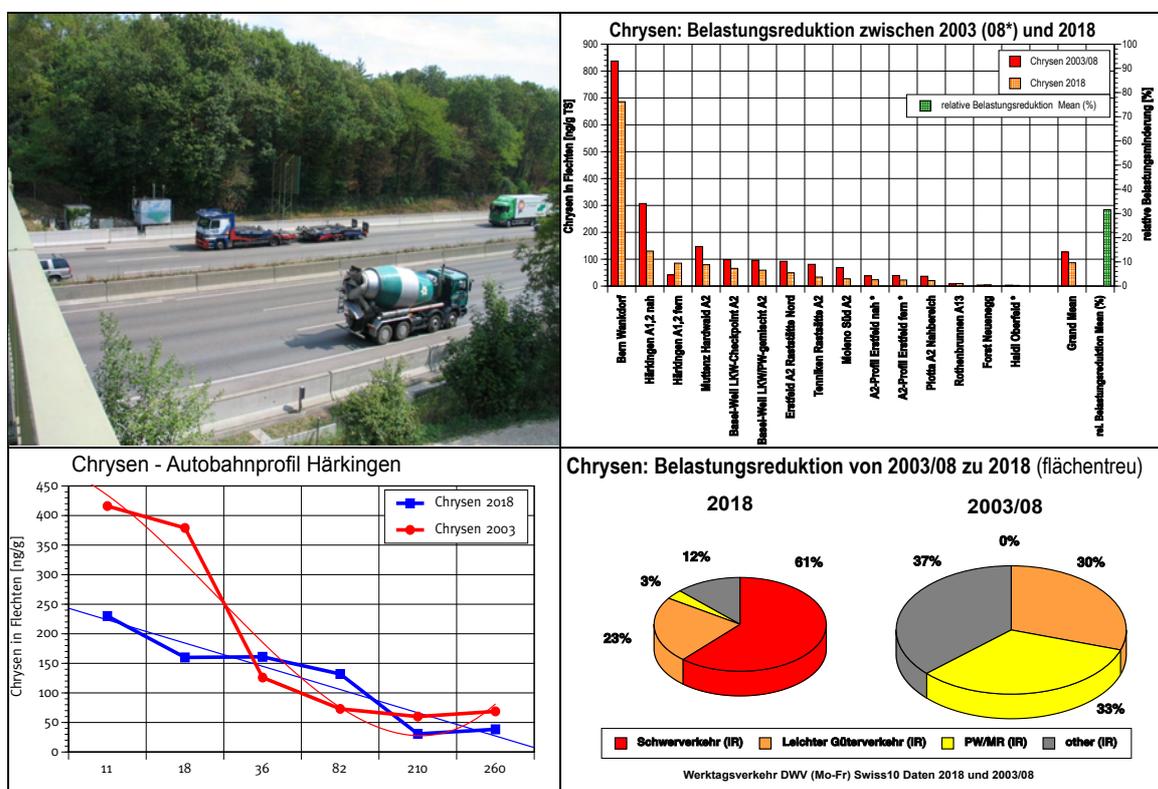


Biologisches Luftqualitätsmonitoring mit Flechten entlang der A2 und A13 und Zuweisung relevanter Luftschadstoffe zum Motorfahrzeugverkehr im Monitoring flankierende Massnahmen Umwelt (MfM)

Erste Erfolgskontrolle nach 15 Jahren von 2003 bis 2018



18. März 2021

Dr. Rolf Herzig AGB
Arbeitsgemeinschaft für Bioindikation,
Umweltbeobachtung und ökologische Planung
Quartiergasse 12, 3013 Bern

Im Auftrag des Bundesamts für Umwelt (BAFU)

Impressum

Auftraggeber

Bundesamt für Umwelt BAFU
3003 Bern

Projektbearbeitung

Dr. Rolf Herzig
AGB, Arbeitsgemeinschaft für Bioindikation,
Umweltbeobachtung und ökologische Planung
Quartiergasse 12, CH 3013 Bern
Tel. 031 / 332 66 29; e-mail: rolf.herzig.agb@bluewin.ch

in Zusammenarbeit mit

PD Dr. Christian Schindler, Swiss TPH Basel, Statistische Beratung und Modellierung
Prof. Yonanda Madrid, Universidad Complutense Madrid, Anorganische Spurenanalytik
Dr. Nina Lohmann, Eurofins/GFA Lab Services Hamburg, Organische Spurenanalytik, PAKs

Begleitung

Klaus Kammer, Eidgenössisches Departement für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation
UVEK, Bundesamt für Umwelt BAFU, Sektion Umweltbeobachtung

unter freundlicher Mitwirkung von

Hanspeter Lötscher ANU Kt. Graubünden

Niklas Joss Widmer AFU Kt. Uri

Martin Schmid, Bundesamt für Strassen ASTRA, Abteilung Strassennetze, Verkehrs- und
Innovationsmanagement, Verkehrsmonitoring

Kathrin Grotrian, Projektleiterin Mobilitätsstrategie, Bau- und Verkehrsdepartement des Kantons
Basel-Stadt, Mobilität

Max Leyck, Tiefbauamt der Stadt Bern

Silvia Luginbühl, Neuenegg

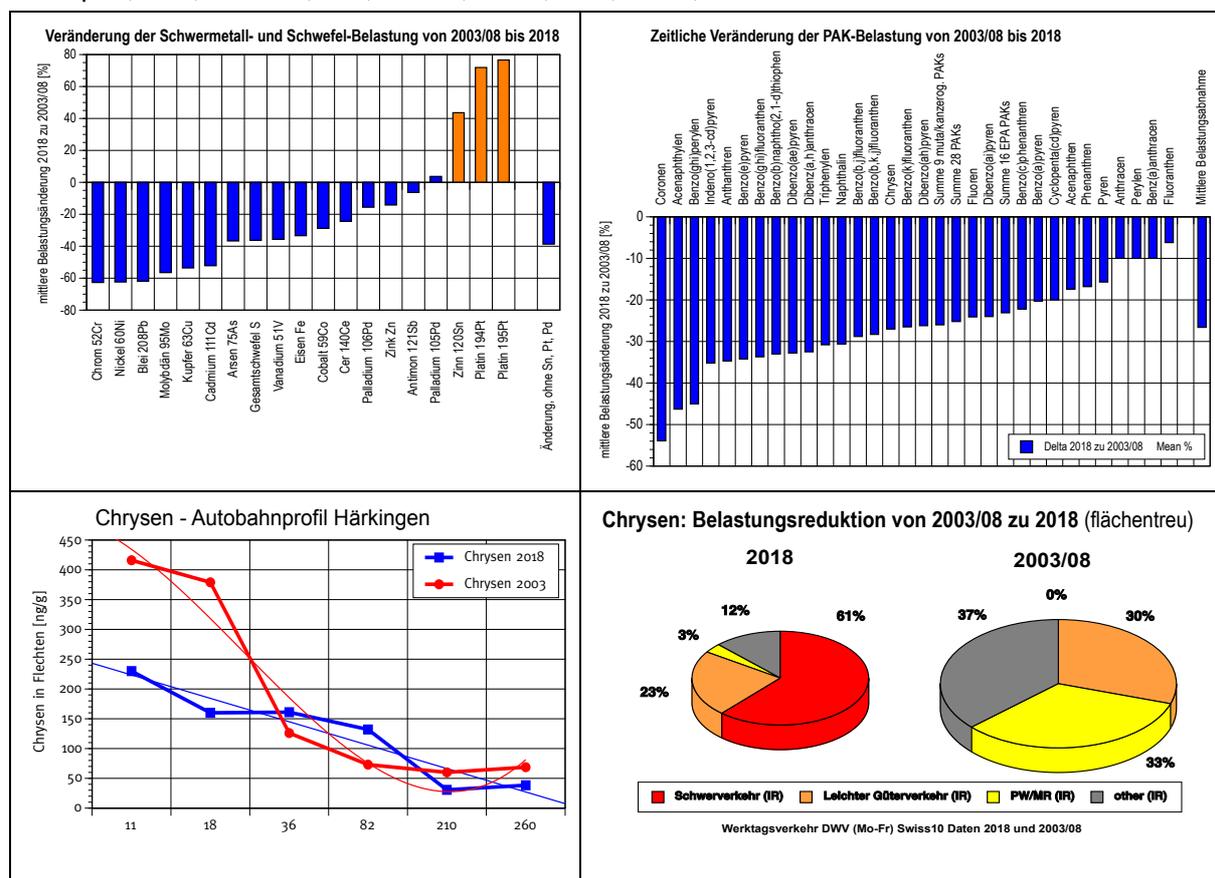
Hinweis

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

Zusammenfassung

Wiederholte Biomonitoringanalysen mit Flechten entlang der Alpentransitautobahnen A2 (Basel – Chiasso) und A13 (St. Margrethen – Bellinzona) und einem Verkehrsknotenpunkt der A1/A6 in der Stadt Bern zeigen eine deutliche Reduktion der Luftbelastung mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs) und Schwermetallen zwischen 2003/08 und 2018. Für alle 32 analysierten PAKs beträgt die mittlere Reduktion 27% und für Coronen sogar 54%. Auch mehrere Schwermetalle zeigen einen starken Belastungsrückgang, welcher für Chrom, Nickel und Blei sogar über 60% beträgt. Damit zeigt sich mit dem sensiblen Flechtenbiomonitoring auch immissionsseitig eine positive Wirkung der bisher erreichten Verbesserungen in der Motorenentwicklung und Abgasbehandlung von modernen fossil betriebenen Motorfahrzeugen in den letzten Jahren.

Auch die beiden Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt zeigen für die meisten untersuchten Schadstoffe einen deutlichen Belastungsrückgang zwischen 2003/08 und 2018. Es zeigt sich auch, dass die durch den Motorfahrzeugverkehr emittierten PAKs und Schwermetalle entlang intensiv befahrener Verkehrsachsen hauptsächlich innerhalb eines schmalen Belastungskorridors von 80 - 200 Metern deponiert werden. Unter den Substanzen mit diesen Eigenschaften finden sich sowohl mehrere Schwermetalle als auch zahlreiche und z.T. sogar mutagene und kanzerogene PAKs. Diese PAKs werden vorwiegend von Dieselfahrzeugen ohne Partikelfilter und Katalysatoren, aber auch von benzinbetriebenen Katfahrzeuge ohne Partikelfilter emittiert. Literaturrecherchen zeigen, dass neben den Katalysatormetallen auch Treibstoff- und Motoren-Emissionen und Bremsbeläge sowie Additive in Motoren- und Getriebeölen und Autoreifen wichtige Schadstoffquellen des Mfz-Verkehrs darstellen. So stellen auch moderne Bremsbeläge, Katalysatoren und Autoreifen nach wie vor eine relevante Quelle für Kupfer, Zink, Antimon, Blei, Chrom, Eisen, Zinn, Platin, Palladium und Schwefel dar.



Mit multivariaten statistischen Analysen der Schadstoffdaten des Flechtenbiomonitorings und der Verkehrsentwicklung beider Messperioden konnten erneut aussagekräftige Indikatoren von PAKs und Schwermetallen bestimmt werden, welche sich als Tracer zum Nachweis der Belastungsanteile der verschiedenen Verkehrsträger besonders eignen.

Zum Nachweis des Schwerverkehrs, des leichten Güterverkehrs sowie des Personenverkehrs eignen sich spezifische Gruppen von PAKs (siehe unten). Die Schwermetalle Kupfer, Zink, Antimon, Blei und Zinn zusammen mit Indeno(cd)pyren weisen zudem auf die Emissionsanteile des gesamten Motorfahrzeugverkehrs hin. Erstere stammen besonders von Brems- und Kupplungsbelägen, Molybdän aus Motoren- und Getriebeölen und Platin und Palladium aus Abgaskatalysatoren.

Die Modellrechnungen zeigen allerdings auch, dass der aktuelle Verkehrsanteil bei den Schwermetallen unterschiedlich hoch ausfällt. Beim toxikologisch heiklen Antimon beträgt dieser hohe 58% und 41% bei Kupfer während dieser bei weiteren Schwermetallen meist nur zwischen 24 - 38% liegt. Platin, Palladium und Zinn zeigen für 2018 als einzige einen Belastungsanstieg gegenüber der Erstuntersuchung von 2003/08 und weisen damit auf den vermehrten Einsatz in Abgaskatalysatoren sowie in modernen Bremsbelägen hin. Eine klare Differenzierung in die verschiedenen Verkehrsquellen wie bei den PAKs ist bei den Schwermetallen und bei Schwefel auch wegen dem starken Belastungsrückgang und der teilweise geringen Distanzabhängigkeit der Flechtenprobenahme zur Autobahn nur beschränkt möglich. Mit diesen Regressions- und varianzanalytischen Verfahren konnten aus dem grossen Kollektiv von 49 untersuchten PAKs, Schwermetallen und Gesamtschwefel 28 geeignete Tracer zum Nachweis der Luftbelastung des motorisierten Strassenverkehrs bestimmt werden, welche für 19 Schadstoffe sogar spezifische Belastungsaussagen für einzelne Fahrzeugkategorien, wie den Schwerverkehr, erlauben.

- Zur Indikation des dieselbetriebenen Schwerverkehrs eignen sich die sechs PAKs Chrysen, Benzo(c)phenanthren, Benzo(k)fluoranthren, Cyclopenta(cd)pyren, Dibenzo(ah)pyren, Benzo(ghi)perylen.
- Für den leichten Güterverkehr (Lieferwagen Kategorien 5,6,7) eignen sich Fluoranthren, die Summe aller 28 PAKs sowie Anthanthren.
- Als Tracer für den aktuellen motorisierten Personenverkehr (PW/MR-Anteil) eignen sich die zehn PAKs Benzo(b,k/j)fluoranthren, Perylen, Benzo(a)pyren, Benz(a)anthracen, Benzo(c)naphtho(21d)thiophen, Pyren, Benzo(e)pyren und Dibenzo(ah)anthracen sowie die Belastungssummen der 16 EPA-PAKs und der 9 sowohl mutagenen und kanzerogenen PAKs.
- Als Tracer für den motorisierten Gesamtverkehrs-Mix eignen sich zudem Indeno(cd)pyren sowie die Schwermetalle Kupfer, Zink, Antimon, Blei, Chrom, Nickel, Zinn (Bremsbeläge), Platin, Palladium (Katalysatoren) und Molybdän (Motoren- und Getriebeöle).

1. Ausgangslage

Anhand von erstmaligen Biomonitoringanalysen von Flechtenproben entlang der Autobahnen A2 und A13 sowie am stark befahrenen innerstädtischen Verkehrsknoten in der Stadt Bern wurde im Jahr 2003 eine teilweise hohe Konzentration von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs) und Schwermetallen festgestellt^{1,2}. Das Autobahnprofil der NABEL-Messstation Härkingen an der A1/A2 deutete darauf hin, dass die durch den Verkehr emittierten PAKs und Schwermetalle entlang intensiv befahrener Verkehrsachsen hauptsächlich innerhalb eines 50-100 m breiten Streifens deponiert werden. Unter den Substanzen fanden sich diverse Schwermetalle sowie mutagene und kanzerogene PAKs. Letztere werden vorwiegend von Dieselmotoren ohne Partikelfilter und Katalysatoren emittiert. Literatur-Recherchen zeigten, dass neben den Treibstoffen und Motoren-Emissionen auch Bremsbeläge und Additive in Motorenölen und Autoreifen wichtige Schadstoffquellen des Motorfahrzeugverkehrs darstellen. So sind beispielsweise Bremsbeläge nach wie vor eine relevante Quelle für Antimon, Blei, Chrom, Eisen, Kupfer, Molybdän, Zink und Zinn.

Im Rahmen der MfM-Erstuntersuchung von 2003 wurden mit multivariaten statistischen Methoden die aussagekräftigsten Tracer für PAKs- und Schwermetalle bestimmt, welche für schwere dieselbetriebene Güterfahrzeuge typisch sind^{1,2}. Diese Feinanalyse der Mfz-relevanten Quellen hat deutlich gezeigt, dass heutzutage nebst der direkten Motoren-Emission auch hochvergütete Bremsbeläge, Motorenöle und sogar Abrieb von Autopneus wesentlich zur Luftbelastung mit Schwermetallen und Schwefel beitragen.

Das Ergebnis dieser umfassenden Evaluation aller in Flechtenproben analysierten 44 Luftschadstoffe der Erstuntersuchung von 2003 war eine nach Fahrzeugtypen differenzierte Liste der 25 aussagekräftigsten Mfz-Verkehrstracer, wovon 15 Tracer den schweren Güterverkehr indizieren. Es handelt sich dabei in abnehmender Abfolge um die folgenden PAK-Substanzen: Perylen, Chrysen, Summe der mutagenen/kanzerogenen PAKs⁶, Benzo(b,k)fluoranthren, Benz(a)anthracen, Indeno(1,2,3-cd)pyren, Benzo(c)phenanthren, Pyren und Benzo(b)fluoren. Der Schwerverkehrsanteil dieser PAKs reicht von hohem 61% bis zu 33%. Schwermetalle und Gesamtschwefel: Blei, Gesamtschwefel, Molybdän, Zink, Chrom und Nickel. Der Schwerverkehrsanteil dieser Schwermetalle und des Schwefels reicht ebenfalls von hohem 71% bis zu 41%.

Daneben konnten mit dem PAK Dibenzo(a,l)pyren auch Tracer für den leichten Güterverkehr und mit Phenanthren, Benzo(a)- und Benzo(e)pyren, Eisen und Kupfer geeignete Tracer für den gesamten Mfz-Verkehrsmix gefunden werden. Als geeignete Tracer für den PW-Anteil haben sich Zinn, Antimon und die Katalysatormetalle Platin und Palladium herausgestellt.

Motorentypen-differenzierte Emissionsmessungen der EU 2002, 2005 und die Messung des Schwerverkehrsanteils im Gubristtunnel (PAKs Gubrist 1993) sowie aktuelle Emissionsmessungen an Brems-

belägen, Motorenölen und Autoreifen der EU von 2005 und die weitere wissenschaftliche Literatur stützten diese neuartigen Erkenntnisse damals sehr gut.

- ¹ Herzig, AGB (2007) Gesamtbericht. Biologisches Luftqualitätsmonitoring mit Flechten entlang der A2 und A13 und Zuweisung relevanter Luftschadstoffe zum Motorfahrzeugverkehr. Monitoring flankierende Massnahmen Umwelt. Schlussbericht Januar 2007. BAFU, Abteilung Klima, Ökonomie, Umweltbeobachtung, Bern.
- ² Herzig, AGB (2007) Kurzfassung: Biologisches Luftqualitätsmonitoring mit Flechten entlang der A2 und A13 und Zuweisung relevanter Luftschadstoffe zum Motorfahrzeugverkehr. Monitoring flankierende Massnahmen Umwelt. Oktober 2007. BAFU, Abteilung Klima, Ökonomie, Umweltbeobachtung, Bern.
- ³ Herzig R, Lohmann N, Meier R, (2019) Temporal change of the accumulation of persistent organic pollutants (POPs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in lichens in Switzerland between 1995 and 2014. *Env Science and Poll Res* 26:10562–10,575.
- ⁴ Persistente organische Luftschadstoffe (POPs) in Flechten Situation 2014/15 im Vergleich zu 1995. Auswahl gemäs POPs-Protokoll der UNECE LRTAP Konvention. Technischer Bericht 22. April 2016 und Kurzfassung 22. April 2017. Herzig AGB zuhanden des Bafu.
- ⁵ BUWAL Umweltmaterialien Nr. 146: Persistente organische Luftschadstoffe (POPs) in der Schweiz - Biomonitoring mit Flechten 2002. Herzig AGB im Auftrag des BUWAL.
- ⁶ Belastungssumme von neun mutagenen und kanzerogenen PAKs: Benz(a)anthracen, Benz(a)pyren, Benzo(b)-, Benzo(k)-, Benzo(b,k)fluoranthren, Benzo(c)phenanthren, Chrysen, Dibenzo(a,h)anthracen, Dibenzo(ah)pyren. Diese Grösse erlaubt einen toxikologisch gestützten Standortvergleich bezüglich der mutagen und kanzerogen wirkenden PAK-Belastung.

2. Zielsetzungen, Vorgehensweise und Methoden

2.1 Zielsetzungen

Mit der ersten Erfolgskontrolluntersuchung von 2018 soll 15 Jahre nach der Erstuntersuchung anhand einer repräsentativen Anzahl der ursprünglich 26 analysierten Versuchsstandorte von 2003 erneut analysiert werden, ob und wie stark sich die vielfältigen emissionsmindernden Massnahmen im Verkehrsbereich mit dem hochempfindlichen Flechtenbiomonitoring auch immissionsseitig in Form einer verringerter Akkumulationsbelastung in den Flechtenproben nachweisen lassen.

Dazu wurden im Herbst 2018 in insgesamt 16 repräsentativen Gebieten der 2003 erstmals untersuchten 26 Verkehrsstandorte entlang der A2 und A13 (Abb. 1) erneut aktuelle Flechtenproben im Stammbereich derselben Laubbäume entnommen und diese zusammen mit den entsprechenden Archivproben von 2003/08 als Probenpaare der identischen Standorte auf die aktuelle Belastung von PAKs, Schwermetallen und Gesamtschwefel analysiert. Vergleichend wurde daraus der Grad der Belastungsänderung für die verschiedenen anorganischen und organischen Luftschadstoffe und Mfz-Verkehrstracer bestimmt. Bestandteil dieser Wiederholungsanalysen sind auch die beiden Profilstandorte Härkingen-Nabel 2003 und Erstfeld-Feldmatt 2008, wo quer zur Autobahn in Distanzen von 10-260m vertiefte Analyse der Abklingfunktion der verschiedenen Luftschadstoffe durchgeführt wurden.

Die schadstoffspezifische Belastungsreduktion der Quelle des MfZ-Verkehrs gilt es mit der hier vorgeschlagenen Vergleichsuntersuchung genauer zu eruiieren. In der vergleichenden Auswertung werden die bereits früher identifizierten 25 MfZ-Verkehrstracer, darunter 15 Schwerverkehrstracer und deren Belastungsänderung innert der letzten 15 resp. zehn Jahre besonders berücksichtigt. Dabei werden insbesondere auch Erkenntnisse der MfM-U-Studie^{1,2} von 2005/07 und der POPs Studie^{3,4} vollumfänglich berücksichtigt. Aufgrund der bereits bestehenden wissenschaftlichen Grundlagen konnte davon ausgegangen werden, dass sowohl bei den PAKs als auch den Schwermetallen und dem Gesamtschwefel dank der ergriffenen Minderungsmaßnahmen bedeutende Belastungsreduktionen erzielt wurden^{3,4}.

2.2 Vorgehensweise, Untersuchungsstandorte und Methoden

2.2.1 Auswahl der repräsentativen Verkehrsstandorte

Die für diese Wiederholungsuntersuchung ausgewählten 16 Verkehrsstandorte entlang der Transitautobahnen A2 und A13 sind in Tabelle 1 grau schraffiert. Darunter befinden sich mit vier Standorten auch die beiden Lateralprofile Härkingen-Nabel und Altdorf-Feldmatt an der Transitautobahn A2 mit Probenahmedistanzen von 10-260 m, welche zur Bestimmung der aktuellen Abklingfunktion der verschiedenen Luftschadstoffe und deren zeitlichen Veränderung zu früher dienen. Bereits bei der Erstuntersuchung stellte sich der Untersuchungsstandort Chiasso-Progeda (9) als sehr flechtenverarmt dar, weshalb alternativ der stark Mfz-belastete Standort Bern-Wankdorf ebenfalls mit untersucht wurde.

Tab. 1 Untersuchte Verkehrsstandorte der MfM-U-Erfolgskontrolle 2018.

Grau schraffiert sind diejenigen 16 Untersuchungsstandorte der Erstuntersuchungen von 2003¹ und 2008, welche im Rahmen der Erfolgskontrolle 2018 erneut detailliert auf die veränderte PAK- und Multielementbelastung untersucht wurden. An beiden Profilstandorten wurde je ein Nah- und ein Fernbereich zur Autobahn untersucht.

