-Werte.

5 Resultate

5.1 Qualitätssicherung

Seit Beginn 2011 wird in Anlehnung an die Erfordernisse der europäischen Richtlinie 2008/50/EC an allen Stationen die Russfraktion in PM_{2.5} bestimmt. Zuvor wurde an den Standorten Magadino, Payerne und Zürich die Russfraktion in PM_{2.5}, an den Standorten Basel, Bern, Härkingen, Lugano und Dübendorf in PM₁ gemessen.

Die Wahl eines Vorabscheiders ist sinnvoll, da dadurch gröbere Feinstaubpartikel wie Mineralstaubpartikel abgeschieden werden, welche die Russmessungen beeinflussen können. Zum Vergleich der Messdaten muss jedoch beachtet werden, dass an den Stationen mit einem PM_{2.5} Vorabscheider ein etwas grösserer Anteil der gesamten luftgetragenen Russmenge gemessen wird, als an den Stationen mit einem PM₁ Vorabscheider. In welcher Grössenordnung sich die Unterschiede dabei bewegen zeigen Vergleichsmessungen. Dazu wurde in Payerne, Basel und Bern Russ zeitgleich in PM₁, PM_{2.5} und im PM₁₀ gemessen, sowie in Härkingen und Lugano in PM₁ und PM_{2.5}.

Der mittlere EC Anteil in den verschiedenen PM-Fractionen ist (soweit Parallelmessungen vorhanden sind) in Tabelle 2 dargestellt. Die Tabelle zeigt, dass an allen Standorten mehr als 82% des Russ in PM_{2.5} bereits in PM₁ gemessen wurden. In Bern ist der Unterschied zwischen dem Russanteil in PM_{2.5} und in PM₁₀ relativ gross. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich an mi-

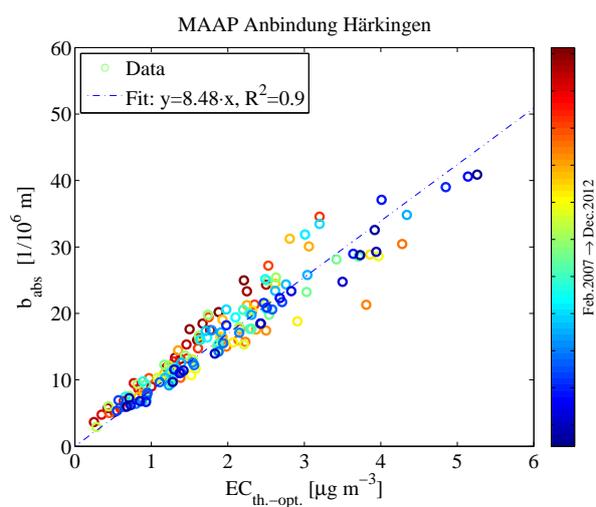


Abbildung 5: Anbindung der MAAP Messwerte von Härkingen an thermisch-optisch bestimmte EC-Werte.

	Payerne	Magadino	Zürich
λ	σ_{abs} [m ² /g]	σ_{abs} [m ² /g]	σ_{abs} [m ² /g]
880 nm	12.2 (+/- 0.4)	13.2 (+/- 0.6)	12.5 (+/- 0.5)

Tabelle 3: Aerosol-Lichtabsorptionsquerschnitt von PM2.5 bei einer Lichtwellenlänge von 880nm (Daten bis Dez. 2012).

neralischen Feinstaubkomponenten und insbesondere Karbonaten, welche am verkehrsbelasteten Standort Bern einen grossen Beitrag zur Massenkonzentration von groben Partikeln (Durchmesser von 2.5 bis 10 Mikrometer) ausmachen. Beim angewendeten Temperaturprotokoll wird der in Karbonaten gebundene Kohlenstoff beim EC-Analyseschritt freigesetzt. Es wäre zudem denkbar, dass Partikel aus dem Abrieb der Reifen von Fahrzeugen zu einem erhöhten Russanteil bei den groben Partikeln beitragen. In verschiedenen Studien konnte an vergleichbaren Standorten jedoch kein nennenswerter Beitrag durch Reifenabrieb nachgewiesen werden ([8] und Referenzen darin).

5.1.1 Anbindung von Aethalometer und MAAP

Wie bereits zuvor diskutiert, bedarf es einer standortspezifischen Umrechnung, um die mit dem Aethalometer und dem MAAP gemessenen Aerosol-Absorptionskoeffizienten mit den thermisch-optisch bestimmten EC-Konzentrationen vergleichen zu können. Zur Anbindung der Aethalometerdaten werden die Aerosol-Absorptionskoeffizienten b_{abs} zunächst nach [4] korrigiert und anschliessend gegen thermisch-optisch analysierte EC Daten der Feinstaub-Tagesproben von jedem 12. Tag aufgetragen. Abbildung 4 zeigt exemplarisch die Anbindung von Aethalometerdaten an die bisher analysierten EC Daten in Payerne (Apr. 2008 – Dez. 2012). Für die Anbindung wurde die Wellenlänge $\lambda=880$ nm verwendet. Der Umrechnungsfaktor zwischen EC und b_{abs} ist der massenspezifische Aerosol-Lichtabsorptionsquerschnitt σ_{abs} . Tabelle 3 zeigt σ_{abs} an den Standorten Payerne, Magadino und Zürich für jede der sieben Lichtwellenlängen der Aethalometer.

Analog werden auch die mit dem MAAP gemessenen Daten mit thermisch-optisch analysiertem EC der Feinstaub-Tagesproben von jedem 12. Tag verglichen. Die Massenabsorptionsquerschnitte sind ganzjährig konstant und für den gesamten Messzeitraum von 2007 bis 2012 konnten einheitliche Faktoren bestimmt werden. Dies ist insofern interessant, da Anfang 2011 sämtliche MAAP Vorabschneider von PM1 zu PM2.5 gewechselt wurden. Wie die Auswertungen zeigen, hat der Wechsel nur einen sehr geringen Einfluss auf die Massenabsorptionsquerschnitte, sie variieren nur innerhalb der ohnehin vorhandenen Streuung der Daten.

Tabelle 4 zeigt die MAAP-Aerosol-Lichtabsorptionsquerschnitte für die Standorte Härkingen, Bern, Lugano, Basel und Dübendorf. Abbildung 5 zeigt exemplarisch den Zusammenhang zwischen MAAP-Daten und analysierten EC Daten (Februar 2007 – Dezember 2012) für Härkingen, das Bestimmtheitsmass ist $R^2=0.9$.

