



Schweizerische Eidgenossenschaft
Confédération suisse
Confederazione Svizzera
Confederaziun svizra

Eidgenössisches Departement für
Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation UVEK
Bundesamt für Energie BFE

Schlussbericht 2011

ERWEITERTE PARTIKELANALYTIK FÜR HOLZFEUERUNGSABGASE

Auftraggeber:

Bundesamt für Energie BFE
Forschungsprogramm Biomasse und Holzenergie
CH-3003 Bern
www.bfe.admin.ch

Kofinanzierung:

Bundesamt für Umwelt BAFU
CH-3003 Bern

Auftragnehmer:

Paul Scherrer Institut
Labor für Atmosphärenchemie
CH-5232 Villigen-PSI
www.psi.ch

Fachhochschule Nordwestschweiz
Institut für Aerosol- und Sensortechnik
Steinackerstr. 5
CH-5210 Windisch
www.fhnw.ch

Autoren:

André Prévôt, Paul Scherrer Institut, andre.prevot@psi.ch
Heinz Burtscher, Fachhochschule Nordwestschweiz, heinz.burtscher@fhnw.ch
Urs Baltensperger, Paul Scherrer Institut, urs.baltensperger@psi.ch

BFE-Bereichsleiter: Sandra Hermle

BFE-Programmleiter: Sandra Hermle

BFE-Vertrags- und Projektnummer: 102207 / 152795

Für den Inhalt und die Schlussfolgerungen ist ausschliesslich die Autoren dieses Berichts verantwortlich.

Zusammenfassung

Holzfeuerungen tragen in der Schweiz im Winter beträchtlich zur Feinstaubmasse bei. Insbesondere bei der organischen Feinstaubmasse sind die Holzfeuerungen im Winter die wichtigste primäre Emissionsquelle, wichtiger als der Verkehr. Der sekundäre Beitrag an die organische Masse, welche aus flüchtigen Kohlenwasserstoffen erst durch Oxidation in der Atmosphäre entstehen sind ausser in den Alpentälern insgesamt noch wichtiger als die primären Quellen.

Ziel dieses Projektes ist es, die primären Emissionen und das sekundäre Feinstaubbildungspotential von Stückholzheizungen und Pelletfeuerungen zu quantifizieren und charakterisieren.

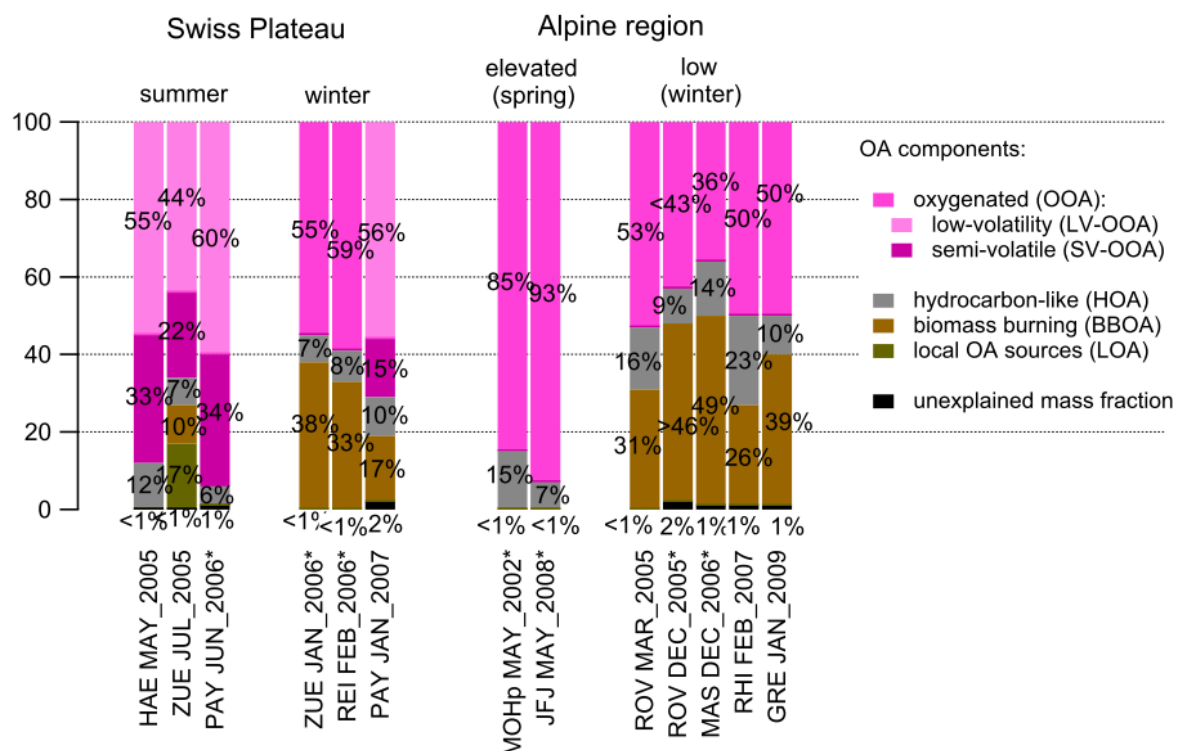
Dazu wurden in diesem Projekt einerseits Emissionsstudien an Holzfeuerungsprüfständen sowie Emissions- und Alterungsexperimente in der Smogkammer am PSI durchgeführt. Dies beinhaltete zeitlich hochaufgelöste Messungen von Feinstaubkomponenten mit einem Aerosolmassenspektrometer (organische Masse), mit dem Multi-Winkel Absorptionsphotometer (schwarzer Russ) und mit dem TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) (Feinstaubmasse). Die potentielle Toxizität der Partikel in der Lunge wurden mit ROS-Konzentrationen (Reaktive oxidierende Substanzen) approximiert.

Es konnte unter anderem gezeigt werden, dass die Pelletöfen während der stabilen Brennphase deutlich weniger Russ- und organische Masse emittieren und auch praktisch keine sekundären Partikel gebildet werden. Die Startphasen sind bei allen Holzöfen ein Problem, währenddem ein moderner Stückholzofen während der Brennphase weniger emittiert als ein alter Stückholzofen. Bei Emissionstests ist es problematisch, die ersten 10 Minuten nicht zu berücksichtigen, weil rund 50% der Emissionen in dieser Zeit ausgestossen werden. Die Feinstaubemissionen des Stückholzofens insbesondere während der Startphase sind potentiell sehr viel toxischer als Feinstaub von Pelletöfen während stabiler Brennphase und meist auch toxischer als Dieselmotoren- oder Zigarettenrauch.

Die verlässliche Messung der organischen Emissionen von Stückholzöfen ist nach wie vor ein Problem. Zukünftige Projekte sollten bei genügend Verdünnung aber auch bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden, um die realen Emissionen und Feinstaubbildungspotenziale zu bestimmen. Die Entwicklung und Anwendung von On-line Methoden zur ROS-Bestimmung wären sehr interessant.

