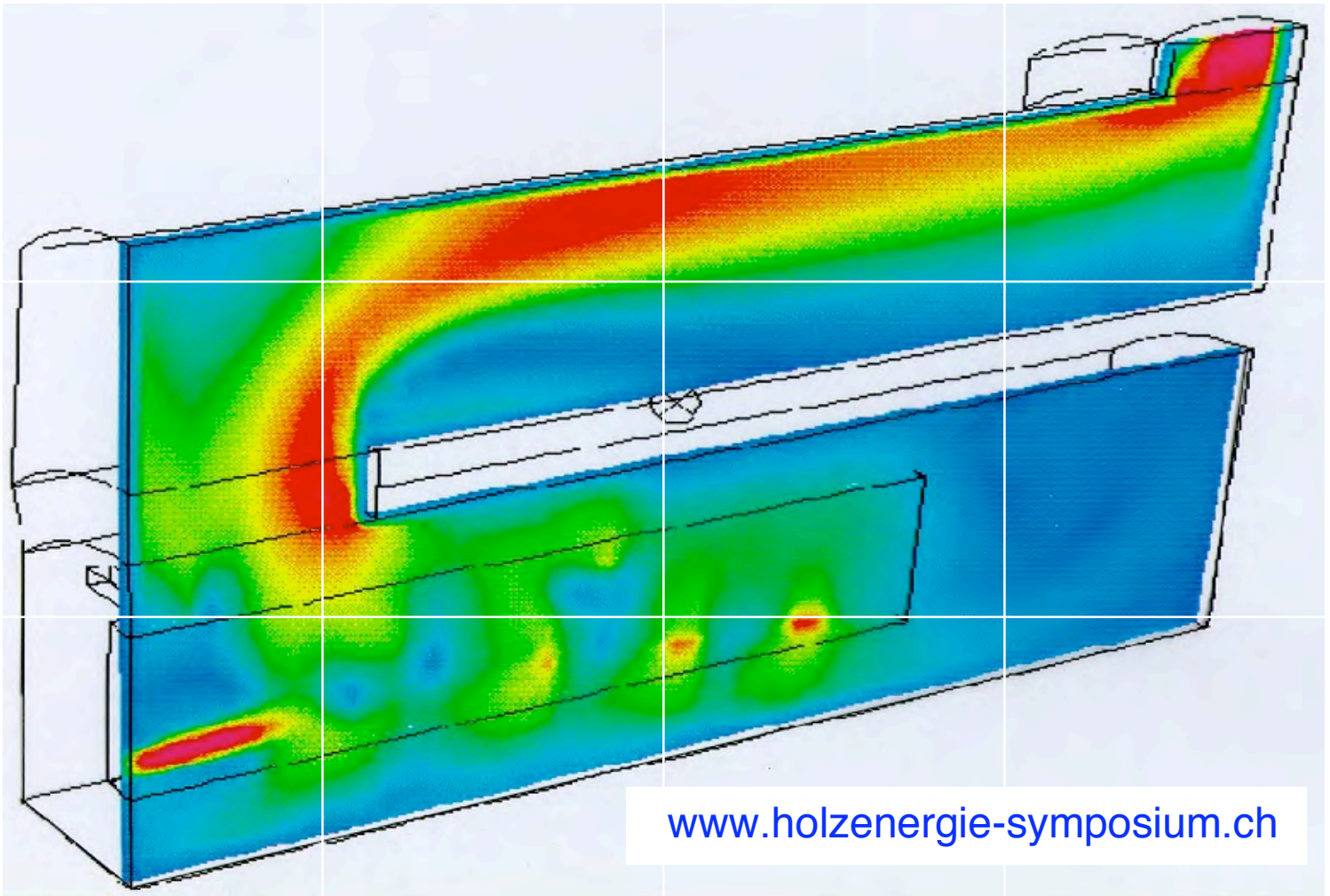


Thomas Nussbaumer (Hrsg.)

10. Holzenergie-Symposium

Ökonomie, Technik und Luftreinhaltung

12. September 2008, ETH Zürich



Thomas Nussbaumer (Hrsg.):

Ökonomie, Technik und Luftreinhaltung. Tagungsband zum 10. Holzenergie-Symposium, 12. September 2008 an der ETH Zürich, Verenum Zürich 2008

ISBN 3-908705-19-3

Bezugsquellen:

Holzenergie-Symposium, c/o TEMAS AG, Egnacherstrasse 69, CH – 9320 Arbon
Telefon 071 446 50 30, Fax 071 446 50 82, Email info@holzenergie-symposium.ch

Verenum, Langmauerstrasse 109, CH – 8006 Zürich, www.verenum.ch

Weitere Informationen: www.holzenergie-symposium.ch

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	4
1 M. Kaufmann: Förderung von Energieeffizienz und erneuerbaren Energien durch den Bund: Aktionspläne, KEV und Klimarappen	7
2 Th. Schmid: Holzenergie-Förderung durch die Stiftung Klimarappen: Möglichkeiten und Beitrag der Holzenergie	17
3 E. Jochem, F. Reitze, L. Riffeser: Nachhaltige Energiesysteme durch Effizienz und erneuerbare Energien	31
4 P. Schmid: Holzkraftwerk Basel: Technik, Wirtschaftlichkeit und Holzversorgung	43
5 M. Schaub, H. Gemperle: 1,2 MWe Holzheizkraftwerk Stans mit Festbettvergasung	53
6 M. Schmid: Holzbefeuertes Blockheizkraftwerk mit Heissluftturbine: Demonstrationsanlage in Rümlang mit 450 kWt und 100 kWe	65
7 G. Friedl, W. Moser, S. Griesmayr: Pelletfeuerungen mit thermoelektrischer Stromerzeugung	77
8 M. Baillifard, Th. Nussbaumer: Strömungsoptimierung von Feuerräumen mittels Experiment und Computational Fluid Dynamics (CFD)	93
9 R. Rapp: Eigenschaften und Gesundheitswirkungen von Feinstaub	115
10 Th. Nussbaumer: Feinstaub-Emissionsfaktoren von Holzheizungen: Übersicht aus Ländern der Internationalen Energie Agentur	129
11 V. Schmatloch: Integrierte und nachgeschaltete Elektroabscheider für Holzöfen	157
12 T. Brzović: Oekotube: Elektroabscheider als Kaminaufsatz für kleine Holzheizungen	171
13 Th. Bleul: Elektroabscheider für Biomasse-Heisanlagen von 0 kW bis 150 kW	181
14 R. Bolliger: Elektroabscheider „Spider“ für Holzfeuerungen bis 70 kW	185
15 M. Scheibler, P. Oberforcher: Metallgewebefilter für automatische Anlagen von 100 kW bis 540 kW	191
16 M. Baumgartner: Abgaskondensation zur Wirkungsgraderhöhung und Feinstaubabscheidung ab 100 kW und Kombination mit Nasselektroabscheidung ab 1 MW	205
17 J. Good, Th. Nussbaumer: Überwachung und Vollzug der LRV für Holzheizungen ab 500 kW mit Feinstaubabscheidern im Kanton Zürich	219
Autorenverzeichnis	257

Feinstaub-Emissionsfaktoren von Holzheizungen: Übersicht aus Ländern der Internationalen Energie Agentur – Bioenergy Combustion Task

Thomas Nussbaumer, Hochschule Luzern, Horw und Verenum, Zürich

Zusammenfassung

Im Auftrag der Internationalen Energie Agentur (IEA) Bioenergy Task 32 „Biomass Combustion and Co-firing“ wurde eine Erhebung über Emissionsfaktoren an Feinstaub aus Biomassefeuerungen durchgeführt. Im Beitrag werden die Resultate vorgestellt. Dabei wird unterschieden zwischen Resultaten bei idealen, typischen und schlechtesten Bedingungen, was mit „best, typical, worst“ ausgewiesen wird. Für handbeschickte Holzöfen weist die Erhebung eine grosse Bandbreite der Emissionsfaktoren in Abhängigkeit der Betriebsweise aus mit Bestwerten von unter 10 mg/MJ und schlechtesten Werten von über 2 000 mg/MJ¹ angegeben als filtrierbarer Feststoff im Kamin. Während für bestehende Holzöfen vor allem eine ideale Betriebsweise in der Praxis umzusetzen ist, ist für Stückholzkessel zusätzlich auf die Kombination mit einem Wärmespeicher zur Vermeidung von Schwachlast zu achten. Für Pelletfeuerungen wird eine engere Bandbreite und ein geringerer Einfluss der Betriebsweise in der Praxis erwartet, weshalb Holzpellets in Bezug auf die Feinstaubemissionen als vorteilhaft beurteilt werden.

Nebst der Emissionsfaktoren der IEA-Studie wird im Beitrag die Bedeutung der einzelnen Emissions- und Immissionsanteile diskutiert. Es wird gezeigt, dass die Feinstaubbelastung in der Umgebungsluft durch Betrachtung lediglich der Feststoffe im Abgas unterschätzt wird, weil in der Atmosphäre durch Kondensation weitere organische Aerosole entstehen, die den primären organischen Aerosolen (POA) zugerechnet werden. Bei Messung der Kondensate oder bei Messung des Feinstaubes im Verdünnungstunnel werden diese Kondensate ganz oder grossteils erfasst. Die resultierende POA-Fracht in der Atmosphäre kann damit allerdings überschätzt werden, da bei der Verdünnung der Abgase in der Umgebung eine Wieder-Verdampfung von POA stattfinden kann. Daneben zeigen neuere Untersuchungen in der Umgebungsluft, dass sekundäre organische Aerosole (SOA) die POA-Fracht mengenmässig übersteigen können und deshalb in Zukunft vermehrt zu beachten sind. Da flüchtige organische Verbindungen (VOC) Vorläufer sowohl der durch Kondensation gebildeten POA als auch der durch chemische Reaktionen gebildeten SOA sind, erscheint eine komplementäre Messung von Feststoff und VOC im Abgas, wie dies ein sinnvoller Ansatz zur Bewertung des Schädigungspotenzials von Abgasen. Bei Bewertung der VOC-Fracht ist dabei zu beachten, dass die resultierende Aerosolmasse nach neueren Untersuchungen zwischen dem rund 1,6- und 2,1-fachen der als Kohlenstoff angegebene Masse betragen kann.

¹ Die Angaben in mg/MJ beziehen sich auf den Energie-Input als Heizwert. Zur Umrechnung auf mg/m³ bei 13 Vol.-% O₂ sind die Zahlen in mg/MJ mit einem Faktor von rund 1,5, zur Umrechnung auf mg/m³ bei 11 Vol.-% O₂ mit rund 1,9 zu multiplizieren [Wagner und Nussbaumer 1994]. Die exakte Umrechnung ist allerdings abhängig von der Holzfeuchtigkeit und -zusammensetzung.

Abstract: Survey on Measurements and Emission Factors from Biomass Combustion in IEA Countries

Since biomass combustion is related to high emissions of particulate matter (PM), the International Energy Agency (IEA) Bioenergy Task 32 is promoting the implementation of technical measures for PM reduction. As a basis to set priorities and as a guideline for future regulations, emission factors from different types of combustion are of interest. The target of the present study is to collect and critically discuss emission factors from residential wood combustion in the IEA member countries. The reported results on emission factors from manual wood combustion devices exhibit huge ranges from less than 10 mg/MJ under ideal conditions up to more than 2 000 mg/MJ under poor conditions. Hence ideal operation is regarded as a major target for the future. Furthermore, the implementation of heat storage tanks is identified as an important need for log wood boilers. Since different PM measurements are applied, the influence of the sampling method, i.e., hot filter probe, quenching, and dilution tunnel, is discussed. Measurements reveal that the mass on solid particles and condensables need to be distinguished. Under poor combustion conditions, the mass of condensables can exceed the mass of solid particles and should be considered to evaluate the impact of wood combustion on the ambient air quality. This is emphasized by results from investigations on organic matter in the ambient air which reveals, that secondary organic aerosols (SOA) play an important role and have been underestimated in earlier studies. Consequently, a complementary measurement of solid particles and volatile organic compounds is regarded as a valuable option to assess the health relevance of flue gases.

1 Einleitung

1.1 Relevanz von Feinstaub und Motivation der IEA

Die Bioenergy Task 32 „Biomass Combustion and Co-Firing“ der Internationalen Energie Agentur (IEA) unterstützt die Nutzung von Biomasse zur Substitution fossiler Energieträger. Die IEA ist bestrebt, effiziente und umweltfreundliche Techniken zu fördern sowie politische und ökonomische Hindernisse zur Biomassenutzung zu verringern. Als ein zentrales Hindernis für eine vermehrte Nutzung der Biomasse-Verbrennung wurden von der IEA die erhöhten Feinstaubemissionen identifiziert. Die Gesundheitsgefährdung durch Feinstaub kleiner 10 Mikrometer bzw. kleiner 2,5 Mikrometer ist anerkannt und PM_{10} oder $PM_{2.5}$ werden deshalb als wichtige Indikatoren für die Luftqualität verwendet (z.B. [Dockery et al. 1993, Donaldson et al. 2002, WHO 2004, WHO 2006, EPA 2007])

Dass die Biomasseverbrennung einen erheblichen Beitrag zum kohlenstoffhaltigen Feinstaub verursacht, zeigen zum Beispiel Untersuchungen in der Schweiz, in denen im Winter in einem Alpental bis zu 80% des Russes in der Umgebungsluft nahe der Autobahn der Holzverbrennung zugeordnet werden konnten [Prévot et al. 2006]. Die grosse Bedeutung der Biomasseverbrennung in Holzheizungen und auch in offenen Feuern geht auch aus anderen Studien hervor. So wurde zum Beispiel in einer aktuellen Erhebung für den Staat New York ausgewiesen, dass Holzheizungen 65% des krebserzeugenden Anteils im Feinstaub (der wiederum 55% des gesamten Feinstaubes ausmacht) verursachen (Bild 1). Im ländlichen

Raum des Staats New York beträgt der Anteil gar 92% [NESCAUM 2008]. Zusammengefasst ist das vorliegende Projekt somit durch folgende Faktoren motiviert:

- Die IEA unterstützt die vermehrte Nutzung von Biomasse als Energieträger
- Holzfeuerungen verursachen relevante Feinstaub-Emissionen und PM₁₀-Immissionen
- Feinstaub (PM₁₀) gilt als wichtigster Schadstoff in der Umgebungsluft.

