NFP41 Verkehr und Umwelt

Projekt C4:

Anteil des Strassenverkehrs an den PM10- und PM2.5-Immissionen

Chemische Zusammensetzung des Feinstaubes und Quellenzuordnung mit einem Rezeptormodell

---

Christoph Hüglin, EMPA Dübendorf

Dübendorf, 31. Juli 2000

Kurzfassung

Das Ziel der folgenden Kurzfassung ist es, einen immer noch relativ ausführlichen, aber von technischen Einzelheiten und methodischen Details unbelasteten Überblick über das Konzept und die wesentlichen Resultate der vorliegenden Studie zu vermitteln. Anhand der in Klammern kursiv angegebenen Hinweise auf die Kapitelnummern des ausführlichen Projektberichts ist es jederzeit möglich, gezielt zu den detaillierten Darstellungen und Diskussionen zu gelangen und auch die weiterführenden Literaturzitate zu finden.

Das Wichtigste auf einen Blick

Hauptziel der vorliegenden Studie war die quantitative Ermittlung des Beitrags des Strassenverkehrs zu den PM10- und PM2.5-Immissionen an ausgewählten Standorten, die für die Schweiz wichtige Belastungssituationen repräsentieren. Zu diesem Zweck wurde die chemische Zusammensetzung der Schwebestäube detailliert analysiert und mit Methoden der multivariaten Statistik (Rezeptormodell) die Einflussfaktoren (Quellen) bestimmt. Durch einen Vergleich paralleler, zeitlich hochaufgelöster Messungen an einer stark befahrenen Strasse mit Messungen der städtischen Hintergrundsbelastung konnte auch der Anteil des Schwerverkehrs an den Feinstaubimmissionen ermittelt werden.

Es zeigte sich, dass PM10-Feinstaub an mässig belasteten Standorten in Städten und Agglomerationen etwa je zu einem Drittel aus kohlenstoffhaltigen Partikeln (Russ, organische Verbindungen), sekundären anorganischen Schwebestäuben[1] (Sulfat, Nitrat, Ammonium) sowie Mineralien und Feuchtigkeit bestehen.

Für die Anteile des Strassenverkehrs (inkl. der verkehrsbedingten Anteile an sekundären Schwebestäuben und eines an diesen Standorten eher geringen Anteils an Offroad-Immissionen) an den PM10- und PM2.5-Immissionen wurden folgende Resultate erhalten:

Tab. K1: Mittlere jährliche Strassenverkehrsbeiträge zur Schwebestaubkonzentration an unterschiedlich belasteten Standorten.

Messstelle	Messgrösse	Belastungstyp	PM Messung ($\mu g/m^3$)	PM Modell ($\mu g/m^3$)	Mittlerer Beitrag des Strassenverkehrs ($\mu g/m^3$)	(%)
Basel	PM10	Agglomeration	25.0	26.9	9.5	35.3
Bern	PM10	Stadt, an Strasse	39.6	41.1	18.9	45.7
Zürich	PM10	Stadt, in Park	24.5	25.8	8.6	33.3
Wiedikon[a]	PM10	Stadt, an Strasse	42.6	42.6	26.8	62.9
Bern	PM2.5	Stadt, an Strasse	24.1	25.0	9.2	36.8
Zürich	PM2.5	Stadt, in Park	20.7	20.8	5.4	26.0

[a] Angegebene Werte sind keine Jahresmittel, sondern wurden aus zwei Messkampagnen im Juli/August 1998 und Januar/Februar 1999 bestimmt.

Eine Unterteilung dieser Beiträge nach direkten Auspuffemissionen und Abriebs-/Aufwirbelungsemissionen kann nicht vorgenommen werden. Spezifische Traceranalysen zeigen aber, dass Reifenabrieb, ausser direkt an Strassenrändern, quantitativ eine untergeordnete Rolle spielt. Die ergänzenden Vergleichsmessungen in Zürich zeigen hingegen die grosse Bedeutung des Schwerverkehrs. Bei einem Anteil schwerer Lastwagen von 8% am gesamten Verkehrs-

[1] sogenannten sekundären anorganischen Aerosolen.

aufkommen resultierte ein Anteil von rund 50% an den primären PM10-Strassenverkehrs-emissionen an dieser Messstelle. Ein summarischer Überblick über die Beiträge der verschiedenen Quellen, resp. Quellengruppen zu den Feinstaubimmissionen ergibt folgendes Bild:

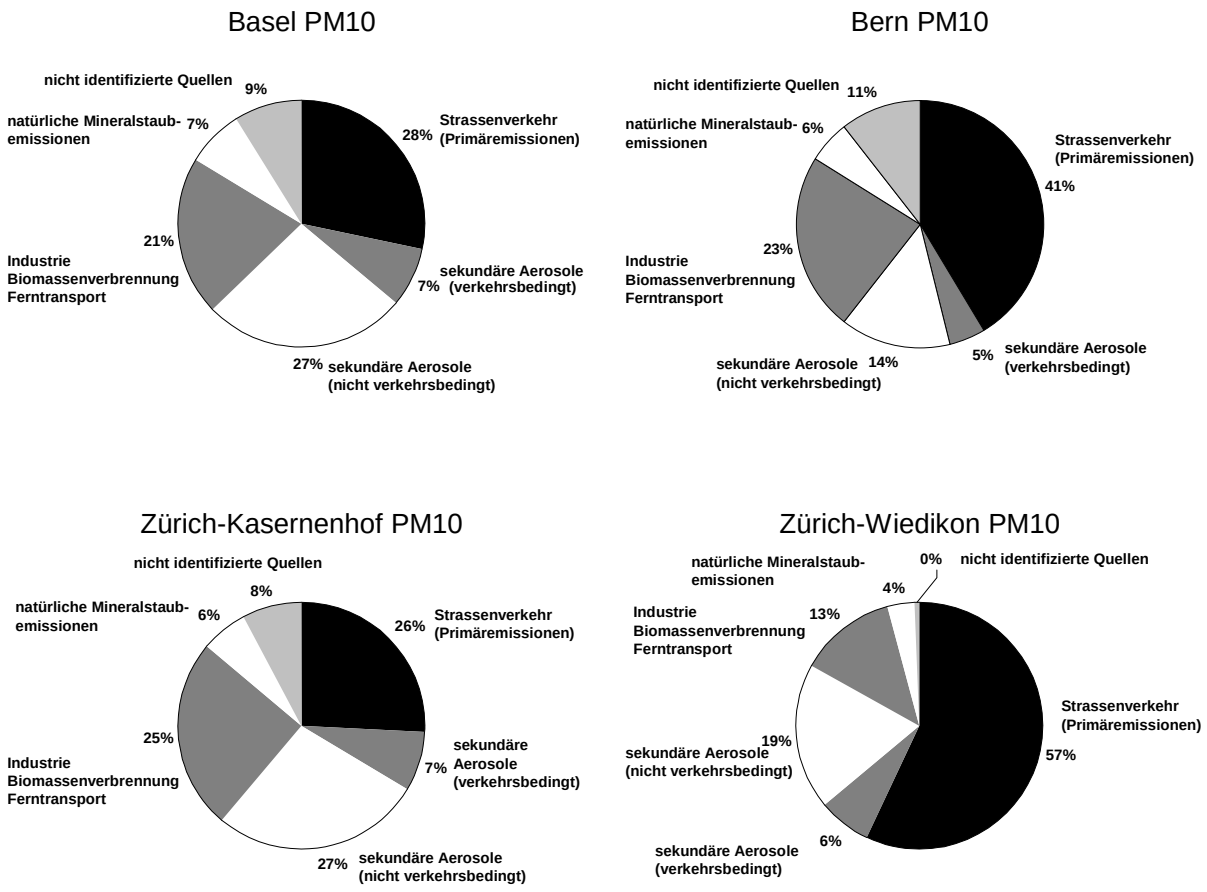

Abb. K1: Beiträge der verschiedenen Quellen, resp. Quellengruppen zu den PM10-Immissionen an unterschiedlich belasteten Standorten.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass an nicht direkt verkehrsexponierten Standorten in Städten oder städtischen Agglomerationen etwa 30-40% der PM10-Immissionen durch den Strassenverkehr verursacht werden. Im nahen Einflussbereich sehr stark befahrener städtischer Strassen kann sich dieser Anteil auf 45-65% erhöhen. Diese Ergebnisse stehen in guter Übereinstimmung mit methodisch unabhängig erhaltenen Resultaten von Ausbreitungs-modellen.

K1 Problemstellung und Zielsetzung

Die Ergebnisse einer Reihe von neueren epidemiologischen Studien weisen darauf hin, dass erhöhte Feinstaubbelastungen in der Aussenluft gesundheitliche Schädigungen beim Menschen bewirken können. Diesen Erkenntnissen wurde bei der letzten Revision der schweizerischen Luftreinhalteverordnung (LRV) durch die Einführung von neuen Immissionsgrenzwerten für PM10[2] Rechnung getragen. Aus den Messungen des Nationalen Beobachtungsnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL) geht hervor, dass diese Grenzwerte in weiten Teilen der Schweiz nicht eingehalten werden können.

Neuerdings nimmt das Interesse an der noch feineren Schwebestaubfraktion PM2.5 zu. Zwar existieren für PM2.5 heute in der Schweiz keine Grenzwerte, doch scheint dieser Schadstoffparameter einen noch klareren Zusammenhang mit negativen gesundheitlichen Wirkungen aufzuweisen.

Um wirksame Minderungsmassnahmen entwickeln zu können, ist es notwendig, dass die Emissionsquellen, sowie deren mittlere Beiträge zu den Immissionen, bekannt sind. Für die Schweiz sind die Quellen von PM10 und PM2.5 bisher noch ungenügend erfasst und quantifiziert worden. Es war daher das Ziel der vorliegenden Studie, die wesentlichen Verursacher von feinen Schwebestäuben zu identifizieren und deren Anteile an den PM10- und PM2.5-Immissionen zu bestimmen. Die im NABEL gemessenen erhöhten Feinstaubbelastungen in Strassennähe zeigen, dass der Strassenverkehr in der Schweiz eine wichtige Quelle für feine atmosphärische Schwebestäube darstellt. Die gesamten Schwebestaubemissionen des Strassenverkehrs setzen sich aus unterschiedlichen Beiträgen zusammen: Einerseits werden aus dem Auspuff sowohl primäre Partikel als auch gasförmige Vorläufersubstanzen von sekundären Schwebestäuben emittiert. Andererseits trägt der Strassenverkehr durch Resuspension von Abriebspartikeln (Strassenstaub, Reifen- und Bremsabrieb, etc.) zur Feinstaubbelastung bei.

Die vorliegende Studie befasste sich hauptsächlich mit der chemischen Charakterisierung der PM10- und PM2.5-Immissionen sowie deren Zuordnung zu bestimmten Quellen und Quellengruppen. Entsprechend der Zielsetzung wurde der mittlere Beitrag des Strassenverkehrs besonders detailliert untersucht.

Die Messtechnik für die sehr komplex zusammengesetzten Schwebestäube ist anspruchsvoll. Bei konventionellen Sammelmethoden, wie bei dem im Rahmen dieser Studie verwendeten manuellen gravimetrischen Verfahren, kann es zum Verlust von Anteilen der leichter flüchtigen Verbindungen während der Probenahme, der Lagerung oder Konditionierung kommen. Dies betrifft insbesondere Verbindungen wie Ammoniumnitrat, organischen Kohlenstoff und adsorbiertes Wasser. Andererseits können gasförmige Verbindungen auf dem Filter angelagert werden, was zu einer Erhöhung der Filtermasse führt. Quantitativ fällt dieser Effekt allerdings weniger ins Gewicht als die erwähnten Verluste. Wissenschaftlich gesehen sind diese Artefakte eher unbefriedigend. Für die hauptsächlichen Fragestellungen der vorliegenden Studie ist das Problem allerdings nicht relevant, da sowohl den epidemiologischen Studien, als auch den darauf basierenden PM10-Grenzwerten Messungen mit denselben artefaktbehafteten Sammelmethoden zugrunde liegen.

[2] Massenkonzentration von Schwebestäuben mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner als 10µm.

K2 Methode der Quellenzuordnung mit Rezeptormodellen

Das Hauptziel der vorliegenden Studie, die Quellenzuordnung der Feinstaubimmissionen, wurde mit einem Rezeptormodell angegangen. Bei Rezeptormodellen werden als Inputdaten detaillierte Messungen der chemischen Zusammensetzung des Schwebestaubs an einer bestimmten Messstelle (Rezeptor) benötigt. Von Interesse sind besonders solche Inhaltsstoffe, welche für bestimmte Emissionsquellen möglichst spezifisch sind, oder deren zeitliche Emissionsverläufe sich zumindest von denen anderer Quellen unterscheiden und welche somit Rückschlüsse auf Beiträge dieser Emissionsquellen ermöglichen (Indikatorvariablen). Für die Anwendung von Rezeptormodellen werden keine detaillierten Emissionsdaten benötigt. Als Resultat liefern Rezeptormodelle empirische Beziehungen zwischen Immissionsdaten an der gewählten Messstelle und den Schwebestaubemissionen von bedeutenden Quellen und Quellengruppen (*1.2; 1.3; 3.1; Anhang A*3).

K3 Umfang der Messungen und Messmethoden

Für eine erfolgreiche Anwendung von Rezeptormodellen zur Identifikation der Emissionsquellen von Schwebestäuben wird eine ausreichend grosse Anzahl von Messungen geeigneter Inhaltsstoffe (Indikatorvariablen) benötigt. Im Rahmen der vorliegenden Studie wurden PM10- und PM2.5-Proben von den verschiedenen Messstellen möglichst umfassend chemisch charakterisiert.