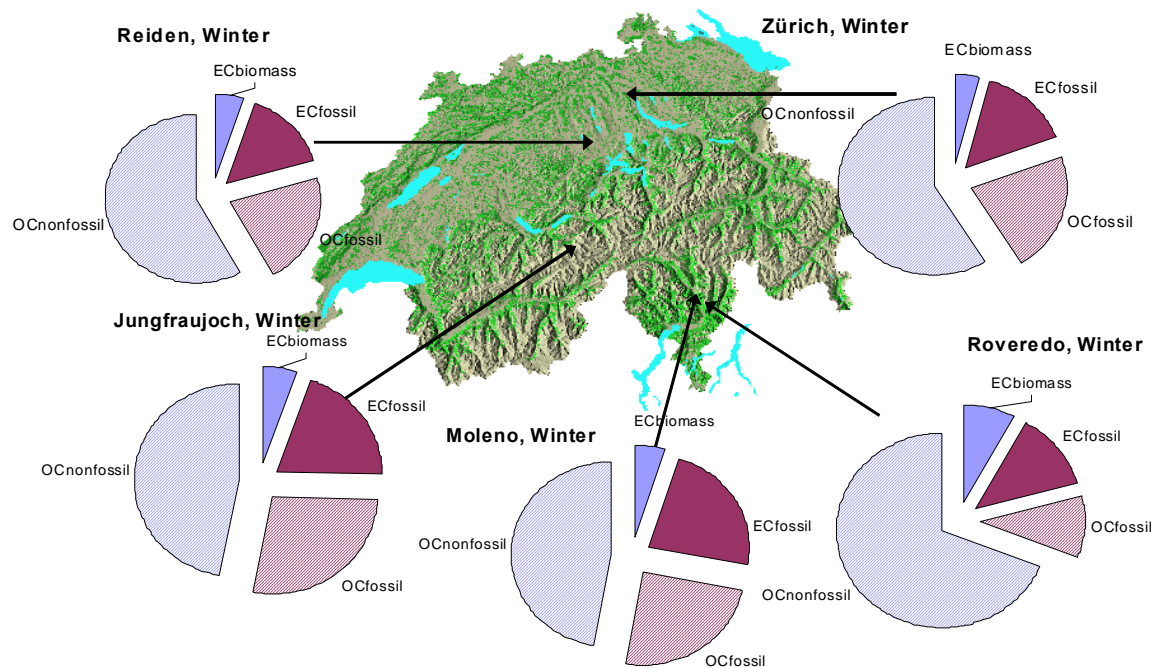
Einleitung/Projektziele

Messungen in der Schweiz und im naheliegenden Ausland haben gezeigt, dass die Hauptkomponenten der organischen Feinstaubmasse die primär emittierten Beiträge vom Verkehr und den Holzfeuerungen sowie sekundäre erst in der Atmosphäre aus flüchtigen Kohlenwasserstoffen chemisch gebildete Feinstaubkomponenten sind (Figur 1). Die organische Feinstaubmasse ist wohl neben dem schwarzen Russ die toxischste Komponente. In den Messkampagnen von typischerweise etwa einem Monat konnte festgestellt werden, dass im Winter die Holzfeuerungen überall deutlich mehr zur organischen Feinstaubmasse beitragen als der Verkehr (Figur 1). Die wichtigste Komponente ist fast überall die sekundäre organische Feinstaubmasse. Diese Messungen wurden mit Aerosolmassenspektrometern durchgeführt, welche erst seit wenigen Jahren zur Verfügung stehen (Canagaratna et al., 2007; DeCarlo et al. 2006)



Figur 1: Mittlere Zusammensetzung der organischen Feinstaubmasse (PM_1) an verschiedenen Orten in der Schweiz und im benachbarten Ausland: Härkingen (Mai), Zürich (Juli), Payerne (Juni), Zürich (Januar), Reiden (Februar), Payerne (Januar), Hohenpeissenberg (Mai), Jungfrauoch (Mai), Roveredo (März, Dezember), Massongex (Dezember), Rheintal (Februar), Grenoble (Januar) (Lanz et al., 2010). OOA bezeichnet für allem sekundäre oxygenierte Komponenten, HOA stammt mehrheitlich vom Verkehr und BBOA ist durch Biomassenverbrennung, im Winter vor allem durch Cheminées und Holzheizungen verursacht.

Beim schwarzen Russ ist die Situation nicht die gleiche. Hier dominieren fossile Bestandteile fast überall in der Schweiz (Figur 2) mit Ausnahme von Roveredo, wo der Holzfeuerungsbeitrag besonders hoch ist und dort die fossilen und nicht-fossilen Beiträge am schwarzen Russ sich die Waage halten. Die Figur 2 macht zudem klar, dass in der Atmosphäre viel mehr organischer als elementarer Kohlenstoff (synonym für schwarzen Russ in diesem Bericht) vorhanden ist. Der effektive Beitrag zur Feinstaubmasse ist insbesondere beim organischen Kohlenstoff noch deutlich höher, das das Verhältnis von organischer Masse zu organischem Kohlenstoff zwischen etwa 1.25 (typisch für Verkehr), 1.6 (Holzfeuerungen) und 2 (sekundäre oxygenierte Bestandteile) beträgt.



Figur 2: Mittlere Zusammensetzung des Kohlenstoffes des Feinstaubes bezüglich fossiler und nicht-fossiler OC (organischer Kohlenstoff) und EC (elementarem Kohlenstoff) an verschiedenen Standorten im Durchschnitt von jeweils einigen Luftfilterproben (Szidat et al., 2006; Lanz et al., 2008; Szidat et al. 2007).

Mittlere Zusammensetzung der organischen Feinstaubmasse (PM_{10}) an verschiedenen Orten in der Schweiz: Härkingen (Mai), Zürich (Juli), Payerne (Juni), Zürich (Januar), Reiden (Februar), Payerne (Januar), Hohenpeissenberg (Mai), Jungfrauoch (Mai), Roveredo (März, Dezember), Massongex (Dezember), Rheintal (Februar), Grenoble (Januar) (Lanz et al., 2010). OOA bezeichnet für allem sekundäre oxygenierte Komponenten, HOA stammt mehrheitlich vom Verkehr und BBOA ist durch Biomassenverbrennung, im Winter vor allem durch Cheminées und Holzheizungen verursacht.

Im Winter sind die Holzfeuerungsbeiträge am Feinstaub in der Schweiz von grosser Bedeutung. In der Zukunft wird erwartet, dass die Feinstaubemissionen des Verkehrs aufgrund der vorhandenen Partikelfiltertechnologie deutlich abnehmen werden, währenddem dies bei den Holzfeuerungen in kleinerem Masse zu erwarten ist, weil insbesondere für kleine dezentrale Holzöfen oder Cheminées keine vergleichbar effiziente Technologie auf dem Markt ist.

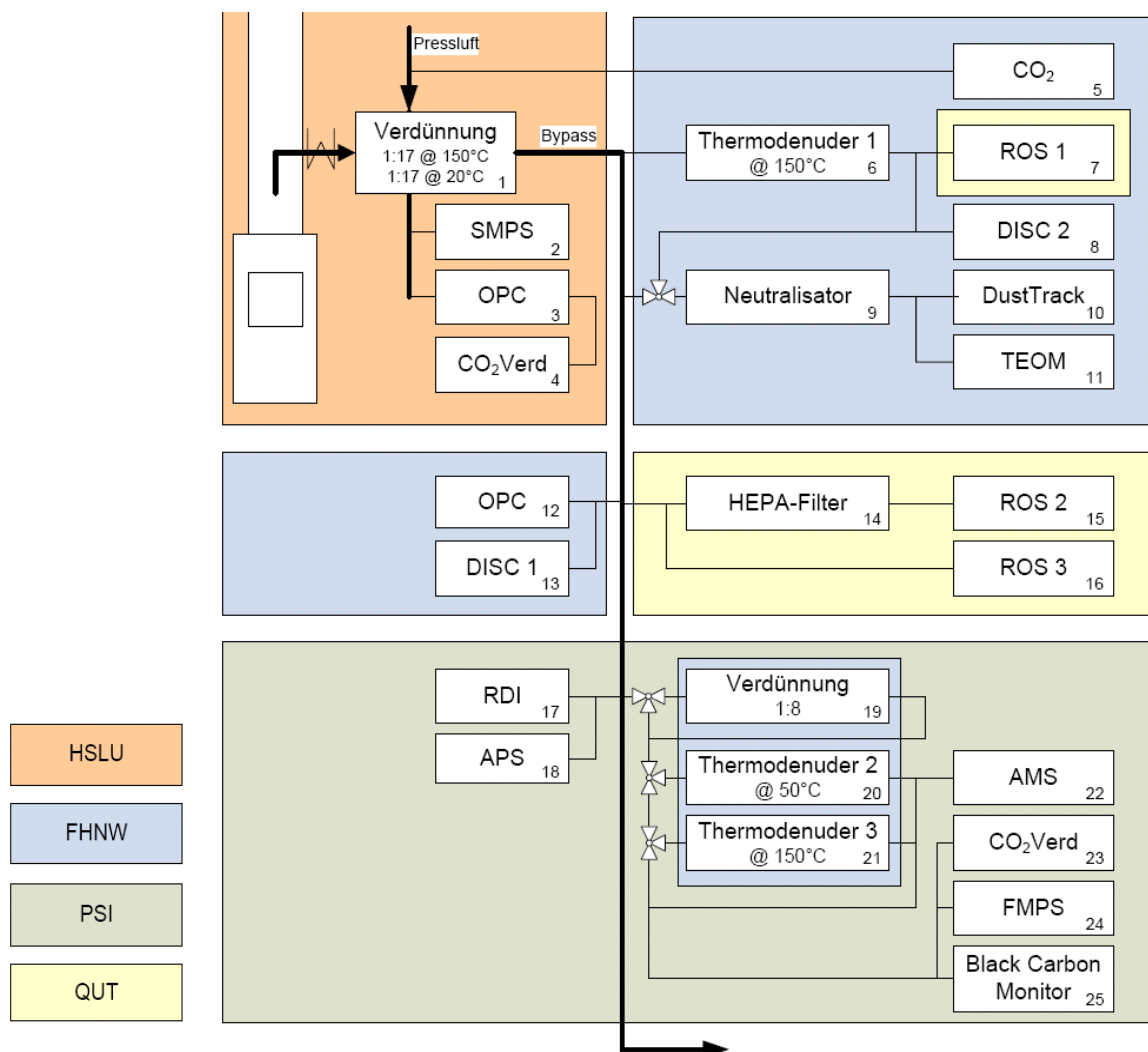
Das **Ziel** dieses Projektes ist die Bestimmung von Emissionen und der sekundären Feinstaubbildung von Stückholz- und Pelletfeuerungen.