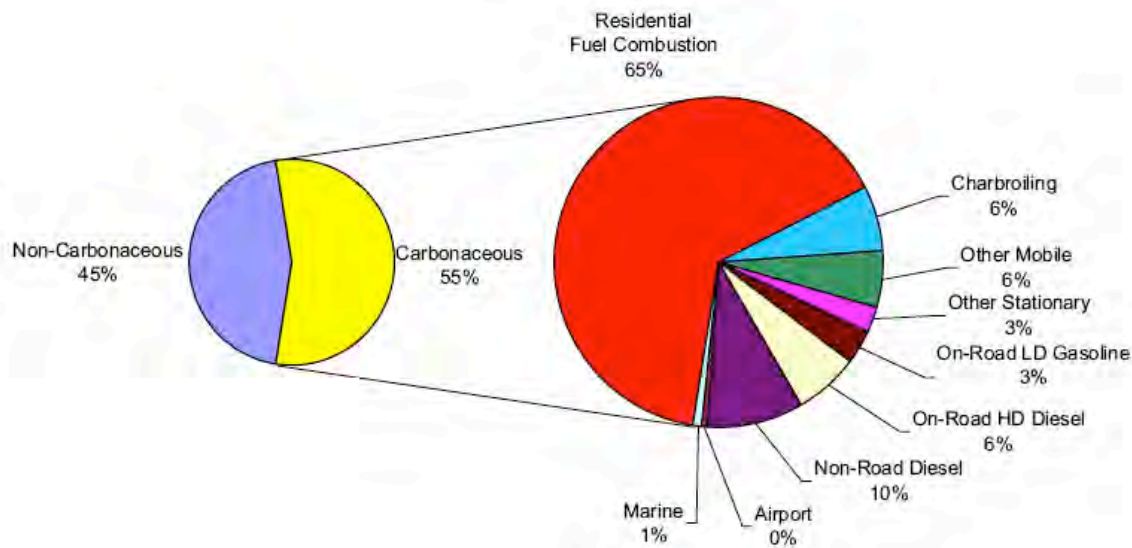


Bild 1 Quellenzuordnung der krebserzeugenden PM_{2,5}-Immissionen im Staat New York [NESCAUM 2008].

Aufgrund dieser Situation hat die IEA vor rund zehn Jahren ein offizielles Statement publiziert, in dem die Notwendigkeit der Feinstaubreduktion anerkannt und als wichtige Herausforderung unterstützt wird². Im Weiteren hat die IEA in den vergangenen Jahren ein Internationales Seminar über Verbrennungsaerosole aus der Biomasseverbrennung ins Leben gerufen

² www.ieabcc.nl → Publications → Statement of Task 32 on Aerosol emissions:

„Need for reduction of aerosol emissions from biomass combustion installations:

Several studies have indicated that the presence of aerosols in the ambient air may contribute to serious effects on human health (including increased mortality, hospitalization for respiratory and heart disease, asthma and lung function). For this reason, governments are tightening limits on aerosol concentrations and immissions.

Solid ash and soot particles, emitted from biomass combustion installations, are important sources of aerosols. This is relevant for all biomass combustion systems (both small and large) that are not equipped with effective filtration devices, such as fabric filters. In many areas where biomass combustion systems without efficient particle separation devices are used, aerosol immission limits are strongly exceeded.

With existing technology, the policy aim to increase the contribution of energy from biomass as a renewable energy source may conflict with the aim to reduce aerosol emissions to acceptable levels. Therefore, mitigation of aerosols that result from biomass combustion deserves increased attention from research organizations, manufacturers of boilers and particle removal technologies as well as policy makers.

IEA Bioenergy Task 32 advises to support research and development on reduction of aerosols. Equipment manufacturers need to be encouraged to develop novel, low cost combustion installations and filtration techniques that result in low particulate emissions also in small-scale applications. Task 32 will be instrumental in market introduction of such systems by providing a platform for information exchange.“

und unterdessen in Zürich, Graz und Helsinki durchgeführt. Eine Zusammenstellung gibt [Nussbaumer & van Loo 2002] Informationen dazu sind bei er IEA als Download verfügbar unter www.ieabcc.nl.

1.2 Zielsetzung

Ziel der vorliegenden Studie ist die Erhebung der Emissionsfaktoren von Holzfeuerungen. Die Daten sollen als Basis dienen, um die Hauptquellen des Feinstaubes sowie die Ursachen für deren hohen Anteil zu identifizieren und um Massnahmen zur Feinstaubreduktion und entsprechende Aktivitäten für die IEA abzuleiten.

1.3 Vorgehen

Zur Erhebung der Emissionsfaktoren wurde ein Fragebogen verfasst, in dem Emissionsfaktoren für verschiedene Feuerungstypen unterschieden wurden. Im Weiteren wurde zwischen Emissionsdaten bei unterschiedlichen Bedingungen unterschieden, wozu drei Kategorien gebildet wurden, nämlich "best", "typical" und "worst", also Emissionsfaktoren unter besten, typischen und schlechtesten Bedingungen. Messungen im Rahmen von Typenprüfungen unter Prüfstandsbedingungen wurden in der Regel als Bestwerte eingestuft.

Zur Mitarbeit an der Studie wurden die IEA-Delegierten aller Mitgliedsstaaten sowie von diesen bezeichnete Institutionen eingeladen. Das Projekt wurde in Zusammenarbeit von Verenum und SP Technical Research Institute of Sweden unter Leitung der Schweiz durchgeführt. Tabelle 1 zeigt eine Übersicht der in der Task 32 beteiligten Länder. Von den ersten sieben Ländern, also Österreich, Dänemark, Deutschland, Holland, Norwegen, Schweden und der Schweiz wurden Daten eingereicht. Zur Kennzeichnung der Daten in den nachfolgenden Grafiken sind die verwendeten Ländercodes angegeben. Ergänzend zu den Fragebögen sowie von weiteren Ländern wurden teilweise Daten aus der Literatur erhoben. Insgesamt haben 17 Institutionen mit Daten zur Studie beigetragen. Die vollständige Studie [Nussbaumer et al. 2007] ist unter www.ieabcc.nl oder www.verenum.ch als Download verfügbar.

Im vorliegenden Beitrag wird im Text zitierte Literatur mit Namen der Autoren gekennzeichnet. In den Bildern wird zudem mit nummerierten Literaturzitaten auf die einzelnen Quellen der verwendeten Daten verwiesen, weshalb im Literaturverzeichnis zwei Arten von Quellenangaben unterschieden werden. Daten, zu denen kein Literaturverweis erfolgt, sind im Rahmen der vorliegenden Erhebung von den beteiligten Institutionen angegeben worden.

Tabelle 1 Mitgliedsstaaten der IEA Bioenergy Task 32 und Ländercodes der sieben Länder, die Daten zur Studie geliefert haben.

Land	Code
Austria	AUS
Denmark	DEN
Germany	GER
The Netherlands	NET
Norway	NOR
Sweden	SWE
Switzerland	SWI
Belgium	
Canada	
Finland	
United Kingdom	

Tabelle 2 Institutionen, die mit Daten zur Studie beigetragen haben.

Land	Institution	Abkürzung
AUS	Biomass Logistics Technology, Wieselburg	BLT
	Bios and Graz University of Technology, Graz	Bios
	Joanneum Research, Graz	Joanneum
	Austrian Tiles Stove Association, Vienna	KOV
DEN	FORCE Technology, Brøndby	Force
GER	Institute for Energy and Environment, Leipzig	IE
	Technologie- und Förderzentrum, Straubing	TFZ
	University of Stuttgart, Inst. of Process Eng. and Power Plant Technol.	Uni Stuttgart
	ZAE Bayern, Garching	ZAE
NET	TNO Science and Industry, Apeldoorn	TNO
NOR	SINTEF NBL, Norwegian Fire Research Laboratory, Trondheim	SINTEF
SWE	SP Technical Research Institute of Sweden, Borås	SP Tech.
	Umeå University, Energy Techn. & Thermal Process Chemistry, Umeå	Umeå Uni
	Växjö University, Dep. of Bioenergy Technology, Växjö	VXU
SWI	Centre of Appropriate Technology and Social Ecology, Langenbruck	CATSE
	Verenum Research, Zürich	Verenum
	Vock Engineering, Maschwanden	Vock

2 Emission und Immission von Feinstaub

2.1 Primäre und sekundäre Aerosole

Ein Abgas weist im Kamin oder im Auspuff einer technischen Anlage üblicherweise Temperaturen zwischen rund 50°C (zum Beispiel aus einer Heizanlage mit Abgaskondensation) und bis zu über 500°C (zum Beispiel aus einem Gasturbinenriebwerk) auf und enthält gasförmige, flüssige und feste Bestandteile. Aus der Anlage als Feststoff oder Tröpfchen emittierte Verbindungen werden als primäre Aerosole bezeichnet. Im Weiteren können in der Atmosphäre durch *chemische* Reaktionen sekundäre Aerosole aus gasförmig emittierten Verbindungen gebildet werden³.

Je nach Zusammensetzung und -temperatur enthält das Abgas auch Verbindungen, die im Kamin aufgrund der dort herrschenden Temperatur und Konzentration ganz oder teilweise dampfförmig vorliegen und anschliessend in der Atmosphäre durch *physikalische* Prozesse wie Kondensation und Adsorption an bereits existierenden Feststoffen und Tröpfchen zur Aerosolfracht beitragen. Diese Verbindungsklasse wird in der grundlegenden Definition, wie von [Hinds 1999] in Fussnote 3 zitiert, nicht beschrieben. Da diese Stoffe im Abgas bereits enthalten sind und der Quelle eindeutig zugeordnet werden können, werden sie den primären Aerosolen zugerechnet⁴. Der organische Anteil am Feinstaub in der Umgebungsluft kann somit aufgrund der Bildungsmechanismen gemäss Bild 2 unterteilt werden.

Sekundäre Aerosole umfassen somit nur neu gebildete Verbindungen, nicht jedoch solche, die lediglich infolge der Phasenänderung als Aerosole in Erscheinung treten (z.B. [Kanakidou et al. 2005, Tsigaridis & Kanakidou 2003 und 2007]). Dies deckt sich weitgehend mit einer Betrachtung aus der Atmosphäre, da die Phasenänderung durch Kondensation und Abkühlung grossteils bereits kurz nach dem Austreten des Abgases in die Umgebungsluft erfolgt, wie dies etwa bei der Bildung von "Blue haze" aus der Abluft eines Spänetrockners beobachtet werden kann. Daneben ist zu beachten, dass durch Kondensation in der Umgebung auch Wasserdampf als primäres Aerosol entstehen und mengenmässig dominieren kann. Wasserdampf ist aber wegen seiner Unschädlichkeit bei Schadstoffbetrachtungen nicht zu berücksichtigen.

³ z.B. [Hinds 1999]: "A primary aerosol has particles that are introduced directly into the atmosphere, whereas a secondary aerosol has particles that are formed in the atmosphere by chemical reactions of gaseous components (gas-to-particle conversion)." Durch Phasenänderung gebildete Aerosole werden zwar nicht erwähnt, jedoch bei den sekundären Aerosolen ausgeschlossen.

⁴ z.B. [Kanakidou et al. 2005]: "Thus, in its common usage, SOA refers to that organic component of particulate matter that transfers to the aerosol phase from the gas phase as products of gas-phase oxidation of parent organic species. Other classes of aerosol organic compounds exist that do not fit neatly into these two categories. One class is organic compounds emitted into the atmosphere in vapor form, which subsequently condense into the aerosol phase without undergoing gas-phase chemistry. Since these compounds can be identified with a particular source, it seems most appropriate that they fall into the POA category. Another class of compounds are gasphase organic species that are absorbed into cloud droplets and subsequently end up in the aerosol phase when the cloud droplets evaporate and leave residual aerosol. Again, **the distinction can be drawn as to whether the compound was emitted directly by a source or resulted from chemical processing in the atmosphere**, in terms of its categorization as POA or SOA, respectively." (Hervorhebung durch den Autor des vorliegenden Beitrags).

sichtigen, weshalb bei Emissionsmessungen der Wasserghalt abgetrennt oder separat erfasst werden muss.

Für die Beurteilung der schliesslich aus einer Quelle zu erwartenden Feinstaubkonzentration in der Umgebungsluft ist zu beachten, dass aufgrund der in der Atmosphäre weiter erfolgenden Verdünnung und Abnahme des Partialdrucks der im Abgas enthaltenen Verbindungen auch wieder eine Verdampfung erfolgen kann, die wiederum zu einer Abnahme der Aerosolmasse führt. Die Masse an primären organischen Aerosolen (POA) weist deshalb ein ausgeprägtes Maximum bei einer spezifischen Verdünnungsrate. [Robinson 2007a] beschreibt dieses Maximum von POA beispielhaft anhand von Bild 3 (weitere Angaben auch in [Robinson et al. 2007b] [Shrivastava et al. 2006]).

Messungen von [Lipsky & Robinson 2006] führen wie in Bild 4 gezeigt aus, dass das Verhalten der POA als Funktion der Verdünnung von den spezifischen Eigenschaften des Abgases abhängig ist und weisen für „Holzrauch“ ein ausgeprägtes Maximum aus. Es gibt Hinweise (unter anderem der in Kapitel 3.2 beschriebene Vergleich), dass Messungen in einem Verdünnungstunnel (Dilution Tunnel, DT) in etwa den Maximalwert an primärer Aerosolmasse erfassen.

Dem Prozess der Abdampfung in der Atmosphäre ist die Bildung sekundärer Aerosole durch chemische Reaktionen überlagert, welche eine Massenzunahme bewirkt, so dass als resultierender Gesamtwert in der Umgebungsluft die Summe von Abnahme und Zunahme erfasst wird und sich dabei Vorläufersubstanzen aus verschiedenen Quellen überlagern.

Organischer Anteil in PM ₁₀	
Primäre organische Aerosole POA	Sekundäre organische Aerosole SOA
Im Kamin als Partikel oder Tropfen (also in fester oder flüssiger Form) vorhandene organische Verbindungen	Durch chemische Reaktionen (Oxidation ¹ mit O ₃ , NO _x , OH* sowie Polymerisation ²) aus gasförmigen organischen Verbindungen (VOC) gebildete Aerosole
In der Umgebungsluft durch physikalische Prozesse (Kondensation und Adsorption) ¹ aus gasförmigen organischen Verbindungen (VOC) gebildete Aerosole (Funktion von T und p, bzw. c_i)	

Bild 2 Unterscheidung von POA und SOA.