Folgende Analysen wurden durchgeführt (in Klammern wird die verwendete analytische Methode angegeben. Diese werden in Kapitel *2.1* und *2.2* näher erläutert):

- Wasserlösliche anorganische Ionen NH_4^+, NO_3^-, SO_4^{2-}, Na^+, K^+, Mg^{2+}, Cl^- (Ionenchromatographie). Die Summe der Konzentrationen von NH_4^+, NO_3^- und SO_4^{2-} repräsentiert die sekundäre anorganische Schwebestaubfraktion.
- Elementarer und organischer Kohlenstoff EC und OC (Coulometrische Kohlenstoffbestimmung).
- Spurenelemente Al, As, Ba, Br, Ca, Ce, Cd, Cu, Fe, Ga, K, La, Mg, Mn, Mo, Nd, Ni, Pb, Rh, Sb, Se, Tl, V, Y (Plasma-Massen Spektrometrie, ICP-MS).
- Polyzyklische aromatische Verbindungen (Laser Two-Step Mass Spectrometry, L2MS) *(2.3.4)*.
- Biologische Partikel (Bio-Assays, Mikroskopie)
- Reifenabrieb (GC-MS)

Ergänzend zu den Untersuchungen mittels Rezeptormodellierung wurden Zusatzmessungen an den verkehrsbelasteten Standorten in Zürich-Wiedikon und an der Autobahn A1 (NABEL-Station Härkingen) durchgeführt. Aus diesen Zusatzmessungen wurde einerseits der Beitrag des lokalen Strassenverkehrs an der PM10-Belastung bestimmt. Andererseits konnten Informationen über die Aufteilung der Strassenverkehrsbeitrages auf den Personen- und Güterverkehr gewonnen werden *(6.1, 6.2)*.

K4 Ausgewählte Messstationen und Probenahme

Die Probenahmen erfolgten im Rahmen der Schwebestaubmessungen des Nationalen Beobachtungsnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL). Während der Zeit vom 01.02.98 bis zum 31.03.99 wurden an den NABEL-Messstationen Basel, Bern, Chaumont und Zürich-Kasernenhof eine grössere Anzahl von PM10- und PM2.5-Tagesproben umfassend chemisch charakterisiert. Die genannten Messstationen wurden aufgrund ihrer unterschiedlichen, in der Schweiz häufig vorkommenden Belastungssituationen ausgewählt (Tabelle K2).

Während zweier Messkampagnen im Juli und August 1998, sowie im Januar und Februar 1999 wurden zudem PM10-Proben von einer extrem verkehrsbelasteten Messstelle des Amtes für Gesundheit und Umwelt der Stadt Zürich in Zürich-Wiedikon gesammelt und analysiert.

Ergänzend wurden im Frühjahr und Herbst 1999 einige PM10-Proben von der NABEL-Messstation in Payerne bezüglich der chemischen Zusammensetzung untersucht. Payerne ist ein ländlicher Standort des Mittellandes und repräsentiert eine weitere, in der Schweiz wichtige Belastungssituation.

Tab. K2: Übersicht über die untersuchten Standorte

Messstelle	Typ	Messgrösse	Anzahl Proben
Basel	Agglomeration	PM10/PM2.5	120/82
Bern	Stadtzentrum, an Strasse	PM10/PM2.5	120/82
Chaumont	Ländlich, oberhalb 1000 m ü. M.	PM10/PM2.5	120/82
Zürich-Kasernenhof	Stadtzentrum, in Park	PM10/PM2.5	121/85
Zürich-Wiedikon	Stadtzentrum, an Strasse	PM10	59
Payerne	Ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.	PM10	17

Für die Probenahme wurden High-Volume Sammler (Digitel DHA-80) mit grössenselektivem Einlass (PM10- bzw. PM2.5- Impaktor) verwendet. Während 24h wurden 720m^3 Aussenluft durch bindemittelfreie Quarzfaserfilter (Schleicher und Schuell QF20, 150mm Durchmesser) gesaugt. Die gewählte Sammelmethode entspricht dem Referenzverfahren zur Bestimmung der PM10-Belastung der Aussenluft nach EN 12341.

K5 Chemische Zusammensetzung der Schwebestäube

K5.1 Analysierte Inhaltsstoffe und Massenbilanz

Mit dem oben erwähnten Messprogramm wurden alle Komponenten, die wesentlich zur Masse des Schwebestaubs beitragen, erfasst (*2.3.1*). Die Summe aller analysierten Komponenten sollte deshalb im Idealfall der gravimetrisch bestimmten Masse entsprechen.

Die Tabelle K3 gibt einen Überblick über die Zusammensetzung der untersuchten Schwebestaubproben an den einzelnen Stationen. Die Abbildung K2 veranschaulicht die Zusammensetzung von PM10 und PM2.5 bezüglich der wichtigsten Komponenten.

Tab. K3: Mittlere chemische Zusammensetzung von PM10 und PM2.5 an den untersuchten Messstellen. Bis auf Zürich-Wiedikon und Payerne sind Jahresmittelwerte angegeben (Tagesproben vom 01.04.98-31.03.99), alle Angaben in µg/m^3.

Standort	PM grav.	NH_4^+	NO_3^-	SO_4^{2-}	EC	OM	Mineral-staub	Spuren-elemente	Anteil Unident.[d]
Basel PM10	24.0	1.9	3.1	3.9	1.9	4.7	2.0	1.0	5.5
Bern PM10	39.7	1.4	3.3	3.3	5.6	8.9	6.7	2.1	8.4
Chaumont PM10	10.1	0.8	0.8	2.0	0.6	1.7	1.3	0.4	2.6
Zürich-Kasernenhof PM10	24.1	2.0	3.3	3.7	2.0	5.0	2.2	0.7	5.4
Zürich-Wiedikon PM10[a]	43.0	2.6	4.7	4.2	7.7	9.0	4.9	2.4	7.6
Payerne PM10[b]	13.6	1.0	1.1	2.2	1.3	3.4	1.7	0.5	2.4
Basel PM2.5[c]	17.7	1.9	2.5	3.8	1.5	4.0	1.0	0.6	2.4
Bern PM2.5[c]	22.0	1.4	2.3	2.7	3.8	6.5	0.9	0.5	3.8
Chaumont PM2.5[c]	8.4	0.9	0.5	2.4	0.4	1.7	0.6	0.3	1.6
Zürich-Kasernenhof PM2.5[c]	18.6	1.9	2.7	3.3	1.6	4.4	0.9	0.4	3.5

[a] Mittelwert aus 59 Tagesproben von zwei Messkampagnen im Juli/August 1998 und Januar/Februar 1999.
[b] Mittelwert aus insgesamt 17 Tagesproben von Mai-Juli 1998 und September-November 1998.
[c] Jahresmittelwert. Während April bis Juli drei Tagesproben pro Monat, sonst acht bis neun Tagesproben pro Monat. Die Proben der Monate April bis Juli wurden daher mit einem Faktor 3 gewichtet.
[d] Näheres siehe K5.2

K5.2 Wassergehalt und biologische Partikel

Bei dem in der letzten Kolonne von Tabelle K2 ausgewiesenen unidentifizierten Anteil handelt es sich zu einem grossen Teil um den Feuchtigkeitsgehalt des Schwebestaubs, der bei der gravimetrischen Bestimmung mitgewogen wird, jedoch im Analysenprogramm nicht separat quantifiziert wird, sowie um biologische Partikel, die mit dem gewählten Verfahren zur Analyse kohlenstoffhaltiger Partikel nicht immer quantitativ erfasst werden. So ergaben stichprobenweise quantitative Feuchtigkeitsanalysen der gesammelten Schwebestaubproben einen durchschnittlichen Wassergehalt von 16% in der warmen Jahreszeit sowie von 6 % in der kalten Jahreszeit *(2.3.2)*.