Dabei sollen insbesondere neue on-line Messgeräte, welche bisher vor allem für Immissionsmessungen genutzt wurden, in Emissions- und Alterungsstudien verwendet werden.

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

In Klus des Ökozentrums Langenbruck wurden im Oktober und November 2007 Emissionsmessungen Stückholz- und Pelletöfen durchgeführt. Bei dieser Kampagne wurde vor allem Erfahrung gesammelt und es wurde beschlossen, quantitative Daten nur für die folgenden Studien am Paul Scherrer Institut und an den Holzprüfständen der Fachhochschule Luzern in Horw darzustellen, da diese im Gegensatz zur ersten Messkampagne konsistent ausgewertet werden konnten. Schematisch ist der Aufbau von

solchen Emissionsmessungen in Figur 3 dargestellt. Wichtig ist, dass die Emissionen verdünnt werden müssen. Dies ist einerseits durch die hohe Empfindlichkeit der Gerät gegeben, viel wichtiger ist jedoch, dass bei zu kleiner Verdünnung die organische Masse im Feinstaub überschätzt wird. Am Paul Scherrer Institut wurden einerseits auch Emissionsmessungen durchgeführt. Die Konzentrationen wurden erst gemessen, nachdem die Emissionen in einem 27m³ grossen Teflonsack verdünnt wurden. So konnte effektiv bis zu Aussenluftkonzentrationen verdünnt werden. Die Smogkammer dient dann aber auch dazu, die Holzfeuerungsmissionen (gasförmig und Feinstaub) zu altern. Der Aufbau dieser Smogkammerexperimente ist schematisch in Figur 4 dargestellt. Mehrere Kampagnen wurden an den Prüfständen und an der Smogkammer durchgeführt. Am Paul Scherrer Institut wurden aufgrund der Erfahrungen in Klus im 2008 Messungen an einem alten Stückholzofen, im November 2008 an einem Pelletofen und im September/Oktober 2009 an einem modernen Stückholzofen durchgeführt (Tabelle 1). Die Messungen in Horw fanden im Oktober 2011 statt.

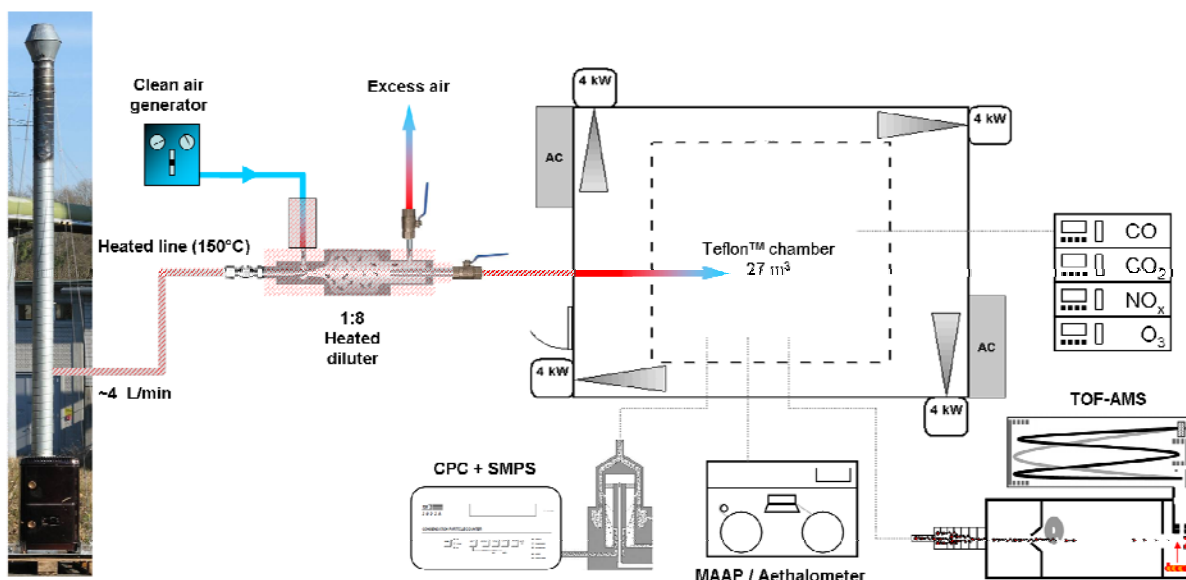


Figur 3: Typischer Aufbau der Emissionsmessungen in Horw, den Holzfeuerungsprüfständen der Fachhochschule Luzern.

Tabelle 1: Experimente am Paul Scherrer Institut, welche im Detail ausgewertet werden konnten. Die Tabelle beinhaltet die primäre organische Aerosol-Konzentration nach der Verdünnung in die Smogkammer, das Verhältnis der organischen Masse zur primären organischen Masse nach 5 Stunden Oxidationszeit, das elementare Sauerstoff/Kohlenstoff (O:C)-Verhältnis der primären organischen Masse und der organischen Masse nach 5 Stunden. MCE bezeichnet die Verbrennungseffizienz ($\text{CO}_2/(\text{CO}+\text{CO}_2)$) sowie die Ozonproduktion in 5 Stunden.

Experiment	date	POA	OA _{5h} / POA	POA	OA _{5h}	POA/CO	MCE	$\Delta\text{O}_3 \text{ t}_{5h} - \text{t}_{0h}$
	month/year	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(WLC)	O:C	O:C	$\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ ppm}^{-1}$		(ppb)
Old log wood burner								
1 flaming + smoldering	02.2008	3.8	1.6	0.51	0.58	3.9	0.986	32
2 flaming	03.2008	4.4	3.8	0.38	0.50	-	-	59
3 flaming	03.2008	28	5.1	0.19	0.36	11	0.960	111
4 starting	04.2008	27	6.9	0.32	0.42	7.6	0.943	52
5 starting	04.2008	6.5	5.7	0.23	0.46	6.4	0.959	65
6 smoldering	07.2008	17	0.7	0.87	0.79	14	0.909	16
7 flaming	08.2008	7.6	3.8	0.25	0.36	38	0.994	10
Pellet burner								
8 stable burning	11.2008	4.2	1.0	0.23	0.50	48	0.999	-
9 starting	11.2008	3.6	2.8	0.52	0.72	29	0.992	26
10 starting	11.2008	3.5	3.7	0.59	0.84	22	0.988	24
Modern log wood burner								
11 flaming	09.2009	1.4	3.6	0.48	0.62	2.5	0.993	-
12 flaming	09.2009	4.9	5.3	0.37	0.50	3.1	0.987	79
13 flaming	09.2009	6.1	2.7	0.35	0.41	11	0.995	3
14 gas-phase only ^a	09.2009	-	-	-	0.50	-	0.989	73
15 starting	09.2009	31	4.2	0.37	0.56	20	0.958	23
16 starting	09.2009	3.9	3.4	0.41	0.62	28	0.979	12
17 starting	10.2009	20	2.3	0.33	0.51	16	0.966	25
18 gas-phase only ^a	10.2009	-	-	-	0.36	-	0.994	10
19 gas-phase only ^a	10.2009	-	-	-	0.39	-	0.993	25
20 flaming	10.2009	2.0	2.1	0.50	0.54	5.8	0.995	2

^a Gas-phase only experiments were performed on a mixture of starting and flaming phase emissions.



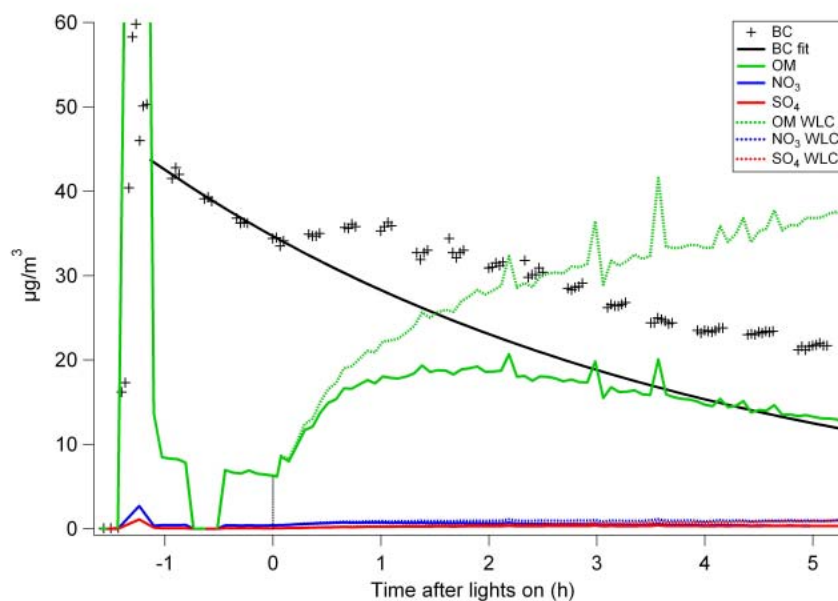
Figur 4: Typischer Aufbau der Smogkammermessungen, welche zur Bestimmung der sekundären Feinstaubbildung von Holzfeuerungsmissionen dient.

