

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

Messbericht 2023

Andrea Fischer und Christoph Hüglin

Empa, Abteilung Luftfremdstoffe/Umwelttechnik

Überlandstrasse 129, 8600 Dübendorf

Dübendorf, September 2024

Impressum

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

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

Autoren: Andrea Fischer, Christoph Hüglin

Kontakt: andrea.fischer@empa.ch

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

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



Dübendorf, September 2024

Inhaltsverzeichnis

1	Zusammenfassung	2
2	Résumé	5
3	Messkonzept	7
	3.1 Messstationen und Messbetrieb	7
	3.2 Probenahme	10
	3.3 Analytik	10
	3.4 Toxizität	11
4	Resultate der PAK-Analysen	13
5	Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren	21
6	Literaturverzeichnis	34
	Anhang	39

1 Zusammenfassung

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) stellen wegen ihrer kanzerogenen und mutagenen Wirkung eine Gefahr für die menschliche Gesundheit dar (WHO Regional Office for Europe 2021 + 2013; EEA 2024; BAG 2020; Jameson 2019, U.S. EPA 2017, IARC 2010 + 2013). PAK entstehen bei der unvollständigen Verbrennung von organischen Materialien wie Holz, Kohle, Benzin, Tabak, Heiz- und Dieselöl oder Lebensmitteln. In der Natur entstehen PAK z.B. bei Wald- und Steppenbränden oder auch durch Vulkanaktivität. Die WHO (WHO Regional Office for Europe 2021) hat im Jahr 2021 einen Bericht zum Thema "Auswirkungen polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe als Luftschadstoffe auf die menschliche Gesundheit" veröffentlicht, in welchem Messresultate aus der Schweiz verwendet wurden (Fallstudie 2). Zudem stellt die WHO eine Software (AirQ+) zur Verfügung, mit der die gesundheitlichen Risiken aufgrund der Exposition gegenüber karzinogenen Luftschadstoffen (einschliesslich B(a)P) berechnet werden kann (WHO 2020). Aufgrund der Gesundheitsgefährdung durch PAK hat die Europäische Union in ihrer Richtlinie 2004/107/EC vom 15. Dezember 2004 (EU-Commission 2004) einen Zielwert für das krebserregende Benzo(a)pyren (BaP) im atmosphärischen Feinstaub (PM10) festgelegt. Der Zielwert entspricht einem Jahresmittelwert von 1 ng/m^3 . Des Weiteren sieht die EU-Richtlinie die Analyse einer Reihe weiterer polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe im Feinstaub vor, namentlich Benz(a)anthracen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(j)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Indeno(1,2,3-cd)pyren, Dibenzo(a,h)anthracen und Fluoranthen. Die Emissionen von PAK sind in Europa rückläufig. Gemäss EEA 2024 haben die Gesamtemissionen der Totalen Polzyyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen in Europa in den Jahren 1990 – 2022 um 53% und jene von BaP um 51% abgenommen (EEA 2024b). Im Jahr 2022 waren 13 % der städtischen Bevölkerung der EU Konzentrationen von Benzo(a)pyren über dem europäischen Zielwert ausgesetzt. BaP gilt als einer der vier wichtigsten Schadstoffe in Europa in Bezug auf die gesundheitlichen Auswirkungen und die Exposition der Bevölkerung gegenüber Konzentrationen oberhalb der EU-Normen, zusammen mit PM, NO_2 und Ozon (EEA 2024). Im Jahr 2022 wurde an 25% der 798 Messstellen in Europa für Benzo(a)pyren (BaP) ein Jahresmittel über dem Zielwert von 1 ng/m^3 registriert (Targa et al. 2024).

Mit der Analyse der Feinstaub-Proben ausgewählter Stationen des NABEL und der Kantone von 2023 auf PAK wurde wie in den vergangenen Jahren das Gewässerschutzlabor des Kantons Zürich beauftragt. Die Analysen wurden gemäss der EN-Norm 15549 (CEN 2008) durchgeführt. Zusätzlich

zu den von der europäischen Richtlinie geforderten PAK wurden Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylen bestimmt.

Die Schweiz legt für krebserregende Substanzen keine Immissionsgrenzwerte fest, da gemäss der Luftreinhalte-Verordnung für deren Emissionen unabhängig von den auftretenden Immissionen das Minimierungsgebot gilt. Um einen Überblick über die in der Schweiz auftretenden Immissionskonzentrationen von PAK im PM₁₀ zu erhalten, werden seit 2006 Analysen an ausgewählten NABEL-Stationen durchgeführt. Als Ergänzung zur Messstation Magadino-Cadenazzo wurden seit 2007 auch einige kantonale Stationen ins Messprogramm genommen, welche wie Magadino-Cadenazzo ebenfalls zeitweise stark durch Emissionen aus Holzfeuerungen beeinflusst sind: San Vittore (GR) im Misox, seit 2007; Ebnat-Kappel (SG) im Toggenburg, 2020 - 2021 und 2010 - 2012; Grabs (SG), 2009 und 2017 - 2019; Appenzell (AI), 2011 - 2013 und 2016; Altstätten (SG), 2014 - 2015; Flums (SG), 2015 - 2017; Braunwald (GL), 2015 (Detaillierte Angaben siehe Tab. 2).

Die Resultate der Messungen im Jahr 2023 zeigen, dass sich die Standorte in ihrer relativen Zusammensetzung der verschiedenen PAK nicht wesentlich unterscheiden (Abb. 1 und 2). Folglich ist auch der Beitrag der einzelnen PAK zur Toxizität von PM₁₀ an allen Stationen sehr ähnlich (Abb. 5 und Tabelle 5). Eine Auswertung zur relativen Toxizität der gemessenen PAK-Konzentrationen von 2023 zeigt, dass Benzo(a)pyren allein für rund 58 % der Toxizität der gemessenen PAK im Feinstaub verantwortlich ist.

Im Jahr 2023 wurde an keiner Messstation der europäische Zielwert von 1 ng/m³ überschritten. In San Vittore, jene Messstation mit den höchsten Konzentrationen, liegt der Jahresmittelwert von BaP 2023 bei 0.90 ng/m³. An allen anderen untersuchten Stationen liegen die BaP-Belastung zwischen 0.04 (Lausanne-César-Roux) und 0.22 ng/m³ (Magadino-Cadenazzo) und somit deutlich unter 1 ng/m³ (Abb. 7). Die ländlichen Standorte San Vittore und Magadino-Cadenazzo sind stark von Emissionen aus der Holzverbrennung beeinflusst und zeigen deshalb im Vergleich zu den anderen Stationen klar höhere Messwerte.

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

Dieser Bericht gibt eine Übersicht über das Messprogramm, die angewendeten Messverfahren und über die Resultate im Zeitraum 2006 – 2023.

2 Résumé

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) représentent un danger pour la santé en raison de leur caractère cancérigène et mutagène (OMS Office Régional pour l'Europe 2021 + 2013; EEA 2024; BAG 2020; Jameson 2019, U.S. EPA 2017, IARC 2010 + 2013). Ils se forment lors de la combustion incomplète de matériaux organiques, tels que le bois, le charbon, l'essence, le tabac, le diesel, le mazout ou la nourriture. Dans la nature, les HAP sont émis lors des incendies de forêt, des feux de steppe ou de l'activité volcanique. L'OMS (WHO Regional Office for Europe 2021) a publié en 2021 un rapport sur le thème: "Les effets des HAP dans l'air sur la santé.", utilisant des résultats de mesures suisses. (Étude de cas n° 2). En lien avec ce rapport, l'OMS met à disposition un programme informatique (AirQ+) permettant de calculer les risques pour la santé, liés à l'exposition aux polluants atmosphériques cancérigènes (y compris BaP) (WHO 2020). En raison de ce risque pour la santé, l'Union européenne a adopté la directive 2004/107/CE le 15.12.2004 (EU-Commission 2004) et y a établi une valeur cible pour le benzo(a)pyrène cancérigène (BaP) présents dans les particules fines (PM). La valeur cible est une moyenne annuelle de 1 ng/ m³. La directive européenne prévoit également l'analyse d'un certain nombre d'autres hydrocarbures aromatiques polycycliques présents dans les particules, dont notamment benz(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(j)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, indeno(1,2,3-cd)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène et fluoranthène. Les émissions de HAP déclinent en Europe. Selon la EEA 2024, le total d'émissions de HAP en Europe a diminué de 53% et de 51% pour le BaP entre 1990 et 2022 (EEA 2024b). En 2022, 13 % de la population urbaine européenne a été exposée à des valeurs supérieures à la valeur cible. En Europe, le BaP est un des 4 plus importants polluants (avec les particules fines, le NO₂ et l'Ozone) par rapport au effets sur la santé et à l'exposition de la population à des concentrations dépassant les valeurs cibles (EEA 2024). En 2022, 25 % des 798 sites de surveillance en Europe ont enregistré une moyenne annuelle pour le benzo(a)pyrène (BaP) supérieure à la valeur cible de 1 ng/m³ (Targa et al. 2024).

Les analyses d'échantillons d'HAP de 2023 sont confiées, comme les années précédentes, au Laboratoire de protection des eaux du canton de Zürich. Les analyses ont été menées conformément aux normes européennes en la matière (CEN 2008). En plus des HAP recommandés par la directive européenne les concentrations de pyrène, chrysène et de benzo(ghi)perylène ont également été mesurées.

La Suisse n'a pas établi de valeur limite d'immission pour les substances cancérigènes mais limite les émissions autant que possible, indépendamment des immissions enregistrées (limitation

préventive en fonction du principe de précaution conformément à l'ordonnance sur la protection de l'air). Afin d'obtenir une vue d'ensemble des concentrations de HAP contenus dans les PM10 en Suisse, des analyses ont été effectuées, depuis 2006, dans des stations NABEL sélectionnées. En 2019, les mesures de HAP à Beromünster ont été intégrées pour la première fois dans le programme. Dans le réseau NABEL, Magadino-Cadenazzo est l'unique station qui est particulièrement exposée aux émissions des chauffages à bois, parfois même de manière dominante. C'est la raison pour laquelle depuis 2007, le programme de mesure a été étoffé par certaines stations cantonales additionnelles, également exposées aux émissions de chauffages à bois: San Vittore (GR) dans le Val Mesolcina, depuis 2007; Ebnat-Kappel dans le Toggenburg, 2020 – 2021 et 2010 - 2012; Grabs (SG), 2009 et depuis 2017; Appenzell (AI), 2011 - 2013 et 2016; Altstätten (SG), 2014 - 2015; Flums (SG), 2015 - 2017; Braunwald (GL), 2015; (Pour des informations détaillées, voir tab. 2).

Les résultats des mesures de 2023 montrent que les sites ne diffèrent pas significativement dans leur composition relative des différents HAP (Fig. 1 et 3). Par conséquent, la contribution individuelle des HAP est très similaire à celle des PM10 pour toutes les stations (Fig. 5 et tab. 5). Une évaluation de la toxicité relative des concentrations de HAP mesurées en 2023 montre que le benzo(a)pyrène est responsable à lui seul d'environ 58 % de la toxicité des HAP mesurés dans les particules.

En 2023, aucune des stations de mesure n'a dépassé la limite européenne de 1 ng/m³. Pour San Vittore, la station ayant mesuré les plus hautes concentrations, la moyenne annuelle de BaP était de 0.90 ng/m³ en 2023. Dans toutes les autres stations examinées, la concentration en BaP était comprise entre 0.04 (Lausanne-César-Roux) et 0.22 ng/m³ (Magadino-Cadenazzo) et donc bien inférieure à 1 ng/m³ (Fig. 7). Les stations rurales de San Vittore, Ebnat-Kappel et Magadino-Cadenazzo, qui sont largement influencées par les émissions de chauffages à bois, font apparaître des moyennes clairement plus élevées que les autres stations rurales.

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

Ce rapport donne une vue d'ensemble du programme de mesures, en décrit la méthodologie appliquée et les principaux résultats de mesures entre 2006 et 2023.

3 Messkonzept

3.1 Messstationen und Messbetrieb

In Tabelle 1 sind die Stationen, an denen 2023 PAK-Analysen durchgeführt wurden, aufgelistet und kurz charakterisiert. Eine zeitliche Darstellung des Messbetriebes an den verschiedenen Standorten seit Messbeginn im Jahr 2006 sowie Angaben zum Messbetreiber sind in Tabelle 2 dargestellt. Eine detaillierte Charakterisierung der NABEL-Stationen findet sich im Technischen Bericht zum NABEL (Empa 2024). Die Lage der Station San Vittore ist auf der Webseite des Amtes für Natur und Umwelt des Kantons Graubünden näher beschrieben (www.luft.gr.ch). In Ebnat-Kappel (Höhe: 630 m ü.M.; Koordinaten: 2727350/1236350) wurden von 2010 bis 2012 und 2020 bis 2021 Messungen durchgeführt. Die Station befand sich im Dorfzentrum von Ebnat-Kappel, an einer Nebenstrasse, und repräsentierte eine Situation in einer ländlichen Gemeinde mit hohem Holzfeuerungsanteil. Die von Oktober 2011 bis Ende 2013 und 2016 – 2017 im Messprogramm vorhandene Station Appenzell (Höhe: 775 m ü.M.; Koordinaten: 2748735/1244230) lag im Dorfzentrum beim Feuerschaugebäude und wies einen geringen Verkehrseinfluss auf. Diese Station repräsentierte die Situation in einem Wohnquartier eines grösseren Dorfes in ausgeprägter Tallage. Die Messstation Altstätten (Höhe: 451 m ü.M.; Koordinaten: 2759025/1249860) war von Januar 2014 bis März 2015 in Betrieb und repräsentierte die Situation einer ländlichen Gemeinde mit einem erhöhten Holzfeuerungsanteil. Altstätten liegt in einer Randlage des St. Galler Rheintals, und die Station befand sich an einer Hauptverkehrsstrasse im Dorfzentrum. Im Jahr 2015 war die Station Braunwald (Höhe: 1256 m ü.M.; Koordinaten: 2718725/1199807) im Kanton Glarus im PAK-Messprogramm. Die Messstation befand sich direkt bei der Bergstation Braunwaldbahn im autofreien Kur- und Fremdenverkehrsort Braunwald. Von April 2015 bis Ende 2017 war die Hintergrundstation Flums im Kanton St. Gallen in Betrieb (Höhe: 469 m ü.M.; Koordinaten: 744135/218550), die Station lag im Seeztal auf dem Gelände der ARA Flums-Seez, abseits von verkehrsreichen Strassen und Siedlungen. In Grabs (Höhe: 469 m ü.M.; Koordinaten: 2752175/1227830) im St. Galler Rheintal wurden von 2017 - 2019 und im Jahr 2009 in einem Wohnquartier im Dorfzentrum von Grabs, rund 50 m von einer Verkehrsachse entfernt, Messungen durchgeführt.

Tab. 1: Charakterisierung der Stationen, an welchen 2023 PAK-Analysen durchgeführt wurden.

Basel-Binningen	BAS	vorstädtisch, am Stadtrand von Basel auf dem Gebiet der Gemeinde Binningen
Bern-Bollwerk	BER	städtisch, direkt an Hauptverkehrsachse, ca. 3 m vom Strassenrand in Strassenschlucht
Beromünster	BRM	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Dübendorf-Empa	DUE	vorstädtisch, ca. 200 m von Hauptverkehrsstrassen entfernt
Härkingen-A1	HAE	ländlich, ca. 20 m nördlich der Autobahn A1
Lausanne-César-Roux	LAU	städtisch, verkehrsbelastet
Lugano-Università	LUG	städtisch, in relativ offener Hofsituation
Magadino-Cadenazzo	MAG	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M., Alpensüdseite
Payerne	PAY	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Sion-Aéroport-A9	SIO	ländlich, an der Autobahn A9
Tänikon	TAE	ländlich, unterhalb 1000 m ü.M.
Zürich-Kaserne	ZUE	städtisch, Hofsituation, nicht unmittelbar verkehrsbelastet
San Vittore	SANV	Dorfzentrum, im Talboden eines Alpentals, 280 m ü.M.