¹ z.B. [Seinfeld & Pankow 2003]

² z.B. [Baltensperger et al. 2005] bzw. [Kalberer et al. 2004] beschreiben Oligomerisation, also Polymerisation bis einem Polymerisationsgrad von m/z (Daltonzahl) = 1000.

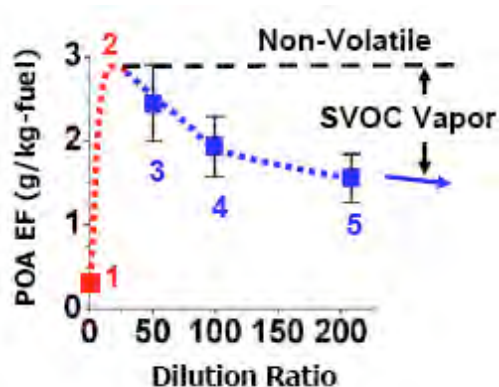


Bild 3 Emissionsfaktor für (POA) als Funktion des Verdünnungsverhältnisses [Robinson 2007].
 1: Messung im unverdünnten Abgas (Auspuff oder Kamin).
 2: Messung im mit Umgebungsluft verdünnten Abgas mit Verdünnungsverhältnis um 20.
 3, 4, 5: Messung mit weiter zunehmender Verdünnung des Abgases.

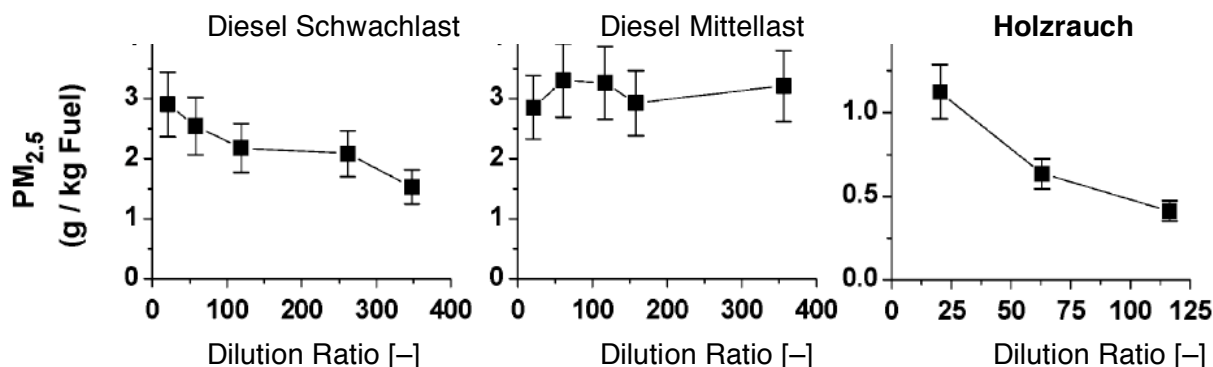


Bild 4 Emissionsfaktor für $PM_{2.5}$ als Funktion des Verdünnungsverhältnisses für Diesel bei Schwach- und Mitellast sowie für Holzrauch nach [Lipsky & Robinson 2006]. Holzrauch zeigt eine ausgeprägte Abhängigkeit vom Verdünnungsverhältnis.

Für das Abgas aus der unvollständigen Verbrennung von Holz kann damit das qualitative Verhalten der relativen Feinstaubkonzentration in Funktion der Verdünnung gemäss Bild 5 abgeleitet werden. Nebst dem Verlauf von POA und SOA ist dabei der Gehalt an flüchtigen organischen Verbindungen (VOC) dargestellt. $VOC_{t=0}$ bezeichnet dabei die Messung an VOC im heissen Abgas. Der Eintrag an VOC in die Umgebung wird um die zu Aerosolen umgewandelten oder durch Oxidation abgebauten Verbindungen verringert.

Da VOC als Vorläufer für organische Aerosole erfasst werden können, wird die komplementäre Messung von Feststoff und VOC unter identischen Bedingungen im heissen Abgas als sinnvolle Variante zur Erfassung des Schädigungspotenzials eines Abgases bewertet. Damit kann einerseits das Potenzial an insgesamt resultierenden Aerosolen und andererseits die potenzielle Belastung mit gasförmigen organischen Verbindungen erfasst wird. Da sich die VOC-Fracht aus zahlreichen Einzelverbindungen zusammensetzt, kann eine Unterscheidung verschiedener Verbindungen oder Verbindungsklassen nützlich sein. In erster Linie bietet sich dazu die Aufteilung in Methan und Nicht-Methan-VOC (NMVOC) an, da Methan einen relevanten Anteil ausmachen kann, jedoch nicht zur Masse an Kondensat beiträgt.

Die Bildung sekundärer organischer Aerosole (SOA) basiert vorwiegend auf fotochemisch induzierter Oxidation und Polymerisation. So wurden von [Kalberer et al. 2004 bzw. Baltens-

perger et al. 2005] in Experimenten in einer Smog chamber Polymere bis zu einer Grösse von 1000 Dalton (atomare Masseneinheit) nachgewiesen. Aufgrund der Aufnahme von Sauerstoff, Stickstoff und weiteren Elementen übersteigt die resultierende Aerosolmasse die Masse an Kohlenstoff, die zum Beispiel in der Luftreinhalte-Verordnung (LRV) als Basis für die Angabe flüchtiger organischer Verbindungen verwendet wird, erheblich. Als Umrechnungsfaktor zur Bestimmung der organischen Aerosolfracht aus der Kohlenstoffmasse wurde früher meist mit einem Faktor 1,2 bis 1,4 gerechnet. Neuere Untersuchungen zeigen, dass die Aerosolmasse durch dadurch unterschätzt wird und für städtische Aerosole mit einem Faktor $1,6 \pm 0,2$ sowie für nicht-städtische Aerosole mit einem Faktor $2,1 \pm 0,2$ zu rechnen ist [Turpin & Lim 2001]. Um in Zukunft Massnahmen zur Minderung der Feinstaubbelastung in der Umgebungsluft möglichst zielgerichtet und effizient zu planen, wird die Verbesserung der Datenbasis für die Quellenzuordnung als prioritär eingestuft⁵.

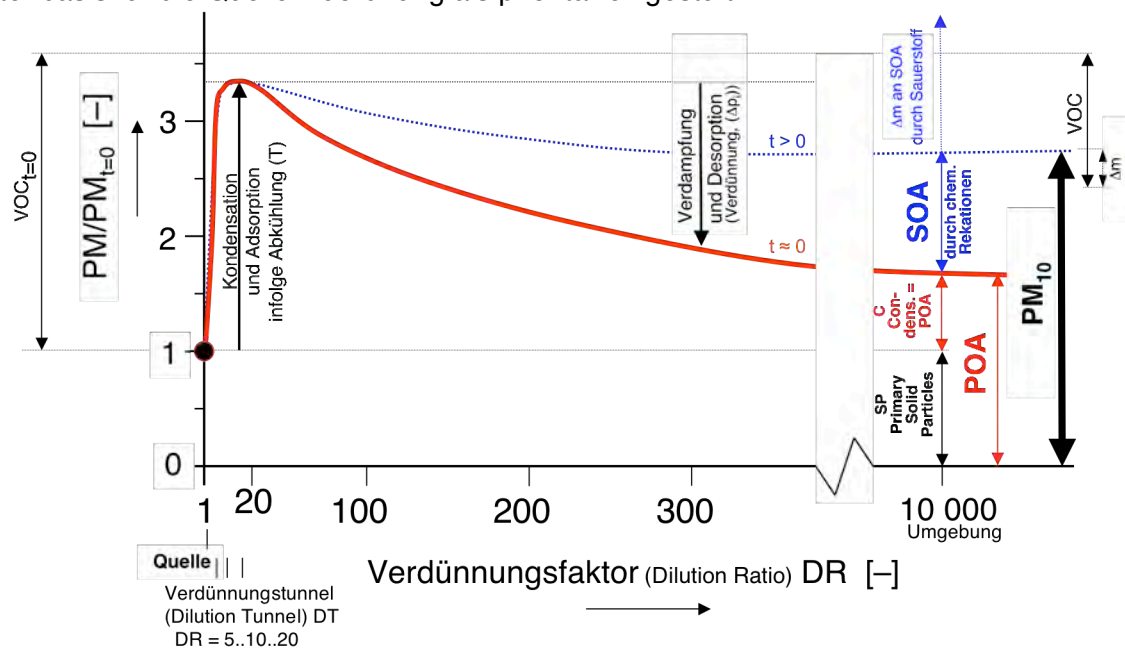


Bild 5 Relative Massenkonzentration an Feinstaub $PM/PM_{t=0}$ in Funktion der Verdünnung. Die Grafik zeigt das qualitative Verhalten, wie es für das Abgas aus einer unvollständigen Holzverbrennung vermutet wird. $PM_{t=0}$ = im heissen Abgas im Kamin als Feststoff erfasster Feinstaubgehalt. Der Gehalt an Kondensat C steigt durch die Verdünnung und dadurch verursachte Abkühlung zuerst stark an und sinkt dann wegen Abdampfung infolge Partialdruckabsenkung wieder ab.

⁵ Das NARSTO Emission Inventory Assessment Team fordert als zur Verbesserung der Basis für Emissionsinventare in erster Priorität Informationen zu folgenden Faktoren [NARSTO 2005]:

- Size-aggregated, speciated emissions of fine particles and their precursors, including black and organic carbon emissions.
- Speciated, spatially and temporally resolved organic emissions from biogenic sources.
- Emissions from open biomass burning, including agricultural and forest prescribed burning, wildfires, and residential backyard burning.
- Residential wood combustion in woodstoves and fireplaces.

2.2 Messung von primären und sekundären Aerosolen

Unter Verwendung der in Kapitel 2.1 eingeführten Definitionen können die Möglichkeiten zur Messung primärer und sekundärer Aerosole nach Bild 6 unterschieden werden.

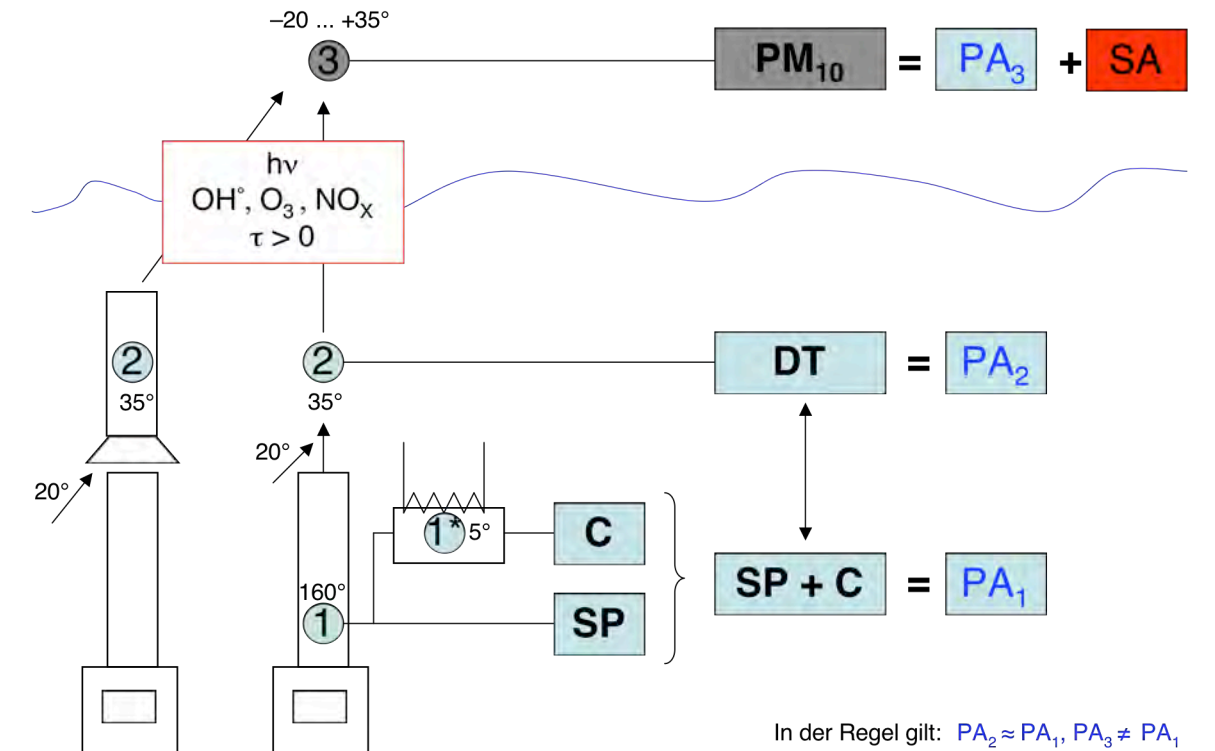


Bild 6 Messung von Emissionen und Immissionen.

- 1 Messung der Feststoffe (Solid Particles, SP) im Kamin, z.B. auf Filter bei 160°
- 1* Messung von Kondensat (Condensables, C), z.B. in Waschflasche bei 5°C
- 2 Messung im mit Umgebungsluft verdünnten Abgas, z.B. bei < 35°C
vergleichbar mit dem Zustand kurz nach Einmischung in die Atmosphäre
- 3 Messung der Immission im stark verdünnten Abgas.

Die gravimetrische Staubmessung mit Probenahme auf einem heißen Filter z.B. bei 160°C nach VDI 2066 oder bei 120°C nach EPA method 5 erfasst die Feststoffe im Kamin. Diese werden im Weiteren auch als "Solid Particles" (SP) bezeichnet.

Die durch Phasenänderung nach dem Austritt aus dem Kamin gebildeten Aerosole können durch Kondensation in Waschflaschen bei rund 5°C erfasst werden und werden im Beitrag als "Condensables" (C) bezeichnet. SP und C ergeben zusammen die primären Aerosole. Es ist somit zu beachten, dass die Messung von filterbaren Feststoffen nicht den primären Aerosolen entspricht, sondern nur einen Teil davon erfasst.

Durch Abkühlung infolge Vermischung mit kalter Umgebungsluft erfolgt eine rasche Kondensation der kondensierbaren Verbindungen nach Eintritt des Abgases in die Umgebungsluft. Ein vergleichbarer Zustand wird im Verdünnungstunnel erreicht, in dem das Abgas zum Beispiel durch Verdünnung auf 35°C abgekühlt wird. Eine Messung des Gesamtstaubs im Verdünnungstunnel ergibt somit einen Summenwert an Feststoff und kondensierbaren Verbindungen, der im Beitrag als "Dilution Tunnel" (DT) bezeichnet wird. Dieser Wert ist vergleichbar mit der Summe von SP und C und entspricht somit den primären Aerosolen.

