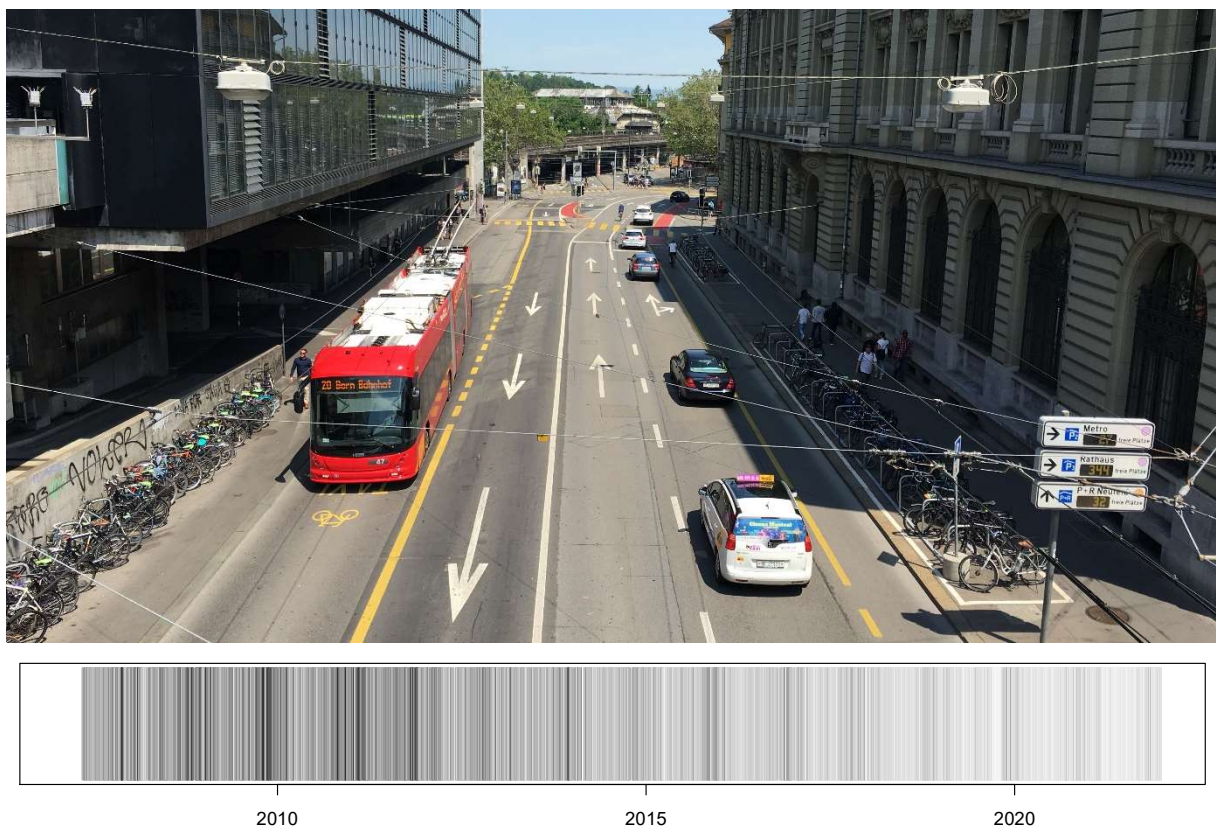


Zeitliche Entwicklung der Russimmissionen an NABEL-Stationen



Messstation Bern-Bollwerk: Lage der Messstation (oben) und zeitliche Entwicklung der täglichen Russimmissionen (unten). Dunkel entspricht erhöhten Belastungen, hell entspricht tiefen Belastungen.

Christoph Hüglin und Andrea Fischer
Abteilung Luftfremdstoffe/Umwelttechnik
Empa, 8600 Dübendorf

31. Oktober 2022

Messbericht: Zeitliche Entwicklung der Russimmissionen an NABEL-Stationen

Autoren: Christoph Hüglin und Andrea Fischer

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

Kontakt: christoph.hueglin@empa.ch

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

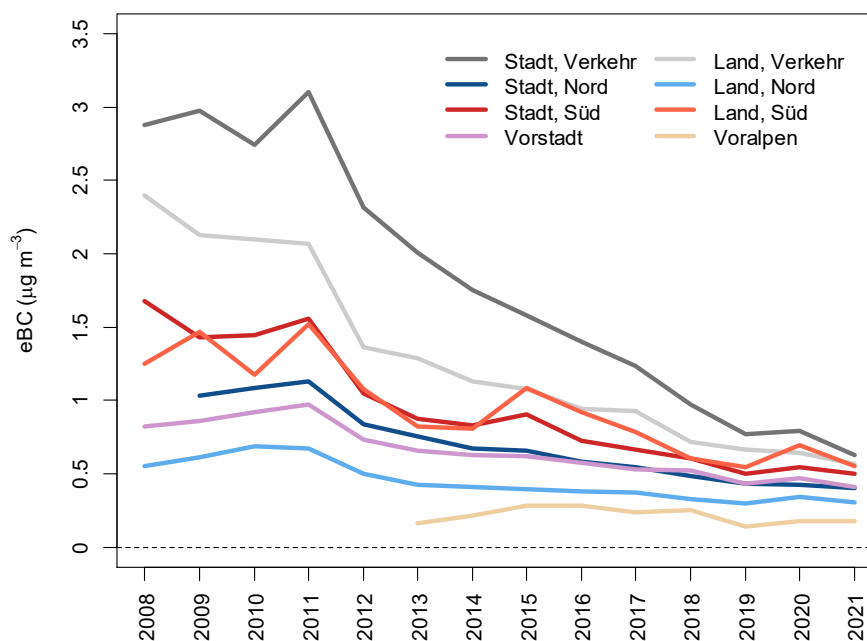
Inhalt

Zusammenfassung.....	4
Résumé	5
1 Einleitung	6
2 Grundlagen.....	7
3 Resultate	7
4 Anhang 1 - Messtechnik.....	14
5 Anhang 2 - Äquivalenz von eBC.....	21
6 Literatur.....	25

Zusammenfassung

Russ ist keine chemisch eindeutig definierte Grösse, es gibt daher kein direktes Messverfahren für Russ. Typischerweise wird die Russbelastung durch die Konzentration von elementarem Kohlenstoff (EC) oder lichtabsorbierendem Kohlenstoff (black carbon - BC) angegeben. EC und BC sind ebenfalls keine eindeutig definierten Messgrössen, die Messwerte von EC und BC hängen von der angewendeten Messmethode ab. Damit Messwerte von Russ schweizweit und international verglichen werden können, ist es notwendig, die Daten auf ein Referenzverfahren zu beziehen. In Europa wurde für EC die thermisch-optische Methode mit einem definierten Temperaturprotokoll als Referenzverfahren eingeführt (EN16909 2017). Die umgerechneten BC-Werte werden in diesem Bericht als eBC bezeichnet (angelehnt an die international vorgeschlagene Terminologie "equivalent BC", bzw. äquivalenter schwarzer Kohlenstoff), siehe Petzold et al. (2013). Details zu den eingesetzten Messverfahren sowie zur Berechnung und dem Nachweis der Äquivalenz von eBC werden im Anhang dieses Berichtes beschrieben.

Im NABEL-Messnetz wird seit 2007 die Russbelastung der Aussenluft an repräsentativen Standorten als äquivalenter schwarzer Kohlenstoff (eBC) gemessen. Dieser Bericht behandelt messtechnische Besonderheiten und Herausforderungen bei der Messung von Russ und diskutiert die Messwerte bis Ende 2021. Der Bericht dokumentiert den eindrücklichen Rückgang der Russbelastung in der Schweiz in den letzten fünfzehn Jahren (siehe Abbildung unten).

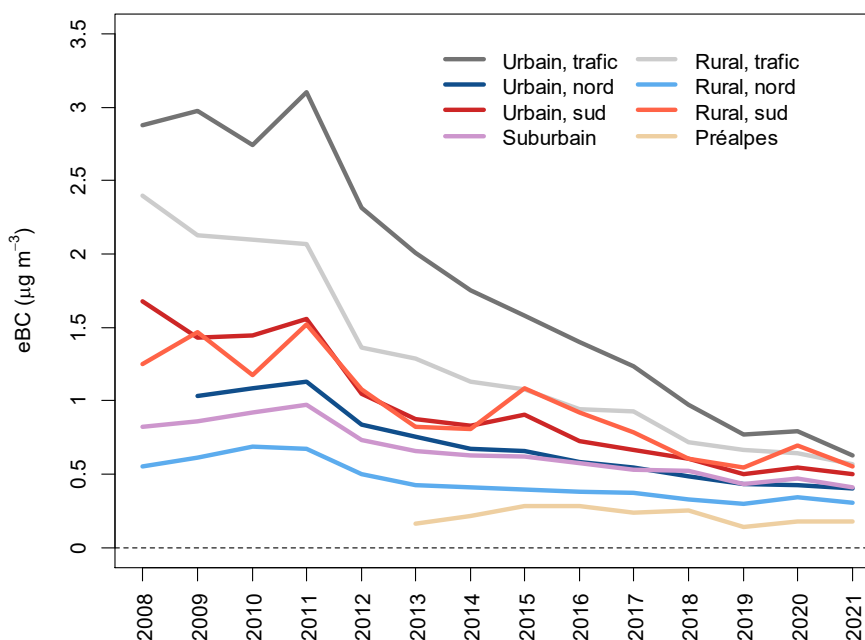


Jahresmittelwerte von äquivalentem schwarzem Kohlenstoff (eBC, equivalent Black Carbon) an verschiedenen Standorttypen des NABEL Messnetzes.

Résumé

La suie n'est pas une grandeur chimique clairement définie, il n'existe donc pas de méthode de mesure directe de la suie. Typiquement, la charge de suie est indiquée par la concentration de carbone élémentaire (EC) ou de carbone absorbant la lumière (black carbon - BC). L'EC et le BC ne sont pas non plus des grandeurs de mesure clairement définies, les valeurs mesurées de l'EC et du BC dépendent de la méthode de mesure utilisée. Afin de pouvoir comparer les valeurs de mesure de la suie à l'échelle nationale et internationale, il est nécessaire de rapporter les données à une méthode de référence. En Europe, la méthode thermo-optique avec un protocole de température défini a été introduite comme méthode de référence par la Commission européenne (EN16909 2017). Les valeurs de BC converties sont désignées ci-après par eBC (en s'inspirant de la terminologie proposée au niveau international "équivalent BC", ou carbone noir équivalent), voir Petzold et al. 2013. Des détails sur les méthodes de mesure utilisées, ainsi que sur le calcul et la preuve de l'équivalence de l'eBC se trouvent en annexe.

Dans le réseau NABEL, la pollution de l'air extérieur par la suie est mesurée depuis 2007 sur des sites représentatifs en tant que carbone noir équivalent (eBC). Ce rapport traite des particularités météorologiques et des défis liés à la mesure de la suie et discute des valeurs mesurées jusqu'à fin 2021. Le rapport documente le recul considérable de la pollution par la suie en Suisse au cours des quinze dernières années (voir figure ci-dessous).



Moyennes annuelles d'eBC (équivalent BC, ou carbone noir équivalent) sur différents types de sites du réseau de mesure NABEL.