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

Messnetzbetreiber		2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	2023	
Basel-Binningen	NABEL	■																		
Bern-Bollwerk	NABEL	■																		
Beromünster	NABEL														■	■	■	■	■	■
Dübendorf-Empa	NABEL				■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
Härkingen-A1	NABEL	■																		
Lausanne-César-Roux	NABEL				■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
Lugano-Università	NABEL	■																		
Magadino-Cadenazzo	NABEL	■																		
Payerne	NABEL	■																		
Sion-Aéroport-A9	NABEL	■																		
Tänikon	NABEL	■																		
Zürich-Kaserne	NABEL	■																		
San Vittore	Kt. Graubünden		■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
Grabs	Ostluft				■	■							■	■	■					
Ebnat-Kappel	Ostluft					■	■	■	■							■	■	■		
Appenzell	Ostluft						■	■	■	■		■								
Altstätten	Ostluft									■	■									
Flums	Ostluft										■	■	■							
Braunwald	Ostluft										■	■								
		2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	2023	

3.2 Probenahme

An den ausgewählten Stationen wurden die PAK-Konzentrationen in PM10 quartalsweise analysiert. Dazu wurde aus den täglichen Feinstaubfiltern (Pallflex Tissuquarz), nach erfolgter Massenbestimmung, eine Rondelle von 14 mm Durchmesser ausgestanzt und quartalsweise zu einer Probe vereinigt. Von der Station San Vittore standen Filter von jedem 12. Tag zur Verfügung. Um etwa dieselbe Probenmenge zu erreichen, wurden hier pro Filter je 4 Rondellen mit einem Durchmesser von 25 mm zu Quartalsproben vereinigt. Detaillierte Angaben über die Messmethodik zur Sammlung von Feinstaub auf Filtern sind im Technischen Bericht zum NABEL (Empa 2024) enthalten.

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

Ein weiteres Problem der PAK-Messung stellt die teilweise Oxidation der gesammelten PAK auf dem Probefilter durch Ozon dar (Schauer et al., 2003; Brown and Brown, 2012; Liu K. et al. 2014). Vergleichsmessungen in München und Karlsruhe, mit einer Probenahme mit und ohne Ozondenuder, zeigten einen klaren Zusammenhang zwischen Ozonkonzentrationen und PAK-Verlusten. Gemäss Schauer *et al.* (2003) können bei der Sammlung von Tagesproben auf dem Filter z.B. bei Ozonkonzentrationen über 120 µg/m³ 40 % und mehr des Benzo(a)pyrens verlorengehen. Da aber an den hier untersuchten Standorten erhöhte Konzentrationen von PAK praktisch nur im Winter bei tiefen Ozonkonzentrationen auftreten, spielt dieses Problem bei den hier präsentierten Daten zumindest für die Winter- und Jahresmittelwerte kaum eine Rolle.

3.3 Analytik

Mit der Analyse der Proben des Jahres 2023 auf PAK wurde wie in den vergangenen Jahren das Gewässerschutzlabor des Kantons Zürich beauftragt. Das Labor weist grosse Erfahrung in der Analyse von Filterproben auf PAK auf und folgte methodisch den Vorgaben der EN-Norm 15549

(CEN 2008). Zusätzlich zu den von der europäischen Richtlinie geforderten PAK bestimmte das Labor auch Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylen (Tab. 3).

Als wichtiges Element der Qualitätssicherung wurde wiederum der zertifizierte PM10-Referenzstaub ERM-CZ100 des European Institute for Reference Materials and Measurements (Geel, Belgium) mitanalysiert. Die Wiederfindungsraten bewegten sich zwischen 86 – 118 % (Ausnahme Benzo(ghi)perylen: 76%), die analytische Messunsicherheit beträgt rund 20 %.

3.4 Toxizität

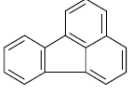
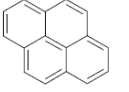
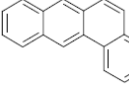
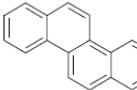
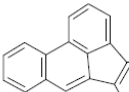
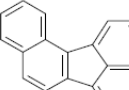
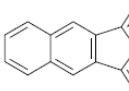
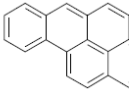
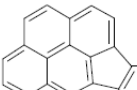
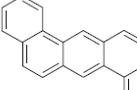
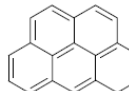
Die analysierten PAK mit ihren Siedepunkten, den zugehörigen Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (Nisbet and LaGoy 1992; Collins et al. 1998) sowie ihren Strukturformeln sind in Tabelle 3 ersichtlich. Die Toxizitäts-Äquivalentfaktoren geben die relative Toxizität im Vergleich zu Benzo(a)pyren (TEF = 1) an.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

Andersson und Achten haben 2015 in ihrer Arbeit aufgezeigt, warum die 16 EPA-PAK seit den 1970er Jahren eine tragende Rolle gespielt haben und warum es heute weitere Forschungsarbeiten zur Toxizität, zum Vorkommen in der Umwelt und zur chemischen Analyse, insbesondere von alkylierten PAK, PAK mit höherem Molekulargewicht und substituierten PAK, erforderlich sind.

Samburova et al. kommen in ihrer Studie von 2017, in welcher Daten von 88 verschiedenen gas- und partikelförmigen PAK-Verbindungen aus 13 verschiedenen Projekten analysiert wurden, zum Schluss, dass in Bezug auf die Toxizität TEF-Werte von weiteren PAK-Verbindungen bestimmt werden sollten. Bis anhin existieren TEF-Werte für 17 verschiedene PAK-Verbindungen. In der Studie wird auch auf die Bedeutung von Messungen gasförmiger PAK-Verbindungen hingewiesen. In ihrer Untersuchung entwickelten Tomasetig et al. (2020) neue genotoxische Äquivalenzfaktoren (GEF) für PAK. Zur Einschätzung des genotoxischen Potenzials wurden in-vitro-Tests durchgeführt und die Ergebnisse mittels mathematischer Modelle analysiert. Die berechneten GEF für die getesteten PAK wiesen im Allgemeinen einen höheren Wert auf als der üblicherweise verwendeten TEF-Wert.

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

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

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

4 Resultate der PAK-Analysen

Einen Überblick über die Resultate von 2023 an allen Messstellen gibt die Tabelle 4. Grafisch sind die Jahresmittelwerte der Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM₁₀ in der Abbildung 1 dargestellt. Es werden jene 6 PAK gezeigt die mehr als 1 % zum toxischen Potential beitragen. Die Abbildung 2 präsentiert die prozentuale Verteilung der 2023 gemessenen PAK an den verschiedenen Messstationen, wobei Fluoranthen, Pyren, Chrysen und Benzo(ghi)perylen wegen ihrer geringen toxikologischen Relevanz ($TEF \leq 0.01$) in einer Gruppe zusammengefasst wurden. Aus den beiden Abbildungen 1 und 2 ist ersichtlich, dass die Standorte hinsichtlich ihrer relativen Zusammensetzung der verschiedenen PAK keine signifikanten Unterschiede aufweisen. In Abbildung 3 sind die Jahresmittelwerte der gemessenen Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM₁₀ in 4 Gruppen ("Verkehr", "Städtisch/Vorstädtisch", "Ländlich" und "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung") mit jeweils ähnlicher Luftbelastung zusammengefasst. In der Gruppe "Verkehr" sind die stark verkehrsbelasteten Standorte Bern-Bollwerk, Härkingen-A1 und Lausanne-César-Roux vertreten. Die Gruppe "Städtisch/Vorstädtisch" umfasst die Messstationstypen "Städtischer Hintergrund" und "Vorstädtisch" (Lugano-Università, Zürich-Kaserne, Basel-Binningen und Dübendorf-Empa). Die beiden ländlichen Messstationen Magadino-Cadenazzo und San Vittore weisen einen hohen Anteil an Holzheizungen auf und wurden daher in der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung" vereinigt. Die Gruppe "Ländlich" umfasst die restlichen ländlichen Messstationen (Beromünster, Payerne und Tänikon). Die Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" zeigt im Vergleich zu den übrigen drei Gruppen stark erhöhte Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM₁₀.

Im Anhang in der Tabelle A1 sind alle Quartalsmittelwerte der PAK-Konzentrationen der NABEL-Stationen und in der Tabelle A2 das entsprechende Resultat der kantonalen Messstation notiert. Deutlich zu erkennen sind die saisonalen Variationen zwischen Sommer- und Winterquartalen. Es fällt auf, dass für alle relevanten PAK die höchsten Konzentrationen nicht an den stark verkehrsbelasteten Stationen Bern-Bollwerk, Lausanne-César-Roux oder Härkingen-A1, sondern an ländlichen Stationen wie San Vittore und Magadino-Cadenazzo gemessen wurden. Dies ist ein klares Indiz für den wesentlichen Beitrag von Holzfeuerungen zur PAK-Belastung in den Wintermonaten. Resultate der Studien von Bari et al. (2010, 2011) in Wohngebieten deuten darauf hin, dass die Holzverbrennung eine potentielle PAK-Emissionsquelle ist und erhebliche Auswirkungen auf die Luftqualität hat. Auch die Untersuchung von Zotter et al. (2014) mit ¹⁴C-Messungen im Feinstaub am Standort San Vittore weisen auf den grossen Einfluss der

Biomassenverbrennung hin. Die nur mässig hohen PAK-Konzentrationen in Lugano-Università zeigen zudem, dass die Alpensüdseite nicht generell erhöhte Werte aufweist.

Bereits 1995 ging aus einer Untersuchung der Kantone Zürich, Schaffhausen und Luzern hervor, dass Emissionen von Holzfeuerungen tatsächlich bedeutende Mengen von PAK enthalten (Schläpfer 1995). Damals wurden die höchsten BaP-Werte nicht in Zürich oder Luzern, sondern während einer Winterkampagne im ländlichen Dorf Hemmental (SH) gemessen. Auch ein Bericht über Benzo(a)pyrenbelastungen im Bundesland Tirol (Österreich) in den Jahren 2013 und 2014 zeigt höhere Belastungen in Siedlungsgebieten als an verkehrsexponierten Standorten (Krismer, 2015). Eine im neuen WHO Bericht (WHO Regional Office for Europe, 2021) vorgestellte Fallstudie aus Schweden, Messungen im Jahr 2019 im Schwarzwald (LUBW 2020) sowie Untersuchungen von 2017 in Wohngebieten in Ostschweden (Lim 2022) zeigen deutlich, dass Holzfeuerungen dominante Quellen für PAK Emissionen darstellen. Messungen in Athen (Griechenland) von Dezember 2016 bis Januar 2018 weisen deutlich darauf hin, dass die Verbrennung von Biomasse in Privathaushalten eine erhebliche Quelle für krebserregende PAK in einer der am stärksten bevölkerten Region des Mittelmeerraums ist. Die übermässige Nutzung der Holzverbrennung während der wirtschaftlichen Rezession hat bis heute kaum nachgelassen, trotz der verbesserten Wirtschaftslage, was zu einem erheblichen Anstieg der jährlichen städtischen Hintergrundwerte führt (Tsiodra et al., 2021). In den Jahren 2019 bis 2023 wurden Messungen an verschiedenen Standorttypen in fünf weiteren Städten im Grossraum Athen durchgeführt. Auch dort konnte eine starke Zunahme der Konzentrationen im Winter beobachtet werden, insbesondere an Standorten in Gebieten, in denen die Verbrennung von Biomasse die Hauptheizungsart in den Haushalten darstellt (Tsiodra et al., 2024).

Tab. 4: Jahresmittelwerte 2023 der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3).

Messstelle	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)*	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(a,h)anthracen	Benzo(ghi)perylen
Basel	11.48	0.11	0.11	0.06	0.10	0.30	0.08	0.11	0.17	0.02	0.19
Bern	15.69	0.19	0.15	0.10	0.15	0.37	0.11	0.15	0.19	0.02	0.21
Beromünster	8.76	0.08	0.07	0.03	0.05	0.13	0.04	0.05	0.07	0.01	0.07
Dübendorf	11.43	0.11	0.11	0.05	0.08	0.22	0.07	0.09	0.12	0.01	0.12
Härkingen	12.21	0.13	0.12	0.07	0.12	0.32	0.09	0.13	0.17	0.02	0.19
Lausanne	12.60	0.08	0.07	0.03	0.06	0.15	0.04	0.04	0.08	0.01	0.09
Lugano	13.97	0.09	0.08	0.05	0.09	0.28	0.08	0.10	0.15	0.02	0.16
Magadino	14.17	0.15	0.13	0.12	0.20	0.53	0.14	0.22	0.26	0.04	0.28
Payerne	9.88	0.08	0.07	0.03	0.05	0.15	0.04	0.05	0.08	0.01	0.08
Sion	15.68	0.13	0.12	0.09	0.14	0.34	0.09	0.14	0.16	0.02	0.17
Tänikon	9.84	0.13	0.13	0.07	0.11	0.30	0.09	0.12	0.16	0.02	0.16
Zürich	12.10	0.10	0.09	0.05	0.08	0.22	0.06	0.07	0.12	0.01	0.12
San Vittore	17.9	0.19	0.24	0.60	0.66	1.59	0.44	0.90	0.62	0.07	0.57

Bemerkung:

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

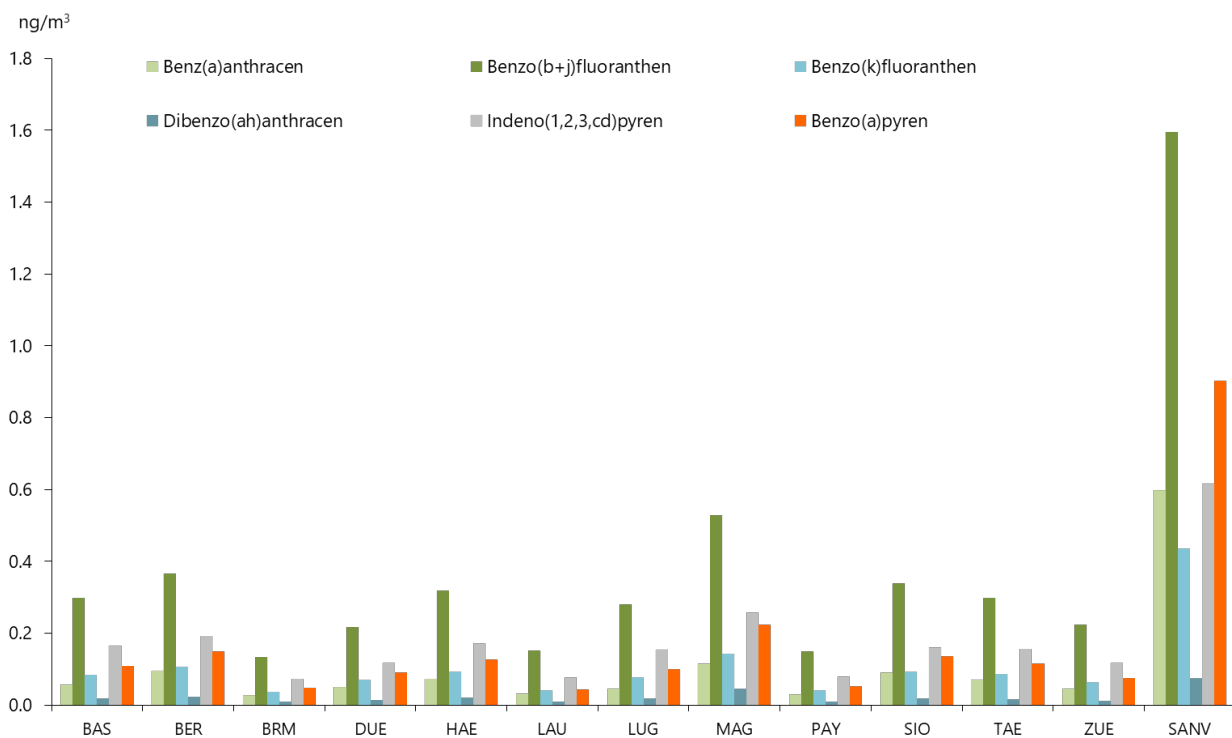


Abb. 1: Jahresmittelwerte 2023 der Konzentrationen der toxisch relevanten PAK im PM10 an den einzelnen Messstationen.