	Härkingen	Bern	Lugano	Basel	Dübendorf
λ	σ_{abs} [m ² /g]				
670 nm	8.5	8.1	8.8	9.6	9.7

Tabelle 4: Mit den MAAP-Instrumenten ermittelte Aerosol-Lichtabsorptionsquerschnitte (Daten bis Dez. 2012). Die Messwerte bis Ende 2010 wurden mit PM1-Vorabscheidern, die Werte seit 2011 mit PM2.5-Vorabscheidern gemessen.

5.1.2 Vergleich von thermisch-optischem Verfahren und Coulometrie

In der Vergangenheit wurden in der Schweiz vielfach EC-Messungen mit dem coulometrischen Verfahren durchgeführt (VDI Methode 2465/1). Während die Summe von EC+OC (sog. totaler Kohlenstoff, TC) bei beiden Messverfahren sehr gut übereinstimmt, gibt es zwischen dem coulometrischen Messverfahren und der thermisch-optischen Methode deutliche Unterschiede in der Auftrennung von TC in EC und OC. Ein direkter Vergleich von mit diesen unterschiedlichen Messmethoden erhobenen EC- und OC-Konzentrationen ist daher nicht sinnvoll. Die mit dem coulometrischen Verfahren gemessenen EC-Werte sind zu den mittels TOT/EUSAAR2 erhobenen Werte hoch korreliert, jedoch systematisch höher. In einer Studie der Empa [9] wurden Feinstaubproben mit beiden dieser Messverfahren analysiert und Umrechnungsfunktionen bestimmt.

5.2 Russbelastung

5.2.1 Jahrgang

Die bis Dezember 2012 erhobenen Aethalometer- und MAAP-Daten wurden mit den aus Parallelmessungen ermittelten Faktoren umgerechnet (siehe Tabelle 2) und liegen nun als Konzentration EBC in PM_{2.5} vor (Einheit $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Für den Standort Dübendorf sind keine MAAP Vergleichsmessungen von EBC in PM₁ und PM_{2.5} verfügbar. Für die Umrechnung von EBC in PM₁ auf PM_{2.5} wurde deshalb der Faktor des Standortes Basel (gleicher Standorttyp) verwendet.

Diesem Umrechnungsfaktor kommt allerdings keine grosse Bedeutung zu, denn, wie bereits erwähnt, hatte der Wechsel der Vorabscheider (2011) bei den MAAP Instrumenten keinen feststellbaren Einfluss auf die Massenabsorptionsquerschnitte

Abbildung 6 zeigt den Verlauf der Russimmissionen EBC für den Zeitraum Februar 2007 bis Dezember 2012 an den Stationen Basel, Bern, Lugano, Härkingen, Magadino, Payerne, Zürich und Dübendorf. Diese Daten sind als Tagesmittelwerte dargestellt, für jede Station wurde zudem ein Jahresmittelwert über die Jahre 2011-2012 bestimmt.

An allen Stationen ist ein Jahrgang der Russimmissionen zu erkennen, Höchstwerte werden zwischen Dezember und März erreicht. Die am stärksten russbelastete Station ist Bern. Diese Station, im Stadtzentrum und an einer Hauptverkehrsstrasse gelegen, weist ein Jahresmittel von $2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf. In den Wintermonaten werden an einigen Tagen Konzentrationen von über $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Der am zweitstärksten belastete Messstandort ist die ländliche, an einer Autobahn liegende Station Härkingen. Das Jahresmittel beträgt hier $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, im Winter werden 24h-Spitzenwerte von über $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Sowohl in Bern, als auch in Härkingen wurden im Winter nur selten Konzentrationen von unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Etwas weniger aber immer noch stark belastete Messstandorte sind Lugano (im Stadtzentrum und in einer Parkanlage liegend) und Magadino (ländlich). An diesen Stationen liegen die Jahresmittel bei $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $1.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Tagesmittel erreichen in den Wintermonaten Werte von über $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in Lugano und Magadino. Auf ähnlichem Niveau liegen auch die Stationen Zürich und Dübendorf, das Jahresmittel liegt an diesen beiden Standorten bei $1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Winter werden an beiden Stationen 24h-Spitzenwerte um $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Die am wenigsten belasteten Messstandorte sind die Stationen Basel und Payerne. Die vorstädtische Station Basel und das ländliche Payerne weisen ein Jahresmittel von $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf. Im Winter liegen die maximalen Tagesmittelwerte bei etwa $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, im Sommer liegen die Konzentrationen dauerhaft unter dem Jahresmittel.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Stationen an stark befahrenen Strassen am stärksten durch Russ belastet sind. Russ aus Dieselmotoren führt hier zu einem ganzjährig hohen Immissionsniveau. An allen Stationen gibt es eine ausgeprägte saisonale Variation der Russbelastung, eine erhöhte

Belastung in den Wintermonaten ist dabei besonders auf die unterschiedliche Meteorologie zurückzuführen (Inversionswetterlagen). Dennoch legt ein Vergleich der unterschiedlichen Stationen nahe, dass auch die Emissionen aus Holzfeuerungen zur erhöhten Belastung beitragen. In den vorstädtischen und den ländlichen, weniger stark belasteten Regionen werden in den Wintermonaten bis zu vierfach zum Jahresmittel erhöhte Tageskonzentrationen erreicht. An den beiden am stärksten belasteten Stationen, Härkingen und Bern, sind die Russkonzentrationen an einzelnen Wintertagen hingegen nur etwa doppelt so hoch wie das zugehörige Jahresmittel. Diese

