



Schweizerische Eidgenossenschaft  
Confédération suisse  
Confederazione Svizzera  
Confederaziun svizra

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

# **EINFLUSS DER BETRIEBSWEISE AUF DIE PARTIKELEMISSIONEN VON HOLZÖFEN**

**Projektzusatz 1+2 zum Projekt Wirkung von  
Verbrennungspartikeln**

## **Schlussbericht**

Ausgearbeitet durch

**Norbert Klippel, Verenum**  
Langmauerstrasse 109, 8006 Zürich, [www.verenum.ch](http://www.verenum.ch)

**Thomas Nussbaumer, Verenum**  
Langmauerstrasse 109, 8006 Zürich, [www.verenum.ch](http://www.verenum.ch)

März 2007

ISBN 3-908705-15-0

**Auftraggeber**

Bundesamt für Energie  
Bundesamt für Umwelt

**Auftragnehmer**

Verenum, 8006 Zürich

**Autoren**

Dr. Norbert Klippel, Verenum  
PD Dr. Thomas Nussbaumer, Verenum

**Mitarbeit**

Adrian Hess, Verenum  
Jörg Hertig, Tiba AG, 4416 Bubendorf  
Daniel Wagner, Tiba AG, 4416 Bubendorf  
Peter Hasler, Tiba AG, 4416 Bubendorf  
Krista Meurer, RCC Cytotest Cell Research GmbH, D-64380 Rossdorf  
Christine Behle-Wagner, RCC Cytotest Cell Research GmbH, D-64380 Rossdorf  
Dr. Albrecht Poth, RCC Cytotest Cell Research GmbH, D-64380 Rossdorf

**Begleitung**

Daniel Binggeli, Bundesamt für Energie  
Dr. Peter Straehl, Bundesamt für Umwelt  
Ulrich Jansen, Bundesamt für Umwelt

Norbert Klippel, Thomas Nussbaumer:  
Einfluss der Betriebsweise auf die Partikelemissionen von Holzöfen  
Bundesamt für Energie, Bern, 2007  
ISBN 3-908705-15-0

Copyright © Verenum (Switzerland) 2007  
März 2007

Download unter [www.verenum.ch](http://www.verenum.ch)

**Im Auftrag des Bundesamt für Energie, Forschungsprogramm Biomasse**

Mühlestrasse 4, CH-3063 Ittigen, Postadresse: CH-3003 Bern  
Telefon +41 31 322 56 11, Fax +41 31 323 25 00, [www.bfe.admin.ch](http://www.bfe.admin.ch)  
BFE-Projektleiter: Daniel Binggeli  
Projektnummer: 100210  
Bezug der Publikation: [www.energieforschung.ch](http://www.energieforschung.ch)

Für den Inhalt und die Schlussfolgerungen sind ausschliesslich die Autoren verantwortlich.

# Inhalt

<b>Zusammenfassung.....</b>	<b>5</b>
<b>Abstract.....</b>	<b>7</b>
<b>1 Ausgangslage und Zielsetzung.....</b>	<b>9</b>
<b>2 Messprogramm.....</b>	<b>10</b>
2.1 Handbeschickte Holzfeuerungen .....	10
2.2 Pelletofen.....	11
2.3 Experimenteller Aufbau und Messgrößen .....	12
<b>3 Ergebnisse der gravimetrischen Staubmessung .....</b>	<b>14</b>
3.1 Ofentyp 1: Einfacher Metallofen.....	14
3.2 Ofentyp 2: Moderner Ofen mit Qualitätssiegel .....	18
3.3 Ofentyp 3: Zweistufige Verbrennung.....	20
3.3.1 Beschreibung Ofen 3	20
3.3.2 Verbrennungsphasen am Beispiel von Ofen 3	21
3.3.3 Emissionen von Ofen 3	23
<b>4 Grössenspektren der Partikelemissionen.....</b>	<b>25</b>
4.1 Partikelspektren Ofentyp 1: Einfacher Metallofen .....	25
4.2 Partikelspektren Ofentyp 2: Ofen mit Qualitätssiegel .....	30
4.3 Partikelspektren Ofentyp 3: Zweistufige Verbrennung .....	35
4.4 Zusammenfassung der Partikelspektren bei verschiedenen Bedingungen.....	41
<b>5 Pelletofen .....</b>	<b>42</b>
5.1 Gravimetrische Staubmessungen .....	42
5.2 Partikelspektren .....	44
<b>6 Zusammenhang zwischen CO- und Staubemissionen .....</b>	<b>45</b>
<b>7 Biologische Tests.....</b>	<b>48</b>
7.1 Probennahme für biologische Tests.....	48
7.2 Methodik Zelltests .....	49
7.3 Probenaufbereitung .....	49
7.4 Zytotoxizitätstests .....	50
7.4.1 Ergebnisse für eine automatische Holzfeuerung	50
7.4.2 Ergebnisse für ausgewählte Stäube aus Kleinfeuerungen	52
7.5 Mikrokerntests.....	53
<b>8 Chemische Analyse der Staubinhaltsstoffe.....</b>	<b>54</b>
<b>9 Interpretation der biologischen Tests .....</b>	<b>56</b>
<b>10 Schlussfolgerungen .....</b>	<b>57</b>
10.1 Partikelemissionen von Holzöfen .....	57
10.2 Messmethodik .....	58
10.3 Gesundheitswirkung der untersuchten Feinstäube .....	59
<b>Literatur .....</b>	<b>60</b>
<b>Anhang: Zusammenfassung der Staubmessungen.....</b>	<b>61</b>



# Zusammenfassung

Im Rahmen des Gesamtprojekts „Gesundheitswirkung von Verbrennungspartikeln“ wurden Feinstäube aus einer automatischen Holzfeuerung im Vergleich zu Russmissionen von Dieselmotoren untersucht [1]. Dabei wurde gezeigt, dass in einer korrekt betriebenen automatischen Holzfeuerung eine annähernd vollständige Verbrennung erzielt werden kann, bei der die Staubemissionen vorwiegend aus anorganischen Salzen bestehen. In biologischen Zelltests wurde gezeigt, dass dieser Feinstaub eine deutlich geringere Zelltoxizität als Dieselruss aufweist.

Bei handbeschickten Holzfeuerungen entstehen zusätzliche Feinstäube als Folge einer unvollständigen Verbrennung. Wegen der grossen Anzahl solcher Kleinfeuerungen in Wohngebieten ist es wichtig, deren potenzielle Gesundheitsgefährdung abzuschätzen. Ziel der vorliegenden Zusatzuntersuchung zum Projekt [1] ist deshalb, den Einfluss der Betriebsweise von Kleinfeuerungen auf die Staubemissionen zu quantifizieren und die Gesundheitsgefährdung des Feinstaub aus Kleinfeuerungen und dabei insbesondere auch aus einer unvollständigen Holzverbrennung in biologischen Zelltests abzuschätzen und mit Dieselruss sowie anorganischem Feinstaub aus einer automatischen Holzfeuerung zu vergleichen.

Dazu wurden drei Stückholzöfen und ein Pelletofen untersucht. Die Untersuchungen wurden mit naturbelassenem Holz und in einem Fall mit Strohpellets durchgeführt. Der Staubgehalt im Abgas wurde durch Probenahme des Feststoffs auf einem auf 120°C beheizten Filter (in Anlehnung an die VDI-Norm) sowie durch Sammlung der kondensierbaren Stoffe in Waschflaschen und einem nachgeschalteten Filter bei Raumtemperatur (in Anlehnung an die EPA-Norm) erfasst. Zur Erfassung des zeitlichen Verlaufs der Emissionen und der Größenverteilung der Partikel wurde die Kombination eines Scanning Mobility Particle Sizers (SMPS) und eines Streulichtgeräts eingesetzt.

Die Resultate zeigen, dass ein ideal betriebener Stückholzofen auf dem Prüfstand vergleichbare oder sogar geringere Staubemissionen als eine automatische Holzfeuerung erzielen kann. Dies gilt für einen Holzofen, der mit kleinen Chargen an kleinen Scheitern von trockenem Holz (zwei Scheiter zu je 0,75 kg mit Wassergehalt w = 12 %) beladen und mit genügend Luftzufuhr durch einen ausreichenden Kaminzug (12 – 14 Pa Unterdruck) bei offener Luftklappe betrieben wurde. Ein konventioneller Holzofen erreicht so mittlere Gesamtemissionen an Staub und Kondensat von 20 – 60 mg/m<sup>3</sup> (alle Angaben bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>), wobei der Kondensatanteil weniger als 10% der Gesamtfracht ausmacht. Ein solcher Heizbetrieb setzt allerdings voraus, dass in kurzen Zeitabständen (etwa alle 30 Minuten) regelmässig Holz nachgelegt wird.

Wird ein konventioneller Holzofen mehr als zur Hälfte gefüllt und im vorliegenden Fall mit rund 4 kg Holz pro Charge betrieben, um das häufige Nachlegen zu vermeiden, so entsteht auch bei offener Luftklappe eine lokale Luftmangelsituation im Ofen mit unvollständiger Verbrennung. Dies führt zu hohen Emissionen an Russpartikeln und kondensierbaren organischen Verbindungen. Die Gesamtemission an Staub und Kondensat steigt im untersuchten Beispiel dabei auf 790 mg/m<sup>3</sup>, wovon 130 mg/m<sup>3</sup> als Feststoff bei 120°C und 660 mg/m<sup>3</sup> als Kondensat anfallen. Das Kondensat, das bei der Filtermessung nach VDI nicht erfasst wird, trägt somit wesentlich zur Umgebungsluftbelastung bei.

Besonders hohe Emissionen entstehen, wenn ein Ofen nicht nur überfüllt, sondern zusätzlich die Luftklappe geschlossen wird, um die Leistung zu reduzieren und die Wärmeabgabe zu verzögern.

Hierbei entstehen im Extremfall Partikelemissionen von bis zu 5'000 mg/m<sup>3</sup> im beheizten Filter und zusätzlich bis zu 9'000 mg/m<sup>3</sup> Kondensat. Zwischen optimaler und sehr schlechter Betriebsweise eines solchen Ofens besteht somit ein Unterschied in den Staubemissionen von mehr als einem Faktor 100. Der Fehlbetrieb durch eine vollständig geschlossene Luftklappe wird bei bestimmten Fabrikaten dadurch verhindert, dass die Minimalstellung der Klappe mechanisch blockiert wird. Dennoch bleibt bei konventionellen Stückholzöfen ein sehr grosser Einfluss des Betreibers auf die Emissionen, der durch derzeitige Prüfvorschriften nicht zuverlässig erfasst wird. Dies zeigt, dass

- die tatsächlichen Emissionsfaktoren von handbeschickten Holzfeuerungen im Praxisbetrieb schwer abzuschätzen sind und
- die heutige Typenprüfung wenig aussagekräftig für den Praxisbetrieb ist.

Zuverlässig tiefe Partikelemissionen ohne grossen Einfluss des Betreibers wurden bei einem Holzofen mit seitlichem unterem Abbrand und zusätzlicher Sekundärlufteindüseung nachgewiesen. Dieser Ofen ist eine Sonderentwicklung in Kleinserie. Er erreicht mit trockenem Holz Staubemissionen von 10 bis 30 mg/m<sup>3</sup> und liegt damit noch leicht tiefer als ein konventioneller Ofen im Idealbetrieb. Der wesentliche Vorteil liegt jedoch im geringen Betreibereinfluss. Ein Überfüllen ist aufgrund der Bauart grundsätzlich ausgeschlossen, so dass auch bei typischer Betriebsweise mit feuchterem Holz (w = 20%) mittlere Staubemissionen von 30 mg/m<sup>3</sup> über mehrere Stunden erreicht werden, ohne dass Holz nachgelegt werden muss, während beim Betrieb mit nassem Holz das Feuer in kurzer Zeit ausgeht. Somit ist ein Betriebszustand mit sehr hohen Staubemissionen nahezu ausgeschlossen und die Emissionen sind nicht nur im Prüfstandsbetrieb, sondern auch in der Praxis nach oben begrenzt. Diese Sonderentwicklung hat bei den derzeitigen Prüfvorschriften und gesetzlichen Limiten jedoch keinen Marktvorteil.

Neben den Feinstaubemissionen wurden auch die CO-Emissionen kontinuierlich mitgemessen. Der Zusammenhang zwischen Staub- und CO-Emissionen unterscheidet sich für die verschiedenen Phasen eines Abbrands. Bei schlechtem Betrieb in der Startphase oder nach dem Nachlegen von Holz treten sowohl hohe Staub- als auch hohe CO-Emissionen auf. Bei gutem Betrieb mit trockenem Brennstoff sind die Staub- und CO-Emissionen gering. In der Ausbrandphase sind dagegen die CO-Emissionen hoch, während die Staubemissionen im Vergleich zu anderen Betriebsphasen vernachlässigbar sind.

Pelletöfen können in der Brennstoffzufuhr und Luftmenge automatisch geregelt sein. Der Betreiber-einfluss ist dann minimal. Die Messung an einem geregelten Pelletofen ergab mit Holzpellets eine Staubemission von 25 mg/m<sup>3</sup>. Beim Testbetrieb mit Strohpellets erhöhten sich die Staubemissionen auf rund 160 mg/m<sup>3</sup> und der Ofen war nicht für längere Zeit zu betreiben, da die Retorte mit Asche überfüllt wurde. Gleichzeitig stiegen auch die Stickoxidemissionen deutlich an.

Die biologischen Zelltets von Staub aus einem sehr schlecht betriebenen Stückholzöfen ergaben ein deutlich höheres Schädigungspotenzial als bei Dieselruss. Hieraus folgt, dass schlecht betriebene Stückholzöfen nicht nur überhöhte Emissionen erzeugen, sondern der dabei emittierte Feinstaub auch besonders gesundheitsschädlich ist. Andererseits wurde gezeigt, dass technische Lösungen zur Vermeidung solch unerwünschter Betriebszustände möglich sind.

# Abstract

## Influence of the operation mode on the particle emissions of wood stoves

Particle emissions from small wood furnaces strongly depend on furnace design, operation conditions, and type and properties of the used wood fuel. The aim of the present study is to indicate the range of variability of particle emissions and size distributions and to assess the health impacts of wood particles resulting from different combustion conditions in comparison to Diesel soot. The ability to deal with wood of different quality, which is mainly determined by the water content, is compared for the following combustion devices:

1. A metal stove with small combustion chamber and low mass of ceramics lining,
2. A modern wood stove with large combustion chamber and heavier ceramic lining which fulfils the requirements of the Swiss quality label,
3. A newly designed wood stove with two-stage combustion by gasification and consecutive gas oxidation in a separated combustion chamber with secondary air
4. A modern pellet stove operated with wood pellets and straw pellets.

In addition to conventional mass concentration measurements of solid particles, the time dependence and size distribution of the particle emissions is monitored in the size range from 20 nm to 10 µm by a combination of a scanning mobility particle sizer (SMPS) and an optical particle counter (OPC). Furthermore, the mass concentration of condensable matter is measured and chemical analyses on organic carbon and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) of solid particles and condensable matter are performed.

The resulting particle emissions vary between 20 mg/m<sup>3</sup> at 13% O<sub>2</sub> for stove no. 3 operated with dry wood, and up to 5'000 mg/m<sup>3</sup> for stove no. 1 operated under very bad conditions. An important finding is that very bad conditions are prevented by the advanced design features of stove no. 3. The size distribution is shifted significantly by operation conditions with a predominant fraction of PM 2.5 in all cases. The spectra for low emissions are comparable to modern oil burners, while bad operation creates a large fraction of particles near 0.5 to 1 µm.

The composition of the particles is an important parameter for the interaction with the human body and resulting health effects. The toxicity of the particles is tested by a standard test method with lung cells of the Chinese hamster. This cell line allows also a standard detection of chromosome defects, which are an indicator for the carcinogenic potential of the applied particles. In a recent study we have shown that particles from automatic wood furnaces are less toxic than Diesel soot [1]. This result is not transferable to small wood furnaces. Unlike automatic furnaces the particles do not mainly consist of salts but contain high concentrations of soot. In addition, condensable organic compounds are found in relevant concentrations. Consequently, the present results show, that wood particles from very bad operation conditions in stove no. 1 exhibit a significantly higher cell toxicity and carcinogenic potential than Diesel soot. Furthermore, the chemical analyses reveal substantially higher concentrations of PAHs, which are assumed to contribute to the increased toxicity.