Zusammensetzung der PAK im PM10 [%]

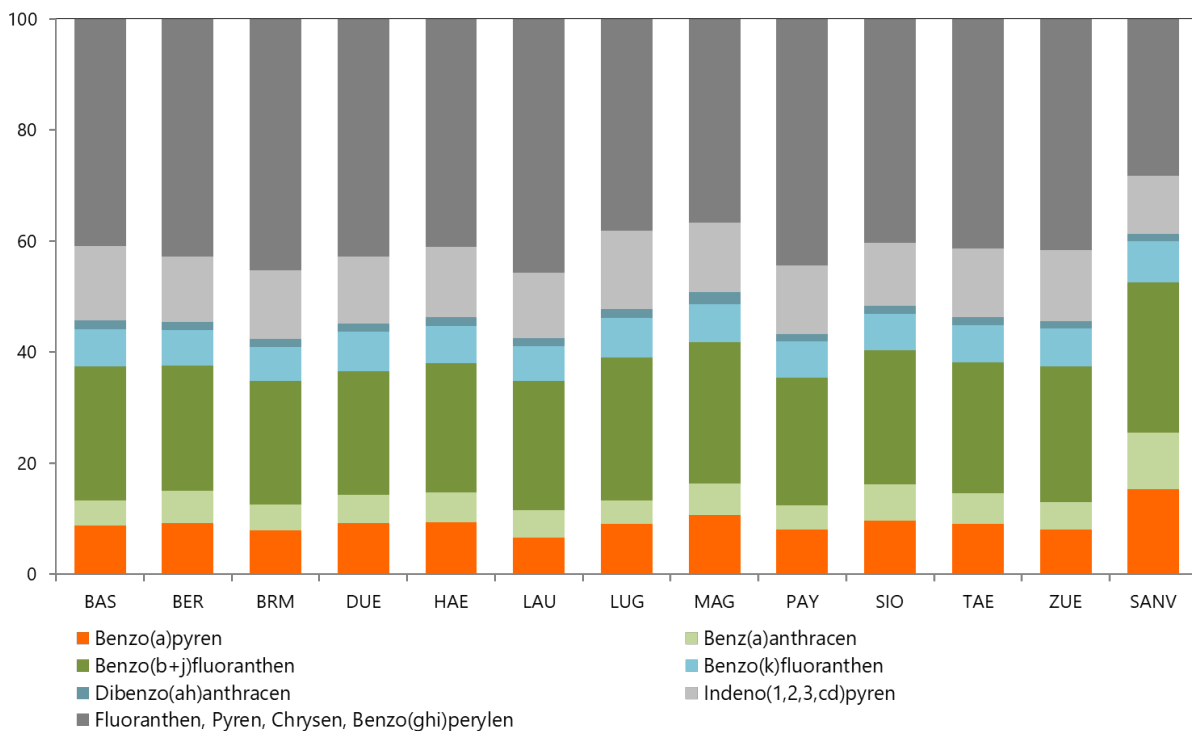


Abb. 2: Relative Zusammensetzung der 2023 gemessenen PAK im PM10.

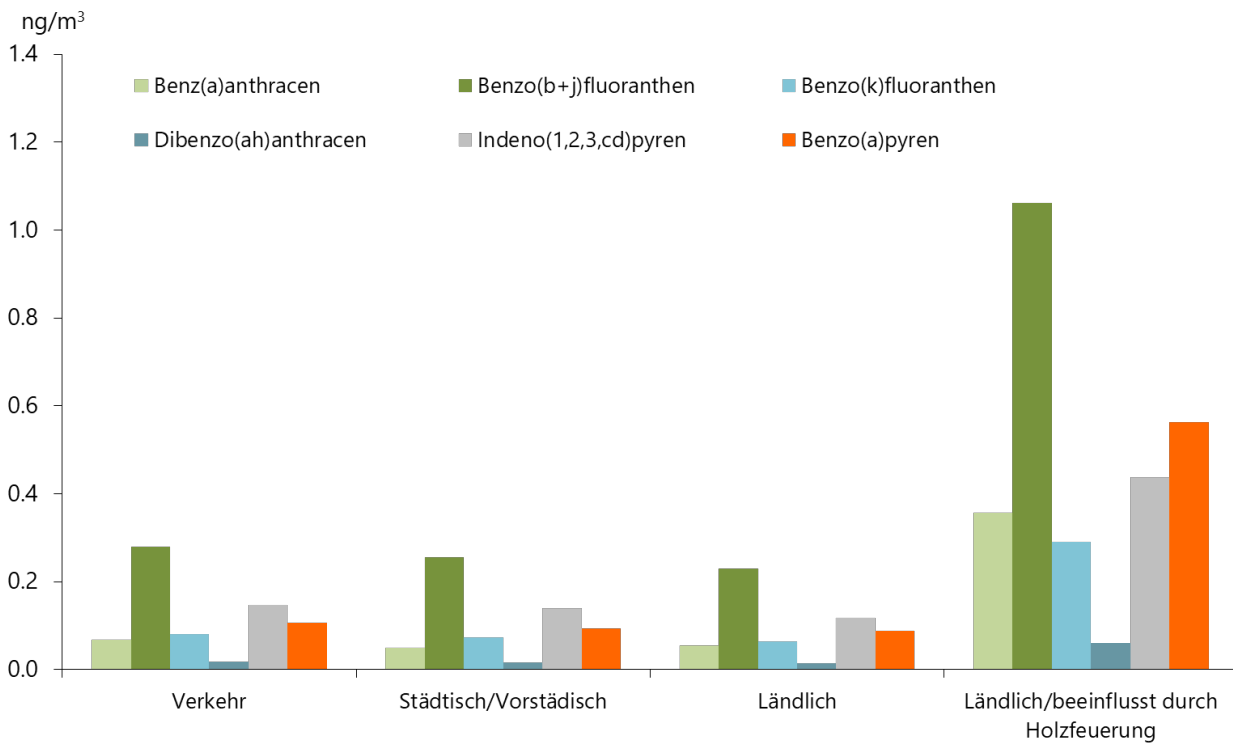


Abb. 3: Jahresmittelwerte 2023 der Konzentrationen der toxikologisch relevanten PAK im PM10 in Gruppen gleicher Luftbelastung zusammengefasst.

Eine Auswertung zur relativen Toxizität der gemessenen PAK-Konzentrationen im Jahr 2023 zeigt, dass Benzo(a)pyren allein für rund 58 % der Toxizität der PAK im Feinstaub verantwortlich ist. Bei der Gewichtung der gemessenen PAK-Konzentrationen mit den Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (TEF) tragen neben Benzo(a)pyren zusätzlich im Mittel Benzo(b+j)fluoranthen, Dibenzo(ah)anthracen, Indeno(1,2,3,cd)pyren, Benzo(k)fluoranthen zu rund 15, 10, 8, 4 % sowie Benz(a)anthracen zu 3 % zur Toxizität bei (Abbildung 4). Die Resultate in Tabelle 5 und Abbildung 5 zeigen deutlich, dass die relativen Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 an allen Stationen sehr ähnlich sind. Beim Standorten San Vittore haben die stark erhöhten Winter-Quartale einen grossen Einfluss auf die Verteilung der relativen Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität. In Abbildung 6 ist ein Vergleich der durch PAK bedingten Toxizität von PM10 an den einzelnen Messstationen im Jahr 2023 dargestellt. Gegenüber den anderen Stationen zeigen Magadino-Cadenazzo erhöhte und San Vittore deutlich erhöhte Werte. Die Toxizitätsäquivalente werden als Summenprodukte aus den einzelnen PAK-Konzentrationen und den dazugehörigen Toxizitäts-Äquivalentfaktoren (TEF) berechnet.

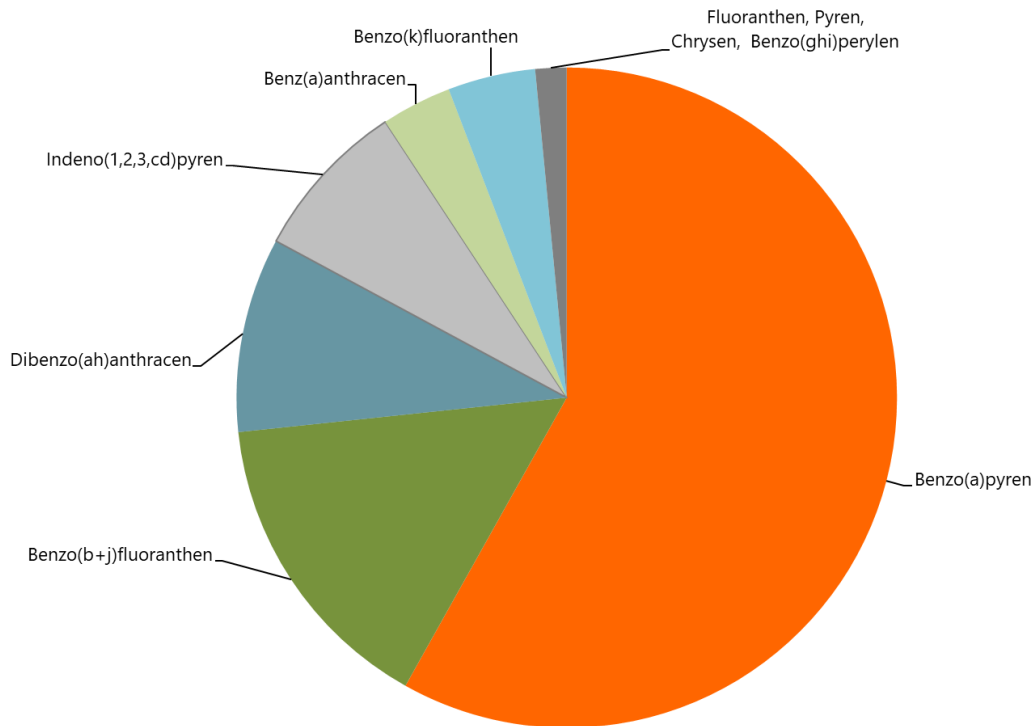


Abb. 4: Mittlere Beiträge der einzelnen PAK an der gesamten Toxizität der 2023 im PM10 gemessenen polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (Mittelwerte aller Messstationen).

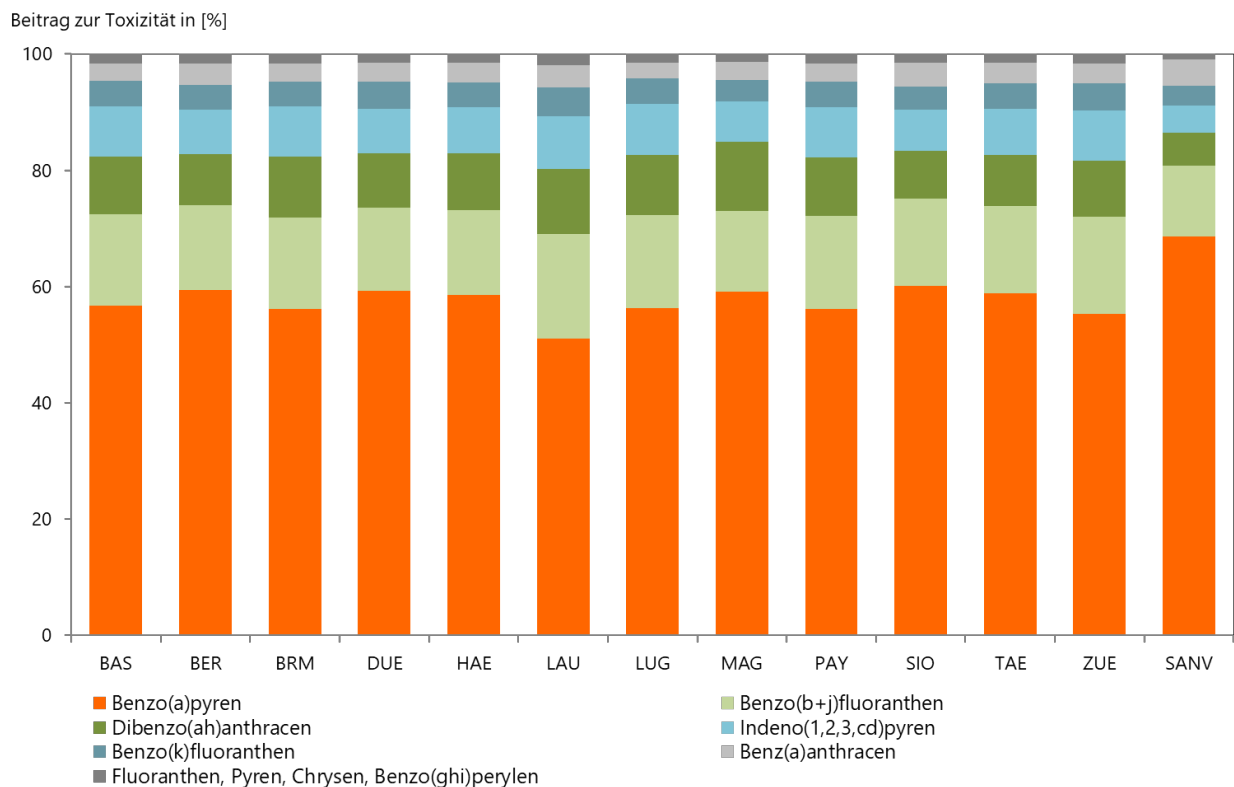


Abb. 5: Relative Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 im Jahr 2023.

Tab. 5: Relative Beiträge der einzelnen PAK zur Toxizität von PM10 in % im Jahr 2023.

Messstelle	Fluoranthen	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+j)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(h)anthracen	Benzo(ghi)perylene
Basel	0.1	0.1	3.0	0.5	15.7	4.4	56.7	8.7	9.9	1.0
Bern	0.1	0.1	3.8	0.6	14.5	4.2	59.5	7.6	8.9	0.8
Beromünster	0.1	0.1	3.2	0.6	15.7	4.2	56.2	8.6	10.4	0.8
Dübendorf	0.1	0.1	3.3	0.5	14.3	4.6	59.3	7.8	9.2	0.8
Härkingen	0.1	0.1	3.4	0.6	14.6	4.3	58.5	7.9	9.8	0.9
Lausanne	0.1	0.1	3.8	0.8	18.0	4.9	51.1	9.1	11.2	1.0
Lugano	0.0	0.0	2.6	0.5	16.0	4.4	56.3	8.7	10.4	0.9
Magadino	0.0	0.0	3.1	0.5	14.0	3.8	59.1	6.8	11.9	0.7
Payerne	0.1	0.1	3.1	0.6	16.1	4.5	56.1	8.6	10.0	0.9
Sion	0.1	0.1	4.0	0.6	15.0	4.1	60.1	7.1	8.2	0.8
Tänikon	0.1	0.1	3.6	0.6	15.1	4.3	58.8	8.0	8.7	0.8
Zürich	0.1	0.1	3.4	0.6	16.7	4.7	55.2	8.7	9.6	0.9
San Vittore	0.0	0.0	4.6	0.5	12.1	3.3	68.7	4.7	5.7	0.4

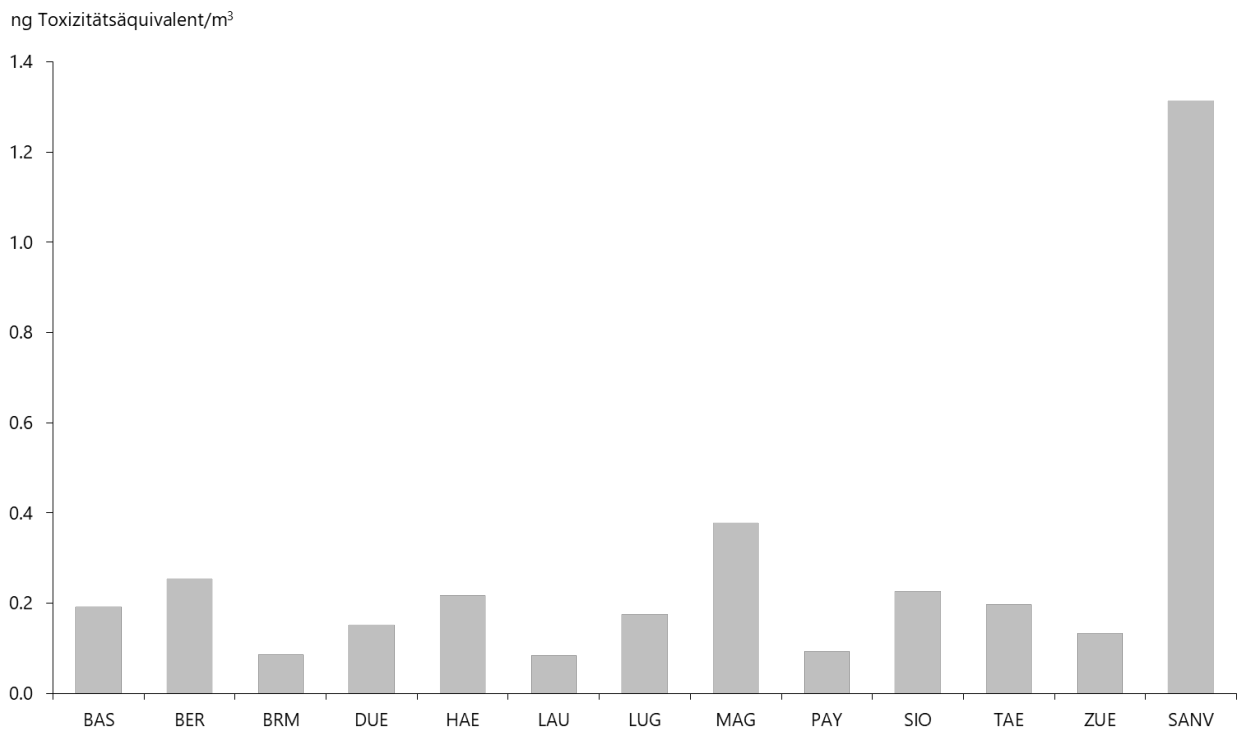


Abb. 6: Vergleich der durch PAK bedingten Toxizität von PM10 an den einzelnen Messstationen im Jahr 2023.