Die Messungen welche hier diskutiert werden beinhalten die organische Masse mit dem AMS (Aerosolmassenspektrometer), der schwarze Russ mit dem MAAP (Multi-Angle Absorption Photometer), die gesamte Partikelmasse mit dem TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance). Zusätzlich wurde in Horw auch das reaktive Oxidationspotential der emittierten Partikel gemessen, welche ein Proxy sind für mögliche toxikologischen Einflüsse in der Lunge (Miljevic et al., 2010).

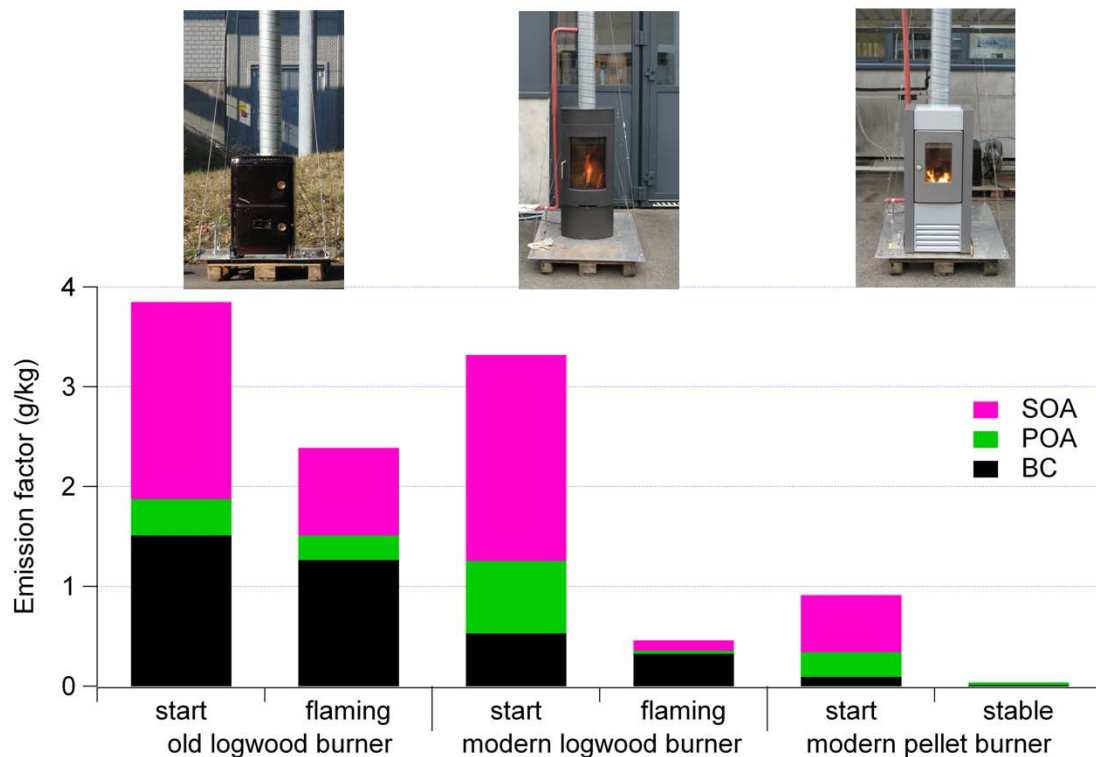
Im weiteren werden nicht alle, aber die Hauptresultate dieser Studie dargestellt.

In Figur 5 ist ein typisches Experiment an der Smogkammer des PSI dargestellt. Mehr als 20 solcher Experimente wurden durchgeführt. Die Emissionen wurden in die Kammer gebracht, wonach die Konzentrationen aufgrund der Wandverluste langsam abnehmen. Die Lichter werden angezündet und führen zunächst zu einem Anstieg aufgrund von sekundärer Produktion von Feinstaubmasse, bevor die Wandverluste wieder überhand nehmen. Die Wandverluste können berücksichtigt werden und so die effektive sekundäre Feinstaubproduktion bestimmt werden. Im Beispiel von Figur 5 ist die primär emittierte Masse nach der Verdünnung in die Kammer etwa $6\text{--}7\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$. Nach Korrektur der Wandverlust hat man etwas mehr als $35\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ nach 5 Stunden Oxidationszeit. In diesem Fall hat man etwa fünf mal mehr organische Feinstaubmasse aufgrund der Sekundärbildung als direkt emittiert wurde.

Solche Experimente wurden nun für verschiedene Holzöfentypen und Brandbedingungen mehrfach durchgeführt. Die Resultate davon sind in Figur 6 zusammengefasst, welches einige der Hauptresultate in einer Figur komprimiert. Hier wird ein alter und ein moderner Stückholzofen sowie ein Pelletofen bezüglich Emissionen und sekundärem Feinstaubbildungspotential verglichen. Die höchsten Emissionen wurden beim alten Stückholzofen gefunden. Beim modernen Stückholzofen sind die primären Emissionen und vor allem auch die sekundäre Feinstaubbildung bei Startbedingungen wichtig. Während der Flammphase sind die Emissionen insbesondere auch das sekundäre Feinstaubbildungspotential deutlich reduziert. Beim Pelletofen sind Emissionen und die sekundäre Feinstaubbildung während der stabilen Brennphase deutlich kleiner als bei den Stückholzheizungen. Bei den Startbedingungen sind die Emissionen nach wie vor signifikant. Das sekundäre Feinstaubbildungspotential ist vor allem durch Emissionen während der Emissionen in der Startphase sehr hoch.

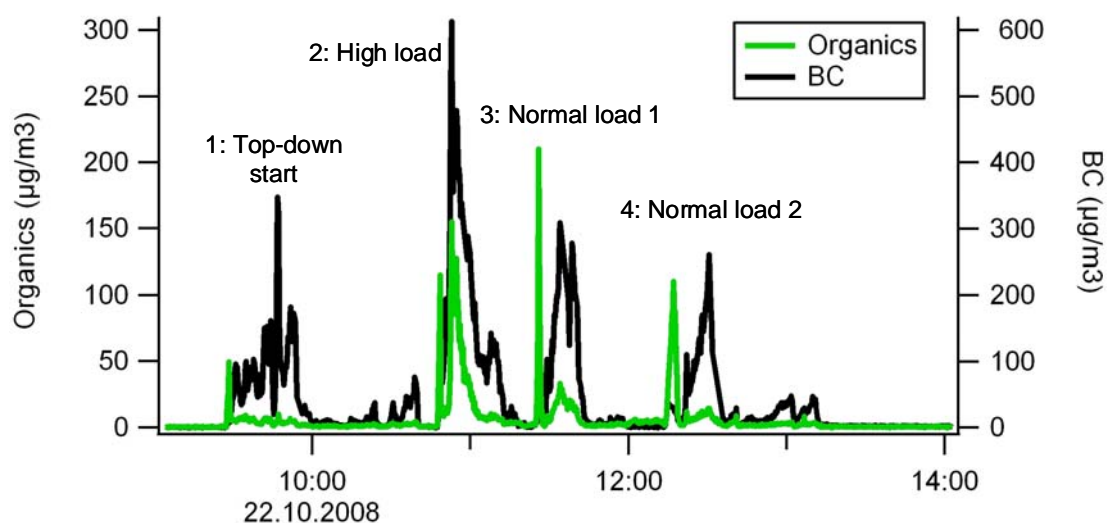


Figur 5: Typisches Experiment der Smogkammer. Die Konzentrationsverläufe der organische Feinstaubmasse (OM) und des schwarzen Kohlenstoffs (BC: Black Carbon) sind als Funktion der Zeit dargestellt. OM WLC ist die aufgrund Wandverlusten korrigierte (WLC: Wall Loss Corrected) organische Feinstaubmasse.