# 1 Ausgangslage und Zielsetzung

Bei der Typenprüfung von handbeschickten Holzfeuerungen bestehen erhebliche Unsicherheiten über die Durchführung der Messungen sowie den Einfluss der Betriebsweise und des Kamins. Zu den offenen Fragen gehört insbesondere die Auslegung der Messvorschrift.

Gemäss Norm zur Durchführung der Messungen für das Qualitätssiegel und die Typenprüfung (EN 13240) erfolgt die Betriebsweise der Holzfeuerungen so, dass zuerst eine Grundglut erzeugt wird und die Messung anschliessend sofort ab Nachlegen der Holzcharge auf die Grundglut beginnt. Die Norm sollte nach Ansicht der Verfasser so interpretiert werden, dass eine vergleichsweise grosse Charge nachgelegt wird, da dies am ehesten einer praxisnahen Betriebsweise entspricht. Es wird aber vermutet, dass die Norm teilweise nur dadurch eingehalten wird, dass lediglich sehr kleine Holzmengen nachgelegt werden. Aus diesem Grund soll anhand einiger Beispiele ein Vergleich der Betriebsarten durchgeführt werden. Eine Feuerung mit unterem Abbrand kann teilweise ohne Vorfeuer kontinuierlich betrieben werden. Hier wird anhand einer Messreihe diskutiert, wie eine sinnvolle Typenprüfungs-messung durchgeführt werden kann.

Bei kleinen handbeschickten Holzöfen besteht auch Klärungsbedarf über den Einfluss des Anfeuerns und der Ausbrandphase auf die Staubemissionen. Beide Betriebszustände werden in der derzeitigen Typenprüfung nicht erfasst. Eine Messung solcher transienter Emissionsphasen mit der konventionellen Filtermethode nach VDI-Norm ist aufwändig und in der Zeitauflösung stark begrenzt. Aus diesem Grund werden in dieser Arbeit zusätzlich zur gravimetrischen Filtermessung zwei Geräte eingesetzt, die eine kontinuierliche Staubmessung mit einer Zeitauflösung von etwa 3 Minuten ermöglichen. Der Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) von TSI erfasst grössenaufgelöst die ultrafeinen Partikel von 20 nm bis etwa 700 nm Durchmesser. Ein ergänzender optischer Partikelzähler (OPC) misst die sichtbaren Partikel im Grössenbereich von 0.5 µm bis 20 µm ebenfalls grössenaufgelöst. Die Kombination dieser Geräte ermöglicht eine Aufzeichnung des Grössenspektrums. Durch Integration der Spektren kann die momentane Gesamtemission abgeschätzt werden. Darüber hinaus lässt sich für jeden Betriebszustand beurteilen, in welchem Grössenbereich Partikel emittiert werden. Diese Information ist von Interesse für die Abschätzung der Gesundheitswirkung der emittierten Stäube, da diese abhängig von ihrer Grösse an verschiedenen Orten des Atmungstrakts deponiert werden.

Die zeitaufgelösten Staubmessungen sollen im Folgenden mit den viel leichter messbaren CO-Emissionen verglichen werden, um festzustellen, in welchem Umfang ein Zusammenhang besteht. Hierdurch soll geklärt werden, ob die viel häufiger gemessenen CO-Emissionen Rückschlüsse auf die Staubemission erlauben.

Im Gegensatz zur europäischen Norm sieht die amerikanische EPA-Norm zusätzlich eine Messung kondensierbarer, nichtwässriger Verbindungen im Abgas vor. In der vorliegenden Untersuchung wurden diese Kondensate in der Probennahme miterfasst und für ausgewählte Beispiele chemisch analysiert. Anhand dieser Beispiele wird diskutiert, welchen Anteil die zusätzlichen Kondensate an den Gesamtemissionen für unterschiedliche Betriebszustände haben.

Für ausgewählte Messreihen wurde im Rahmen des Projekts Gesundheitswirkung von Partikeln eine zusätzliche Staubprobennahme durchgeführt. Die gesammelten Stäube und Kondensate von ausgewählten Versuchen wurden daraufhin für biologische Zelltests verwendet, um deren biologische Schädigung im Vergleich zu anderen Stäuben abzuschätzen.

## 2 Messprogramm

### 2.1 Handbeschickte Holzfeuerungen

Um den Einfluss der Feuerungstechnik bei handbeschickten Feuerungen aufzuzeigen, wurden drei unterschiedliche Holzöfen untersucht.

		
<p>Ofen Typ 1 Einfacher Metallofen mit kleiner Brennkammer und kleinem Wärmeübertrager</p> <p>Ofen Typ 2 Guter, heutiger Zimmerofen mit (unkontrolliert eingemischter) Sekundärluft von oben in den Feuerraum einströmend und grosser, voll schamottierter aber in den Füllraum integrierter Brennkammer und anschliessendem Wärmeübertrager</p> <p>Ofen Typ 3 Ofen mit unterem Abbrand, Sekundärlufteinäsung in verjüngter Zone und separater Brennkammer sowie anschliessendem Wärmeübertrager</p>		

Bild 1: Ofen-Typen zum Vergleich. Ofen Typ 1 ist etwa halb so hoch wie Typ 2.

**Ofen Typ 1:** **Einfacher Metallofen** mit oberem Abbrand, kleinem Feuerraum und kaum ausgeprägter Nachbrennkammer (typisch für Billigöfen, ohne Qualitätssiegel).

**Ofen Typ 2:** Typischer **heutiger Zimmerofen** der gehobenen Klasse mit grossem schamottiertem Feuerraum und oberem Abbrand. Sekundärluft und Ausbrandzone sind zwar vorhanden, jedoch keine räumlich klare Trennung zwischen den Zonen und eine Sekundärluftzuführung direkt im Feuerraum, nicht in einer verjüngten Zone (typisch für heutigen guten Ofen, erfüllt heutiges Qualitätssiegel)

**Ofen Typ 3:** **Zimmerofen mit zweistufiger Verbrennung** in Anlehnung an einen unteren Abbrand sowie mit Sekundärluftzufuhr in einer verjüngten Zone und einer schamottierten Nachbrennkammer. Der Ofen ist derzeit als Sonderbauform in Kleinserie verfügbar, wird aber mangels Marktvorteil gegenüber konventionellen Öfen (welche das Qualitätssiegel in der Laborprüfung bereits erfüllen) nicht mehr produziert.

Die Messungen an den drei Holzöfen wurden mit trockenem und feuchtem Holz mit folgendem Messprogramm durchgeführt:

- Messung von zwei Holzöfen je mit Nachlegen auf Grundglut und ohne Vorfeuer. Dieser Vergleich wird für den Ofen Typ 1 und Typ 2 durchgeführt. Für den Ofen Typ 3 ist ein Betrieb mit Nachlegen auf Grundglut unmöglich, weshalb die Messung ohne Vorfeuer erfolgt, jedoch die Interpretation der Betriebsart nach Norm diskutiert wird.
- Vergleich des Emissionsverhaltens von drei unterschiedlichen Holzarten. Zum einen wird ein in Typenprüfungsmessungen als Referenz verwendetes und für Holzöfen optimal geeignetes Holz eingesetzt (Buchenholz trocken mit Wassergehalt  $w = 12\%$ ). Für den Test eines praxisnahen Betriebs wurde Buchenholz mit einem höheren Wassergehalt von  $w = 20\%$  eingesetzt. Als besonders schwieriger Brennstoff wurde schliesslich ein Holz verwendet, welches auf Grund der dichten Struktur schwieriger zu verbrennen ist (Roble Hualle, wissenschaftlich *Notofagus Obliqua* aus Chile).

## 2.2 Pelletofen

Um eine Vergleichsbasis mit anderen Brennstoffen zu haben, wurden die Staubemissionen an einem Pelletofen (Bild 2) für zwei verschiedene Sorten Pellets durchgeführt. Da der Betrieb eines solchen Ofens automatisiert ist, ist der Einfluss des Betreibers gering. Die Emissionen konnten daher bei normalen Betriebseinstellungen des Ofens charakterisiert werden.



Bild 2: Pelletofen vom Typ Wodtke mit 8 kW Nennleistung

## 2.3 Experimenteller Aufbau und Messgrößen

### 3.3.1 Staubmessung

Die Absaugung für die gravimetrische Staubmessung erfolgte über eine Sonde im senkrechten Abgasrohr oberhalb des Ofens. Der Sondendurchmesser war so gewählt, dass sich bei voller Leistung des Ofens eine isokinetische Absaugung ergibt. Die Abgassgeschwindigkeit wurde mit einem Staurohr gemessen. Die Filterhülse war ausserhalb des Kamins angebracht und beheizt. Für die Messung nach EPA-Norm wurde nach dem beheizten Filter eine Serie von Gaswaschflaschen mit nachgeschaltetem Filter bei Raumtemperatur angebracht. Nach diesem Modul folgte die Absaugeinheit mit Pumpe und Messung der Gasmenge.

Die VDI-Norm für Staubmessungen sieht eine Temperatur von 180°C für die beheizte Filterhülse vor, die EPA-Norm dagegen eine Temperatur von 120°C. In der vorliegenden Untersuchung wurde der Filter routinemässig nach EPA-Norm auf 120°C beheizt. Für Partikel, die zwischen 120°C und 180°C noch in der Gasphase sind, ergibt sich ein hypothetischer Unterschied in der Messung der filterbaren Stäube. Die VDI-Messung würde in einem solchem Fall geringfügig tiefere Konzentrationen auf dem Filter ergeben als die EPA-Methode. Vorversuche mit verschiedenen Filtertemperaturen ergaben jedoch keine messbaren Unterschiede.

In den Messergebnissen werden die Resultate für den beheizten Filter als Messergebnis nach VDI-Norm bezeichnet.

Der wesentliche Unterschied der EPA-Messung liegt in der zusätzlichen Erfassung kondensierbarer Partikel. Diese wurden routinemässig auf dem unbeheizten Filter 2 nach den Waschflaschen erfasst. In ausgewählten Versuchen wurde zusätzlich der Kondensatanteil in den Waschflächen bestimmt. Die Summe aus filterbaren Partikeln und allen Kondensaten wird als Gesamtstaub nach EPA-Norm angegeben.

### 3.3.2 On-line Partikelmessungen

Für die Messung der Partikel > 0.5 µm wurde ein Streulichtgerät mit optischer Volumenabgrenzung [2] eingesetzt. Das verwendete Gerät stammt ursprünglich von der Fa. Palas (Typ PCS 2000) und wurde im ABB Forschungszentrum modifiziert. Es verfügt über eine beheizbare Küvette, so dass eine direkte Messung des unverdünnten Abgases bei 120°C möglich ist. Die Auswertelektronik des Gerätes wurde von ABB und PI Electronics in Baden-Dättwil komplett ersetzt, um einen zuverlässigen Betrieb bei höheren Absauggeschwindigkeiten zu gewährleisten. Hierdurch werden Probennahmeverluste bei grossen Partikeln minimiert. Das Gerät wurde während der Messungen mit zertifizierten Polystyrol-Partikeln kalibriert. Diese wurden in einem Aerosolgenerator von TSI (Typ Trijet) redispergiert. Bei sehr hohen Konzentrationen von Partikeln im Abgas, also z.B. bei schlechtem Betrieb der Ofentypen 1 und 2 lag die Partikelanzahl (> 0.5 µm) über der maximal messbaren Konzentration von  $2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$ , so dass die Datenerfassung die hohen Zählraten nicht mehr verarbeiten konnte. In diesen Fällen war der Einsatz einer beheizten 1:10 Verdünnungsstufe notwendig.

Feinpartikel < 0.5 µm wurden mit einem SMPS 3071 von TSI erfasst. Das Gerät kann nur bei Raumtemperatur messen, so dass das Abgas unter Vermeidung von Kondensation abgekühlt werden muss. Dies geschah in Anlehnung an Messempfehlungen von TSI durch das Hintereinanderschalten einer

beheizten 1:10 Verdünnungsstufe, gefolgt von einer weiteren 1:10 Verdünnung bei Raumtemperatur. Das SMPS-System wurde vor Beginn der Ofenmessungen durch eine Parallelmessung mit einem modernen SMPS an einem Russgenerator an der Fachhochschule Nordwestschweiz überprüft [3]. Die Spektren von drei verschiedenen Partikelgrößen ergaben dabei eine gute Übereinstimmung.

Der gesamte Messaufbau ist in Bild 3 zu sehen.

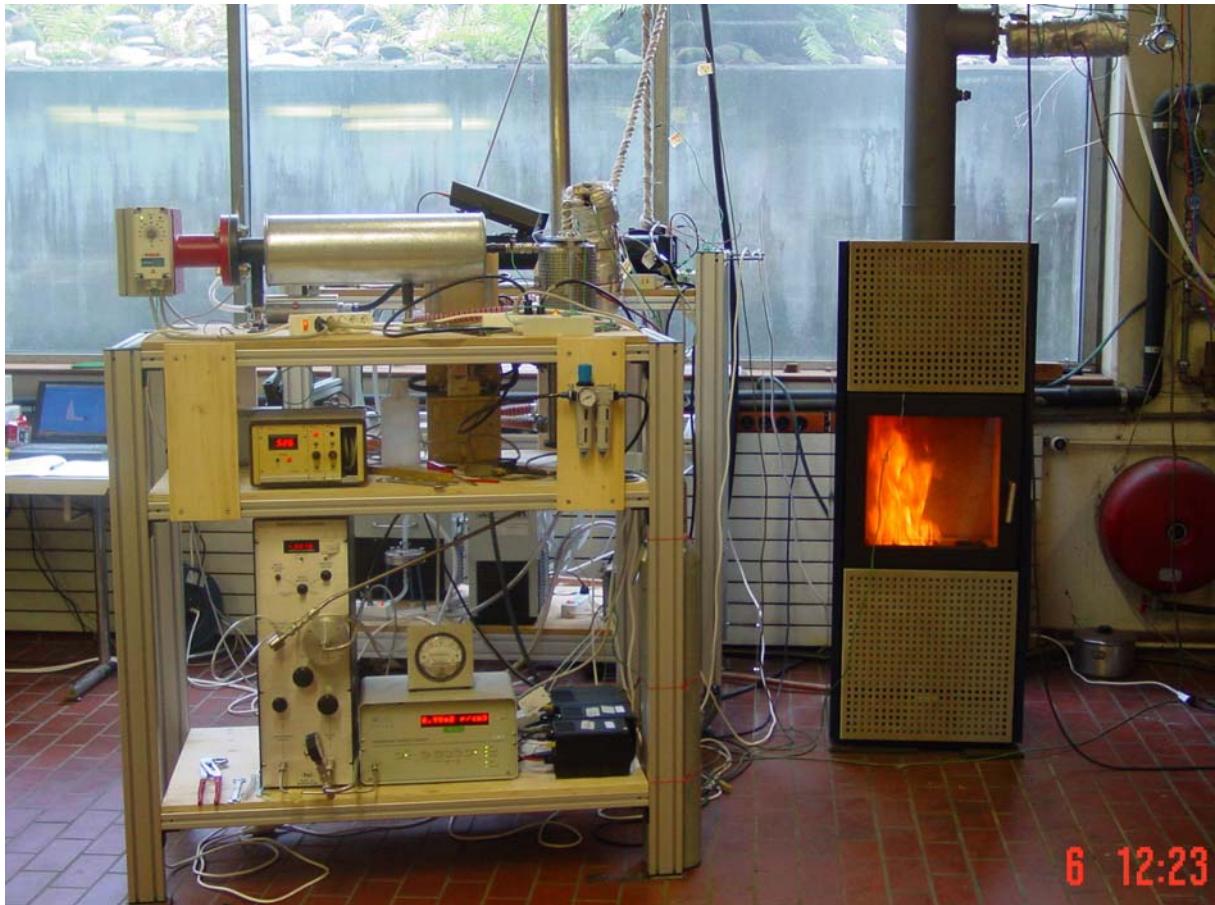


Bild 3: On-line Partikelmessaufbau mit beheizter Verdünnung, SMPS im Vordergrund und dem Streulichtgerät an der 2. Probennahmeleitung im Hintergrund.