Stationsname	Nr.	untersuchte Verkehrsstandorte	DWV03: SV, LGF, PW/MR	DWV18: SV, LGF, PW/MR
Basel-Weil Zoll LKW-Checkpoint	1a	A2/E35 Zollstation; Transitverkehr, PW LKW	4041, 451, 30362	3185, 3254, 27983
Basel-Weil Zoll LKW/PW Mix A2	1b	A2/E35 Zollstation; Transitverkehr, > LKW-Anteil	4041, 451, 30362	3185, 3254, 27983
MuttENZ-Hardwald A2	2	A2/E35 Regio-Transitverkehr, > LKW-Anteil	11209, 10221, 102660	11918, 21092, 103783
Tenniken MfM-U A2	3	A2/E35 Regio-Transitverkehr, ländlich	7658, 4885, 31197	8253, 7393, 44453
Querprofil Härkingen-NABEL A2,1 Nahbereich	4a	A2/E35 Regio-Transitverkehr, > LKW-Anteil	10004, 13476, 52175	12978, 9574, 75755
Querprofil Härkingen-NABEL A2,1 Fernbereich	4b	A2/E35 Regio-Transitverkehr, > LKW-Anteil	10004, 13476, 52175	12978, 9574, 75755
Reiden MfM-U Nahbereich A2	5a	A2/E35 Regio-Transitverkehr, ländlich	DTV: 43119, LKW: 5108	
Reiden MfM-U Fernbereich A2	5b	A2/E35 Regio-Transitverkehr, ländlich	DTV: 43119, LKW: 5108	
Erstfeld Raststätte A2	6	A2/E35 Nordportal; v.a. Transitverkehr	3835, 1782, 14991	3130, 2816, 16656
Piotta Nahbereich A2	7a	A2/E35 Südportal; v.a. Transitverkehr	3564, 1171, 10818	2899, 1770, 11602
Piotta Mittelbereich A2	7b	A2/E35 Südportal; v.a. Transitverkehr	3564, 1171, 10818	2899, 1770, 11602
Piotta Fernbereich A2	7c	A2/E35 Südportal; v.a. Transitverkehr	3564, 1171, 10818	2899, 1770, 11602
Moleno Nahbereich A2	8	A2/E35 Regio-Transitverkehr	3817, 2386, 18621	3417, 4832, 22086
Chiasso-Zoll LKW-Checkpoint A2	9a	A2/E35 v.a. Transitverkehr	4864, 5423, 54626	3743, 2914, 47046
Chiasso-Zoll und Zentrum A2	9b	A2/E35 Regio-Transitverkehr	4864, 5423, 54626	3743, 2914, 47046
Rothenbrunnen MfM-U A13 Nahb.	10	A13 Regio-Transitverkehr, ländlich	1371, 1478, 11287	1167, 2542, 13617
Forst-Neuenegg (BE)	11	ländlicher Referenzstandort, Background	7, 8, 130 #	12, 10, 135 #
Zusatzstandorte Kanton Uri 2008 und Stadt Bern 2003				
A2-Querprofil Altdorf-Feldmatt Nahbereich	20a	A2/E35 v.a. Transitverkehr	3835, 1782, 14991	3130, 2816, 16656
A2-Querprofil Altdorf-Feldmatt Fernbereich	20b	A2/E35 v.a. Transitverkehr	3835, 1782, 14991	3130, 2816, 16656
Haldi-Oberfeld, obh. Schattdorf (UR)	21	subalpiner Referenzstandort, verkehrsfrei	5, 2, 5 #	5, 2, 7 #
Bern-Wankdorf	12	A6; Regio-Transitverkehr, > LKW-Anteil	2424, 2771, 29840	1150, 3320, 23100 *

★ DWV-Daten von 2016 # Schätzung

Wiederholung der Untersuchungen an beiden Autobahnprofilen

Bestandteil dieser Wiederholungsuntersuchung sind auch die beiden Verkehrsstandorte Härkingen-Nabel und Erstfeld-Feldmatt, wo 2003 und 2008 erstmals vertiefte Profilanalysen quer zur Autobahn A2 bzw. A1 in Distanzen von 10-260 m zur Bestimmung der räumlichen Reichweite der verkehrsbedingten Belastungsschneise und der Abklingfunktion der verschiedenen Luftschadstoffe durchgeführt wurden (Abb. 1). Die wiederholten Flechtenprobenahmen erfolgten in beiden Profilstandorten Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt an denselben Trägerbäumen wie 2003 und 2008 im Nah- und Fernbereich der A2 in Distanzen zwischen 10 und 260 Metern. Dabei handelt es sich um die Standorte 4a, 4b, 20a, 20b von Tab. 1.

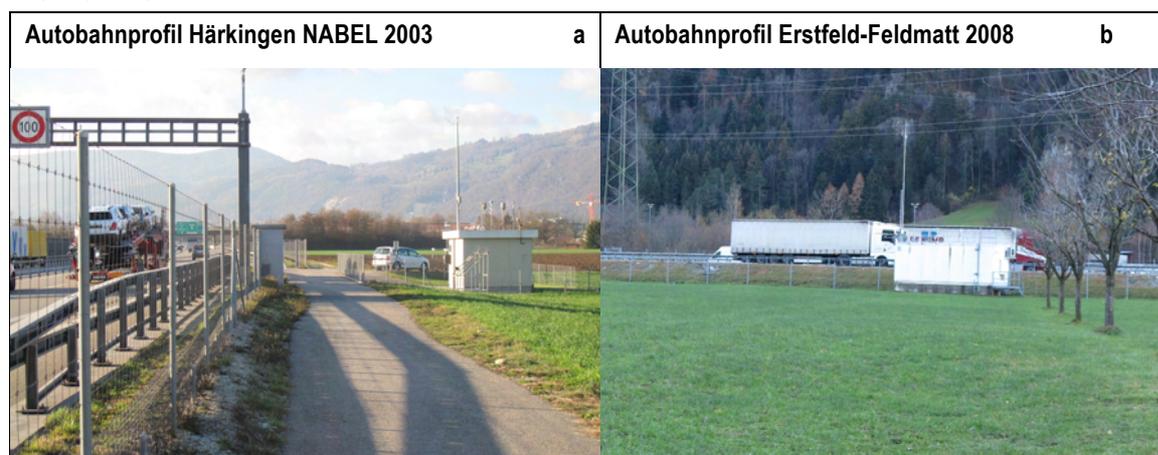


Abb. 1 Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt zur Bestimmung der verkehrsbedingten Abklingfunktionen für die verschiedenen Luftschadstoffe. Die Untersuchungen erfolgten 2003, 2008 und 2018 je im Nah- und Fernbereich zur Autobahn in Distanzen zwischen 10 und 260m.

Im Herbst und Winter 2018/19 erfolgten an den 16 ausgewählten und repräsentativen Verkehrsstandorten der Erstuntersuchungen von 2003 und 2008 erneut standardisierte Flechtenprobenahmen im Stammbereich derselben Laubbäume. Diese aktuellen Flechtenproben wurden danach zusammen mit ausgewählten Archivproben von 2003/08 auf die Belastung mit besonders verkehrsrelevanten PAKs,

Schwermetallen und Gesamtschwefel von zwei mit Flechtenproben erfahrenen Analytiklabors analysiert. Vergleichend wird daraus der Grad der Belastungsverminderung für die verschiedenen anorganischen und organischen Luftschadstoffe und Mfz-Verkehrstracer bestimmt.

3. Standardisierte Flechtenprobenahme und Spurenanalytik

Das Untersuchungskonzept der Erfolgskontrolle von 2018 sah vor, dass an allen 16 Untersuchungsstandorten (Tab. 1) je repräsentative Mischproben der Flechtenart *Parmelia sulcata* an den bereits 2003/08 erstmals beprobten und inventarisierten Laubbäumen entnommen wurden. Im A2-Quertrassekt Altdorf-Feldmatt wurde aus Vergleichbarkeitsgründen die Flechtenart *Xanthoria parietina* beprobt. In diesem Standortkollektiv mit dabei ist auch der langjährige und Referenzmessstandort Forst-Neuenegg mit Hintergrundbelastung. Dieser Standort erlaubt es, zeitlich bedingte Veränderungen der einzelnen Substanzen über einen längeren Zeitraum zu erkennen.

Aus Vergleichbarkeitsgründen erfolgten die Flechtenprobenahmen für die Wiederholungsuntersuchung von 2018 streng analog zur Erstuntersuchung von 2003/08. Pro Untersuchungsstandort wurden dazu für die PAK-Analysen Flechtenproben von je drei exakt definierten Baumstandorten entnommen, während die Multielementanalysen an fünf bereits inventarisierten Trägerbäumen gewonnen werden. Davon wurden für die anorganischen Spurenanalysen die drei geeignetsten Proben verwendet, welche noch genügend Archivprobenmaterial der Erstuntersuchung aufwiesen. Diese wiederholten, standardisierten Flechtenprobenahmen für die vergleichenden Spurenanalysen erfolgten im Spätherbst 2018 an den in Tab. 1 grau schraffierten 16 Standorten.

3.1 Spurenanalysen der Flechtenproben

Als anorganische Luftschadstoffe wurden die **17 Schwermetalle** Blei, Cadmium, Kupfer, Zink, Eisen, Molybdän, Chrom, Cobalt, Nickel, Vanadium, Arsen, Zinn, Antimon, Platin, Cer, Palladium sowie Gesamtschwefel (S-total) analysiert. Als weitere erfolgsversprechende Verkehrstracer wurden auch Cer und Palladium untersucht. Palladium wird aktuell in Katalysatoren von benzinbetriebenen Fahrzeugen und Platin vorwiegend für Dieselfahrzeuge verwendet. Cer kommt als Additiv in gewissen Treibstoffen und Katalysatoren zur effizienteren Verbrennung von Russ, bzw. Abscheidung in den Partikelfiltern zum Einsatz kommt. Mit Ausnahme von Zn, Fe und S wurden die anderen Schwermetalle als Isotopen analysiert (⁵¹V, ⁵²Cr, ⁵⁹Co, ⁶⁰Ni, ⁶³Cu, ⁷⁵As, ⁹⁵Mo, ¹¹¹Cd, ¹²⁰Sn, ¹²¹Sb, ¹⁴⁰Ce, ²⁰⁸Pb, ¹⁹⁴Pt, ¹⁹⁵Pt, ¹⁰⁵Pd, ¹⁰⁶Pd). Für Platin und Palladium wurden je zwei Isotope analysiert.

Als organische Luftschadstoffe wurde erneut die Stoffklasse der polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe PAKs untersucht, welche zusammen mit Russpartikeln besonders von Dieselmotoren ohne Katalysatoren und Partikelfiltern emittiert werden. Dazu wurden dieselben **30 PAK-Einzelsubstanzen** Naphthalin, Acenaphthylen, Acenaphthen, Fluoren, Phenanthren, Anthracen, Fluoranthren, Pyren, Benz(a)anthracen, Chrysen, Benzo(b)fluoranthren, Benzo(k)fluoranthren, Benzo(e)pyren, Benzo(a)pyren, Perylen, Indeno(123-cd)pyren, Dibenz(ah)anthracen, Benzo(ghi)perylen, Anthanthren, Coronen sowie geeignete Summenparameter zur Indikation der gesamtheitlichen Belastung mit PAKs gemäss der POP-Studie (BUWAL Umwelt-Materialien 146 und MfM-Erststudie) analysiert. Integriert in die Untersuchungen sind auch neue humantoxikologisch relevante PAKs (z.B. Dibenzo(a,x)pyrene, Benzo(b)naphtho(2,1-d)thiophen, Benzo(c)phenanthren, Cyclopenta(cd)pyren), welche als geeignete Tracer für Dieselfahrzeuge dienen könnten (WHO-Europe, 2003).

Weil sich eine Beschränkung der anorganischen und organischen Spurenschadstoffe auf die Liste der Top 25 Verkehrstracer mit dem derzeit angebotenen Standard-Analysenpaket der 16 EPA PAKs, welches nicht alle relevanten Mfz-Verkehrstracer enthält, gar nicht abdecken liessen und sich die Erweiterung des PAK-Spektrums auch nicht entscheidend auf die Preisgestaltung auswirkte, bot das Labor Eurofins/Gfa erneut das vollständige für die POP-Erfolgskontrolle 2017 verwendete PAK-Kollektiv von 27 Einzelsubstanzen an. Darunter befinden sich nicht nur alle Substanzen der Top 25 Verkehrstracer-Liste, sondern auch alle zusätzlich relevanten Verkehrstracer der MfM Erststudie von 2003 sowie interessante neue PAKs. Dasselbe gilt auch für die Multielementanalysen, weshalb auch diese am vollständigen Kollektiv von 17 Schwermetallen und Gesamtschwefel der MfM-Erstuntersuchung von 2003 erfolgten. Damit sind beide Messkollektive weitgehend identisch mit den Kollektiven der MfM-Erstanalysen von 2003 und 2008 und bieten so den entscheidenden Vorteil, dass im direkten Belastungsvergleich auch neue relevante Verkehrstracer erkannt werden können, welche erst in den letzten Jahren, infolge Änderungen und Verbesserungen der Motorentechnik und der Verkehrsflotte, an Bedeutung gewonnen haben. Die vertieften und vergleichenden Belastungsanalysen erfolgen allerdings mit dem besonderen Augenmerk auf die Liste der Top 15 und 25 Verkehrstracer von 2003. Damit die repräsentative Anzahl von 16 Untersuchungsstandorten schadstoffspezifisch, und sogar mit Probenpaaren der Erst- und Wiederholungsuntersuchung, auf die veränderte Mfz-spezifische Depositions-

belastung in Flechten untersucht werden konnte, wurde auf die gleichzeitige Wiederholung der Lüftungserhebungen (IAP18) von 2003 ganz verzichtet.

Im Labor der AGB wurden alle Flechtenproben individuell mit derselben Methodik wie bei der Erstuntersuchung von 2003 aufbereitet (gesäubert von Fremdmaterial und Borketeilen), danach bei schonender Temperatur von 40°C auf Gewichtskonstanz getrocknet und auf einer Retsch Ultrazentrifugalmühle kontaminationsfrei (Ti-Ausrüstung; Sieb 200µm) gemahlen und für die anorganischen und organischen Spurenanalysen separiert und portioniert.

Diese aktuellen Flechtenprobenpaare von 2018 und der identischen Archivproben von 2003/08 wurden in zwei mit Flechtenproben seit vielen Jahren erfahrenen und anerkannten Spurenlabors (Eurofins/gfa Lab Services Hamburg und Complutense Univ. Madrid) auf die PAK- sowie die Multielementbelastung (Schwermetalle und Gesamtschwefel) vergleichend analysiert. Die gleichzeitige Spurenanalyse von standortidentischen Probenpaaren von aktuellen Proben von 2018 und Archivproben von 2003 und 2008 war aus Gründen der Qualitätssicherung erforderlich, weil sowohl für die PAKs- und Multielementanalysen ein Laborwechsel erforderlich war (Emeritierung von Prof. P. Fodor, Comenius Univ. Budapest, Multielementanalysen und Envilab AG, welche heute keine PAK-Analysen in Flechtenproben mehr anbieten). Mit dieser sehr aufwändigen und gleichzeitigen Spurenanalyse von standortidentischen Probenpaaren im selben Analysengang wurde die bestmögliche Qualität der Ergebnisse sichergestellt. Ursprünglich waren zur Qualitätssicherung der Analysen nur zehn Archivproben dafür vorgesehen. Dieses Vorgehen hat sich dann aber für präzise Aussagen zur zeitlichen Veränderung in der PAK- und Schwermetallbelastung als zu wenig sicher herausgestellt.

Die anorganische Isotopenanalytik von Schwermetallen und Schwefel erfolgte durch Prof. Yolanda Madrid, Universidad Complutense Madrid (Nachfolgerin von Prof. Carmen Camara). Dieses Labor verfügt über einen modernst ausgerüsteten Messpark und hat wie Peter Schramel wesentlich bei der Entwicklung und Zertifizierung der BCR-Referenzmaterialien CRM-482 und BCR-679 (Flechte und Weisskohl) der EU beteiligt und kennt sich bestens aus mit den analytisch anspruchsvollen Flechtenproben. Die Flechtenanalysen erfolgten mit hochauflösender ICP-MS (Agilent 7500a). Alle Analysen wurden als unabhängige, d.h. «echte» Dreifachbestimmungen ausgeführt. Die Druckaufschlussanalysen (1.2ml HNO₃ + 0.2ml H₂O₂) erfolgten mit einem Milestone Mikrowellen-Gerät ETHOS PLUS mit einer Einwaage von nur 100mg. Für Pd und Pt erfolgten Spezialanalysen mit 20mg Probenmaterial und zwei nachfolgenden Aufschlussverfahren nach vorgängiger Eindampfung und nach Zugabe von 10ml HCl und Filtration.

Die organische Spurenanalytik der PAKs erfolgte mittels hochauflösender HRGC/HRMS im Spurenlabor der Eurofins-GFA-Labservices in Hamburg (vormals GFA Münster) unter der fachlichen Leitung von Dr. Nina Lohmann, welche bereits im POP-Auftrag die organischen Spurenanalysen von PAKs (Extraktion Hexan/Aceton 4:1, Soxtec und Clean-up mit Kieselgel) und weiteren POPs ausführte und auch die hochkomplexe Extraktions- und Cleanup-Methode sowie GC-MS-Methodik zur quantitativen Analyse von PAKs in Flechtenproben mitentwickelt hat. Um rasche Erfolgskontrollen zu ermöglichen, wurden die materialzehrenden PAK-Analysen (2g/Probe für aktuelle Proben von 2018 und 1g für höher belastete Archivproben 2003/08) als Einfachbestimmungen ausgeführt.

3.2 Feinanalysen zur aktuellen Belastung und zeitlichen Belastungsänderung

Statistische und grafische Analysen zur aktuellen Belastung sowie zur Belastungsänderung im Zeitraum von 2003/08 - 2018. Diese generellen und statistisch orientierten Belastungsvergleiche der beiden Datenkollektive 2003/08 und 2018 erfolgen für alle Messsubstanzen auf der Basis von Mittelwert, Standardabweichung, Medianwert und relative Belastungsänderung anhand der beiden Datenkollektive in Tabellenform sowie grafisch mittels anschaulicher Säulendiagrammen und Box & Whisker Plots. Mit diesen Box & Whisker Plots wird die aktuelle Belastung und Belastungsänderung auch für jede Messstation einzeln und summarisch visualisiert.

Profilanalysen mit Bestimmung der aktuellen Abklingfunktionen

An beiden Profilstandorten Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt werden erneut die Distanzabhängigkeit der analysierten Luftschadstoffe von der Autobahn mit Hilfe der aktuellen Abklingfunktionen ermittelt sowie qualitative und quantitative Vergleiche zur Belastungsänderung seit der Erstuntersuchung von 2003/08 angestellt.

Aktualisierte Traceranalysen mit dem regressions- und varianzanalytischen Verfahren

Die repräsentative Stichprobenzahl von 16 Untersuchungsstandorten und 96 Probenpaaren mit PAK- sowie 117 mit Multielementanalysen erlauben eine zeitliche Aktualisierung der Traceranalysen von 2003 mit aktuellen Swiss10 DWV-Verkehrsfrequenzen des Werktagsverkehrs (Schwerverkehr, leichter Güterverkehr, Personenwagen und Motorräder und der Probenahmedistanz zur A2 und A13).

Im Fokus dieser Teilaktualisierung steht die Liste der 15 aussagekräftigsten Tracer für den schweren Güterverkehr mit Substanzen wie Perylen, der Belastungssumme der neun mutagenen und kanzero-

genen PAKs und die Schwermetalle Molybdän, Blei, Zink, Chrom, Nickel und Gesamtschwefel sowie Dibenzo(a,l)pyren für den leichten Güterverkehr. Als Tracer für den gesamten Verkehrsmix werden u.a. Benzo(a)- und (e)pyren und Kupfer und für den Nachweis des PW-Anteils die Schwermetalle Antimon und Zinn genauer analysiert.

4. Hauptergebnisse der 15-jährigen Erfolgskontrolle

4.1 Belastungsunterschiede beider Gesamtkollektive zwischen 2003/08 und 2018

Die Belastungsvergleiche der beiden Kollektive der Flechtenprobenahmen von 2003/08 und 2018 zeigen die in Tabelle 2 visualisierte abnehmende Rangfolge der 32 PAK Einzel- und Summenparameter mit einer mittleren Belastungsabnahme von 53.9% für Coronen bis zu 6.2% für Flouranthen. Im Mittel aller PAKs ergibt sich eine Abnahme von 26.6% und von 38.7% bei den Schwermetallen und bei Gesamtschwefel, allerdings ohne Platin, Palladium und Zinn, welche Belastungssteigerungen aufweisen.

Für die Schwermetalle und Gesamtschwefel zeigt sich eine Belastungsabnahme von 62.7% für Chrom bis zu 6.3% für Antimon. Hingegen zeigt sich für Zinn, auf tiefem Niveau eine Belastungszunahme von 43.6% und für beide Platin-Isotope von 71.9% bis 76.6%, was auf den vermehrten Einsatz von Platin in Dieselmotoren und bei Zinn in Brems- und Kupplungsbelägen zurückzuführen ist.

Diese Belastungsvergleiche wurden bewusst mit dem Mittelwert durchgeführt, welcher auch extreme Werte der Erstuntersuchung deutlich besser wiedergibt als jene mit den Medianwerten.

Tab. 2 Veränderung der Standortsbelastung von PAKs, Schwermetallen und S zwischen 2003/08 und 2018. Die Belastungsabnahme aller 32 PAK Einzel- und Summenparameter zwischen 2003/08 und 2018 beträgt im Mittel 26.6%. Die Belastungsabnahme der Schwermetalle und von Gesamtschwefel beträgt 38.7% ohne Zinn, Platin und Palladium, welche als einzige Schadstoffe starke Zunahmen aufweisen.

PAK	Mean 2018	Mean 2003/08	Delta 2018 zu 2003/08 Mean %	geeigneter Tracer Schwerverkehr	geeigneter Tracer Lieferwagen	geeigneter Tracer Personenkraftwagen, Motorräder	geeigneter Tracer Gesamtverkehrsmix	Element, Isotop	Mean 2018	Mean 2003/08	Delta 2018 zu 2003/08 Mean %	geeigneter Tracer Gesamtverkehrsmix
Coronen	54	116	-53.9					Chrom 52Cr	9.16	24.58	-62.7	++
Acenaphthylen	5.1	9.5	-46.3					Nickel 60Ni	5.00	13.30	-62.4	++
Benzo(ghi)perylen	90	163	-45.0	+++				Blei 208Pb	18.02	47.29	-61.9	++
Indeno(1,2,3-cd)pyren	71	110	-35.2					Molybdän 95Mo	1.64	3.77	-56.5	++
Anthranthen	13.5	20.7	-34.7					Kupfer 63Cu	35.2	75.9	-53.6	++
Benzo(e)pyren	69	105	-34.2			+++		Cadmium 111Cd	0.22	0.46	-52.2	
Benzo(ghi)fluoranthren	14.3	21.5	-33.7					Arsen 75As	0.83	1.31	-36.7	
Benzo(b)napththo(2,1-d)-thiophen	18.0	26.8	-33.0			+++		Gesamtschwefel S	1897	2978	-36.3	
Dibenzo(ae)pyren	10.3	15.3	-32.8					Vanadium 51V	3.48	5.41	-35.7	
Dibenz(a,h)anthracen	10.9	16.1	-32.5			+++		Eisen Fe	1952	2930	-33.4	
Triphenylen	23.6	34.1	-30.8					Cobalt 59Co	0.70	0.99	-28.8	
Naphthalin	37.8	54.5	-30.6					Cer 140Ce	2.79	3.69	-24.4	
Benzo(b,j)fluoranthren	153	215	-28.8					Palladium 106Pd	40.6	48.1	-15.6	++
Benzo(b,k,j)fluoranthren	198	276	-28.3			+++		Zink Zn	139	162	-14.2	++
Chrysen	87	120	-27.0	+++				Antimon 121Sb	2.25	2.40	-6.3	+++
Benzo(k)fluoranthren	44.4	60.4	-26.5	+++				Palladium 105Pd	68.4	65.9	3.7	+++
Dibenz(ah)pyren	1.4	1.9	-26.2	+++				Zinn 120Sn	3.16	2.20	43.6	++
Summe 9 muta/kanzeroog. PAKs	630	851	-26.0			+++		Platin 194Pt	14.24	8.28	71.9	++
Summe 28 PAKs	1788	2390	-25.2		+++			Platin 195Pt	14.42	8.16	76.6	+++
Fluoren	16.5	21.7	-24.1					Mittlere Belastungsabnahme, ohne Sn, Pt, Pd			-38.7	
Dibenzo(ai)pyren	7.7	10.1	-24.0					negative Werte: Belastungsabnahme				
Summe 16 EPA PAKs	1295	1685	-23.1			+++		positive Werte: Belastungszunahme				
Benzo(c)phenanthren	11.6	14.9	-22.2	+++				Belastungseinheiten:				
Benzo(a)pyren	74.4	93.4	-20.3			+++		PAKs [ng/g TS] und Schwermetalle und 5 µg/g TS]				
Cyclopenta(cd)pyren	14.8	18.5	-20.0	+++				sowie [ng/g TS] für 194Pt, 195Pt und 105Pd, 106Pd				
Acenaphthen	6.9	8.4	-17.4									
Phenanthren	181	218	-16.8									
Pyren	200	237	-15.7			+++						
Anthracen	10.4	11.6	-10.0									
Perylen	15.5	17.2	-10.0			+++						
Benzo(a)anthracen	48.5	53.9	-10.0			+++						
Fluoranthren	300	320	-6.2		+++							
Mittlere Belastungsabnahme			-26.6									

4.2 Standortbezogene Belastungsunterschiede zwischen 2003/08 und 2018

4.2.1 Standortbezogene Schwermetall- und Gesamtschwefel-Belastung

Die Belastungsvergleiche zwischen 2003/08 und 2018 zeigen an allen Untersuchungsstandorten für zwölf ausgewählte Schwermetalle von Tabelle 3 eine mittlere Belastungsabnahme von 6 - 63% (blau markiert). Am stärksten für Chrom, gefolgt von Nickel, Blei, Molybdän, Kupfer und anderen Schwermetallen. Für Zinn ergibt sich hingegen eine mittlere Belastungszunahme von 44% (rot markiert). An Einzelstandorten zeigen vereinzelt auch andere Schwermetalle wie Antimon, Kupfer, Cobalt, Vanadium, Arsen, Nickel, Chrom, Cer, Zink, Molybdän und Blei für 2018 eine Belastungszunahme gegenüber 2003/08. Auffallend für die Schwermetalle mit Belastungszunahmen an Einzelstandorten ist, dass es sich vorwiegend um die Elemente Kupfer, Zink, Blei, Antimon, Molybdän, Chrom, Nickel, Zinn, Platin und Palladium handelt, welche bereits in der MfM-Erststudie von 2005 als geeignete Verkehrstracer beschrieben wurden. Dabei handelt es sich besonders um Legierungsbestandteile von Brems- und Kupplungsbelägen, Autopneus sowie um Katalysatormetalle von Abgasreinigungssystemen. Auf die

Belastungszunahme von Zn, Pt und Pd wurde bereits in Tabelle 2 hingewiesen. Für Gesamtschwefel zeigt sich zwischen 2003/08 und 2018 eine deutliche Belastungsabnahme von 36.3%.