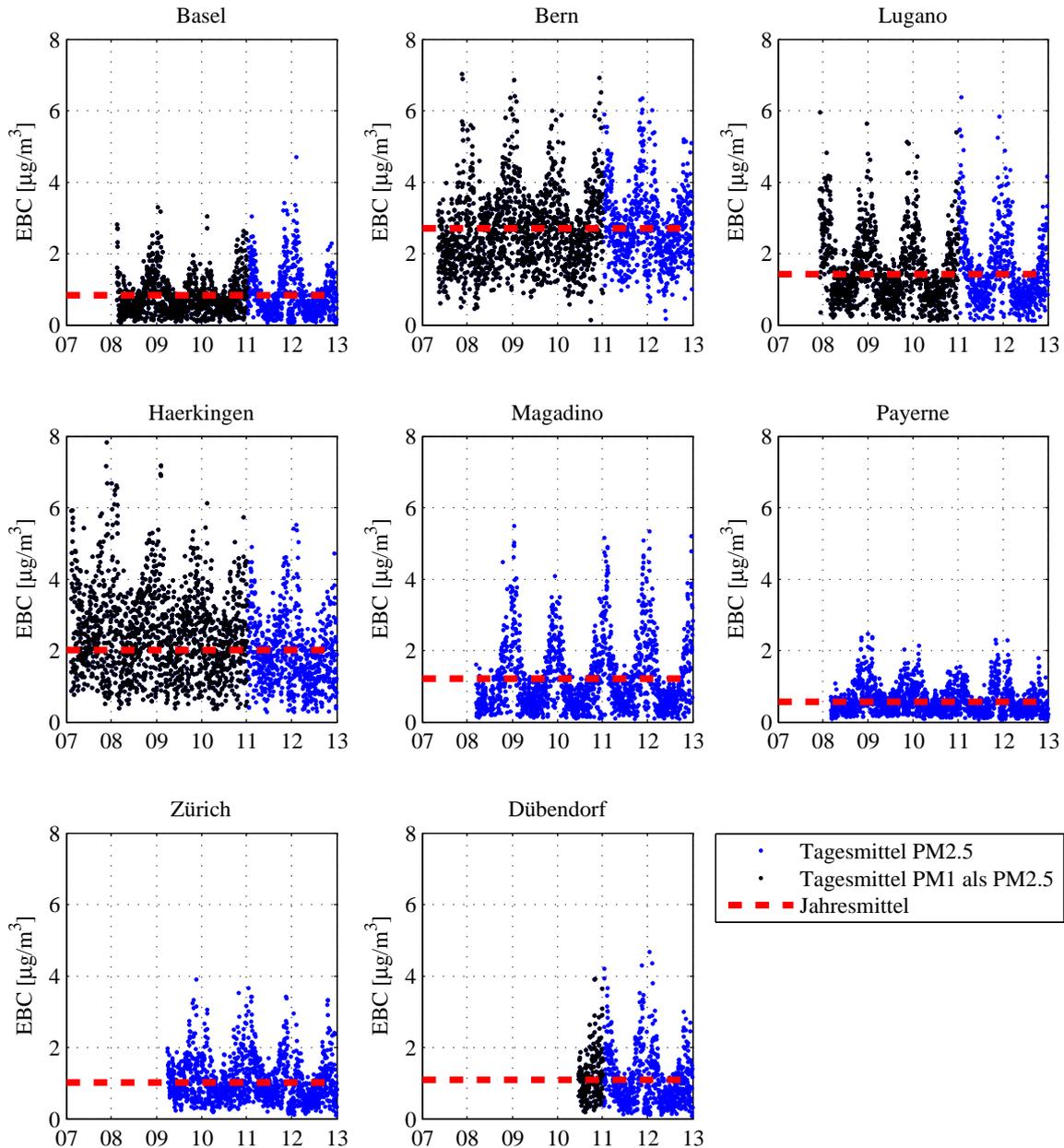


Abbildung 6: Verlauf der bisher vorliegenden Russmissionen als EC Konzentration in PM_{2.5} im Zeitraum Februar 2007 bis Dezember 2012 für die Stationen Basel, Bern, Lugano, Härkingen, Magadino, Payerne, Zürich und Dübendorf.

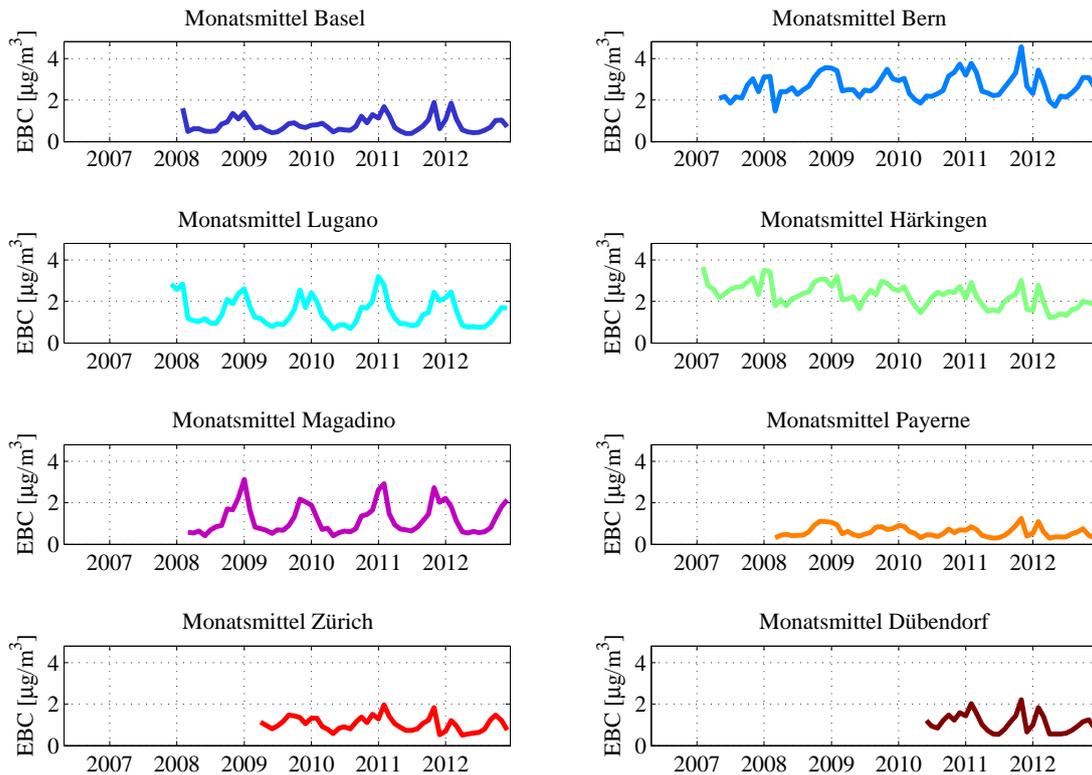


Abbildung 7: Monatsmittel der Russmissionen EBC Konzentration in PM_{2.5} im Zeitraum Februar 2007 bis Dezember 2012 an den Stationen Basel, Bern, Lugano, Härkingen, Magadino, Payerne, Zürich und Dübendorf.

Unterschiede könnten auf zusätzliche Emissionen aus Holzfeuerungen hinweisen.