### 3.3.3 Standard-Messgrößen

- Über die Gasanalytik und Messdatenerfassung des Prüfstands wurden folgende Messgrößen quasi-kontinuierlich in 15 Sekundenintervallen erfasst:
- **CO, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>**, sowie Abgastemperatur **T<sub>a</sub>** und Temperatur innerhalb der Brennkammer **T<sub>v</sub>**

### 3 Ergebnisse der gravimetrischen Staubmessung

Die Ergebnisse der Staubmessungen für die Holzöfen vom Typ 1 bis 3 sind in Tabelle A1-A3 im Anhang zusammengefasst und werden im Folgenden für jeden Ofentyp diskutiert. Alle Staubkonzentrationen im folgenden Text und der Tabelle beziehen sich auf die Abgasmenge bei Normvolumen und sind auf einen Sauerstoffgehalt im Abgas von 13 Vol.-% normiert, wenn nicht anders angegeben.

Der Kaminzug wurde über eine Unterdruckmessung erfasst und während der gesamten Betriebszeit auf Werte von  $12 \pm 2$  Pascal eingeregelt. Zum Anfeuern wurde ein künstlicher Kaminzug durch Eindüsen von Pressluft mit einem Injektor erzeugt. Nach dem Anfeuern wurde der Kaminzug durch Klappen auf den oben genannten Wert zurückgeregelt. Hierdurch ergibt sich ein praxisnaher Wert im normalen Betrieb, der auch bei Typenprüfungen eingestellt wird. Witterungsbedingte Einflüsse auf den Kaminzug werden dadurch kompensiert und die Messungen an unterschiedlichen Tagen sind vergleichbar. Allerdings wird die Anfeuerphase durch den künstlichen Kaminzug verbessert. In der Praxis können daher in der Anfeuerphase höhere Staubemissionen als die hier gemessenen Werte auftreten.

#### 3.1 Ofentyp 1: Einfacher Metallofen

Bei Betrieb mit trockenem Holz (Buche w = 12%) unter Prüfstandsbedingungen werden mit diesem Ofen zuverlässig Staubwerte unter  $125 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>) erreicht. Diese Werte sind unter der Rubrik "ideal / Betriebsweise nach Norm" in Tabelle A1 aufgeführt. In all diesen Fällen wurde pro Charge 1,5 kg Holz in Form von 2 Stücken à 750 g nachgelegt. Zum Anfeuern wurden zusätzlich ca. 300 g feingespaltenes Holz (Tanne und Buche), sowie handelsübliche Anzündwürfel verwendet. Die höchsten Staubwerte ergaben sich beim konventionellen Anfeuern von unten, d. h. auf die Zündwürfel und das Anfeuerholz wurden die grossen Holzstücke gelegt. Beginnt die Staubmessung erst 10 Minuten nach dem Anfeuern, liegen die gemessenen Emissionen bereits tiefer. Für eine Messung ab Start ergeben sich bessere Werte, wenn das Holz von oben angezündet wird, das Anfeuermaterial also auf den grossen Holzstücken liegt (Bild 4). Diese Betriebsweise wird von Tiba für alle eigenen Modelle empfohlen.

Die Messempfehlung für Stückholzöfen sieht keine Messung des Anfeuerverhaltens vor, sondern beschränkt sich auf das **Nachlegen auf** eine bereits im Vorfeuer erzeugte **Grundglut**. Wird der Ofen in dieser Weise betrieben, also ein Vorfeuer angezündet, nach ca. 30 Minuten die Glut mit einem Schürhaken gleichmässig verteilt, um auf diese Glut 2 Holzstücke à 750 g zu legen, so ergeben sich reproduzierbar sehr tiefe Staubemissionen von  $20 \pm 10 \text{ mg/m}^3$ . Hierbei wurde die Messung entweder sofort oder spätestens 5 Minuten nach dem Nachlegen gestartet und ein Zeitraum von 20 Minuten erfasst. Die später gestarteten Messungen haben einen Trend zu tieferen Werten, der jedoch im Bereich der Messunsicherheit der Gravimetrie liegt.

Der Ausbrand des Ofens hat im Gegensatz zum Anfeuern nur einen geringen Einfluss auf die Gesamtstaubemissionen. Wird die Ausbrandphase, bei der erhöhte CO-Emissionen entstehen, mitgemessen, ergibt sich ein Wert, der von den restlichen Normmessungen nicht signifikant abweicht.



Bild 4: Ofen 1 im Ideal-Betrieb mit trockenem Holz, von oben angezündet (links), und Nachlegen auf Grundglut (rechts).

Eine Beurteilung der Staubemissionen des Ofens aufgrund einer solchen idealisierten Prüfstandsmessung würde sehr gut ausfallen. Sowohl bestehende als auch die geplanten strengereren Normen werden eingehalten und sogar deutlich unterschritten. Das hierbei verwendete Buchenholz war 2 Jahre an einem trockenen Ort gelagert und erfüllte mit einem Wassergehalt von  $w = 12\%$  die Empfehlung für Prüfstandsmessungen zur Erteilung eines Qualitätssiegels.

Der bisher getestete Prüfstandsbetrieb setzt ein regelmässiges Nachlegen von je 2 Holzstücken à 750 g im Abstand von ca. 30 Minuten voraus. Wird zu spät nachgelegt oder werden grössere Holzstücke verwendet, ergeben sich abweichende Emissionen vom Idealbetrieb. Im Praxisbetrieb von Holzöfen wird zudem auch Holz mit höherem Wassergehalt verwendet.

Um den Praxisbetrieb besser abzubilden, wurde in einer zweiten Messreihe Buchenholz verwendet, das weniger lange gelagert war und einen höheren Wassergehalt von  $w = 20\%$  hatte. Als typische Betriebsweise wurde mit trockenem Holz ( $w = 12\%$ ) angefeuert und eine grössere Charge feuchtes Holz ( $w = 20\%$ ) nachgelegt. Die über knapp eine Stunde gemessenen Staubemissionen sind dabei deutlich höher, wenn Kondensate mit erfasst werden. Die Gesamtkonzentration auf Filter 1 und 2 beträgt  $240 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-%  $\text{O}_2$ ), während nach VDI-Norm weniger als halb so viel gemessen wird. Der Unterschied kommt vom hohen Anteil an kondensierbaren Stoffen, die bei dieser Betriebsweise entstehen und auf dem unbeheizten Filter nach der Kondensationsstufe abgeschieden werden. Die Flüssigkeit in den Waschflaschen verfärbt sich dabei gelblich. Zudem entsteht der typische beissende Geruch von schlecht verbranntem Holz.

Wird eine Charge von feuchtem Holz zu spät nachgelegt, entsteht für längere Zeit eine Rauchentwicklung mit Emissionen von mehr als  $1000 \text{ mg/m}^3$  (Details in Tabelle A1). Erst wenn das

nachgelegte Holz Feuer gefangen hat, d. h. sich sichtbare Flammen ausbilden, liegen die Emissionen wieder im Bereich von  $220 \text{ mg/m}^3$ .

Will der Betreiber eine möglichst gleichmässige Wärmeabgabe über mehrere Stunden ohne Holz nachlegen zu müssen, z. B. beim Betrieb über Nacht, so schlägt die Bedienungsanleitung für den Holzofen 1 folgendes Prozedere vor (Zitat, übersetzt):

- (a) *Erreichen Sie eine gute Glut*
- (b) *Legen Sie eine ganze Ladung von neuem Brennholz nach*
- (c) *Sobald die nachgelegten Scheiter ebenfalls Feuer fangen, stellen Sie den Luftregulierungshebel auf "Low".*

Diese Betriebsweise wurde im Folgenden mit Buchenholz mit  $w = 20\%$  getestet. Nach einer längeren Betriebszeit des Ofens mit derselben Holzsorte wurde auf eine gut ausgebildete Grundglut im heißen Ofen eine Menge von 5,7 kg Holz eingefüllt. Nachdem die Holzstücke Feuer gefangen hatten, wurde die Luftklappe geschlossen (Regelstellung "low"). Die Flammen gingen dadurch aus und es entstand sowohl im Feuerraum (Bild 5) als auch am Kamin (Bild 6) eine starke Rauchentwicklung. Die Staubmessung über einen Zeitraum von 50 Minuten ergab Emissionen von  $13'800 \text{ mg/m}^3$  nach EPA-Norm, sowie von  $4800 \text{ mg/m}^3$  nach VDI.



Bild 5: Ofen 1 gefüllt mit Holz im Betrieb mit geschlossener Luftklappe. Oberhalb der Holzstücke sind Rauchschwaden erkennbar.

Es ist offensichtlich, dass eine solche Betriebsweise sehr ungünstig ist und unbedingt vermieden werden sollte. Leider dürfte sie in der Praxis dennoch angewendet werden. Besonders kritisch ist, dass die Bedienungsanleitung eines importierten Ofens einen solchen Betrieb empfiehlt.

Um den Einfluss des Brennstoffs auf die Staubemissionen zu erfassen, wurde in einer zusätzlichen Messreihe eine Holzsorte gewählt, die ungünstige Eigenschaften aufweist und in Chile zu lokalen Luftbelastungen führt. Hierbei handelt es sich um die in Chile verbreitete Holzart "Roble Hualle" (lateinisch: *notofagus obliqua*), die der europäischen Buche ähnlich ist, aber eine dichtere Konsistenz aufweist. Hierdurch trocknet das Holz schlechter ab und auch der Ausgasungsprozess während der Verbrennung ist verlangsamt. Verwendet wurde relativ trockenes Holz mit  $w = 16\%$  zum Anfeuern und feuchtes Holz mit  $w = 33\%$ , welches für Chile typisch ist, für den anschliessenden Betrieb. Die Staubemissionen liegen bei diesem Brennstoff durchwegs im Bereich von  $600 \text{ mg/m}^3$  oder leicht

darüber (Tabelle A1). Lediglich während der Ausbrandphase wurden tiefere Emissionen gemessen. Ein Grossteil dieser Emissionen sind filterbare Stäube; die Messung des beheizten Filters alleine ergibt Werte zwischen  $400 \text{ mg/m}^3$  und  $600 \text{ mg/m}^3$ .

Somit besteht ein Unterschied zum typischen Betrieb mit Brennstoff besserer Qualität (Buche mit  $w = 20\%$ ). Der Anteil kondensierbarer Partikel, der auf Filter 2 abgeschieden werden, ist bei beiden Betriebsarten vergleichbar und beträgt etwa  $150$  bis  $200 \text{ mg/m}^3$ . Der wesentliche Unterschied zu der schlechteren Holzsorte Roble Hualle liegt im deutlich höheren Anteil an filterbaren Stäuben, also Feststoffpartikeln, die bei  $120^\circ\text{C}$  nicht in der Gasphase sind. Diese Partikel bestehen im Fall der schlechten Verbrennung im Holzofen vorwiegend aus unverbrannten Kohlenstoff, wie eine chemische Analyse zeigt (Kapitel 8).

Zusammenfassend ergeben sich für den Holzofen 1 erhebliche Unterschiede in den Staubemissionen, die drastisch von der Betriebsweise und zudem vom Brennstoff abhängen. Die Bandbreite der gemessenen Staubemissionen auf Filter 1 und 2 liegt zwischen  $20 \text{ mg/m}^3$  und  $6600 \text{ mg/m}^3$ . Im Vergleich zum Optimalbetrieb auf dem Prüfstand können die Emissionen bei schlechtem Praxisbetrieb um den Faktor 300 (!) höher sein. Schwieriger Brennstoff führt mit  $600 \text{ mg/m}^3$  zu einer 30 fach höheren Emission als die Typenprüfung auf einem Prüfstand nach bestehenden Normen.



Bild 6: Deutlich sichtbare Rauchfahne beim Betrieb von Ofen 1 unter schlechten Bedingungen.

### 3.2 Ofentyp 2: Moderner Ofen mit Qualitätssiegel

Beim "Montanino 2" der Firma Tiba handelt es sich um einen modernen Cheminéeofen der gehobenen Preisklasse. Er verfügt über einen grossen Brennraum mit Schamottierung und erfüllt das schweizerische Qualitätslabel für tiefe Staubemissionen und hohen Wirkungsgrad.

Die Staubemissionen im Idealbetrieb mit trockenem Holz sind bei allen Messbedingungen  $< 65 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>). Der Ofen wurde hierbei von oben angezündet, so wie es die Betriebsanleitung vorsieht (Bild 7). Die höchsten Staubwerte ergeben sich für den Fall, dass die Anfeuerphase mitgemessen wird. Die Normmessung, also Nachlegen auf Grundglut ergibt eine Staubemission von 40 mg/m<sup>3</sup>. Erstaunlicherweise ist dieser Wert höher als beim einfachen Holzofen 1. Eine mögliche Erklärung ist die lange Aufwärmzeit aufgrund der ausgeprägten Schamottierung dieses Ofens. Nach einer halben Stunde Vorfeuer hat der Ofen seine volle Betriebstemperatur noch nicht erreicht, so dass beim Nachlegen auf Grundglut in der Anfangsphase noch höhere Emissionen entstehen können. Mit 40 mg/m<sup>3</sup> werden jedoch die bestehenden und die geplanten Grenzwerte noch immer deutlich unterschritten.



Bild 7: Ofentyp 2 im Idealbetrieb. Der Ofen wurde mit einer kleinen Menge trockenem Holz beladen und von oben angezündet (links). Nach Erreichen einer Grundglut wurden 2 kleine Holzstücke à 750 g nachgelegt (rechts).

Der wesentliche Unterschied zum Ofen 1 zeigt sich beim Betrieb mit feuchtem Brennstoff, nachdem der Ofen seine Betriebstemperatur erreicht hat. Wenn feuchte Buche mit w=20% auf die Grundglut nachgelegt wird, so ergibt sich fast kein Unterschied zum Betrieb mit trockener Buche; die Staubemis-

sion bleiben bei einem tiefen Wert von  $50 \text{ mg/m}^3$ , vorausgesetzt dass durch eine offene Luftklappe eine ausreichende Luftzufuhr gewährleistet ist.

Auch dieser Ofen emittiert jedoch deutlich höhere Staubmengen, wenn er nicht alle 30 Minuten mit kleinen Holzstücken beladen wird, sondern grössere Holzmengen eingefüllt werden. Abhängig von den gewählten Bedingungen schwanken die normierten Emissionen zwischen  $70 \text{ mg/m}^3$  und  $250 \text{ mg/m}^3$ . Der Ofen hat dann über längere Phasen sehr tiefe Luftüberschusszahlen von Lambda 1.2 bis 1.4, was zu lokalem Luftmangel führt. Die nicht auf  $13\% \text{ O}_2 (\lambda = 2.63)$  normierten Emissionen lagen bei maximal  $460 \text{ mg/m}^3$  (bei  $\lambda=1.4$ ) und führten zu einer sichtbaren Rauchfahne im Abgaskamin.

Ähnlich wie beim Metallofen führt das Überfüllen des Ofens zu einem teilweise hohen Anteil an Kondensaten. Auch hier ist dann eine Gelbfärbung der Flüssigkeit in den Waschflächen der Kondensationsstufe zu beobachten.

Eine chemische Analyse der Kondensatflüssigkeit ergab deutlich messbare Mengen an organischem Kohlenstoff ( $1200 \text{ mg/l}$ ) und an polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (Summe der 16 EPA PAK:  $520 \mu\text{g/l}$ ). Die Flüssigkeit hatte einen pH-Wert von 3,2. Es wurden somit beim schlechten Betrieb säurehaltige Abgase produziert. Hierbei waren vorwiegend Sulfationen ( $55 \text{ mg/l}$ ) und zu einem kleinen Teil Chloridionen ( $3 \text{ mg/l}$ ) nachweisbar. Die Alkaliionen, die bei automatischen Feuerungen zur Salzbildung führen, waren dagegen im Kondensat nicht vorhanden, bzw. unter der Nachweisgrenze ( $< 1 \text{ mg/l}$ ).

Auf einen sehr schlechten Betrieb, also Überfüllen des Ofens **und** Schliessen der Luftklappe wurde in dieser Messreihe verzichtet. Die Luftklappe ist bei diesem Modell so ausgelegt, dass ein vollständiges Schliessen blockiert ist, so dass eine minimale Luftzufuhr gewährleistet wird. Inwieweit diese Massnahme ausreicht, um wirklich schlechte Betriebsbedingungen zu vermeiden, müsste in einer erweiterten Messreihe unter Einbezug verschiedener Ofentypen geklärt werden.

Beim Betrieb mit der ungünstigen Holzart Roble Hualle ( $w = 33\%$ ) sind die Staubemissionen zwar erhöht, liegen aber deutlich tiefer als beim Ofentyp 1. Die gemessenen Werte von Filter 1 und 2 liegen einheitlich bei etwa  $200 \text{ mg/m}^3$ , wovon etwa 50% Kondensate sind.