Spezifische Analysen des Anteils biologischer Partikel am Schwebestaub erwiesen sich als ausserordentlich schwierig. Die eingesetzten Methoden erlaubten keine klaren Quantifizierungen. Der Bradford-Assay hatte eine zu hohe Nachweisgrenze, die Proteingehalte aller untersuchten Proben lagen darunter. Aus der bekannten Nachweisgrenze und der Annahme eines mittleren Proteingehaltes von biologischen Partikeln lässt sich deshalb lediglich feststellen, dass die Konzentration biologischer Partikel in den untersuchten Stichproben stets unterhalb von 3.5 µg/m^3 lag.

Mikroskopische Analysen einer beschränkten Anzahl von Proben (8 Proben pro Station) zeigten aber klar das Vorhandensein biologischer Partikel. Der jahreszeitliche Verlauf der Anzahl der gefundenen biologischen Partikel wies wie erwartet höhere Werte während der Vegetationsperiode auf. Umrechnungen von Partikelzahlen in Massen sind generell schwierig und unsicher, da viele nicht genau überprüfbare Annahmen über Form und Dichte der Teilchen gemacht werden müssen. Eine grobe Abschätzung ergab eine mittlere Massenkonzentration biologischer Partikel von etwa 1–1.5 µg/m^3 , der höchste Einzelwert erreichte etwa 6 µg/m^3 *(2.3.3)*.

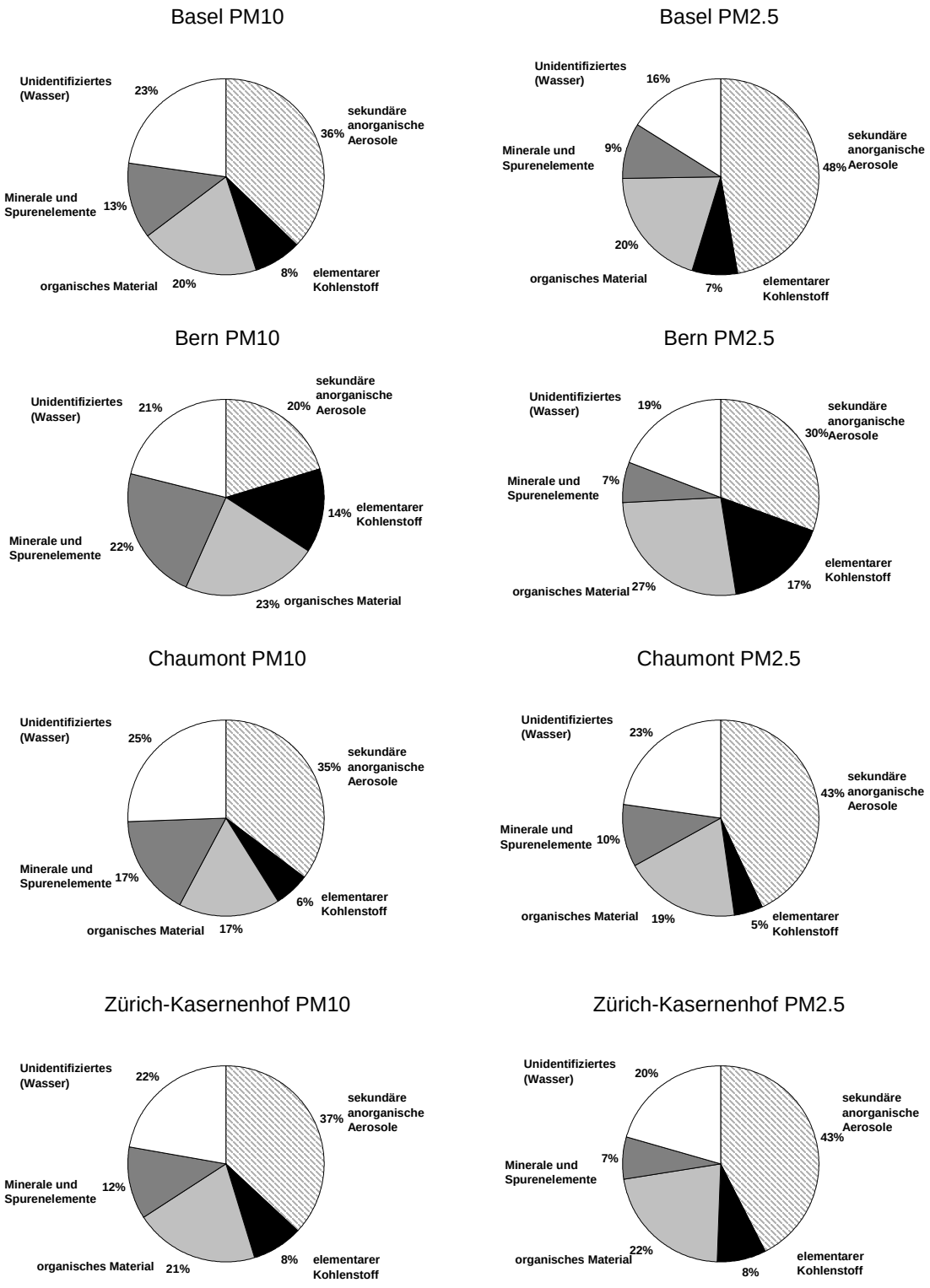

Abb. K2a: Mittlere Zusammensetzung von PM10 und PM2.5 nach wesentlichen Komponenten zusammengefasst.

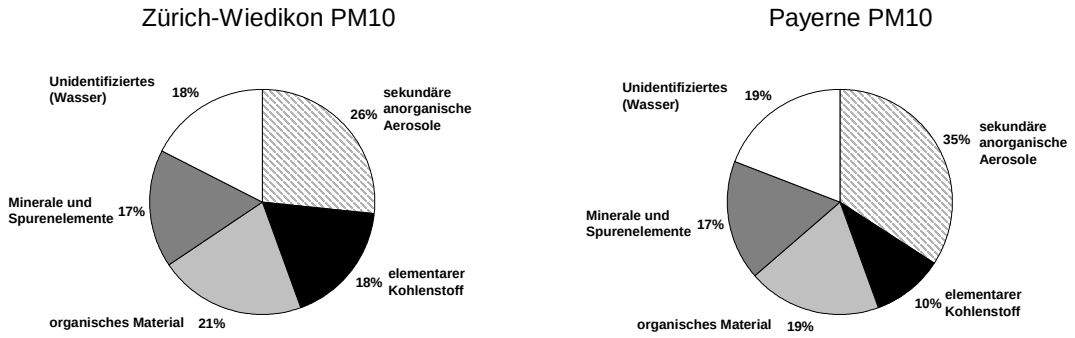

Abb. K2b: Mittlere Zusammensetzung von PM10 und PM2.5 nach wesentlichen Komponenten zusammengefasst.

K6 Quellenzuordnung der PM10- und PM2.5-Schwebestäube

K6.1 Zuordnung der primären Schwebestäube zu den Quellen

Die Zuordnung der primären Schwebestäube zu den Quellen erfolgte mit einem Rezeptormodell. Als Resultat liefert das angewendete Modell Faktoren, die jeweils einen bestimmten Anteil der gesamten Varianz der Inhaltsstoffkonzentrationen erklären. Aus der Kenntnis typischer Kombinationen von Inhaltsstoffen in den Staubemissionen bestimmter Quellen und deren Vergleich mit der Zusammensetzung der gefundenen Faktoren können den ermittelten Faktoren bestimmte Quellen oder Quellengruppen zugeordnet werden *(3.1.2)*. Neben diesen sogenannten Quellenprofilen werden mit dem Rezeptormodell auch die Quellenaktivitäten geschätzt. Aus der Abhängigkeit der Quellenaktivität von den unterschiedlichen Wochentagen oder von der Jahreszeit, sowie aus der Kenntnis von Anreicherungsfaktoren *(2.4)* können weitere wichtige Hinweise zur Identifikation von Quellen gewonnen werden.