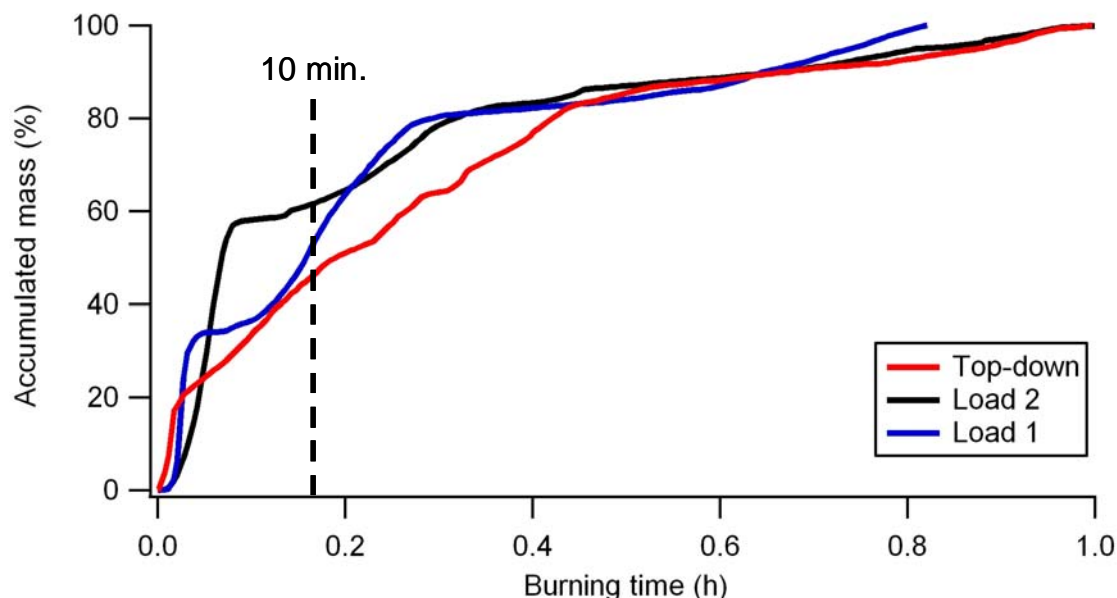


Figur 6: Emissionsfaktoren von schwarzem Russ, organischer Masse und die Bildung sekundärer organischer Masse pro verbranntes Holz in g/kg (oder in Konzentrationsverhältnissen zu CO_2). Die mittleren Emissionen sind für einen alten Stückholzofen (WESO Duplex), einen moderneren Stückholzofen (Attika Avant) und einen Pelletofen (Rüegg KEA) für die Startphase und die Brennphase dargestellt.

Bei den Resultaten der Emissionsstudien an den Prüfstellen fokussieren wir hier auf wenige wichtige und interessante Resultate bezüglich der Wichtigkeit der Startphase sowie die Gesundheitsrelevanz der emittierten Partikel. In Figur 7 sind Messungen der organischen Masse und des schwarzen Russes in einem Emissionsexperiment beispielhaft dargestellt. Dabei wurden verschiedene Öfen bei verschiedenen Bedingungen gemessen. Bei allen Abbränden wird mehr als 40% der Feinstaubmasse in den ersten 10 Minuten emittiert. Bei Emissionstests, welche die ersten 10 Minuten nicht berücksichtigen, kann erwartet werden, dass die Emissionen um etwa ein Faktor 2 unterschätzt werden.



Figur 7: Beispiel der Messung der organischen Masse und vom schwarzen Kohlenstoff bei verschiedenen Abbrandbedingungen



Figur 8: Akkumulierte emittierte Masse als Funktion der Zeit bei verschiedenen Abbrandbedingungen (siehe Figur 7).

Für die Prüfstandsmessungen in Horw sind die Emissionsdaten des Pelletofens und des Stückholzofens in den Tabellen 2 und 3 zusammengefasst. Die gefundenen Emissionen von verschiedenen Holzfeuerungsöfen (Stückholz und Pellet) sind in Figur 9 im Vergleich zu Literaturwerten dargestellt. Die Daten insgesamt deuten darauf hin, dass modernere Öfen gegenüber wirklich alten Holzöfen zunächst vor allem die Partikelmasse reduzieren. Die besseren Technologien unterscheiden sich dann vor allem bezüglich der gasförmigen Kohlenwasserstoffemissionen. Die Emissionen in dieser Studie sind ähnlich wie die Pelletemissionen oder die Emissionen moderner Holzöfen in der Literatur.

Tabelle 2: Die Emissionsfaktoren, mittlere Konzentrationen, Partikelgröße (von Disk) und Verbrennungs-Parameter des Pellet-Ofens. Die Kolonnen bezeichnen den mittleren Wert mit dem Standard Fehler (SE) and die Anzahl Tests (N) für jeden Parameter und die Testbedingungen.

	Mass – Gravimetric			Mass – TEOM			Number			Length			Gas-phase Organics		
	Mean mg/m ³ @ 13% O ₂	SE	N	Mean mg/m ³ @ 13% O ₂	SE	N	Mean #/m ³ @ 13% O ₂	SE	N	Mean m/m ³ @ 13% O ₂	SE	N	Mean m ³ /m ³ @ 13% O ₂	SE	N
Bad Conditions	47.0	5.5	7	55.11	4.729	7	4.41x10 ¹³	5.4x10 ¹²	7	6.39x10 ⁶	7.1x10 ⁵	7	19.29	4.81	7
Bad w/ESP	41.7	2.7	3	16.82	1.111	2	1.09x10 ¹³	8.3x10 ¹¹	2	1.85x10 ⁶	5.6x10 ⁴	2	14.33	2.19	3
Stable Good	25.7	1.2	7	26.91	1.800	9	5.00x10 ¹³	1.3x10 ¹²	9	5.85x10 ⁶	1.5x10 ⁵	9	1.44	0.18	9
Stable Good w/ESP	3.3	0.3	3	1.290	0.2314	3	1.69x10 ¹²	1.6x10 ¹¹	3	2.36x10 ⁵	2.3x10 ⁴	3	1	0	3
Cold Start	82.0	13.3	3	112.4	4.710	2	2.21x10 ¹⁵	1.7x10 ¹⁵	3	2.55x10 ⁶	2.0x10 ⁶	3	186	126	3
Cold Start w/ESP	--	--	--	19.97	--	1	5.28x10 ¹²	--	1	4.72x10 ⁵	--	1	114	--	1
Warm Start	65.0	--	1	10.04	--	1	9.24x10 ¹³	--	1	1.02x10 ⁷	--	1	39	--	1

	Mass - Gravimetric			Mass – TEOM			Number			Length		
	Mean mg/MJ	SE	N	Mean mg/MJ	SE	N	Mean #/MJ	SE	N	Mean m/MJ	SE	N
Bad Conditions	34.53	4.05	7	38.20	3.36	7	3.02x10 ¹³	3.7x10 ¹²	7	4.35x10 ⁶	4.8x10 ⁵	7
Bad w/ESP	30.80	1.94	3	11.83	1.10	2	7.62x10 ¹²	7.3x10 ¹¹	2	1.28x10 ⁶	5.5x10 ⁴	2
Stable Good	18.89	0.89	7	18.17	1.26	9	3.37x10 ¹³	8.8x10 ¹¹	9	3.95x10 ⁶	1.0x10 ⁵	9
Stable Good w/ESP	2.43	0.23	3	0.91	0.18	3	1.13x10 ¹²	1.1x10 ¹¹	3	1.59x10 ⁵	1.5x10 ⁴	3
Cold Start	60.27	9.78	3	57.66	34.0	2	5.55x10 ¹³	8.7x10 ¹²	3	5.75x10 ⁶	8.2x10 ⁵	3
Cold Start w/ESP	--	--	--	2.32	--	1	1.08x10 ¹²	--	1	1.07x10 ⁵	--	1
Warm Start	47.80	--	1	15.17	--	1	3.69x10 ¹³	--	1	4.02x10 ⁶	--	1