1 Einleitung

Die Erhebung von zuverlässigen Daten über die aktuelle Situation und die zeitliche Entwicklung der Russbelastung in der Schweiz ist für die Beurteilung der Luftqualität, sowie zur Planung und Erfolgskontrolle von Massnahmen im Bereich der Luftreinhaltung wichtig. Russ ist krebserregend, die Konzentration von Russ in der Aussenluft sollte daher auf ein möglichst tiefes Niveau reduziert werden. Gemäss der Eidgenössischen Kommission für Lufthygiene (EKL) sollte die Russbelastung im bevölkerungsgewichteten jährlichen Mittel $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht übersteigen, damit ein ausreichender Gesundheitsschutz für die Bevölkerung gewährleistet ist ([EKL 2013](#)). An stark belasteten Standorten sollte dabei die Russkonzentration im Jahresmittel nicht höher als $0.2\text{-}0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sein. Obwohl die Russbelastungen in der Schweiz deutlich rückläufig sind, liegt der bevölkerungsgewichtete Mittelwert der Russkonzentration noch immer über dem von der EKL empfohlenen Wert ([Heldstab et al. 2021](#)). Eine Reduktion der Russbelastung ist auch aus Gründen des Klimaschutzes erwünscht, da Russ Licht absorbiert und dadurch einen Einfluss auf den Strahlungshaushalt der Erde hat.

Im Nationalen Beobachtungsnetz für Luftfremdstoffe NABEL werden seit 2007 Russmessungen an Standorten durchgeführt, welche die wichtigsten Belastungssituationen in der Schweiz repräsentieren (Tabelle 1). Dieser Bericht dokumentiert die Resultate der Russmessungen im NABEL und beurteilt die zeitliche Entwicklung der Russimmissionen in der Schweiz.

Tabelle 1: Messstationen, Stationstyp und Messbeginn der Russmessungen im NABEL-Messnetz.

	Stationstyp	Messstation	Messbeginn
	Städtisch, verkehrsbelastet	Bern-Bollwerk	11.05.2007
	Städtisch (Alpennordseite)	Zürich-Kaserne	02.04.2009
	Städtisch (Alpensüdseite)	Lugano-Universität	05.12.2007
	Vorstädtisch	Basel-Binningen	14.02.2008
		Dübendorf-Empa	03.07.2009
	Ländlich, Autobahn	Härkingen-A1	09.02.2007
	Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpennordseite)	Payerne	04.03.2008
	Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpensüdseite)	Magadino-Cadenazzo	13.03.2008
	Ländlich, oberhalb 1000 m	Rigi-Seebodenalp	22.01.2013

2 Grundlagen

Russ ist keine chemisch eindeutig definierte Grösse, es gibt daher kein direktes Messverfahren für Russ. Typischerweise wird die Russbelastung durch die Konzentration von elementarem Kohlenstoff (EC) oder lichtabsorbierendem Kohlenstoff (black carbon - BC) angegeben. EC und BC sind ebenfalls keine eindeutig definierten Messgrössen, die Messwerte von EC und BC hängen von der angewendeten Messmethode ab.

Für die Messung von EC und BC 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 nicht direkt vergleichbar, da gefärbte oder hitzebeständige Anteile von organischen Kohlenstoffverbindungen (OC) nicht in gleichem Masse zu den verschiedenen Messverfahren beitragen.

Damit Messwerte von Russ schweizweit und international verglichen werden können, ist es notwendig, die Daten auf ein Referenzverfahren zu beziehen. In Europa wurde für EC die thermisch-optische Methode mit einem definierten Temperaturprotokoll als Referenzverfahren eingeführt ([EN16909 2017](#)). Im NABEL wird Russ kontinuierlich mit optischen Methoden als lichtabsorbierender oder schwarzer Kohlenstoff BC gemessen. Durch regelmässige Vergleichsmessungen (jeden zwölften Tag) mit dem thermisch-optischen Referenzverfahren wird der Zusammenhang zwischen den beiden Messmethoden an allen Standorten fortwährend bestimmt. Das kontinuierlich gemessene BC wird mit einem rollenden Regressionsverfahren so umgerechnet, so dass die ausgewiesenen Messwerte konsistent bzw. äquivalent zu EC gemäss Referenzverfahren sind. Die umgerechneten BC-Werte werden im Folgenden als eBC bezeichnet (angelehnt an die international vorgeschlagene Terminologie "equivalent BC", bzw. äquivalenter schwarzer Kohlenstoff), siehe Petzold et al. (2013). Details zu den eingesetzten Messverfahren sowie zur Berechnung und dem Nachweis der Äquivalenz von eBC finden sich im Anhang.

3 Resultate

Abbildung 1 zeigt die Zeitreihen (Tagesmittelwerte) von eBC seit Messbeginn bis Ende 2021. In Abbildung 1 fällt der ausgeprägte und für primäre Luftschadstoffe typische Jahresgang von eBC auf. Während der kalten Jahreszeit sind die Russkonzentrationen gegenüber der warmen Jahreszeit erhöht, was einerseits durch die Wetterverhältnisse erklärt werden kann (stabilere Schichtung der bodennahen Luft während der kalten Jahreszeit), andererseits ist die jahreszeitliche Abhängigkeit auf zusätzliche Emissionen aus Heizungen (insbesondere Holzfeuerungen) zurückzuführen. An allen Stationen ist ein rückläufiger Trend der Konzentration von eBC zu beobachten. Diese rückläufige Entwicklung der Russbelastung in der Schweiz wird in der Abbildung 2 noch deutlicher, in der dieselben Daten als Jahresmittelwerte dargestellt sind, in Tabelle 2 sind die Jahresmittelwerte an den einzelnen Messstationen tabelliert.

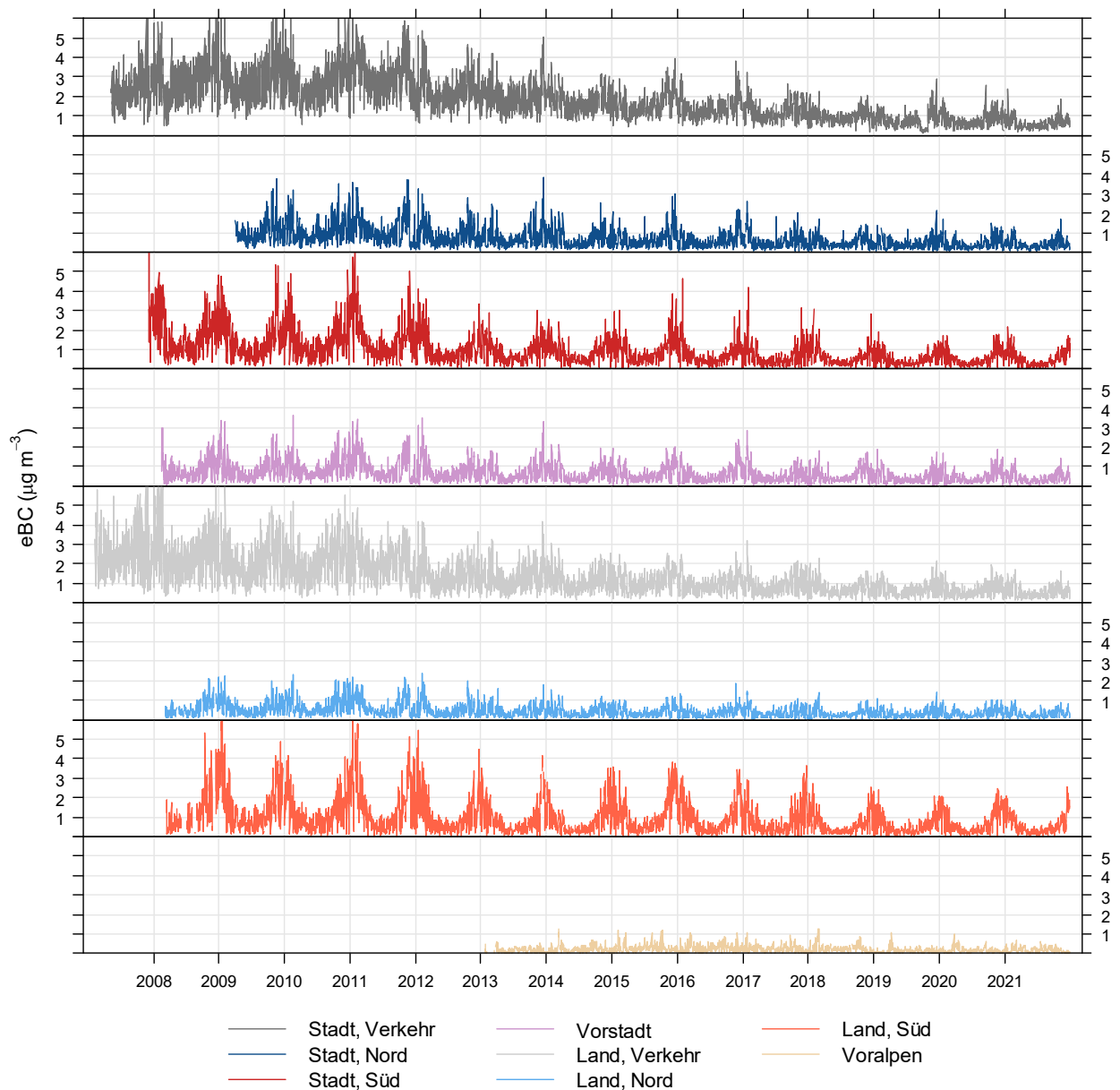


Abb. 1: Zeitreihen von eBC (equivalent black carbon) an Standorten in der Schweiz, welche unterschiedliche Belastungssituationen repräsentieren (Tagesmittelwerte). Die Zuordnung von Messung und Stationstyp erfolgte gemäss Tabelle 1. Der vorstädtische Standorttyp wird durch Messungen an zwei Stationen repräsentiert, in der Abbildung oben wurden die Messwerte von Basel-Binningen und Dübendorf-Empa gemittelt.

Der Verlauf der Jahresmittelwerte zeigt deutliche Unterschiede zwischen den verschiedenen Stationen bzw. Stationstypen. Insbesondere an den verkehrsbelasteten Stationen sind die Russbelastungen höher als an Stationen die nicht unmittelbar durch Emissionen des Strassenverkehrs beeinflusst sind. Zudem sind an den beiden städtischen und ländlichen Standorten südlich der Alpen (Messstationen Lugano-Università und Magadino-Cadenazzo) die Russbelastungen höher als an vergleichbaren Standortsituationen auf der Alpennordseite (Zürich-Kaserne und Payerne). Gut erkennbar ist, dass die Russkonzentrationen in der Schweiz generell stark abnehmen. Die Abnahmeraten (bzw. Veränderungsrate in $\mu\text{g eBC pro Kubikmeter Luft und Jahr}$) der Russbelastungen wurden mittels Trendanalyse

bestimmt. Dazu wurden die gemessenen eBC-Konzentrationen zu Monatsmittelwerten aggregiert und die Veränderungsraten als Theil-Sen Steigung geschätzt.