Nach der Vermischung in der Atmosphäre und einer relevanten Verweilzeit bei Anwesenheit von Sonnenlicht (in der Regel 1 h bis 2 Tage) ist die Bildung von fotochemischen Aerosolen weitgehend abgeschlossen. Gleichzeitig kann durch die weitere Verdünnung des Abgases ein Teil der Kondensate wieder verdampfen. Daraus resultiert schliesslich die Summe an PM_{10} , die sich aus primären und sekundären Aerosolen zusammensetzt. Dabei ist zu beachten, dass der Wert an PA in der Umgebungsluft wegen der Verdampfungsverluste von dem im Verdünnungstunnel oder im Kamin ermittelten Wert an PA abweichen kann. Die als PM_{10} als Summe von POA und SOA resultierende Gesamtkonzentration kann deshalb kleiner oder grösser sein als der an der Quelle ermittelte Gehalt an PA. Die Standardmessung von PM_{10} bildet zudem die Feinstaubkonzentration bei der effektiven Umgebungslufttemperatur ab, was die Messung wegen des grossen Temperaturbereichs von deutlich unter $0^{\circ}C$ bis deutlich über $0^{\circ}C$ beeinflusst.

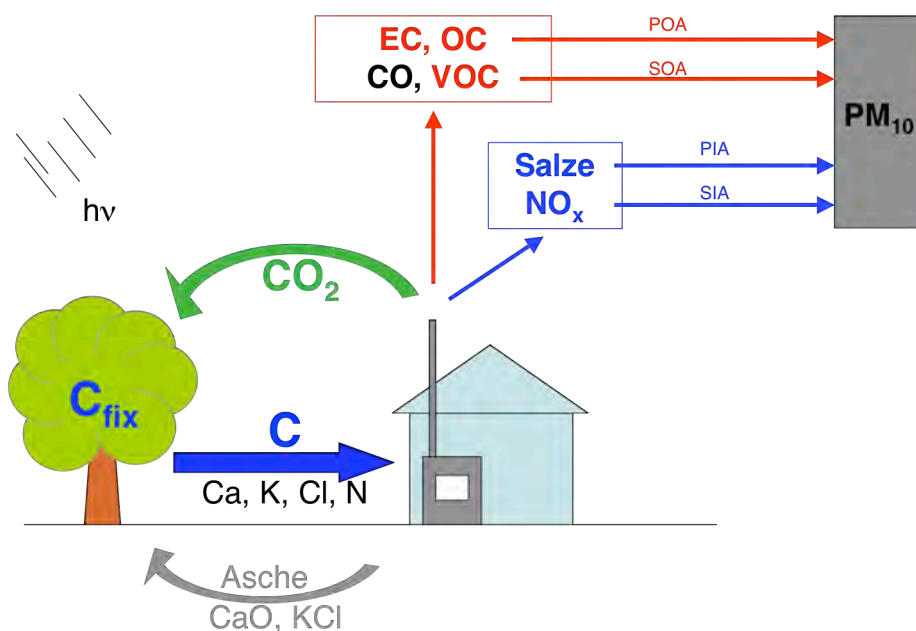


Bild 7 Arten von Feinstaub PM_{10} am Beispiel einer Holzheizung:
 EC Elemental Carbon (Russ)
 OC Organic Carbon (hier in Form von Aerosol)
 VOC Volatile Organic Carbon (flüchtige organische Verbindungen)
 POA Primary Organic Aerosols (primäre organische Aerosole)
 SOA Secondary Organic Aerosols (sekundäre organische Aerosole)
 PIA Primary Inorganic Aerosols (primäre anorganische Aerosole)
 SIA Secondary Inorganic Aerosols (sekundäre anorganische Aerosole).

2.3 Feinstaub aus der Holzverbrennung

Feinstaub in der Umgebungsluft gilt grundsätzlich als gesundheitsschädlich zu betrachten. Obwohl wegen der grossen Komplexität keine quantitative Bewertung der Schädlichkeit unterschiedlicher Arten von Feinstaub möglich ist, ist organischer Feinstaub als besonders relevant einzustufen. Beim anorganischen Anteil an Feinstaub ist zu unterscheiden zwischen schwermetallhaltigen Stäuben, beispielsweise aus der Verbrennung von Abfall oder kontaminiertem Holz, die ebenfalls ein sehr hohes Gefährdungspotenzial aufweisen, sowie schwermetallfreien Stäuben. Letztere betreffen zum Beispiel aus unbelastetem Holz freigesetzte

mineralische Ascheverbindungen, die zu Feinstaub aus Salzen wie KCl und CaCO₃ führen und eine weit geringere Toxizität aufweisen [Klippel & Nussbaumer 2007].

Um die unterschiedliche Herkunft und Bedeutung der Aerosole zu berücksichtigen, werden organische und anorganische Substanzen unterschieden. Zusammen mit der Einteilung in primäre und sekundäre Aerosole setzt sich der Feinstaub in der Umgebungsluft somit aus vier Klassen zusammen, nämlich POA und SOA sowie PIA und SIA. Bild 7 zeigt die wichtigsten Schadstoffemissionen aus einer Holzfeuerung und deren Transfer zu PM₁₀ in der Umgebungsluft.

2.4 Konsequenzen für PM₁₀ aus der Holzverbrennung

Bei Unterscheidung von POA und SOA sowie OA und IA können für die Emissionen und Immissionen aus Holzfeuerungen zusammenfassend folgende Grundsätze abgeleitet werden:

- Der organische Feinstaub, also POA und SOA, kann durch eine vollständige Verbrennung vermieden werden, der anorganische Feinstaub dagegen nicht, sondern es ist vielmehr ist eine gegenläufige Tendenz zwischen OA und IA zu erwarten: Mit zunehmender Temperatur sinkt der Anteil organischer Verbindungen im Abgas und gleichzeitig auch die Tendenz zur Verdampfung anorganischer Verbindungen und in der Folge die Emissionen an anorganischem Feinstaub.
- Eine Messung des Feinstaubes im Kamin erfasst lediglich den Feststoff als Teil der primären Aerosole. Durch eine anschliessende Probenahme im gekühlten Abgas können die kondensierbaren Verbindungen separat erfasst werden, was zusammen die Masse an primären Aerosolen (PA) ergibt.
- Die Masse an SOA kann deutlich grösser sein die Masse der organischen Vorläufer-substanzen (also der als flüchtige organische Verbindungen (VOC) im Abgas enthaltenen Stoffe), da die Masse durch andere Substanzen wie Sauerstoff und Stickstoff erhöht wird. Für die Masse an SOA ist im Mittel mit dem 1,6- bis 2,1-fachen der als Kohlenstoff angegebenen Masse (wie für gasförmige organische Verbindungen gemäss Luftreinhalte-Verordnung ausgewiesen) zu rechnen [Turpin & Lim 2001].
- Eine Messung in mit kalter Luft verdünntem Abgas wie zum Beispiel im Verdünnungstunnel erfasst die primären Aerosole und zumindest einen Teil der durch Kondensation gebildeten sekundären Aerosole. Wie nachfolgend gezeigt, werden die Kondensate unter typischen Verhältnissen im Verdünnungstunnel wahrscheinlich nahezu quantitativ erfasst.
- Die Immission an PM₁₀ setzt sich aus PA und SA zusammen. Die in der Atmosphäre erfasste Menge an PA kann allerdings drastisch von der an der Quelle ermittelten Menge an PA abweichen, da durch die Verdünnung und die dadurch verursachte Abnahme des Partialdrucks der zuvor kondensierten Verbindungen in der Atmosphäre wieder eine Verdampfung auftreten kann, die eine relevante Abnahme der Aerosolmasse bewirken kann.

Wegen der Umwandlungsprozesse in der Atmosphäre ist eine exakte Abschätzung der zu erwartenden Immissionen aufgrund von Emissionsmessungen anspruchsvoll. Neuere Untersuchungen in der Umgebungsluft sowie Arbeiten zur Alterung von Schadstoffen und zur Bildung sekundärer Schadstoffe in einer Smog chamber zeigen, dass die sekundären organi-

schen Aerosole bisher unterschätzt wurden. So zeigten zum Beispiel Messungen mit Tracer-Methoden in Atlanta (USA), dass SOA im Mittel zu rund 46% zur organischen Masse im Feinstaub angegeben als $PM_{2.5}$ beitrug, der SOA-Beitrag jedoch in Stundenwerten bis zu 88% ausmachte [Lim & Turpin 2002].

Für den Beitrag der Holzfeuerungen ist davon auszugehen, dass einerseits die zu erwartende PM_{10} -Immission wegen relevanter Mengen an SOA unterschätzt wird. Daneben ist zu beachten, dass die Mengen an POA aufgrund einer alleinigen Messung des Feststoffs unterschätzt, mit einer Messung der Kondensate oder im Verdünnungstunnel jedoch überschätzt werden.

3 Vergleich verschiedener Messmethoden

3.1 Basis: Vergleich der Messmethoden in Abgas und Umgebung

Auf Basis der vorgenannten Beschreibungen zeigt Bild 8 die bei Messungen im Abgas sowie in der Umgebungsluft zu erwartenden Anteile an primären und sekundären Aerosolen.

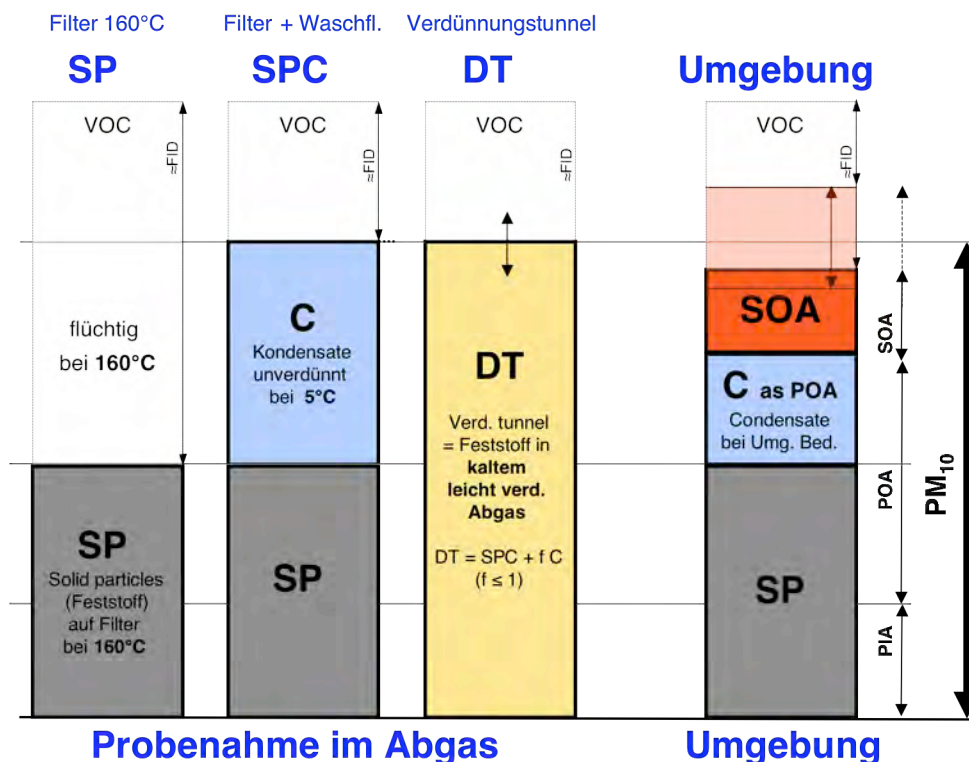


Bild 8 Gegenüberstellung von Messungen der Emissionen und der Immission an Feinstaub.

3.2 Resultate: Vergleichsmessungen in Kamin und Verdünnungstunnel

Um die Bedeutung der kondensierbaren organischen Verbindungen zu beurteilen, wurden im Rahmen eines Forschungsprojekts in der Schweiz Messungen an Holzöfen durchgeführt, bei denen nebst der Staubmessung im Kamin eine Kondensatbestimmung in Waschflaschen erfolgte. Gleichzeitig wurden in Schweden Messungen an Holzöfen durchgeführt, bei denen gleichzeitig eine Probenahme im Kamin und im nachgeschalteten Verdünnungstunnel er-

folgte. Die Messungen aus der Schweiz erlauben eine separate Identifikation von Feststoff (SP) und Kondensat (C), während die Messungen aus Schweden den direkten Vergleich zwischen unverdünntem und verdünntem Abgas ermöglichen, also Werte für SP und DT liefern. Die Messung im Verdünnungstunnel erfolgte gemäss der norwegischen Norm NS 3058-2 bei einer Temperatur $< 35^{\circ}\text{C}$. Dazu erfolgte eine Verdünnung mit Raumluft in der Grössenordnung von einer Zehnerpotenz. Bild 9 zeigt die Resultate angegeben als Emissionsfaktoren, während in Bild 10 das relative Verhältnis zwischen Gesamtkonzentration an primären Aerosolen und Feststoff im Kamin ausgewiesen ist.

Eine Messung bei sehr guten Ausbrandbedingungen in einem Prototyp-Holzofen mit zweistufiger Verbrennung lieferte eine kaum nachweisbare Kondensatmenge mit einem Faktor SPC/SP nur geringfügig über 1 (d.h. ≤ 1.1). In allen anderen Fällen verursachen die Kondensate den Hauptteil der primären Aerosole. So weisen die Messungen im Verdünnungstunnel ein Verhältnis DT/SP von 2,5 bis knapp 10 auf, die Messungen mit separater Kondensatbestimmung von SPC/SP zwischen 3 und 6 (Bild 10). Dies unterstreicht die Relevanz der kondensierbaren Verbindungen. Im Weiteren zeigt der Vergleich der zwei Messmethoden, dass im Verdünnungstunnel und mittels separater Erfassung der Kondensate eine ähnliche Tendenz erkennbar wird, wie dies aufgrund der oben ausgeführten Grundlagen zu erwarten ist. Bei den Messungen im Verdünnungstunnel konnte zudem gezeigt werden, dass der Anteil an Kondensat mit zunehmendem CO-Gehalt im Abgas tendenziell zunimmt (Bild 11) [Johansson et al. 2008], was aufgrund der Herkunft aus unvollständiger Verbrennung ebenfalls zu erwarten ist und früher beschriebene Korrelationen zwischen Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffen bestätigt [Nussbaumer 1989 und 2003].