Tab. 3 Veränderung der Schwermetallbelastung der Flechtenproben aller 16 Untersuchungsstandorte zwischen 2003/08 und 2018.

Mittlere prozentuale Belastungsveränderung (%) pro Einzelstandort und gesamthaft aller Standorte															
Standort	Chrom	Nickel	Blei	Molybdän	Kupfer	Cadmium	Arsen	Vandium	Eisen	Cobalt	Cer	Zink	Antimon	Zinn	Site Nr.
Basel-Weil LKW-Checkpoint A2	-33.2	-49.7	-58.2	-42.2	13.9	-41.2	-28.8	-32.5	-7.6	2.2	-15.9	-21.5	11.2	144.9	1a
Basel-Weil LKW/PW-gemischt A2	-15.5	-40.3	-42.9	-17.4	37.2	-42.4	-8.4	-10.8	22.3	15.2	8.3	2.8	84.4	180.4	1b
Muttenz Hardwald A2	-42.7	-42.9	-69.2	-38.3	-25.9	-39.1	-29.2	-28.9	-18.0	-0.9	-0.8	-9.0	-44.2	-44.1	2
Tenniken Nord A2	-44.4	-26.5	-96.0	-30.0	-2.0	-11.7	-19.7	-36.7	-10.1	-31.9	24.9	-40.4	-23.1	70.7	3
Bern Wankdorf	-31.0	-59.1	-38.8	-28.9	-12.0	-55.1	-8.4	-10.5	5.6	-7.2	10.4	-14.6	-34.9	153.5	12
A2-Profil Härkingen A1,2 Nahbereich	-68.7	-66.2	-75.4	-61.9	-29.3	-80.8	-47.2	-47.2	-43.3	-47.0	-37.0	-26.2	-35.6	2.1	4a
A2-Profil Härkingen A1,2 Fernbereich	-52.5	1.3	-96.0	-32.9	13.5	-35.0	-32.7	-27.6	-5.9	-31.6	-13.6	-20.2	10.9	81.1	4b
Erstfeld A2 Raststätte Süd	-25.1	-9.6	4.3	3.6	35.4	-10.4	-5.5	1.0	4.3	14.0	-25.0	27.6	-20.1	213.0	6
A2-Profil Feldmatt Erstfeld Nahbereich	-84.9	-88.9	-20.0	-16.3	-36.2	6.0	-54.9	-38.4	-7.1	-50.5	-17.8	-20.7	-41.5	-45.4	20a
A2-Profil Feldmatt Erstfeld Fernbereich	-82.4	-85.6	7.2	3.9	-52.7	94.2	-39.0	-33.6	6.2	-43.0	-17.4	-7.9	-28.4	-45.1	20b
Plotta A2 Nahbereich	-33.2	-45.9	-66.6	-14.9	-7.7	-56.4	-26.6	-16.2	-34.3	-3.7	-14.3	-11.6	28.5	80.6	7A
Moleno Süd A2	-73.2	-41.4	-77.5	-61.4	-55.8	-53.7	-52.5	-65.1	-61.4	-53.6	-59.6	-18.9	-56.3	-47.1	8
Rothenbrunnen A13	-39.6	-6.1	-28.5	-64.7	1.5	22.3	66.9	43.3	96.9	-36.5	81.3	-22.5	-1.1	32.7	10
Chiasso Zoll LKW Checkpoint A2	-63.5	-55.8	-68.6	-30.4	-39.7	-50.4	-67.8	-77.3	-56.9	-57.7	-66.3	5.9	-37.2	51.3	9a
Haldi Oberfeld UR subalpin, Hintergrund	32.0	-27.8	-49.2	60.4	-8.9	-31.6	-6.1	-18.6	-20.0	-0.1	-19.5	-4.8	-32.9	-18.2	21
Forst Neueneegg, Hintergrund	-53.7	-35.5	-48.7	-46.2	-5.6	21.0	-11.9	-27.6	37.0	-0.6	-2.7	-36.1	53.0	-10.7	11
Mittlere prozent. Belastungsänderung [%]	-62.7	-62.4	-61.9	-56.5	-53.6	-52.2	-36.7	-35.7	-33.4	-28.8	-24.4	-14.2	-6.3	43.6	
Rangfolge mittlere % Belastungsänderung	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
Belastungsveränderung 2003/08 zu 2018	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Abnahme	Zunahme	
prozentuale Belastungsabnahme, 2003/08=100%	-62.7														
prozentuale Belastungszunahme, 2003/08=100%	43.6														

An zwei exemplarischen Beispielen von Nickel (Abb. 2 a,b) und Blei (Abb. 3 a,b) werden die sehr starken Belastungsminderungen zwischen 2003/08 und 2018 je mit einer Säulengrafik und dem BoxPlots visualisiert.

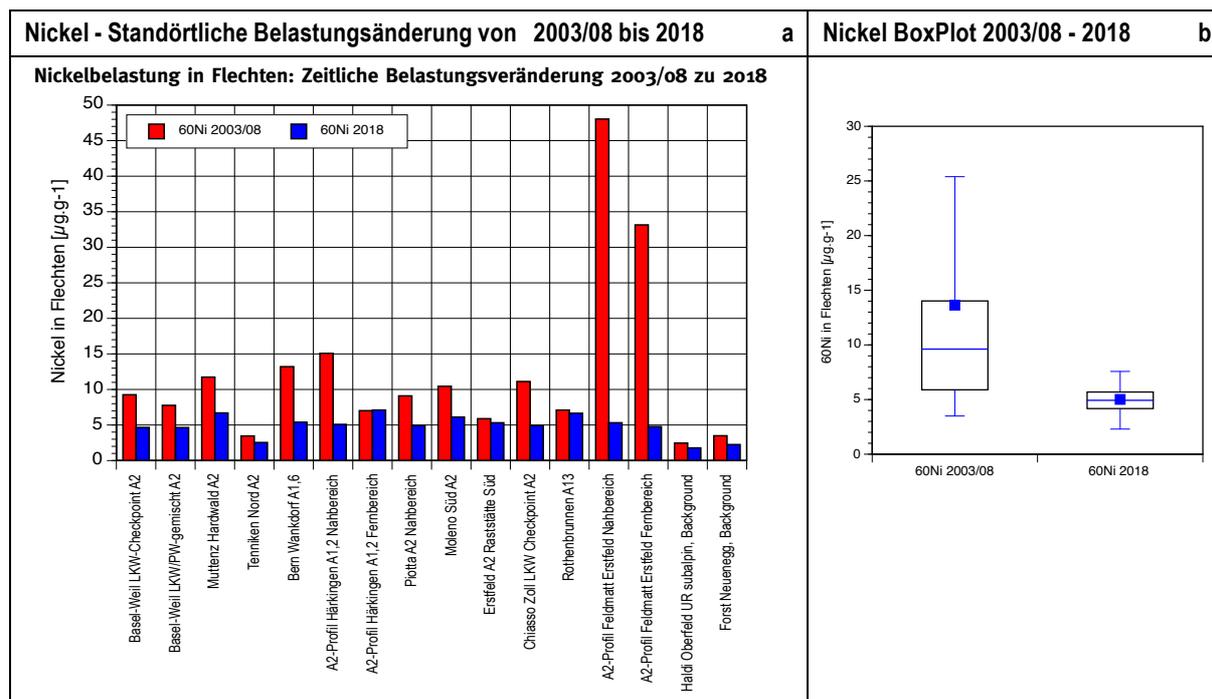


Abb. 2 Sehr deutliche Belastungsreduktion am exemplarischen Beispiel von Nickel (a). Diese zeigt sich an 15 von 16 Standorten (blaue Säulen und Streudiagramm). Einzig am Autobahnstandort Härkingen NABEL ergibt sich im Fernbereich eine minimale Belastungszunahme, die vermutlich durch ein zwischenzeitlich stark vergrößertes Industrie- und Logistikzentrum verursacht wurde. Die meist hohen Belastungsabnahmen reichen von geringen Werten von 6% in Rothenbrunnen bis zu 89% im A2-Profil Erstfeld-Feldmatt, wo sich auch die LKW-Verkehrsführung zwischenzeitlich stark geändert hat. Der Boxplot für Nickel (b) zeigt innerhalb der 15-jährigen Beobachtungszeit eine sehr deutliche Abnahme der Mittel- und Medianwerte sowie auch von extremen Belastungswerten zwischen 2003/08 und 2018.

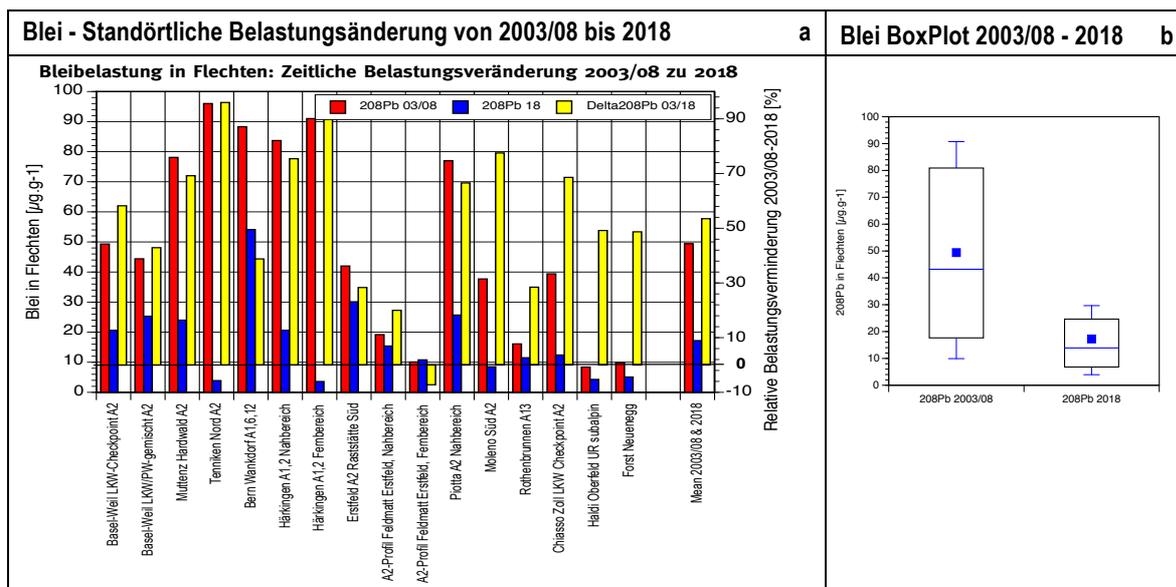


Abb. 3 Deutliche Abnahme der mittleren Bleibelastung der Flechtenproben aller Standorte (a) um hohe 61.9% (gelbe Säulen). Auch der BoxPlot für Blei (b) zeigt innerhalb der 15-jährigen Beobachtungszeit eine sehr deutliche Abnahme der Mittel- und Medianwerte sowie auch von extremen Belastungswerten zwischen 2003/08 und 2018.

Ähnlich hohe Belastungsabnahmen für die Schwermetalle Pb, Cu, Cd und Zn zeigen auch die Depositionsmessungen im NABEL-Messnetz zwischen 1988 und 2017 (BAFU (2018)). Ebenso zeigen vergleichende Analysen von Bremsbelägen (wichtige Quelle der verkehrsbedingten Schwermetallbelastung), von 23 relevanten PW- und von drei LKW-Marken zwischen 1998 und 2005 eine starke Belastungsabnahme der fünf Schwermetalle Cd, Cu, Pb, Sb und Zn. Für Blei betrug diese im Mittel aller analysierten hinteren und vorderen Bremsbeläge zwischen 84.5 und 98.7%. Bei ebenfalls analysierten Autoreifen von 13 bekannten Marken erwiesen sich auch Zink und Schwefel, zusammen mit den oben erwähnten Schwermetallen, als nach wie vor, relevante verkehrsbedingte Quellen der Luftbelastung (Hjortenkrans et al 2007, Westerlund, 2001).

4.3 Standortbezogene PAK-Belastung zwischen 2003/08 und 2018

Auch für alle analysierten 32 PAKs und Summenparameter zeigen sich zwischen 2003/08 und 2018 bedeutende Belastungsabnahmen. Diese betragen im Mittel aller PAKs 26.6% und reichen von hohen 53.9% für Coronen bis zu 6.2% für Flouranthen (Tabelle 2). Anhand von drei exemplarischen Beispielen von Coronen (Abb. 4a), Benzo(ghi)perylen und Acenaphylen (Abb. 5) visualisieren die Säulendiagramme je die Belastungsabnahmen in den Einzelstandorten und zeigen auch deren relative Gesamtveränderung (grüne Säulen und rechte Y-Achsen), wogegen die BoxPlots (4b) die entsprechenden Veränderungen der beiden Flechtenprobenkollektive von 2003/08 und 2018 mit den entsprechenden Mittel- und Medianwerten, den 25- und 75%-Perzentilwerten sowie den Maximal- und Minimalwerten aufzeigen.

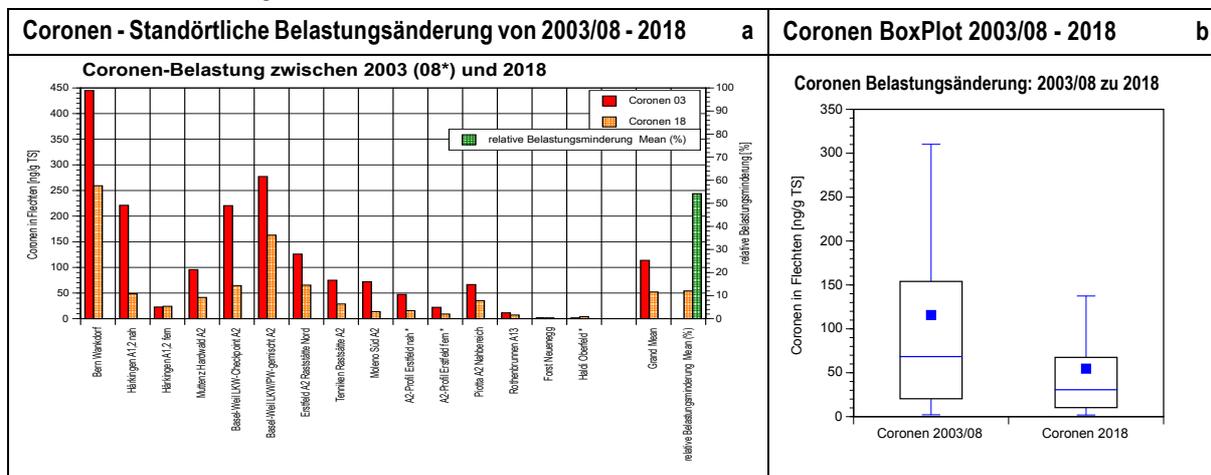


Abb. 4 Coronen zeigt mit 53.9% die stärkste aller Belastungsabnahmen der PAKs der beiden Flechtenprobenahmen von 2003/08 und 2018. Diese starke Belastungsabnahme zeigt sich auch im BoxPlot mit einer deutlichen Verminderung von Extrem-, Mittel- und Medianwerten von 2003/08 gegenüber 2018.

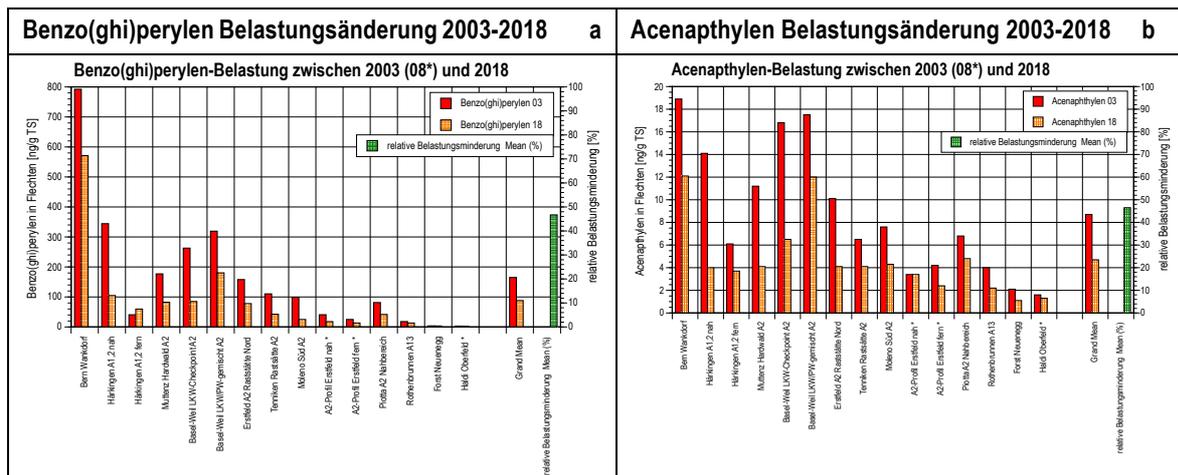


Abb. 5 Starke standörtliche Belastungsabnahmen zeigen sich auch für Benzo(ghi)perylen mit 46.7% und für Acenaphylen mit 46.4% (grüne Säulen mit rechten Y-Achsen).

4.4 Belastungsunterschiede an den Profilstandorten zwischen 2003 und 2018

Die Belastungsreduktion im stark frequentierten Autobahnprofil Härkingen-NABEL visualisiert die Abbildung 6 am Beispiel von Molybdän (b), der neun muta- und kanzerogenen PAKs (c) sowie von Chrysen (d). Beide Substanzen weisen sowohl eine bedeutende mittlere Belastungsabnahme von 57% und 26% auf und eignen sich auch als Tracer für den Belastungsanteil des gesamten Motorfahrzeug-Mixes. Molybdän wie auch die beiden PAKs zeigen den für Härkingen-NABEL typischen Profilverlauf mit sowohl stärksten Belastungen für die Erstprobenahmen von 2003 (rote Kurve) und deutlich geringeren Belastungen für die Zweitprobenahmen von 2018 (blaue Kurve). Des Weiteren zeigen diese Schadstoffe auch einem sehr deutlichen Belastungsabfall in den ersten 30 - 80 Metern und ein Abflachen der Belastungswerte in weiterer Entfernung von der Autobahn. Die dicken roten und blauen Kurvenverläufe verbinden die effektiven Messpunkte, während die feinen Linien den Verlauf der Kurvenapproximationen aufzeigen. Bei mehreren Schadstoffen zeigt sich im Profil Härkingen-NABEL bereits bei den Proben von 2003 in Probendistanzen von 210 und 260 m wieder ein Belastungsanstieg. Dieser rührt vermutlich von einem Industrie- und Gewerbezentrum her, welches in den letzten Jahren besonders im Logistikbereich stark ausgebaut wurde.

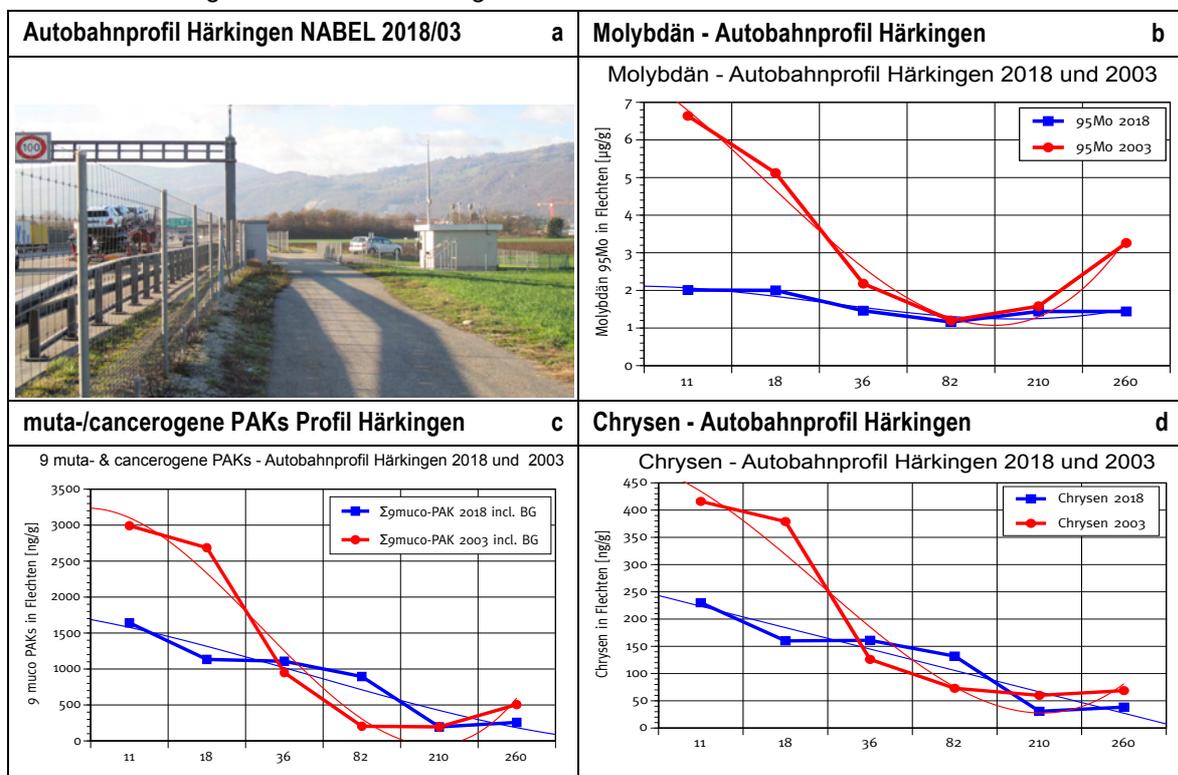


Abb. 6 Deutliche Belastungsreduktion für Molybdän, die neun muta-/kanzerogenen PAKs und für Chrysen im Autobahnprofil Härkingen-NABEL zwischen 2003 und 2018, innerhalb einer Belastungsschneise von etwa 50 m zur Autobahn.

Eine deutliche Belastungsreduktion von Molybdän (b), Coronen (c) sowie von Benzo(ghi)perylen (d) zeigt sich auch im Autobahnprofil Erstfeld-Feldmatt der A2 von Abbildung 7.