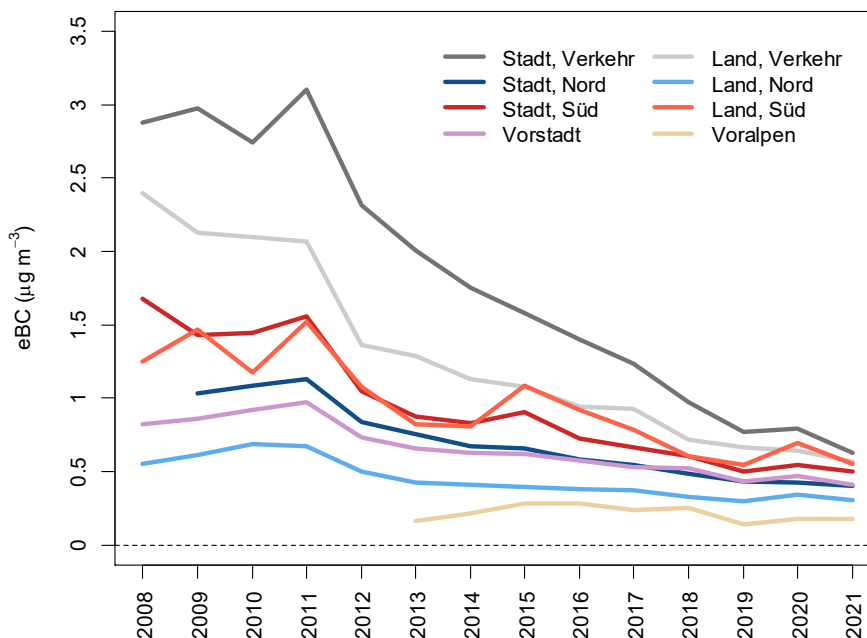


Abb. 2: Jahresmittelwerte von eBC an verschiedenen Standorttypen im NABEL. Die Zuordnung von Messung und Stationstyp erfolgte gemäss Tabelle 1. Der vorstädtische Standorttyp wird durch Messungen an zwei Stationen repräsentiert, in der Abbildung oben wurden die Messwerte von Basel-Binningen und Dübendorf-Empa gemittelt.

Tabelle 2: Jahresmittelwerte der Russbelastung (eBC) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an NABEL-Stationen (BAS = Basel-Binningen; BER = Bern-Bollwerk; DUE = Dübendorf-Empa; HAE = Härkingen-A1; LUG = Lugano-Universität; MAG = Magadino-Cadenazzo; PAY = Payerne; RIG = Rigi-Seebodenalp; ZUE = Zürich-Kaserne).

Jahr	BAS	BER	DUE	HAE	LUG	MAG	PAY	RIG	ZUE
2008	0.82	2.88	NA	2.40	1.68	1.25	0.55		NA
2009	0.81	2.98	1.03	2.13	1.43	1.47	0.61		1.03
2010	0.88	2.74	0.98	2.10	1.44	1.17	0.69		1.08
2011	0.82	3.10	1.12	2.07	1.56	1.52	0.67		1.13
2012	0.62	2.32	0.84	1.37	1.05	1.07	0.50		0.84
2013	0.57	2.01	0.74	1.29	0.88	0.82	0.42	0.16	0.75
2014	0.54	1.76	0.72	1.13	0.83	0.81	0.41	0.22	0.67
2015	0.54	1.58	0.70	1.07	0.91	1.08	0.39	0.28	0.66
2016	0.51	1.40	0.63	0.95	0.73	0.92	0.38	0.28	0.58
2017	0.48	1.24	0.58	0.93	0.66	0.79	0.37	0.24	0.55
2018	0.44	0.97	0.60	0.72	0.61	0.60	0.32	0.25	0.49
2019	0.39	0.77	0.48	0.66	0.50	0.55	0.30	0.14	0.43
2020	0.43	0.79	0.51	0.64	0.54	0.70	0.34	0.18	0.42
2021	0.41	0.63	0.41	0.57	0.50	0.55	0.31	0.18	0.40

Abbildung 3 zeigt beispielhaft das Resultat der Trendanalyse am städtischen Standort auf der Alpensüdseite (Lugano-Universität), in Tabelle 3 sind die ermittelten Veränderungsraten inklusive deren Unsicherheiten aufgeführt.

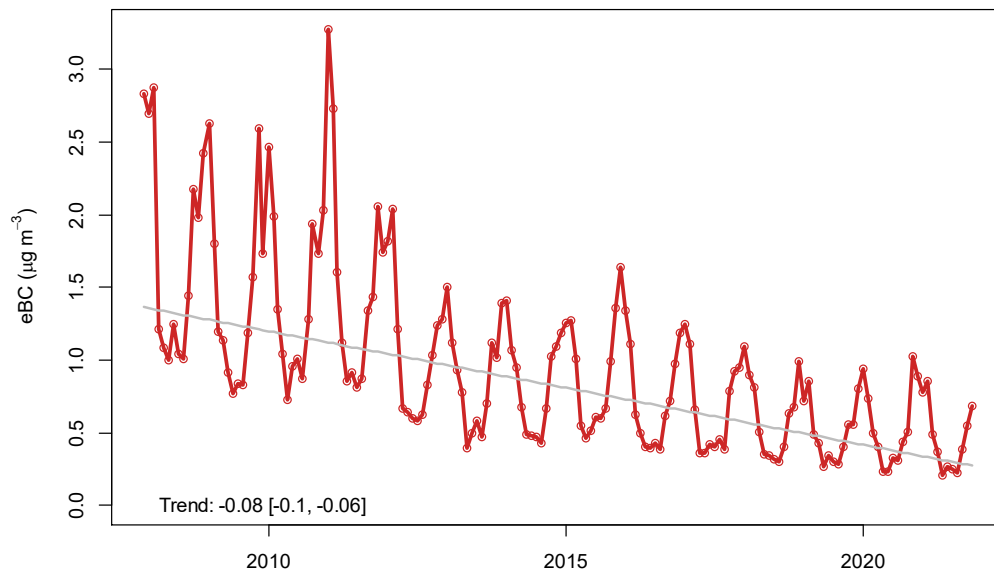


Abb. 3: Zeitreihe der Monatsmittelwerte von eBC am städtischen Standort auf der Alpensüdseite (Lugano-Universität) sowie der zugehörige zeitliche Trend (graue Linie). Die ermittelte Veränderungsrate beträgt $-0.08 \mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{Jahr})$, der Unsicherheitsbereich (95%-Niveau) ist in der Klammer angegeben.

Die geschätzten Veränderungsraten sind an allen Messstationen negativ, der Rückgang der Russbelastung ist einzig am ländlichen und erhöht gelegenen Standort Rigi-Seebodenalp nicht signifikant (95%-Niveau). An den verkehrsbelasteten Standorten ist der Rückgang der Russbelastung am stärksten, insgesamt ist eine deutliche Verringerung des Unterschieds zwischen den Stationstypen zu beobachten (Abbildung 2). Die Russbelastung an unterschiedlichen Standortsituationen in der Schweiz gleicht sich an. Die Russbelastung am ländlichen Standort der Alpensüdseite (Magadino-Cadenazzo) ist deutlich höher als am ländlichen Standort der Alpennordseite (Payerne), siehe Abbildungen 1 und 2.

Tabelle 3: Theil-Sen Trend der Russbelastung (eBC) an NABEL-Stationen, der Trend wurde für die Zeit seit Messbeginn bis Ende 2021 berechnet.

Stationstyp	Messstation	Trend $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{Jahr})$	Unsicherheit $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{Jahr})$
Städtisch, verkehrsbelastet	Bern-Bollwerk	-0.19	[-0.22, -0.17]
Städtisch (Alpennordseite)	Zürich-Kaserne	-0.06	[-0.07, -0.04]
Städtisch (Alpensüdseite)	Lugano-Universität	-0.08	[-0.10, -0.06]
Vorstädtisch	Basel-Binningen	-0.03	[-0.04, -0.03]
	Dübendorf-Empa	-0.05	[-0.06, -0.03]
Ländlich, Autobahn	Härkingen-A1	-0.14	[-0.16, -0.11]
Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpennordseite)	Payerne	-0.02	[-0.03, -0.02]
Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpensüdseite)	Magadino-Cadenazzo	-0.06	[-0.08, -0.05]
Ländlich, oberhalb 1000 m	Rigi-Seebodenalp	-0.01	[-0.02, -0.01]

An Standorten, an denen mehrjährige Messreihen der Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption von PM_{2.5} vorliegen, kann mit dem sogenannten Aethalometermodell (siehe Anhang) die gesamte Konzentration von eBC in Beiträge durch die beiden Hauptquellen von Russ aufgetrennt werden. Die beiden Beiträge durch die Hauptquellen sind jene durch Emissionen aus Holzfeuerungen (eBC_{WB}) sowie durch Emissionen aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen (eBC_{FF}). Eine Auftrennung von eBC in eBC_{WB} und eBC_{FF} ist aktuell sinnvoll für die Daten der Messstationen Bern-Bollwerk (Stadt, Verkehr), Zürich-Kaserne (Stadt, Nord), Payerne (Land, Nord), Magadino-Cadenazzo (Land, Süd) und Rigi-Seebodenalp (Voralpen). An den anderen in Tabelle 2 aufgeführten Stationen wurden erst Mitte 2020 (Basel-Binningen) oder im Verlauf von 2021 die bis dahin eingesetzten MAAP-Instrumente durch Aethalometer ersetzt. Die Berechnung von eBC_{WB} und eBC_{FF} ist an diesen Standorten erst in den nächsten Jahren aussagekräftig.

Abbildung 4 zeigt die Zeitreihen der berechneten Beiträge durch Emissionen aus Holzfeuerungen und aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen zu den gesamten Russimmissionen (eBC_{WB} und eBC_{FF}, beide bei $\lambda=950\text{nm}$ bestimmt). Die geschätzten Trends der Beiträge dieser beiden Hauptquellen von Russ sind ebenfalls in Abb. 4 dargestellt, die Veränderungsraten und die zugehörigen Unsicherheiten sind in Tabelle 4 aufgeführt. Obwohl die Bestimmung von eBC_{WB} und eBC_{FF} mit vereinfachten Annahmen verbunden ist und die Resultate entsprechend mit Vorsicht interpretiert werden sollten, können interessante Schlussfolgerungen gezogen werden: Die Abnahme der Russimmissionen an den NABEL-Stationen lässt sich beinahe vollständig durch die Abnahme des Beitrages aus Emissionen durch Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen erklären. Beim Beitrag der Emissionen aus Holzfeuerungen ist dagegen keine oder nur eine geringe zeitliche Abnahme feststellbar. Eine Ausnahme stellt der städtische Verkehrsstandort Bern-Bollwerk dar, dort muss jedoch angenommen werden, dass die Auftrennung der beiden Emissionsquellen von Russ unvollständig ist und das berechnete eBC_{WB} auch durch einen Beitrag des Strassenverkehrs beeinflusst ist ([Grange et al. 2020](#)). War an den untersuchten NABEL-Standorten vor ungefähr zehn Jahren der Strassenverkehr die dominierende Quelle von Russ, so ist heute der Anteil von eBC_{WB} an den gesamten Russimmissionen grösser als der Anteil von eBC_{FF} (Ausnahme am städtischen, verkehrsbelasteten Standort Bern-Bollwerk). Abbildung 5 zeigt die zeitliche Entwicklung des prozentualen Anteils von eBC_{WB} am gesamten eBC. Mit der anhaltenden Erneuerung der Fahrzeugflotte sowie der Erhöhung des Anteils von elektrisch angetriebenen Fahrzeugen kann angenommen werden, dass in den kommenden Jahren die Konzentrationen von eBC_{FF} weiter abnehmen wird und der Trend des ansteigenden Anteils von eBC_{WB} an den gesamten Russimmissionen weiterhin anhält.