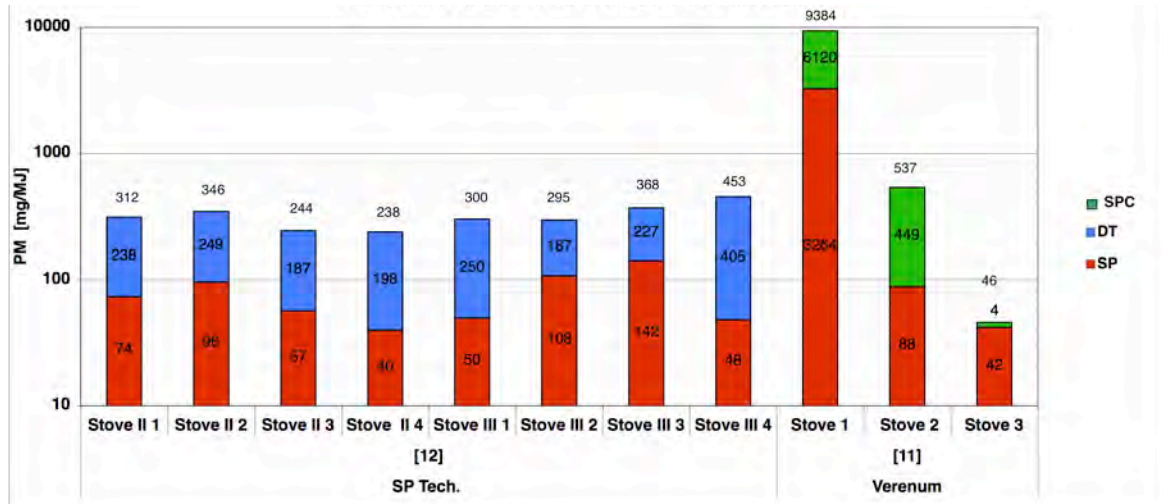


Bild 9 Vergleich der Emissionsfaktoren von PM angegeben als Feststoff im Kamin (SP), im Verdünnungstunnel (DT) und als Summe von Feststoff und Kondensat (SPC) bei Messungen an Holzöfen in der Schweiz (Verenum, [11] und in Schweden [12]).

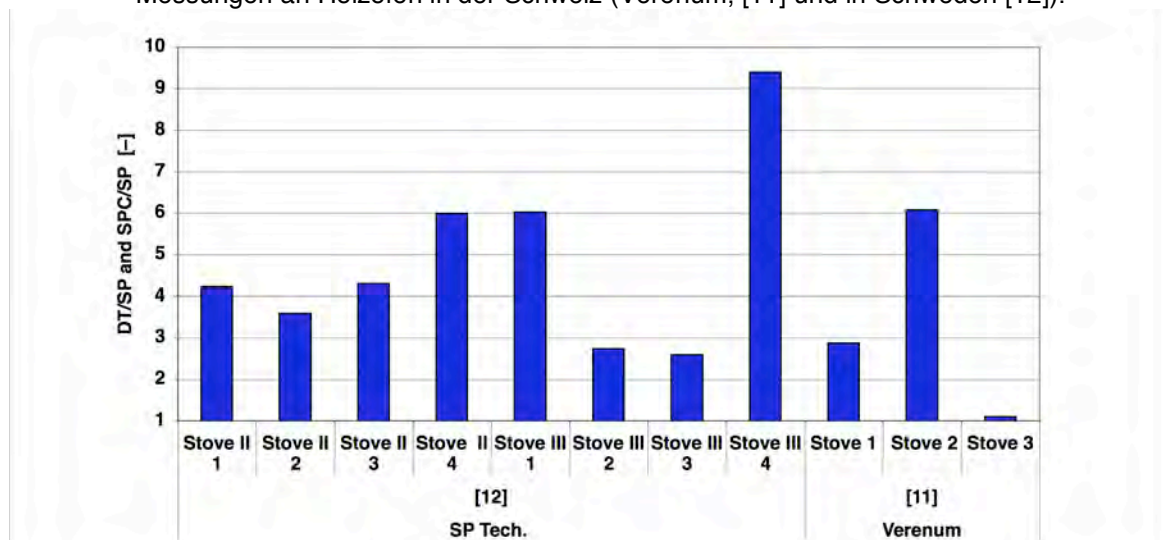


Bild 10 Verhältnis DT/SP und SPC/SP gemäss Bild 9.

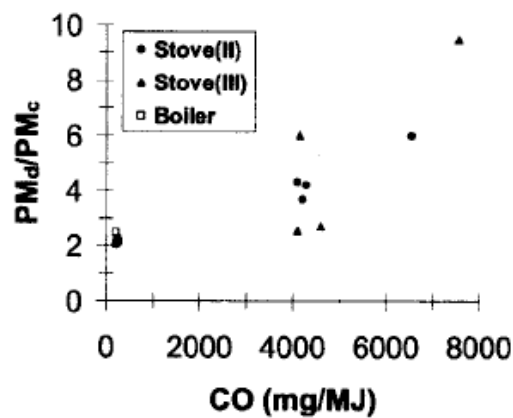


Bild 11 Relativer Feinstaubgehalt (Verhältnis PM_d/PM_c) in Funktion des CO-Gehalts im Abgas. PM_d = Messwert im Verdünnungstunnel (d = diluted), PM_c = Messwert im Kamin (C = Chimney). Nach [Johansson et al. 2008].

4 Resultate zu Emissionsfaktoren

4.1 Offene Feuerstellen

Bild 12 zeigt Emissionsfaktoren an Feststoffen SP zwischen 23 und 265 mg/MJ. Nationale Emissionsfaktoren variieren zwischen 160 (GER) und 447 mg/MJ (UKM). Die Angaben zu Finnland und Norwegen von 860 mg/MJ und 910 mg/MJ beziehen sich auf Werte im Verdünnungstunnel (DT).

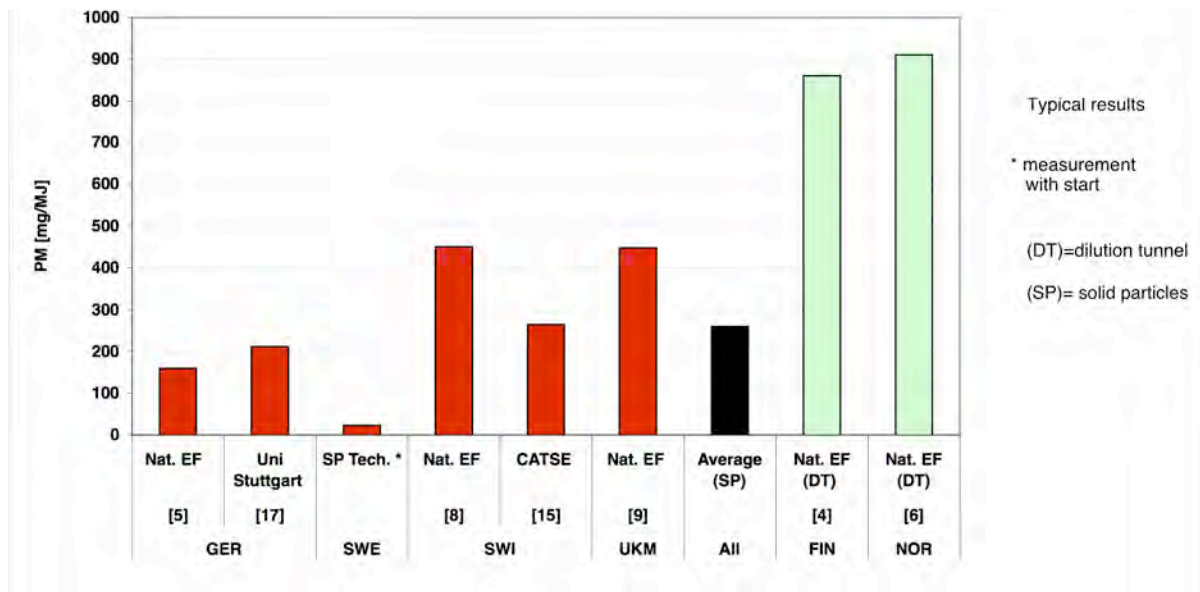


Bild 12 Emissionsfaktoren von offenen Feuerstellen angegeben als SP (rot) und DT (grün).

4.2 Geschlossene Feuerstellen

Für geschlossene Feuerstellen (Closed inset appliances gemäss EN 13229:2001) sind nur einzelne Daten verfügbar (Bild 13) mit schlechtesten Werten zwischen 180 – 204 mg/MJ, typischen Werten zwischen 47 – 83 mg/MJ und Bestwerten von 14 – 26 mg/MJ.

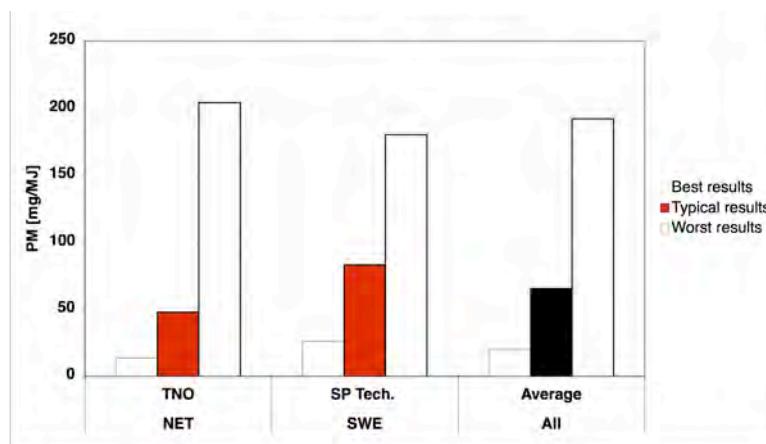


Bild 13 Emissionsfaktoren für geschlossene Feuerstellen angegeben als SP (rot) und DT (grün).

4.3 Holzöfen

Zu konventionellen Holzöfen mit Naturzug konnte die breiteste Datenbasis erhoben werden. Typische Messungen der Feststoffe mit Startphase variieren von 64 bis 87 mg/MJ (Bild 14). Für Messungen mit Kondensat oder im Verdünnungstunnel werden dagegen signifikant höhere Werte zwischen 340 und 544 mg/MJ ausgewiesen (Bild 15).

Bild 16 zeigt die grosse Bandbreite der nationalen Emissionsfaktoren. Diese Daten spielen eine wichtige Rolle für das Reporting nationaler Treibhausgasemissionen unter der United Nations Framework Convention on Climate Change. Sie variieren von 94 mg/MJ (GER) zu 650 mg/MJ (SWE) bzw. von 750 mg/MJ (FIN) bis 1932 mg/MJ (NOR) in Ländern mit Normen nach Verdünnungstunnel. In Finnland ist derzeit noch der alte Wert von 400 mg/MJ gültig, der aber nach oben korrigiert werden soll. Der besonders hohe Wert für Norwegen ist darauf zurückzuführen, dass er auch auf Messungen mit gedrosselter Leistung (also geschlossener Luftklappe) basiert, da diese Betriebsweise als Teil des typischen Betriebsablaufs angenommen wird.

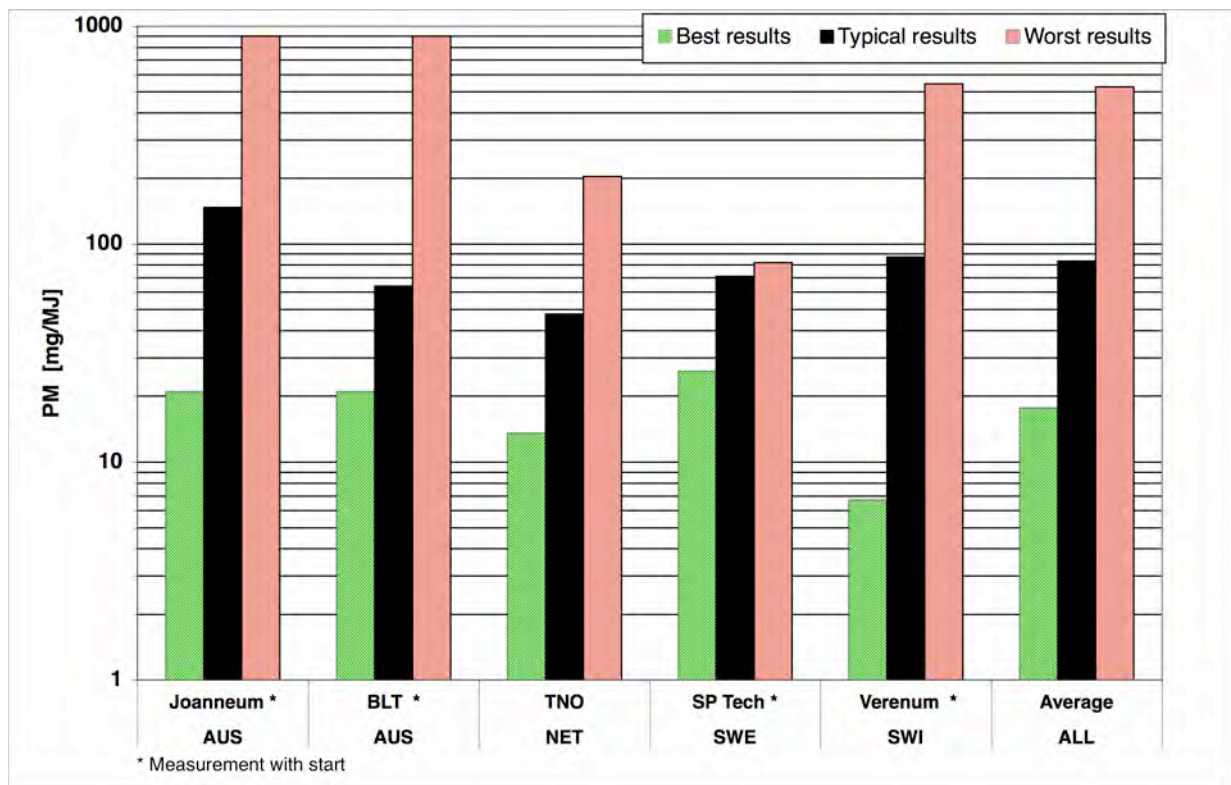


Bild 14 Bereich der Emissionsfaktoren von Holzöfen in Abhängigkeit der Betriebsweise angegeben als Feststoffe SP.