Mit diesem Vorgehen konnten den vom Rezeptormodell gelieferten Faktoren folgende Quellen bzw. Quellengruppen zugeordnet werden:

Kehrichtverbrennung (KVA) und Biomassenverbrennung, Ferntransport, thalliumhaltiger Staub (Zementwerke?) Strassenverkehr (insb. Auspuffemissionen), Strassenstaub, Strassenstaub vermischt mit Streusalz.

Es ist sinnvoll, die drei letzteren Quellen zu einer gemeinsamen Quelle 'Strassenverkehr' zusammenzufassen, da aufgrund der hohen Korrelation zwischen diesen verschiedenen Strassenverkehrsbeiträgen eine vollständige Trennung unwahrscheinlich ist.

Die abgeschätzten mittleren, jährlichen Beiträge der einzelnen, identifizierten Emissionsquellen und Quellengruppen für alle untersuchten Stationen sind in Tabelle K5 aufgeführt.

K6.2 Zuordnung der sekundären anorganischen Schwebestäube zu den Quellen

Die Quellenzuordnung von sekundären anorganischen Aerosolen basiert auf den Daten des europäischen Emissionsinventars für die gasförmigen Vorläuferverbindungen NH_3, NO_x und SO_2 (CORINAIR), sowie der Modellierung der grossräumigen Ausbreitung der sekundären

anorganischen Schwebestaubfraktion, wie sie im Rahmen des EMEP-Programmes durchgeführt wird. Die Landwirtschaft ist die Hauptquelle von Ammoniak und trägt somit ganz wesentlich zu den Ammoniumkonzentrationen in der Aussenluft bei. Der Strassenverkehr ist dagegen der Hauptverursacher für die Nitratbildung. Emissionen durch fossile Kraftwerke und durch Prozesse bei der Wärmegewinnung, industrielle und nicht-industrielle Verbrennungsprozesse, sowie natürliche Emissionen sind wichtige Emittenten von SO_2 und tragen damit massgeblich zur Sulfatbildung bei. Damit können die entsprechenden Beiträge der verschiedenen Emissionsquellen von gasförmigen Vorläufersubstanzen zur mittleren jährlichen Konzentration von sekundärem anorganischem PM10 an den untersuchten Standorten abgeschätzt werden *(4.1)*.

Die EMEP-Modellergebnisse stimmen recht gut mit den im Rahmen dieser Studie durchgeführten Messungen überein: Für die Schweiz wurde ein Jahresmittelwert der Konzentration an sekundären anorganischen Aerosolen von 10-15µg/m^3 berechnet. Unsere gemessenen Jahresmittelwerte sind in Basel, Bern und Zürich knapp unter 10µg/m^3, es muss dabei jedoch berücksichtigt werden, dass die Messung die tatsächlichen Ammonium- und Nitratkonzentrationen aufgrund der Sammelmethode unterschätzt *(2.1)*.

K6.3 Sekundäre organische Schwebestäube

Aufgrund der im Rahmen der vorliegenden Studie durchgeführten Messungen kann davon ausgegangen werden, dass sekundäre organische Aerosole nur einen unwesentlichen Anteil des mittleren PM10 (und PM2.5) ausmachen. Sekundäre organische Aerosole können jedoch an ausgewählten Tagen mit hoher photochemischer Aktivität höhere Konzentrationen erreichen. Aus der detaillierten Analyse einer photochemisch speziell aktiven Episode in Zürich resultierte beispielsweise ein Anteil des sekundären organischen Aerosols im täglichen Mittel von ungefähr 3 µg/m^3. Auf eine Zuordnung dieser gesamthaft gesehen geringen Mengen zu bestimmten Quellen wurde verzichtet *(4.2)*.

K6.4 Beitrag des Reifenabriebs

In Autoreifen finden sich organische Verbindungen wie z.B. N-Cyclohexyl-2-benzothiazolamin (NCBA) welche praktisch ausschliesslich in vulkanisiertem Gummi vorkommen. Diese Verbindungen sind zwar nur mit grossem analytischem Aufwand nachzuweisen, es handelt sich dabei jedoch um sehr spezifische Indikatoren, die in einen eindeutigen Zusammenhang mit abgeriebenem Reifenmaterial gebracht werden können. Der Beitrag des Reifenabriebs kann direkt aus den gemessenen Immissionskonzentration abgeschätzt werden, sofern der mittlere Anteil einer dieser spezifischen Verbindungen pro Emissionseinheit bekannt ist.

Analysen der Gehalte von NCBA in einer Auswahl von 12 gängigen Reifentypen wurden mit den Gehalten von NCBA in PM10-Schwebestaubproben von Bern, Zürich, Tänikon und Jungfraujoch verglichen. Daraus resultierten die in Tabelle K4 angegebenen Abschätzungen für den Anteil des Reifenabriebs in PM10.

Tab. K4: Anteil des Reifenabriebs am PM10.

Station	Anzahl untersuchter Proben	Anteil Reifenabrieb im PM10 (%)	95%-Vertrauens-intervall (%)
Bern	6	7.5	5.1-14.0
Zürich-Kasernenhof	7	1.9	1.3-3.6
Tänikon	4	< 1	
Jungfraujoch [a]	4	< 1	

[a] auf dem Jungfraujoch wurde an Stelle von PM10 die Konzentration von totalem Schwebestaub (TSP) gemessen.

Auffallend ist der grosse Unsicherheitsbereich der Bestimmungen des Reifenabriebs in PM10. Die grossen Unsicherheiten resultieren aus den stark schwankenden NCBA-Gehalte in den Proben der verschiedenen Reifenhersteller. Wegen der sehr aufwendigen Analysenmethode konnte zudem nur eine relativ kleine Anzahl von Reifen-, bzw. auch PM10-Tagesproben untersucht werden. Die Ergebnisse müssen insgesamt als grobe Abschätzungen aufgefasst werden. Die Daten zeigen dennoch, dass Reifenabrieb an unmittelbar verkehrsexponierten Standorten quantitativ eine Rolle spielt *(3.2)*. In der PM10-Massenbilanz sind diese Anteile im Wesentlichen im EC und OC enthalten, bei den Quellenzuordnungen in den Faktoren Strassenverkehr und Strassenstaub.

K6.5 Übersicht über die Quellenzuordnung der Schwebestaubimmissionen

Tabelle K5 zeigt die Zuordnung der Feinstaubmasse (PM10) zu den aus dem Rezeptormodell erhaltenen Faktoren im Überblick. Das Rezeptormodell liefert nicht für alle Stationen die gleichen Faktoren (resp. Auftrennung der Quellen), was den direkten Vergleich der Stationen etwas erschwert. Obwohl für die quellenferne Station Chaumont nur die Tagesproben mit PM10 > 8µg/m^3 in die statistische Analyse einbezogen wurden, konnte keine detaillierte Faktorauftrennung erreicht werden. Für diese Station kann deshalb auch der Strassenverkehrsanteil nicht separat quantifiziert werden.