5 Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren

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

Abbildung 7 präsentiert die Jahresmittelwerte der Konzentrationen von BaP sowie die entsprechenden PM10 Konzentrationen an den verschiedenen Stationen für das Jahr 2023. In San Vittore, jener Messstation mit den höchsten Konzentrationen, wurde ein Jahresmittelwert von 0.90 ng/m³ gemessen. Aufgrund der topographischen Gegebenheiten im Talgrund ist die Station San Vittore bei winterlichen Inversionslagen einer besonderen Belastung ausgesetzt, da die Durchlüftung des Tales beeinträchtigt ist. Zudem ist in den Dörfern des Misox eine hohe Dichte an Holzfeuerungen zu verzeichnen. An allen anderen untersuchten Stationen liegen die BaP-Konzentrationen 2023 zwischen 0.04 (Lausanne) und 0.22 ng/m³ (Magadino-Cadenazzo) und sind damit deutlich unterhalb des europäischen Zielwertes.

Das höchste Verhältnis im Jahr 2023 von BaP/PM10 (0.050) weist der Messstandort San Vittore auf, es folgt das Verhältnis der Station Magadino-Cadenazzo (0.016), auch dies ein Indiz für den wesentlichen Beitrag von Holzfeuerungen zur PAK-Belastung an diesen Standorten.

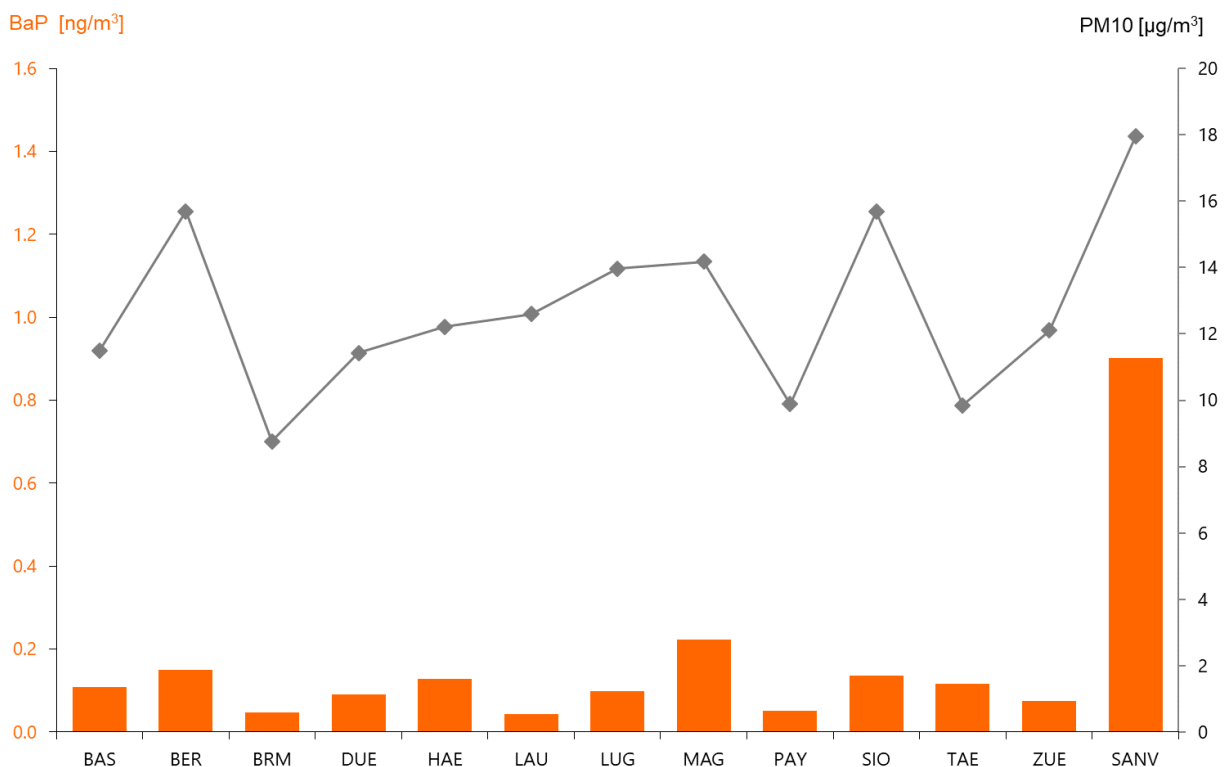


Abb. 7: Jahresmittelwerte 2023 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren und PM10.

In den Abbildungen 8 und 9 ist der langjährige Verlauf der Jahresmittelwerte der Benzo(a)pyren-Konzentrationen an den verschiedenen Stationen seit Messbeginn im Jahre 2006 dargestellt. Die Benzo(a)pyren Belastung hat an allen untersuchten Standorten seit 2006 abgenommen und liegt inzwischen für alle Stationen deutlich unter dem europäischen Zielwert von 1 ng/m^3 . Die einzige Ausnahme ist San Vittore, an diesem Standort lag in den vergangenen 8 Jahren der Jahresmittelwert einmal (2021: 1.12 ng/m^3) im Bereich des Zielwerts (Anmerkung: Da der europäische Zielwert für BaP ohne Dezimalstelle festgelegt wurde gilt der Zielwert bis zu einem Jahresmittelwert von 1.49 ng/m^3 formal als eingehalten), in allen anderen Jahren war der Jahresmittelwert auch in San Vittore deutlich unter 1 ng/m^3 . Abbildung 10 zeigt den Verlauf der Jahresmittelwerte von BaP im PM10 in 4 Gruppen ("Verkehr", "Städtisch/Vorstädtisch", "Ländlich" und "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung") zusammengefasst. Wie schon in Abbildung 3 ersichtlich, zeigt sich auch im langjährigen Verlauf der Jahresmittelwerte, dass die Konzentrationen der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" stark erhöhte Messwerte gegenüber den Resultaten der übrigen drei Gruppen aufweisen. Während in den übrigen drei Gruppen die Konzentrationen seit 2013 stagnieren, wurde in der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" in den Jahren 2015 und 2021 ein Anstieg verzeichnet. Das Konzentrationsniveau im Jahr 2023 lag im Bereich der Jahre 2016 bis 2020.

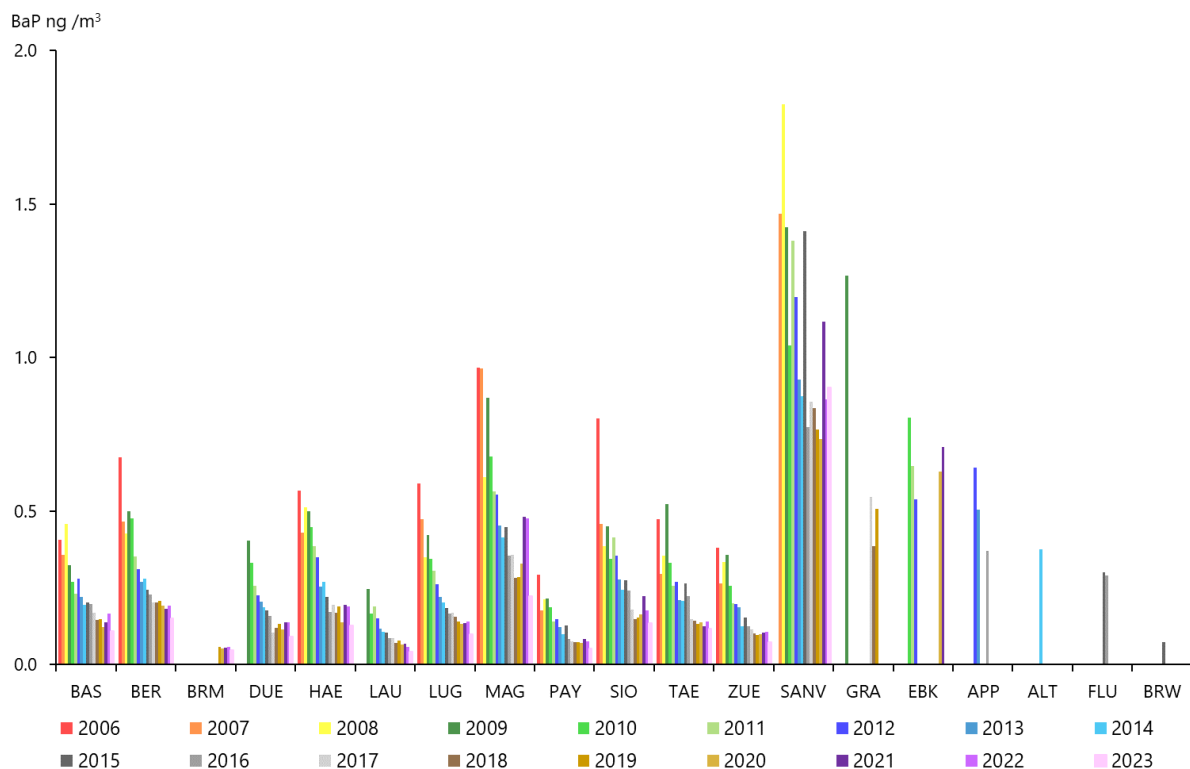


Abb. 8: Jahresmittelwerte 2006 bis 2023 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. (Ebnet-Kappel, Grabs, Flums, Appenzell, Altstätten und Braunwald unvollständige Messreihe, siehe Tab. 2).

Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren

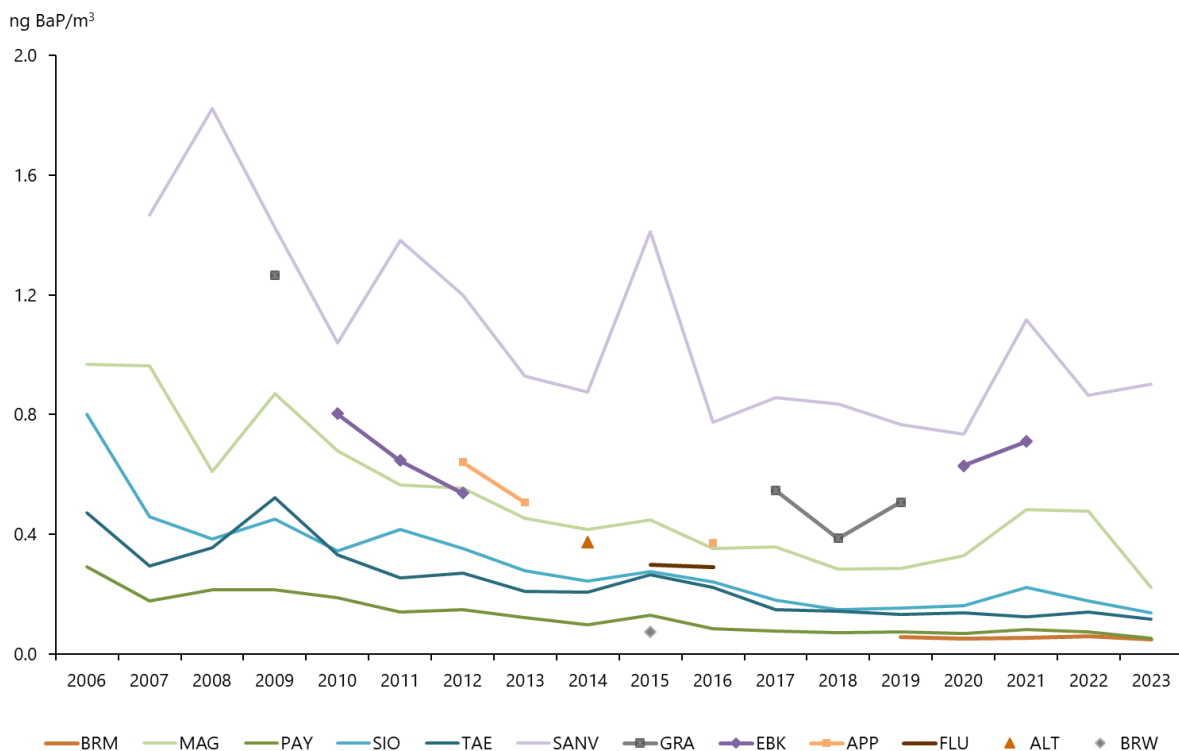
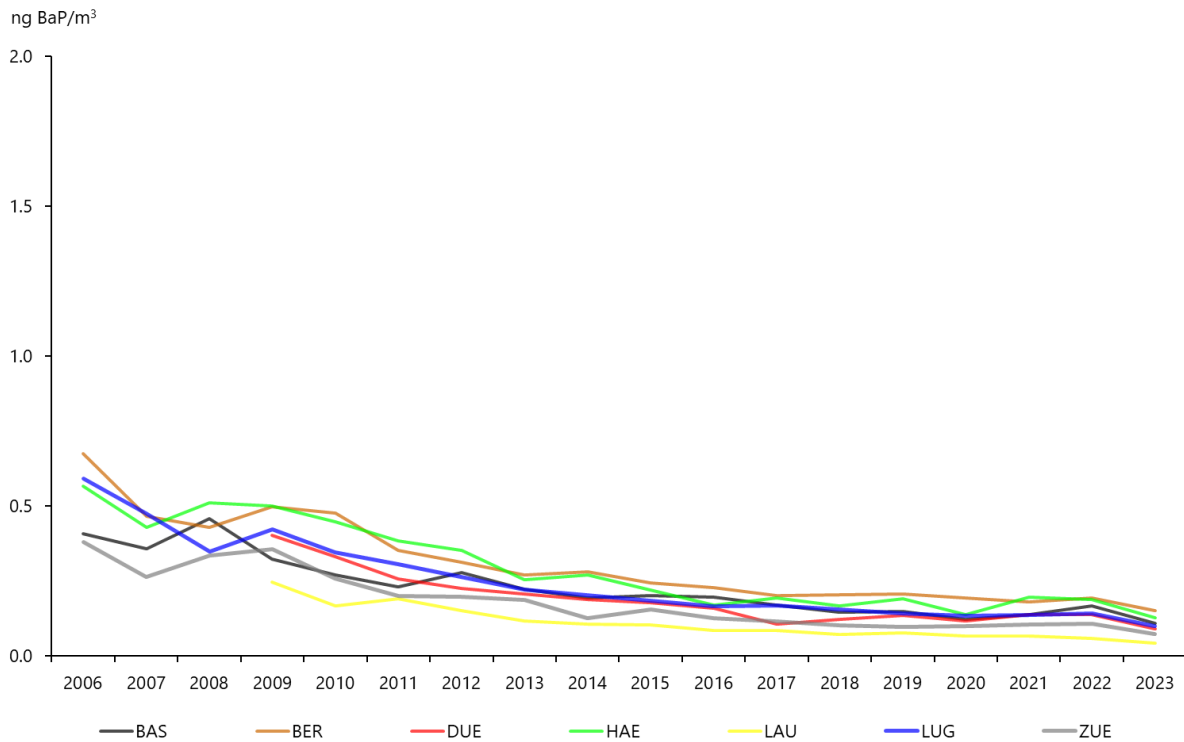


Abb. 9: Jahresmittelwerte 2006 bis 2023 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte (Ebnat-Kappel, Grabs, Flums, Appenzell, Altstätten und Braunwald unvollständige Messreihe, siehe Tab. 2).