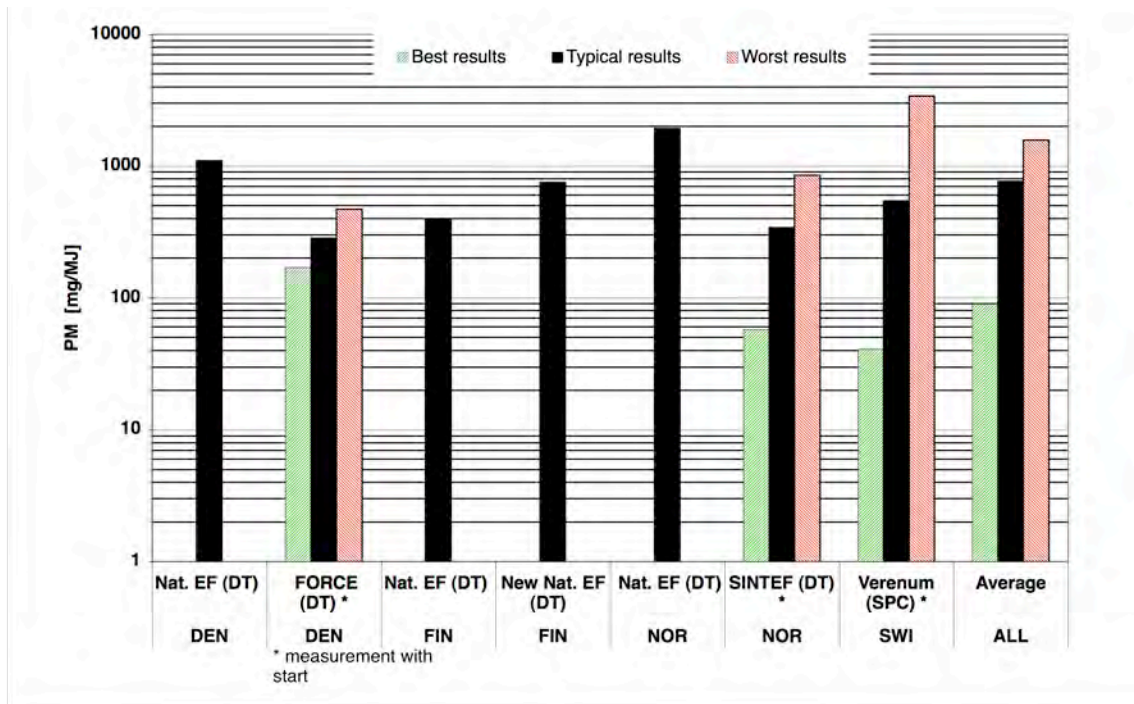


Bild 15 Bereich der Emissionsfaktoren von Holzöfen in Abhängigkeit der Betriebsweise gemessen im Verdünnungstunnel (DT) mit Ausnahme der Werte von Verenum, gemessen als SPC.

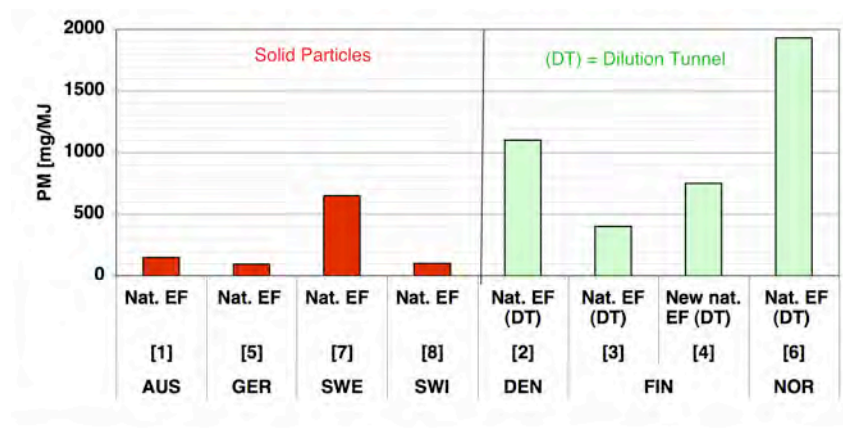


Bild 16 Nationale Emissionsfaktoren für Holzöfen.

4.4 Stückholzkessel

Bild 17 zeigt Emissionsfaktoren von Stückholzkesseln mit oberem Abbrand und ohne Ventilator. Die Angaben sind vergleichbar mit Holzöfen. Bild 18 zeigt Emissionsfaktoren für Stückholzkessel mit Ventilator. Unter typischen Betriebsbedingungen werden für Kessel mit unterem Abbrand signifikant tiefere Werte ausgewiesen als für Kessel mit oberem Abbrand. Nebst dem Feuerungsprinzip ist bei Kesseln die hydraulische Einbindung entscheidend. Bild 19 zeigt, dass bei Messungen in Schweden für Kessel ohne Speicher signifikant höhere Staubemissionen ausgewiesen werden (auch [Johansson et al. 2004]). Dies bestätigt frühere Untersuchungen, in welchen durch Drosselung der Luftzufuhr für den Schwachlastbetrieb sehr hohe Emissionen nachgewiesen wurden. In der Schweiz ist der Einsatz von Wärmespeichern deshalb über die Luftreinhalte-Verordnung und die Typenprüfung vorgesehen und geregelt.

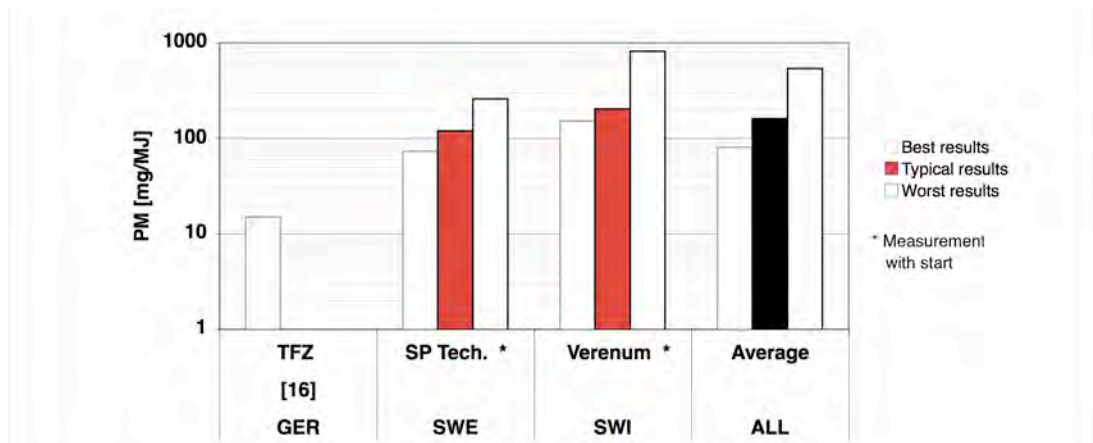


Bild 17 Bereich der Emissionsfaktoren von Stückholzkesseln mit oberem Abbrand ohne Ventilator.

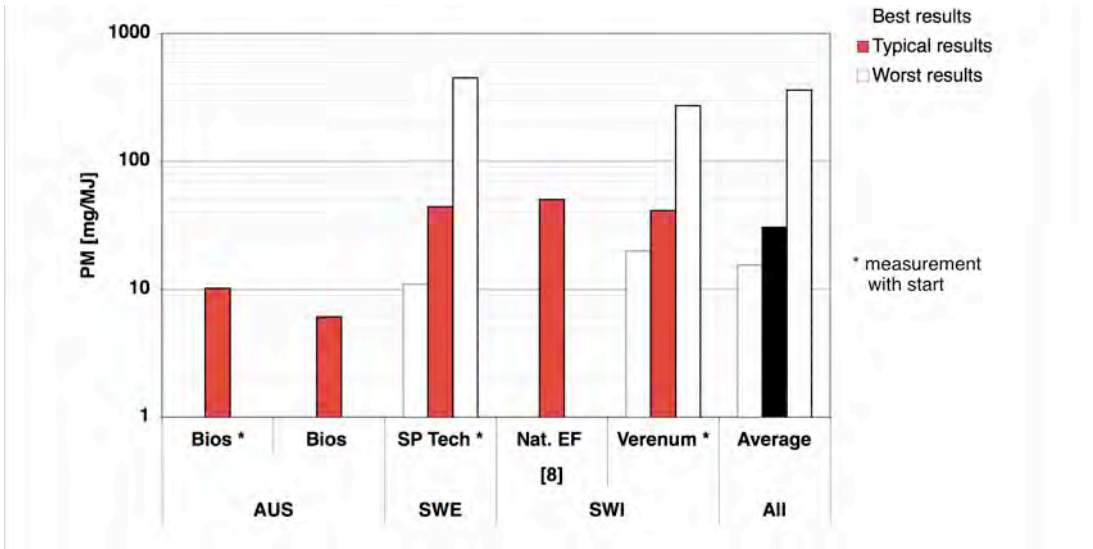


Bild 18 Bereich der Emissionsfaktoren von Stückholzkesseln mit unterem Abbrand und Ventilator.

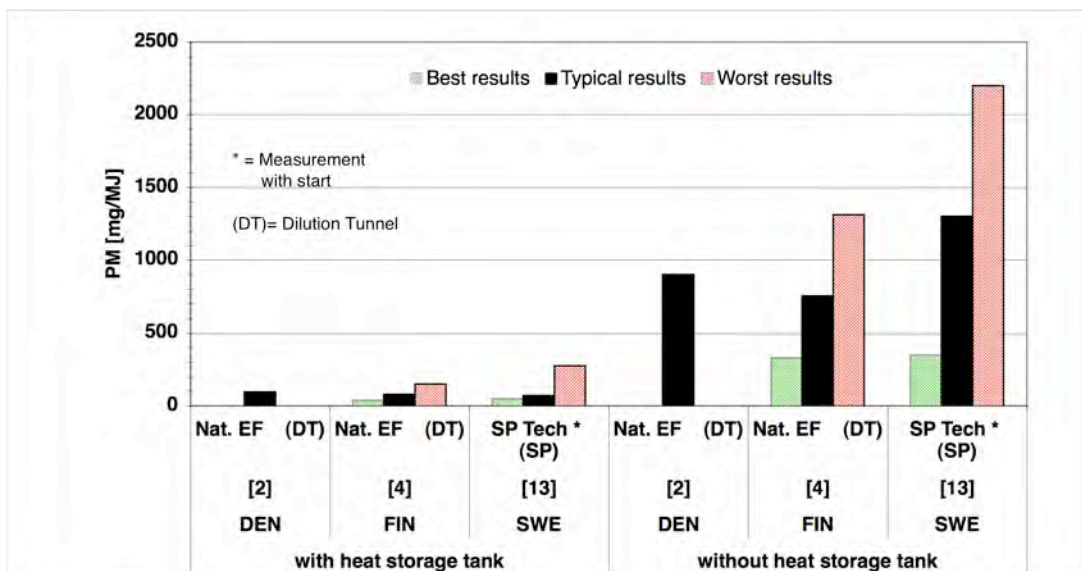


Bild 19 Bereich der Emissionsfaktoren von Stückholzkesseln mit und ohne Speicher.

4.5 Pelletfeuerungen

Bild 20 und Bild 21 zeigen die Emissionsfaktoren von Pelletöfen, Bild 22 von Pelletkesseln. Bei der Nutzung von Pellets, die aus Holz mit geringem Rindenanteil hergestellt wurden, werden für alle genannten Anwendungen Emissionswerte für typische Betriebsbedingungen zwischen 10 – 50 mg/MJ ausgewiesen. Diese Werte sind vergleichbar mit den von Stückholzkesseln bei typischem Betrieb ausgewiesenen Werten. Allerdings zeigt sich, dass Stückholzkesseln bei schlechter Betriebsweise deutlich höhere Emissionen als Pelletfeuerungen aufweisen. Die relative Robustheit gegenüber Fehlbedienung wird deshalb als Hauptvorteil der Pelletfeuerungen betrachtet. Allerdings ist zu beachten, dass die Emissionen von Pelletfeuerungen durch Verwendung von anderen Rohmaterialien als rindenarmem Holz (also zum Beispiel Stroh) deutlich ansteigen kann. Für die Staub- und Stickoxidemissionen ist typischerweise eine Erhöhung um bis zu einem Faktor 3 bis 5 zu erwarten.

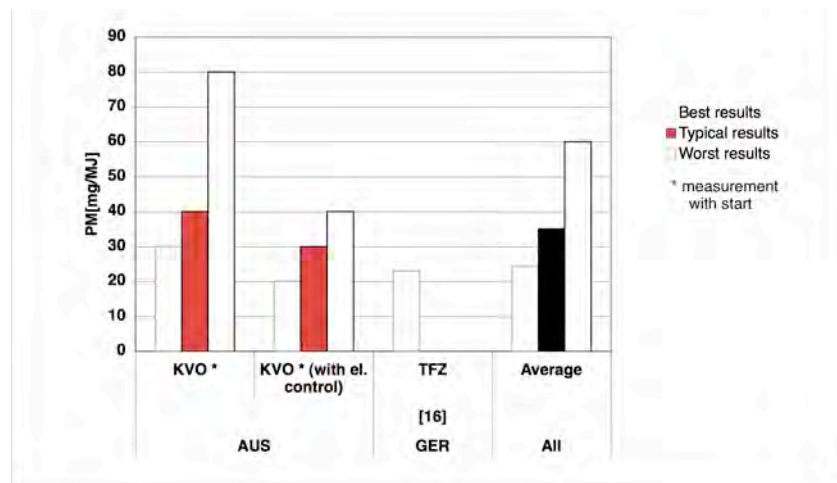


Bild 20 Bereich der Emissionsfaktoren für Pelletöfen mit Naturzug.

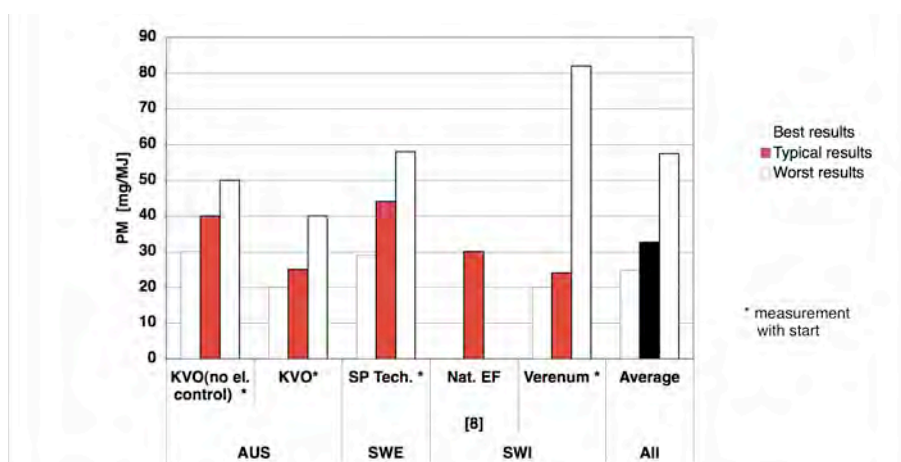


Bild 21 Bereich der Emissionsfaktoren für Pelletöfen mit Ventilator und Verbrennungsregelung.