Die in der zweiten Zeile aufgeführten Summen der ermittelten Beiträge der einzelnen Faktoren stimmen unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten für die gemessenen Werte und der Unsicherheiten des Rezeptormodells sehr gut mit den gemessenen Werten (1. Zeile der Tabelle) überein.

Die mit dem Strassenverkehr zusammenhängenden Faktoren werden nun addiert, um den totalen Strassenverkehrsbeitrag zu erhalten. Eine Übersicht über die so berechneten mittleren jährlichen Strassenverkehrsbeiträge zur PM10, resp. (wo möglich) zur PM2.5-Belastung inklusive dem verkehrsbedingten Anteil am sekundären Aerosol findet sich in Tabelle K1.

Mit der Anwendung des Rezeptormodells auf die im Rahmen dieser Studie erhobenen Messdaten war es nicht möglich, die Beiträge der unterschiedlichen Verkehrskategorien voneinander zu trennen. Es muss daher davon ausgegangen werden, dass die mit dem Rezeptormodell ermittelten Anteile des Strassenverkehrs andere Verkehrsquellen mit Treibstoffverbrennung (Off-Road Bereich, sowie, quantitativ allerdings unbedeutend, Luft- und Schifffahrt) beinhalten. Diese letztlich unbefriedigende Trennung von Quellenbeiträgen wiederspiegelt eine grundsätzliche Schwierigkeit in der Anwendung von Rezeptormodellen zur Quellenzuordnung von Schwebestäuben: Um eine vollständige Entmischung der Quellenbeiträge zu erreichen, sind für alle aktiven Quellen spezifische Inhaltsstoffe erforderlich, welche zudem während des Transportes von der Quelle zum Rezeptor chemisch stabil sein müssen. Geeignete spezifische

Inhaltsstoffe sind vielfach nur mit sehr grossem analytischen Aufwand nachzuweisen, bzw. für manche Emissionsquellen sind geeignete spezifische Inhaltsstoffe nicht bekannt.

Tab. K5: Zuordnung der mittleren PM10-Immissionen (µg/m^3) zu den aus dem Rezeptormodell erhaltenen Faktoren. Für die Auswertung der Messungen vom Standort Chaumont wurden nur die Tagesproben >8 µg/m^3 berücksichtigt.

	Basel	Bern	Chaumont	Zürich-Kasernenhof	Zürich-Wiedikon
Total PM10 (gemessen)	25.0	39.6	16.5	24.5	42.6
Total PM10 (Rezeptormodell)	26.9	41.4	16.4	25.8	42.6
Auspuffemissionen des Strassenverkehrs (inkl. Offroad-Anteil)	4.9	7.6		3.4	17.8
Strassenstaub (soweit nicht in den Faktoren Strassenverkehr und Strassensalz enthalten)	1.8	6.4		2.5	3.2
Strassensalz (inkl. mitaufgewirbelter Strassenstaub)	0.9	3.1	0.3	0.8	3.3
KVA, Biomassenverbrennung	2.7				
KVA, Biomassenverbrennung, Ferntransport		8.2		4.8	5.4
Ferntransport, Tl-Faktor [a]	2.9				
Tl-Faktor [a]		1.4		1.6	
Mineralstaub (nicht verkehrsbedingt)	2.0	2.3	2.7	1.6	1.6
Diverse anthropogene Quellen			4.3		
andere, nicht identifizierte Quellen	2.4	4.4	3.6	2.0	0.2
sekundäre Aerosole	9.3	8.0	5.5	9.1	11.1
davon verkehrsbedingt	1.9	1.8	0.5	1.9	2.5

[a] Tl-Faktor kann vermutlich den Emissionen von Zementwerken zugeordnet werden.

K6.6 Vergleich der Ergebnisse von Rezeptor- und Ausbreitungsmodell

Quellenbeiträge von Luftschadstoffen werden im Wesentlichen mit zwei konzeptionell unterschiedlichen Methoden bestimmt, mit Rezeptormodellen und mit Ausbreitungsmodellen *(1.2)*. In einer kürzlich vom BUWAL veröffentlichten Studie[3] wurde ein Ausbreitungsmodell zur Modellierung der PM10-Immissionen in der Schweiz entwickelt. Die geschätzten mittleren Strassenverkehrsbeiträge können damit für verschiedene mittlere PM10-Belastungen angegeben werden. In Abbildung K3 sind die Ergebnisse dieser Ausbreitungsmodellierung im Vergleich mit den im Rahmen dieser Studie mit dem Rezeptormodell erhaltenen Resultaten und den Abschätzungen der GVF-Studie von 1996[4] dargestellt. Es zeigt sich, dass Ausbreitungsmodell und Rezeptormodell für die mittlere PM10-Belastungen von Messstationen wie Basel oder Zürich-Kasernenhof gut übereinstimmen. Für den verkehrsbelasteten Standort in Bern ist der mittels Rezeptormodell geschätzte mittlere Strassenverkehrsbeitrag etwa 20% tiefer als der mit dem Ausbreitungsmodell berechnete Wert für Gebiete, welche vergleichbare mittlere PM10-Immissionen aufweisen. Für die stark verkehrsbelastete Messstelle Zürich-Wiedikon stimmen die Resultate der beiden Methoden wieder gut überein. Insgesamt ist die Übereinstimmung der Ergebnisse von Ausbreitungsmodell und Rezeptormodell sehr befriedigend, insbesondere wenn berücksichtigt wird, dass es sich um voneinander unabhängige Methoden handelt.

[3] BUWAL (1999a): Modellierung der PM10-Belastung in der Schweiz. Schriftenreihe Umwelt Nr. 310. Bern, Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft.

[4] GVF (1996): Monetarisierung der verkehrsbedingten externen Gesundheitskosten. Synthesebericht. Ecoplan Bern, GVF-Auftrag Nr. 272.

Die mittels Rezeptor- und Ausbreitungsmodell geschätzten Strassenverkehrsanteile sind tiefer, als die Werte der etwas älteren Studie des GVF (1996), ausser bei sehr tiefen PM10-Belastungen.