Die Bandbreite aller gemessenen Staubemissionen beim Ofentyp 2 liegt im Bereich zwischen  $40 \text{ mg/m}^3$  und  $790 \text{ mg/m}^3$ , der maximale Unterschied zwischen Normmessung und getestetem Praxisbetrieb ist also geringer als bei Ofentyp 1. Obwohl dieser Ofen bei einer Normmessung etwas schlechter abschneidet als Ofentyp 1, sind im Praxisbetrieb tiefere Staubemissionen zu erwarten und der Einfluss von schwierigem (Holz-)Brennstoff auf überhöhte Emissionen ist weniger stark als beim Ofentyp 1.

### 3.3 Ofentyp 3: Zweistufige Verbrennung

#### 3.3.1 Beschreibung Ofen 3

Der Multifunktionsofen "Sirius" ist eine Sonderentwicklung der Firma Tiba, die bisher in sehr kleiner Stückzahl auf dem Markt verkauft wurde. Bei diesem Ofen wird eine grössere Menge Stückholz von der Seite aus in einen hinten liegenden Füllschacht eingefüllt. Nach dem Anzünden von oben brennt der Ofen über mehrere Stunden, ohne dass Holz nachgelegt werden muss. Der Ofen verfügt über eine primäre Brenn- und Ausgasungszone und eine separate Sekundärlufteindüsung mit anschliessender grosser Brennkammer (Bild 8).

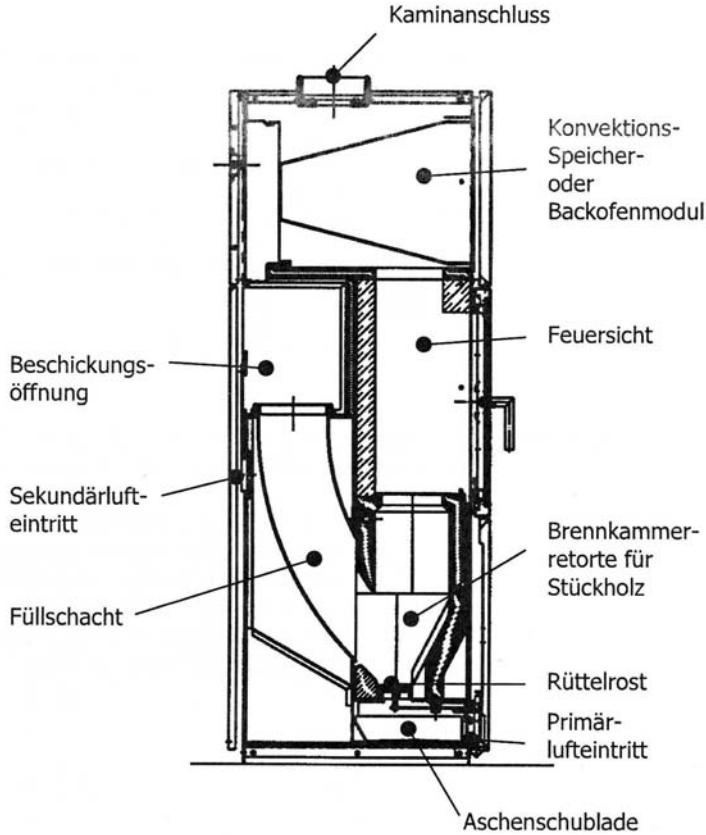


Bild 8: Prinzipskizze des Ofens (links) und Betrieb im Labor (rechts). Die beheizte Staubmessung ist oben rechts am Abgasrohr montiert.

### 3.3.2 Verbrennungsphasen am Beispiel von Ofen 3

Ein Hauptziel für die Konstruktion und den Betrieb von Holzfeuerungen ist die Erreichung einer annähernd vollständigen Verbrennung während der stationären Verbrennungsphase. Während des Anfahrvorgangs sind erhöhte Emissionen dagegen unvermeidbar. Als weiteres Ziel ist aber anzustreben, dass der Anfahrvorgang möglichst kurz und die stationäre Verbrennungsphase im Verhältnis zur Anfahrphase möglichst lang ist. Eine lange stationäre Abbrandphase kann in Stückholzfeuerungen mit unterem Abbrand oder wie bei Ofen 3 mit umgelenktem Unterabbrand dadurch erreicht werden, dass während des Abbrands kontinuierlich Holz aus dem Füllschacht in die Verbrennungszone nachrutscht.

In der vorliegenden Untersuchung wurde der Einfluss des Anfahrvorgangs auf die Gesamtemissionen an Kohlenmonoxid und an Feinstaub bestimmt, indem die Partikelemissionen mittels SMPS und OPC quasi-kontinuierlich erfasst und auf Massenkonzentrationen umgerechnet wurden, welche mittels gravimetrischer Staubmessung validiert wurden. Durch Messung des Abgasvolumenstroms wurde daraus der Massenstrom der Emissionen ermittelt und über die gesamte Abbranddauer aufsummiert. Damit kann der zeitliche Verlauf des Anteils des während eines Abbrands gesamthaft emittierten Feinstaus ermittelt und die Relevanz des Kaltstarts und weiterer Phasen mit erhöhten Emissionen quantitativ beurteilt werden. Bild 9 zeigt dazu die Auswertung der Kohlenmonoxid- und Partikelemissionen während eines Abbrands im Holzofen mit zweistufiger Verbrennung, welcher inklusive Startphase mittlere Staubemissionen über den gesamten Abbrand von unter  $20 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>) erzielt. Die Emissionsdaten sind dabei in Frachten in g/h bzw. mg/h ausgewiesen. Daraus geht der typische Anfahrpeak an Kohlenmonoxid und Partikelemissionen hervor. Im Weiteren geht hervor, dass im Ausbrand hohe Kohlenmonoxidemissionen auftreten, während die Partikelemissionen nicht ansteigen, da im Ausbrand nur noch Kohlenstoff unter Bildung von Kohlenmonoxid vergast, jedoch keine organischen Substanzen als Brennstoff mehr zur Verfügung stehen und damit auch nur geringe Mengen an Kohlenwasserstoffen und organischen Partikel freigesetzt werden.

Bild 9 zeigt den zeitlichen Verlauf des Anteils an Kohlenmonoxid und Partikeln über den Abbrand, Bild 10 zeigt den Anstieg der Frachten an Kohlenmonoxid und Feinstaub über den Abbrand. Daraus geht hervor, dass nach rund 10% der Abbranddauer bereits rund 50% der und nach 50% des Abbrands über 90% der gesamten Partikelmenge emittiert wurde. Im Gegensatz dazu wurden nach 10% Abbranddauer weniger als 10% des gesamten Kohlenmonoxids und nach 50% der Abbranddauer weniger als 50% des Kohlenmonoxids emittiert. Dies zeigt, dass zur Erfassung der Partikelemissionen die erste Abbrandhälfte und dabei insbesondere der Anfahrvorgang entscheidend ist, während der Ausbrand für die Partikelemissionen nur von untergeordneter Bedeutung ist. Gleichzeitig zeigen diese Resultate auch auf, dass allein anhand des Kohlenmonoxidegehalts nicht sicher die Höhe der Feinstaubemissionen geschlossen werden kann, da Staub und Kohlenmonoxid ein unterschiedliches Verhalten während der verschiedenen Abbrandbedingungen aufweisen.

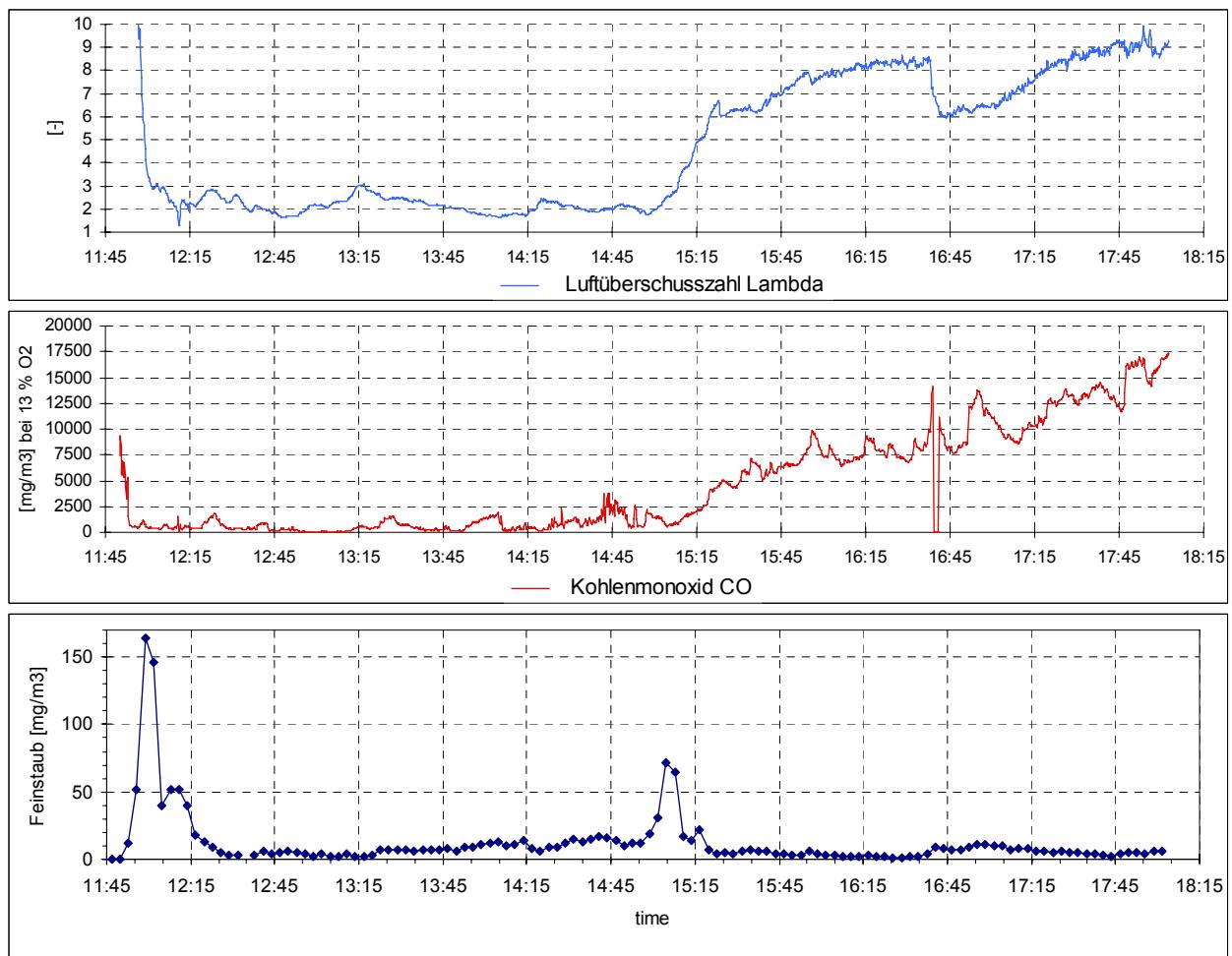


Bild 9 Zeitlicher Verlauf von Luftüberschuss, Kohlenmonoxid und Partikelemissionen während eines Abbrands im Holzofen 3 mit zweistufiger Verbrennung bei Betrieb mit trockener Buche ( $w=10\%$ ). Die Staubkonzentration wurde aus den on-line Partikelmessungen errechnet (Kap. 5)

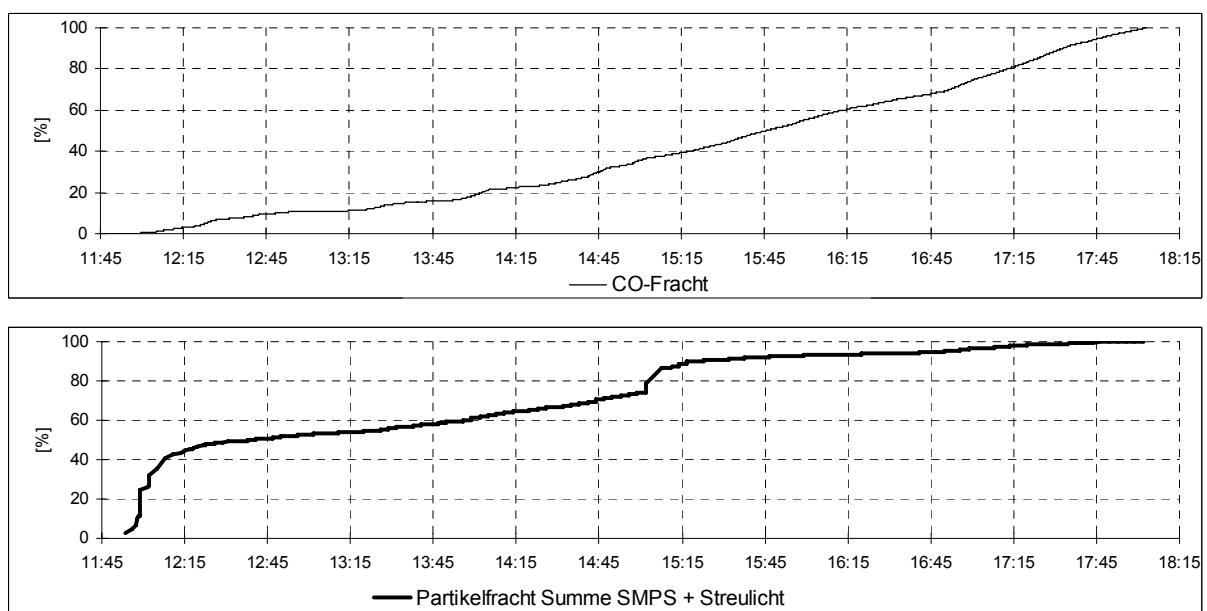


Bild 10 Zeitlicher Verlauf des prozentualen Anteils an den Gesamtemissionen an Kohlenmonoxid und Partikelemissionen während des gleichen Abbrands wie in Bild 9.

### 3.3.3 Emissionen von Ofen 3

Bei diesem Ofen entfällt die Messung "Nachlegen auf Grundglut", da nach dem Befüllen und Anzünden des Ofens ein kontinuierlicher Betrieb erreicht wird. Die Messung in idealer Betriebsweise erfolgte auch hier mit trockenem Buchenholz mit  $w = 12\%$ . Die Staubemissionen lagen bei dieser Holzsorte bei allen Testbedingungen im Bereich  $20 \pm 10 \text{ mg/m}^3$ , d. h. sowohl Messungen ab Start mit Anfeuerverhalten als auch kontinuierlicher Betrieb lieferten durchweg tiefe Werte. Als Normmessung ist bei diesem Ofen eine Messung im kontinuierlichen Betrieb sinnvoll und vergleichbar mit den anderen Ofentypen. Wie bei den anderen Öfen spielt auch hier die Ausbrandphase eine untergeordnete Rolle für die Staubemissionen (Bild 9 und Bild 10).

Beim Betrieb mit feuchter Buche ( $w=20\%$ ) lag die Emission mit  $30 \text{ mg/m}^3$  am oberen Rand des Fehlerbands bei trockenem Brennstoff. Dieser Betriebszustand wurde als typisch angenommen und ist die beste Vergleichsbasis zum typischen Betrieb der anderen Öfen mit dem gleichen Brennstoff. Eine schlechte Betriebsweise durch Überfüllen ist beim "Sirius" grundsätzlich nicht möglich. Betriebszustände mit erhöhten Emissionen ergeben sich bei diesem Ofen, falls das Holz aus dem Füllschacht schlecht nachrutscht und sich dadurch Brücken im Glutbett bilden. Solche Phasen wurden kurzzeitig mit der on-line Partikelmessung detektiert. Sie sind in den angegebenen mittleren Emissionswerten enthalten.

Ein Betrieb mit der schwierigen Holzsorte Roble Hualle ist bei mittleren Emissionen von  $60 \pm 15 \text{ mg/m}^3$  möglich. Hierbei müssen allerdings wechselweise feuchte und trockene Holzscheite in den Füllschacht gegeben werden, wenn Holz mit dem hohen Wassergehalt von 33% mitverbrannt werden soll. Dieser Betrieb wurde mit einer Füllung von 6,5 kg trockenem und 9,6 kg nassem Holz realisiert. Die Konzentration an zusätzlichen kondensierbaren Partikeln war bei dieser Betriebsart im Bereich der Nachweisgrenze von  $1 \text{ mg/m}^3$ . In Vorversuchen mit Roble Hualle wurden bei schlecht optimiertem Betrieb maximal  $10 \text{ mg/m}^3$  an kondensierbarem Material gefunden.