Tabelle 4: Teil-Sen Trend von eBC_{WB} und eBC_{FF}. Der Trend wurde für die Zeit seit Messbeginn mit Aethalometer ([Empa 2020](#)) bis Ende 2021 berechnet.

Stationstyp	Messstation	Trend eBC _{WB} [Unsicherheit] µg/(m ³ ·Jahr)	Trend eBC _{FF} [Unsicherheit] µg/(m ³ ·Jahr)
Städtisch, verkehrsbelastet	Bern-Bollwerk	-0.05 [-0.06, -0.04]	-0.11 [-0.12, -0.10]
Städtisch (Alpennordseite)	Zürich-Kaserne	-0.01 [-0.01, 0.00]	-0.05 [-0.06, -0.04]
Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpennordseite)	Payerne	0.00 [-0.01, 0.00]	-0.02 [-0.03, -0.01]
Ländlich, unterhalb 1000 m (Alpensüdseite)	Magadino-Cadenazzo	0.00 [-0.01, 0.00]	-0.05 [-0.07, -0.04]
Ländlich, oberhalb 1000 m	Rigi-Seebodenalp	0.00 [0.00, 0.01]	-0.01 [-0.02, -0.01]

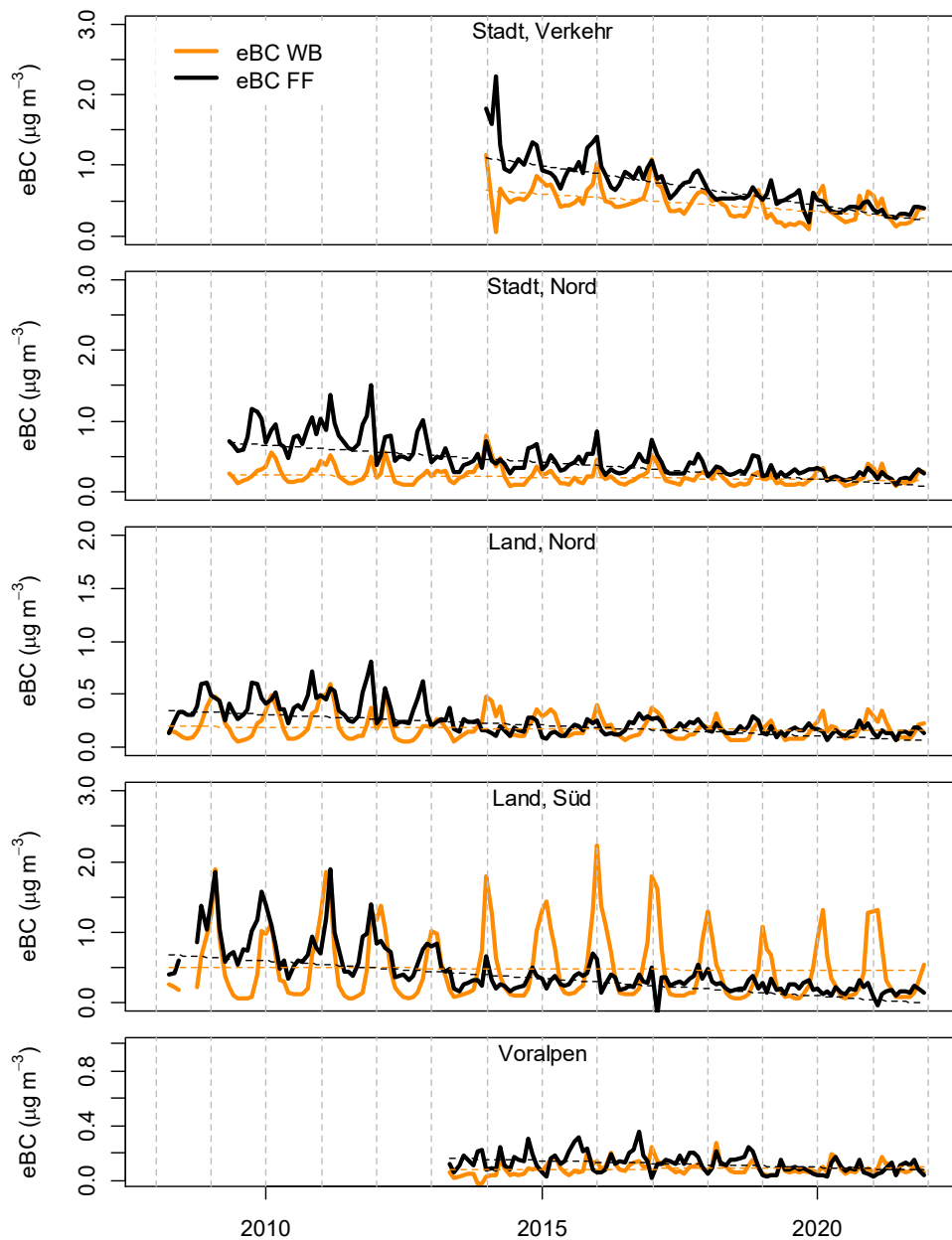


Abb. 4: Zeitreihen und Theil-Sen Trend der Monatsmittelwerte von eBC von Emissionen durch Holzfeuerungen und durch Emissionen aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen. Dargestellt sind die Auswertungen von den NABEL-Standorten, an denen mehrjährige Messreihen der Lichtabsorption von Feinstaub bei mehreren Wellenlängen vorliegen. Die Zuordnung von Messstation und Stationstyp ist gemäss Tabelle 1.

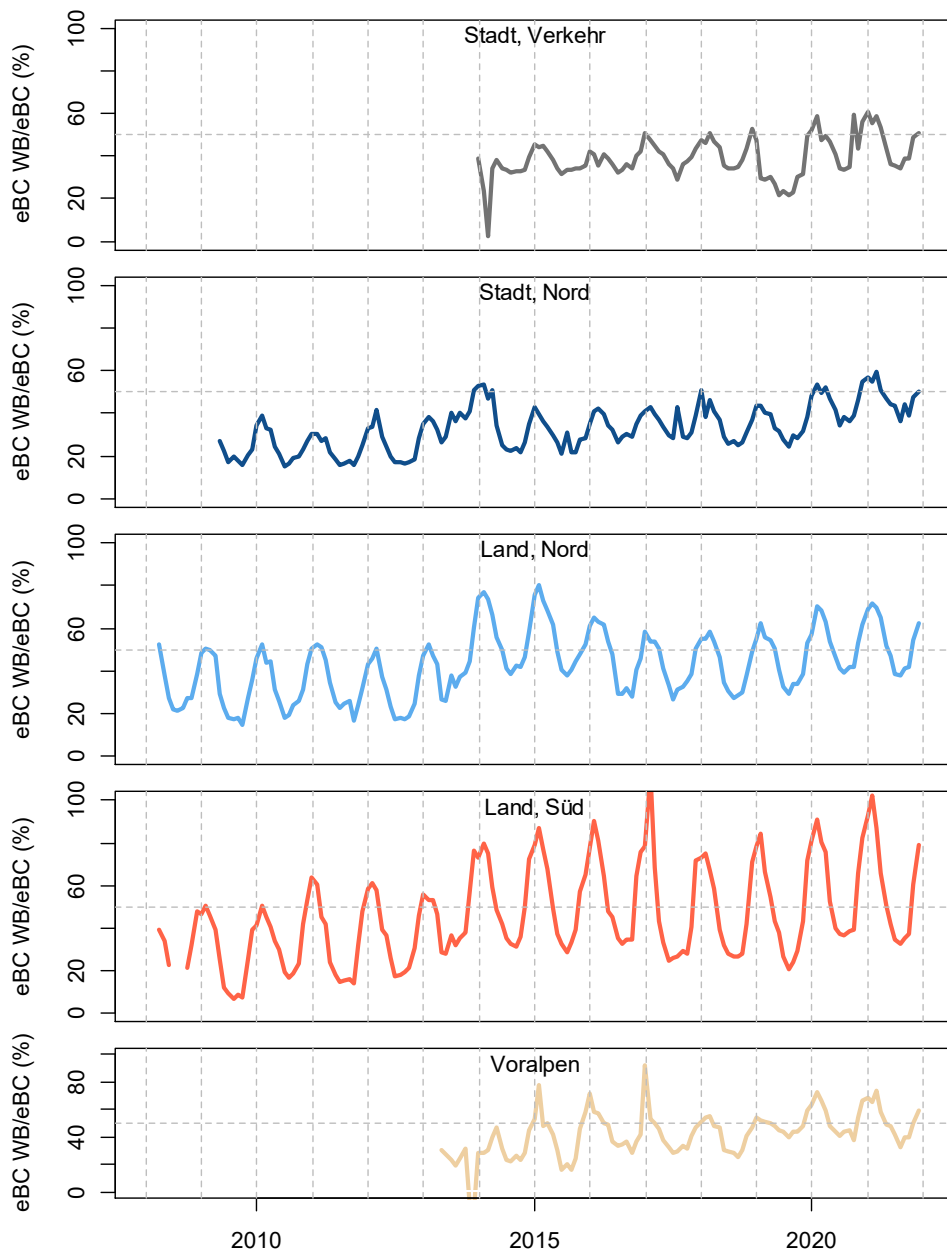


Abb. 5: Zeitreihen des monatlichen prozentualen Anteils von Russ aus Holzfeuerungen (eBC_{WB}) an den gesamten Russimmissionen (eBC).

4 Anhang 1 - 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. EC und BC sind ebenfalls keine eindeutig definierten Messgrössen, die Messwerte von EC und BC hängen von der angewendeten Messmethode ab.

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 nicht direkt vergleichbar, da gefärbte oder hitzebeständige Anteile von organischen Kohlenstoffverbindungen (OC) nicht in gleichem Masse zu den verschiedenen Messverfahren beitragen.

Damit Messwerte von Russ schweizweit und international verglichen werden können, ist es notwendig, die Daten auf ein einheitliches und klar definiertes Messverfahren (Konventionsmethode) zu beziehen. Als einheitliches Verfahren hat sich die sogenannte thermisch-optische Methode mit einem definierten Temperaturprotokoll etabliert. Es handelt sich hierbei um eine thermische Methode zur Bestimmung von EC, bei der mittels optischem Verfahren eine Pyrolysekorrektur durchgeführt wird. Diese Methode gilt in Europa als Referenzverfahren für die Bestimmung von EC in der Außenluft ([EN16909 2017](#)).

In diesem Projekt wird Russ grösstenteils mit kontinuierlichen optischen Methoden als lichtabsorbierender oder schwarzer Kohlenstoff BC gemessen. Durch regelmässige Vergleichsmessungen (jeden zwölften Tag) mit thermisch-optischen EC-Messungen wird der Zusammenhang zwischen den beiden Messmethoden an allen Standorten fortwährend 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 gemäss der von Petzold et al. (2013) vorgeschlagenen und breit akzeptierten Terminologie als equivalent black carbon (eBC) bezeichnet.