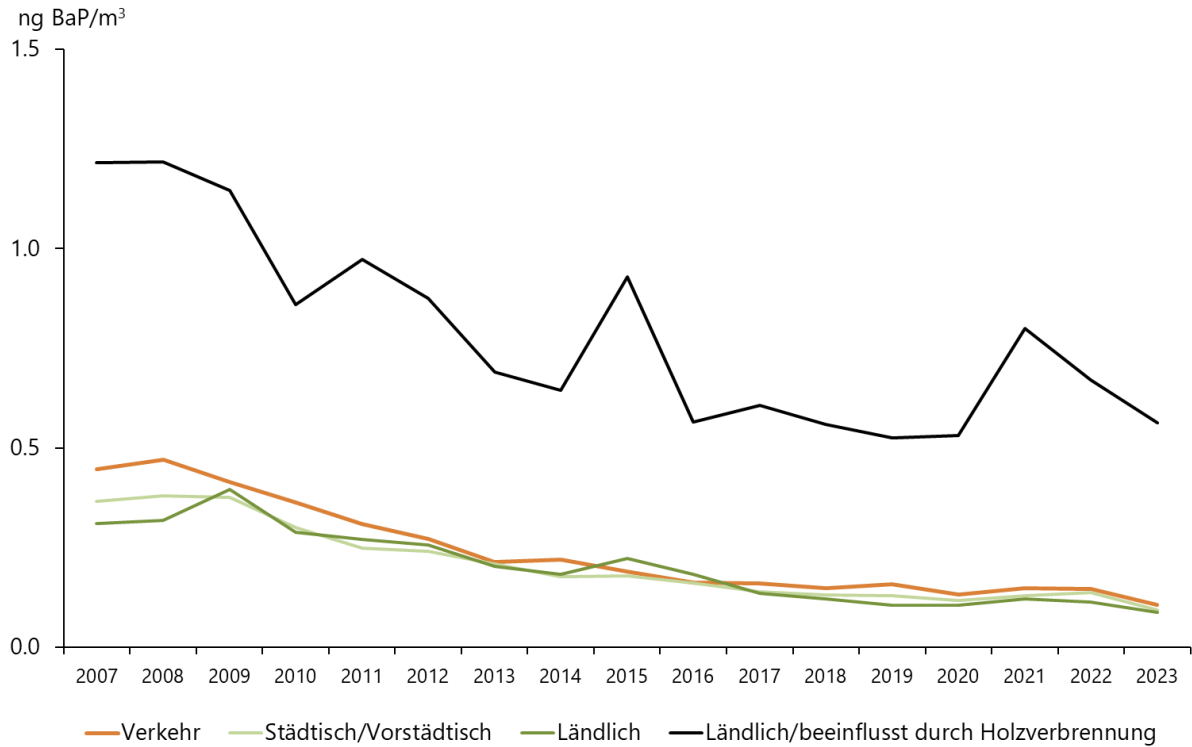


Abb. 10: Jahresmittelwerte 2007 bis 2023 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10.

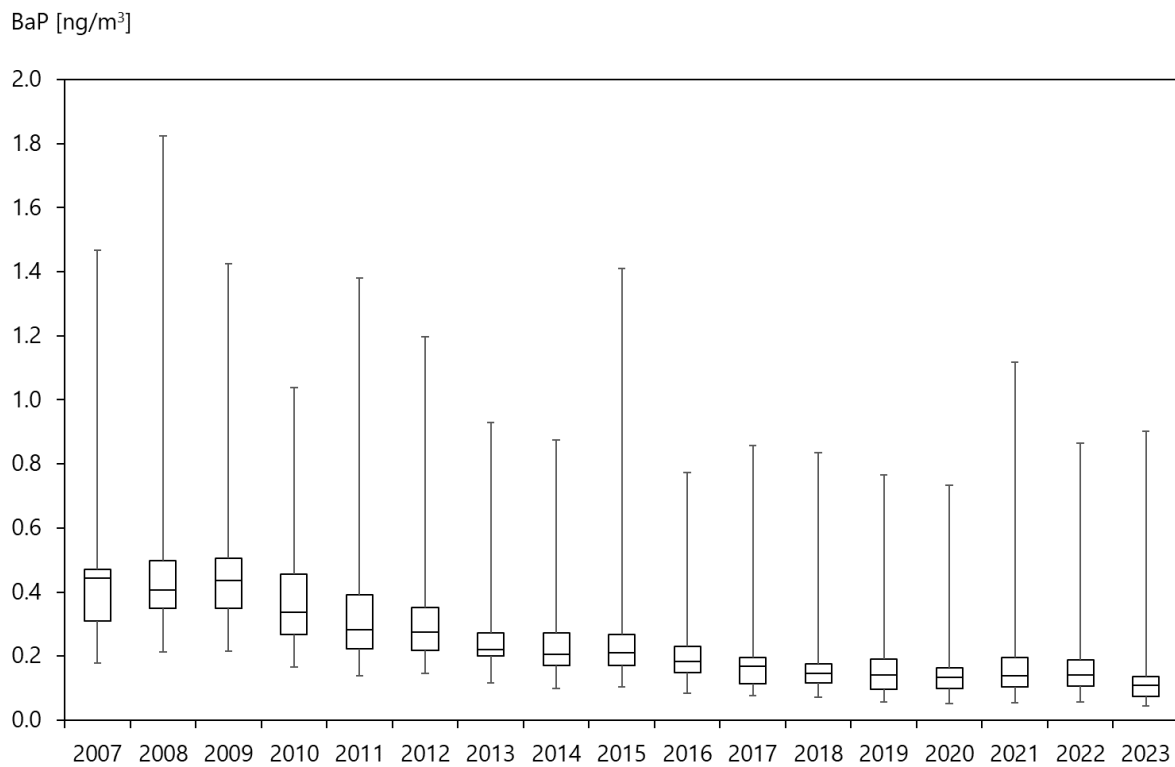


Abb.11: Jahresmittelwerte der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10 aller Stationen an denen seit 2007 Messungen in Betrieb sind, Boxplot.

In Abbildung 11 sind die Perzentile der Jahresmittelwerte aller Messstationen (inkl. San Vittore) zusammengefasst. Auch in dieser Grafik ist die deutliche Abnahme der BaP-Immissionen an allen Standorten, mit den tiefsten Medianwerten im Jahr 2023, klar ersichtlich. Die Minimalwerte nehmen seit 12 Jahren kontinuierlich ab und die tiefsten BaP Jahresmittelwerte wurden jeweils an den Stationen Payerne, Lausanne (seit 2012) und Beromünster (seit 2019) gemessen. Die maximalen Jahresmittelwerte wurden in allen Jahren am Standort San Vittore registriert. Seit Messbeginn wurde dort der europäische Zielwert von 1 ng/m^3 einmal im Jahr 2008 (1.82 ng/m^3) überschritten. In den Jahren 2007 (1.47 ng/m^3), 2009 – 2012 (1.42 ; 1.04 ; 1.38 ; 1.20 ng/m^3), 2015 (1.41 ng/m^3) und 2021 (1.12 ng/m^3) lag der Jahresmittelwert im Bereich des Zielwertes (Anmerkung: Da der europäische Zielwert für BaP ohne Dezimalstelle festgelegt wurde gilt der Zielwert bis zu einem Jahresmittelwert von 1.49 ng/m^3 formal als eingehalten).

Es konnten hohe Korrelationen zwischen den Jahresmittelwerten der gemessenen BaP- und der PM10-Konzentrationen für alle vier Gruppen mit gleicher Luftbelastung festgestellt werden (Abbildung 12). Die jeweiligen Gruppen wiesen Korrelationen (R^2) von 0.72 ("Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung"), 0.85 ("Ländlich"), 0.86 ("Städtisch/Vorstädtisch") und 0.88 ("Verkehr") auf. Es zeigt sich, dass die Achsenabschnitte für alle Gruppen innerhalb der Messunsicherheit identisch sind. Drei Gruppen ("Verkehr", "Städtisch/Vorstädtisch" und "Ländlich") weisen für die Steigung der linearen Trendgerade denselben Wert auf. Innerhalb der drei Gruppen lassen sich lediglich Unterschiede hinsichtlich des jeweiligen Konzentrationsbereichs von PM10 feststellen. Die Steigung der linearen Trendgeraden der Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzverbrennung" weist einen um Faktor 1.8 höheren Wert als die der übrigen drei Gruppen auf. Dies ist auf den höheren Anteil von BaP im PM10 an den Standorten, welche durch Verbrennung von Biomasse beeinflusst sind, zurückzuführen. Die Veränderung der BaP- und der PM10-Konzentrationen in den vier Gruppen mit gleicher Luftbelastung zwischen Beginn der Messreihe (Mittelwert 1998 – 2000) bis zum aktuellen Zeitpunkt (Mittelwert der vergangenen drei Jahre, 2021 – 2023) ist in Abbildung 13 dargestellt. Die Abnahme der PM10 – Konzentrationen liegt im Bereich zwischen 34 % (Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung) und 41 % (Verkehr), jene der BaP-Konzentrationen zwischen 43% (Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung) und 70% (Verkehr).

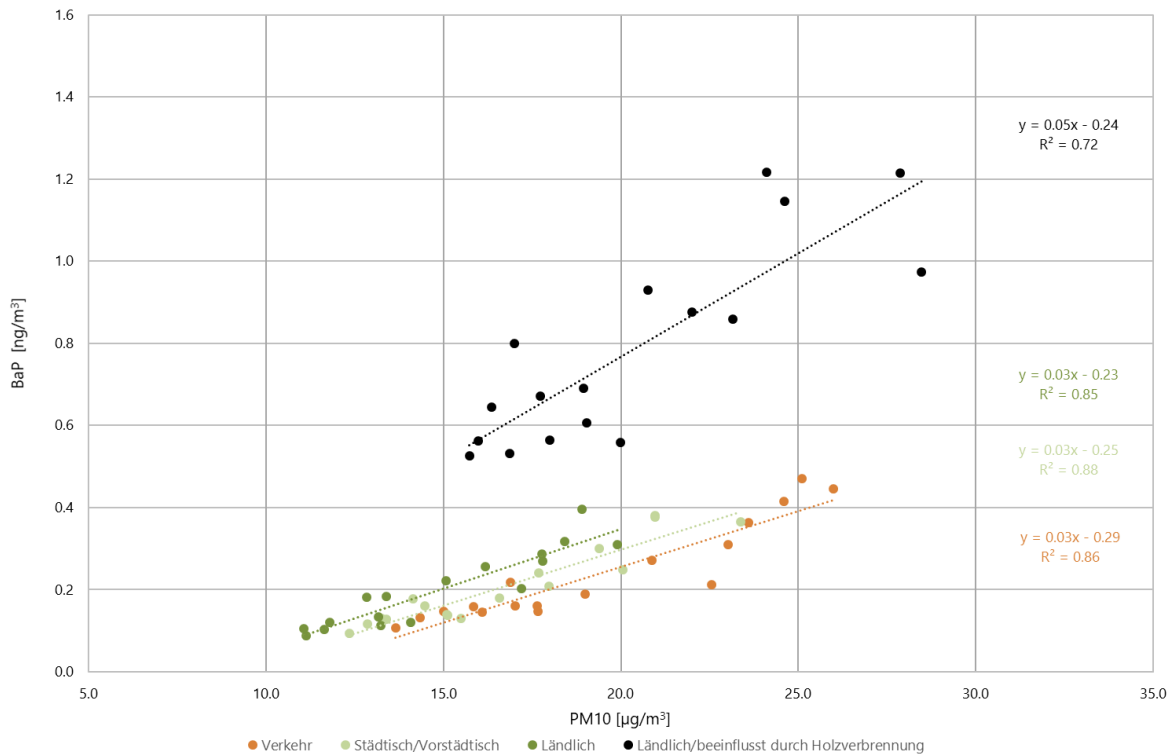


Abb. 12: Vergleich der gemessenen Jahresmittelwerte (2007 – 2023) der PM10- und der BaP-Konzentrationen in 4 Gruppen.

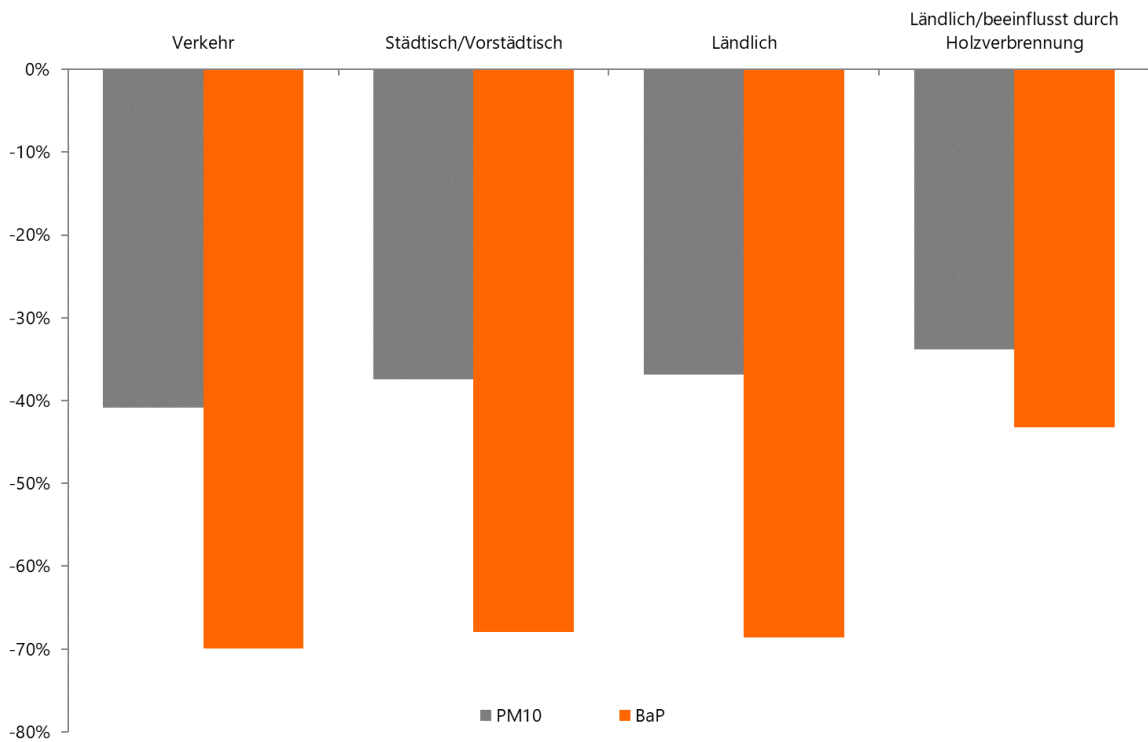


Abb. 13: Veränderung der BaP- und PM10-Konzentrationen zwischen Beginn der Messreihe (MW 2007-2009) und aktuellem Zeitpunkt (MW der vergangenen 3 Jahre 2021 – 2023).