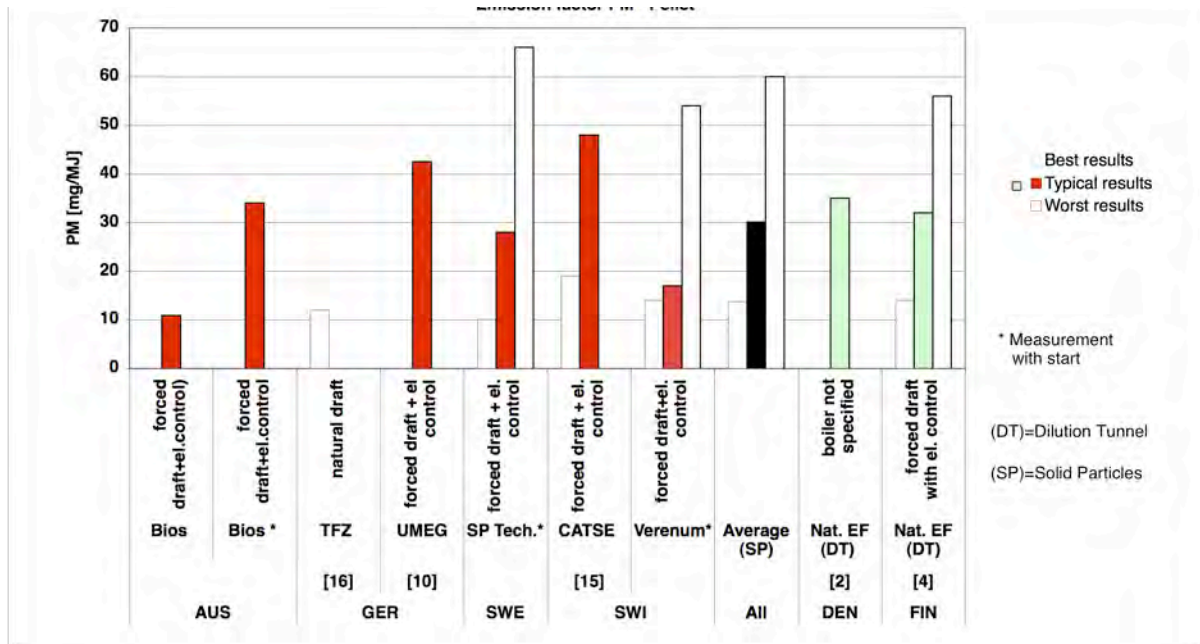


Bild 22 Bereich der Emissionsfaktoren für Pelletkessel.

4.6 Zusammenfassung der Emissionsfaktoren häuslicher Holzheizungen

Bild 23 zeigt eine Zusammenstellung der Emissionsfaktoren von Pelletfeuerungen, Holzöfen und Stückholzkesseln.

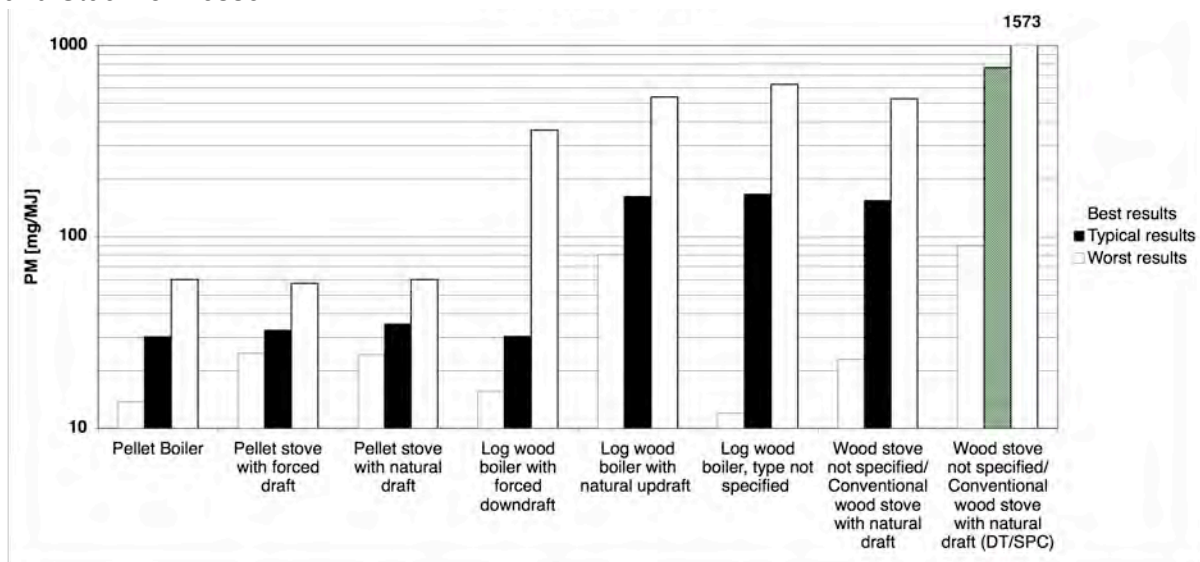


Bild 23 Mittlere Emissionsfaktoren angegeben für beste, typische und schlechteste Betriebsweise für Pellet- und Stückholzfeuerungen. Alle Werte sind angegeben als Feststoff gemessen im Kamin (SP) mit Ausnahme der Holzöfen, für die in der letzten Kolonne zusätzlich die Bereiche der Messwerte mit Kondensat angegeben sind (im Verdünnungstunnel oder separat gemessen, also DT oder SPC).

Pelletfeuerungen und Stückholzkessel mit Ventilator erzielen vergleichsweise tiefe Staubemissionen bei idealem Betrieb und auch noch bei einem als typischen Fall anzunehmenden Betrieb und ergeben einen geschätzten Emissionsfaktor im Bereich von 30 mg/MJ angegeben als Feststoff (SP) bei typischen Bedingungen. Dieser Wert gilt allerdings nur bei Verwendung von natürlichem, unkontaminiertem, trockenem Holz, während für andere Brennstoffe wie Rinde, Strohpellets und nasses Holz oder auch für schlechte Betriebsweise wesentlich höhere Emissionen resultieren. Für schlechten Betrieb wird bei Pelletfeuerungen ein Anstieg um rund einen Faktor 2 erwartet, wobei dieser Wert wegen mangelnder Untersuchungen unsicher ist und deshalb möglicherweise unterschätzt wird. Für Unterabbrandkessel wird dagegen ein Anstieg um einen Faktor 10 erwartet. Die relative Robustheit der Pelletfeuerungen wird deshalb als ihr Hauptvorteil betrachtet. Für handbeschickte Feuerungen kann insbesondere die Startphase die Gesamtemissionen deutlich erhöhen. Da dazu erst wenig Messungen vorliegen, wird der Einfluss der Betriebsweise derzeit in einer laufenden Untersuchung vertieft, zu der erste Resultate die Wichtigkeit der Anfahrphase bestätigen [Nussbaumer et al. 2008].

Holzöfen können bei idealer Betriebsweise ähnlich tiefe Staubemissionen wie Pelletfeuerungen oder Unterabbrandkessel erzielen. Allerdings ist davon auszugehen, dass bei Holzöfen der Idealbetrieb in der Praxis eher selten ist, da er meist ein regelmässiges Nachlegen kleiner, trockener Holzstücke voraussetzt. Weil dies nicht als Normalfall vorausgesetzt werden kann, wird für Holzöfen im Praxisbetrieb ein deutlich höherer typischer Emissionsfaktor von 150 mg/MJ angegeben als Feststoff (SP) geschätzt. Ähnliche Werte werden für alte Stückholzkessel mit Naturzug erwartet. Die zweistufige Verbrennung in Stückholzkesseln mit Einsatz von Ventilatoren wird deshalb als Fortschritt betrachtet. Allerdings ist dabei auf die hydraulische Einbindung zu achten. Für konventionelle Heizanwendungen wird der Einsatz eines Wärmespeichers empfohlen, um einen Schwachlastbetrieb mit gedrosselter Luftzufuhr und sehr hohen Emissionen zu vermeiden.

Für Holzöfen sind nebst Feststoffmessungen im Kamin auch Messwerte von Kondensat im Abgas sowie der Gesamtstaubfracht in verdünntem Abgas im Verdünnungstunnel verfügbar. Ein Vergleich dieser Zahlen mit den Feststoffmessungen im Kamin zeigt deutlich höhere Emissionsfaktoren.

4.7 Automatische Holzfeuerungen

Für automatische Holzfeuerungen von 70 kW bis 500 kW zeigt die Datenerhebung Emissionsfaktoren für Feinstaub (SP) bei typischen Betriebsbedingungen von 50 – 100 mg/MJ. Dies deckt sich mit dem Emissionsgrenzwert für heute installierte Anlagen in der Schweiz, der nach LRV derzeit noch 150 mg/m³ bei 13 Vol.-% O₂ beträgt. Eine breit abgestützte Erhebung von Praxismessungen in der Schweiz wies allerdings einen Bereich von 30 – 350 mg/MJ [Nussbaumer 2002]. Dies zeigt, dass auch für automatische Feuerungen ein korrekter Betrieb und eine regelmässige Kontrolle notwendig sind. Ähnliche Resultate gelten auch für Anlagen über 500 kW. Dabei ist allerdings zu beachten, dass in der Schweiz wegen der Verschärfung der LRV Neuanlagen deutlich tiefere Emissionswerte aufweisen werden.

4.8 Erhebung von Emissionsfaktoren

Für den Vergleich verschiedener Quellen ist zu beachten, dass die Emissionsfaktoren nur die Massenkonzentration an Feinstaub berücksichtigen. Die Gesundheitsrelevanz unterschiedlicher Partikel wird damit nicht erfasst. Die primären Aerosole aus unvollständiger Holzverbrennung wie beispielsweise aus einem bei Luftmangel betriebenen Holzofen enthalten jedoch hohe Konzentrationen an krebserzeugenden polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) und weisen in Zelltests eine höhere Toxizität als Dieselmotorschmutz aus. Grossteils salzartiger Feinstaub aus einer korrekt betriebenen automatischen Holzfeuerung weist dagegen geringe Gehalte an PAK und geringe Toxizität auf [Klippel & Nussbaumer 2007]. Aufgrund dieses Unterschieds wird die Relevanz der schlecht betriebenen Kleinfeuerungen bei einem Vergleich der Emissionsfaktoren unterschätzt.

5 Schlussfolgerungen

Von 16 Institutionen aus sieben IEA-Mitgliedsländern wurden Emissionsfaktoren von Holzfeuerungen erhoben. Dabei wurden Daten unterschieden, die bei unterschiedlichen Bedingungen resultieren und mit "best", "typical" und "worst" bezeichnet werden.

Die Erhebung zeigt eine grosse Bandbreite der Emissionsfaktoren für Holzfeuerungen bis 70 kW mit Werten von unter 10 mg/MJ bei idealen und bis zu über 2 000 mg/MJ bei schlechtesten Bedingungen für handbeschickte Holzfeuerungen angegeben als Feststoff (SP). Selbst nationale Emissionsfaktoren variieren von unter 100 mg/MJ (als Feststoff (SP)) bis zu beinahe 2 000 mg/MJ (angegeben im Verdünnungstunnel). Für Holzöfen werden die Betriebsbedingungen als entscheidender Einflussfaktor betrachtet, weshalb hohe Priorität auf korrekte Bedienung zu legen und insbesondere ein Betrieb mit gedrosselter Luftzufuhr zu vermeiden ist. Für Stückholzkessel ist zudem die Kombination mit einem Wärmespeicher wichtig, da damit ein gedrosselter Betrieb vermieden werden kann. In der Schweiz ist dies in der LRV vorgesehen und wird von der Typenprüfung gefordert, ausser wenn die Grenzwerte bei Schwachlastbetrieb (30% Last) eingehalten werden. Für Stückholzkessel zeigt sich auch, dass mit dem Unterabbrandprinzip und elektronischer Regelung bessere Werte als mit Oberabbrandkesseln erzielt werden.

Für Pelletöfen und -kessel werden typische Emissionen an Feststoff (SP) um 30 mg/MJ ausgewiesen, wobei die Bandbreite von < 20 bis < 80 mg/MJ vergleichsweise eng ist. Da der Einfluss der Bedienung bei Pelletfeuerungen als geringer eingestuft wird, werden im praktischen Betrieb aus Pelletfeuerungen tiefere Emissionen als aus handbeschickten Feuerungen erwartet. Allerdings gilt dies nur bei Verwendung reiner Holzpellets mit geringem Gehalt an Asche und Rinde, da für andere biogene Rohstoffe mit einem deutlichen Anstieg der Emissionen an Feinstaub und NO_x um bis zu einem Faktor 3 bis 5 auszugehen ist.

Für automatische Holzfeuerungen unter 1 MW ohne Feinstaubabscheider werden typische Emissionsfaktoren an Feststoff (SP) von 50 – 100 mg/MJ ausgewiesen. Dieser Feinstaub ist bei guten Verbrennungsbedingungen grossteils salzartiger Natur und weniger gesundheitsschädlich als Feinstaub aus unvollständiger Verbrennung.

Für den Vergleich verschiedener Emissionsfaktoren muss die Art der Messung berücksichtigt werden. In der vorliegenden Arbeit werden drei Arten von Daten unterschieden, nämlich:

1. Feststoffe (solid particles, SP), die auf einem heißen Filter (bei 160° nach VDI 2066 oder bei 120°C nach EPA method 5) abgeschieden werden,
2. Feststoffe und Kondensate (SPC), wobei Kondensat (C) in der Regel durch Abscheidung in Waschflaschen bei Temperaturen < 20° oder im Eisbad bei < 5°C erfolgt,
3. Als Feststoff in einem Verdünnungstunnel bei typischerweise auf < 35°C mit Umgebungsluft verdünntem Abgas (DT).