Für die kontinuierliche optische Messung von BC werden im NABEL seit 2021 ausschliesslich sogenannte Aethalometer verwendet, vorher wurden an verschiedenen Stationen auch Multi-angle Absorption Photometer (MAAP) eingesetzt. Eine detaillierte Aufstellung der an den Stationen eingesetzten Messgerätetypen findet sich im Technischen Bericht des NABEL ([Empa 2020](#)). Optische Messgeräte für BC können mit einem vergleichsweise geringen Aufwand betrieben werden. An allen Messstationen zeigten sich lineare Beziehungen zwischen BC und dem thermisch-optisch gemessenen EC. Die lineare Beziehung zwischen BC und EC ist dabei standortspezifisch und kann zeitlich variieren.

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 beeinträchtigt werden, auf der anderen Seite kann in Karbonaten gebundener Kohlenstoff zum EC-Messsignal beitragen. Durch Verwendung von PM2.5-Vorabscheidern wird der Einfluss solcher störenden Feinstaubkomponenten minimiert. Bis Ende 2010 wurden BC Messungen teilweise auch mit PM1- und PM10-Vorabscheider durchgeführt.

Aethalometer

Mit den eingesetzten Aethalometer Instrumenten (Magee AE-31 und AE-33) wird die Absorption von Feinstaubpartikeln bei sieben verschiedenen Wellenlängen von $\lambda=370\text{nm}$ (nahes Ultraviolett, UV) bis $\lambda=950\text{nm}$ (nahes Infrarot, IR) gemessen. Die Feinstaubpartikel werden dazu auf einem Filter gesammelt, durch die Messung des transmittierten Lichtes durch das Filter wird der Lichtabsorptionskoeffizient des Feinstaubes b_{abs} kontinuierlich bestimmt. Der Lichtabsorptionskoeffizient des Feinstaubes b_{abs} hängt von der Wellenlänge des Lichtes ab, d.h. $b_{\text{abs}}=b_{\text{abs}}(\lambda)$. In den Messgeräten sind Standardwerte zur Umrechnung der gemessenen Lichtabsorptionskoeffizienten in Konzentration von BC hinterlegt (sogenannte MAC-Werte, mass absorption cross section). Diese in den Messgeräten vordefinierten Standardwerte werden nicht verwendet, die Bestimmung von eBC basiert auf der Messung der Lichtabsorptionskoeffizienten (siehe unten).

Aufgrund der unterschiedlichen Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption können die Daten von Aethalometer-Instrumenten verwendet werden, um den Anteil von Russ aus der Verbrennung von Holz und aus Emissionen von Motoren (insbesondere Dieselmotoren) zu unterscheiden ([Sandradewi et al. 2008](#), [Herich et al. 2011](#)). In Abschnitt 5 wird die Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption ausgenutzt, um die Anteile dieser beiden dominierenden Quellen von Russ abzuschätzen.

Ein Nachteil des Aethalometers ist, dass aus der gemessenen Lichtabsorption nicht direkt der Lichtabsorptionskoeffizient der luftgetragenen Feinstaubpartikel 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 Lichtabsorptionskoeffizienten und damit von (BC) ist eine nachträgliche Korrektur der Messwerte notwendig ([Weingartner et al. 2003](#)). Beim neueren Aethalometer-Typ (Modell AE-33) wird PM2.5 gleichzeitig auf zwei Bereichen des Filters mit unterschiedlichen Volumenströmen gesammelt. Dadurch kann der oben erwähnte Einfluss der Filterbelegung auf die gemessene Lichtabsorption bestimmt und das Messsignal entsprechend korrigiert werden (Dual Spot Technologie).

MAAP

Beim Multi-angle Absorption Photometer (MAAP) ([Petzold und Schönlinner 2004](#)) 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 Feinstaubpartikel berechnet werden. Die Kombination von Lichttransmission und Lichtreflexion liefert gegenüber dem Aethalometer genauere Messungen der Lichtabsorption. Eine nachträgliche Datenkorrektur ist beim MAAP nicht erforderlich. Beim MAAP kommt eine Lichtquelle mit einer Wellenlänge von $\lambda=670\text{nm}$ zum Einsatz.

Thermisch-optische OC/EC Bestimmung

Im Labor wird mit einem OC/EC Analysator der Firma Sunset Laboratory Inc. die Konzentration von elementarem und organischem Kohlenstoff im Feinstaub (PM2.5) bestimmt. Es werden PM2.5-Proben untersucht, welche an jedem 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 der Lichtabsorptionskoeffizient von PM2.5 gemessen wird. Die thermisch-optisch bestimmten EC-Werte dienen zur Umrechnung der mit Aethalometer und MAAP gemessenen Lichtabsorptionskoeffizienten in die Konzentration von equivalent black carbon, eBC.

Bei der thermisch-optischen Bestimmung von OC und EC wird die PM2.5-Filterprobe stufenweise aufgeheizt und dabei kontinuierlich mit Licht eines roten Lasers (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 zugehörige Kohlenstoffmenge bestimmt. In einem zweiten Schritt wird das Filter unter einer oxidierenden Atmosphäre (He/O_2) erneut aufgeheizt, dabei verbrennen die 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 kann auf dem Filter OC in EC umgewandelt werden (Pyrolyse), die Menge des pyrolysierten Kohlenstoffes muss daher bestimmt und dem OC zugerechnet werden. Dazu wird die 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, an dem die Transmission während der EC Verbrennung wieder der Lichttransmission vor Beginn der thermisch-optischen Analyse entspricht (sog. "split-time"). Der vor der "split-time" verbrannte EC Anteil wird somit dem OC zugerechnet. Das stufenweise Aufheizen des Filters ist exakt definiert und erfolgt im europäischen Referenzverfahren gemäss EUSAAR2-Protokoll ([Cavalli et al. 2010](#)). Die beschriebene thermisch-optische Methode mit Pyrolysekorrektur durch Lichttransmissionsmessung wird auch als TOT-Methode bezeichnet (thermal optical transmission method). Das thermisch-optische Verfahren (TOT) mit dem EUSAAR2 Temperaturprotokoll ist die europäische Referenzmethode für die Bestimmung von EC und OC in Feinstaubproben ([EN16909 2017](#)).

Qualitätssicherung

Seit Beginn 2011 wird an allen Stationen Russ (bzw. BC und EC) in PM2.5 bestimmt. Zuvor wurden an den Standorten Basel-Binningen, Bern-Bollwerk, Härkingen-A1, Lugano-Universität und Dübendorf-Empa PM1-Vorabscheider verwendet. Die Verwendung von unterschiedlichen Vorabscheidern vor 2011 erwies sich im Nachhinein als nachteilig, da die Vergleichbarkeit der Messwerte erschwert wird. An den Stationen mit einem PM2.5-Vorabscheider wird ein etwas grösserer Anteil der gesamten luftgetragenen Russmenge gemessen als an den Stationen mit einem PM1 Vorabscheider. Um gut interpretierbare Messreihen zu erhalten sollten die Messwerte mit PM1-Vorabscheidern umgerechnet werden, so dass die Messreihen konsistent mit der Russbelastung in der PM2.5-Feinstaubfraktion sind. Diese Umrechnungen wurden durchgeführt, sie werden nachfolgend beschrieben. Es gilt zu berücksichtigen, dass die umgerechneten Russkonzentrationen in PM1 einen etwas grösseren Fehler aufweisen, als die Messungen die mit PM2.5-Vorabscheidern durchgeführt wurden.

Die Umrechnungen basieren auf parallel durchgeführten Messungen von EC in verschiedenen Feinstaubfraktionen. In Payerne, Basel-Binningen und Bern-Bollwerk wurde während Messkampagnen elementarer Kohlenstoff zeitgleich in PM1, PM 2.5 und PM10 bestimmt, sowie in Härkingen und Lugano in PM1 und PM2.5. Der mittlere EC Anteil in den verschiedenen Feinstaubfraktionen ist (soweit Parallelmessungen vorhanden sind) in Tabelle A.1 dargestellt.

Tabelle A.1 zeigt, dass an allen Standorten mehr als 82% des EC in PM2.5 bereits in PM1 gefunden wurden. An der Messstation Bern-Bollwerk ist der Unterschied zwischen dem Russanteil in PM2.5 und in PM10 relativ gross. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich an mineralischen Feinstaubkomponenten, insbesondere Karbonaten, welche am verkehrsbelasteten Standort Bern-Bollwerk einen grossen Beitrag zur Massenkonzentration von groben Partikeln (Durchmesser von 2.5 bis 10 μm) 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.

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	beide Zeitperioden	107%	100%	86%
Bern-Bollwerk	12.08.08-26.07.09	130%	100%	96%
Basel-Binningen	12.08.08-26.07.09	112%	100%	91%
Härkingen	11.01.11-25.12.11	-	100%	89%
Lugano-Universität	05.01.06-31.12.06	-	100%	91%

Tab. A.1: Russfraktion in PM1, PM2.5 und PM10.

Die Messwerte für EC mit PM1-Vorabscheider (Messungen von Basel-Binningen, Bern-Bollwerk, Härkingen-A1, Lugano-Universität und Dübendorf-Empa bis 2011) wurden basierend auf dem in Tab. 3 aufgeführten stationsabhängigen Anteil von Russ in den verschiedenen Grössenfraktionen auf PM2.5 umgerechnet. Konkret bedeutet dies, dass die EC-Werte von Basel-Binningen, Härkingen-A1, Lugano-Universität und Dübendorf-Empa bis Ende 2010 mit einem einen Faktor 1.11 multipliziert wurden. Dieser Faktor wurde als Mittelwert der Anteile von Russ in PM1 und PM2.5 der Stationen Payerne, Basel-Binningen, Härkingen-A1 und Lugano-Universität bestimmt. Für Bern-Bollwerk wurde ein Faktor von 1.04 angewendet.

Bestimmung von eBC

Werden Messungen der Lichtabsorption von Feinstaub mit Umrechnungsfaktoren (bzw. Massenabsorptionsquerschnitt, mass absorption cross section, MAC) in BC umgerechnet, welche stationsspezifisch ermittelt wurden, so wird die ermittelte Grösse als equivalent black carbon eBC bezeichnet ([Petzold et al. 2013](#)). Es gilt

$$eBC = b_{abs}(\lambda)/MAC(\lambda) \quad (A1)$$

oder auch

$$b_{abs}(\lambda) = MAC(\lambda) \cdot eBC \quad (A2)$$

Soll eine Äquivalenz von eBC mit EC gemäss europäischer Referenzmethode erreicht werden, dann können die zugehörigen MAC als Steigung einer linearen Regression der mit Aethalometer oder MAAP gemessenen Lichtabsorptionskoeffizienten $b_{abs}(\lambda)$ gegen die mit der thermisch-optisch Referenzmethode bestimmten EC-Konzentrationen berechnet werden. Die Bestimmung von eBC durch Vergleich von Messwerten eines kontinuierlichen Verfahrens mit denen eines Referenzverfahrens ist daher sehr ähnlich zur Korrektur von kontinuierlich gemessenem Feinstaub. Entsprechend wird eBC mit der gleichen Methode berechnet, welche im NABEL auch für PM2.5 und PM10 eingesetzt wird ([Müller und Hüglin 2014](#)). Diese beruht auf einer gleitenden Regression von $b_{abs}(\lambda)$ gegen EC. Im Unterschied zur Korrektur von PM2.5 und PM10 weisen die linearen Regressionen von $b_{abs}(\lambda)$ gegen EC typischerweise kleine Achsenabschnitte auf. Gemäss dem der Berechnung von eBC zugrundeliegenden Modells (Gleichung A2) wird kein Achsenabschnitt (oder Offset) erwartet. Daher wird typischerweise bei der Berechnung von eBC keine Offset-Korrektur durchgeführt, oft wird der berechnete Umrechnungsfaktor auch als physikalische Grösse (Massenabsorptionsquerschnitt in m^2/g) interpretiert.