5.2.2 Zeitliche Entwicklung

In Abbildung 7 sind die Monatsmittel der Russkonzentrationen für die Stationen Basel, Bern, Lugano, Härkingen, Magadino, Payerne, Zürich und Dübendorf graphisch dargestellt. In Abbildung 8 sind zudem die mehrjährigen Verläufe der EBC Jahresmittelwerte dargestellt. Figur 9

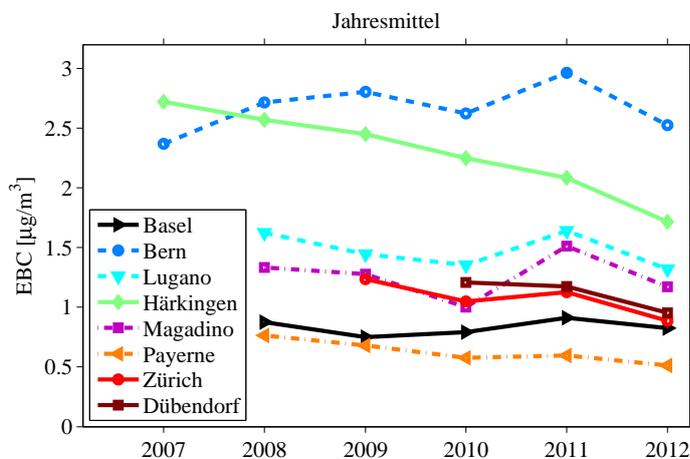


Abbildung 8: Mehrjährige Verläufe der Jahresmittelwerte von EBC in PM_{2.5}.

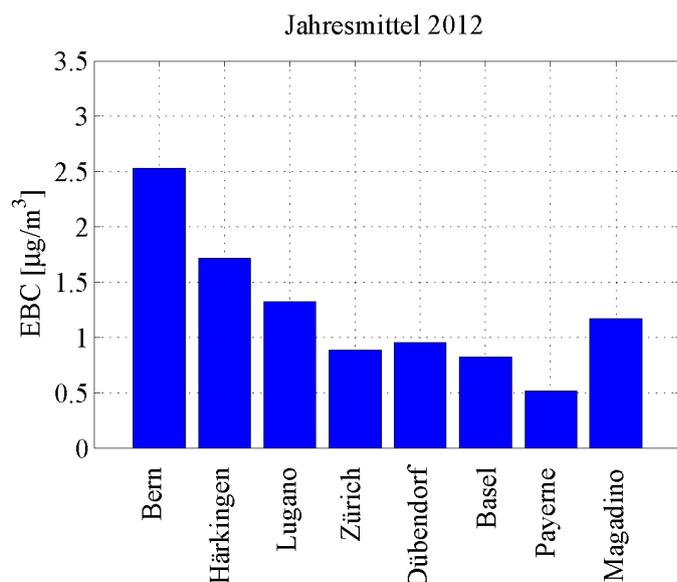


Abbildung 9: Jahresmittel von EBC in PM2.5 im Jahr 2012.

zeigt die mittleren Russkonzentrationen für das Jahr 2012. An allen Standorten mit Ausnahme von Bern und Härkingen umfassen die vorliegenden Messreihen derzeit höchstens fünf Jahre. Dieser Zeitraum ist noch zu kurz und die witterungsbedingte Variabilität der Russkonzentrationen zu gross, als dass an diesen Standorten gegenwärtig zuverlässige Aussagen zur zeitlichen Entwicklung möglich wären. An einigen Standorten deuten die Messungen auf leicht abnehmende Russbelastungen hin (Dübendorf, Lugano, Zürich, Payerne), in Magadino und Basel erscheinen dagegen die Russkonzentrationen in den letzten Jahren konstant geblieben zu sein.

Für die Standorte Bern-Bollwerk und Härkingen liegen Messungen über etwa sechs Jahre vor. An der Station Bern-Bollwerk sieht es auf den ersten Blick so aus, als seien die Russkonzentrationen in den letzten Jahren leicht angestiegen. Dieser Sachverhalt relativiert sich jedoch bei einer genaueren Analyse des Verkehrsflusses an der Station, siehe Abbildung 10. Zwischen Frühjahr 2007 und Frühjahr 2008 fanden vor der Messstation Bauarbeiten statt. Diese schränkten einerseits den PW- und LW- Verkehr stark ein, führten andererseits aber auch zu veränderten Emissionsquellen (z.B.

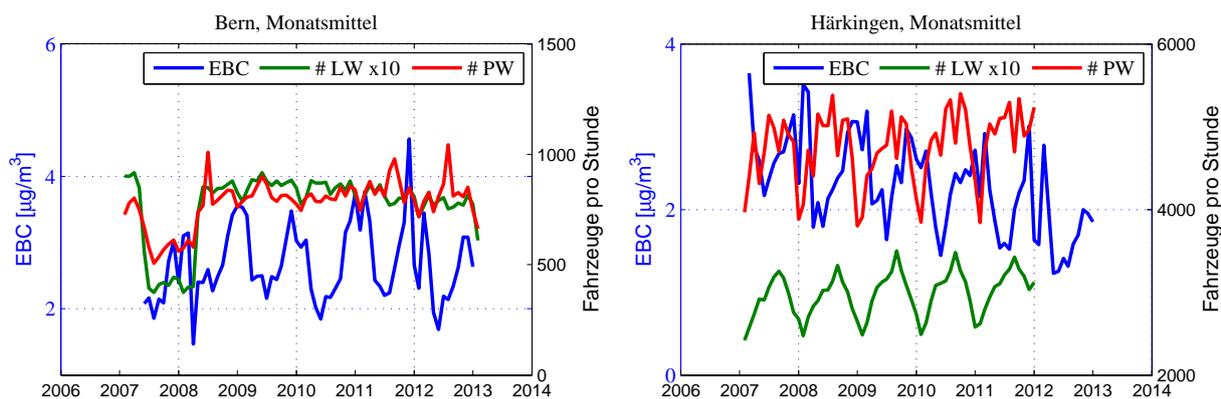


Abbildung 10: Mehrjähriger Verlauf der Russkonzentration sowie der Verkehrszahlen in Bern und Härkingen.

Baufahrzeuge). Die in Abbildung 8 gezeigten Jahresmittelwerte für 2007 und 2008 der Station Bern-Bollwerk sind daher nicht zum Vergleich geeignet und können nicht für eine Trendabschätzung hinzugezogen werden. Die übrigen vier Jahre 2009-2012 erlauben noch keine zuverlässigen Aussagen über zeitliche Veränderungen.

An der stark verkehrsbelasteten Station Härkingen lässt sich ein Trend erkennen: Hier weisen die Messwerte auf eine Abnahme der Russbelastung hin. Die Russkonzentrationen sanken in den letzten sechs Jahren um ca. 30%. Allerdings ist auch in Härkingen zu beachten, dass die Messungen der Jahre 2011 und 2012 durch Bauarbeiten beeinflusst sein könnten, die Verkehrszahlen stiegen jedoch im betrachteten Zeitraum leicht an, siehe Abbildung 10. Die sinkenden Russkonzentrationen in Härkingen können als Folge der strengeren Abgasvorschriften bei PW und LW gewertet werden.