Den langjährigen Verlauf der Quartalswerte der Benzo(a)pyren-Konzentrationen aller Stationen von 2006 – 2023 zeigt die Abbildung 14. In Abbildung 15 sind die Quartalswerte der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM10 aller Standorte im Beobachtungszeitraum dargestellt. Klar zum Ausdruck kommt in den beiden Abbildungen 14 und 15 die ausgeprägte Saisonalität der BaP-Belastungen. In den Monaten Oktober bis März waren die Quartalsmittelwerte am Standort San Vittore jeweils höher als der für den Jahresdurchschnitt definierte Zielwert. Diese Saisonalität kann nicht allein auf die schlechteren Ausbreitungsbedingungen im Winter zurückgeführt werden. Die folgenden Beobachtungen deuten darauf hin, dass die Biomassenverbrennung einen deutlich grösseren Beitrag leistet als der Verkehr. Die Station San Vittore weist trotz Verkehrseinfluss durch die A13 im Sommer nur sehr geringe BaP-Konzentrationen auf. Ein identisches Bild, mit Überschreitungen des Zielwerts in den Quartalswerten der Monate Oktober bis März, zeigte sich bei den Resultaten der Messstation Ebnat-Kappel (vorhandene Messungen Mitte 2010 – Mitte 2012, sowie 2020 – 2021). Zusammen mit den ebenfalls nur mässigen BaP-Konzentrationen an den stark verkehrsbelasteten NABEL-Stationen Bern-Bollwerk, Lausanne-César-Roux und Härkingen-A1 ist dies ein Hinweis für die eher geringe Bedeutung des Strassenverkehrs für die PAK-Belastungen der Aussenluft. Untersuchungen in Baden-Württemberg im Zeitraum 2008-2009 (LUBW 2010) an zwei verschiedenen Standorten haben zu einer analogen Annahme geführt, dass die verstärkte Nutzung von Holzfeuerungen an einem der Standorte zu erhöhten Benzo(a)Pyren-Konzentrationen geführt haben.

Neben San Vittore weisen auch die deutlich erhöhten Werte bei den Winterquartalen der Station Magadino-Cadenazzo (sowie in früheren Jahren Ebnat-Kappel, Grabs, Flums und Altstätten) darauf hin, dass die zahlreichen Holzfeuerungen in Verbindung mit austauscharmen Inversionslagen zu sehr hohen PAK-Belastungen führen können und bestätigen somit den dominierenden Einfluss der Biomassenverbrennung. Die Bedeutung der PAK-Emissionen von Holzfeuerungsanlagen in besiedelten Berggebieten zeigen auch die Messungen von höchsten BaP-Konzentrationen im Muotatal im Kanton Schwyz in den Monaten Januar bis März 2018, sowie in den Jahren 2009 und 2011 (Minder et al. 2018).

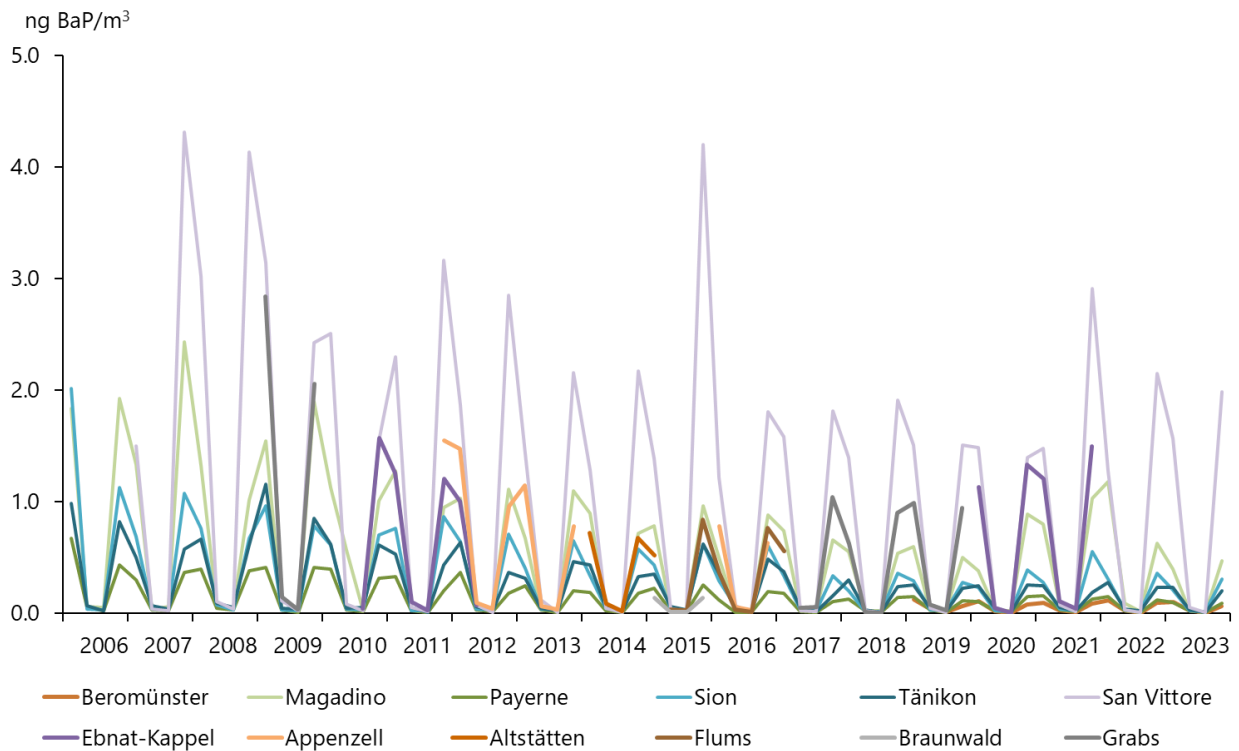
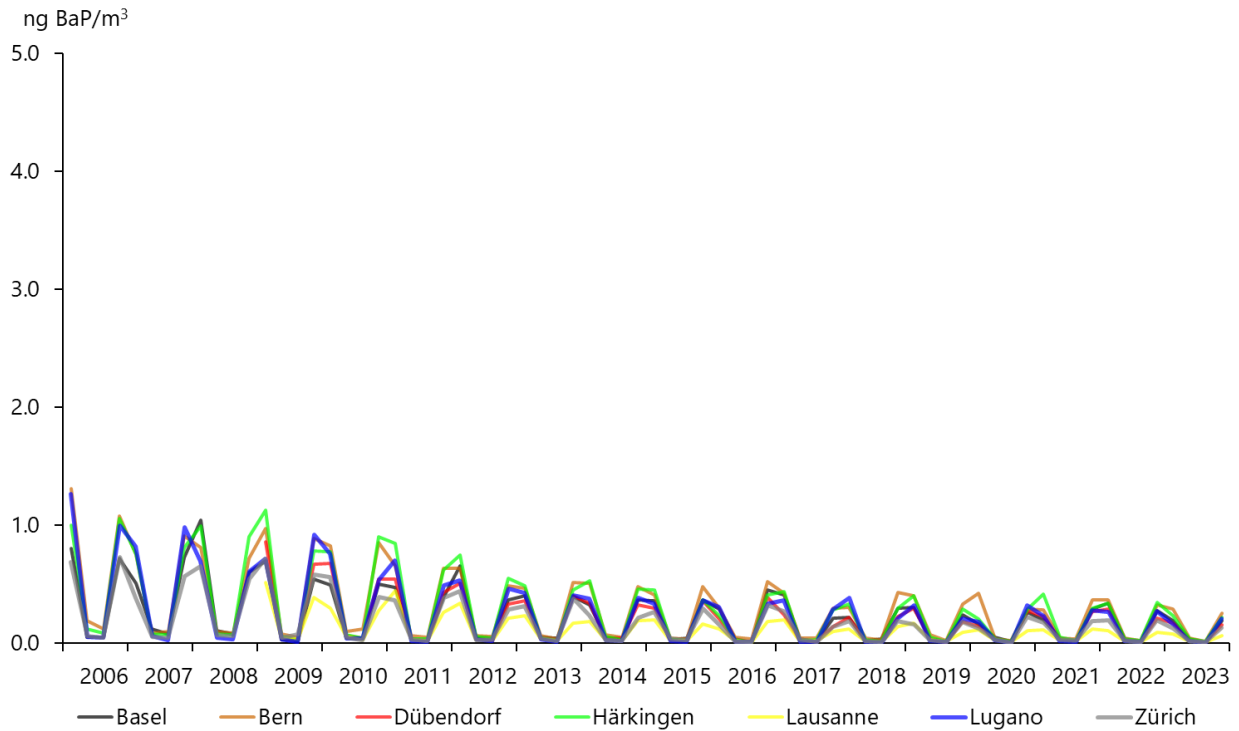


Abb. 14: Quartalswerte 2006 - 2023 der Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10. Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte.

Detaillierte Darstellung der Resultate für Benzo(a)pyren

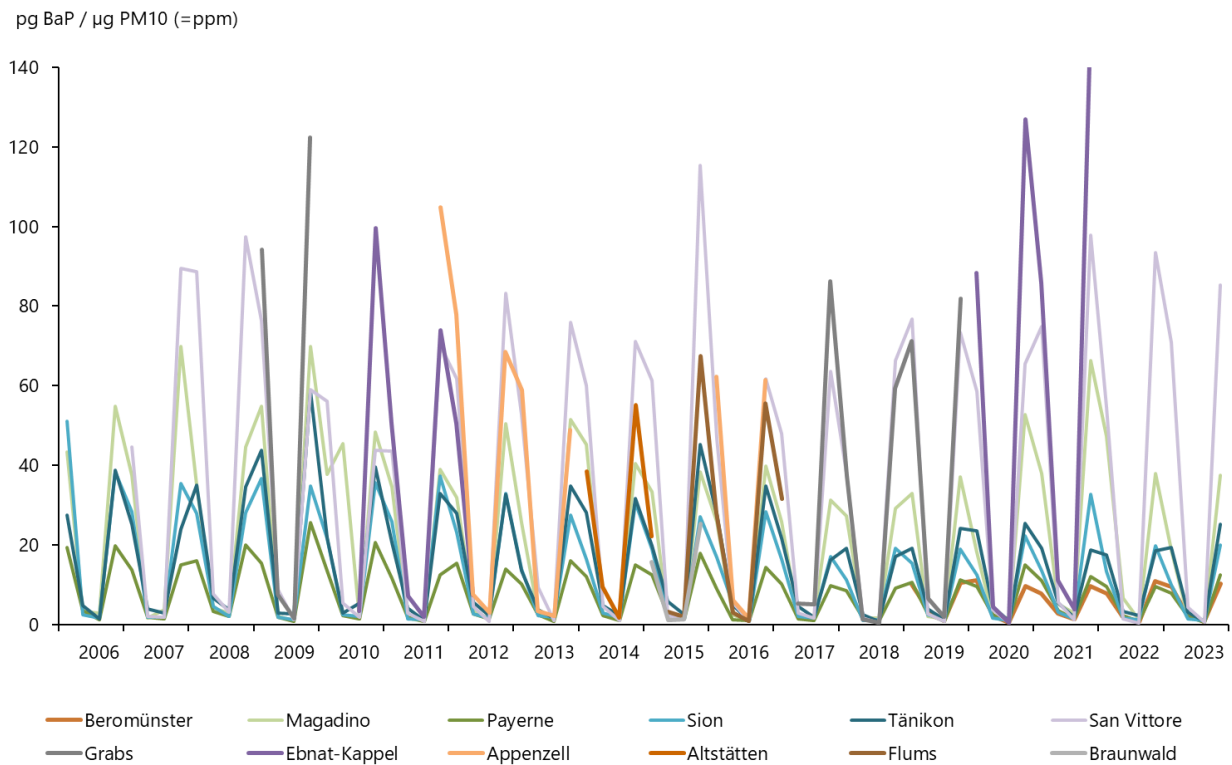
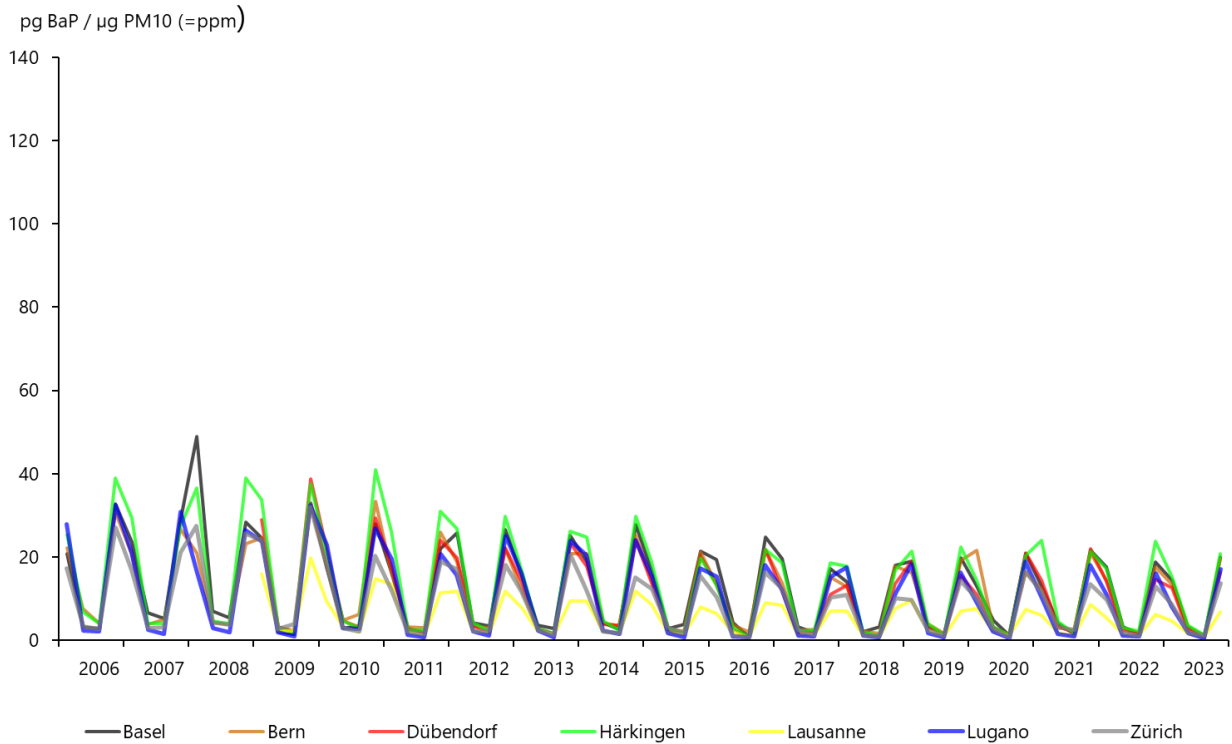


Abb. 15: Quartalswerte 2006-2023 der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM_{10} . Oben städtische, vorstädtische Stationen und Verkehrsstandorte, unten ländliche Standorte.

Die in Abbildung 16 dargestellten Ergebnisse bieten einen kompakten und durch die Mittelung über die Messjahre 2006 - 2023 für die meisten Stationen bereits recht robusten Überblick über die sehr unterschiedlichen Belastungen der BaP-Konzentrationen im Sommer und im Winter. Die dunkelrot und dunkelblau dargestellten Mittelwerte zeigen die Mittelwerte über den gesamten Messzeitraum (einzig die Stationen San Vittore (2007), sowie Dübendorf-Empa und Lausanne-César-Roux (beide 2010) weisen einen späteren Messstart auf). Die hellroten Sommerwerte und die entsprechenden hellblauen Winterwerte zeigen Mittelwerte jener Stationen, die zwischen einem und 5 Jahren, während der Messjahre 2010 bis 2023, in Betrieb waren. Die Mittelwerte über den gesamten Beobachtungszeitraum der jeweiligen Stationen liegen während der Sommermonate (April – September) im Bereich von 0.02 (Lausanne, Lugano, Payerne) bis 0.06 (Bern) und während der Wintermonate (Januar bis März und Oktober bis Dezember) zwischen 0.19 (Lausanne) und 2.13 ng BaP/m³ (San Vittore). Am Standort Beromünster liegen bis anhin Daten von fünf Messjahren vor und diese zeigen für die Sommermonate einen Mittelwert von 0.02 und die Wintermonate einen Mittelwert von 0.09 ng BaP/m³. Die Unterschiede zwischen den Mittelwerten der Winter- und der Sommermonate über alle Messjahre entsprechen einem Faktor zwischen 8.2 (Lausanne) und 58 (San Vittore).

Abbildung 17 zeigt die mittleren Gehalte an BaP im Feinstaub für die jeweilige, analoge Zeitperiode im Sommer und im Winter an den verschiedenen Standorten. Die dunkelroten und dunkelblauen Messwerte repräsentieren die Mittelwerte über die gesamte Messperiode von 2006 bis 2023 (Ausnahme San Vittore 2007 bis 2023), während die hellen Messwerte die Mittelwerte jener Stationen zeigen, die nur während einiger Zeit (siehe Tab. 2) in Betrieb waren.