Auch in diesem Projekt wurde daher der Achsenabschnitt vernachlässigt und auf eine entsprechende Korrektur verzichtet (siehe auch Anhang 2). Da EC nur jeden 12. Tag gemessen wird, ist die Breite des Regressionsfensters mit 181 Tagen zudem grösser als bei der Korrektur von PM2.5 und PM10.

Abbildung A.1 zeigt exemplarisch für die städtische Messstation Zürich-Kaserne den Zeitverlauf der berechneten Massenabsorptionsquerschnitte, bzw. MAC-Werte. Die berechneten MAC-Werte zeigen eine recht grosse zeitliche Variation. Massenabsorptionsquerschnitte werden grundsätzlich durch die physikalischen Eigenschaften des Feinstaubs bestimmt. Die beobachtete zeitliche Variation kann jedoch kaum durch eine entsprechende Variation der physikalischen Eigenschaften von PM2.5 erklärt werden. Es ist vielmehr davon auszugehen, dass die berechneten MAC-Werte als empirische Umrechnungsfaktoren verstanden werden müssen, welche auch durch das individuelle Verhalten von Messgeräten beeinflusst werden.

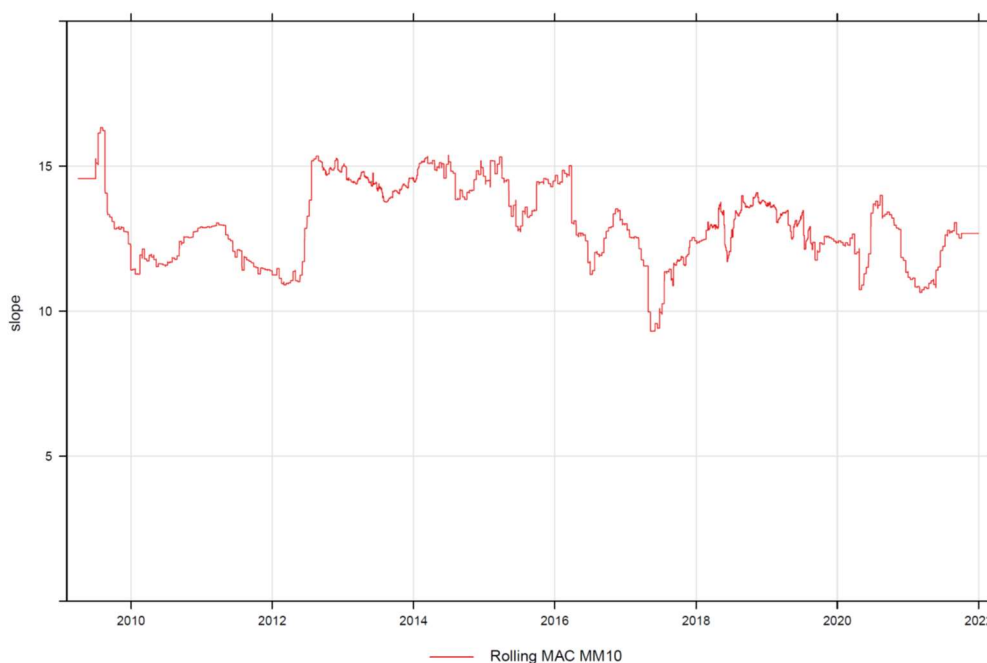


Abbildung A.1: Zeitverlauf der Umrechnungsfaktoren (Massenabsorptionsquerschnitt, MAC) für den städtischen Standort Zürich-Kaserne. Die MAC-Werte wurden als die Steigung einer rollenden linearen Regressionen von täglichen $b_{abs}(\lambda)$ gegen EC (Fensterbreite von 181 Tagen) berechnet.

Mit den berechneten MAC-Werten können die gemessenen $b_{abs}(\lambda)$ gemäss Gleichung A1 in eBC umgerechnet werden. Abbildung A.2 zeigt Streudiagramme der resultierenden täglichen eBC-Konzentrationen gegen EC aufgeteilt für die verschiedenen Messjahre. Es ist erkennbar, dass eBC-Konzentrationen gut mit den Referenzmessungen von EC übereinstimmen, ein formaler Nachweis der Äquivalenz beider Grössen findet sich in Anhang A2. Es kann hier festgehalten werden, dass die Einführung der Messgrösse eBC die Vergleichbarkeit von Messungen an unterschiedlichen Standorten und mit verschiedenen optischen Messverfahren erleichtert. Das angewendete Konzept aus durchgehenden optischen Messungen der Lichtabsorption von PM2.5 mit hoher zeitlicher Auflösung und der stichprobenartigen parallelen Messung von EC mit der Referenzmethode erlaubt mit vertretbarem Aufwand konsistente Zeitreihen von Russkonzentrationen (ausgedrückt als eBC) zu bestimmen.

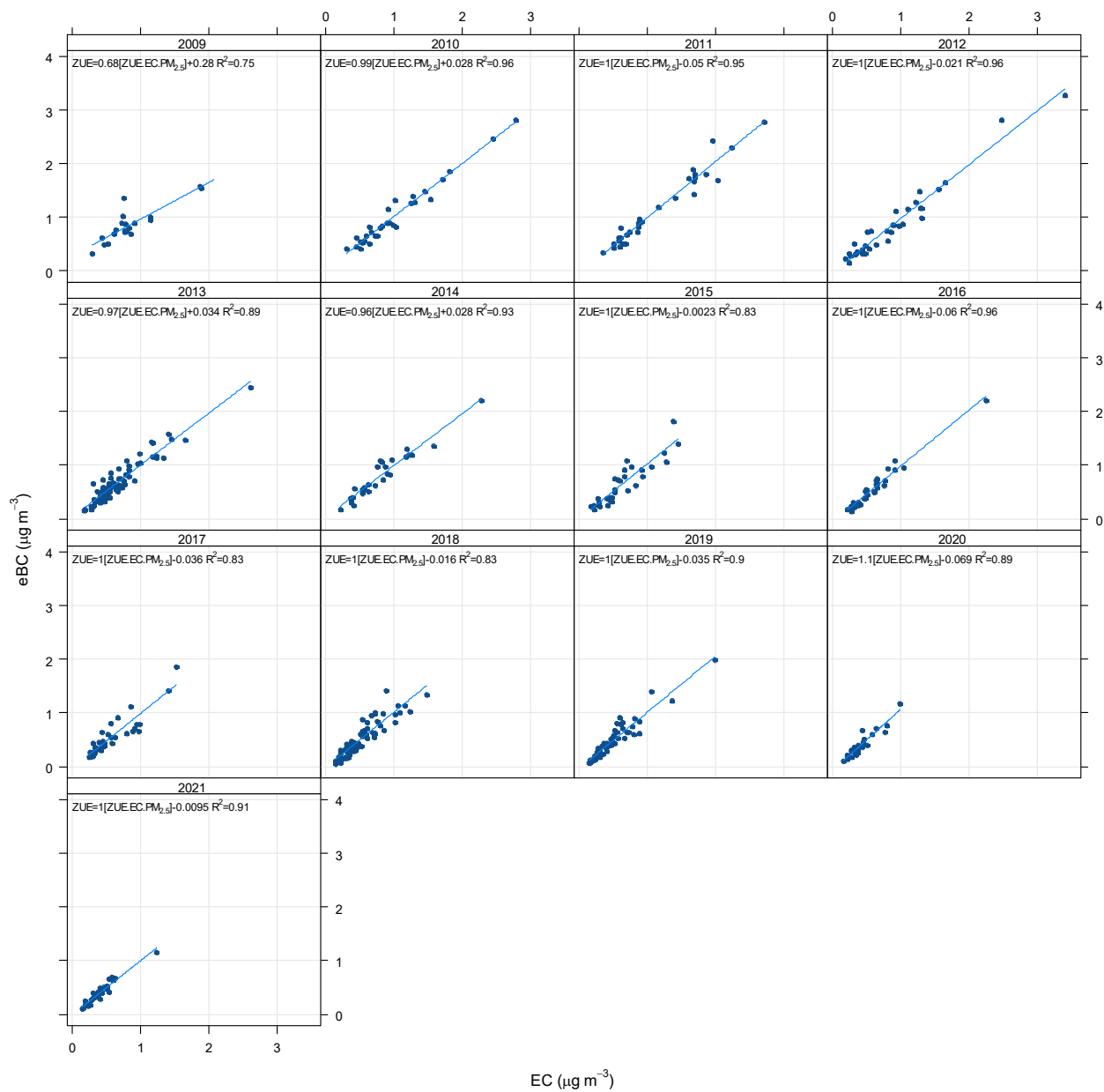


Abbildung A.2: Vergleich der Tagesmittelwerte von eBC und EC am städtischen Standort Zürich-Kaserne getrennt für die verschiedenen Messjahre.

Bestimmung der Beiträge der beiden Hauptquellen von Russ

Die Messungen der Lichtabsorption von Feinstaubpartikeln bei verschiedenen Wellenlängen vom nahen Infrarot bis in den ultravioletten Bereich können genutzt werden, um die Beiträge durch Emissionen von Holzfeuerungen und durch die Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen an den gesamten Russmissionen zu berechnen. Dabei wird angenommen, dass die Lichtabsorption des Feinstaubes ausschliesslich durch Emissionen dieser beiden Quellen bestimmt wird, eine Annahme, die für PM2.5 in der Schweiz gerechtfertigt ist. Der Lichtabsorptionskoeffizient $b_{\text{abs}}(\lambda)$ kann dann ausgedrückt werden durch

$$b_{\text{abs}}(\lambda) = b_{\text{abs FF}}(\lambda) + b_{\text{abs WB}}(\lambda) \quad (\text{A3})$$

mit $b_{\text{abs FF}}(\lambda)$ und $b_{\text{abs WB}}(\lambda)$ den Lichtabsorptionskoeffizienten der Beiträge durch Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen (fossil fuel, FF) sowie von Holzfeuerungen (wood burning, WB). Die Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption von PM2.5 ist proportional zu $\lambda^{-\alpha}$, mit dem sogenannten Absorptions Ångstrom-Exponenten α . Die Absorptions Ångstrom-Exponenten von Emissionen aus Holzfeuerungen α_{WB} und aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen α_{FF} sind positiv, d.h. der Lichtabsorptionskoeffizient nimmt mit steigender Wellenlänge ab. Zudem ist α_{WB} grösser als α_{FF} , Feinstaubpartikel aus Holzfeuerungen haben eine stärkere Lichtabsorption im ultravioletten Bereich als Feinstaubpartikel aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen. Sofern α_{WB} und α_{FF} bekannt sind, können die Beiträge der beiden zugehörigen Quellen von Russ anhand von Messungen bei zwei Wellenlängen (typischerweise bei 470 nm und 950 nm) bestimmt werden ([Sandradewi et al. 2008](#)). Untersuchungen haben gezeigt, dass für α_{WB} und α_{FF} mittlere Werte von 1.68 und 0.9 angenommen werden können ([Zotter et al. 2016](#)). Dieser Ansatz, basierend auf der Wellenlängenabhängigkeit der Lichtabsorption des Feinstaubes die Beiträge von Emissionen aus Holzfeuerungen ($e\text{BC}_{\text{WB}}$) und aus der Verbrennung von fossilen Brenn- und Treibstoffen ($e\text{BC}_{\text{FF}}$) am gesamten eBC zu bestimmen, wird in der Literatur Aethalometermodell genannt. Es sollte angemerkt werden, dass sich das Aethalometermodell als pragmatischer und qualitativer Ansatz zur Bestimmung von $e\text{BC}_{\text{WB}}$ und $e\text{BC}_{\text{FF}}$ bewährt hat, dieser Ansatz jedoch auch Schwächen hat und die Resultate mit Vorsicht interpretiert werden sollten ([Grange et al. 2020](#)). Die Schwächen des Aethalometermodells sind darauf zurückzuführen, dass die Annahme von konstanten α_{WB} und α_{FF} eine Vereinfachung darstellt, ausserdem verändern sich die optischen Eigenschaften der Russemissionen durch chemische und physikalische Prozesse in der Atmosphäre.