Ein Betrieb mit sehr nassem Brennstoff alleine ist bei diesem Ofen nicht möglich. Dies wurde am Extrembeispiel von frisch geschlagenem Thuja-Holz mit  $w \approx 50\%$  getestet. Wird dieser Brennstoff nach der Anfeuerphase alleine nachgefüllt, entstehen zunächst höhere Emissionen, danach löscht das Feuer vollständig aus. Ein Betrieb mit einem Thuja/Buche Gemisch im Verhältnis 1:1 konnte dagegen noch mit tiefen Staubemissionen von  $40 \text{ mg/m}^3$  realisiert werden.

Insgesamt liegen die Emissionen bei diesem Ofen somit im typischen Betrieb zuverlässig bei  $30 \text{ mg/m}^3$  oder tiefer. Erst bei Verwendung von sehr schwierigem Brennstoff verdoppeln sich die Emissionen. Ein Betrieb unter sehr ungünstigen Bedingungen ist im Gegensatz zu den anderen Ofentypen aufgrund der Konstruktionsmerkmale weitgehend ausgeschlossen. Ein weiterer wesentlicher Unterschied zu anderen Öfen ist der praktisch fehlende Anteil an kondensierbaren Partikeln nach EPA-Norm. Diese entstehen aus unvollständigem Ausbrand flüchtiger Kohlenwasserstoffe, was mit dem zweistufigen Verbrennungskonzept weitgehend vermieden wird. Eine Folge dieses Konzepts ist ein anderes Flammenbild als bei herkömmlichen Holzöfen.

Der Ofen wird grundsätzlich von oben angezündet. Hierbei entsteht zunächst ein Vorfeuer, das vergleichbar ist mit einem herkömmlichen Holzofen. In dieser Phase besteht noch kein grundsätzlicher Unterschied zu anderen Holzöfen, die Emissionen sind daher vergleichbar mit der Startphase eines guten konventionellen Cheminéeofens. Das problematische Anzünden von unten bei voller Ofen-

füllung ist bei diesem Ofen jedoch konstruktionsbedingt unmöglich, so dass solche Bedienungsfehler beim Anfeuern ausgeschlossen sind. Die Emissionen in der Startphase hängen in erster Linie vom verwendeten Anzündmaterial und dem Kaminzug ab.

Nach der Anfeuerphase brennen die oberen Holzstücke mit einer normalen gelben Flamme. Nach etwa 15 bis 30 Minuten ist das Anfeuerholz so weit heruntergebrannt, dass im unteren Glutbett nur die Ausgasung der brennbaren Gase aus dem Holz erfolgt. Die Flamme bildet sich dann nicht mehr direkt auf den Holzstücken, sondern nach der Zumischung von Sekundärluft aus, d. h. der Ofen brennt sichtbar aus den Sekundärluftpuffdüsen (Bild 11). In der Regel ist diese Flamme gelb wie bei einem normalen Holzfeuer. Bei bestimmten Betriebspunkten wird das Flammenbild blau wie bei einem Vormisch-Gasbrenner (Bild 11). Das Glutbett mit den Holzstücken ist am besten in der Ausbrandphase (leerer Füllschacht) sichtbar, wenn keine Flammen aus den Sekundärluftpuffdüsen mehr entstehen (Bild 12).



Bild 11: Flammenbilder von Ofentyp 3 bei stabilen Verbrennungsbedingungen. Die sichtbaren Flammen beginnen bei den Sekundärluftpuffdüsen am hinteren unteren Rand der Brennkammer. Die glimmenden Holzstücke liegen unter den Sekundärluftpuffdüsen und sind kaum erkennbar.

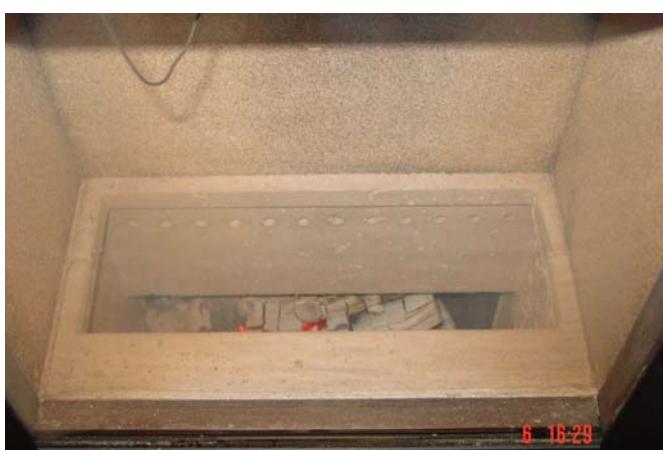


Bild 12: Ofentyp 3 am Ende der Ausbrandphase. Die noch glimmenden Holzstücke sind unten in der Retorte erkennbar. Flammen aus den Sekundärluftpuffdüsen entstehen keine mehr.

## 4 Grössenspektren der Partikelemissionen

Die Partikelgrößenverteilung bei Stückholzöfen verändert sich als Folge der stark unterschiedlichen Emissionen. Die bei schlechtem Betrieb klar sichtbare Rauchfahne lässt bereits darauf schliessen, dass auch grössere Partikel, oberhalb des Messbereichs eines SMPS, emittiert werden. Diese Partikel wurden in den durchgeföhrten Messreihen mit dem optischen Streulichtmessgerät erfasst. Im Folgenden wird an typischen Beispielen beschrieben, wie sich die Größenverteilung als Folge der Betriebsweise verändert.

### 4.1 Partikelspektren Ofentyp 1: Einfacher Metallofen

#### 5.3.1 Normmessung

Ofen 1 erreicht bei einer Norm-Messung mit trockenem Buchenholz ( $w=12\%$ ) sehr tiefe Gesamtstaubemissionen von  $20 \pm 10 \text{ mg/m}^3$ . Die resultierenden Partikelgrößenverteilungen sind in Bild 13 für einen einzelnen Abbrand dargestellt, in Bild 14 sind verschiedene Abbrände verglichen. Das Maximum der Anzahl-Größenverteilung liegt bei etwa 30 nm. Wie aus Bild 15 ersichtlich ist, tragen diese Partikel nur unwesentlich zur Massenemission bei. Für die Massenemission sind hauptsächlich die Partikel im Bereich grösser als 100 nm bestimmd.

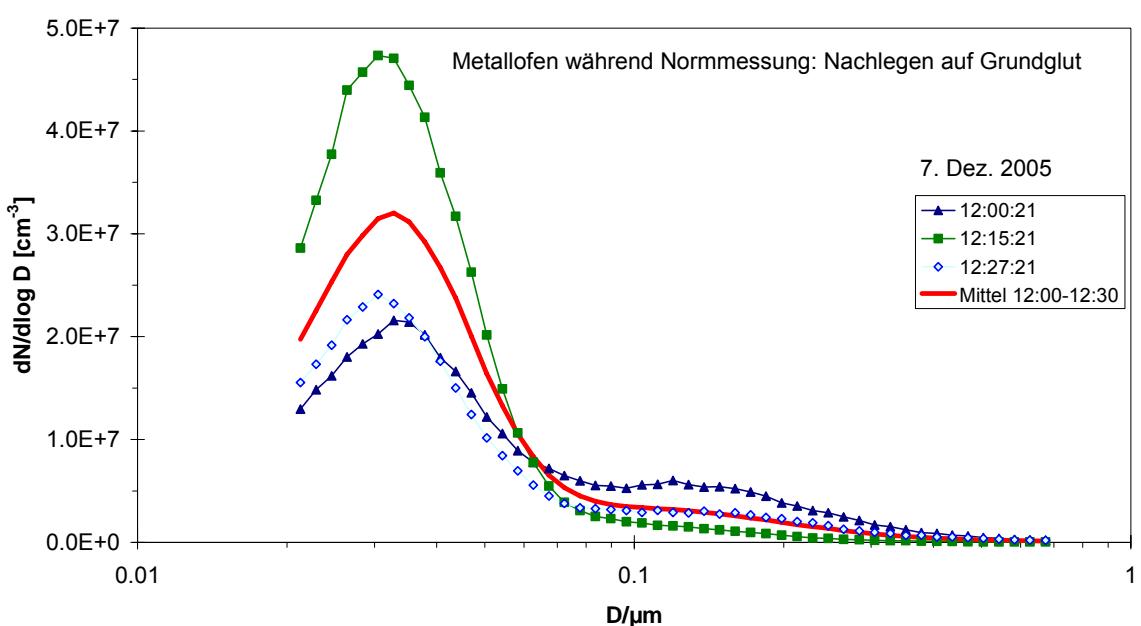


Bild 13: SMPS Spektren während Normmessung von Ofentyp 1 (Metallofen) mit trockener Buche ( $w=12\%$ ). Die rote Kurve gibt den Mittelwert während 30 Min. Messzeit an; die gravimetrisch ermittelte Emission während dieser Zeit war  $20 \text{ mg/m}^3$ . Partikel  $> 0.5 \mu\text{m}$  (OPC Messbereich) tragen hier praktisch nichts zu den Massenemissionen bei und sind daher nicht aufgetragen.

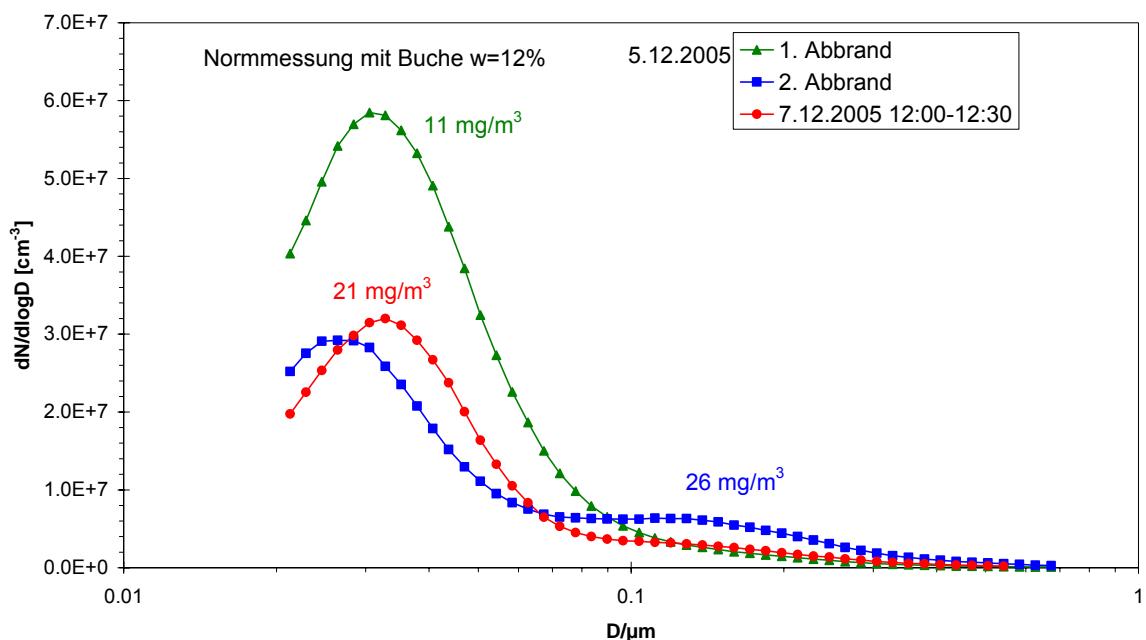


Bild 14: Ergebnis von drei unabhängigen Normmessung von Ofentyp 1 (Metallofen) mit trockener Buche ( $w=12\%$ ). Die Spektren sind jeweils über den Zeitraum der parallel durchgeföhrten Filtermessung gemittelt. Die rote Kurve entspricht dem Mittelwert von Bild 13.

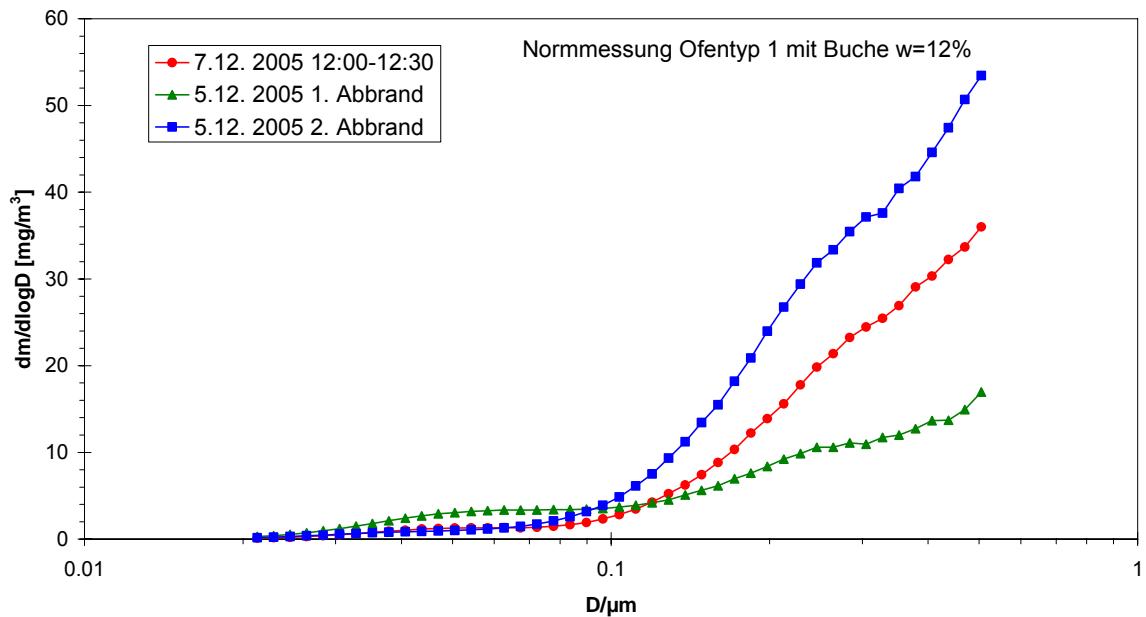


Bild 15: Umrechnung der Anzahlgrößenverteilungen in Bild 14 in Partikelmassengrößenverteilungen. Für Partikel grösser  $0.3\text{--}0.5\mu\text{m}$  wird die Konzentration mit dem SMPS teilweise zu hoch angegeben, da das Instrument einem sehr steilen Abfall in der Anzahlkonzentration während eines 3 Minuten-Scans nicht schnell genug folgen kann.

Die tiefen Emissionen werden nur beim Nachlegen auf Grundglut und offener Luftklappe erreicht. Wie aus Bild 16 ersichtlich ist, liegen die Emissionen beim Anfeuern deutlich höher. Einen schlechten

Einfluss hat auch das teilweise Schliessen der Primärluftklappe, die zur Leistungsreduktion des Ofens vorgesehen ist. Wird die Klappe auf Stellung  $\frac{1}{2}$  reduziert, erhöhen sich die Emissionen schlagartig, um nach dem Öffnen der Klappe auf tiefe Werte herunterzugehen. Die Partikelgrößenverteilungen sind bei schlechtem Betrieb, also Anfeuern oder geschlossener Luftklappe nach rechts verschoben (Bild 17).

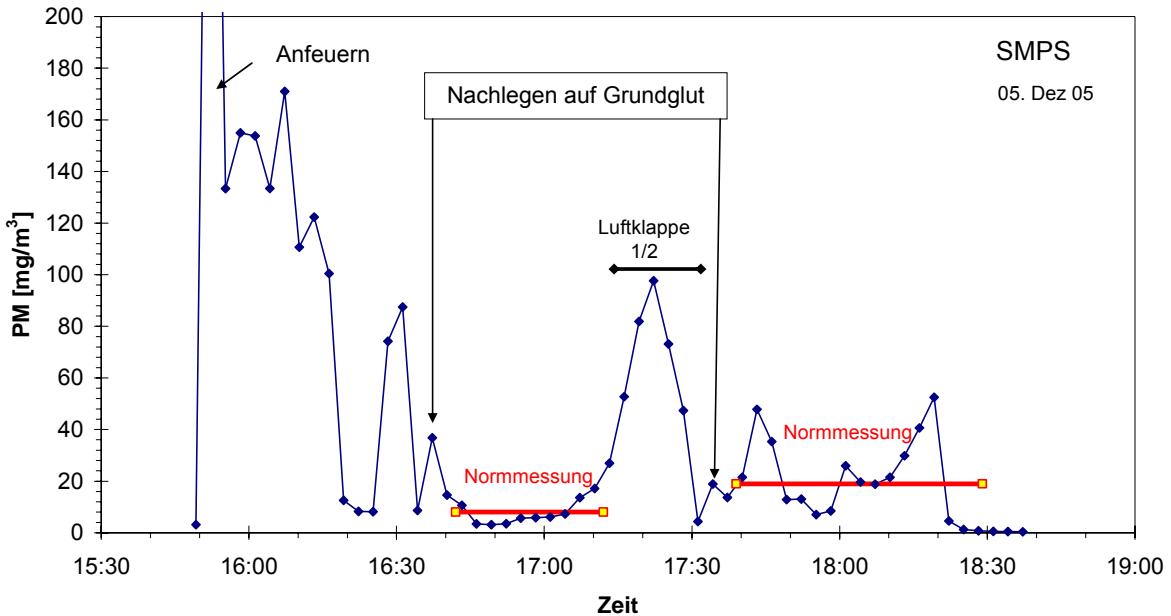


Bild 16: Zeitlicher Verlauf der Emissionen beim Betrieb von Ofentyp 1 mit Buche  $w=12\%$ .