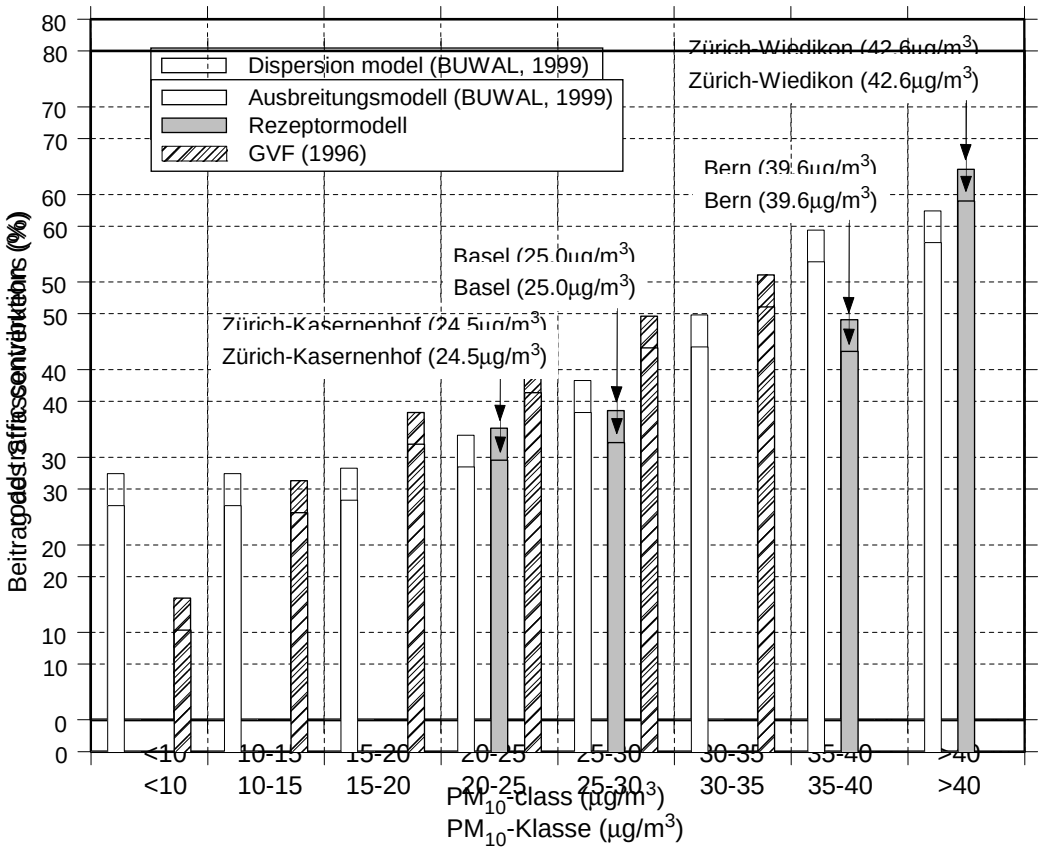

Abb. K3: Vergleich von mittels Ausbreitungsmodell und Rezeptormodell (diese Arbeit) geschätzten mittleren jährlichen Strassenverkehrsbeiträgen zum PM10 sowie den Ergebnissen gemäss des GVF-Berichtes. Für die mit dem Rezeptormodell angegebenen Strassenbeiträge ist mit einer relativen Unsicherheit von ± 10% zu rechnen *(Anhang A.3)*.

K6.7 Einfluss der Meteorologie auf die Schwebestaubimmissionen

Mit einer Hauptkomponentenanalyse der PM10-Tageswerte aller NABEL-Stationen konnte gezeigt werden, dass die Variabilität von PM10 im Wesentlichen durch grossräumige Faktoren (insbesondere durch die meteorologischen Bedingungen) verursacht wird (*5.1*). Die Variation der Aktivitäten von lokalen Quellen ist diesbezüglich von untergeordneter Bedeutung. Ob an einer der Messstellen in der Schweiz an einem bestimmten Tag eine relativ zum Mittelwert hohe oder tiefe PM10-Belastung gemessen wird, hängt hauptsächlich von der meteorologischen Situation ab.

Der Zusammenhang zwischen meteorologischer Situation und PM10-Belastung wurde detaillierter untersucht. Einerseits wurden hierzu die täglichen meteorologischen Bedingungen zu Gruppen von Wettertypen zusammengefasst und die Abhängigkeit von Wettertyp und PM10-Belastung untersucht (*5.2*). Andererseits wurde der Frage nachgegangen, ob mittels Analyse der

Herkunftsrichtung von Luftmassenpaketen (Rückwärtstrajektorien) an den NABEL-Messstationen Chaumont und Tänikon ein Einfluss von ferntransportiertem PM10 festgestellt werden kann (*5.3*). Bei advektiven Wetterlagen sind die mittleren PM10-Belastungen tiefer als bei konvektiven Wetterlagen. Innerhalb der advektiven Wetterlagen führt eine Anströmung der Luftmassen aus dem westlichen Sektor zu tiefen mittleren PM10-Belastungen. Bei diesen Bedingungen werden häufig saubere maritime Luftmassen gegen die Alpen geführt, was eine Verdünnung der verschmutzten kontinentalen Luftmassen bewirkt. Die Herkunft von Luftmassen aus den Sektoren Nordost und Ost führt auf dem Chaumont und in Tänikon zu höheren mittleren PM10-Immissionen. Verglichen mit den mittleren PM10-Immissionen bei advektiven Wetterlagen sind bei diesen Bedingungen die mittleren PM10-Belastungen um etwa 2 $\mu g/m^3$ (Chaumont) bzw. knapp 5 $\mu g/m^3$ (Tänikon) erhöht. Mit der durchgeführten deskriptiven Datenauswertung ist es nicht möglich, die Prozesse, die zu diesen Beobachtungen führen, zu erklären.

K7 Personenwagen und schwere Nutzfahrzeuge

Die mit dem Rezeptormodell erreichte Auflösung der unterschiedlichen Quellen von PM10 erlaubt keine Differenzierung zwischen den Emissionen von verschiedenen Fahrzeugkategorien, wie z.B. zwischen leichten Motorwagen (LMW, insb. Personen- und Lieferwagen) und schweren Motorwagen (SMW, insb. Lastwagen, Reise- und Linienbusse). Um diese Informationslücke zu schliessen, wurden zusätzlich zu den Untersuchungen von Tagesproben gezielte Messkampagnen mit hoher zeitlicher Auflösung an den beiden städtischen Standorten Zürich-Kasernenhof und Zürich-Wiedikon (Schimmelstrasse) durchgeführt *(6.2)*. Zürich-Kasernenhof liegt in einer parkähnlichen Umgebung und ist repräsentativ für eine städtische Luftschadstoffbelastung die nicht unmittelbar durch bestimmte Emissionsquellen beeinflusst ist (städtische Hintergrundbelastung). Die Messstelle Zürich-Wiedikon liegt dagegen unmittelbar an der stark befahrenen Schimmelstrasse (Transitachse von Chur in Richtung Bern und Basel) und repräsentiert einen stark verkehrsbelasteten Standort. Die Messungen umfassten neben den Luftschadstoffen auch eine nach LMW und SMW getrennte Verkehrszählung (Schleifendetektor). Die Differenz von an diesen beiden Messstellen zeitgleich erfassten Luftschadstoffbelastungen ergibt daher in guter Näherung den Beitrag durch die Emissionen des lokalen Strassenverkehrs auf der Schimmelstrasse. Tabelle K6 gibt einen Überblick über die während zweier Messkampagnen im Juli/August 1998 und Januar/Februar 1999 mit den zeitlich hochauflösenden Monitormessungen (30-Minutenwerte) erhaltenen Resultate. Neben PM10 sind auch die Ergebnisse von Russmessungen (als black carbon, BC) angegeben. Es ist zu beachten, dass die mittels Aethalometer registrierten BC-Werte orientierende Messungen darstellen, da das Messprinzip nicht äquivalent zum coulometrischen Referenzverfahren ist. Aus den tabellierten Werten wird deutlich, dass die Emissionen des Verkehrs auf der Schimmelstrasse bedeutende Beiträge zu den mittleren Immissionen von BC und PM10 leisten.