In Abbildung 18 sind die Jahresmittelwerte 2023 der gemessenen Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10 für die Sommer- und die Wintermonate in 4 Gruppen ("Verkehr", "Städtisch/Vorstädtisch", "Ländlich" und "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerung") mit jeweils ähnlicher Luftbelastung zusammengefasst. Während im Sommer geringe Unterschiede zwischen den 4 Gruppen zu verzeichnen sind, zeigt bei den Wintermonaten die Gruppe "Ländlich/beeinflusst durch Holzfeuerungen" gegenüber den übrigen drei Gruppen stark erhöhte BaP-Konzentrationen. Dieser Konzentrationsunterschied Winter/Sommer 2023 entspricht einem Faktor 51, während die übrigen Gruppen Faktoren von 8 - 10 aufweisen. Im Vergleich dazu liegen die Faktoren für die PM10 Konzentrationen in den 4 Gruppen zwischen 1.1 ("Ländlich", "Städtisch/vorstädtisch", "Verkehr") und 1.6 ("ländlich/beeinflusst durch Holzverbrennung").

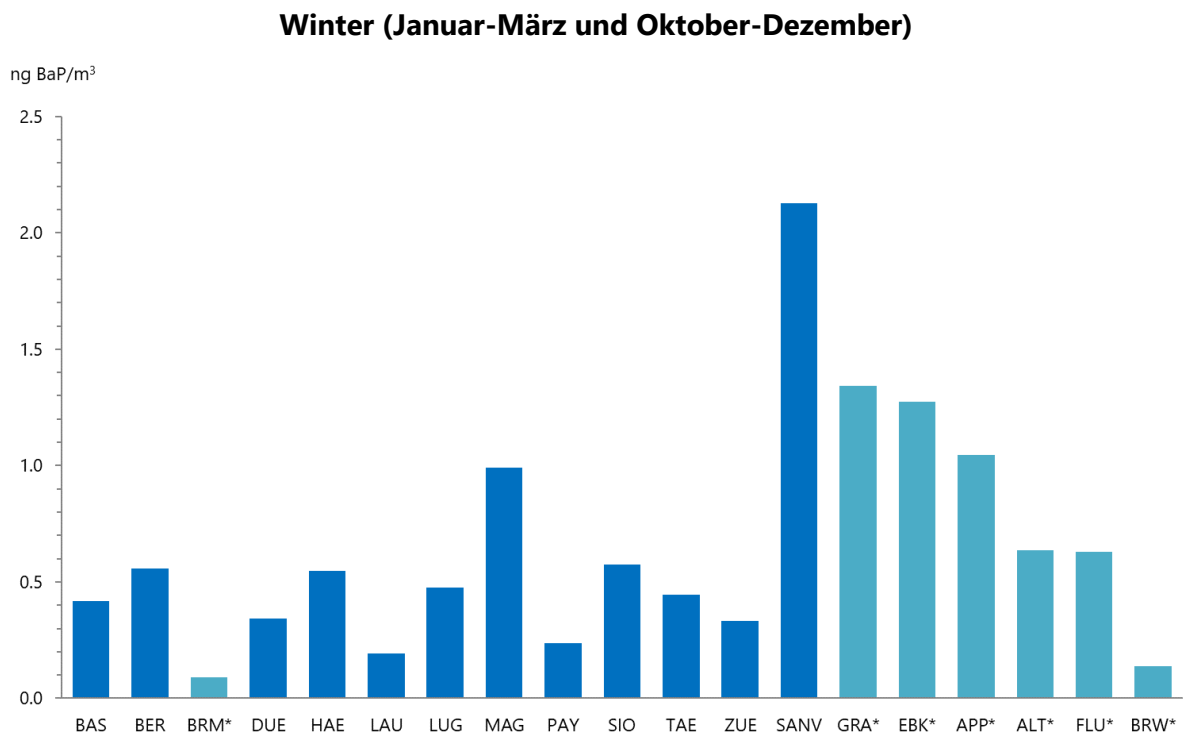
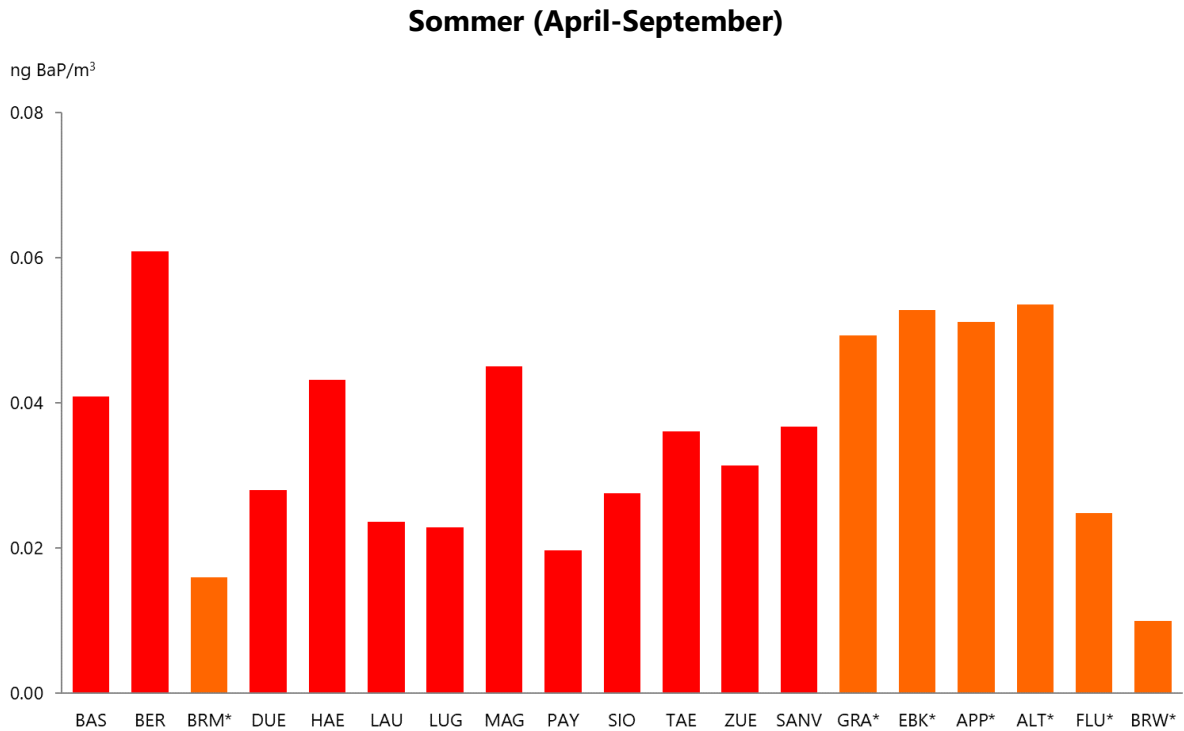


Abb. 16: Vergleich der mittleren Konzentrationen von Benzo(a)pyren im PM10 im Sommer und im Winter von 2006-2023 (*soweit Messwerte vorhanden, siehe Tab. 2). Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Sommer- und Wintergrafiken.

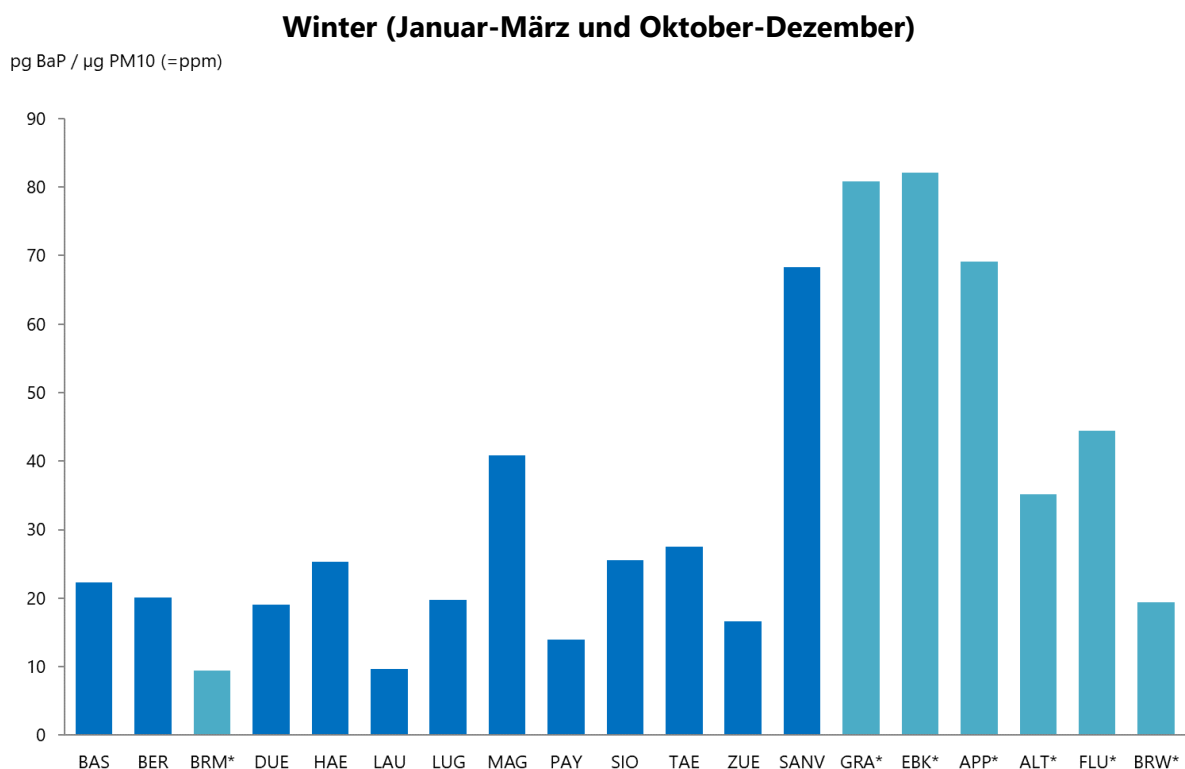
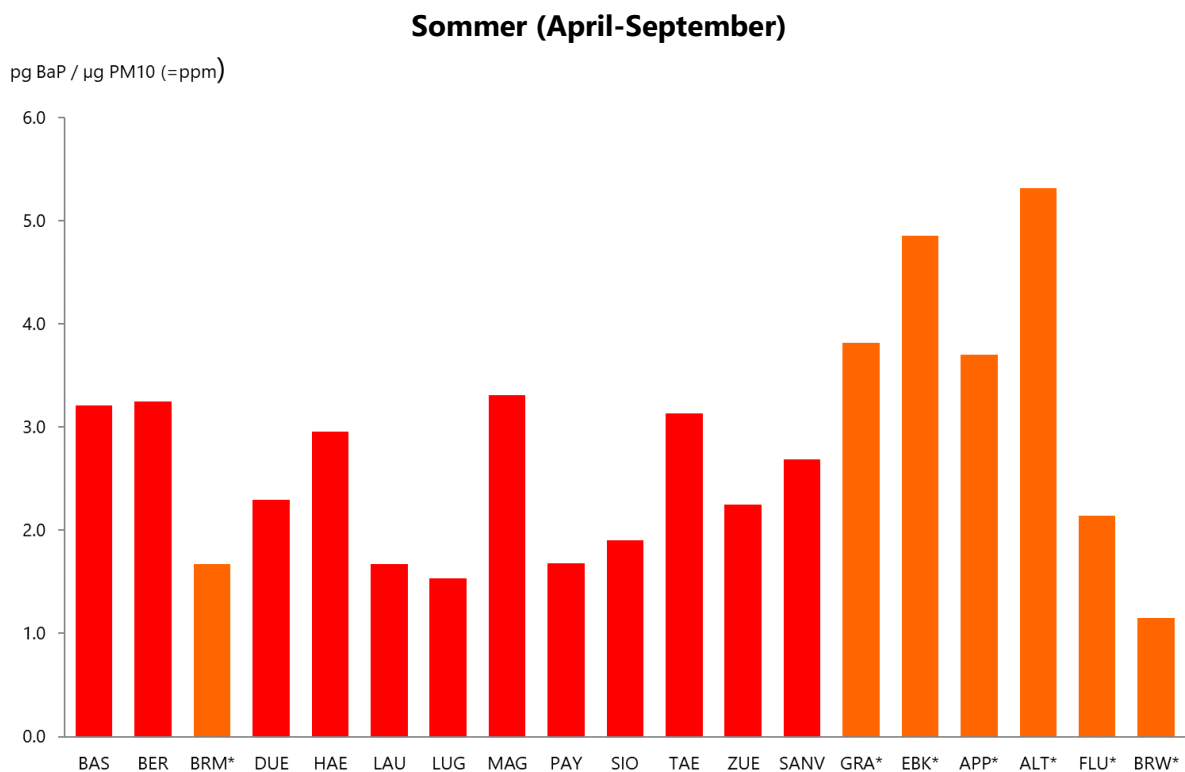


Abb. 17: Vergleich der Gehalte von Benzo(a)pyren im PM10 im Sommer und im Winter von 2006-2023 (*soweit Messwerte vorhanden, siehe Tabelle 2). Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Sommer- und Wintergrafiken.

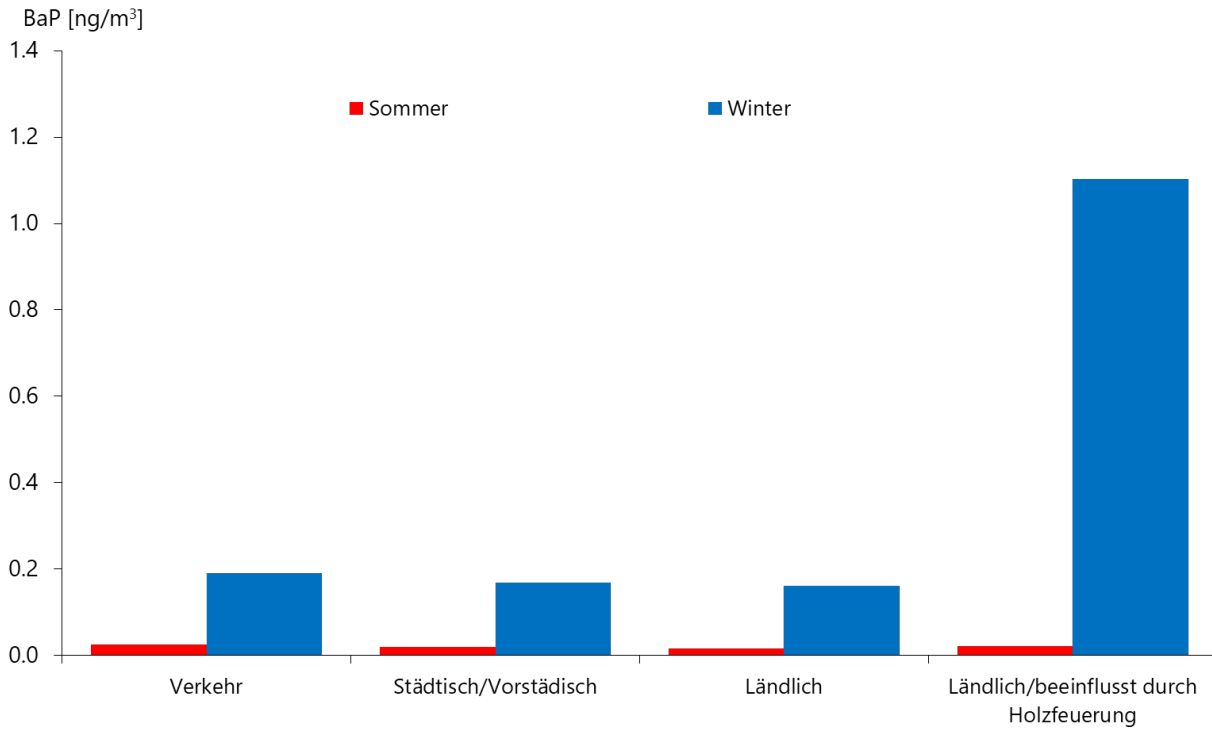


Abb. 18: Vergleich der mittleren Konzentrationen im Jahr 2023 von Benzo(a)pyren im PM10 im Sommer und im Winter. Die Jahresmittelwerte der gemessenen Konzentrationen sind in 4 Gruppen mit jeweils ähnlicher Luftbelastung zusammengefasst.