5 Anhang 2 - Äquivalenz von eBC

Mit dem in Anhang 1 beschriebenen Verfahren werden die Lichtabsorptionsmessungen in äquivalenten schwarzen Kohlenstoff eBC umgerechnet. Der Begriff Äquivalenz ist im Zusammenhang mit den Anforderungen an gesetzliche Messungen von Luftschadstoffen in Europa klar definiert ([GDE 2010](#)). In diesem Anhang werden die berechneten eBC-Werte mit den Referenzmessungen von EC verglichen und die Äquivalenz beider Messgrößen untersucht.

Unsicherheit von BC und EC Messungen (between sampler uncertainty)

Durch Parallelmessungen zweier identischer Messgeräte, können die zufälligen Messfehler abgeschätzt werden als

$$u_{bs} = \frac{\sum_{i=1}^n (y_{i,1} - y_{i,2})^2}{2n}$$

u_{bs} steht für between instrument bzw. between sampler uncertainty, $y_{i,1}$ und $y_{i,2}$ sind die einzelnen Messwerte der beiden identischen Messgeräte und n ist die Anzahl paralleler Messungen. Für EC kann der zufällige Messfehler analog aus Doppelbestimmungen der gleichen PM2.5 Filterproben abgeleitet werden. Abbildung A.3 zeigt ein Streudiagramm parallel erhobener Stundenmittelwerte und Tagesmittelwerte zweier Aethalometer AE33. Um die Messwerte und die zugehörigen zufälligen Messfehler besser interpretieren zu können sind die Werte als BC angegeben. Hierzu wurden die gemessenen Lichtabsorptionskoeffizienten bei 880 nm ($b_{abs}(880)$) durch den vom Gerätehersteller standardmässig hinterlegten Umrechnungsfaktor ($MAC(880)=14.54$) geteilt. Der zufällige Messfehler der Aethalometer ist klein und beträgt für Stundenmittelwerte $u_{bs} = 0.03 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und für Tagesmittelwerte $u_{bs} = 0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

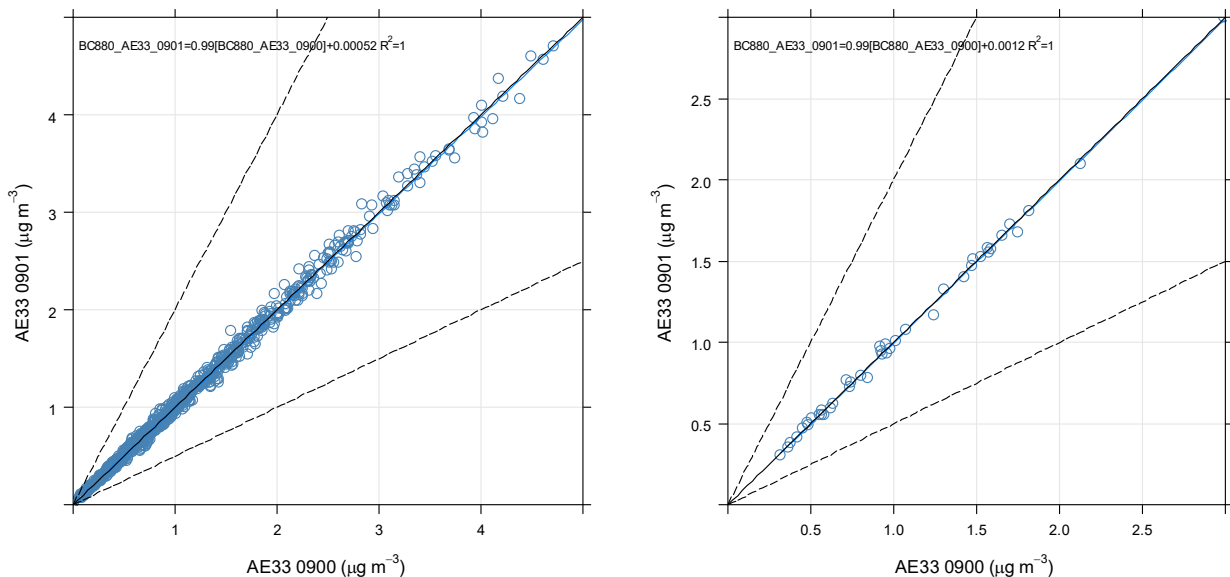


Abb. A.3: Parallele Messung von black carbon BC mit zwei identischen Aethalometer Instrumenten (Magee Scientific AE33). Dargestellt sind Stundenmittelwerte (links) und Tagesmittelwerte (rechts) über einen Zeitraum von 42 Tagen (06.09.-17.10.2019).

Abbildung A.4 zeigt ein Streudiagramm für Doppelbestimmungen von EC in PM2.5 (Tagesproben). Der zufällige Fehler u_{bs} beträgt für EC ebenfalls $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

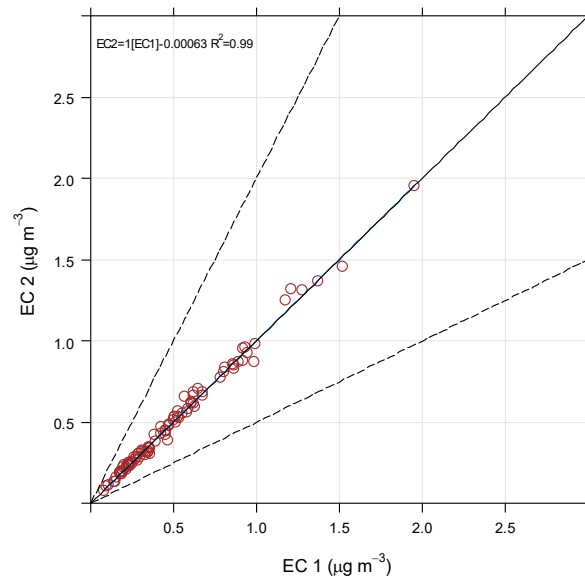


Abb. A.4: Doppelbestimmung von elementarem Kohlenstoff EC in PM2.5. Dargestellt sind insgesamt 91 Tagesmittelwerte von Messungen an den NABEL-Stationen Basel-Binningen, Bern-Bollwerk, Magadino-Cadenazzo, Payerne und Zürich-Kaserne, die Filterproben wurden in der Zeit zwischen 07.06.2018 und 29.05.2019 gesammelt.

Vergleich von eBC und EC

Gegenüber EC als Referenz zeigen die täglichen Mittelwerte von eBC während der gesamten Messzeit (siehe Tabelle 2) einen mittleren Fehler von 0.10- 0.30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (root mean square error, RMSE), siehe Tabelle A.1. An den stärker belasteten Messstationen (Bern-Bollwerk, Härkingen-A1, Lugano-Universität und Magadino-Cadenazzo) sind die Fehler leicht höher als an den anderen Standorten. Die systematischen Unterschiede zwischen eBC und EC sind sehr klein, der mean bias error ist an allen Messstationen $\leq 0.03 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Tabelle A.1). Abbildung A.5 zeigt exemplarisch die Häufigkeitsverteilungen der Differenzen der täglichen eBC- und EC-Werte an den beiden Messstationen Härkingen-A1 und Basel-Binningen.

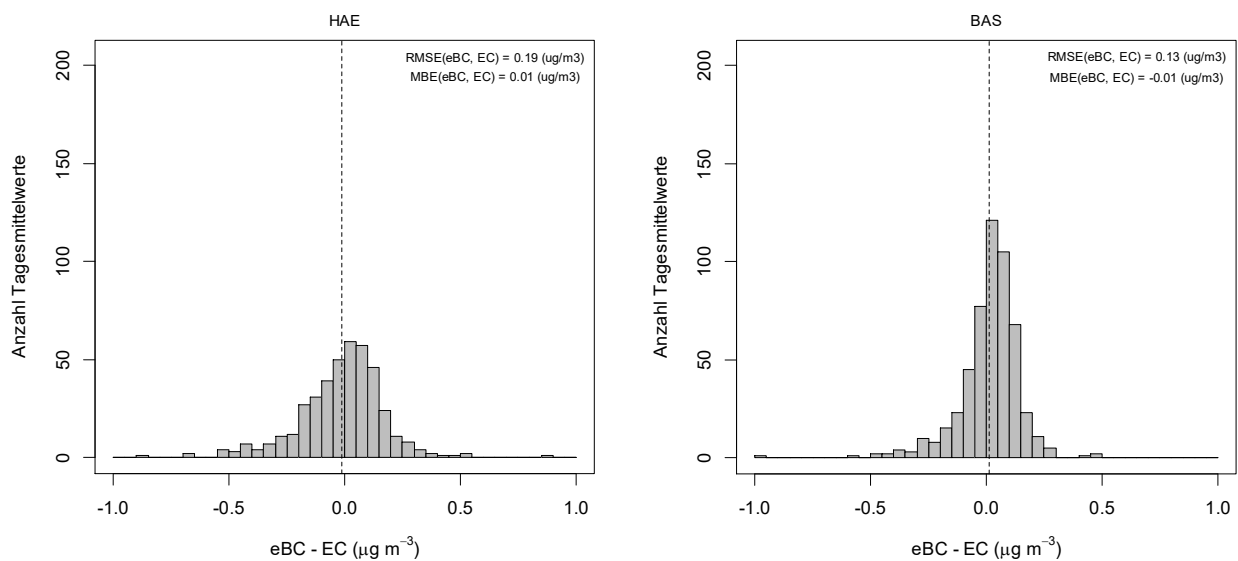


Abb. A.5: Häufigkeitsverteilungen der täglichen Differenzen von eBC und EC an den beiden Messstationen Härkingen-A1 (HAE) und Basel-Binningen (BAS) seit Messbeginn (siehe Tabelle 1) und bis Ende 2021.