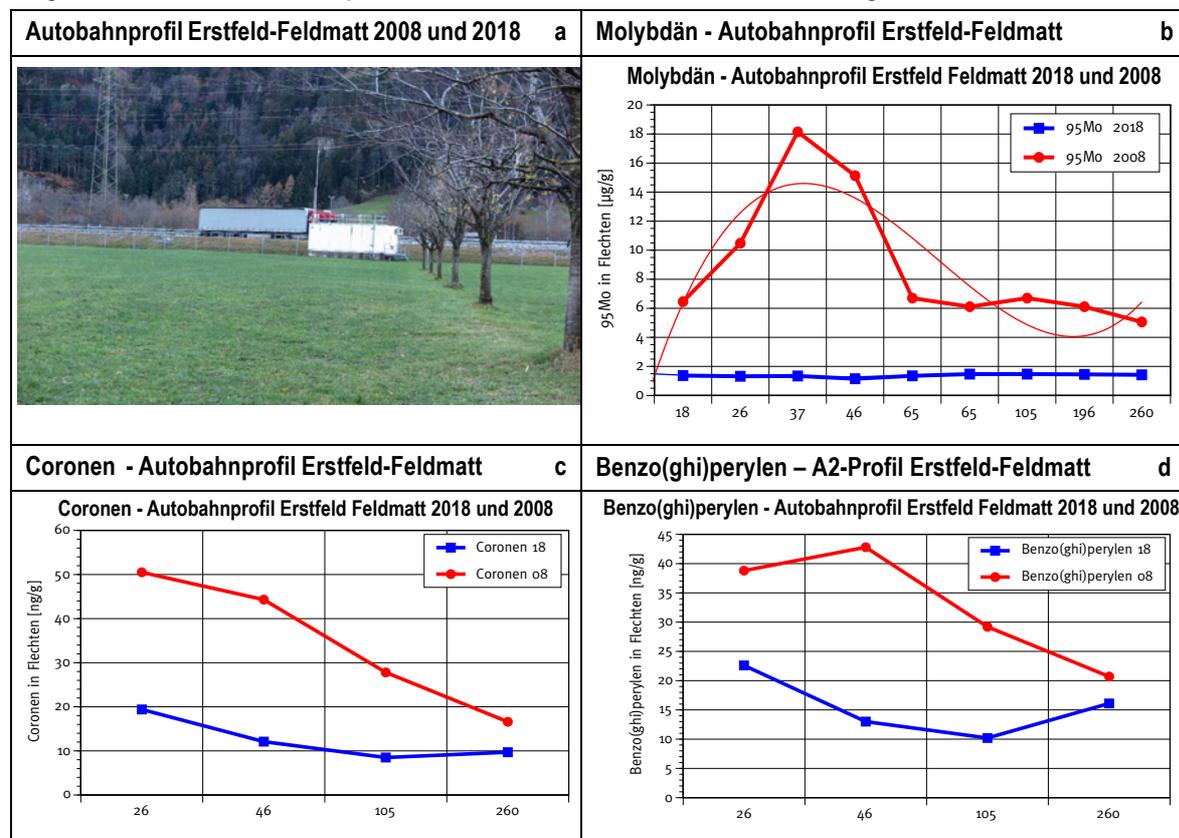


Abb. 7 Deutliche Belastungsabnahme mit zunehmendem Abstand von der A2 auch im Autobahnprofil Erstfeld-Feldmatt. Wegen des deutlich erhöhten A2-Trassees und den daraus resultierenden speziellen Diffusionseigenschaften zeigen sich für Molybdän und einige andere Schwermetalle sowie für PAKs die stärksten Belastungen oft erst in Distanzen von 30-40 m zur Autobahn.

4.5 Fahrzeugklassen bezogene Quellenanalyse beider Flechtenprobenkollektive Selektion und Evaluation der aussagekräftigsten Verkehrstracer und Quellenzuordnung

Bereits in der Erstuntersuchung von 2003 (AGB Dr. R Herzig, 2007) zeigte sich mit gering differenzierten längenklassierten Verkehrsdaten (LVC), dass der motorisierte Verkehr entlang der Transitstrecken eine dominante Rolle bei der Belastung mit zahlreichen PAKs und Schwermetallen spielt. Der Belastungsanteil des dieselbetriebenen Schwerverkehrs (Schweren Güterfahrzeugen >3,5 t) erwies sich bei dieser vorläufigen Analyse für zahlreiche Einzel-PAKs und Schwermetalle als erheblich und liess sich varianzanalytisch grob beziffern. Die erstmalige Selektion und Evaluation von 44 Schadstoffen, welche sich als geeignete „Tracer“ für die verschiedenen Verkehrsquellen erwiesen, erfolgten damals bereits mit feiner aufgelösten und nach Fahrzeugtypen getrennt erfassten Swiss10 Verkehrsdaten der Schweizerischen Strassenverkehrszählung, welche mit den Biomonitoringdaten verglichen werden konnten. Dazu wurde der sogenannte «Werktagsverkehr» (Mo - Fr) verwendet, welcher aufgrund des Schweizerischen Sonntagsfahrverbots den Anteil des schweren Güterverkehrs präziser erfasst als der bei den Testanalysen verwendete undifferenzierte Wochentagsverkehr (Mo-So). Auf der Basis dieser umfassenden multivariaten statistischen Feinanalyse und des Einbezugs von motorensseitigen Emissions- und Immissionsdaten sowie toxikologischen Befunden aus der Literatur wurden damals schon aus dem Kollektiv von 44 verschiedenen luftbürtigen PAKs, Schwermetallen und Gesamtschwefel die aussagekräftigsten Tracer zum Nachweis der Luftbelastung des motorisierten Strassenverkehrs ermittelt und soweit möglich sogar spezifisch für einzelne Fahrzeugkategorien, wie den schweren Güterverkehr, bestimmt.

Die vergleichenden Analysen der vorliegenden Erfolgskontrolle 2003/2018 erfolgten ebenfalls mit diesen Swiss10 Daten.

Die Kategorisierung der Swiss10-Verkehrsdaten wurde folgendermassen vorgenommen:

- Schwerverkehr (SV): Lastwagen, Lastenzüge, Sattelzüge incl. Busse. Swiss10 Klassen 8,9,10 und jetzt neu auch 1 (Diesel-Busse)

- Leichter Güterverkehr (LGV): Lieferwagen, Lieferwagen mit Anhänger bzw. mit Auflieger; Swiss10 Klassen 5,6,7.
- PW-MR-Anteil (PW/MR): Personenwagen mit und ohne Anhänger sowie neu auch Motorräder; Swiss10 Klassen 3,4, jedoch ohne Busse und Cars.

Diese Feinanalyse der Mfz-relevanten Quellen hat deutlich gezeigt, dass heutzutage nebst der direkten Motoren-Emission auch hochvergütete Brems- und Kupplungsbeläge, Motorenöle und sogar Abrieb von Autopneus wesentlich zur Luftbelastung mit Schwermetallen und Schwefel beitragen.

Als Ergebnis dieser umfassenden Re-Evaluation aller in Flechtenproben von 2003/08 und 2018 analysierten 49 Luftschadstoffe resultiert für 2018 erneut eine nach Fahrzeugtypen differenzierte Liste der 19 aussagekräftigsten Mfz-Verkehrstracer, wovon sechs PAK-Tracer den Schwerverkehr indizieren (vgl. 4.6.1). Weitere acht Schwermetalle, Gesamtschwefel und Indeno(cd)pyren zeigen eine gute Bindung zum gesamten Mix des fossil-betriebenen Motorfahrzeugverkehrs (vgl. 4.6.3).

Statistische Modellierung

Um die Anteile der drei verschiedenen Verkehrsträgerkategorien des täglichen Werktagsverkehrs SV (Schwerverkehr), LGV (leichter Güterverkehr) und PW/MR (Personenwagen, Motorräder) an den unterschiedlichen Immissionen zu schätzen, wurden zwei verschiedene Methoden verwendet.

- a) Ein **komplexes statistisches Immissionsmodell**, in dem alle Verkehrsträgerkategorien gleichzeitig erfasst wurden, und welches quantitative Schätzwerte der Immissionsanteile der drei Verkehrsträgerkategorien mit je dem Strassenabstand der Flechtenprobenahme (letzterer als exponentielle Abklingfunktion) sowie des Immissionsanteils aus anderen Quellen (ausser dem Strassenabstand der Flechtenprobenahme) liefert.
- b) Ein **einfacheres Indikatormodell**, in dem **jede Verkehrsträgerkategorie als Indikator der Gesamtverkehrsbelastung** mit dem jeweils gleichen **Strassenabstand** (Halbwertdistanz) betrachtet wird und welches eher **qualitative Vergleiche** zwischen den verschiedenen Verkehrsträgerkategorien erlaubt.

Die erklärenden Variablen in diesen Modellen sind die Verkehrsträgerfrequenzen SV, LGV und PW/MR auf den betreffenden Autobahnabschnitten (AA) sowie die Distanz d_i der gemessenen Immission vom nächstgelegenen AA. Dabei wurden die Daten der Jahre 2003 und 2008 zusammengefasst und den Daten von 2018 gegenübergestellt.

Das komplexere Immissionsmodell (a) ist mathematisch wie folgt definiert

$$y_i = a + U_i + SV_i b_1 e^{-\lambda_1 d_i} + LGV_i b_2 e^{-\lambda_2 d_i} + PW/MR_i b_3 e^{-\lambda_3 d_i}$$

wobei folgende Abkürzungen verwendet werden

- y_i = Immissionsmesswert am Standort i ,
- SV_i = tägliche Werktags-Frequenz der Schwerverkehrsfahrzeuge auf AA i ,
- LGV_i = tägliche Werktags-Frequenz der leichten Güterverkehrsfahrzeuge auf AA i ,
- PW/MR_i = tägliche Werktags-Frequenz der Personenfahrzeuge und Motorräder auf AA i ,
- d_i = Entfernung des Messstandorts vom AA in Metern

Die Parameter a , b_1 , b_2 , b_3 sowie λ_1 , λ_2 , λ_3 werden via das entsprechende nicht-lineare Regressionsmodell aus den Daten geschätzt. Die Parameter b_1 , b_2 , b_3 stehen für die geschätzten Immissionsbeiträge einzelner Fahrzeuge der betreffenden Kategorie direkt bei der Quelle. Dabei wird angenommen, dass die Immissionen exponentiell mit der Distanz von der Quelle abnehmen. Der Parameter a steht für den Immissionsanteil, der durch den Autobahnverkehr nicht erklärt werden kann. Da der Immissionsanteil aus anderen Quellen zwischen den Standorten variiert, wurde ein zufälliger Standorteffekt U_i in der Auswertung mitberücksichtigt.

Das einfachere Indikatormodell (b) ist etwas einfacher strukturiert, indem für alle Verkehrsträgerkategorien der gleiche Distanzparameter λ verwendet und auf einen zufälligen Standorteffekt U_i verzichtet wurde. Dieser Parameter wurde zudem vorgängig aus einem Modell ohne Verkehrsfrequenzvariablen geschätzt.

$$y_i = a + b e^{-\lambda d_i}$$

Neben dem Modell mit allen drei Verkehrsträgerfrequenzen wurden hier auch Modelle gerechnet, in denen jeweils nur eine der drei Variablen SV, LGV und PW/MR figurierte. Dabei wurde die Jahresfrequenz der jeweiligen Verkehrsträgerkategorie als Indikator für die gesamte Immissionsbelastung durch den Autobahnverkehr betrachtet. Infolge der hohen Korrelationen der drei Verkehrsfrequenzen repräsentiert natürlich jeder Indikator bis zu einem gewissen Grad auch die beiden anderen Verkehrsträgerkategorien. Hier geht es daher eher um einen qualitativen Vergleich zwischen den Verkehrsträgerkategorien, indem diese aufgrund ihrer Eignung als Gesamtindikator rangiert werden können. Die Eignung als Gesamtindikator kann anhand des durch den betreffenden Indikator vom Indikatormodell vorhergesagten Immissionsanteils beurteilt werden. Dabei erreichen z.T. die den einzelnen Verkehrsträger zugeordneten Immissionen in der Summe einen höheren Wert ergeben als die allen drei Verkehrsträgern insgesamt zuordnbaren Immissionen. Grund: die einzelnen Verkehrsträger wurden

abwechslungsweise als Indikatoren der Gesamtverkehrsbelastung verwendet und stehen somit immer auch für einen Teil der durch die anderen Verkehrsträger verursachten Immissionen.

Diese hier verwendeten Regressionsmodelle unterscheiden sich sehr deutlich von dem viel einfacheren Modell der Erstuntersuchung von 2003 (Herzig AGB, 2007)^{1,2}, welches keine Abklingfunktion und auch die Strassendistanz der Flechtenprobenahmen auch nur als additive Variable enthielt. Dementsprechend sind auch unterschiedliche Ergebnisse zu erwarten.

PAK-, Schwermetall- und Schwefel-Belastungen zeigen unterschiedliche Strassenabhängigkeit

Die Korrelationsmatrix von Tabelle 3 zeigt, dass die Konzentrationen aller 32 PAKs für beide Probenkollektive 2003/08 und 2018 je eine deutliche negative Distanzabhängigkeit zum Autobahntrasse (r_{xy} = -0.122 bis -0.307) aufweisen. Für die Schwermetalle und Gesamtschwefel zeigt sich hingegen diese generelle negative Korrelation zur Strassendistanz nur bei Zink, Zinn und Antimon. In beiden Autobahnprofilen Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt zeigen sich auch für weitere Schwermetalle eine gewisse Distanzabhängigkeit der Konzentrationen. Alle anderen zwölf Schwermetalle und Schwefel zeigen über die beiden Messkollektive entweder nur eine marginale oder sogar positive Korrelationen zum Strassenabstand. Dies bedeutet, dass der Motorfahrzeugverkehr nur einen beschränkten Einfluss auf die gemessene Elementbelastung hat und andere Quellen (Industrie- und Gewerbebetriebe, Haushalte, Landwirtschaft) zumindest teilweise offensichtlich prägender sind für die in den Flechtenproben gemessenen Immissionsbelastungen. Dementsprechend hat auch das statistische Immissionsmodell mit der Abklingfunktion für die Probendistanz (a) für Schwermetalle kaum zu aussagekräftigen Ergebnissen geführt, weshalb das zweite Modell (b) zur Quellenabschätzung für die Schwermetalle und Gesamtschwefel verwendet wurde.

Tab. 3 Korrelationsmatrizen für beide Messkollektive 2003/08 und 2018. Die gelb markierten Kolonnen zeigen die Korrelation zwischen den in Flechtenproben gemessenen PAKs, Schwermetallen und von Schwefel und der Distanz der Flechtenprobenahme zur Autobahn.

2003/08	DWV SV 18910	DWV PWMR 23	DWVL 567	StrD1Highway	2018	DWV SV 18910	DWV PWMR 23	DWVL 567	StrD1Highway
DWVSV18910	1				DWVSV18910	1			
DWVPWMR23	0.8828	1			DWVPWMR23	0.8828	1		
DWVLGF567	0.8573	0.8456	1		DWVLGF567	0.8573	0.8456	1	
StrD1Highway	0.2257	0.2426	0.2549	1	StrD1Highway	0.2257	0.2426	0.2549	1
Naphthalin	0.2776	0.1747	0.3069	0.7321	Naphthalin	-0.0773	-0.0611	-0.186	-0.2856
Acenaphthylen	-0.0773	-0.0611	-0.186	-0.2856	Acenaphthylen	0.1064	0.255	0.0196	-0.1416
Acenaphthen	0.1064	0.255	0.0196	-0.1416	Acenaphthen	0.4403	0.5168	0.3251	-0.1353
Fluoren	0.4403	0.5168	0.3251	-0.1353	Fluoren	0.3801	0.4863	0.2721	-0.1221
Phenanthren	0.3801	0.4863	0.2721	-0.1221	Phenanthren	0.1529	0.2799	0.1297	-0.2116
Anthracen	0.1529	0.2799	0.1297	-0.2116	Anthracen	0.4449	0.5089	0.3262	-0.2198
Fluoranthen	0.4449	0.5089	0.3262	-0.2198	Fluoranthen	0.0725	0.1813	0.1221	-0.2333
Pyren	0.0725	0.1813	0.1221	-0.2333	Pyren	0.0686	0.1683	0.0968	-0.2445
Benzobnaphtho(2,1d)thiophen	0.0686	0.1683	0.0968	-0.2445	Benzobnaphtho(2,1d)thiophen	-0.0176	0.0884	0.0288	-0.257
Benzo(c)phenanthren	-0.0176	0.0884	0.0288	-0.257	Benzo(c)phenanthren	0.1082	0.1717	0.1383	-0.2452
Benzo(ghi)fluoranthren	0.1082	0.1717	0.1383	-0.2452	Benzo(ghi)fluoranthren	0.0872	0.1765	0.0723	-0.263
Cyclopenta(cd)pyren	0.0872	0.1765	0.0723	-0.263	Cyclopenta(cd)pyren	0.0696	0.1614	0.093	-0.2827
Benzo(a)anthracen	0.0696	0.1614	0.093	-0.2827	Benzo(a)anthracen	0.0748	0.1508	0.116	-0.2606
Triphenylen	0.0748	0.1508	0.116	-0.2606	Triphenylen	0.0669	0.1416	0.0946	-0.2594
Chrysen	0.0669	0.1416	0.0946	-0.2594	Chrysen	0.0391	0.1184	0.0799	-0.2533
Benzo(b,j)fluoranthren	0.0391	0.1184	0.0799	-0.2533	Benzo(b,j)fluoranthren	0.0254	0.1086	0.0729	-0.2597
Benzo(k)fluoranthren	0.0254	0.1086	0.0729	-0.2597	Benzo(k)fluoranthren	0.0328	0.1133	0.0808	-0.2596
Benzo(b,k,j)fluoranthren	0.0328	0.1133	0.0808	-0.2596	Benzo(b,k,j)fluoranthren	0.0271	0.1097	0.0747	-0.2597
Benzo(e)pyren	0.0271	0.1097	0.0747	-0.2597	Benzo(e)pyren	0.0363	0.1216	0.0725	-0.2691
Benzo(a)pyren	0.0363	0.1216	0.0725	-0.2691	Benzo(a)pyren	0.043	0.126	0.089	-0.2622
Perylen	0.043	0.126	0.089	-0.2622	Perylen	0.0154	0.109	0.068	-0.2576
Dibenz(ah)anthracen	0.0154	0.109	0.068	-0.2576	Dibenz(ah)anthracen	0.0361	0.1227	0.0793	-0.2639
Indeno(123cd)pyren	0.0361	0.1227	0.0793	-0.2639	Indeno(123cd)pyren	0.0486	0.1296	0.0832	-0.2709
Benzo(ghi)perylen	0.0486	0.1296	0.0832	-0.2709	Benzo(ghi)perylen	0.035	0.1319	0.0305	-0.2982
Anthanthren	0.035	0.1319	0.0305	-0.2982	Anthanthren	0.0311	0.1384	0.03	-0.3069
Coronen	0.0311	0.1384	0.03	-0.3069	Coronen	0.0175	0.1185	-0.026	-0.2906
Dibenzo(ae)pyren	0.0175	0.1185	-0.026	-0.2906	Dibenzo(ae)pyren	0.0018	0.1056	0.0616	-0.2378
Dibenzo(ah)pyren	0.0018	0.1056	0.0616	-0.2378	Dibenzo(ah)pyren	0.0207	0.1026	0.0787	-0.2372
Summe 16 EPA PAKs	0.0207	0.1026	0.0787	-0.2372	Summe 16 EPA PAKs	0.0762	0.1701	0.1034	-0.2599
Summe 28 PAKs	0.0762	0.1701	0.1034	-0.2599	Summe 28 PAKs	0.0533	0.1477	0.0859	-0.262
Summe 9 muta-/kanzerog. PAKs	0.0533	0.1477	0.0859	-0.262	Summe 9 muta-/kanzerog. PAKs	0.035	0.1167	0.0809	-0.2594
2003/08	DWV SV 18910	DWV PWMR 23	DWVL 567	StrD1Highway	2018	DWV SV 18910	DWV PWMR 23	DWVL 567	StrD1Highway
Zn	0.0947	0.202	0.0537	-0.272	Zn	0.0947	0.202	0.0537	-0.272
V	0.0567	0.0607	0.0295	0.266	V	0.0567	0.0607	0.0295	0.266
Cr	0.0919	0.0935	0.0308	0.0274	Cr	0.0919	0.0935	0.0308	0.0274
Co	0.0036	0.0174	0.0282	0.1301	Co	0.0036	0.0174	0.0282	0.1301
Ni	0.114	0.0887	0.0537	0.1035	Ni	0.114	0.0887	0.0537	0.1035
Cu	0.0647	0.0334	-0.0275	-0.0072	Cu	0.0647	0.0334	-0.0275	-0.0072
As	0.0468	0.1294	0.0235	0.2667	As	0.0468	0.1294	0.0235	0.2667
Mo	0.1204	0.1625	0.0177	-0.0511	Mo	0.1204	0.1625	0.0177	-0.0511
Cd	0.1953	0.1152	0.1788	0.0011	Cd	0.1953	0.1152	0.1788	0.0011
Sn	-0.117	-0.0455	-0.1074	-0.2393	Sn	-0.117	-0.0455	-0.1074	-0.2393
Sb	0.0875	0.1703	0.0236	-0.222	Sb	0.0875	0.1703	0.0236	-0.222
Ce	0.0305	0.079	0.0481	0.123	Ce	0.0305	0.079	0.0481	0.123
Pt194	0.1975	0.231	0.1353	0.0881	Pt194	0.1975	0.231	0.1353	0.0881
Pt195	0.1934	0.2271	0.1344	0.0863	Pt195	0.1934	0.2271	0.1344	0.0863
Pd105	0.2154	0.2938	0.3817	-0.0055	Pd105	0.2154	0.2938	0.3817	-0.0055
Pd106	0.2971	0.3135	0.3464	0.0453	Pd106	0.2971	0.3135	0.3464	0.0453
S	0.2947	0.4261	0.2844	0.2607	S	0.2947	0.4261	0.2844	0.2607
Min PAK				-0.3069	Min PAKs				0.3069
Max Pak				-0.1221	Max PAKs				-0.1221
Min SM				-0.272	Min SMs				-0.272
Max SM				0.2667	Max SMs				0.2667

4.6 Auswahl der geeignetsten aktuellen Verkehrsträger für 2018

Die Ergebnisse zur Abhängigkeit der PAKs von den drei Verkehrsquellen wurden alle mit dem komplexeren statistischen Immissionsmodell (a) gewonnen, in dem alle Verkehrsträgerkategorien gleichzeitig erfasst wurden und welches Schätzwerte der Immissionsanteile der drei Verkehrsträgerkategorien mit je dem Strassenabstand der Flechtenprobenahme (letzterer als exponentielle Abklingfunktion) sowie des Immissionsanteils aus anderen Quellen liefert. Als Datengrundlage diente der Werktagsverkehr (DWV Mo-Fr 0 - 24h) mit den Swiss10 Verkehrsklassen.

Für Schwermetalle und Gesamtschwefel, welche keine oder nur geringe Korrelationen zum Strassenabstand der Flechtenprobenahme zeigten, kam das einfachere Indikatormodell (b) zum Einsatz, in dem jede Verkehrsträgerkategorie als Indikator der Gesamtverkehrsbelastung betrachtet wird und welches eher qualitative Vergleiche zwischen den verschiedenen Verkehrsträger-kategorien erlaubt. Diese Ergebnisse werden unter 4.6.5 dargestellt.

Die Auswahl und Selektion der geeignetsten Tracersubstanzen für die Indikation der drei Verkehrsquellen erfolgte ausschliesslich mit den aktuellen Modellergebnissen der zweiten Flechtenprobenahme und den Swiss10 Verkehrsdaten des Werktagsverkehrs von 2018. In den jeweiligen Grafiken (PieCharts) werden allerdings auch die modellierten Ergebnisse der Erstuntersuchungen von 2003/08 gezeigt, welche aufgrund der zwischenzeitlich veränderten Verkehrs- und Akkumulationsbelastung der Flechtenproben erwartungsgemäss zu unterschiedlichen Ergebnissen führen.

4.6.1 PAKs mit einer besonderen Prägung zum aktuellen Schwerverkehr von 2018

Geeignete PAK-Tracer zur Indikation der Luftbelastung durch den aktuellen Schwerverkehr

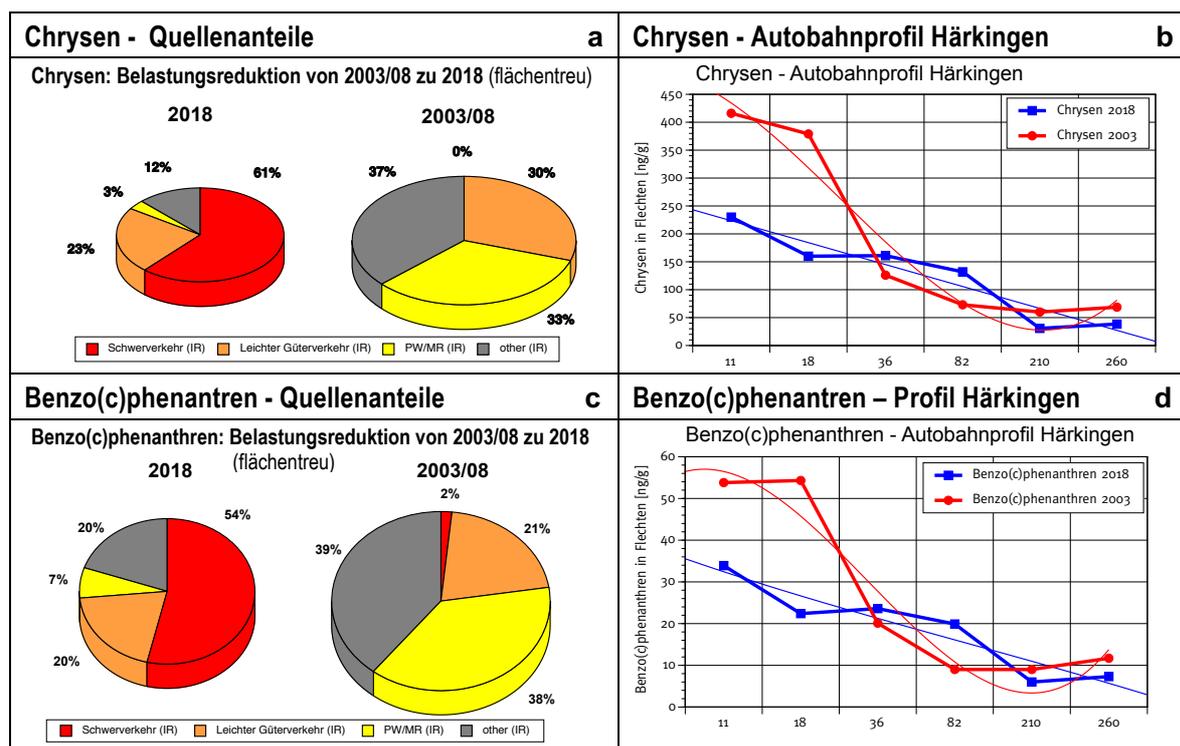
Fahrzeugklassen: Lastwagen, Lastenzüge, Sattelzüge und neu Dieselbusse und Cars;
Swiss10 Verkehrsklassen: 8, 9, 10 sowie 1.