Die im Rahmen des NABEL an den verschiedenen Standorten weitergeführten Russmessungen werden in den nächsten Jahren eine zuverlässige Unterscheidung zwischen wetterbedingter Variabilität und zeitlicher Entwicklung der Russbelastung infolge veränderter Emissionen ermöglichen.

5.2.3 Tages- und Wochengänge

Abbildung 11 zeigt den Wochengang der Russimmissionen im Winter und im Sommer am Beispiel der Stationen Härkingen, Payerne und Magadino. Dazu wurde für die Monate Dezember 2008 - Februar 2009 bzw. Juni 2009 - August 2009 ein mittlerer Wochengang berechnet, die Daten sind als Stundenmittelwerte dargestellt.

In Härkingen ist sowohl im Sommer als auch im Winter ein klarer Wochengang von EBC zu erkennen, die Konzentrationen sind am Wochenende tiefer als an Werktagen. Zudem folgen die Konzentrationen an Werktagen einem Tagesgang, die Russkonzentration am Tag ist häufig doppelt so hoch wie in der Nacht. Die höchsten Konzentrationen werden morgens und abends während den Hauptverkehrszeiten erreicht. Die maximalen Stundenmittelwerte liegen dabei im Winter und im Sommer bei ca. $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Winter beträgt die Russkonzentration nur selten weniger als $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, im Sommer sinkt sie ausserhalb der Peakzeiten auf unter $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Auch in Payerne folgen die Russkonzentrationen im Sommer und im Winter einem klarem Wochengang. Die niedrigsten Konzentrationen werden am Wochenende erreicht. Ansatzweise ist ebenfalls ein Tagesgang erkennbar. Die Konzentrationen variieren im Winter zwischen 0.5 und $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und im Sommer zwischen 0 und $0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Stundenmittel.

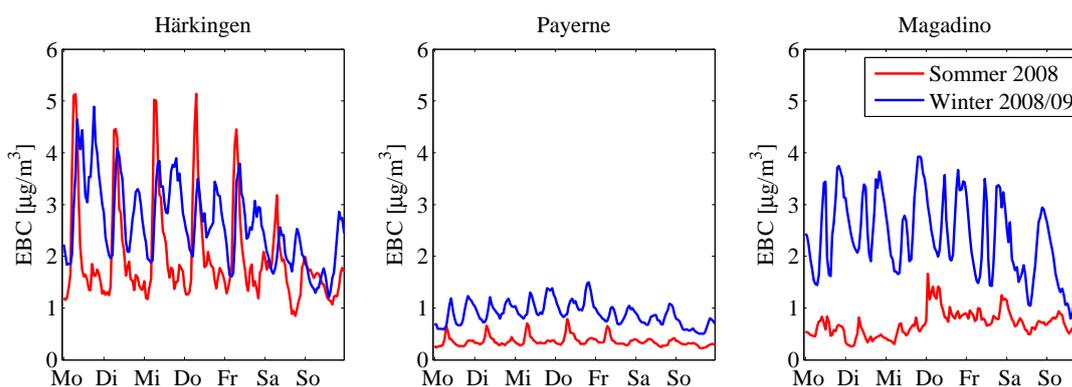


Abbildung 11: Gemittelter Wochengang der EBC Konzentrationen in PM_{2.5} im Winter und Sommer am Beispiel der Stationen Härkingen, Payerne und Magadino.

In Magadino zeigen die Russkonzentrationen im Winter einen Wochengang, auch hier sind die Konzentrationen am Wochenende leicht geringer als an den Werktagen. An den Werktagen werden die maximalen Stundenmittel zu den Hauptverkehrszeiten am Morgen und am Abend erreicht, im Winter liegen die Konzentrationen dabei über $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Sommer liegen die Russkonzentrationen zwischen 0.5 und $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Abbildung 12 zeigt Tagesgänge der Russimmissionen an Werktagen exemplarisch für die Stationen Bern, Lugano, Basel und Payerne. Die Daten sind separat für Winter- (Dezember - Februar Mittel) und Sommermonate (Juni - August Mittel) als Stundenmittelwerte dargestellt.

Spitzenkonzentrationen der Russbelastung werden an allen Stationen während der Hauptverkehrszeiten erreicht. Am verkehrsbelasteten Standort Bern treten maximale Konzentrationen von bis zu $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gleichermassen im Sommer und im Winter während der Hauptverkehrszeiten auf. An den anderen Standorten ist ein deutlicher Unterschied zwischen den Jahreszeiten gegeben, im Winter sind die Russkonzentrationen um bis zu 50% höher als im Sommer.

5.3 Russ aus Verbrennung von fossilen Brennstoffen und Holzfeuerungen

Verschiedene in der Schweiz durchgeführte Studien zeigen, dass Emissionen aus der Holzverbrennung (insbesondere zur Heizung von Wohnräumen) einen erheblichen Beitrag an der Feinstaubbelastung ausmachen [10, 11]. Es ist deshalb von Interesse die in Abschnitt 4.1 diskutierte Möglichkeit der Unterscheidung von Russ aus Holzfeuerungen und Dieselmotoren zu nutzen. Dabei wird die unterschiedliche wellenlängenabhängige Absorption der beiden Partikeltypen ausgenutzt. Russ aus Holzfeuerungen enthält z.B. verschiedene organischen Verbindungen, die verstärkt Licht mit kurzen Wellenlängen absorbieren, während Russ aus Dieselmotoren eine geringe spektrale Abhängigkeit aufweist.

Für eine Quellenzuordnung wird angenommen, dass der gesamte gemessene Russ aus Holzfeue-