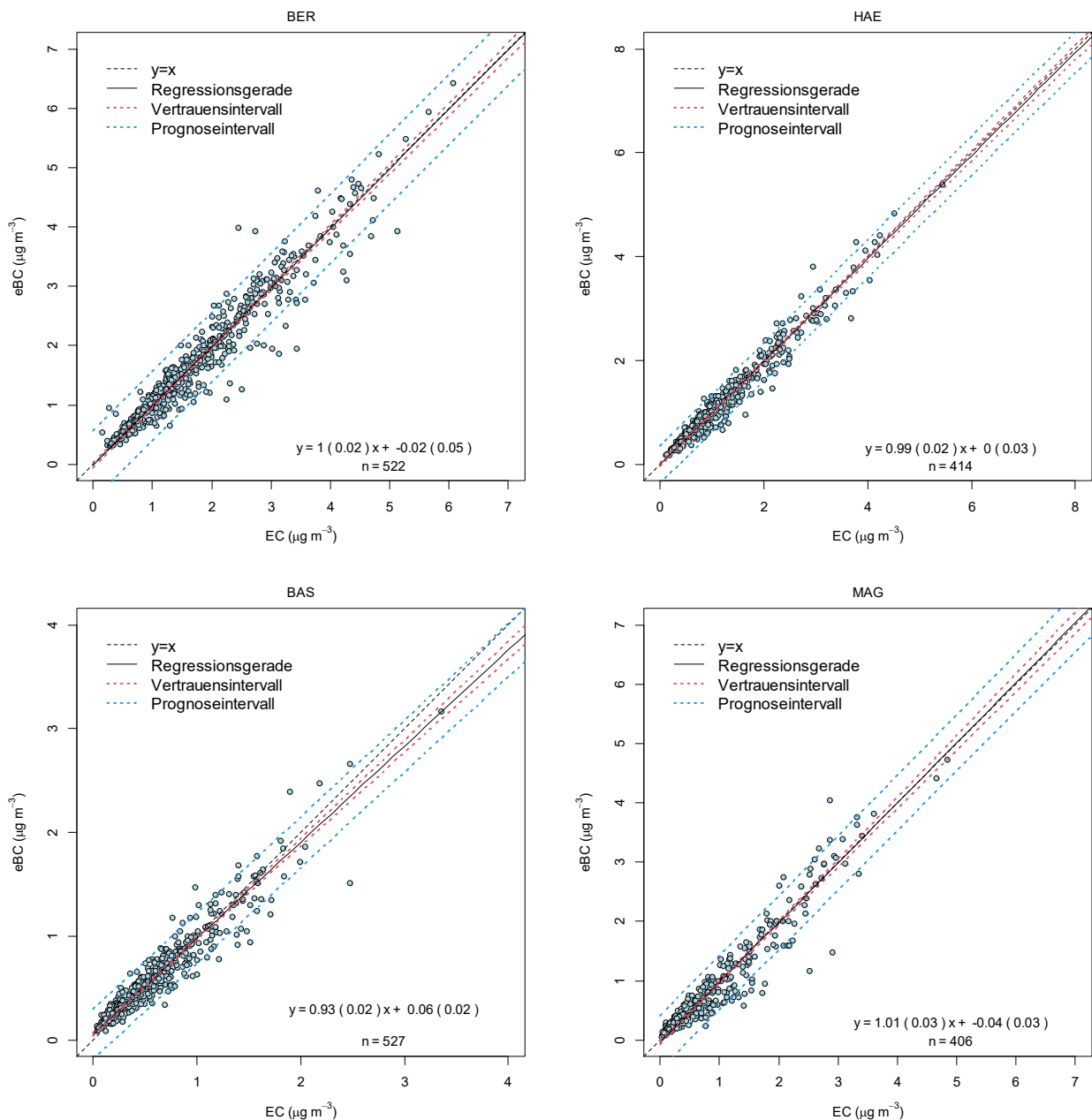


Abb. A.6: Streudiagramme von eBC und EC (Tagesmittelwerte) für die Messstationen Bern-Bollwerk (BER), Härkingen-A1 (HAE), Basel-Binningen (BAS) und Magadino-Cadenazzo (MAG). Die Regressionsgeraden, Regressionsgleichung inkl. Unsicherheiten, sowie die Anzahl der verfügbaren Messungen sind ebenfalls angegeben. In den Abbildungen sind alle vorhandenen Vergleichsmessungen von eBC und EC seit Messbeginn (siehe Tabelle 1) bis Ende 2021 berücksichtigt.

Abbildung A.6 zeigt Streudiagramme der Tagesmittelwerte von eBC gegen EC für vier der neun Messstationen. Die Parameter einer orthogonalen Regressionsrechnung sind ebenfalls angegeben. Für alle neun Messstationen sind die Parameter der Regressionsrechnung inkl. der Unsicherheiten in Tabelle A.1 aufgeführt. Bei diesen Regressionsrechnungen wurden Daten der gesamten Messreihen bis Ende 2021 berücksichtigt (siehe Tabelle 1). Die Übereinstimmung von eBC und EC ist hoch. Allerdings sind nur an den beiden Messstationen Bern-Bollwerk und Härkingen-A1 die Schätzungen sowohl von Achsenabschnitt als auch Steigung nicht signifikant verschieden von Null bzw. Eins. An den anderen Stationen ist die Steigung leicht kleiner als Eins, was durch einen positiven Achsenabschnitt kompensiert wird. Eine Ausnahme

stellt der schwach belastete Standort Rigi-Seebodenalp dar, wo die Steigung mit 0.59 deutlich unter Eins liegt und der Achsenabschnitt mit $0.10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vergleichsweise gross ist.

Messstation	n	RMSE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	MBE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Achsenabschnitt $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Steigung $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Basel-Binningen	527	0.13	-0.01	0.06 [± 0.02]	0.93 [± 0.02]
Bern-Bollwerk	522	0.30	-0.02	-0.02 [± 0.05]	1.00 [± 0.02]
Dübendorf-Empa	344	0.15	0.00	0.02 [± 0.02]	0.96 [± 0.03]
Härkingen-A1	414	0.19	0.01	0.00 [± 0.03]	0.99 [± 0.02]
Lugano-Universität	488	0.22	-0.01	0.06 [± 0.03]	0.95 [± 0.03]
Magadino-Cadenazzo	406	0.23	0.03	0.04 [± 0.03]	1.01 [± 0.03]
Payerne	674	0.10	0.00	0.04 [± 0.01]	0.92 [± 0.05]
Rigi-Seebodenalp	247	0.11	-0.01	0.10 [± 0.01]	0.59 [± 0.05]
Zürich-Kaserne	510	0.13	0.00	0.03 [± 0.02]	0.96 [± 0.02]

Tab. A.1: Vergleich von täglichen Mittelwerten von eBC und EC an den NABEL-Messstationen an denen Messungen durchgeführt werden. Der Vergleich umfasst die Zeit seit Beginn der Messungen (siehe Tabelle 1) bis Ende 2021. Aufgrund des unterschiedlichen Messbeginns an den verschiedenen Stationen unterscheidet sich die Anzahl von Vergleichsmessungen (n). Als Kenngrössen des Vergleichs sind der RMSE (root mean square error), MBE (mean bias error) sowie die Parameter einer orthogonalen Regression angegeben.

Beim formalen Test der Äquivalenz von Nicht-Referenz-Messungen gemäss (GDE 2010) wird gefordert, dass Achsenabschnitt und Steigung einer orthogonalen Regression nicht signifikant verschieden von Null und Eins sind. Die Messwerte des Nicht-Referenzverfahrens (Kandidatenmethode) können dabei jedoch durch Abzug eines geschätzten Offsets und anschliessender Multiplikation eines Korrekturfaktors korrigiert werden. Offset und Korrekturfaktor werden dabei ebenfalls mittels orthogonaler Regression bestimmt.

Bei der Berechnung von eBC wurden die Messungen des Nicht-Referenzverfahrens (Lichtabsorptionskoeffizient b_{abs}) nur mit einem Korrekturfaktor (MAC) korrigiert, eine Korrektur des kleinen Offsets wurde nicht durchgeführt (siehe Anhang 1). Dies führt zu den signifikant von Null bzw. von Eins verschiedenen Achsenabschnitten und Steigungen bei den meisten Messstationen. Mit einer Korrektur des Offsets würden an allen Messstationen ausser an der schwach belasteten Station Rigi-Seebodenalp die formalen Anforderungen des Äquivalenznachweises erfüllt.

6 Literatur

- Cavalli, F., M. Viana, K. E. Yttri, J. Genberg, J. P. Putaud (2010). "Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol." Atmospheric Measurement Techniques **3**(1): 79-89.
- EKL (2013). Feinstaub in der Schweiz 2013. Statusbericht. Eidgenössische Kommission für Lufthygiene (EKL) Bern: 63 S.
- Empa (2020). Technischer Bericht des NABEL. Dübendorf.
- EN16909 (2017). Ambient air - Measurement of elemental carbon (EC) and organic carbon (OC) collected on filters. Brussels, European Committee for Standardization CEN.
- GDE (2010). Guide to the Demonstration of Equivalence of Ambient Air Monitoring Methods Report by an EC Working Group on Guidance for Demonstration of Equivalence.
- Grange, S. K., H. Lotscher, A. Fischer, L. Emmenegger, C. Hueglin (2020) "Evaluation of equivalent black carbon source apportionment using observations from Switzerland between 2008 and 2018." Atmospheric Measurement Techniques **13**, 1867-1885 DOI: 10.5194/amt-13-1867-2020.
- Heldstab, J., B. Schäppi, T. Künzle (2021). Black Carbon-Immissionen Schweiz und Liechtenstein. Resultate 2015, 2020 und 2030, INFRAS und Meteotest.
- Herich, H., C. Hueglin, B. Buchmann (2011). "A 2.5 year's source apportionment study of black carbon from wood burning and fossil fuel combustion at urban and rural sites in Switzerland." Atmospheric Measurement Techniques **4**(7): 1409-1420.
- Müller, M.C. Hüglin (2014). Evaluation von Methoden zur Korrektur von kontinuierlichen Feinstaubmesswerten (PM10) im NABEL. Projektbericht Empa. Dübendorf.
- Petzold, A., J. A. Ogren, M. Fiebig, P. Laj, S. M. Li, U. Baltensperger, T. Holzer-Popp, S. Kinne, G. Pappalardo, N. Sugimoto, *et al.* (2013). "Recommendations for reporting "black carbon" measurements." Atmospheric Chemistry and Physics **13**(16): 8365-8379.
- Petzold, A.M. Schönlinner (2004). "Multi-angle absorption photometry - a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon." Journal of Aerosol Science **35**(4): 421-441.
- Sandradewi, J., A. S. H. Prevot, S. Szidat, N. Perron, M. R. Alfarra, V. A. Lanz, E. Weingartner, U. Baltensperger (2008). "Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter." Environmental Science & Technology **42**(9): 3316-3323.
- Weingartner, E., H. Saathoff, M. Schnaiter, N. Streit, B. Bitnar, U. Baltensperger (2003). "Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of aethalometers." Journal of Aerosol Science **34**(10): 1445-1463.
- Zotter, P., H. Herich, M. Gysel, I. El-Haddad, Y. Zhang, G. Močnik, C. Hüglin, U. Baltensperger, S. Szidat, A. S. H. Prévôt (2016). "Evaluation of the absorption Ångström exponents for traffic and wood burning in the Aethalometer based source apportionment using radiocarbon measurements of ambient aerosol." Atmos. Chem. Phys. Discuss. **2016**: 1-29.