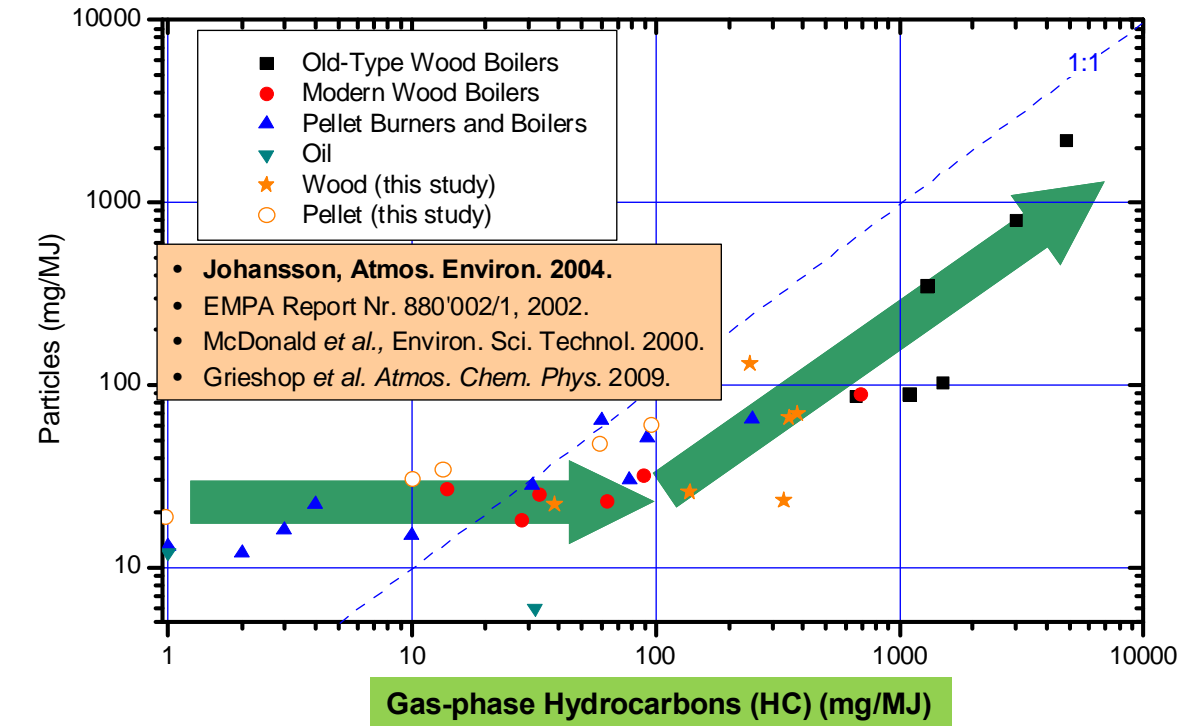
	Particle Diameter			Flue Gas Temp.			Lambda			O ₂			CO			NOx		
	Mean Nm	SE	N	Mean °C	SE	N	Mean	SE	N	Mean Vol. - %	SE	N	Mean mg/m ³ @ 13% O ₂	SE	N	Mean mg /m ³ @ 13% O ₂	SE	N
Bad Conditions	128	4	7	197.1	1.2	7	1.2	<0.1	7	4.1	0.07	7	1010	135	7	101.4	1.3	7
Bad w/ESP	376	229	3	199.8	0.6	3	1.3	<0.1	3	4.3	0.09	3	894	75	3	97.3	0.3	3
Stable Good	101.7	0.3	9	185.6	0.8	9	1.5	<0.1	9	7.3	0.03	9	60	5	9	80.7	19.4	9
Stable Good w/ESP	121.4	0.3	3	187.9	1.0	3	1.5	<0.1	3	7.4	<0.01	3	104	13	3	114.7	1.5	3
Cold Start	90	2	3	102.1	3.8	3	1.8	0.1	3	9.0	0.59	3	2332	1803	3	106	5.3	3
Cold Start w/ESP	86	--	1	96.6	--	1	1.8	--	1	9.6	--	1	385	--	1	84	--	1
Warm Start	95	--	1	150	--	1	1.7	--	1	9.0	--	1	225	--	1	3	--	1

Tabelle 3: Die Emissionsfaktoren, mittlere Konzentrationen, Partikelgrösse (von Disk) und Verbrennungs-Parameter des Stückholzofens. Die Kolonnen bezeichnen den mittleren Wert mit dem Standard Fehler (SE) and die Anzahl Tests (N) für jeden Parameter und die Testbedingungen.

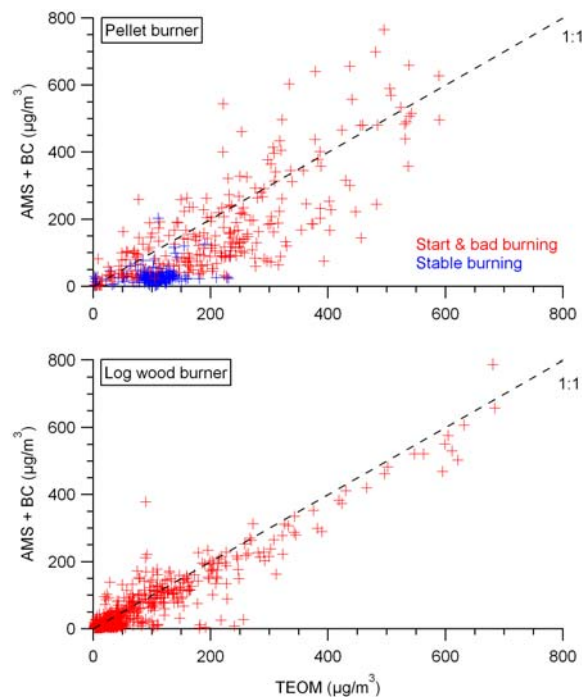
	Mass - Gravimetric			Mass - TEOM			Number			Length			Gas-phase Organics		
	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N
	mg/m ³ @ 13% O ₂		#m	g/m ³ @ 13% O ₂		#	#/m ³ @ 13% O ₂		#	m/m ³ @ 13% O ₂		#	m ² /m ³ @ 13% O ₂		#
Cold Start	160.7	24.9	6	73.8	32.9	4	1.93x10 ¹⁴	3.62x10 ¹³	6	1.56x10 ⁷	2.59x10 ⁶	6	435.83	103.62	6
Cold Stable	31.8	6.8	6	12.9	4.1	4	8.96x10 ¹³	5.85x10 ¹²	6	5.66x10 ⁶	4.76x10 ⁵	6	211.67	71.11	6
Cold Burn Out	85.0	50.6	5	18.4	4.0	3	1.20x10 ¹⁴	9.85x10 ¹²	5	7.29x10 ⁶	8.07x10 ⁵	5	719.4	384.7	5
Warm Stable	26.8	3.8	4	21.0	3.7	4	8.01x10 ¹³	4.38x10 ¹²	4	7.40x10 ⁶	9.20x10 ⁵	4	45.5	6.6	4
Warm Start	81.0	11.8	4	64.4	6.8	4	1.08x10 ¹⁴	5.22x10 ¹²	4	1.23x10 ⁷	1.17x10 ⁶	4	739.25	94.72	4

	Mass - Gravimetric			Mass - TEOM			Number			Length		
	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N
	mg/MJ		#	mg/MJ		#	#/MJ		#	# m/	MJ	#
Cold Start	130.7	19.4	6	41.4	7.2	6	1.16x10 ¹⁴	2.67x10 ¹³	6	9.89x10 ⁶	1.79x10 ⁶	6
Cold Stable	25.9	5.6	6	8.4	1.6	6	6.05x10 ¹³	4.12x10 ¹²	6	3.83x10 ⁶	3.45x10 ⁵	6
Cold Burn Out	69.5	41.6	5	9.8	2.4	5	8.38x10 ¹³	6.83x10 ¹²	5	5.07x10 ⁶	5.75x10 ⁵	5
Warm Stable	22.0	3.3	4	17.8	2.9	4	5.46x10 ¹³	2.61x10 ¹²	4	5.53x10 ⁶	5.66x10 ⁵	4
Warm Start	66.4	10.2	4	30.8	1.7	4	6.32x10 ¹³	3.31x10 ¹²	4	7.35x10 ⁶	9.02x10 ⁵	4

	Particle Diameter			Flue Gas Temperature			Lambda			O ₂			CO			NOx		
	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N	Mean	SE	N
	nm		#	°C		#	--		#	Vol. - %		#	mg/m ³ @ 13% O ₂		#	g/m ³ @ 13% O ₂		#
Cold Start	78	4	6	65	5	6	10.7	1.7	6	18.8	0.3	6	2294	200	6	70.0	6.5	4
Cold Stable	56	5	6	191	10	6	4.0	0.2	6	15.6	0.4	6	2271	334	6	85.3	5.6	4
Cold Burn Out	52	3	5	200	6	5	6.8	0.2	5	17.9	0.1	5	5531	1138	5	71.3	4.8	3
Warm Stable	88	6	4	327	9	4	2.6	0.1	4	12.9	0.4	4	1049	150	4	85.8	1.7	4
Warm Start	101	11	4	282	12	4	2.7	0.2	4	13.1	0.5	4	4477	375	4	78.0	1.4	4



Figur 9: Emissionen der Partikelmasse versus die Emissionen gasförmigen Kohlenwasserstoffen