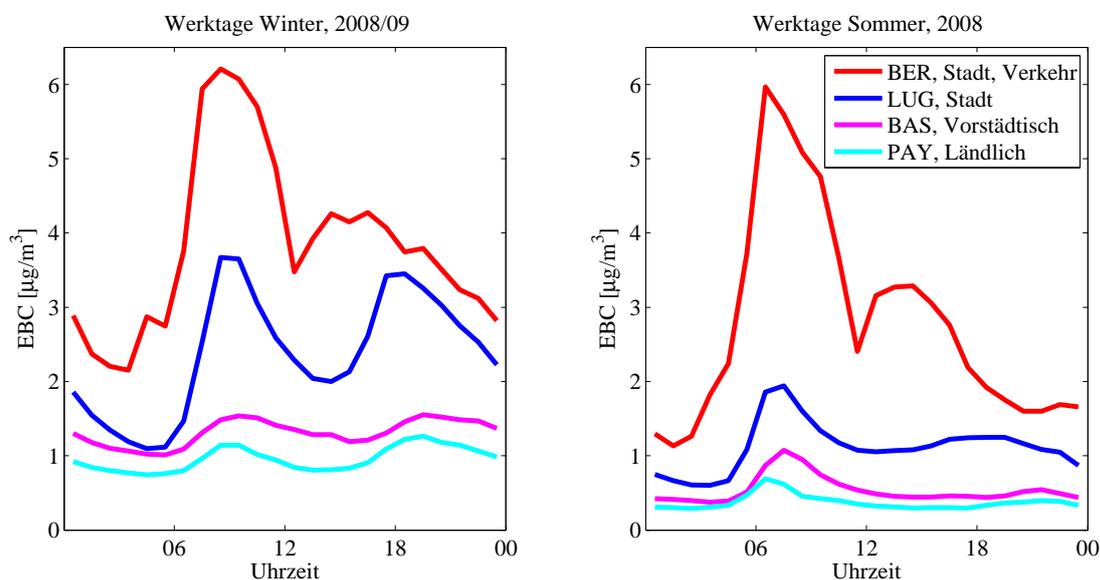


Abbildung 12: Gemittelter Tagesgang der EBC Konzentrationen an Werktagen im Winter und Sommer für vier Standorttypen.

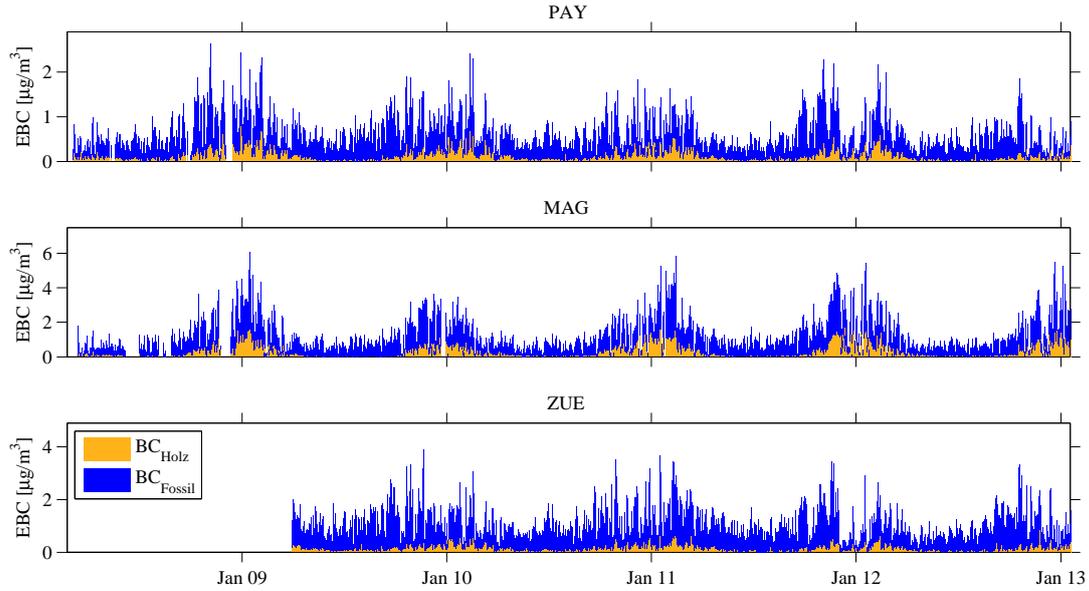


Abbildung 13: EBC_{Holz} und EBC_{Fossil} zu EBC für Payerne, Magadino und Zürich, aus [12].

rungen und Fahrzeugemissionen stammt:

$$EBC = EBC_{\text{Fossil}} + EBC_{\text{Holz}} \quad (1)$$

Entsprechend werden die mit dem Aethalometer gemessenen Absorptionen unter den verschiedenen Wellenlängen ($b_{\text{abs},\lambda}$) jeweils in einen Anteil aus Holz ($b_{\text{abs},\lambda,\text{Holz}}$) und einen aus fossilen Brennstoffen ($b_{\text{abs},\lambda,\text{Fossil}}$) zerlegt. Dieser Ansatz wurde bereits in früheren Publikationen angewendet [4, 13].

$$b_{\text{abs},\lambda} = b_{\text{abs},\lambda,\text{Fossil}} + b_{\text{abs},\lambda,\text{Holz}} \quad (2)$$

Als Wellenlängen werden $\lambda = 470 \text{ nm}$ und $\lambda = 880 \text{ nm}$ verwendet. Da $b_{\text{abs}} \propto \lambda^{-\alpha}$, kann weiterhin angenommen werden, dass

$$\frac{b_{\text{abs},470\text{nm},\text{Fossil}}}{b_{\text{abs},880\text{nm},\text{Fossil}}} = \left(\frac{470}{880}\right)^{-\alpha_{\text{Fossil}}} \quad (3)$$

$$\frac{b_{\text{abs},470\text{nm},\text{Holz}}}{b_{\text{abs},880\text{nm},\text{Holz}}} = \left(\frac{470}{880}\right)^{-\alpha_{\text{Holz}}} \quad (4)$$

α_{Fossil} und α_{Holz} sind die Angstrom-Exponenten für Russpartikel aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen, bzw. von Holz. Sie können durch Literaturwerte abgeschätzt werden (z.B. [4] und Referenzen darin). Im folgenden wurden $\alpha_{\text{Fossil}}=0.9$ und $\alpha_{\text{Holz}}=1.9$ verwendet. Für die bisher vorliegenden Aethalometerdaten wurde anhand der Formeln 1-3 für jeden der Messstandorte $b_{\text{abs},880\text{nm},\text{Holz}}$ und $b_{\text{abs},880\text{nm},\text{Fossil}}$ bestimmt. Die Absorptionen wurden direkt in EBC_{Holz} und EBC_{Fossil} umgerechnet, siehe [12].