Ein Vergleich der Resultate nach den drei Messverfahren zeigt, dass die Kondensatmenge bei unvollständiger Verbrennung die Feststoffmasse deutlich übersteigen kann. Gleichzeitig wird auch in Verdünnungstunneln ein wesentlich höherer Wert an Feinstaub als bei Bestimmung des Feststoffs im heißen Abgas ausgewiesen. Der Wert im Verdünnungstunnel kann dabei das 2- bis 10-fache des im heißen Abgas ausgewiesenen Werts ausmachen. Da die Kondensate den primären Aerosolen zugeordnet werden, wird die Fracht an primären Aerosolen aus Holzheizungen somit deutlich unterschätzt, wenn lediglich der Feststoff berücksichtigt wird. Gleichzeitig zeigen Untersuchungen bei weiter verdünntem Abgas, dass in der Atmosphäre ein Teil der durch Kondensation gebildeten Aerosole wieder verdampfen und so die Masse an primären Aerosolen wieder reduzieren kann. Mit den Feinstaubwerten angegeben im Verdünnungstunnel (DT) oder als Feststoff plus Kondensat (SPC) wird die Immission aus primären Aerosolen deshalb überschätzt.

Bei Bestimmung der Emissionen ist die Bildung von sekundären Aerosolen und insbesondere von sekundären organischen Aerosolen (SOA) durch chemische Reaktionen in der Atmosphäre nicht erfasst. Der Anteil an SOA am organischen Feinstaub in der Umgebungsluft kann jedoch erheblich sein und den Anteil an primären Aerosolen teilweise sogar übersteigen. Aus diesem Grund sollte in Zukunft den Vorläuferstoffen von SOA stärkere Beachtung zukommen.

Da organische Verbindungen, die im Abgas flüchtig vorliegen (also als VOC) sowohl zu Kondensat als auch zu SOA führen können und gleichzeitig auch VOC selbst in der Umgebungsluft schädlich sind, wird die komplementäre Messung von Feststoff und VOC bei identischen Bedingungen im Abgas als sinnvolle Variante für die Beurteilung des Schädigungspotenzials betrachtet. Weil sich VOC aus zahlreichen Verbindungen unterschiedlicher Relevanz zusammensetzen, ist grundsätzlich eine präzisere Bestimmung der flüchtigen organischen Verbindungen erwünscht. In erster Priorität bietet sich dazu die Unterscheidung zwischen Methan und Nicht-Methan-VOC (NMVOC) an, die als optionale Messung die reine VOC-Messung ergänzen kann. Der Anteil an Methan und NMVOC sowie potenzielle Korrelationen zur Kondensatfracht sind derzeit Gegenstand einer laufenden Untersuchung [Nussbaumer et al. 2008].

6 Literatur

6.1 Im Text zitierte Quellen

- Baltensperger, U., M. Kalberer, J. Dommen, D. Paulsen, M. R. Alfarra, H. Coe, R. Fisseha, A. Gascho, M. Gysel, S. Nyeki, M. Sax, M. Steinbacher, A. S. H. Prevot, S. Sjögren, E. Weingartner and R. Zenobi: Secondary organic aerosols from anthropogenic and biogenic precursors, *Faraday Discuss.*, 2005, 130, 265–278
- Dockery D., C. Pope, X. Xu, J. Spengler, J. Ware, M. Fay, B. Ferris, F. Speizer. (1993): An association between air pollution and mortality in six U.S. Cities. *The New England J. of Medicine*, Vol. 329, pp. 1753-1759.
- Donaldson K., Brown D., Clouter A., Duffin R., MacNee W., Renwick L., Tran L., Stone V. (2002): The pulmonary toxicology of ultrafine particles. *Journal of Aerosol Medicine*, 15(2), pp. 213-20
- EPA: National Ambient Air Quality Standards (NAAQS), 2007, 6.20.2007, <http://www.epa.gov/air/criteria.html>
- Hinds, W.C.: *Aerosol Technology*, 2nd edition, Wiley-Interscience, 1999
- Johansson, L.; Gustavsson, L.; Tullin, C.; Ryde, D.; Rönnbäck, M.: Comparison of particle sampling in chimney and dilution tunnel during residential combustion of wood logs, *World Bioenergy* 2008, 231 – 235
- Johansson, L.; Leckner, B.; Gustavsson, L.; Cooper, D.; Tullin, C.; Potter, A.: Emission characteristics of modern and old-type residential boilers fired with wood logs and wood pellets, *Atmospheric Environment*, Vol 38, Issue 25, 2004, 4183–4195
- Kalberer, M., D. Paulsen, M. Sax, M. Steinbacher, J. Dommen, A. S. H. Prevot, R. Fisseha, E. Weingartner, V. Frankevich, R. Zenobi, U. Baltensperger: Identification of Polymers as Major Components of Atmospheric Organic Aerosols, www.sciencemag.org, SCIENCE VOL 303, 12 MARCH 2004, 1659–1662
- Kanakidou, M., J. H. Seinfeld, S. N. Pandis, I. Barnes, F. J. Dentener, M. C. Facchini, R. Van Dingenen, B. Ervens, A. Nenes, C. J. Nielsen, E. Swietlicki, J. P. Putaud, Y. Balkanski, S. Fuzzi, J. Horth, G. K. Moortgat, R. Winterhalter, C. E. L. Myhre, K. Tsigaridis, E. Vignati, E. G. Stephanou, and J. Wilson: Organic aerosol and global climate modelling: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1053–1123, 2005
- Klippel, N.; Nussbaumer, T.: Health relevance of particles from wood combustion in comparison to Diesel soot, 15th European Biomass Conference, International Conference Centre, Berlin 7–11 May 2007
- Lipsky, E.; Robinson, A.: Effects of Dilution on Fine Particle Mass and Partitioning of Semivolatile Organics in Diesel Exhaust and Wood Smoke, *Environ. Sci. Technol.* 2006, 40, 155–162
- NARSTO 2005: Improving Emission Inventories for Effective Air Quality Management Across North America, A NARSTO Assessment, NARSTO 05-001, www.narsto.org
- NESCAUM and MJB Associates: Assessment of carbonaceous PM_{2.5} for New York and the region, Final Report 08-01, March 2008
- Nussbaumer, T., van Loo, S.: Aerosols from biomass combustion – Overview on activities in IEA Bioenergy, *12th European Conference and Technology Exhibition on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection*, 17–21 June 2002, Amsterdam, Volume II, ISBN 88-900442-5-X, ISBN 3-936338-10-8, 917–921

- Nussbaumer, T.: Combustion and Co-combustion of Biomass: Fundamentals, Technologies, and Primary Measures for Emission Reduction, *Energy & Fuels*, Vol. 17, No 6, 2003, 1510–1521
- Nussbaumer, T.: Field investigation on NO_x and particulates and relevance for the life cycle assessment from biomass combustion, *12th European Conference and Technology Exhibition on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection*, 17–21 June 2002, Amsterdam, Volume II, ISBN 88-900442-5-X, ISBN 3-936338-10-8, 868–871
- Nussbaumer, T.: *Schadstoffbildung bei der Verbrennung von Holz*, Diss ETH Nr. 8838, Zürich 1989
- Nussbaumer, T.; Czasch, C.; Klippel, N.; Johansson, L.; Tullin, C.: Particulate Emissions from Biomass Combustion in IEA Countries: Survey on Measurements and Emission Factors, International Energy Agency (IEA) Bioenergy Task 32 and Swiss Federal Office of Energy (SFOE), Zürich 2008, ISBN 3-908705-18-5, www.ieabcc.nl, www.verenum.ch
- Nussbaumer, T.; Doberer, A.; Klippel, N.; Bühler, R.; Vock, W.: Influence of Ignition and Operation Type on Particle Emissions from Residential Wood Combustion, *16th European Biomass Conference and Exhibition*, Valencia, 2–6 June 2008
- Prévôt, A.; Wehrli, M.; Alfara, M.; Lanz, V.; Szidat, S.; Hueglin, C.; Gehrig, R.; Sandradewi, J.; Weimer, S.; Baltensperger, U.: The high PM₁₀ episode in January/ February 2006, 10. International ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, 21 - 23 August 2006
- Robinson, A.: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging: Implications for Human Exposure and Control Strategies, Environmental Monitoring, Evaluation, and Protection in New York: Linking Science and Policy (EMEP), Conference by New York State Energy Research and Development Authority (NYSERDA), Albany, NY, USA, November 15-16, 2007, www.nyserda.org
- Robinson, A.; Donahue, N.; Shrivastava, M.; Weitkamp, E.; Sage, A.; Grieshop, A.; Lane, T.; Pierce, J.; Pandis, S.: Rethinking Organic Aerosols: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging, *SCIENCE*, Vol 315, 2 march 2007, 1259–1262
- Seinfeld, J. H.; Pankow, J. F.: Organic Atmospheric Particulate Material, *Annu. Rev. Phys. Chem.* 2003. 54, 121–140
- Shrivastava, M.; Lipsky, E.; Stanier, C.; Robinson, A.: Modeling Semivolatile Organic Aerosol Mass Emissions from Combustion Systems, *Environ. Sci. & Technol.*, published on Web 03/09/2006
- Tsigaridis, K. and M. Kanakidou: Global modelling of secondary organic aerosol in the troposphere: a sensitivity analysis *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1849–1869, 2003
- Tsigaridis, K. and M. Kanakidou: Secondary organic aerosol importance in the future atmosphere, *Atmospheric Environment* 41 (2007) 4682–4692
- Turpin, B.J.; Lim, H.-J.: Species Contributions to PM_{2.5} Mass Concentrations: Revisiting Common Assumptions for Estimating Organic Mass, *Aerosol Science and Technology* 35 (2001), 602–610
- Wagner, D.; Nussbaumer, Th.: Messverfahren zur Erfassung des Emissionsverhaltens von Holzfeuerungen, Bundesamt für Energie, 1994
- World Health Organization (WHO): Airquality Guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen, dioxide and sulphur dioxide, Global Update 2005; 2006
- World Health Organization (WHO): Health Aspects of Air Pollution, Results from the WHO Project Systematic Review of Health Aspects of Air Pollution in Europe, 2004

6.2 In den Bildern und Legenden zitierte Quellen der Erhebung

- [1] Austrian FEA (Federal Environmental Agency) 2004
- [2] J.B. Illerup & M. Nielsen, National Environmental Research Institute, Improved PM Emissions Inventory for residential wood combustion, Roskilde 2004
- [3] C. Sternhuvud, N. Karvosenoja, J. Illerup, K. Kindbom, A. Lükewille, M. Johansson, D. Jensen, Nordic Council of Ministers, Particulate matter emissions and abatement options in residential wood burning in the Nordic Countries, Statistics Finland, 2001 (estimation of emission factors based on literature), Copenhagen 2004, p. 31
- [4] N. Karvosenoja, Finnish Environment Institute (SYKE), niko.karvosenoja@ymparisto.fi, Statement: table of new emission factors which are at this point not yet in use, 21. Aug. 2007
- [5] M. Struschka, U. Zuberbühler, A. Dreiseidler, D. Dreizler, G. Baumbach, H. Hartmann, V. Schmid, H. Link, German Federal Environmental Agency (FEA), Ermittlung und Evaluierung der Feinstaubemissionen aus Kleinf Feuerungsanlagen im Bereich der Haushalte und Kleinverbraucher sowie Ableitung von geeigneten Massnahmen zur Emissionsminderung, Berlin 2003
- [6] C. Sternhuvud, N. Karvosenoja, J. Illerup, K. Kindbom, A. Lükewille, M. Johansson, D. Jensen, Nordic Council of Ministers, Particulate matter emissions and abatement options in residential wood burning in the Nordic Countries, Average value for traditional stoves, new stoves and fireplaces, Copenhagen 2004, p. 31
- [7] C. Sternhuvud, N. Karvosenoja, J. Illerup, K. Kindbom, A. Lükewille, M. Johansson, D. Jensen, Nordic Council of Ministers, Particulate matter emissions and abatement options in residential wood burning in the Nordic Countries, Expert judgement based on ongoing measurement projects, Copenhagen 2004, p. 31
- [8] Swiss Federal Office for the Environment (FOEN), Arbeitsblatt Emissionsfaktoren (Stand Oktober 2005), Bern 2006
- [9] M. Hobson, G. Thistlethwaite, Emission factors programme Task 7 - Review of Residential & Small-Scale Commercial Combustion Sources, Oxon 2003
- [10] Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Ge-rätesicherheit (UMEG), Emissionsmessungen an Holzfeuerungsanlagen im Regelungsbereich der 1. BImSchV, Feldmessprogramm in Baden-Württemberg, Heizperiode 2002/2003, Baden-Württemberg 2003
- [11] N. Klippel, T. Nussbaumer, Einfluss der Betriebsweise auf die Partikelemission von Holzöfen, Bundesamt für Energie, Zürich 2007, www.verenum.ch
- [12] D. Ryde, L. Johansson, SP Sveriges Tekniska Forskningsinstitut, Partikelmätning vid vedldning – Jämförelse mellan provtagning i skorsten och spädtunnel, Borås 2007
- [13] J. Todorović, H. Broden, N. Padban, S. Lange, L. Gustavsson, L. Johansson, S. Paulrud, B. Löfgren, "Syntes och analys av emissionsfaktorer för småskalig biobränningsbränning" Slutrapport för avtal 503 0506 och 503 0507 på Naturvårdsverket. Nyköping, Borås, Stockholm, 2007
- [14] M. Wörgetter, W. Moser, Austrian Bioenergy & FJ/BLT, Emissionsbilanz von Holzfeuerungen kleiner Leistung in Niederösterreich, Wieselburg 2005

- [15] C. Gaegauf, M. Schmid, P. Güntert, Ökozentrum Langenbruck, Elemental and Organic carbon in Flue Gas Particles of Various Wood Combustion Systems, Langenbruck 2005
- [16] H. Hartmann, K. Reisinger, K. Thuneke, A. Höldrich, P. Rossmann, Handbuch Bioenergie-Kleinanlagen, Fachagentur nachwachsende Rohstoffe e. V., Rostock 2007
- [17] G. Baumbach, Feinstaubemissionen bei der Verbrennung von Biomasse, Vortrag bei der GVC/DECHMA-Jahrestagung 2005, Wiesbaden 7.9.2005

Verdankung

Die vorliegende Studie entstand im Auftrag der Internationalen Energie Agentur (IEA) Bioenergy Task 32 „Biomass Combustion and Co-firing“ und des Bundesamts für Energie (BfE).