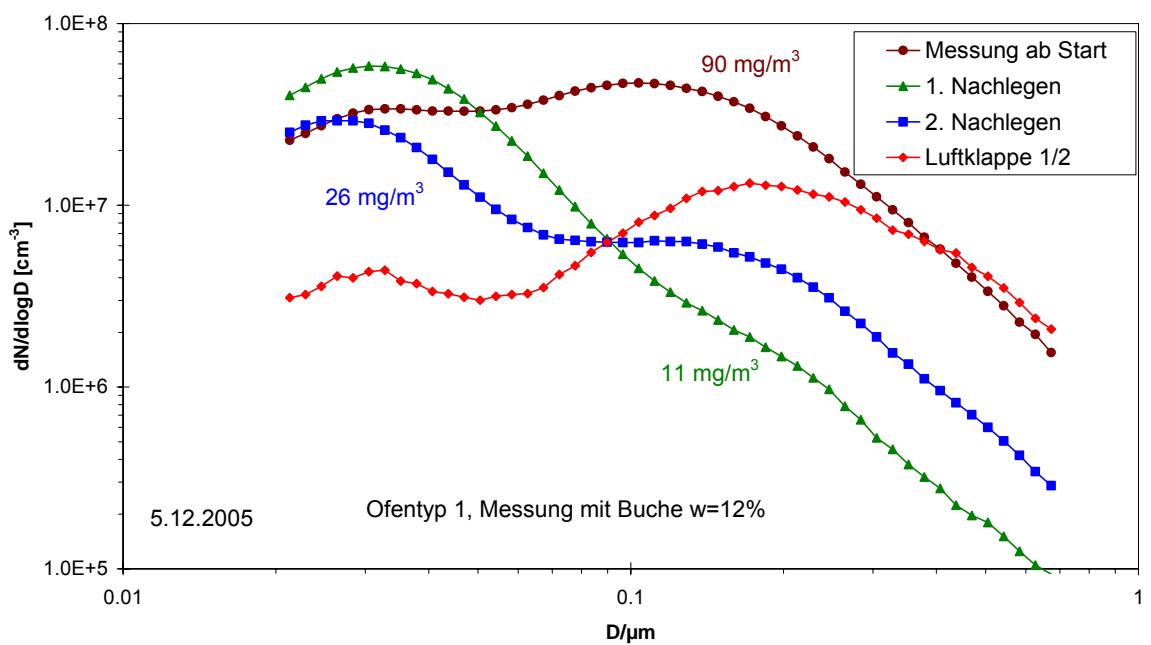


Bild 17: Einfluss der Betriebsweise von Ofentyp 1 auf die Größenverteilung bei trockenem Buchenholz ( $w=12\%$ ). Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Filtermessung angegeben.

### 5.3.2 Schwieriger Brennstoff

Schwieriger Brennstoff führt beim Metallofen zu deutlich höheren Emissionen als mit trockener Buche. Die resultierende Größenverteilung für den Betrieb mit feuchtem Holz aus Chile (Roble Huale) ist in Bild 18 dargestellt. Anstelle des bei gutem Betrieb vorhandenen Emissionspeaks bei 30 nm ist nun ein Minimum; der Emissionspeak ist weit nach rechts verschoben und auch die Partikel bis 2  $\mu\text{m}$  liefern noch einen wesentlichen Beitrag zur Gesamtemission. Es entsteht eine sichtbare Rauchfahne, wie in Bild 6. Grobe Partikel  $> 10 \mu\text{m}$  tragen auch bei diesem Betriebspunkt nur unwesentlich bei. Die hohen mittleren Gesamtemissionen von etwa  $600 \text{ mg/m}^3$  werden also vorwiegend durch Partikel  $< 2.5 \mu\text{m}$  (PM2.5) verursacht.

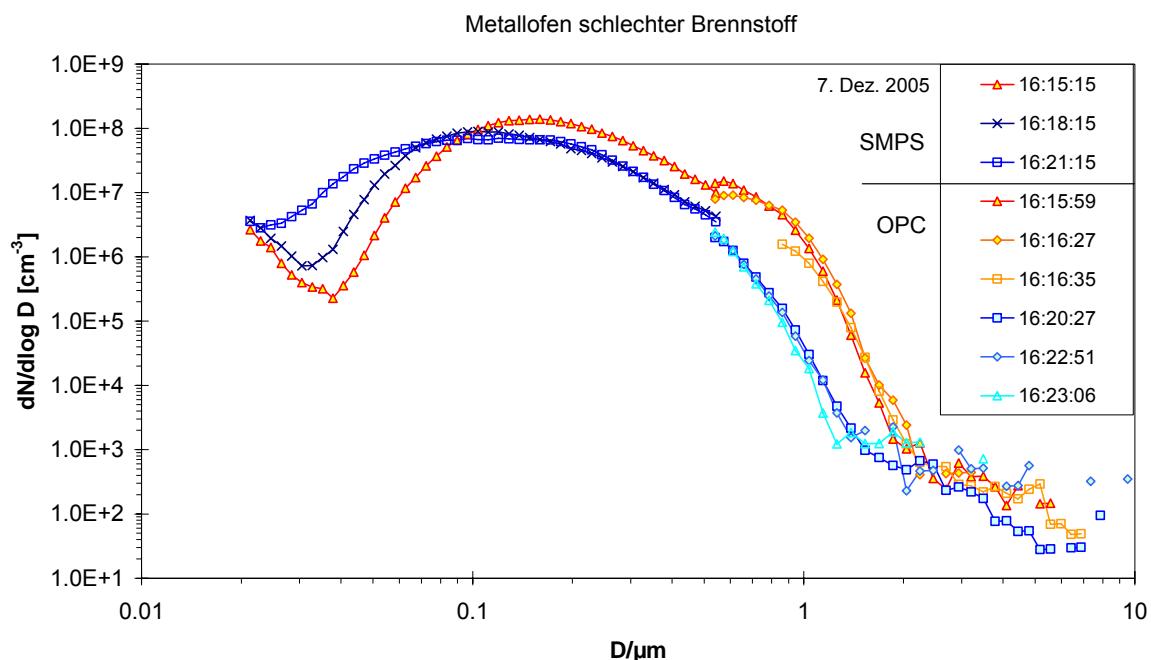


Bild 18: Metalllofen gefüllt mit schwierigem Brennstoff (Roble Huale w=33% und w=16% gemischt) bei offener Luftklappe.

### 5.3.3 Sehr schlechter Betrieb mit normalem Brennstoff

Die höchsten Staubemissionen entstehen bei diesem Ofen bei zunehmend geschlossener Primär-luftklappe. Es resultiert dann eine Größenverteilung, die noch weiter nach rechts verschoben ist als bei schwierigem Brennstoff und offener Luftklappe. Die mittlere Verteilung während des Betriebs mit geschlossener Luftklappe und mit Buche (w=20%) gefülltem Ofen ist in Bild 19 dargestellt. Die gravimetrisch ermittelte Staubemission während dieses Spektrums war  $> 5000 \text{ mg/m}^3$ , wie in Kap 4 bereits erwähnt. Auch in diesem sehr schlechten Betriebspunkt sind die Emissionen vorwiegend auf Partikelgrößen unterhalb etwa 4  $\mu\text{m}$  zurückzuführen, während Grobpartikel  $> 10 \mu\text{m}$  keinen wesentlichen Beitrag leisten. Somit werden auch bei extrem hohen Emissionen praktisch nur inhalierbare Stäube produziert. Anders als bei gutem Betrieb sind bei diesem Zustand die Emissionen sehr stabil, d.h. die Größenverteilung ändert sich nur unwesentlich mit der Zeit (Bild 20).

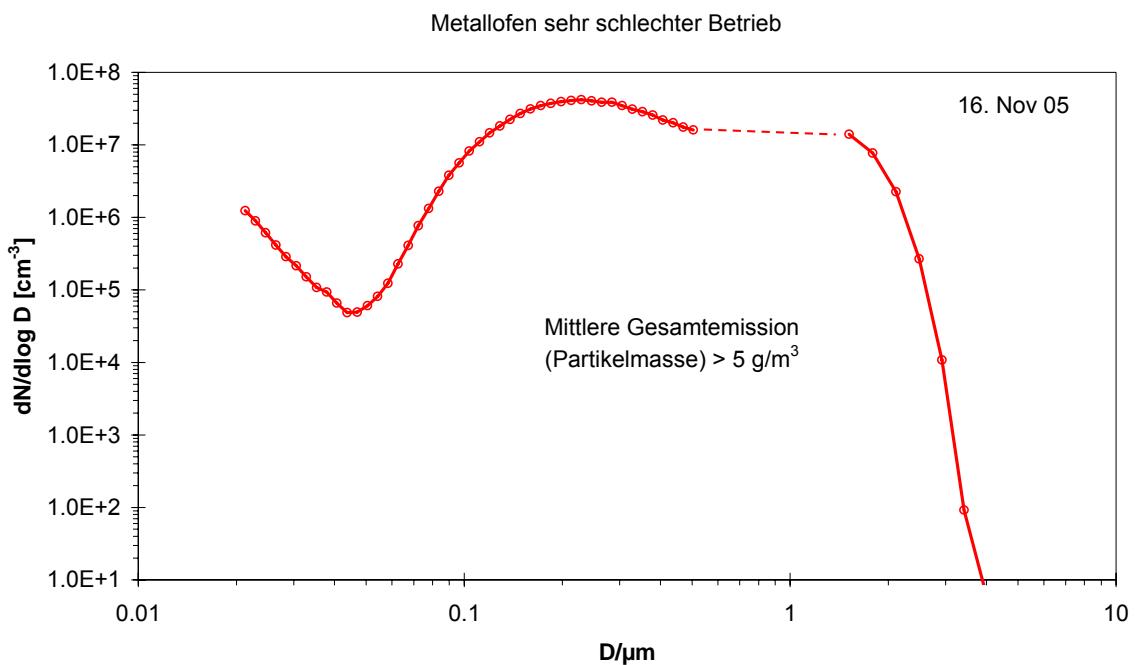


Bild 19: Partikelspektrum von Ofen 1 gefüllt mit normalem Brennstoff (Buche w=20%) und geschlossener Luftklappe. Es entstehen hierbei die höchsten gemessenen Gesamtemissionen. Die Spektren für die Anzahlgrößenverteilung sind gemittelt über 20 Minuten. Der Bereich 0.5  $\mu\text{m}$  bis 1.5  $\mu\text{m}$  war bei der gewählten Verdünnung nicht mehr messbar, da die von der Elektronik maximal erfassbare Zählrate überschritten wurde.

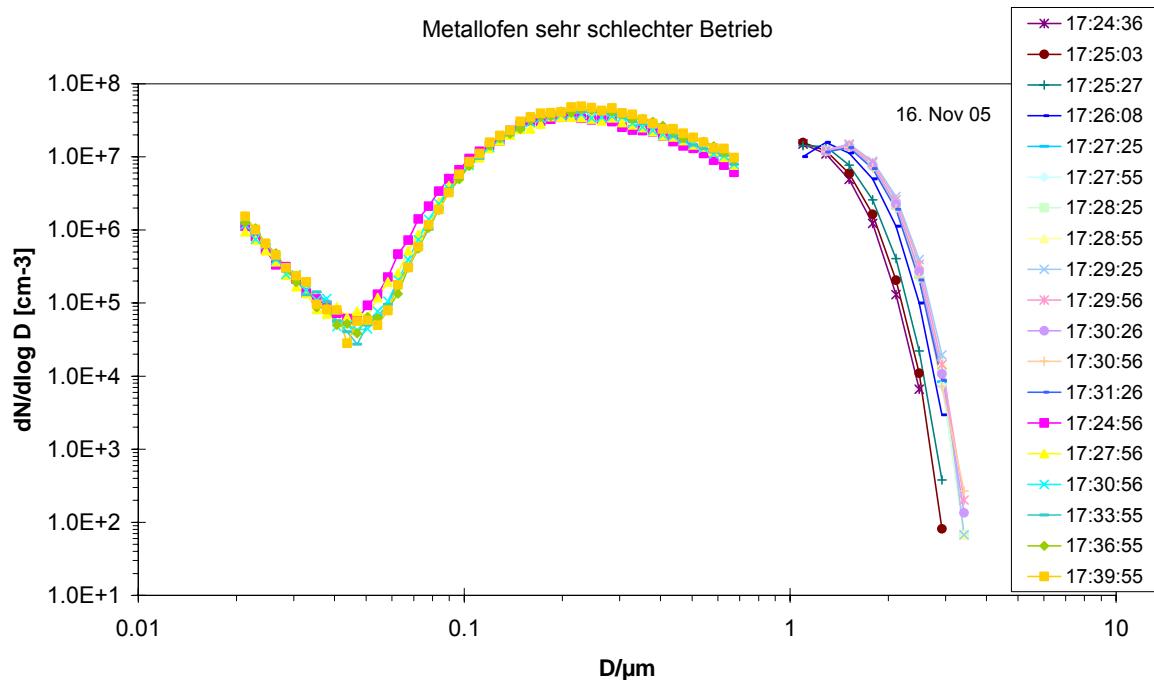


Bild 20: Spektrum von Ofen 1 gefüllt mit normalem Brennstoff (Buche w=20%) und geschlossener Luftklappe. Einzelspektren: Die Größenverteilungen haben bei dieser Betriebsart nur eine geringe zeitliche Variabilität.

## 4.2 Partikelspektren Ofentyp 2: Ofen mit Qualitätssiegel

### 5.2.1 Normmessung

In Bild 21 ist das Ergebnis einer Messreihe für Ofentyp 2 (guter Cheminéeofen mit schweizerischem Qualitätssiegel) mit Buchenholz,  $w=12\%$ , aufgetragen. Die Anfeuerphase ergibt erwartungsgemäss den höchsten Peak in der Anzahlkonzentration und entspricht einer mittleren Staubemission von  $70 \text{ mg/m}^3$ . Beim nachfolgenden Nachlegen auf Grundglut ergaben sich je nach Abbrand leicht unterschiedliche Konzentrationsverteilungen mit starken zeitlichen Schwankungen.

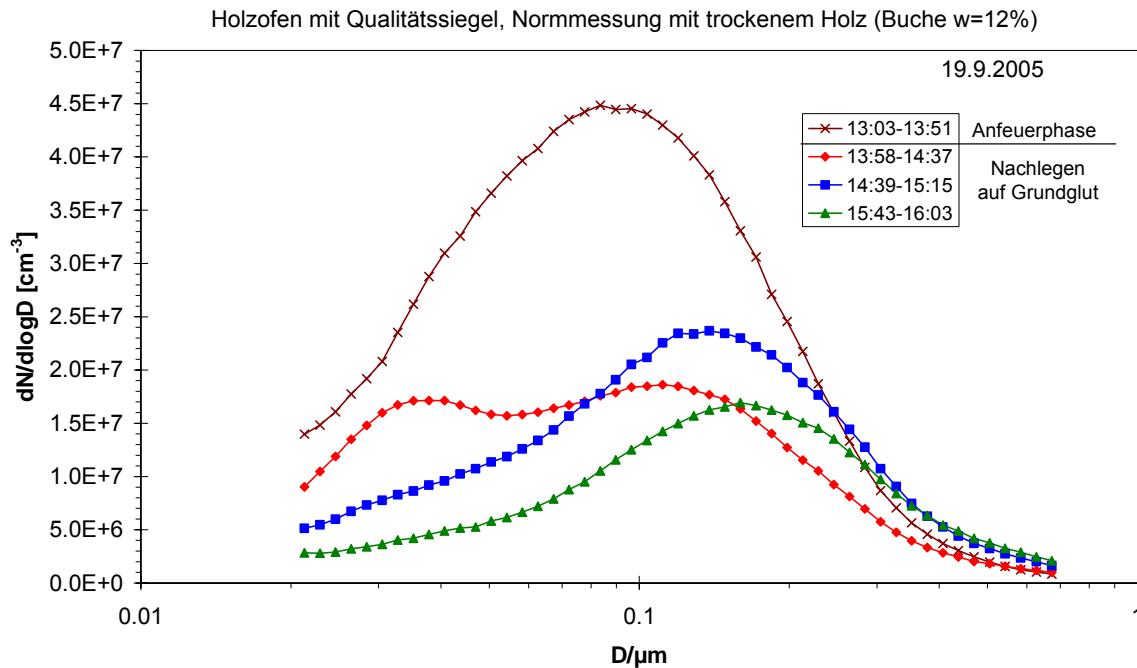


Bild 21: Gemittelte SMPS-Spektren für Ofentyp 2 bei Betrieb mit trockenem Buchenholz ( $w=12\%$ ).