Es handelt sich dabei in hierarchischer Abfolge um die folgenden sechs PAK-Substanzen:

Chrysen, Benzo(c)phenanthren, Benzo(k)fluoranthren, Cyclopenta(cd)pyren, Dibenzo(ah)pyren, und Benzo(ghi)perylen (Abb. 8).

Der Schwerverkehrsanteil dieser PAKs reicht von hohen 61% für Chrysen bis zu 33% für Benzo(ghi)perylen (rote Quellenanteile in Abb. 8 a,c,e,g).

Die Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt unterstützen diese Aussagen und zeigen je einen verkehrsabhängigen und stetigen Belastungsrückgang in den ersten 80 - 200 m von der Autobahn (Abb. 8 b,d,f,h).



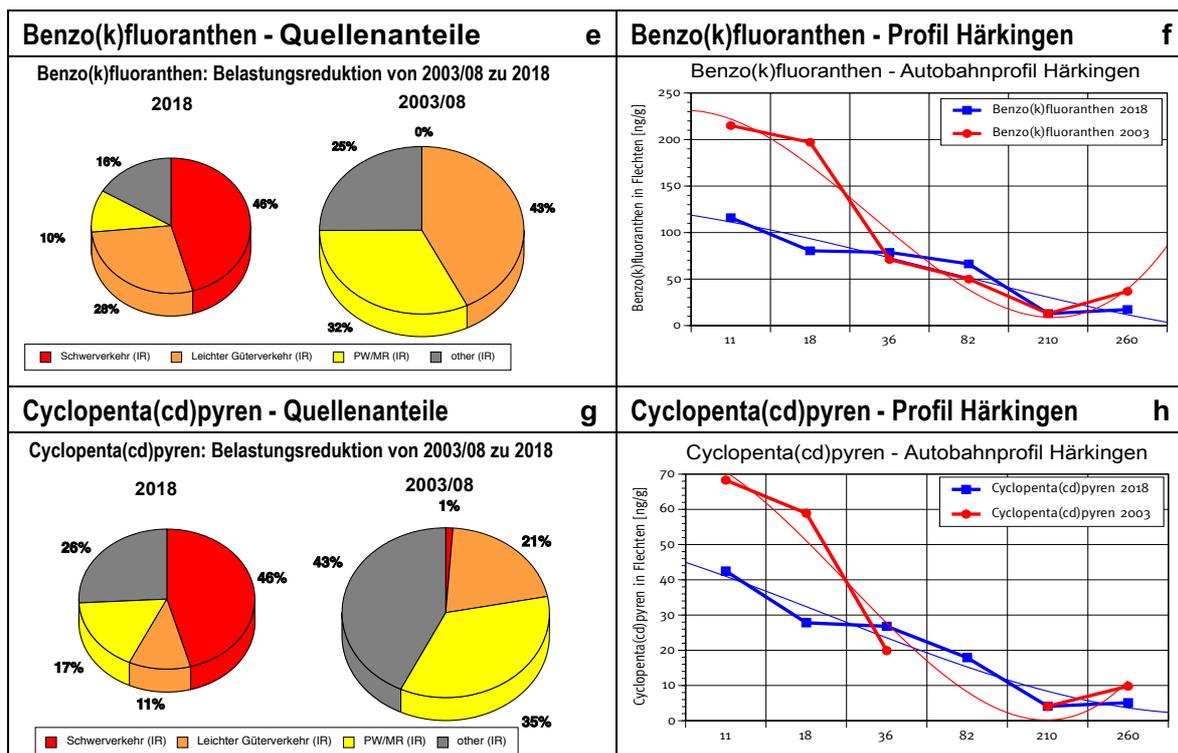


Abb. 8 PAKs mit einer besonderen Prägung zur aktuellen Flotte des Schwerververkehrs von 2018. Es handelt sich dabei um die folgenden sechs PAKs:

Chrysen, Benzo(c)phenanthren, Benzo(k)fluoranthene, Cyclopenta(cd)pyren, Dibenzo(ah)pyren, Benzo(ghi)perylene.

Der Schwerverkehrsanteil dieser PAKs reicht von hohen 61% für Chrysen bis zu 33% für Benzo(ghi)perylene. Geordnet nach absteigendem Schwerverkehrsanteil (rot in PieCharts) für 2018 zeigt sich für die geeigneten PAKs die folgende hierarchische Rangierung. Die vier Zahlen zeigen die prozentualen Belastungsanteile von Schwerverkehr / leichter Güterverkehr / Personenverkehr / andere Quellen (PAKs mit Fettdruck in Abb. 8).

1. Chrysen	61/23/ 3/12	4. Cyclopenta(cd)pyren	46/11/17/26
2. Benzo(c)phenanthren	54/20/ 7/20	5. Dibenzo(ah)pyren	36/ 8/17/39
3. Benzo(k)fluoranthene	46/28/10/16	6. Benzo(ghi)perylene	33/ 8/14/4

Mit einer deutlichen Belastungsabnahme zwischen 2003/08 und 2018 sowie einem verkehrabhängigen und stetigen Belastungsrückgang in den ersten 30-80 Metern von der Autobahn stützen auch beide Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt diese Aussagen. Auch die nach Motortypen differenzierten Emissionsmessungen der WHO 2002, 2005 und UNEP 2018 sowie die Messung des Schwerverkehrsanteils im Gubristtunnel (PAHs Gubrist 1993) stützen diese Erkenntnisse (Tab. 4). Dieselmotoren und speziell direkte Einspritzermodelle (DI) des Schwerverkehrs (HDV) emittieren bis zu einem Faktor 30 mehr an Chrysen als Benzinmotoren mit Katalysatoren (WHO Road Transport Emission Inventory 2002, sowie EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook 2016, Update Juli 2018).

Tab. 4 Vergleich mit motorenspezifischen Emissionsdaten für Chrysen

Chrysen						Toxikologie	k		
WHO-Road Transport: Emission Inventory 2002						Gubrist 1993		POP-Report UM-146	
Bulk Petrol, E85, Diesel, LPG Emission Factors [$\mu\text{g}/\text{km}$]						Motorfahrzeuge		Motorfahrzeuge	
non cat	cat	DI	IDI	DI	Liq.gas	% LKW-Anteil		Strassenabstand	
Gasoline PC / LDV	Gasoline PC / LDV	Diesel PC / LDV	Diesel PC / LDV	Diesel HDV	LPG	MoFr/ SA:SO		PAK Gradient	
0.43	0.53	2.40	7.35	16.24		n.a.		sehr stark	

4.6.2 PAKs mit einer besonderen Prägung zum aktuellen leichten Güterverkehr

Geeignete PAK-Tracer zur Indikation des leichten Güterverkehrs von 2018

Fahrzeugklassen: Lieferwagen, Lieferwagen mit Anhänger bzw. mit Auflieger; Swiss10 Verkehrsklassen: 5, 6, 7.

Drei PAK-Tracer eignen sich zur Indikation des Belastungsanteils des aktuellen «leichten Güterverkehrs» von 2018 (Abb. 9 a,c,e). Es handelt sich dabei um:

Fluoranthene, Summe aller 28 PAKs und Anthanthren

Der Belastungsanteil des leichten Güterverkehrs dieser PAKs reicht von hohen 52% für Fluoranthren bis zu 39% für Anthanthren. Die Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt stützen diese Aussagen ebenso und zeigen je einen verkehrabhängigen und stetigen Belastungsrückgang in den ersten 80 - 200 Metern von der Autobahn (Abb. 9 b,d,f,h). Auch die nach Motorentypen differenzierten Emissionsmessungen der WHO 2002, 2005 und von EMEP 2018 sowie die Messung des Verkehrsanteils im Gubristunnel (PAKs Gubrist 1993) stützen diese Erkenntnisse zusätzlich.

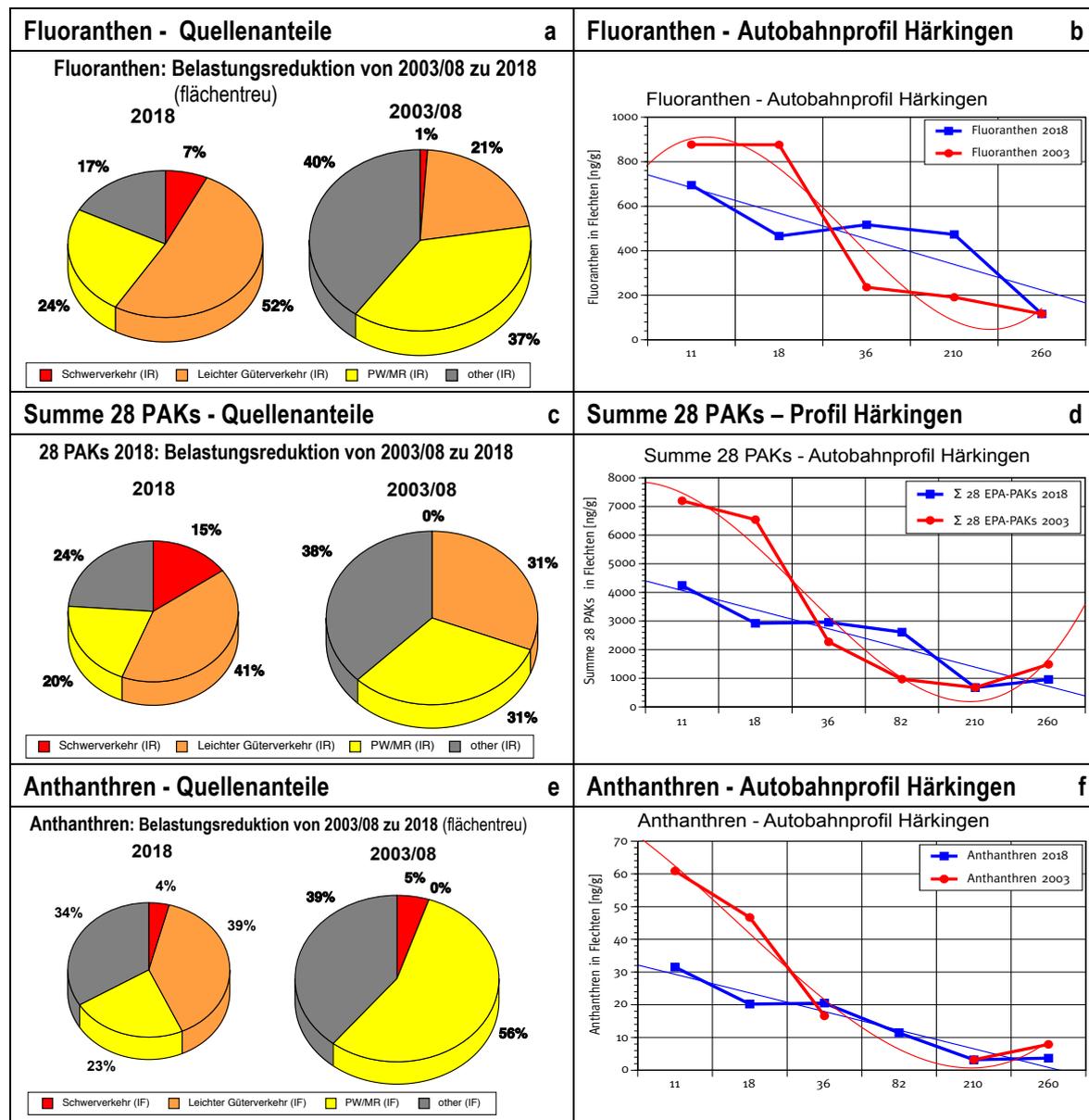


Abb. 9 PAKs mit einer besonderen Prägung zur aktuellen Flotte des «leichten Güterverkehrs» von 2018. Es handelt sich dabei um **Fluoranthren**, die **Summe aller 28 PAKs** und **Anthanthren**. Der Belastungsanteil des leichten Güterverkehrs dieser PAKs reicht von hohen 52% bis zu 39%. Geordnet nach absteigendem Belastungsanteil des leichten Güterverkehrs (orange in PieCharts) für 2018 zeigt sich für die geeigneten PAKs die folgende hierarchische Rangierung:

1. Fluoranthren 7/52/24/17
2. Summe aller 28 PAKs 15/41/20/24
3. Anthanthren 4/39/23/34

Auch die die nach Motorentypen differenzierten Emissionsmessungen der WHO 2002, 2005 sowie die Messung des Schwerverkehrsanteils im Gubristunnel (PAKs Gubrist 1993) stützen diese aktuellen Erkenntnisse (PAK-Emission je Fahrzeugtyp siehe Tab.3-75 im Anhang).

4.6.3 PAKs mit einer besonderen Prägung zum aktuellen Personenverkehr von 2018

Geeignete PAK-Tracer zum Nachweis des aktuellen Personenverkehrs (PW/MR-Anteil)

Fahrzeugkategorien: Personenwagen mit und ohne Anhänger sowie Motorräder;

Swiss10 Verkehrsklassen: 3, 4 und 2, jedoch ohne 1 Busse und Cars.

Daneben zeigte sich auch eine grössere Gruppe von PAKs, welche vorzugsweise den aktuellen Anteil des Personenverkehrs von 2018 indizieren (Abb. 10). Es sind dies die zehn Einzel-PAKs mit der Summenbelastung der 16 EPA-PAKs und von neun sowohl mutagenen und kanzerogenen PAKs:

Benzo(b,k/j)fluoranthene, Perylen, Benzo(a)pyren, Benz(a)anthracen, 16 EPA PAKs, 9 muta- und kanzeorgene PAKs, Benzo(c)naphtho(21d)thiophen, Pyren, Benzo(e)pyren und Dibenzo(ah)anthracen.

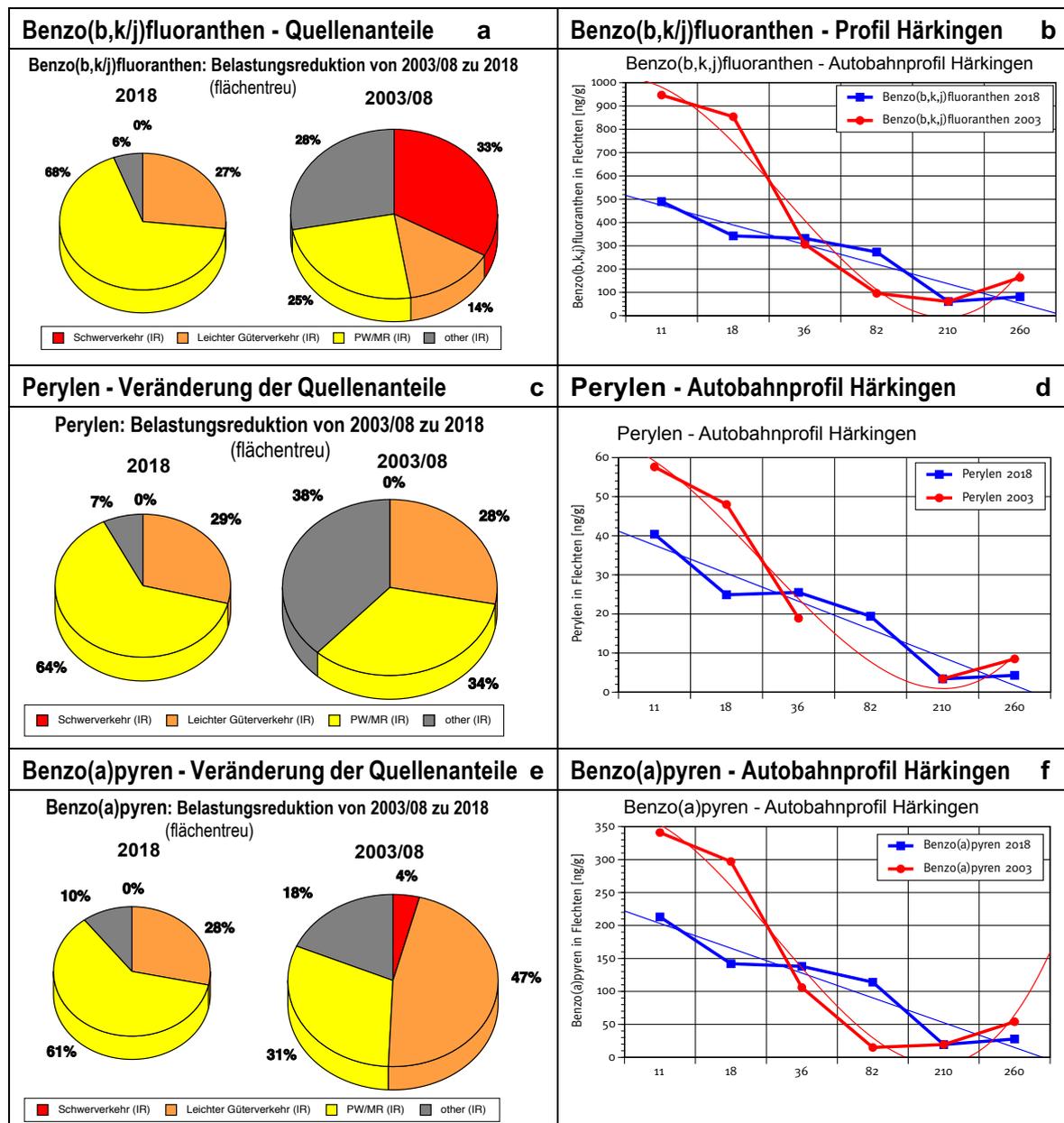


Abb. 10 PAKs mit einer besonderen Prägung zur aktuellen Flotte der PW und Motorräder von 2018.

Der Belastungsanteil des aktuellen Personenverkehrs dieser PAKs reicht von hohen 68% für Benzo(b,k/j)-fluoranthene bis zu 51% für Dibenzo(ah)anthracen. Geordnet nach absteigendem Belastungsanteil des aktuellen Personenverkehrs (gelb in PieCharts) für 2018 zeigt sich für PAKs die folgende Rangierung:

1. Benzo(b,k/j)fluoranthene 0/27/68/ 6
2. Perylen 0/29/61/10
3. Benzo(a)pyren 0/28/61/10
4. Benz(a)anthracen 1/27/60/13
5. 16 EPA PAKs ¹ 0/19/58/27
6. 9 muta-PAKs ² 0/29/55/16
7. Benzo(c)naphtho(21d)thiophen 0/27/53/20
8. Pyren 5/22/52/21
9. Benzo(e)pyren 0/26/51/22
10. Dibenzo(ah)anthracen 0/27/51/22

¹ 16 EPA PAKs, Summenbelastung aus: Benzo(a)pyren, Dibenzo(a,h)anthracen, Benz(a)anthracen, Benzo(b)fluoranthene, Benzo(k)fluoranthene, Benzo(e)pyren, Chrysen, Indeno(1,2,3,c,d)pyren, Benzo(g,h,i)perylen, Naphthalin, Anthracen, Fluoranthene, Fluoren, Phenantren, Pyren, Acenaphthylene.

² 9 mutagene und kanzerogene PAKs, Summenbelastung aus: Benz(a)anthracen, Benzo(a)pyren, Benzo(b)fluoranthene, Benzo(k)fluoranthene, Benzo(b,k)fluoranthene, Benzo(c)phenanthren, Chrysen, Dibenzo(a,h)anthracen, Dibenzo(a,h)pyren.

4.6.4 PAKs mit einer Prägung zum gesamten Motorfahrzeugverkehrs-Mix von 2018

Geeignete PAK-Tracer zum Nachweis des gesamten Motorfahrzeugverkehrs-Mixes

Fahrzeugklassen: Lastwagen, Lastenzüge, Sattelzüge, Lieferwagen, Lieferwagen mit Anhänger bzw. mit Auflieger, Personenwagen mit und ohne Anhänger;
Swiss10 Verkehrsklassen: 1,2,3,4,5,6,7,8,9,10 incl. Busse, Cars, PWs und Motorräder.

Indeno(cd)pyren zeigt als einziges PAK eine gute Bindung zu allen drei Verkehrsquellen und eignet sich daher als Tracer für den gesamten Mfz-Verkehrsmix (Abb. 11). Die Belastungsanteile für den Schwerverkehr und den «leichten Güterverkehr» betragen je 32% und für den Personenverkehr 22%. Weitere 14% dieser PAK-Immissionen werden von anderen Quellen verursacht.

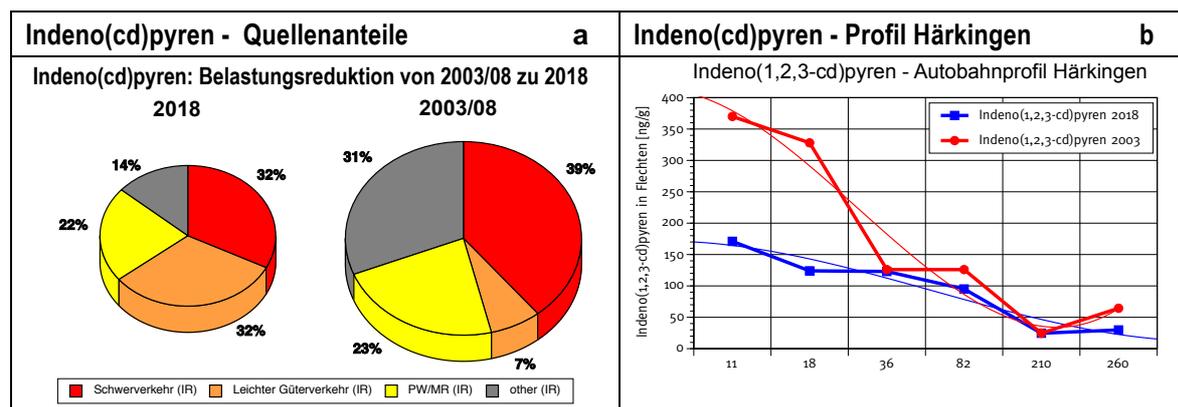


Abb. 11 Indeno(cd)pyren als geeigneter Tracer für den gesamten Mfz-Verkehrsmix.

Die prozentualen Quelleanteile von Indeno(cd)pyren für 2018 betragen: **32/32/22/14**

Alle anderen nicht erwähnten PAKs weisen nebst den Belastungsanteilen für eine oder mehrere der drei Verkehrsquellen, je auch deutlich höhere Anteile für andere Belastungsquellen auf und sind daher als allgemeine Mfz-Verkehrstracer nicht geeignet.

4.6.5 Schwermetalle mit einer Prägung zum gesamten aktuellen Motorfahrzeugverkehr

Mangels einer oft nur geringen Korrelation der in den Flechtenproben gemessenen Konzentrationen einiger Schwermetalle mit dem Strassenabstand und den meist starken Belastungsabnahmen der aktuellen Flechtenproben von 2018 haben die Quellenanalysen für die Schwermetalle und Gesamtschwefel mit dem komplexen Immissionsmodell (a) zu keinen aussagekräftigen Ergebnissen geführt.

Daher wurden diese Quellenanalysen mit dem einfacheren Indikatormodell (b) realisiert, welches den Strassenabstand nur vereinfacht berücksichtigt. Die Abschätzungen zu den Belastungsanteilen der drei Verkehrsträger mit diesem einfacheren Indikatormodell erlauben jedoch weniger belastbare Aussagen als mit den komplexeren Immissionsmodell und verstehen sich mehr im qualitativen Sinne (Abb. 12, 13). Daher ist auch eine Differenzierung in die drei Hauptverkehrsquellen, wie bei den PAKs, für Schwermetalle und Gesamtschwefel nur qualitativ möglich. Bei dieser qualitativen Betrachtung der drei Verkehrsquellen Schwerverkehr, leichter Güterverkehr und Personenverkehr incl. Motorräder wird jedoch besonders auch auf den Einsatz der verschiedenen Schwermetalle und von Gesamtschwefel im Fahrzeugbau geachtet (Brems- und Kupplungsbeläge, Autoreifen und Schmiermittel-Additive sowie Katalysatoren).