In Abbildung 13 sind EBC_{Holz} und EBC_{Fossil} zu EBC für Payerne, Magadino und Zürich als Tagesmittelwerte dargestellt. In Tabelle 5 sind die Anteile von EBC_{Holz} und EBC_{Fossil} zudem tabellarisch als Mittelwerte für die Sommermonate Juni, Juli und August, sowie für die Winter-

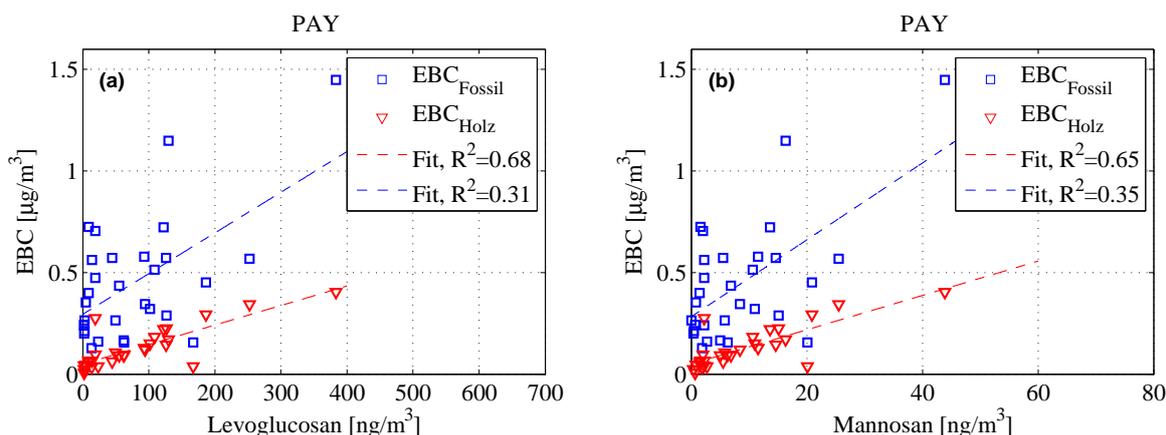


Abbildung 14: Korrelation zwischen EBC und Levoglucosan (a) bzw. Mannosan (b) in Payerne.

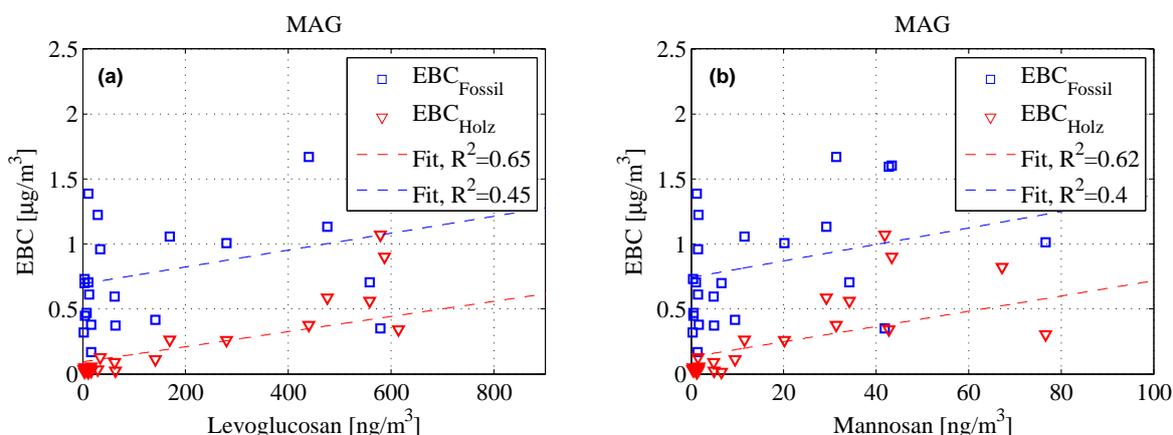


Abbildung 15: Korrelation zwischen EBC und Levoglucosan (a) bzw. Mannosan (b) in Magadino.

monate Dezember, Januar und Februar während der Zeit von 2008-2012 angegeben.

An allen Stationen ist ein deutlicher saisonaler Unterschied in der Russzusammensetzung zu erkennen. Während im Sommer nur 6-10% des Russanteils aus Holzfeuerungen stammen, sind es im Winter 23-36%. Im Winter ist der Beitrag von Holzfeuerungen zum gesamten EBC bedeutend, besonders unter der Berücksichtigung, dass 2008 die Verwendung von Holz als Energiequelle laut dem Bundesamt für Energie nur 3,8% des schweizerischen Endenergieverbrauchs deckte [14].

Vergleiche mit Messungen von Markern für Holzverbrennung erlauben es, die Güte der Quel-

Station	Jahreszeit	EBC	EBC_{Holz}/EBC	EBC_{Fossil}/EBC
Payerne	Sommer	$0.42 \mu\text{g}/\text{m}^3$	10%	90%
Payerne	Winter	$0.72 \mu\text{g}/\text{m}^3$	34%	66%
Magadino	Sommer	$0.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$	6%	94%
Magadino	Winter	$2.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$	36%	64%
Zürich	Sommer	$0.81 \mu\text{g}/\text{m}^3$	8%	92%
Zürich	Winter	$1.10 \mu\text{g}/\text{m}^3$	23%	77%

Tabelle 5: Mittlere Beiträge aus der Verbrennung von Holz und von fossilen Brennstoffen an der gesamten Russbelastung, 2008-2012 (Sommer: JJA, Winter: DJF).

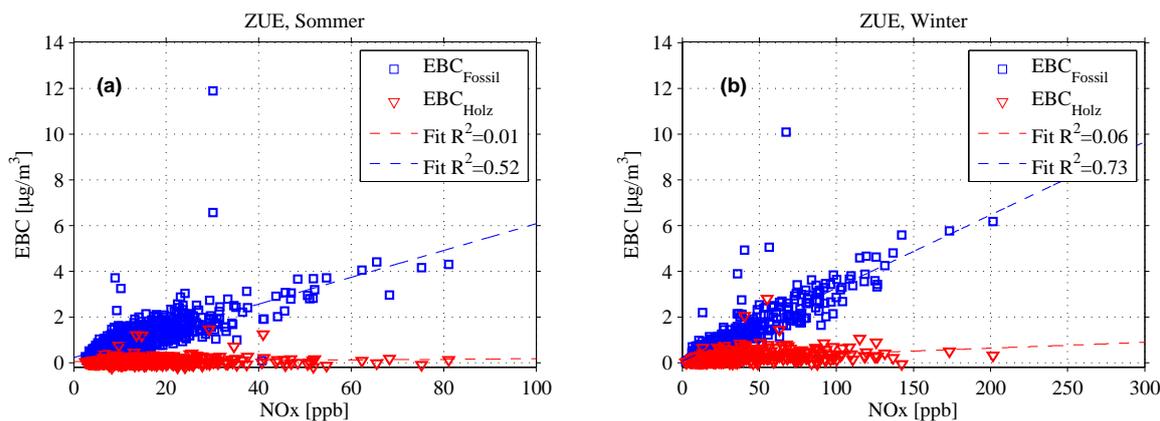


Abbildung 16: Korrelation zwischen EBC und NO_x in Zürich, im Sommer (a) und im Winter (b).