Bei den Verteilungsfunktionen in Bild 21 ist jeweils der Zeitraum vom Nachlegen einer Holzcharge von 2 mal 750 g bis kurz vor dem nächsten Nachlegen gemittelt, die letzte Messung erfasst auch die Ausbrandphase. Eine parallel durchgeführte Filtermessung ergab eine mittlere Emission von  $42 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>). Hierbei wurde unmittelbar nach dem Nachlegen auf Grundglut gestartet und über 2 Abbrände gemessen, also das zweite Nachlegen voll miterfasst. In Bild 22 ist die SMPS-Anzahlverteilung in eine Massenverteilung umgerechnet. Es ist zu erkennen, dass in erster Linie Partikel > 100 nm zu der gemessenen Massenemission beitragen.

Der zeitliche Verlauf der errechneten Anzahl- und Massenkonzentration ist in Bild 23 aufgetragen. Hierin sind häufige Emissionsspitzen, die beim jeweiligen Nachlegen einer Holzcharge entstehen, erkennbar. Der Verlauf von Anzahl und Massenkonzentration ist recht gut korreliert, was beim Ofentyp 3 nicht der Fall ist (Kapitel 4.3).

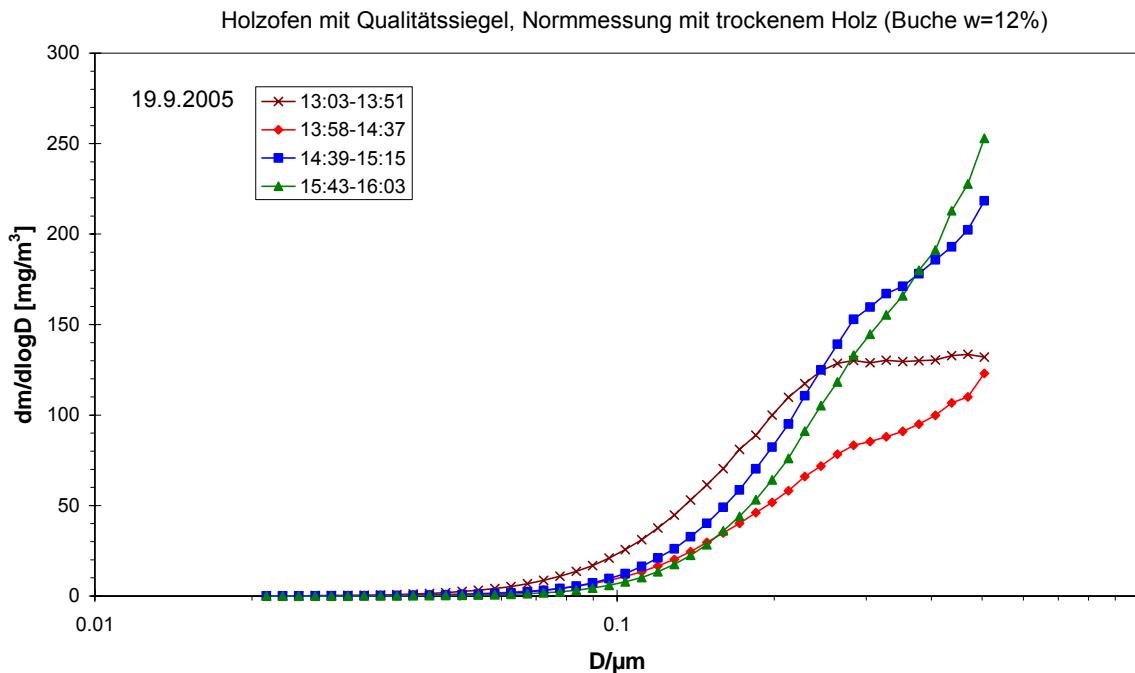


Bild 22: Errechnete Massenkonzentration aus den gemessenen mittleren SMPS Größenverteilungen für Ofentyp 2 im Betrieb mit trockenem Buchenholz ( $w=12\%$ ). Für Partikel grösser etwa  $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$  wird die Konzentration mit dem SMPS teilweise zu hoch angegeben, da das Instrument einem steilen Abfall in der Anzahlkonzentration während des Scans nicht schnell genug folgen kann.

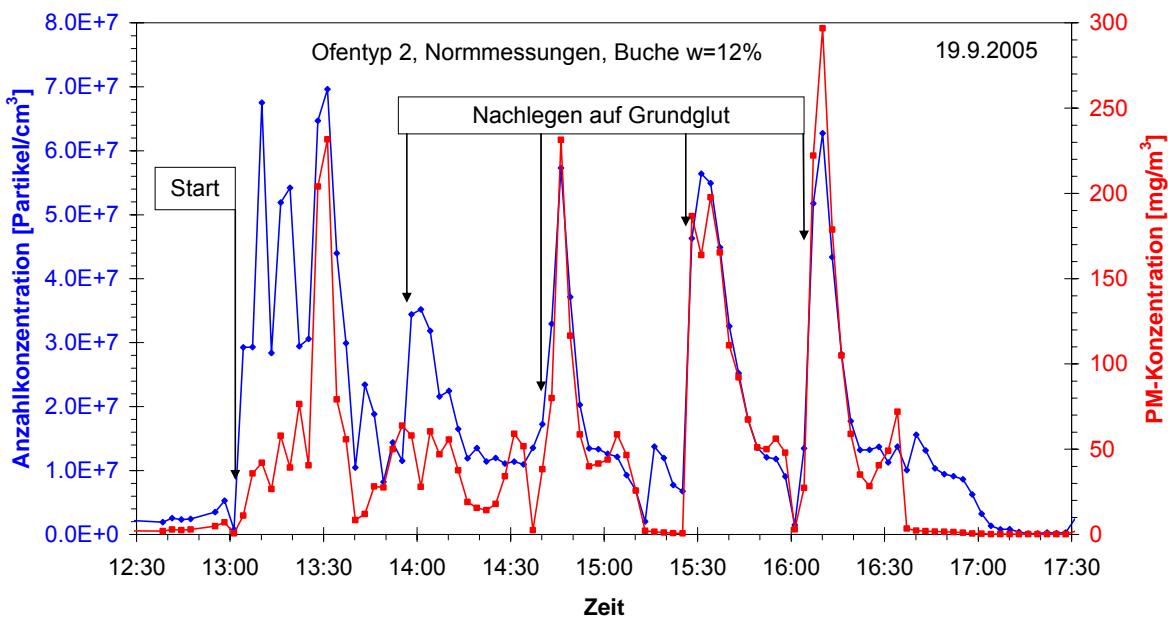


Bild 23: Zeitlicher Verlauf der Emissionen bei Ofentyp 2 mit Buche  $w=12\%$ . Das Nachlegen der Holzchargen ist mit Pfeilen gekennzeichnet.

Wie stark die Größenverteilung während eines einzelnen Abbrands schwankt, ist aus Bild 24 ersichtlich. Nach einem kurzen Emissionsmaximum entstehen während des Abbrands Maxima bei etwa 35 nm und 120 nm in der Größenverteilung. Einige Spektren sind auch bimodal, ebenso wie die resultierende zeitlich gemittelte Verteilungsfunktion.

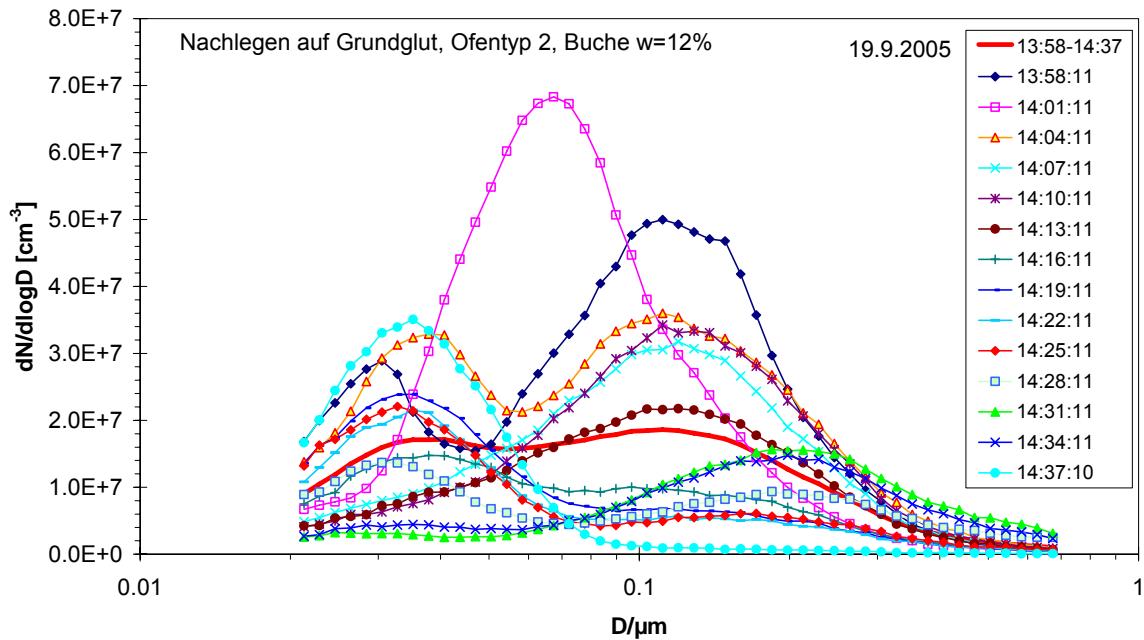


Bild 24: SMPS-Einzelmessungen der Größenverteilung während eines Abbrands bei Ofentyp 2. Um 13:59 Uhr wurde eine Holzcharge von 2 mal 750 g Buche ( $w=12\%$ ) nachgelegt, was kurzzeitig zu höheren Emissionen führt.

### 5.2.1 Schlechter Betrieb von Ofentyp 2

Wird feuchtes Holz niedriger Qualität im Ofentyp 2 verbrannt, steigen die Partikelemissionen an, wie in Kap. 3.2 diskutiert wurde. Die resultierende Partikelgrößenverteilung ist in Bild 25 aufgetragen. Es entsteht ein deutlich höherer Emissionspeak bei etwa 100–150 nm in der Anzahlverteilungsfunktion. Im Unterschied zu den bisherigen Spektren fällt dieser Peak zu grösseren Partikeln weniger steil ab. Es entstehen besonders beim Anfeuern und Nachlegen auch hohe Konzentrationen von Partikeln  $> 0.5 \mu\text{m}$ , die mit dem OPC erfasst wurden. Die Gesamtspektren sind in Bild 26 für die Betriebszustände Anfeuern, Nachlegen und anschliessender stabiler Verbrennung aufgetragen. Die grössten Unterschiede zwischen Anfeuern oder Nachlegen und anschliessender stabiler Verbrennung treten bei Partikelgrößen zwischen 0.5  $\mu\text{m}$  und 2  $\mu\text{m}$  auf: Bei 0.5  $\mu\text{m}$  unterscheiden sich die Konzentrationen um den Faktor 1000. Eine Umrechnung in Massenverteilungen (Bild 27) zeigt, dass Partikel zwischen 100 nm und 1  $\mu\text{m}$  am meisten zu den hohen gemessenen Massenemissionen beitragen. Der zeitliche Verlauf der Emissionen bei Betrieb mit schlechtem Brennstoff ist in Bild 28 dargestellt.

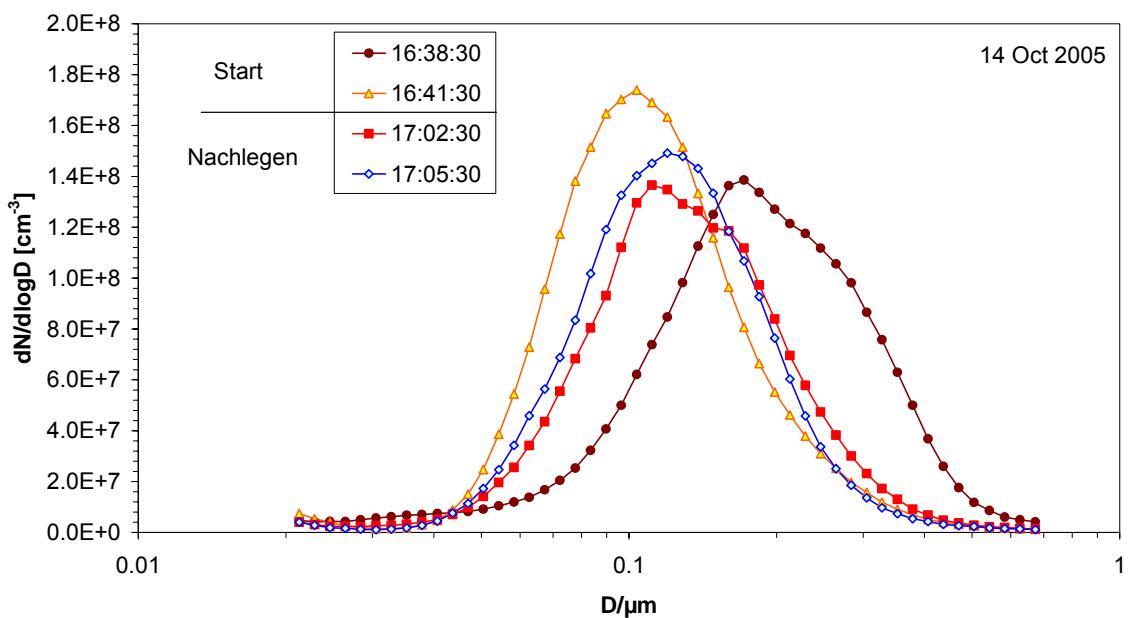


Bild 25: Ofentyp 2, Betrieb mit grossen Füllmengen an schwierigem Brennstoff (Roble Huale): Anfeuern um 16:36 mit 2,4 kg trockenerem Holz ( $w=16\%$ ), Nachlegen von 2,7 kg feuchtem Holz ( $w=25\%$ ) um 16:58.