Ebenfalls kann Tabelle K6 entnommen werden, dass die PM10-Emissionen des Strassenverkehrs auf der Schimmelstrasse an Sonntagen deutlich tiefer sind als an Werktagen. Dies ist durch den fehlenden Güterverkehr (Schwerverkehr) zu erklären. Vereinzelte Zählungen von SMW an Sonntagen werden vermutlich grösstenteils durch Reisebusse verursacht. Aus dem Vergleich des in Tabelle K6 aufgelisteten Strassenverkehrsbeitrages an Sonntagen mit dem an Werktagen kann der Anteil des Schwerverkehrs an den primären PM10-Emissionen des Strassenverkehrs auf der Schimmelstrasse abgeschätzt werden. Unter Berücksichtigung der leicht tieferen Verkehrszahlen

an Werktagen als an Sonntagen ergibt sich daraus ein relativer Anteil des Güterverkehrs an den primären PM10-Strassenverkehrsemissionen von 53% *(6.2)*.

Tab. K6: Mittlere Anzahl Fahrzeuge auf der Schimmelstrasse und mittlere Konzentrationen von Russ (als BC) und PM10 (Monitor) während der beiden Messkampagnen im Juli/August 1998 und Januar/Februar 1999 sowie die daraus berechneten Anteile des lokalen Verkehrs an der Schimmelstrasse.

		alle Tage	Mo-Fr	Sa	So
Anzahl Fahrzeuge (pro 30 min)	LMW	537	513	594	588
	SMW	40	53	17	10
	LMW+SMW	577	566	611	598
Russ als BC (µg/m³)	Kasernenhof	1.6	1.8	1.2	1.1
	Wiedikon	4.6	5.4	2.8	2.3
Beitrag Strassenverkehr zu BC Schimmelstrasse (µg/m³)		3.0	3.6	1.6	1.2
Anteil Strassenverkehr an BC Schimmelstrasse (%)[1]		*65.2*	*66.7*	*57.1*	*52.1*
PM10 (µg/m³)	Kasernenhof	24.4	24.8	23.2	23.4
	Wiedikon	40.8	43.8	35.2	32.5
Beitrag Strassenverkehr zu PM10 Schimmelstrasse (µg/m³)		16.4	19.0	12.0	9.1
Anteil Strassenverkehr an PM10 Schimmelstrasse (%)[1]		*40.2*	*43.4*	*34.1*	*28.0*

[1] Abgeschätzt durch das Verhältnis der mittleren Differenz der Schadstoffkonzentration und dem Mittelwert an der Station Zürich-Wiedikon.

Auf der Grundlage der gravimetrischen Messungen der PM10-Tageswerte an den Messstellen Zürich-Wiedikon und Zürich-Kaserne kann eine solche Abschätzung ebenfalls durchgeführt werden. An der Messstelle Zürich Wiedikon beträgt die mittleren Differenz von PM10 an beiden Messstellen ($PM10_{Wiedikon} - PM10_{Kasernenhof}$) werktags 19.7µg/m³ und an Sonntagen 8.9µg/m³. In guter Übereinstimmung mit den Abschätzungen mittels der zeitlich höher aufgelösten Daten, ergibt sich daraus ein relativer Anteil des Güterverkehrs an den primären PM10-Strassenverkehrsemissionen von 54%. Die Differenzen von PM10 an den Messstellen Zürich-Wiedikon und Zürich-Kasernenhof sind genähert normalverteilt, ein t-Test liefert ein 95%-Vertrauensbereich von 49% bis 64% *(3.1.2.3)*.

K8 Schlussfolgerungen und offene Fragen

Mit dem angewendeten Rezeptormodell war es möglich, für einige typische Belastungssituationen in der Schweiz die verkehrsbedingten Anteile der PM10- und teilweise auch der PM2.5-Immissionen zu quantifizieren. Durch die Auswahl eher belasteter Untersuchungsstandorte (Bereich extrem starke Verkehrsbelastung bis städtischer Hintergrund bzw. Agglomeration) wurden lufthygienische Situationen charakterisiert, die potentiell problematisch sind. Für schwach belastete, ländliche Standorte (Chaumont) war es mit dem Rezeptormodell nicht möglich, den Verkehrsanteil mit genügender Zuverlässigkeit anzugeben. Die in dieser Studie ausgewiesenen Werte sind deshalb zwar repräsentativ für die Belastungssituation breiter urbaner

Bevölkerungsschichten, stellen aber nicht einen schweizerischen Durchschnittswert dar.

Die Grenzen des Modells wurden ebenfalls sichtbar, indem meist keine detaillierte Trennung in einzelne Komponenten der Quellenbeiträge erreicht werden konnte. So war beispielsweise eine Auftrennung nach Anteilen von Personenwagen und Lastwagen nicht möglich. Auch konnten die gewerblichen und industriellen Beiträge nur summarisch ermittelt werden.

Durch ergänzende Messkampagnen mit zeitlich hochaufgelösten Messungen in Zürich war es dagegen möglich, für einen extrem verkehrsbelasteten Standort in Zürich-Wiedikon die Beiträge von Personenwagen und Lastwagen getrennt zu ermitteln. Es konnte auch gezeigt werden, dass es grundsätzlich möglich ist, mit solchen Differenzmessungen (lokale Belastung minus Hintergrundsbelastung) Emissionsfaktoren für reale Verkehrssituationen abzuschätzen *(6.2)*. Für solche Informationen besteht zur Zeit ein grosser Bedarf, da die verfügbaren Emissionsfaktoren aus Prüfstandsmessungen keine Informationen zu den Aufwirbelungs- und Abriebsemissionen liefern. Um diese Wissenslücke zu schliessen und zu Emissionsfaktoren für verschiedene typische Verkehrsszenarien zu gelangen, wurde kürzlich ein neues Projekt gestartet. Mit einem bezüglich dieser Fragestellung optimiertem Konzept werden an geeigneten Strassen gezielt Immissionsmessungen zur Ermittlung der Emissionsfaktoren für Auspuff- und Aufwirbelungs-/Abriebemissionen von Personenwagen und Lastwagen durchgeführt.

Offen bleibt die Bedeutung der Offroad-Emissionen im Allgemeinen. Diese sind aufgrund ihrer praktisch identischen chemischen Zusammensetzung in den vom Rezeptormodell gelieferten Faktoren für Strassenverkehr enthalten. Dank der gezielten Auswahl der untersuchten Standorte ist aber anzunehmen, dass der Offroad-Anteil hier eher gering ist, da keine der typischen Offroad-Quellen (schwere Baumaschinen, Traktoren, Dieselloks usw.) in der Nähe anzutreffen waren. Dies bedeutet jedoch nicht, dass der Offroad-Anteil, der zeitweise sehr hohe lokale Immissionen verursachen kann, überall unbedeutend wäre.

Der Anteil des Hausbrandes (Öl- und Gasfeuerungen) konnte ebenfalls aufgrund der ähnlichen chemischen Zusammensetzung nicht separiert werden. Allerdings kann aus den für solche Anlagen sehr gut bekannten tiefen Emissionswerten für Partikel mit Sicherheit davon ausgegangen werden, dass diese Emissionen für die Partikelimmissionen an den gewählten Standorten von völlig untergeordneter Bedeutung sind. Die partikelreicheren Emissionen von Holzfeuerungen hingegen sind im Faktor "Biomassenverbrennung" enthalten.