lenzuordnung zu überprüfen. Für die Station Payerne wurden zwischen August 2008 und Juli 2009 PM10 Filter auf Levoglucosan und Mannosan analysiert. Dabei liegen Messdaten für jeden zwölften Tag der Messperiode vor. Levoglucosan und Mannosan werden bei der Verbrennung von Zellulose freigesetzt und sind spezifische Marker für Emissionen aus Holzverbrennungsprozessen. Idealerweise sollte eine Korrelation zwischen Levoglucosan (bzw. Mannosan) und EBC_{Holz} bestehen, nicht aber zwischen Levoglucosan (bzw. Mannosan) und $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$. Abbildung 14a zeigt die EBC-Konzentration als Funktion von Levoglucosan. Tatsächlich zeigt das Bestimmtheitsmass mit $R^2=0.68$ eine gute Korrelation zwischen Levoglucosan und EBC_{Holz} , während Levoglucosan und $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$ kaum korreliert sind. In Abbildung 14b ist analog zu Abbildung 14a Mannosan aus Payerne vergleichend mit EBC_{Holz} und $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$ dargestellt. Es liegt eine gute Korrelation zwischen Mannosan und EBC_{Holz} vor, das Bestimmtheitsmass ist $R^2=0.65$. Ähnliches zeigen die Abbildungen 15a und 15b für die Station Magadino. Auch hier liegen gute Korrelationen zwischen EBC_{Holz} und Levoglucosan ($R^2=0.65$) bzw. Mannosan ($R^2=0.62$) vor während die Korrelation von $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$ deutlich geringer ist.

Analog kann die Güte der Quellenzuordnung auch mit Tracern für fossile Brennstoffe überprüft werden. Im städtischen Zürich eignen sich dafür die Stickoxide ($\text{NO}_x=\text{NO}_2+\text{NO}$), da diese hoch mit Russ korrelieren. Abbildung 16 zeigt den Zusammenhang zwischen EBC_{Holz} sowie $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$ und NO_x im Sommer (a) und im Winter (b). In beiden Jahreszeiten liegt eine gute Korrelation zwischen $\text{EBC}_{\text{Fossil}}$ und NO_x vor, das Bestimmtheitsmass ist $R^2=0.60$ (Sommer) und $R^2=0.83$ (Winter). EBC_{Holz} und NO_x sind dagegen nicht korreliert.

6 Ausblick

Wie in diesem Bericht beschrieben wurden von 2007 bis 2012 Russmessungen sowohl in PM1 als auch in PM2.5 durchgeführt. Anfang 2011 wurden die Messungen vereinheitlicht, und die Russkonzentrationen werden seither an allen Stationen in PM2.5 bestimmt. In einer Übergangsphase wurden Vergleichsmessungen zwischen den beiden Grössenfraktionen durchgeführt. Dank den daraus abgeleiteten Korrekturfaktoren ist nun für den ganzen Zeitraum ein homogener Datensatz für EBC in PM2.5 verfügbar. Die Russmessungen werden an allen Stationen weitergeführt, zusätzlich wurden Anfang 2013 Russmessungen an der ländlichen und erhöht gelegenen Messstation Rigi-Seebodenalp aufgenommen. Diese Messungen decken eine weitere typische Belastungssituation

ab, so dass die Russmessungen im NABEL ein umfassendes Bild über die Russbelastung in der Schweiz sowie deren zeitlicher Entwicklung ermöglichen.

Literatur

- [1] Eidg. Kommission für Lufthygiene (EKL). Feinstaub in der Schweiz. *Statusbericht*, 2008, Download unter: www.bafu.admin.ch/publikationen/00016/.
- [2] A. Petzold, J.A. Ogren, M. Fiebig, P. Laj, S.-M. Li, U. Baltensperger, T. Holzer-Popp, S. Kinne, G. Pappalardo, N. Sugimoto, C. Wehrli, A. Wiedensohler, and X.-Y. Zhang. Recommendations for the interpretation of "black carbon" measurements. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13:9485–9517, 2013.
- [3] U. Pöschl. Atmosphärische Aerosole: Zusammensetzung, Transformation, Klima- und Gesundheitseffekte. *Angew. Chem.*, 117, 2005.
- [4] J. Sandradewi, A.S.H. Prevot, S. Szidat, N. Perron, R. M. Alfarra, V. Lanz, E. Weingartner, and U. Baltensperger. Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter. *Environmental Science & Technology*, 42, 2008.
- [5] E. Weingartner, H. Saathoff, M. Schnaiter, N. Streit, B. Bitnar, and U. Baltensperger. Absorption of Light by Soot Particles: Determination of the Absorption Coefficient by Means of Aethalometers. *J. Aerosol Sci.*, 34, 2003.
- [6] A. Petzold and M. Schönlinner. Multi-angle photometry - a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon. *J. Aerosol Sci.*, 35:421–441, 2004.
- [7] F. Cavalli, M. Viana, K. E. Yttri, J. Genberg, and J.-P. Putaud. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EU-SAAR protocol. *Atmos. Meas. Tech.*, 3:79–89, 2010.
- [8] Astra. PM10-Emissionsfaktoren von Abriebspartikeln des Strassenverkehrs (APART). Bundesamt für Strassen (Bern). 2009, Download unter http://www.empa.ch/plugin/template/empa/700/*/?/l=1.
- [9] C. Hueglin, M. Gianini, and R. Gehrig. Chemische Zusammensetzung und Quellen von Feinstaub. Untersuchungen an ausgewählten NABEL-Standorten. Projektbericht im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU). 2012, Verfügbar unter: <http://www.bafu.admin.ch/luft>.
- [10] V. A. Lanz, M. R. Alfarra, U. Baltensperger, B. Buchmann, C. Hueglin, S. Szidat, M. N. Wehrli, Wacker L., S. Weimer, A. Caseiro, H. Puxbaum, and A. S. H. Prevot. Source attribution of submicron organic aerosols during wintertime inversions by advanced factor analysis of aerosol mass spectra. *Environ. Sci. Technol.*, 42:214–220, 2008.
- [11] S. Szidat, A. S. H. Prévôt, J. Sandradewi, M. R. Alfarra, H.-A. Synal, L. Wacker, and U. Baltensperger. Dominant impact of residential wood burning on particulate matter in Alpine valleys during winter. *Geophys. Res. Lett.*, 34, 2007.
- [12] H. Herich, C. Hueglin, and B. Buchmann. A two year's source apportionment study of wood burning and traffic aerosols for urban and rural sites in Switzerland. *Atmos. Meas. Tech.*, 4:1409–1420, 2011.
- [13] O. Favez, H. Cachier, J. Sciare, R. Sarda-Estève, and L. Martinon. Evidence for a significant contribution of wood burning aerosols to PM_{2.5} during the winter season in Paris, France. *Atmospheric Environment*, 43:3640–3644, 2009.

[14] Bundesamt für Energie BFE Bern. Schweizerische Statistik der erneuerbaren Energien. 2008.