6 Literaturverzeichnis

- Andersson J.T. & Achten Ch. (2015). Time to Say Goodbye to the 16 EPA PAHs? Toward an Up-to-Date Use of PACs for Environmental Purposes. *Polycyclic Aromatic Compounds*, 35: 2- 4, 330 – 354. <https://doi.org/10.1080/10406638.2014.991042>.
- BAG (2020). Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK). Factsheet Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK); Bundesamt für Gesundheit BAG; Oktober 2020; <https://www.bag.admin.ch/bag/de/home/gesund-leben/umwelt-und-gesundheit/chemikalien/chemikalien-a-z/polyzyklische-aromatische-kohlenwasserstoffe-pak.html>.
- Bari M.A., Baumbach G., Brodbeck J., Struschka M., Kuch B., Dreher W. and Scheffknecht G. (2011). Characterisation of particulates and carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in wintertime wood-fired heating in residential areas. *Atmospheric Environment* 45, 7627 – 7634, ; DOI:10.1016/j.atmosenv.2010.11.053.
- Bari M.A., Baumbach G., Kuch B. and Scheffknecht G. (2010). Particle-phase concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air of rural residential areas in southern Germany. *Air Qual Atmos Health* 3: 103 -116; DOI 10.1007/s11869-009-0057-8.
- Brown R.J.C. and Brown A.S. (2012). The effect of degradation by gaseous oxidants on measured benzo[a]pyrene concentrations. NPL Report AS 72.
- CEN (2008). Air Quality - Standard method for the measurement of the concentration of benzo(a)pyrene in ambient air. EN 15549.
- Collins J. F., Brown J.P., Alexeef G.V., and Salmon A.G. (1998). Potency Equivalency Factors for Some Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Derivatives. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 28, 45 - 54.
- EEA (2024). Europe's air quality status 2024. European Environment Agency <https://www.eea.europa.eu/publications/europes-air-quality-status-2024>.

- EEA (2024b). European Union emission inventory report 1990-2022 -Under the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (Air Convention), EEA Report No 08/2024, European Agency. ISSN 1977-8449. Luxembourg: Publications Office of the European Union. <https://www.eea.europa.eu/publications/european-union-emissions-inventory-report-1990-2022>.
- Empa (2024). Technischer Bericht zum Nationalen Beobachtungsnetz für Luftfremdstoffe (NABEL) 2024; Dübendorf, Switzerland; https://www.empa.ch/documents/56101/246436/Technischer_Bericht_2024/0d7b63e5-70a1-4fba-ad3a-599347447a32.
- EU-Commission (2004). Directive 2004/107/EC of the European parliament and the council of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air. Official Journal of the European Communities L 23, 26 January 2005: 3-16. <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/en/ALL/?uri=CELEX%3A32004L0107>.
- IARC (2010). IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans. Volume 92 , Some Non-heterocyclic Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Some Related Exposures.. World Health Organisation; Geneva, Switzerland: 2010. Working Group on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans. <https://inchem.org/documents/iarc/iarcmono/v92iarc.pdf>.
- IARC (2013). Air pollution and cancer. IARC scientific publication no 161. <http://publications.iarc.fr/Book-And-Report-Series/Iarc-Scientific-Publications/Air-Pollution-And-Cancer-2013>.
- Minder N., Wey H. und Ruckstuhl Ch. (2018). Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) im atmosphärischen Feinstaub (PM10); Vergleich der Feinstaubuntersuchungen im Muotatal zwischen den Messkampagnen 2009, 2011 und 2018. inNET Monitoring AG.
- Jameson CW (2019). Polycyclic aromatic hydrocarbons and associated occupational exposures. In: Baan RA, Stewart BW, Straif K, editors. Tumour Site Concordance and Mechanisms of Carcinogenesis. Lyon (FR): International Agency for Research on Cancer; 2019. IARC Scientific Publications. Chapter 7.

- Krismer A. (2015). Benzo(a)Pyren und Hausbrand. Amt der Tiroler Landesregierung, Abt. Waldschutz.
https://www.tirol.gv.at/fileadmin/themen/umwelt/luftqualitaet/downloads/sonstige_Berichte/Benzo_a_pyren_und_Hausbrand.pdf
- Lim H., Silvergren S., Spinicci S., Rad F.M., Nilsson U., Westerholm R., and Johansson Ch. (2022). Contribution of wood burning to exposures of PAHs and oxy-PAHs in Eastern Sweden. *Atmos. Chem Phys.*, 22, 11359 - 11379. <https://doi.org/10.5194/acp-22-11359-2022>.
- Liu K., Duan F., He K., Ma Y. and Cheng Y. (2014). Investigation on sampling artifacts of particle associated PAHs using ozone denuder systems. *Front. Environ.Sci. Eng.* 8(2): 284-292.
- LUBW (2010). Bestimmung des Beitrags der Holzfeuerung zum PM10-Feinstaub an zwei Messstationen in Baden-Württemberg von Oktober 2008 bis Dezember 2009. LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg. Bericht 64-01/2010.
- LUBW (2020). Messungen von Feinstaub und Staubinhaltsstoffen in ausgewählten Schwarzwaldtälern - Ergebnisse der Messungen 2019. Dokument-ID 1012; Baden-Württemberg. <https://pudi.lubw.de/detailseite/-/publication/10124>.
- Nisbet, I. C. T. and LaGoy, P. K. (1992). Toxic Equivalency Factors (TEFs) for Polycyclic Aromatic-Hydrocarbons (PAHs). *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 16(3): 290-300.
- Samburova, V., Zielinska, B. and Khlystov, A. (2017). Do 16 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Represent PAH Air Toxicity? *Toxics*, 5 (3); <https://doi.org/10.3390/toxics5030017>.
- Schauer, C., Niessner, R. and Poschl, U. (2003). Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulate matter: Decadal and seasonal trends, chemical degradation, and sampling artifacts. *Environ. Sci. Technol.* 37(13): 2861-2868.
- Schläpfer, K. (1995). PAH-Immissionsmessungen in den Kantonen Zürich, Schaffhausen und Luzern (1994/1995); Im Auftrag des Amtes für Technische Anlagen (ATAL) Zürich, des Kant. Laboratoriums für Lebensmittelkontrolle und Umweltschutz Schaffhausen und des Amtes für Umweltschutz Luzern.

- Targa, J., Ripoll, A., Banyuls, L., Gonzalez Ortiz, A. and Soares, J. (2024). Status report of air quality in Europe for year 2022, using validated data (ETC-HE Report 2024/3). <https://www.eionet.europa.eu/etcs/etc-he/products/etc-he-products/etc-he-reports/etc-he-report-2024-3-status-report-of-air-quality-in-europe-for-year-2022-using-validated-data>.
- Tomasetig, F., Tebby, C., Graillot V., Zeman, F., Pery, A., Ceavedi, J.P., and Audebert, M. (2020). Comparative genotoxic potential of 27 polycyclic aromatic hydrocarbons in three human cell lines. *Toxicology Letters*, 2020, 326, pp.99-105. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378427420300795>.
- Tsiodra, I., Tavernaraki, K., Grivas, G., Parinos, C., Papoutsidaki, K., Paraskevopoulou, D., Liakakou, E., Gogou, A., Bougiatioti, A., Gerasopoulos, E., Kanakidou, M., and Mihalopoulos, N (2024). Spatiotemporal Gradients of PAH Concentrations in Greek Cities and Associated Exposure Impacts. *Toxics*, 12 (4). <https://www.mdpi.com/2305-6304/12/4/293>.
- Tsiodra, I., Grivas, G., Tavernaraki, K., Bougiatioti, A., Apostolaki, M., Paraskevopoulou, D., Gogou, A., Parinos, C., Oikonomou, K., Tsagkaraki, M., Zampas. P., Nenes, A., and Mihalopoulos, N. (2021). Annual exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in urban environments linked to wintertime wood-burning episodes. *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 17965 -17993. <https://doi.org/10.5194/acp-21-17865-2021>.
- U.S. EPA (2017). IRIS Toxicological Review of Benzo[A]Pyrene (Final Report). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, EPA/635/R-17/003F, 2017.
- WHO Regional Office for Europe (2021). Human health effects of polycyclic aromatic hydrocarbons as ambient air pollutants: Report of the Working Group on Polycyclic Aromatic Hydrocarbons of the Joint Task Force on the Health Aspects of Air Pollution, Copenhagen; <https://www.who.int/europe/publications/i/item/9789289056533>.
- WHO (2020). AirQ+: software tool for health risk assessment of air pollution, Geneva <https://www.who.int/europe/publications/i/item/WHO-EURO-2020-1561-41312-56214>.

WHO (2020). Health impact assessment of air pollution: introductory manual to AirQ+. Copenhagen: WHO Regional Office for Europe; 2020. Licence: CC BY-NC-SA 3.0 IGO <https://iris.who.int/bitstream/handle/10665/337681/WHO-EURO-2020-1557-41308-56210-eng.pdf?sequence=1>.

WHO Regional Office for Europe (2013). Review of evidence on health aspects of air pollution - REVIHAAP Project, Technical Report, Copenhagen; <https://apps.who.int/iris/handle/10665/341712>.

Zotter, P., Ciobanu, V.G., Zhang, Y.L., El-Haddad, I., Macchia, M., Daellenbach, K.R., Salazar, G.A., Huang, R.-J., Wacker, L., Hueglin, C., Piazzalunga, A., Fermo, P., Schwikowski, M., Baltensperger, U., Szidat, S., and Prévôt, A.S.H. (2014). Radiocarbon analysis of elemental and organic carbon in Switzerland during winter-smog episodes from 2008 to 2012 - Part 1: Source apportionment and spatial variability. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 15591 - 15643. doi:10.5194/acpd-14-15591-2014.

Anhang

Tab. A1: Quartalsmittelwerte der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3) des Jahres 2023 an NABEL-Stationen.

Messstelle	Quartal 2023	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Fluoranthen	Pyren	Benzo(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylen
Basel	JFM	13.52	0.22	0.21	0.11	0.21	0.59	0.16	0.19	0.30	0.03	0.33
	AMJ	11.34	0.06	0.05	0.02	0.04	0.10	0.03	0.04	0.06	0.01	0.06
	JAS	11.80	0.04	0.03	0.01	0.01	0.04	0.01	0.01	0.03	0.00	0.03
	OND	9.68	0.12	0.13	0.09	0.14	0.47	0.13	0.19	0.28	0.03	0.34
Bern	JFM	21.62	0.28	0.26	0.20	0.32	0.72	0.21	0.29	0.37	0.04	0.40
	AMJ	14.20	0.14	0.09	0.03	0.06	0.15	0.04	0.04	0.07	0.01	0.08
	JAS	14.90	0.14	0.07	0.01	0.02	0.05	0.02	0.02	0.03	0.00	0.05
	OND	12.80	0.19	0.17	0.15	0.20	0.54	0.16	0.25	0.29	0.03	0.32
Beromünster	JFM	10.64	0.16	0.15	0.06	0.11	0.27	0.08	0.10	0.15	0.02	0.15
	AMJ	9.10	0.05	0.04	0.01	0.02	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.03
	JAS	9.57	0.02	0.02	0.00	0.00	0.02	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01
	OND	6.12	0.08	0.09	0.04	0.07	0.18	0.05	0.06	0.10	0.01	0.10
Dübendorf	JFM	13.34	0.21	0.20	0.10	0.17	0.41	0.15	0.17	0.20	0.02	0.21
	AMJ	11.65	0.06	0.06	0.02	0.03	0.08	0.02	0.03	0.04	0.01	0.04
	JAS	12.12	0.04	0.03	0.01	0.01	0.04	0.01	0.01	0.02	0.00	0.03
	OND	9.46	0.12	0.14	0.08	0.11	0.35	0.10	0.16	0.20	0.02	0.22
Härkingen	JFM	15.28	0.25	0.24	0.14	0.25	0.62	0.18	0.23	0.33	0.04	0.34
	AMJ	11.14	0.08	0.06	0.03	0.05	0.12	0.03	0.04	0.06	0.01	0.07
	JAS	12.80	0.06	0.04	0.01	0.03	0.05	0.01	0.02	0.03	0.00	0.03
	OND	10.66	0.14	0.14	0.12	0.17	0.48	0.14	0.22	0.27	0.03	0.30
Lausanne	JFM	16.84	0.14	0.12	0.05	0.12	0.29	0.08	0.08	0.14	0.02	0.15
	AMJ	11.54	0.06	0.04	0.01	0.03	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.03
	JAS	12.06	0.05	0.03	0.01	0.02	0.04	0.01	0.01	0.02	0.00	0.03
	OND	9.96	0.08	0.07	0.05	0.09	0.22	0.06	0.07	0.11	0.01	0.13
Lugano	JFM	19.98	0.17	0.16	0.08	0.19	0.57	0.15	0.16	0.29	0.03	0.30
	AMJ	10.35	0.04	0.03	0.01	0.02	0.06	0.02	0.02	0.04	0.00	0.04
	JAS	12.69	0.02	0.02	0.00	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.00	0.02
	OND	12.35	0.11	0.11	0.09	0.14	0.47	0.13	0.21	0.27	0.03	0.29
Magadino	JFM	20.80	0.24	0.27	0.21	0.39	1.02	0.29	0.39	0.55	0.07	0.59
	AMJ	10.00	0.04	0.03	0.01	0.03	0.07	0.02	0.02	0.03	0.01	0.04
	JAS	12.50	0.02	0.02	0.01	0.03	0.04	0.01	0.01	0.02	0.01	0.03
	OND	12.62	0.30	0.20	0.24	0.36	0.99	0.26	0.47	0.44	0.08	0.46
Payerne	JFM	12.26	0.18	0.14	0.05	0.10	0.29	0.08	0.10	0.16	0.02	0.16
	AMJ	9.64	0.04	0.03	0.01	0.02	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.03
	JAS	10.22	0.02	0.02	0.00	0.00	0.02	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01
	OND	6.98	0.09	0.09	0.05	0.09	0.23	0.06	0.09	0.12	0.01	0.12
Sion	JFM	20.74	0.22	0.21	0.15	0.27	0.60	0.16	0.21	0.28	0.03	0.31
	AMJ	12.85	0.05	0.04	0.01	0.03	0.06	0.02	0.02	0.03	0.00	0.04
	JAS	14.83	0.06	0.04	0.01	0.03	0.05	0.01	0.02	0.03	0.00	0.04
	OND	15.18	0.18	0.19	0.19	0.25	0.65	0.18	0.30	0.30	0.03	0.32
Tänikon	JFM	11.78	0.24	0.25	0.13	0.23	0.59	0.17	0.23	0.31	0.03	0.31
	AMJ	9.82	0.06	0.05	0.02	0.03	0.08	0.02	0.03	0.05	0.01	0.05
	JAS	10.50	0.02	0.02	0.00	0.00	0.03	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01
	OND	7.81	0.19	0.20	0.13	0.18	0.49	0.14	0.20	0.25	0.03	0.26
Zürich	JFM	14.38	0.17	0.16	0.07	0.14	0.41	0.11	0.12	0.21	0.02	0.22
	AMJ	11.24	0.05	0.04	0.01	0.03	0.08	0.02	0.02	0.04	0.01	0.04
	JAS	13.67	0.04	0.03	0.01	0.02	0.06	0.02	0.02	0.04	0.01	0.04
	OND	9.87	0.12	0.11	0.08	0.12	0.35	0.10	0.13	0.18	0.02	0.18

Tab. A2: Quartalsmittelwerte der PM10-Konzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PAK-Konzentrationen (ng/m^3) des Jahres 2023 an der kantonalen Station San Vittore.

Messstelle	Quartal 2023	PM10 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) *	Fluoranthren	Pyren	Benz(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b+j)fluoranthren	Benzo(k)fluoranthren	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3,cd)pyren	Dibenzo(ah)anthracen	Benzo(ghi)perylene
San Vittore	JFM	22.1	0.39	0.48	1.07	1.22	3.13	0.80	1.56	1.16	0.13	1.09
	AMJ	12.1	0.06	0.06	0.03	0.06	0.15	0.04	0.05	0.07	0.01	0.08
	JAS	14.5	0.02	0.02	0.00	0.00	0.02	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01
	OND	23.3	0.30	0.40	1.29	1.37	3.07	0.90	1.99	1.23	0.16	1.11

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