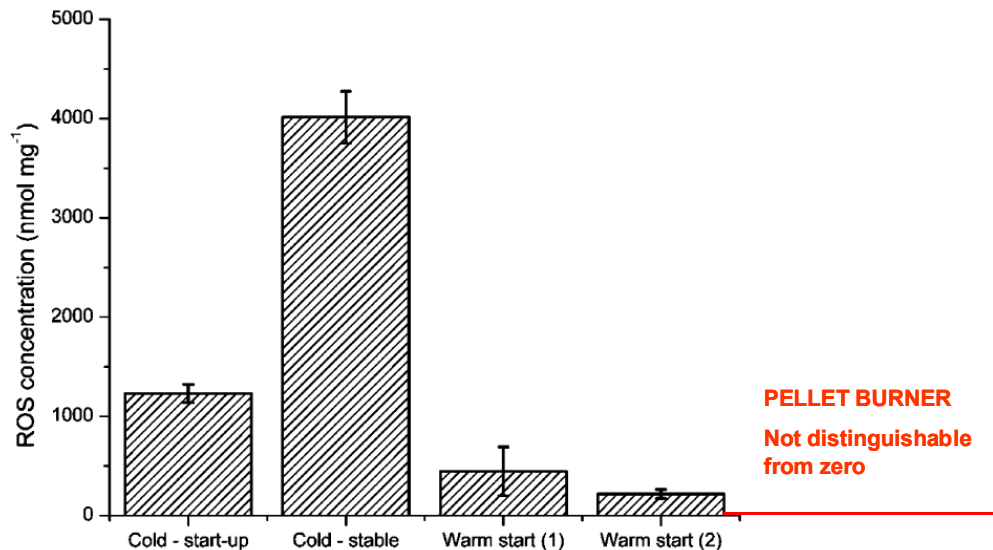


Figur 10: Vergleich der Partikelmasse, welche mit dem TEOM gemessen wurde im Vergleich zur Summe der mit dem AMS gemessenen organischen Masse und der schwarzen Kohlenstoffmasse (BC: black carbon)

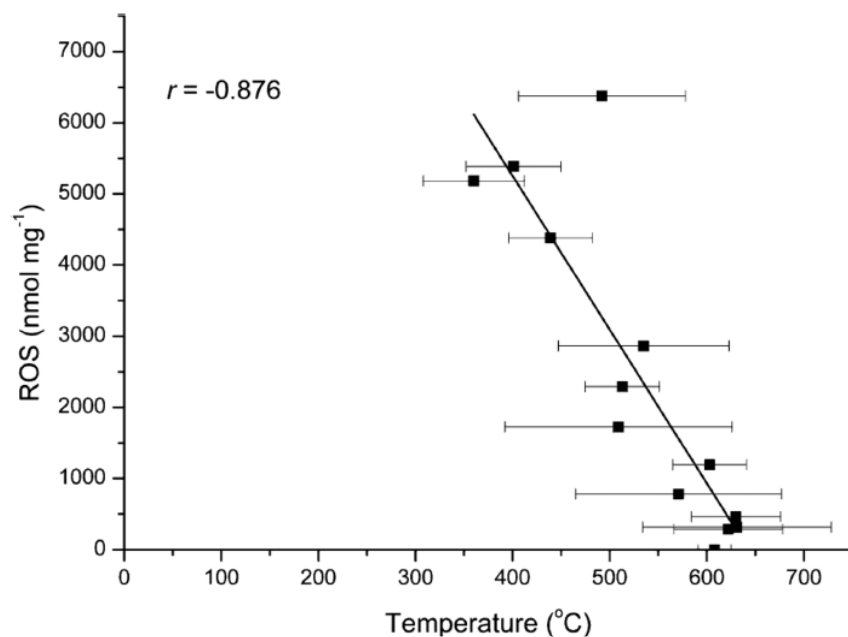
Die Figur 10 zeigt, dass die Partikelmasse des Feinstaubes mit der Summe der organischen Masse und der schwarzen Kohlenstoffmasse für den Stückholzofen praktisch vollständig erklärt werden kann. Im Fall des Pelletofens findet man ähnliche Resultate für die Startphase, währenddem die Feinstaubmasse während der stabilen Brennphase deutlich höher ist als die Summe organischen und schwarzen Kohlenstoffmasse, was zeigt, dass in diesem Fall die nicht gemessenen Salze wie Kaliumchlorid und Kaliumsulfat deutlich wichtiger sind.

Als Proxy für die Toxizität von Partikeln in der Lunge werden oft die reaktiven oxidativen Substanzen gemessen. Im Vergleich sind die Konzentrationen dieser reaktiven oxidativen Substanzen pro Feinstaubmasse am höchsten während der Kaltstartemissionen. Wenn der Ofen schon warm ist, sind diese Konzentrationen geringer, aber immer noch signifikant. Bei einem Pelletofen konnten keine ROS-Konzentrationen nachgewiesen werden (Figur 11). Die ROS-Konzentrationen der Stückholzemissionen sind sehr hoch im Vergleich mit anderen Feinstaubquellen. Bei Diesel oder Zigarettenrauch sind typischerweise Werte von 50 nmol/mg zu finden, während die Konzentrationen hier zum Teil 1000 nmol/mg deutlich übertrafen.

Die Figur 12 zeigt, dass die ROS-Konzentrationen bei der Stückholzheizung von den Abbrandbedingungen beeinflusst werden. Bei höherer Temperatur und somit effizienteren Brandbedingungen sind auch die ROS-Konzentrationen viel kleiner. Die kleinere Effizienz führt also nicht zu mehr Feinstaub sondern auch zu deutlich toxischerem Feinstaub.



Figur 11: Konzentrationen der reaktiven oxidativen Substanzen (ROS) normalisiert auf die emittierte Masse bei verschiedenen Brandbedingungen für Stückholzheizungen. Für Pellet-Öfen konnten keine ROS nachgewiesen werden.



Figur 12: Abhängigkeit der Konzentrationen der reaktiven oxidierenden Substanzen als Funktion der Ofentemperatur.

Ausblick

Eine wichtige Frage bei den Holzfeuerungen ist wie der organische Emissionsanteil verlässlich gemessen werden soll. Das Hauptproblem bei den meisten Emissionsmessungen, dass die Verdünnung zu klein ist, was zu einer Überschätzung der emittierten organischen Masse führen kann. Dies hat mit der Verschiebung des Gleichgewichts der organischen Molekülkonzentrationen von der Partikelphase zur Gasphase bei Erniedrigung der Konzentration zu tun. Ein grosses Problem ist die Temperatur. In der Realität gelangen die Emissionen mehrheitlich bei sehr tiefen Temperaturen in die Aussenluft, währenddem die Emissionsprüfstände und auch die PSI-Smogkammer bei Laborbedingungen betrieben werden. Dies führt generell zu einer Unterschätzung der Feinstaubmasse, weil ein beträchtlicher Anteil der organischen Masse

halbflüchtig ist. Eine wichtige Beobachtung in diesem Projekt ist, dass das Verhältnis der emittierten organischen Feinstaubmasse zum schwarzen Russ tiefer ist als bei den meisten Emissionsstudien in der Literatur. Dies könnte einerseits mit den oft viel zu hohen Konzentrationen bisheriger Studien zusammenhängen sowie die im Vergleich zur Aussenluft eher hohe Temperatur bei den Emissionsexperimenten.



Figur 13: Mobile Messfahrzeug und mobile Smogkammer des Paul Scherrer Instituts

Zukünftige Projekte könnten beispielsweise folgende Themen beinhalten

- ♦ Die Messung der Emissionen (insbesondere organische Anteile) bei den Kaminen in der Aussenluft bei Aussentemperaturen mit verschiedenen Messmethoden: (Verschiedene Methoden vom schwarzen Russ beziehungsweise dem schwarzen oder elementaren Kohlenstoff, verschiedene Methoden bei der Bestimmung des organischen Kohlenstoffs und der organischen Masse. Dazu könnte man direkt die Luft auf Höhe der Kamine ansaugen und mit dem PSI-Messfahrzeug die Messungen durchführen (Fig. 13)

- ♦ Die Emissionen von Holzfeuerungen sollten bei Aussenlufttemperaturen durchgeführt werden. Dies ist inzwischen möglich mit der neuen mobilen Smogkammer des Paul Scherrer Instituts (Figur 13).
- ♦ Es gibt inzwischen erste Prototypen von Geräten, welche on-line ROS Konzentrationen messen können. Diese könnten angewandt werden, um die Toxizität des Feinstaubes bei verschiedenen Brandbedingungen sowie der sekundären Komponenten mit höherer Zeitauflösung und Genauigkeit zu erfassen.

Referenzen

Fettgedruckt sind die bisher erschienenen Forschungsartikel, welche aus den Arbeiten in diesem Projekt stammen.