Bereits bei der MfM-Erstuntersuchung von 2003 dienten schwedische Elementanalysen von Bremsbelägen und Autoreifen-Additiven von Westlund 2001 und von Uexküll 2005 zur Erklärung der damaligen Ergebnisse. Seither sind von Hjortenkrans et al. 2007 neue Analysen aus der Stockholm-Region von 2005 publiziert worden, welche für Cu, Zn, Sb, Pb, Cr, Ni, Cd und S Belastungsvergleiche von Bremsbelägen und Autoreifen-Additiven bis 1998 ermöglichen. Diese Daten werden hier erneut zur Interpretation der aktuellen Ergebnisse des Flechtenbiomonitorings mitberücksichtigt. So hat sich u.a. für die Stockholm-Region für 2005 für die Emissionsbelastung aus den beiden Quellen Bremsbeläge und Autoreifen die folgende Hierarchie ergeben: Cu 3800/5.3, Zn 1000/4200, Sb 710/0.54, Pb 35/3.7 sowie für Cd 0.061/0.47 kg/Jahr. Während Cu, Zn und Sb aus Bremsbelägen und Autoreifen in Stockholm weiterhin relevante Belastungsquellen darstellen, ist die Belastung von Pb und Cd von 1998 bis 2005 um das Zehnfache gesunken.

Schwermetalle mit besonderer Prägung zu modernen Bremsbelägen und Autoreifen-Additiven

Für mehrere Schwermetalle, welche in modernen Bremsbelägen sowie als Additive in Autoreifen verwendet werden, zeigen sich mit den vergleichenden Biomonitoringanalysen am Beispiel von fünf

Schwermetallen Kupfer, Zink, Antimon Blei und Zinn zwischen 2003/08 und 2018 ebenfalls deutliche Belastungsveränderungen (Abb. 12).

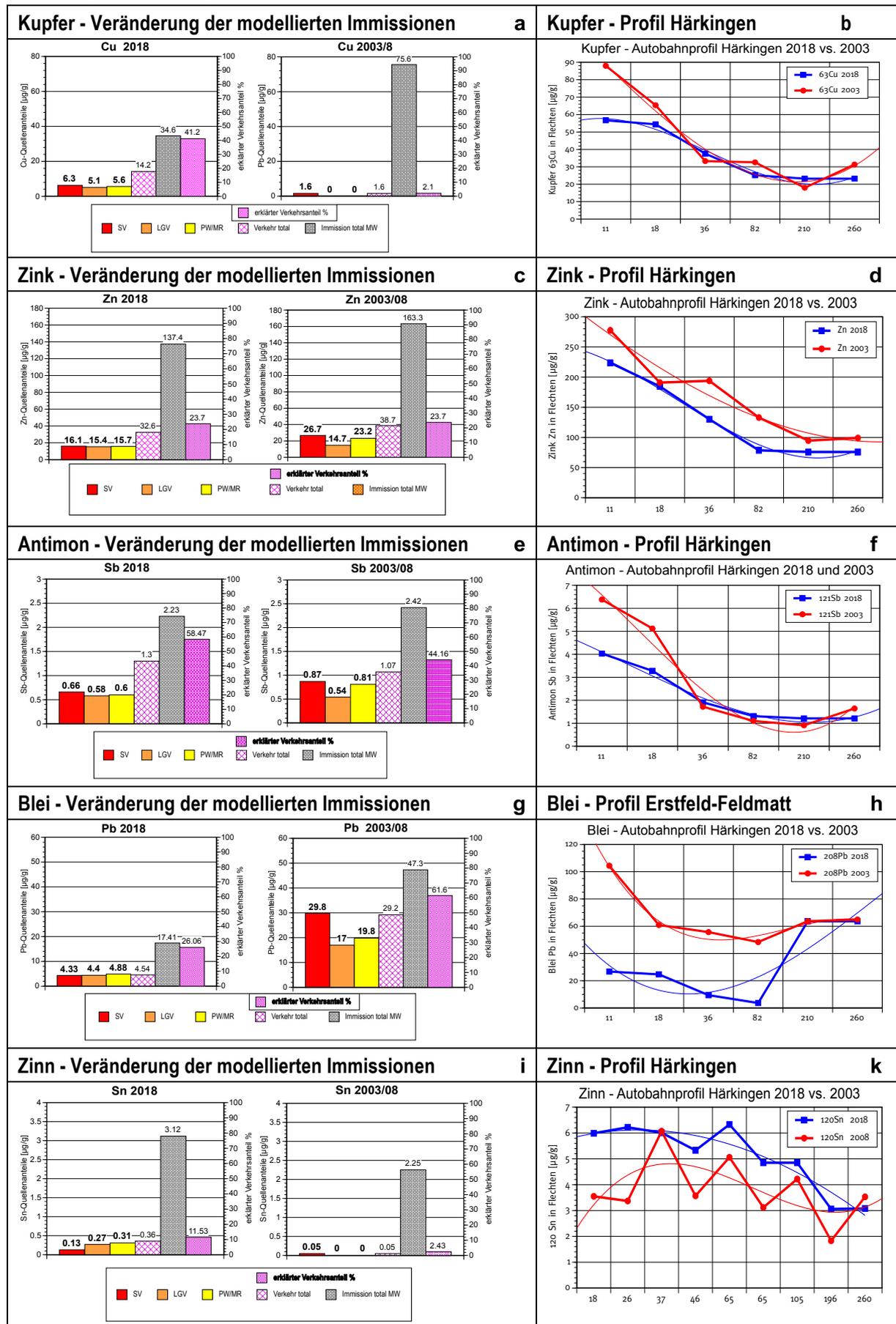


Abb. 12 Die Schwermetalle Kupfer, Zink, Antimon, Blei und Zinn zeigen zwischen 2003/08 und 2018 eine deutliche Belastungsveränderung sowie einer mässig guten Prägung zur aktuellen Motorfahrzeugbelastung. Bei Antimon erreicht dieser erklärte Verkehrsanteil 58%. Diese Schwermetalle gelangen in modernen Bremsbelägen als Legierungsmetalle zum Einsatz.

Rot: Schwerverkehrsanteil; orange: leichter Güterverkehr; gelb: Personenverkehr (PW/MR); violett: erklärter relativer Verkehrsanteil %; violett gestrichelt: erklärter Verkehrsanteil; grau: Gesamtmission, je absolute Belastungsanteile.

Die beiden Schwermetalle Kupfer und Zinn weisen mit den Ergebnissen des einfacheren Indikatormodells (b) für die drei Verkehrskategorien Schwerverkehr, leichter Güterverkehr und Personenverkehr auf eine stärkere Verkehrsbelastung der Flechtenproben von 2018 im Vergleich zur Erstuntersuchung von 2003/08 hin.

- Für Zinn zeigt sich diese Belastungssteigerung von 2018 sowohl im Gesamtkollektiv als auch im Autobahnprofil Härkingen-NABEL (Abb. 12 i,k). Im Gesamtkollektiv 2018 zeigt sich für den Schwerverkehr als Indikator ein deutlich grösserer Belastungsanteil als für den Leichten Güterverkehrsvorausgesagten und den Personenverkehr. Und auch im Autobahnprofil Härkingen-NABEL verläuft die stärker belastete blaue Belastungskurve von Zinn für 2018 deutlich oberhalb jener von 2003. Dasselbe zeigen auch alle anderen Auswertungen mit einer Belastungssteigerung von 43.6% im Gesamtkollektiv von 2018 (Tab. 2,3). Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für Zinn beträgt allerdings nur 11.5%.
- Für Kupfer (Abb. 12 a,b) ist diese Belastungssteigerung weniger deutlich, so zeigt das Autobahnprofil Härkingen-NABEL im Nahbereich der Autobahn eine deutliche Belastungsabnahme. Auch im Gesamtkollektiv ergibt sich für Kupfer eine starke Belastungsreduktion von 53.6%. Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für Kupfer beträgt 41.2%.

Für Zink, Antimon und Blei zeigen die aktuellen Flechtenproben für 2018 eine geringere Belastung als für 2003/08, dies sowohl für die beiden Gesamtkollektive als auch für beide Autobahnprofile.

- Für Zink zeigt sich im Kollektiv von 2018 ein genereller Belastungsrückgang von 14.2%. Dieser Belastungsrückgang zeigt sich auch im Modellvergleich mit deutlich geringeren vorausgesagten Immissionsanteilen für den Schwerverkehr, gefolgt vom Personenverkehr und dem leichten Güterverkehr und im Autobahnprofil Härkingen-NABEL mit einer deutlich geringeren Zinkbelastung in den ersten 50 Metern (Abb. 16c,d). Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für Zink beträgt 23.7%.
- Antimon zeigt im Kollektiv 2018 einen nur leichten Belastungsrückgang von 6.2%, welcher sich im Autobahnprofil Härkingen-NABEL auch im Nahbereich bis 50 m zeigt (Abb. 12 e,f). Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für Antimon beträgt gute 58.5%.
- Ein sehr starker Belastungsrückgang von 61.9% zeigt sich für Blei im Kollektiv 2018, welcher sich auch im Autobahnprofil Härkingen-NABEL im Nahbereich bis 80 m zeigt (Abb. 12 g,h). Ein erweitertes Industrie-/Gewerbegebiet mit einem Logistikzentrum führt in grösseren Distanzen zu einem erneuten Belastungsanstieg von Blei, dies bereits 2003 und noch deutlicher im Kollektiv von 2018. Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für Blei beträgt 26.1%.

Die Schwermetalle Kupfer, Zink, Antimon, Blei und Zinn sind wichtige Additive von modernen Bremsbelägen. Das hitzebeständige Antimon ersetzt das schon länger verbotene kanzerogene Asbest. Weil sich aber aus Antimontrisulfiden von Bremsbelägen bei Hitzeeinwirkung von über 500°C kanzerogene Antimontrioxide bilden können, wird versucht, Antimon durch andere weniger toxische Metalle wie Zinn, Blei und Kupfer zu ersetzen. Blei ist auch ein Nervengift bekannt und das am besten geeignete Zinnsulfid als geeigneteres Substitut für toxikologisch heikle Schwermetalle ist extrem teuer.

Generell ist auch nachgewiesen, dass Bremsbeläge von Scheibenbremsen bezüglich Antimon, Kupfer und Zink deutlich stärker belastet sind als solche von Trommelbremsen. Für Blei ist es gerade umgekehrt (von Uexküll et al. 2005). Ebenso unterscheiden sich Bremsbeläge für Vorder- und Hinterrädern deutlich in ihrer Schwermetallbelastung. Letztere sind geringer belastet, als Bremsklötze von Vorderrädern (Hjortenkrans et al. 2007). Mit einer aktuellen EMPA-Studie zeigen auch Liati et al. (2019), dass aktuelle Bremsbeläge einen wichtigen Teil des „non-exhaust related“ Feinstaubes mit einer breiten Partikelgrössenverteilung von der micro- bis zur nano-Ebene ausmachen. Energy dispersive X-ray Analysen zeigten besonders Fe und in kleineren Staubfraktionen auch Ca, S, P in Kombination mit Al, Sn, Mg, Si, Cr, Ti, K und W. Weniger prägnant zeigten sich aber auch Ni, Zn, Zr, Ba, S, C, P, F, Mn und selten sogar auch Bi und das heute nicht mehr zugelassene Sb. Auch Chrom und Nickel, welche ebenfalls in Bremsbelägen eingesetzt werden, zeigen im aktuellen Flechtenprobenkollektiv von 2018 gegenüber 2003/08 eine sehr starke Belastungsreduktion von 62.7% und 62.4% und auch die Profilanalysen bestätigen dies im Nahbereich bis ca. 80 m zur Autobahn.

Schwefel und Zink werden als Additive zusätzlich in der Reifenproduktion verwendet, Schwefel im Vulkanisationsprozess bei der Gummiherstellung. Für Gesamtschwefel zeigt sich im aktuellen Flechtenprobenkollektiv von 2018 gegenüber 2003/08 ein Belastungsrückgang von 36.3%, und auch beide Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt zeigen je einen Belastungsrückgang im Nahbereich zur Autobahn bis in ca. 80 Metern Distanz.

Schwermetalle mit besonderer Prägung zu modernen Dreiwegkatalysatoren und Schmiermittel-Additiven

Die Edelmetalle Platin und Palladium kommen in modernen Abgaskatalysatoren zum Einsatz. Beide wurden mit zwei verschiedenen Isotopen analysiert, und diese zeigen je eine Belastungszunahme in den aktuellen Flechtenproben von 2018 gegenüber 2003/08. Schliesslich dient Molybdän als exemplarischer Vertreter der Schmiermitteladditive (Abb 13).

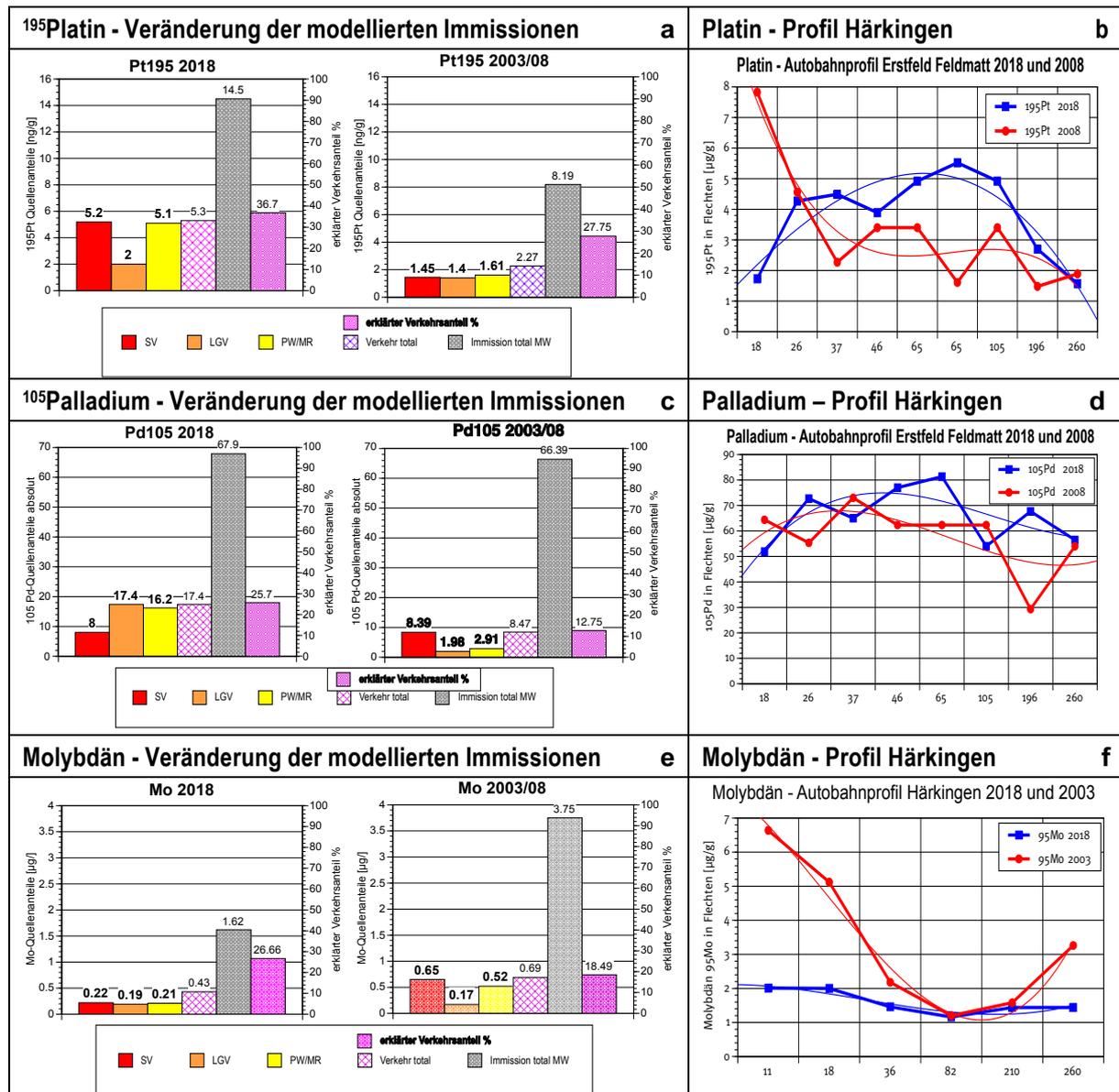


Abb. 13 Schwermetalle Platin, Palladium und Molybdän mit einer Prägung zur aktuellen Motorfahrzeugbelastung, insbesondere zu modernen Katalysatoren und für Molybdän zu Schmiermitteln von Motoren und Getrieben sowie teilweise auch zu Bremsbelägen.

Die Flechtenproben von 2018 zeigen mit dem einfacheren Indikatormodell für beide Katalysatormetalle Platin und Palladium für den Gesamtverkehr sowie die Verkehrskategorien Schwerverkehr, leichter Güterverkehr und Personenverkehr eine stärkere Belastung im Vergleich zur Erstuntersuchung von 2003/08.

- Für ¹⁹⁵Platin zeigt sich diese deutliche Belastungssteigerung von 2018 sowohl im Gesamtkollektiv und Autobahnprofil Härkingen (Abb. 13 a,b). Im Gesamtkollektiv 2018 sind erwartungsgemäss die durch den Schwerverkehr und den Personenverkehr vorhergesagten Belastungsanteile deutlich

grösser als für den Leichten Güterverkehr, denn in diesen beiden Verkehrskategorien werden für Dieselfahrzeuge vorzugsweise Platinkatalysatoren verwendet. Und auch im Autobahnprofil Härkingen-NABEL verläuft die blaue Belastungskurve von ^{195}Pt für 2018 deutlich oberhalb jener von 2003. Dasselbe zeigen auch alle anderen Auswertungen mit einer Belastungssteigerung von 71.9% - 76.6% für beide Platin-Isotope im Gesamtkollektiv von 2018 (Tab. 2,3). Der vom einfacheren Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für ^{195}Pt beträgt 36.5%.

- Auch für ^{105}Pd zeigt sich eine deutliche Belastungssteigerung von 2018 im Gesamtkollektiv und Autobahnprofil Härkingen-NABEL (Abb. 13 c,d). Im Gesamtkollektiv 2018 zeigen sich die stärksten modellierten Belastungsanteile für den Leichten Güterverkehr, dicht gefolgt vom Personenverkehr und von deutlich geringeren Anteilen für den Schwerverkehr. Der vom Indikatormodell für 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil für ^{105}Pd beträgt 25.7%.

Palladiumkatalysatoren werden heute vorzugsweise für benzinbetriebene Fahrzeuge verwendet, und beide Kategorien zeigen auch eine deutliche Verkehrszunahme. Auch im Autobahnprofil Härkingen-NABEL verläuft die blaue Belastungskurve von ^{105}Pd für 2018 ab 30 m Distanz von der Autobahn oberhalb jener von 2003. Zu ähnlichen Ergebnissen kommen auch alle anderen Auswertungen mit einer leichten Belastungssteigerung von 3.7% für ^{105}Pd im Gesamtkollektiv von 2018 (Tab. 2,3).

Auf der Gotthardroute der A2 zeigt sich für den leichten Güterverkehr seit 2003 eine beträchtliche Verkehrszunahme von 25% - 51% für die Messstandorte Erstfeld Nord und Gotthardtunnel, wogegen der Schwerverkehr um 18.5 - 18.6 % abgenommen hat. Auch für den Personenverkehr zeigt sich in derselben Beobachtungsperiode eine Zunahme von 14.6% und 7.2%, je bezogen auf den Werktagsverkehr. Damit erscheinen die festgestellten Belastungszunahmen von Platin, Palladium und auch von Zinn in den aktuellen Flechtenproben von 2018, auf der Gotthardroute und an weiteren Standorten, als durchaus plausibel.

- Als Repräsentant für die Schmiermittel-Additive von modernen Motoren- und Getriebeölen veranschaulicht Molybdän die Belastungsentwicklung zwischen 2003/08 und 2018 (Abb 13 e,f). Insgesamt zeigt Molybdän eine starke Belastungsabnahme von 56%. Diese zeigt sich auch mit einem sehr deutlichen Belastungsrückgang im Profil Härkingen-NABEL in den ersten 80 m zur Autobahn. Zu ähnlichen Ergebnissen kommen auch die Modellrechnungen. Diese stützen den starken Belastungsrückgang für 2018. Der vom Indikatormodell für Molybdän von 2018 geschätzte Gesamtverkehrsanteil beträgt 26.7%, wobei die drei Verkehrsträger fast gleiche Belastungsanteile vorherhsagen.

5. Fazit und Ausblick

Die nach 15 Jahren wiederholten Biomonitoringanalysen mit Flechten entlang der Alpentransitautobahnen A2 und A13 zwischen Basel und Chiasso und einem Verkehrsknotenpunkt in der Stadt Bern zeigen eine deutliche Reduktion der Luftbelastung mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs) und Schwermetallen zwischen 2003/08 und 2018. Für alle 32 analysierten PAKs beträgt die mittlere Reduktion 27% und für Coronen sogar 54%. Auch mehrere Schwermetalle zeigen einen starken Belastungsrückgang, welcher für Chrom, Nickel und Blei sogar über 60% beträgt. Einzig für die Katalysatormetalle Platin und Palladium sowie für Zinn, welches vermehrt in modernen Bremsbelägen zum Einsatz gelangt, zeigt sich ein deutlicher Belastungsanstieg. Auch die beiden Autobahnprofile Härkingen-NABEL und Erstfeld-Feldmatt zeigen für die meisten untersuchten Schadstoffe einen deutlichen Belastungsrückgang. Es zeigt sich erneut, dass die durch den Motorfahrzeugverkehr emittierten PAKs und Schwermetalle entlang intensiv befahrener Verkehrsachsen hauptsächlich innerhalb eines Belastungskorridors von 80 - 200 Metern deponiert werden. Unter den betreffenden (d.h. mit der Strassendistanz deutlich abnehmenden) Substanzen finden sich sowohl mehrere Schwermetalle als auch zahlreiche und z.T. sogar mutagene und kanzerogene PAKs.

Diese PAKs werden vorwiegend von Dieselfahrzeugen ohne Katalysatoren und Partikelfilter, aber auch von benzinbetriebenen Katalysatorfahrzeugen ohne Partikelfilter emittiert. Literaturrecherchen zeigen, dass neben den Treibstoff- und Motoren-Emissionen auch Bremsbeläge und Abgaskatalysatoren sowie Additive in Motoren- und Getriebeölen und Autoreifen wichtige Schadstoffquellen des Mfz-Verkehrs darstellen. So stellen moderne Bremsbeläge, Katalysatoren und Autoreifen nach wie vor eine relevante Quelle für die Luftbelastung von Kupfer, Zink, Antimon, Blei, Chrom, Molybdän, Eisen, Zinn, Platin, Palladium und Schwefel dar.

Insgesamt zeigt sich aber mit dem sensiblen Flechtenbiomonitoring und den nach 15 Jahren wiederholten Spurenanalysen von PAKs, Schwermetallen und Schwefel auch immissionsseitig eine positive Wirkung der bisher erreichten Verbesserungen in der Motorenentwicklung und Abgasbehandlung von modernen Motorfahrzeugen.

Mit Regressions- und varianzanalytischen Verfahren konnten die in den aktuellen Flechtenproben festgestellten Belastungsänderungen von PAKs und teilweise auch für Schwermetalle hinreichend gut mit den Verkehrsveränderungen des Werktagsverkehrs erklärt werden. Aus dem grossen Kollektiv von 49 untersuchten PAKs, Schwermetallen und Gesamtschwefel konnten zudem erneut 28 geeignete Indikatoren als „Tracer“ zum Nachweis der Luftbelastung des motorisierten Strassenverkehrs bestimmt werden, welche für 19 Schadstoffe sogar spezifische Belastungsaussagen für einzelne Fahrzeugkategorien wie z.B. den Schwerverkehr erlauben.

Zum Nachweis des Belastungsanteils des aktuellen Schwerverkehrs (dieselbetrieben) eignen sich sechs PAKs, drei PAKs für den Leichten Güterverkehr, und weitere zehn PAKs indizieren besonders den Belastungsanteil des Personenverkehrs. Die Schwermetalle Kupfer, Zink, Antimon Blei, Zinn sowie das PAK Indeno(cd)pyren weisen zudem auf die Emissionsanteile des gesamten Motorfahrzeugverkehrs hin. Sie stammen besonders von Brems- und Kupplungsbelägen. Im Unterschied dazu stammt Molybdän aus Motoren- und Getriebeölen und z.T. Bremsbelägen, und Platin und Palladium aus dem Abrieb von Abgaskatalysatoren. Eine Übersicht dazu findet sich in Tabelle 5.

Allerdings zeigen diese Modellrechnungen auch, dass der aktuelle Verkehrsanteil bei den Schwermetallen unterschiedlich hoch ausfällt. Beim toxikologisch heiklen Antimon beträgt dieser hohe 58% und 41% bei Kupfer, während dieser bei weiteren Schwermetallen meist nur zwischen 24 - 38% liegt. Platin, Palladium und Zinn zeigen für 2018 als einzige einen Belastungsanstieg gegenüber der Erstuntersuchung von 2003/08 und weisen damit auf den vermehrten Einsatz in Abgaskatalysatoren sowie in modernen Bremsbelägen hin. Eine Differenzierung in die verschiedenen Verkehrsquellen wie bei den PAKs ist bei den Schwermetallen und bei Schwefel wegen des starken Belastungsrückgangs und der teilweise geringen Korrelation einiger Schwermetalle mit dem Strassenabstand nicht mehr möglich (Tab. 5).

Tab. 5 Prozentuale Änderung der PAK- und Schwermetallbelastung zwischen 2003/08 und 2018 und Eignung dieser Luftschadstoffe als Tracer für die verschiedenen Mfz-Verkehrsquellen.

PAK	Mean 2018	Mean 2003/08	Delta 2018 zu 2003/08 Mean %	geeigneter Tracer Schwerverkehr	geeigneter Tracer Lieferwagen	geeigneter Tracer Personenwagen, Motorräder	geeigneter Tracer Gesamtverkehrs-Mix	Element, Isotop	Mean 2018	Mean 2003/08	Delta 2018 zu 2003/08 Mean %	geeigneter Tracer Gesamtverkehrs-Mix
Coronen	54	116	-53.9					Chrom 52Cr	9.16	24.58	-62.7	++
Acenaphthylen	5.1	9.5	-46.3					Nickel 60Ni	5.00	13.30	-62.4	++
Benzo(ghi)perylen	90	163	-45.0	++				Blei 208Pb	18.02	47.29	-61.9	++
Indeno(1,2,3-cd)pyren	71	110	-35.2				+++	Molybdän 95Mo	1.64	3.77	-56.5	++
Anthranthen	13.5	20.7	-34.7		++			Kupfer 63Cu	35.2	75.9	-53.6	++
Benzo(e)pyren	69	105	-34.2			+++		Cadmium 111Cd	0.22	0.46	-52.2	
Benzo(ghi)fluoranthren	14.3	21.5	-33.7					Arsen 75As	0.83	1.31	-36.7	
Benzo(b)naphtho(2,1-d)-thiophen	18.0	26.8	-33.0			+++		Gesamtschwefel S	1897	2978	-36.3	
Dibenzo(a,e)pyren	10.3	15.3	-32.8					Vanadium 51V	3.48	5.41	-35.7	
Dibenz(a,h)anthracen	10.9	16.1	-32.5			+++		Eisen Fe	1952	2930	-33.4	
Triphenylen	23.6	34.1	-30.8					Cobalt 59Co	0.70	0.99	-28.8	
Naphthalin	37.8	54.5	-30.6					Cer 140Ce	2.79	3.69	-24.4	
Benzo(b,j)fluoranthren	153	215	-28.8					Palladium 106Pd	40.6	48.1	-15.6	++
Benzo(b,k,l)fluoranthren	198	276	-28.3			++++		Zink Zn	139	162	-14.2	++
Chrysen	87	120	-27.0	++++				Antimon 121Sb	2.25	2.40	-6.3	+++
Benzo(k)fluoranthren	44.4	60.4	-26.5	+++				Palladium 105Pd	68.4	65.9	3.7	+++
Dibenzo(ah)pyren	1.4	1.9	-26.2	++				Zinn 120Sn	3.16	2.20	43.6	++
Summe 9 muta/kanzerog. PAKs	630	851	-26.0			+++		Platin 194Pt	14.24	8.28	71.9	++
Summe 28 PAKs	1788	2390	-25.2		+++			Platin 195Pt	14.42	8.16	76.6	+++
Fluoren	16.5	21.7	-24.1					Mittlere Belastungsabnahme, ohne Sn, Pt, Pd			-38.7	
Dibenzo(ai)pyren	7.7	10.1	-24.0					negative Werte: Belastungsabnahme				
Summe 16 EPA PAKs	1295	1685	-23.1			+++		positive Werte: Belastungszunahme				
Benzo(c)phenanthren	11.6	14.9	-22.2	+++				Belastungseinheiten:				
Benzo(a)pyren	74.4	93.4	-20.3			++++		PAKs [ng/g TS] und Schwermetalle und S µg/g TS]				
Cyclopenta(cd)pyren	14.8	18.5	-20.0	+++				sowie [ng/g TS] für 194Pt, 195Pt und 105Pd, 106Pd				
Acenaphthen	6.9	8.4	-17.4									
Phenanthren	181	218	-16.8									
Pyren	200	237	-15.7			+++						
Anthracen	10.4	11.6	-10.0									
Perylen	15.5	17.2	-10.0			++++						
Benzo(a)anthracen	48.5	53.9	-10.0			++++						
Fluoranthren	300	320	-6.2		+++							
Mittlere Belastungsabnahme			-26.6									

Vergleich mit aktuellen Ergebnissen aus der Literatur

Bisher galten Dieselfahrzeuge infolge ihrer deutlich erhöhten Russpartikel-Emission auch bezüglich der PAK-Belastung als problematisch. Modernste Dieselfahrzeuge sind heute allerdings mit SRC-Katalysatoren und zusätzlichen Partikelfiltern ausgerüstet. Gemäss vergleichenden Emissionsmessungen der GASOMEPA Studie 2017 der EMPA erwies sich ein auf modernstem Stand ausgerüsteter Diesel-PW mit SRC-Katalysator und wirkungsvollem Partikelfilter bezüglich seiner PAK-Emission meist um bis zu einer Grössenordnung besser als benzinbetriebene Euro 3,4,5 PWs mit Dreiwegkatalysatoren verschiedener Marken, welche noch über keinen Partikelfilter verfügten. Diese Ergebnisse beziehen sich allerdings ausschliesslich auf moderne PWs. Um die Grenzwerte der strengsten Abgasnorm Euro 6d-Temp einzuhalten, werden aktuell immer mehr Benzin-Direkteinspritzer serienmässig mit Partikelfiltern

ausgerüstet, womit dieser Unterschied in der PAK-Emission von Diesel- und Benzinfahrzeugen künftig verschwinden wird.

Interessante Ergebnisse für aktuelle Schwerverkehrsfahrzeuge auf der Gotthardroute der A2 liefert ein aufschlussreiches MfM-Pilotprojekt mit einer erstmaligen RSD-Testanalyse im Schwerverkehrszentrum Erstfeld (Abgasmessungen von Lastwagen mit Remote Sensing 2020¹). Während einer 14-tägigen Testzeit zeigte sich, dass aktuell bereits 91.7% der mit der RSD-Methode analysierten 4'000 Schwerverkehrsfahrzeuge zur modernsten Flotte der Euro 6 Fahrzeugen gehörten und damit schon strengeren Emissionsvorschriften genühten. Diese Versuchsmessungen zeigten für die modernen Euro 6 Schwerverkehrsfahrzeuge denn auch deutlich geringere NO-Emissionen als für die älteren Euro 3, 4 und 5 Fahrzeuge. Bisher bleibt allerdings ungeklärt, ob und wie repräsentativ diese Testergebnisse für Stickoxide für die LKW-Flotten in anderen Regionen der Schweiz sind.

Nebst den nach Motorentypen differenzierten Emissionsmessungen von diesel- und benzinbetriebenen Personen-, leichten Güterfahrzeugen und Schwerverkehrsfahrzeugen der WHO (2002, 2005) und der EMEP (2018), welche mehrere Schadstoffklassen umfassen, fehlen derzeit aktuellere PAK-Messungen an modernsten Schwerverkehrsfahrzeugen fast vollständig. Immerhin belegen auch strassenbezogene Freilandanalysen von PAKs an Diesel- und Benzinfahrzeugen, kombiniert mit umfangreichen Quellenanalysen aus Japan (Ozaki et al. 2003), die von der WHO und EMEP mehrfach publizierten aktualisierten Emissionsdaten (siehe Anhang 2). So zeigten auch die japanischen Ergebnisse, dass besonders Diesel-, gefolgt von Benzinfahrzeugen an Werktagen stärker als an Feiertagen, die Hauptbelastungsquellen der feinpartikulären Immissionsbelastung von PAKs (0.6-7µm und >7µm) darstellen, während der Pneuabrieb als Hauptquelle der grobpartikulären Depositionsbelastung von PAKs eruiert wurde.

Bereits bei der MfM-Erstuntersuchung von 2003 dienten schwedische Elementaranalysen von Bremsbelägen und Autoreifen-Additiven von Westlund 2001 und von Uexküll 2005 zur Erklärung der damaligen Ergebnisse. Seither sind von Hjortenkrans et al. 2007 neue Analysen aus der Stockholm-Region von 2005 publiziert worden, welche für Cu, Zn, Sb, Pb, Cr, Ni, Cd und S Belastungsvergleiche von Bremsbelägen und Autoreifen-Additiven bis 1998 ermöglichen. So hat sich u.a. für die Stockholm-Region für 2005 für die Emissionsbelastung aus den beiden Quellen Bremsbeläge und Autoreifen die folgende Hierarchie ergeben: Cu 3800/5.3, Zn 1000/4200, Sb 710/0.54, Pb 35/3.7 sowie für Cd 0.061/0.47 kg/Jahr. Während Cu, Zn und Sb aus Bremsbelägen und Autoreifen in Stockholm weiterhin relevante Belastungsquellen darstellen, ist die Belastung von Pb und Cd von 1998 bis 2005 um das Zehnfache gesunken.

Akkumulationsbelastung der Flechtenproben und Vergleich der mit den Verkehrsveränderungen und verbesserten Emissionseigenschaften der aktuellen Fahrzeugflotte

Die aktuellen Trends der verkehrsbezogenen Emissionsanalysen an modernen fossilbetriebenen Motorfahrzeugen weisen insgesamt auf eine deutliche Verbesserung der Abgaseigenschaften sowie einer teilweisen Verbesserung der Emissionseigenschaften von Schwermetallen aus Bremsbelägen hin. Gleichzeitig zeigen die Analysen der Swiss10 Verkehrsdaten zwischen 2003/08 und 2018 eine deutliche Belastungsabnahme des Schwerverkehrs auf der A2 und A13 Route (Gotthardtunnel -18.5%, Rothenbrunnen -14.9%). Allerdings steigt im selben Zeitraum die Belastung des «leichten Güterverkehrs» sehr stark an (Gotthardtunnel +25.2%, Rothenbrunnen +72%). Auch der Anteil des Personenverkehrs vergrösserte sich im selben Zeitraum markant (Gotthardtunnel +7.2%, Rothenbrunnen +20.6%).

Diese Belastungsunterschiede in der Verkehrsbelastung mit den Veränderungen der Abgaseigenschaften sowie der Emission aus Bremsbelägen und Pneuabrieb der Motorfahrzeuge widerspiegeln sich entsprechend in der PAK- und Schwermetallbelastung des Flechtenbiomonitorings der beiden Probenahmen von 2003/08 und 2018. Dies haben die umfangreichen Modellanalysen der Daten des Biomonitorings mit den Swiss10 Verkehrsdaten für beide Probenahmen sehr deutlich gezeigt.

Für die PAK-Analysen hat sich mit dem komplexeren Immissionsmodell sogar gezeigt, dass für mehrere PAK-Einzelsubstanzen der aktuelle Motorfahrzeugverkehr auf den beiden Alpentransitachsen A2 und A13 die bedeutendste Belastungsquelle darstellt. So lassen sich beispielsweise für Chrysen 88% der in den Flechtenproben von 2018 gemessenen Akkumulationsbelastung auf den Motorfahrzeugverkehr zurückführen, wovon 61% vom Schwerverkehr und 23% vom leichten Güterverkehrs allein erklärt werden können. Und bei Antimon können mit den einfacheren Indikatormodell 58.5% der Konzentration in den Flechtenproben von 2018 allein mit dem Motorfahrzeugverkehr erklärt werden. Für die

¹ Studien MFM-U (admin.ch) 02.10.2020)

Bleikonzentrationen ist der hohe Verkehrsanteil von 2003/08 von 61.6% bis 2018 auf noch 26.1% zurückgegangen.

Ausblick

Insgesamt ergeben die vergleichenden Spurenanalysen von PAKs und Schwermetallen aufgrund des Flechtenbiomonitorings und mittels der multivariablen Modellanalysen unter Einbezug der Swiss10-Verkehrsdaten ein konsistentes Abbild der Immissions- und Verkehrsentwicklung auf beiden Alpen-transitachsen innerhalb der letzten 10-15 Jahre.

Weitere markante Entlastungen in der verkehrsseitigen Immissionsbelastung auch von PAKs sind mit der rasch voranschreitenden Elektrifizierung mit E-Fahrzeugen bereits eingeleitet. Zudem werden neue Benzin-Direkteinspritzerfahrzeuge meist schon serienmässig mit Partikelfiltern ausgerüstet. Auch zehn erste H₂-LKWs sind auf der A2 bereits testweise im Einsatz. Sowohl E- als auch H₂-Fahrzeuge werden die künftigen PAK-Emissionen dieser Fahrzeuge, abgesehen von geringeren Anteilen aus Brems- und Kupplungsbelägen, markant senken.

Mit einer weiteren Erfolgskontrolle mit dem Flechtenmonitoring in 10-15 Jahren könnten solchermassen erwartbare Entlastungen erneut immissionsseitig sichtbar gemacht werden.

Zitierte und weiterführende Literaturquellen

- ¹ **HERZIG, AGB (2007)** Gesamtbericht. Biologisches Luftqualitätsmonitoring mit Flechten entlang der A2 und A13 und Zuweisung relevanter Luftschadstoffe zum Motorfahrzeugverkehr. Monitoring flankierende Massnahmen Umwelt. Schlussbericht Januar 2007. Bundesamt für Umwelt BAFU, Abteilung Klima, Ökonomie, Umweltbeobachtung, Bern.
- ² **HERZIG, AGB (2007)** Kurzfassung: Biologisches Luftqualitätsmonitoring mit Flechten entlang der A2 und A13 und Zuweisung relevanter Luftschadstoffe zum Motorfahrzeugverkehr. Monitoring flankierende Massnahmen Umwelt. Oktober 2007. Bundesamt für Umwelt BAFU, Abteilung Klima, Ökonomie, Umweltbeobachtung, Bern.
- ³ **Herzig R, Lohmann N, Meier R, (2019)** Temporal change of the accumulation of persistent organic pollutants (POPs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in lichens in Switzerland between 1995 and 2014. *Environmental Science and Pollution Research*. *Env Science and Poll Res* 26:10562–10,575. <https://doi.org/10.1007/s11356-019-04236-9>
- ⁴ **Persistente organische Luftschadstoffe (POPs) in Flechten Situation 2014/15 im Vergleich zu 1995. 2017.** Auswahl gemäs POPs-Protokoll der UNECE LRTAP Konvention. Technischer Bericht 22. April 2016 und Kurzfassung 22. April 2017. Herzig AGB zuhanden des Bafu.
- ⁵ **BUWAL Umweltmaterialien Nr. 146: Persistente organische Luftschadstoffe (POPs) in der Schweiz - Biomonitoring mit Flechten 2002.** Herzig AGB im Auftrag des BUWAL.
- Abgasmessungen von Lastwagen mit Remote Sensing 2020**, MFM-U RSD-MESSUNGEN ERSTFELD, PILOTPROJEKT. inNET Monitoring AG, Altdorf, 02.10.2020
- Abgastest ADAC (2018) Erste Benziner mit Partikelfilter – so sauber sind sie wirklich.** <https://www.adac.de/rund-ums-fahrzeug/tests/ecotest/test-benzin-partikelfilter/>
- AGB, 1993:** PAH-Analysen in Flechtenproben und Vergleich mit entsprechenden Immissionsmessungen an vier Standorten der Schweiz. Als Grundlage für den OECD-Workshop on Hazardous Air Pollutants 1993, London. Im Auftrag des BUWAL.
- Automatische Strassenverkehrszählung 2003. Fahrzeugklassen (LCV):** Mit längenklassierten DTV und DWV-Daten 2003. Sigmaphan. Bundesamt für Strassen, ASTRA. Bern, Mai 2004.
- BAFU (2018) Luftqualität 2017.** Messresultate des Nationalen Beobachtungsnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL). Bundesamt für Umwelt, Umwelt-Zustand Nr. 1825, 28 pp. <https://www.bafu.admin.ch/uz-1916-d>
- Bayer-Oglesby, L., Grize, L., Gassner, M., Takken-Sahli, K., Felix H. Sennhauser, Neu, U., Schindler, Ch., Braun-Fahrländer, Ch., 2005:** Decline of Ambient Air Pollution Levels and Improved Respiratory Health in Swiss Children. doi:10.1289/ehp.8159 (available at <http://dx.doi.org/>) Online 21 June 2005.
- BLUMER, M., 1976:** Polycyclic Aromatic Compounds in Nature, *Scientific American*, 234,3
- BRUNNER, P. H., ZOBRIST, J., 1983:** Die Müllverbrennung als Quelle von Metallen in der Umwelt. In: *Fachzeitschrift Müll und Abfall*, 9/83.
- CARBOTECH 1992:** VOC- und PAK-Immissionsmessungen in der Region Basel (1991). Zuhanden des Lufthygieneamtes LHA.
- CARBOTECH 1995:** PAK-Immissionsmessungen in den Kantonen Zürich, Schaffhausen und Luzern 1994/95. Im Auftrag des Amtes für Techn. Anlagen (ATAL) des Kt. Zürich, des kant. Laboratoriums für Lebensmittelkontrolle und Umweltschutz, Schaffhausen und des Amtes für Umweltschutz, Luzern.
- CARLBERG, G., BAUMANN OFSTAD, E., DRANGSHOLT, H., STEINNES, E., 1983:** Atmospheric depositions of organic micropollutants in Norway studied by means of mosses and lichen analysis. *Chemosphere* Vol. 12/3, 341-356.
- Cafferya C, Durbina T.D, Johnsona K.C, Karavalakisa G, 2020.** The effect of ethanol and iso-butanol blends on polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) emissions from PFI and GDI vehicles. *Atmospheric Pollution Research* 11, 2056–2067
- DIETL, C., et al., 1997:** Association of antimony with traffic-occurrence in airborne dust, deposition and accumulation in standardized grass cultures. The science of the total environment. Volume 205, Pages 235-244.
- EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook- 2005.** Technical Report Nr. 30. European Environment Agency EPA, Copenhagen 31.12.2005. http://reports.eea.europa.eu/EMEP/CORINAIR4/en/tab_abstract_PLR.
- EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook 2016**, Update Jul. 2018.
- Entwicklung der schweizerischen Gesetzgebung im Bereich der Abgasemissionen von motorisierten Strassenfahrzeugen, der periodischen Nachkontrolle von Motorfahrzeugen und der Treibstoffqualität.** BUWAL, November 2002.
- GASOMEP Final Scientific Report 2017 EMPA**, submitted Nov. 2017
- Güterverkehr durch die Schweizer Alpen 2004.** Bundesamt für Raumentwicklung, ARE, 3.2005.

- Herzig R, Christian Schindler, Urech M, Rihm B, Lötscher HP, Thomann G (2020).** Recalibration and validation of the Swiss lichen bioindication methods for air quality assessment. *Environmental Science and Pollution Research*.
<https://doi.org/10.1007/s11356-020-09001-x>.
- Herzig R, Bieri Ch, Weber A, Straehl P (2011).** Persistent organic pollutants (POPs) in Switzerland related to long-range transboundary transport results of a case study with special emphasis on the spatial distribution of polycyclic aromatic and chlorinated air borne pollutants. In: Schröder P, Collins CD (eds), *Organic Xenobiotics and Plants: From Mode of Action to Ecophysiology*, Plant Ecophysiology 8, Springer Science and Business Media.
- HERZIG, R., BIERI, C., 2002:** Persistente organische Luftschadstoffe (POPs) in der Schweiz - Biomonitoring mit Flechten 2002. Umweltmaterialien Nr. 146. Auftraggeber: Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, BUWAL.
- HERZIG, R., REHNERT, A., KUMPULAINEN, J., SCHRAMMEL, P., MUNTAU, H. LINSINGER, T & QUEVAUVILLER, P. 2002:** Certification of a new cabbage reference material for the quality control of trace element determinations with some considerations on moisture. *TRAC - Trends in Analytical Chemistry*, Vol. 21 No.11 p. 746-761.
- Herzig R (1993).** Multi-Residue Analysis with Passive Biomonitoring. A New Approach for Volatile Multi-Element Contents, Heavy Metals and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons with Lichens in Switzerland and the Principality of Liechtenstein, Chapter 11-285-328. In: *Plants as Biomonitors for Heavy Metal Pollution in the Terrestrial Environment* Ed. Markert B, VCH-Verlagsgesellschaft Weinheim. ISBN 3-527-30001-5
- Herzig R, Urech, M (1991a)** Flechten als Bioindikatoren. Integriertes biologisches Messsystem der Luftverschmutzung für das Schweizer Mittelland. *Bibliotheca Lichenologica* 43:1–283. J. Cramer Verlag, Berlin, Stuttgart ISBN 3-443-58022-X
- Herzig R (1990)** Entwicklung des Integrierten biologischen Messsystems der Luftverschmutzung mit Flechten in der Schweiz, seine Anwendung und erste Vergleiche mit Bodenanalysen. *VDI-Kolloquium: Wirkungen von Luftverunreinigungen auf Böden*, 15 - 17. Mai 1990, Lindau. *VDI-Berichte* 837, 937-956.
- Herzig R, Liebendörfer L, Urech M, Ammann K, Guecheva M and Landolt W (1989)** Passive biomonitoring with lichens as a part of an integrated measuring system for monitoring air pollution in Switzerland. *Intern. J. Environ. Anal. Chem* 35 : 43-57.
- Herzig R, Liebendörfer L, Urech M (1987)** Flechten als Bioindikatoren der Luftverschmutzung in der Schweiz: Methoden-Evaluation und Eichung mit wichtigen Luftschadstoffen. *VDI-Berichte* 609, pp. 619-639
- Hjortenkrans D.S.T, Bergbäck, B.G. Häggerud A.V. 2007** Metal Emissions from Brake Linings and Tires: Case Studies of Stockholm, Sweden 1995/1998 and 2005. *Environmental Science and Technology* 41(15):5224-30
- Hjortenkrans D.S.T, Bergbäck, B.G. Häggerud A.V. 2008.** Transversal immission patterns and leachability of heavy metals in road side soils. *Journal of Environmental Monitoring* 10(6):739-46
- Iijima A , Sato K, Yano K, Kato M, Kozawa K, Fruta N 2008.** Emission Factor for Antimony in Brake Abrasion Dusts as One of the Major Atmospheric Antimony Sources. *Environ. Sci. Technol.* 2008, 42, 2937–2942
- Kappel Christian.** Cer und die Verwendung von Ceroxiden.
https://www.fhmuenster.de/ciw/downloads/personal/juestel/juestel/Verwendung_von_Ceroxiden_ChristianKappel_1.pdf
- Liati, A., Schreiber, D., Lugovyy, D., Gramstat, S., & Eggenschwiler, P. D. (2019).** Airborne particulate matter emissions from vehicle brakes in micro- and nano-scales: morphology and chemistry by electron microscopy. *Atmospheric Environment*, 212, 281-289. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.05.037>.
- Luftreinhalte-Verordnung (LRV).** Änderung vom 16. Dez. 1985; Stand 28.3.2000. EDI. LRV 814.318.142.1.
- Luftbelastung 2002, 2003, 2004:** Messresultate des Nationalen Beobachtungsnetzes für Luftfremdstoffe (NABEL). BUWAL 2003-05.
- MERIAN, E., 1991:** Metals and Their Compounds in the Environment. VCH, Weinheim.
- MOTOR VEHICLES AND CLEANER AIR, 1983:** Health risks Resulting from Exposure to Motor Vehicle Exhaust. Governmental Report (SOU 1983:27,28).
- NIEBOER, E., RICHARDSON, D.H.S., Tomassini, F.D. 1978:** Mineral uptake and release by lichens: An overview. *Bryologist* 81 (2), 226-246.
- NOBEL, W., MICHENFELDER, K., 1986:** Wirkungsaussagen mit Bioindikatoren an einem Autobahnprofil der A8 bei Wendellingen. In: TÜV- Stuttgart e.V. Filderstadt, 88 S.
- Ozaki N, Nitta K, Sugihara T, Fukushima T, Komatsu T, 2003.** Emission and dispersion of PAHs from heavy traffic road. *Transactions on Ecology and the Environment* vol 66, © 2003 WIT Press, www.witpress.com, ISSN 1743-3541
- PAK-Immissionsmessungen in den Kantonen Zürich, Schaffhausen und Luzern, 1995:** Resultate der chemischen Messungen (GC/MS) und derjenigen mit dem photoelektrischen Aerosol-Sensor (PAS). Schläpfer K, et al. Im Auftrag des Amtes für techn. Analgen und Lufthygiene des Kt. Zürich (ATAL), des Kantonalen Laboratoriums für Lebensmittelkontrolle und Umweltschutz Schaffhausen und des Amtes für Umweltschutz, Luzern.
- PAHs Gubrist 1993:** EMPA Studie Nr. 149339.
- Partikelfilter für schwere Nutzfahrzeuge, 2000:** Umweltmaterialien Nr. 130 Luft. BUWAL.
- PETRY, T., SCHMID, P., SCHLATTER, CH., 1996:** The use of toxic equivalency factors in testing occupational and environmental health risks associated with exposure to airborne mixtures of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Cemosphere*, Vol 32. No.4, pp 639-648
- PUCKETT, K.J., NIEBOER, E., GORZYNSKI, M.J., RICHARDSON, D.H.S. 1973:** The uptake of metal ions by lichens: A modified ion-exchange process. *New Phytol.* 72, 329-342.
- QUEVAUVILLER, P, HERZIG, R., MUNTAU, H. 1996:** Certified reference material of lichen (CRM482) for the quality control of trace element biomonitoring. *The Science of the Total Environment* 187 (1996) 143-152.
- Rabe, R., Beckelmann U. 1986:** Zusammenhänge zwischen der durch Flechten angezeigten Gesamtverunreinigung der Luft und Gesundheitsbeeinträchtigungen beim Menschen. *VDI-Berichte* 699, Seiten 729-753.
- RENNER, H., SCHMUCKLER, G., 1991:** Platinum-Group Metals; gemäss Buckow, G., et al., 1986: Verwertung von Reststoffen aus einer Wiederaufbereitungsanlage. *Ges. für Reaktorsicherheit GRS, Köln*. In: Merian, E., 1991: Metals and their Compounds in the Environment, VCH-Publishers Weinheim, pp. 1135-1148.
- SCHWEIZERISCHE STRASSENVERKEHRSZÄHLUNG 2000: CD;** Bundesamt für Strassen und Bundesamt für Statistik.
- JEGGE Patrick, Bundesamt für Strassen, ASTRA:** Diverse persönliche Mitteilungen, Jan./Febr. 2006. SWISS10-DVW-Daten von 2003.
- STAEHLIN, J., et al. 1995:** Erfassung von Emissionen des Fahrzeugverkehrs mittels Messungen im Gubristtunnel. Projekt EU-ROTRACK/GENEMIS, Zürich.
- STOFFVERORDNUNG (StoV), 2000 [814.013] - Verordnung über umweltgefährdende Stoffe.** Bundeskanzlei, EDMZ, Bern.
- Umweltmonitoring Flankierende Massnahmen. Luft- und Lärmmodellierungen.** Jahresbericht 2004. Bundesamt für Umwelt Wald und Landschaft, BUWAL, Bern.
- Umweltmonitoring MFM-U. Luft- und Lärmmessungen.** Jahresbericht 2004. Interner Schlussbericht Infrass Dez. 2004. Umweltmaterialien Nr. 205. Bundesamt für Umwelt Wald und Landschaft, Bern.