- Canagaratna, M.R., J.T. Jayne, J.L. Jimenez, J.D. Allan, M.R. Alfarra, Q. Zhang, T.B. Onasch, F. Drewnick, H. Coe, A. Middlebrook, A. Delia, L.R. Williams, A.M. Trimborn, M.J. Northway, P.F. DeCarlo, C.E. Kolb, P. Davidovits, D.R. Worsnop (2007) Chemical and Microphysical Characterization of Ambient Aerosols with the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer, *Mass Spectrometry Reviews*, 26, 185– 222.
- DeCarlo, P. F., J. R. Kimmel, A. Trimborn, M. J. Northway, J. T. Jayne, A. C. Aiken, M. Gonin, K. Fuhrer, T. Horvath, K. S. Docherty, D. R. Worsnop, J. L. Jimenez (2006) Field-deployable, high-resolution, time-of-flight aerosol mass spectrometer, *Anal. Chem.*, 78, 8281–8289, doi:10.1021/ac061249n.
- Grieshop, A. P., J. M. Logue, N. M. Donahue, and A. L. Robinson (2009) Laboratory investigation of photochemical oxidation of organic aerosol from wood fires 1: measurement and simulation of organic aerosol evolution, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1263-1277.
- Heringa, M. F., P. F. DeCarlo, R. Chirico, T. Tritscher, J. Dommen, E. Weingartner, R. Richter, G. Wehrle, A.S.H. Prevot, and U. Baltensperger (2011) Investigations of primary and secondary particulate matter of different wood combustion appliances with a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5945-5957.**
- Heringa, M. F., P. F. DeCarlo, R. Chirico, T. Tritscher, M. Clairotte, C. Mohr, M. Crippa, J. G. Slowik, L. Pfaffenberger, J. Dommen, E. Weingartner, A. S. H. Prévôt, and U. Baltensperger (2011) A new method to discriminate secondary organic aerosols from different sources using high-resolution aerosol mass spectra, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 29055-29091.**
- Johansson, L. S., B. Leckner, L. Gustavsson, D. Cooper, C. Tullin, A. Potter (2004) Emission characteristics of modern and old-type residential boilers fired with wood logs and wood pellets, *Atmos. Environ.*, 38, 4183-4195.
- Lanz, V.A., M.R. Alfarra, U. Baltensperger, B. Buchmann, C. Hueglin, S. Szidat, M.N. Wehrli, L. Wacker, S. Weimer, A. Caseiro, H. Puxbaum, A.S.H. Prevot (2008) Source attribution of submicron organic aerosols during wintertime inversions by advanced factor analysis of aerosol mass spectra, *Environ. Sci. Technol.*, 42, 214-220.
- Lanz, V. A., A. S. H. Prévôt, M. R. Alfarra, S. Weimer, C. Mohr, P. F. DeCarlo, M. F. D. Gianini, C. Hueglin, J. Schneider, O. Favez, B. D'Anna, C. George, and U. Baltensperger (2010) Characterization of aerosol chemical composition with aerosol mass spectrometry in Central Europe: an overview, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(21), 10453-10471.
- Meyer, N.K., A. Lauber, T. Nussbaumer, and H. Bartscher (2009) Influence of particle charging on TEOM measurements in the presence of an electrostatic precipitator. *Atmos. Meas. Tech.*, 2, 81–85.**

Miljevic, B., M. F. Heringa, A. Keller, N. K. Meyer, J. Good, A. Lauber, P. F. Decarlo, K. E. Fairfull-Smith, T. Nussbaumer, H. Burtscher, A. S. H. Prevot, U. Baltensperger, S. E. Bottle, and Z. D. Ristovski (2010) Oxidative Potential of Logwood and Pellet Burning Particles Assessed by a Novel Profluorescent Nitroxide Probe, *Environmental Science & Technology*, 44(17), 6601-6607.

McDonald, J. D., B. Zielinska, E. M. Fujita, J. C. Sagebiel, J. C. Chow, and J. G. Watson (2000) Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion, *Environ. Sci. Technol.*, 34, 2080-2091.

Szidat, S., T. M. Jenk, H.-A. Synal, M. Kalberer, L. Wacker, I. Hajdas, A. Kasper-Giebl, and U. Baltensperger (2006) Contributions of fossil fuel, biomass-burning, and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by ^{14}C , *J. Geophys. Res.*, 111, D07206, doi:10.1029/2005JD006590, 2006.

Szidat, S., A. S. H. Prevot, J. Sandradewi, M. R. Alfarra, H.-A. Synal, L. Wacker, and U. Baltensperger (2007), Dominant impact of residential wood burning on particulate matter in Alpine valleys during winter, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L05820, doi:10.1029/2006GL028325.

Fernsehbeiträge

10vor10, SF1, Dreckschleuder Cheminée verursacht zu viel giftigen Feinstaub, 3.3. 2009

Einstein, SF1, Hohe Feinstaub-Belastung durch Holzverbrennung, 3.2. 2011.

Doktorarbeit

Heringa, M. F. (2011) Primary emission and secondary formation of organic aerosol from domestic wood burning, ETH Zürich.

Konferenzbeiträge

Sattler M. A., M. F. Heringa, N. K. Meyer, A. Keller, R. Chirico, A.S.H. Prévôt, and C.K. Gaegauf (2009) Physical and chemical on-line characterization of nanoparticles in transient phases of wood combustion, 17th European Biomass Conference & Exhibition, Hamburg, Germany.

Sattler M. A., M. F. Heringa, N. K. Meyer, A. Keller, R. Chirico, A.S.H. Prévôt, and C.K. Gaegauf (2009) Particulate matter emissions reduction by primary measures in small scale wood heat appliances (Physical and chemical on-line characterization of nanoparticles in transient phases of wood combustion), 9th International Conference and Exhibition on Emissions Monitoring, Stresa, Italy.

Vorträge

Sattler et al. (2008) Physical and chemical on-line characterization of nanoparticles in transient burn phases of modern wood heat appliances, 12th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, Switzerland.

Heringa et al. (2009). On-line Source Measurements of Organic Aerosols from Wood Combustion with a High-resolution Aerosol Mass Spectrometer. AAAR 28th Annual Conference, Minneapolis, USA.

Heringa et al. (2009). Investigation of primary and secondary organic aerosols from wood combustion with a high resolution time of flight aerosol mass spectrometer. 13th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, Switzerland.

- Heringa et al. (2009). Investigations of primary and photo-oxidation products of wood combustion with a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer. AAAR 28th Annual Conference, Minneapolis, USA.
- Keller et al. (2009). The case of on-line measurements vs. gravimetric sampling for quantifying the particulate emissions from biomass combustion. European Aerosol Conference, Karlsruhe, Germany.
- Keller et al. (2009). Quantifying wood combustion emissions with on-line methods. 13th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, Switzerland.
- Prévôt et al. (2009) Primary and secondary organic aerosol in Europe (Field studies and PSI smogchamber studies). Invited lecture at National Center for Atmospheric Research, Boulder, USA.
- Prévôt et al. (2009) Aging of diesel and wood burning soot in smogchamber experiments. American Geophysical Union, San Francisco, USA.
- Miljevic et al. (2009). Oxidative potential of log wood and pellet burning particles assessed by a novel profluorescent nitroxide probe. European Aerosol Conference, Karlsruhe, Germany.
- Prévôt et al. (2009) Neue Erkenntnisse über Feinstaub. Jahresversammlung Schweizerischer Kaminfegermeister-Verband (SKMV), Aarau, Switzerland.
- Prévôt et al. (2010) Aging of diesel and wood burning emissions in smogchamber experiments, European Geophysical Union, Vienna.
- Heringa et al. (2010). Investigations of primary and photo-oxidation products of wood combustion with a high-resolution aerosol mass spectrometer. International Aerosol Conference, Helsinki, Finland, M.F. Heringa
- Prévôt et al. (2010) Evolution of organics in the atmosphere: Dependence on technology of diesel vehicles and wood burning facility. Aging of Diesel and Wood Burning Emissions in Smogchamber Experiments. International Global Atmospheric Chemistry Conference, Halifax, Canada.
- Keller et al. (2010). Reconciling particulate emissions with ambient measurements for biomass combustion. 14th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, Switzerland.
- Prévôt et al. (2010) Evolution of organics in the atmosphere: Dependence on technology of diesel vehicles and wood burning facility. Aging of Diesel and Wood Burning Emissions in Smogchamber Experiments. 14th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, Switzerland.
- Burtscher et al. (2010) Rethinking standards for wood combustion emissions, Expert Workshop "Dust measuring procedures for small biomass furnaces", Leipzig.
- Burtscher et al. (2010) A portable instrument for PMP-like field measurement, Expert Workshop "Dust measuring procedures for small biomass furnaces", Leipzig, 15.
- Burtscher et al. (2011) Measuring particles in wood combustion emissions. CEN/TC 295 WG5 Meeting, Frankfurt.
- Burtscher et al. (2011) Emissionsmessungen an Holzverbrennungen und ihre Relevanz für Immission und Gesundheit, Innovationskolloquium bei Testo AG, Lenzkirch.
- Prévôt et al. (2011) Quellen von Feinstaub, Bedeutung von Holzfeuerungen, Jahresversammlung der Holzenergie Schweiz.
- Keller et al. (2011) Considering Potential Secondary Organic Aerosol in Wood Combustion Emission Measurement, 15th ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zurich, Switzerland.
- Keller et al. (2011) Micro Smog Chamber: a Candidate Tool for Evaluating Wood Burning Emission, European Aerosol Conference, Manchester, UK.