- UN/ECE, 1998:** United Nations Economic Commission for Europe. Protocol to the 1979 Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution on Persistent Organic Pollutants. Aarhus, 24. June 1998.
- Verkehrsbezogene Immissionen und Immissionswirkungen von Antimon und anderen Metallen, 1998:** Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, Schriftenreihe Heft 153, München.
- Verordnung über umweltgefährdende Stoffe (Stoffverordnung, StoV), 1991, EDI.**
- WHO-Europe 2003:** Health risks of persistent organic pollutants from long-range transboundary air pollution. Joint WHO/Convention Task Force on health aspects of Air Pollution, 252pp., Copenhagen (DK).
- WHO-Road Transport:** Emission Inventory Guidebook August 2002. WHO Geneva.
- WILHELM, M., SCHREY, P., WITTSIEPE, J. HEINZOW, B. 2002:** Dietary intake of persistent organic pollutants (POPs) by German children using duplicate portion sampling. *Int. J. Hyg. Environ. Health* 359-204, 362.
- WILLIAMS, P.T, BARTLE, K.D., ANDREWS, G.E., 1986:** The Relation between Polycyclic Compounds in Diesel Fuels and Exhaust Particulates. *Fuel*, Vol. 65, August, 1986.
- von Uexküll O, Skerfving S, Doyle R, Braungart M, 2005.** Antimony in brake pads-a carcinogenic component? *Journal of Cleaner Production* 13 (2005) 19–31
- Westlund K.G, 2001.** Metal emission from Stockholm traffic. Wear of brake linings. Report from SLB-analys, 2-2001. *Environment and Health Protection* admin, Stockholm 2001.
- WHO Road Transport Emission Inventory 2002.**
- Yang J, Roth P, Durbin TD, Johnson KC, Cocker R, Asa-Awuku A, Brezny R, Geller M, Karavalakis G, 2018.** Gasoline Particulate Filters as an Effective Tool to Reduce Particulate and PAH Emissions from GDI Vehicles: A Case Study with Two GDI Vehicles. *Environ. Sci. Technol.*, DOI: 10.1021/acs.est.7b05641

Verwendete Directiven der EU:

Directive 2004/107/EC As, Cd, Hg, Ni, Bap 15. Dez. 2004 of the European Parliament and the the Council of 15. Dec. 2004 relating on arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air http://europa.eu.int/eur-lex/lex/LexUriServ/site/en/oj/2005/l_023/l_02320050126en00030016.pdf

DGentr-PE-E3 391 PE PAH 27th amend_DE_ACTE.DOC

Im Rahmen der Richtlinie 67/548/EWG wird BaP als karzinogener, mutagener und reprotoxischer Stoff der Kategorie 2 eingestuft und kann nicht hinnehmbare Risiken für die menschliche Gesundheit oder die Umwelt beinhalten. http://europa.eu.int/eur-lex/de/com/pdf/2004/com2004_0098de01.pdf

DGentr-PE-E3 391 PE PAH 27th amend_DE_ACTE.DOC

Im Rahmen der Richtlinie 67/548/EWG wird BaP als karzinogener, mutagener und reprotoxischer Stoff der Kategorie 2 eingestuft und kann nicht hinnehmbare Risiken für die menschliche Gesundheit oder die Umwelt beinhalten. http://europa.eu.int/eur-lex/de/com/pdf/2004/com2004_0098de01.pdf

Glossar

Bioindikation Als Bioindikatoren gelten Lebewesen (und Lebensgemeinschaften), welche bei Schadstoffbelastungen messbare Veränderungen zeigen oder diese Schadstoffe messbar aufkonzentrieren (akkumulieren). Letztere werden auch als Biomonitoren bezeichnet

Emission Ausstoss von Schadstoffen an der Quelle.

Fingerprints (der Belastung) Typisches Muster der Belastungsintensität der gemessenen Einzelstoffe, welches z.T. standort-, bzw. quellspezifische Rückschlüsse erlaubt.

Gesamtmissionsbelastung Belastung der Luft mit vielen toxischen Einzelschadstoffen und deren kombinierter Wirkung, erhoben mit dem Gesamtbelastungsindikator IAP18.

Gesamtmissionskataster mit Flechten Darstellungsform für Luftqualitätsuntersuchungen mit Flechten, deren Erhebungsmethoden mit technischen Luftschadstoffmessungen geeicht sind. Statistisch gesicherte Rückschlüsse auf die Luftqualität werden wirkungsbezogen, aufgrund der Beeinträchtigung (Frequenz: IAP18, Arthäufigkeit) gezogen. Der Gesamtmissionskataster unterscheidet fünf Zonen abnehmender Flechtenbeeinträchtigung: Kritische Gesamtbelastung, Starke Gesamtbelastung, Mittlere Gesamtbelastung, Geringe Gesamtbelastung, Sehr geringe Gesamtbelastung, welche als Zonen unterschiedlicher Gesamtbelastung der Luft gelten dürfen. Der Gesamtmissionskataster setzt die Eichung der Erfassungsmethode voraus.

Immission Luftverunreinigungen am Orte ihres Einwirkens auf Mensch, Tiere, Pflanzen, Böden und Sachgüter.

Inversion Temperaturumkehr in bodennahen Luftschichten, verhindert vertikalen Luftaustausch und führt zur Ansammlung von Schadstoffen.

IAP18 Gesamtbelastungsindikator, der die integrale Belastung mit einer Vielzahl von Luftschadstoffen erfasst; vgl. Kalibrierte Flechtenindikationsmethode.

Kalibrierte Flechtenindikationsmethode (IAP18) Mit technischen Luftschadstoffen geeichtes Erhebungsverfahren der Gesamtbelastung der Luft, bzw. der Luftqualität (Wirkungs- und Gesamtmissionskataster) auf der Basis der Verbreitung von Baumflechten. Entwickelt im Nationalen Forschungsprogramm 14: Lufthaushalt und Luftverschmutzung in der Schweiz.

Katalysator für Motorfahrzeuge

Bei einem **Drei-Weg-Katalysator** finden die Oxidation von CO und Kohlewasserstoffen (HmCn) sowie die Reduktion von NOx parallel zueinander statt. Voraussetzung dafür ist ein konstantes Luft-Kraftstoff-Gemisch im stöchiometrischen Verhältnis ($\lambda=1$) von 14 g Luft pro Gramm Kraftstoff. Deshalb kann diese nur benzinbetriebene Fahrzeugen mit Ottomotor und Lambdaregelung eingesetzt werden kann. Als Katalysatormetall dient das früher billigere Palladium und Rhodium, in den ersten Kats wurde früher auch Platin verwendet.

Diesel-Oxidationskatalysator

Dieselmotoren verbrennen ein mageres Gemisch ($\lambda > 1$), d.h. im Abgas sind hohe Sauerstoffkonzentrationen vorhanden. Daher ist die Reduktion der NO_x nicht möglich. Die NO_x -Minimierung muß daher durch innermotorische Maßnahmen, also die gezielte Beeinflussung der Verbrennung, erfolgen. Aufgrund der deutlich niedrigeren Abgastemperaturen im Vergleich zum Ottomotor sind Dieselskats oft nahe am Abgaskrümmen verbaut. Der Dieselskat enthält nur Platin, weil Palladium und Rhodium zuwenig wirksam sind.

NABEL Nationales Beobachtungsnetz für Luftfremdstoffe.

NO_2 (Stickstoffdioxid) Stickoxide, vorwiegend Primärschadstoffe, Hauptemittenten sind Verkehr und Feuerungen. Unter dem Begriff Stickoxide werden Stickstoffdioxid (NO_2) und Stickstoffmonoxid (NO) zusammengefasst. In der Luft wird NO rasch zu NO_2 umgewandelt, deshalb werden die Emissionen und Immissionen bezogen auf Stickstoffdioxid (NO_2) angegeben.

SO_2 Schwefeldioxid, Hauptemittent Heizungen, dieselbetriebene Fahrzeuge ohne Katalysator.

O_3 Ozon, Sekundärschadstoff, gebildet aus Vorläufersubstanzen Stickoxide (NO_x) und Kohlenwasserstoffen.

PAK Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe entstehen bei unvollständiger Verbrennung. Werden auf Russpartikeln sitzend besonders von Dieselfahrzeugen ohne Partikelfilter emittiert. In der vorliegenden Biomonitoringuntersuchung wurden 27 verschiedene PAK-Spezies quantitativ analysiert.

Passivsammler Einfaches Messverfahren mit Absorptionsröhrchen für SO_2 , NO_2 , O_3 mit begrenzter zeitlicher Auflösung (1 Tag bis einige Wochen).

Photo-Oxidantien Schadstoffe mit Reizwirkung, entstehen durch chemische Umwandlung von Abgasen unter Einwirkung von Sonnenlicht, z. B. O_3 und PAN (Peroxyacetylnitrat).

PM10 Feindisperse Schwebstoffe mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als $10 \mu\text{m}$ ($10/1000\text{mm}$). Träger zahlreicher toxischer Luftschadstoffe, wie Schwermetalle, PAKs u.a. Es handelt sich dabei um die sogenannten lungengängigen Partikel; klein genug um in die feinen Lungenbläschen hineinzugelangen. Deshalb gilt ihnen eine erhöhte Aufmerksamkeit.

Primärschadstoff Schadstoff, der an der Quelle entweicht.

POP Persistente organische Verbindungen, welche sich in der Umwelt meist schlecht abbauen; aus den Stoffklassen der Polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK), Halogenierten Kohlenwasserstoffen (FCKW/CKW), Chlorbenzole, Hexachlorcyclohexan, Polychlorierte Biphenyle (PCB), Organochlorpestizide und polychlorierte Dioxine und Furane (PCDD/PCDF).

Schwebestaub Feine Staubpartikel, können durch Einatmen bis in die Lunge gelangen (siehe auch PM10).

Sekundärschadstoff Schadstoff, der durch Umwandlung von Primärschadstoffen in der Atmosphäre gebildet wird.

Smog, photochemischer Ansammlung von Schadstoffen unter einer Inversionsschicht, welche v.a. aus Motorfahrzeugabgasen unter Einwirkung von Sonnenstrahlung entstehen; typisch im Sommer.

Staubniederschlag Staubniederschlag, sind gröbere Partikel.

Summationsmessverfahren Messverfahren mit begrenzter zeitlicher Auflösung (1 Tag bis einige Wochen; z.B. Liesegang-Methode für SO_2 , Bergerhoff für Staubniederschlag und Schwermetalle, Passivsammler).

Tracer spezifischer Indikator zum Nachweis einer Einwirkung.

VOC Flüchtige organische Verbindungen.

Wirkungskataster mit Flechten Darstellungsform für Luftqualitätsuntersuchungen mit Flechten, meist in Form einer Karte. Rückschlüsse auf die Luftqualität werden wirkungsbezogen, also aufgrund der Beeinträchtigung (Frequenz: IAP18, Arthäufigkeit), gezogen. Der Wirkungskataster unterscheidet fünf Zonen abnehmender Flechtenbeeinträchtigung: Flechtenwüste, Innere Kampfzone, Äussere Kampfzone, Übergangszone, Normalzone. Der Wirkungskataster setzt keine Eichung der Erfassungsmethode voraus.

ANHANG

Ausgewählte Ergebnisse zur PAK- und Schwermetallemission

EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook 2016, Update Jul. 2018.

Diese aktualisierten PAK-Emissionszahlen stammen ursprünglich aus:

WHO-Road Transport: Emission Inventory Guidebook August 2002. WHO Geneva.

1.A.3.b.i, 1.A.3.b.ii, 1.A.3.b.iii, 1.A.3.b.iv

Passenger cars, light commercial trucks, heavy-duty vehicles including
buses and motor cycles

Table 3-75: PAHs and POPs bulk (hot + cold) emission factors

Species	Bulk emission factors (µg/km)					
	Petrol, E85, CNG PC & LCV		Diesel PC & LCV		HDV	LPG
	Convent.	Euro I & on	DI	IDI	DI	
indeno(1,2,3-cd)pyrene	1.03	0.39	0.70	2.54	1.40	0.01
benzo(k)fluoranthene	0.30	0.26	0.19	2.87	6.09	0.01
benzo(b)fluoranthene	0.88	0.36	0.60	3.30	5.45	
benzo(ghi)perylene	2.90	0.56	0.95	6.00	0.77	0.02
fluoranthene	18.22	2.80	18.00	38.32	21.39	1.36
benzo(a)pyrene	0.48	0.32	0.63	2.85	0.90	0.01
pyrene	5.78	1.80	12.30	38.96	31.59	1.06
perylene	0.11	0.11	0.47	0.41	0.20	
anthanthrene	0.07	0.01	0.07	0.17		
benzo(b)fluorene	4.08	0.42	24.00	5.21	10.58	0.71
benzo(e)pyrene	0.12	0.27	4.75	8.65	2.04	
triphenylene	7.18	0.36	11.80	5.25	0.96	0.48
benzo(j)fluoranthene	2.85	0.06	0.32	0.16	13.07	
dibenzo(a,j)anthracene	0.28	0.05	0.11	0.12		
dibenzo(a,l)pyrene	0.23	0.01		0.12		
3,6-dimethyl-phenanthrene	4.37	0.09	4.85	1.25		0.18
benzo(a)anthracene	0.84	0.43	3.30	2.71	2.39	0.05
acenaphthylene			25.92	25.92		
acenaphthene			34.65	34.65		
fluorene					39.99	
chrysene	0.43	0.53	2.40	7.53	16.24	
phenanthrene	61.72	4.68	85.50	27.63	23.00	4.91
naphthalene	11.20	610.19	2100	650.5	56.66	40.28
anthracene	7.66	0.80	3.40	1.37	8.65	0.38
coronene	0.90	0.05	0.06	0.05	0.15	
dibenzo(ah)anthracene	0.01	0.03	0.24	0.56	0.34	

Table 3-76: PCDD, PCDF and PCB emission factors for passenger cars and light duty vehicles

Ozaki N, Nitta K, Sugihara T, Fukushima T, Komatsu T, 2003. Emission and dispersion of PAHs from heavy traffic road. Transactions on Ecology and the Environment vol 66, © 2003 WIT Press, www.witpress.com, ISSN 1743-3541
 Emission and dispersion of PAHs from heavy traffic road in Higashiroshima Japan atmo sp conc. Fine partic 0.6-7 μ , >7 μ & deposite particles measured. Highvol Sampler HDV & LDV vehicles. Summer & Winter Analyses.
 Diesel & gasoline emission, tires and asphalt debris and Exhaust emission Toyota Land Cruiser diesel cathalyst, Mazda Carol 650 gasoline
Source partioning:
 fine & coars particles: diesel & gasoline main source of atmo sp part matter, Diesel > gasoline, workday > hollydays
 Deposited Particulate matter: Debris from tires mains source

Table 3: Source apportionment of Σ 10 PAHs: contribution of diesel & gasoline vehicles

Table 3 Contribution of each sources(%) for the sum of 10PAHs.

a) 19~26 Nov., 2001					b) 14~21 Aug., 2002	
	Fine, 1m		Fine, 16m		Fine, 1m	
	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays
Diesel	86	39	37	23	94	-
Gasoline	4	10	28	77	-	56
Tire	3	-	-	-	-	2
Asphalt	6	51	34	-	6	42
	Coarse, 1m		Coarse, 16m		Coarse, 1m	
	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays
Diesel	96	34	94	69	n/a	n/a
Gasoline	-	26	-	-	n/a	n/a
Tire	4	-	6	-	n/a	n/a
Asphalt	-	40	-	31	n/a	n/a
	Deposited, 1m		Deposited, 16m		Deposited, 1m	
	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays	Workdays	Holidays
Diesel	32	8	16	8	n/a	-
Gasoline	-	10	6	19	n/a	78
Tire	68	74	49	46	n/a	7
Asphalt	-	9	28	27	n/a	15

n/a, not applicable, due to PAH contents data defficiency.

-, eliminated from the calculation due to negative contribution.

that brake linings still remain one of the main emission sources for these metals. Further, brake linings are a source of antimony. In contrast, Pb and Cd emissions have decreased to one tenth compared to 1998. The results also showed that tires still are one of the main sources of Zn and Cd emissions in the city

von Uexküll O, Skerfving S, Doyle R, Braungart M, 2005. Antimony in brake pads—a carcinogenic component? *Journal of Cleaner Production* 13 (2005) 19–31

Abstract Antimony trisulfide (Sb_2S_3) is used as a lubricant in friction material. X-ray diffraction analysis revealed Sb in 3/3 disc brake pads (range 41,000–46,000 mg/kg) and in 2/2 disc brake dust samples (21,000 and 17,000 mg/kg) from trucks. Considerably lower concentrations were found in drum brake pads (3/5, 59–6400 mg/kg) and in drum brake dust (4/18, 78–2800 mg/kg). Other toxic metals were also detected in pads and dust. The health risk of Sb in particulate brake emissions should be dependent on particle size and chemical entity, in particular solubility. A significant amount of the emitted dust was shown by size-fractionated optical particle counting to be inhalable in environmental (>90% mass) and occupational (>50% mass) exposure situations. Differentiation via selective solubility showed a considerable amount of Sb_2S_3 to oxidize during the braking process, likely leading to the formation of Sb_2O_3 , a suspected human carcinogen. Sb in brake dust was soluble in calf serum (8:5 1:2%, 8:9 1:7 mg=l at 37 °C for 3 d). Hence, the use of Sb in friction material should be suspected to pose a human cancer risk and be deterred. To design healthy and environmentally sound alternatives, we propose to apply the Intelligent Product System that distinguishes products of consumption and products of service. Brake pads are true products of consumption, because they are released to biological cycles, and should thus consist of materials with materials with positively defined health and environmental properties.

Table 1
Concentration of toxic metals in brake pads and dust, determined with energy-dispersive X-ray fluorescence analysis (XRF)

Type of brake	Type of sample	Element concentration (mg/kg)													
		Detection limit	Sb	Pb	Cd	Hg	As	Ni	Cr	Mn	Al	Sr	Sn	Cu	
Disc	[A air filter]	21,000	260	8	40	24	400	12,000	2500	17,000	150	2600	61,000		
	[B air filter] ^a	17,000	250	11	20	53	310	6900	2300	20,000	46	230	27,000		
Pads	(Jurid 539-20)	46,000	350	71	3	83	230	26,000	1100	71,000	67	—	18,000		
	(Textar 4700)	41,000	670	55	—	51	180	—	2900	6500	790	850	14,000		
Drum	Iveco EuroCargo (Bendix)	41,000	500	45	16	140	150	—	2500	2800	1100	220	27,000		
	BPW trailer	—	91	—	13	29	220	—	2000	16,000	410	—	1500		
Disc	SAF trailer	—	14	—	31	27	230	670	1800	12,000	210	—	390		
	Volvo FH12	—	170	—	20	54	200	1300	1700	16,000	130	35	5500		
	Volvo FH12	—	32	—	8	45	210	420	2600	8500	240	820	5700		
	Volvo FH12	—	110	—	9	42	160	150	2400	10,000	430	—	6700		
	Volvo FH12	—	38	—	37	26	190	820	2000	9100	110	—	580		
	(1) Volvo FH12	78	81	—	25	36	190	1000	1700	24,000	140	—	520		
	Volvo FL6	—	170	—	15	87	460	1400	2500	28,000	88	150	5400		
	Volvo FL7	—	190	—	16	40	220	400	2700	12,000	210	—	8100		
	(2) Volvo FL10	—	87	—	32	15	950	890	1900	11,000	130	—	530		
	Scania 143	—	150	—	24	—	200	1100	3300	8200	120	—	920		
	(3) Scania R143	—	220	—	15	69	290	1000	2200	9000	130	34	1900		
	Scania 143 (Sv. Bromshol ^c)	—	85	—	28	59	410	970	3800	4300	130	—	700		
	Scania 143 (ROR original)	—	110	—	13	41	270	460	2100	21,000	550	—	980		
	(4) Mercedes 18.24 (Berat)	—	9	—	22	43	240	350	2000	6100	430	47	680		
	(5) Mercedes 18.24 (Jurid 505)	2800	82	—	14	150	530	8300	3100	15,000	58	72	2100		
	Mercedes 11.17 (Textar)	190	61	—	30	56	280	460	1900	9300	490	—	1200		
	MAN 930 (Jurid 505)	1700	52	—	19	12	450	5200	2700	13,000	40	—	700		
	Mean	270	97	—	21	46	320	1400	2400	13,000	230	19	2200		
	Pads	(1) Volvo FH12	59	36	—	4	—	64	290	410	34,000	340	—	49	
		(2) Volvo FL10	93	37	—	11	—	110	370	740	13,000	160	—	120	
(3) Scania R143		—	180	—	9	9	120	180	1900	14,000	390	—	210		
(4) Mercedes 18.24 (Berat)		—	5	—	11	32	110	—	2900	3700	1400	—	300		
(5) Mercedes 18.24 (Jurid 505)		6400	48	—	7	18	130	36,000	990	67,000	77	—	76		
Mean	1300	61	—	8	12	110	7400	1400	26,000	470	—	150			

Italicized drum brake dust samples (1–5) stem from brakes operated with pad of corresponding number. Higher concentrations in the dust than in the pad indicate a contribution from the disc/drum. All brake pads are original truck manufacturer equipment, but they are not produced by the truck manufacturers. Means include samples with concentrations under detection limit, counted as 0.

^a Detection limit adjusted, because comparison with ICP-AES revealed that XRF failed to detect concentrations above its nominal detection limit.

^b Signs in this row indicate analytical accuracy based on the ratios of the concentrations measured with ICP-AES/concentrations measured with XRF, in seven brake dust samples: ++, all seven ratios within the range 3/4–4/3; +, all ratios within the range 3/4 × mean to 4/3 × mean and mean < 0.8, probably because of incomplete dissolution prior to ICP-AES; 0, some concentrations found by XRF are undetected by ICP-AES, probably because of very incomplete dissolution prior to ICP-AES; –, all ratios within the range 0.5 × mean to 2 × mean; —, ratios outside the range 0.5 × mean to 2 × mean; ?, too few data; n.a., not analyzed by ICP-AES.

^c The analytical accuracy for Sb cannot be determined with certainty, because only one of the seven samples also analyzed with ICP-AES contained >50 mg (Sb)/kg. After decomposition with 4 ml HNO₃, 1 ml HCl and 0.5 ml H₂O₂ (4 + 1 + 0.5), ICP-AES found only 290 mg/kg in the A sample. However, after decomposition with 3 + 3 + 0.5, 1 + 5 + 0.5 or 0 + 6 + 0.5, ICP-AES found 16,000 mg/kg, ca. 3/4 of the XRF value, suggesting a good accuracy and likely an incomplete decomposition prior to ICP-AES.

^d Sample contaminated with filter fibers.

^e Svenska Bromsbandsfabriken.