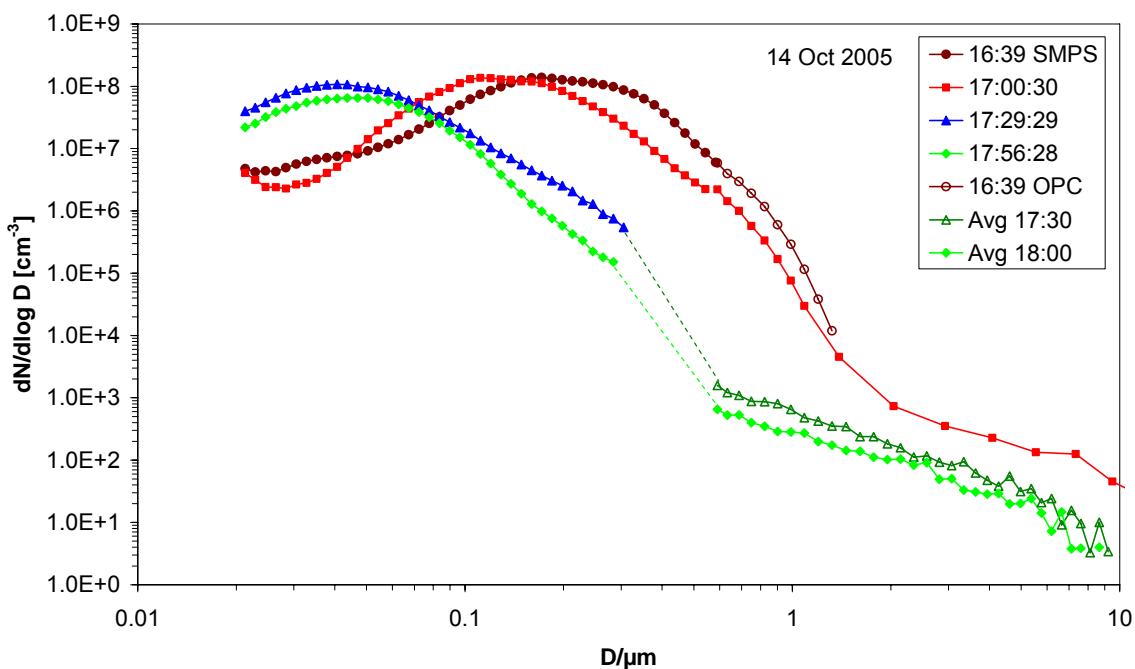


Bild 26: Spektren über den gesamten Größenbereich bis  $10\mu\text{m}$ , gemessen mit SMPS und OPC bei Ofentyp 2: schlechter Betrieb bei Nachlegen von feuchtem Holz und anschliessender guter Betrieb mit nachfolgender Ausbrandphase

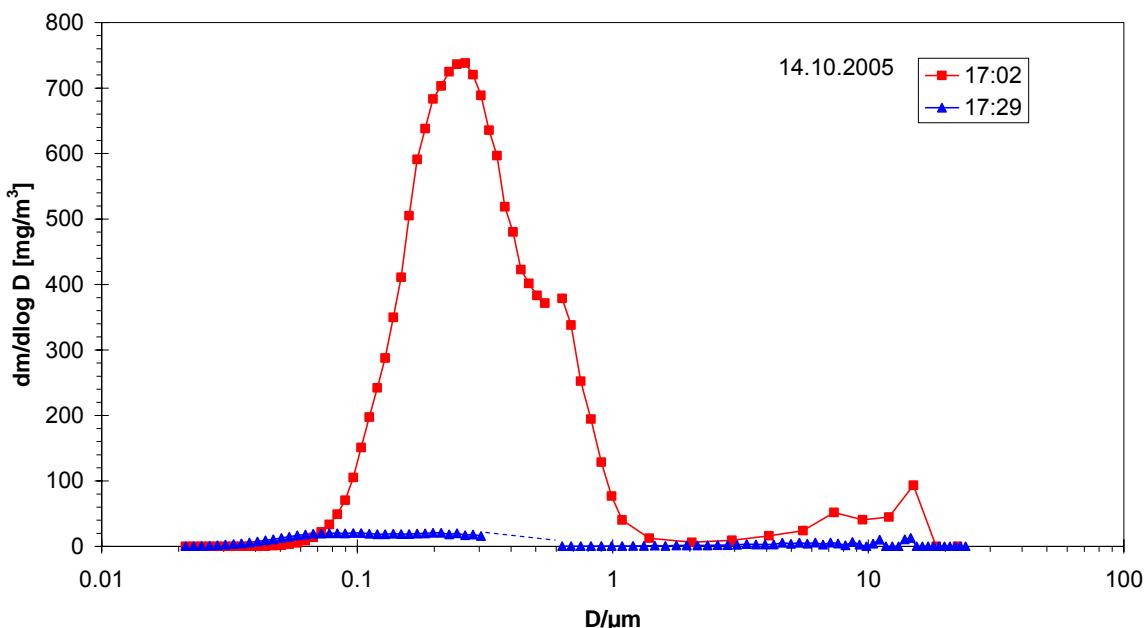


Bild 27: Umrechnung in Massenemissionen bei Ofentyp 2, schlechter Betrieb bei Nachlegen von feuchtem Holz und anschliessender guter Betrieb.

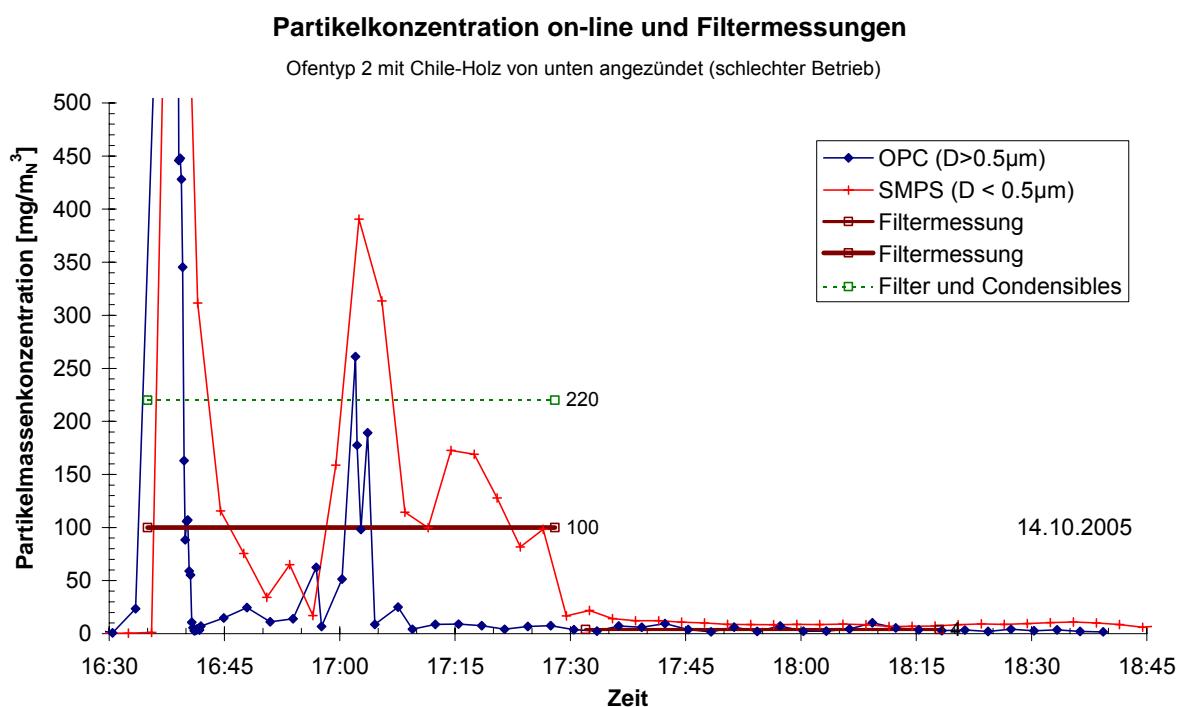


Bild 28: Verlauf der Partikelemissionen bei Ofentyp 2 in schlechtem Betrieb: Das Holz wurde von unten angezündet, um 17Uhr wurden grössere Stücke feuchtes Holz nachgelegt.

## 4.3 Partikelspektren Ofentyp 3: Zweistufige Verbrennung

Der Ofen Typ "Sirius" hat eine getrennte Luftzufuhr zum unten liegenden Glutbett und eine zusätzliche Lufteindüse oberhalb des Glutbetts über Sekundärluftdüsen. Das Glutbett wird von oben angezündet und brennt zunächst in ähnlicher Weise an wie bei einem konventionellen Ofen. Nach einer Aufwärmphase entstehen brennbare Gase aus dem Glutbett und als Resultat bilden sich sichtbare Flammen an den Sekundärluftdüsen. Zu Beginn während der Anfeuerphase gebildete Russablagerungen nahe der Sekundärlufteindüse werden dabei vollständig wieder abgebrannt. Der Ofen brennt dann über mehrere Stunden kontinuierlich mit sichtbaren Flammen aus den Sekundärluftdüsen, bis der Holzvorrat im Füllschacht leer ist.

Der Verlauf der Partikelemissionen über einen solchen Abbrand ist in Bild 29 und Bild 30 dargestellt. Nach dem Anzünden entsteht zunächst ein Peak im Massenemissionsverlauf, danach gehen die Emissionen zunächst auf sehr tiefe Werte ( $\leq 5 \text{ mg/m}^3$ ) herunter, um dann bis auf maximal 20–30  $\text{mg/m}^3$  langsam anzusteigen, wenn der Ofen eine höhere Betriebstemperatur erreicht. In dieser Zeit steigt auch die Partikelanzahlkonzentration an. Kurz vor der Ausbrandphase, also wenn der Füllschacht leer ist, entsteht nochmals für kurze Zeit ein Massenemissionspeak, danach sinken sowohl die Anzahl- und Massenkonzentration deutlich ab.

Die mit dem SMPS gemessene Größenverteilung ändert sich deutlich während dieser verschiedenen Betriebsphasen, wie in Bild 31 zu sehen ist. Beim Anfeuern entsteht zunächst eine Verteilungsfunktion, die sehr flach verläuft und noch viele grössere Partikel oberhalb des Peaks bei 150 nm enthält. Sobald der Ofen aus den Sekundärluftdüsen brennt, verschwinden die grösseren Partikel und es entsteht ein Peak bei 30 nm. Mit zunehmender Aufwärmung des Ofens verschiebt sich der Peak zu grösseren Partikeln bis ein Maximum bei etwa 60 nm erreicht ist. Vor der Ausbrandphase entsteht für kurze Zeit nochmals eine flache Größenverteilungsfunktion mit weniger Partikeln bei grösseren Durchmessern, die zu der beobachteten höheren Massenemission führen. In der Ausbrandphase schliesslich sind die Partikelemissionen über den gesamten Größenbereich gering.

Grössere Partikel als 0.5  $\mu\text{m}$  liefern nur während der Anfeuerphase und der kurzzeitigen Emission vor dem Ausbrand einen nennenswerten Beitrag zur Gesamtmasenkonzentration. In Bild 32 ist das Grössenspektrum über den gesamten Messbereich für die verschiedenen Betriebspunkte aufgetragen. Dies zeigt, dass bei optimalen Verbrennungsbedingungen die Partikelanzahl von 30 nm bis auf 1  $\mu\text{m}$  um nahezu 7 Zehnerpotenzen abfällt, d. h. es gibt etwa  $10^7$  mal weniger Partikel bei 1  $\mu\text{m}$  als bei 30–60 nm. Ein so steiler Abfall ist mit dem SMPS nicht mehr erfassbar und konnte nur durch die unabhängige Zusatzmessung mit dem Streulichtgerät nachgewiesen werden. Bleibt während eines SMPS-Scans nur 1% der Partikel, die bei 50 nm erfasst wurden, als Rest in den Verbindungsleitungen, so werden diese im späteren Verlauf des Scans einer höheren Partikelgrösse zugeordnet. Die sehr steil abfallende Verteilungsfunktion zwischen 250 nm und 0.5  $\mu\text{m}$  fällt daher unter die Nachweisgrenze dieser Messungen. Beim Anfeuern und der kurzen Emission vor dem Ausbrand sind dagegen die Partikelkonzentrationen > 0.5  $\mu\text{m}$  deutlich überhöht.

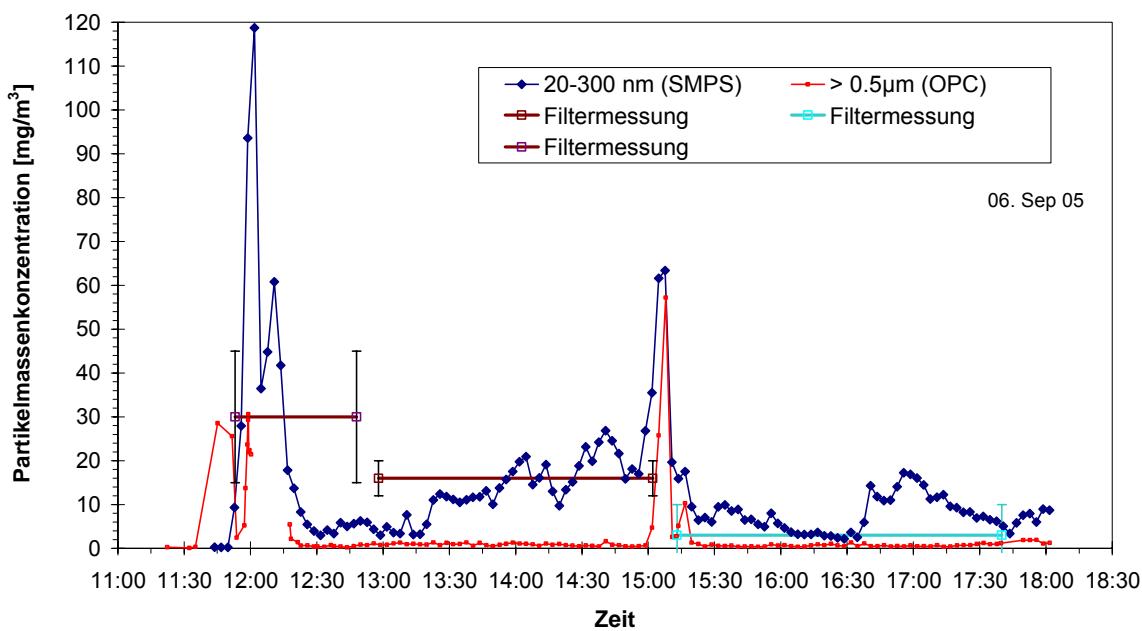


Bild 29: Zeitlicher Verlauf der Partikelmassenkonzentration errechnet aus der SMPS und OPC Messung und Vergleich mit den gravimetrischen Messungen für Ofentyp 3 im Betrieb mit Buchenholz w=10%. Die hier angegebenen Werte beziehen sich auf Normbedingungen, sind aber nicht auf 13 Vol.-% O<sub>2</sub> normiert.

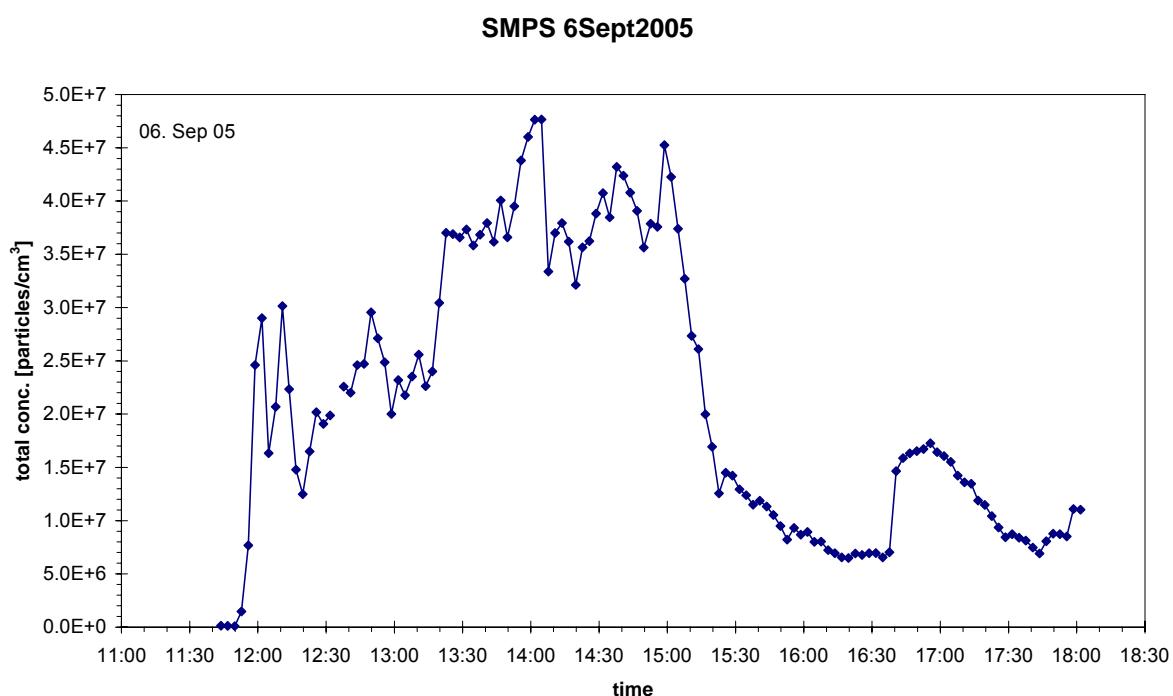


Bild 30: Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahlkonzentration für Ofentyp 3 im Betrieb mit Buchenholz w=10%; gleiche Messreihe wie in Bild 29.

Sirius operation with dry Swiss beech (w=10%) 6. Sept. 2005

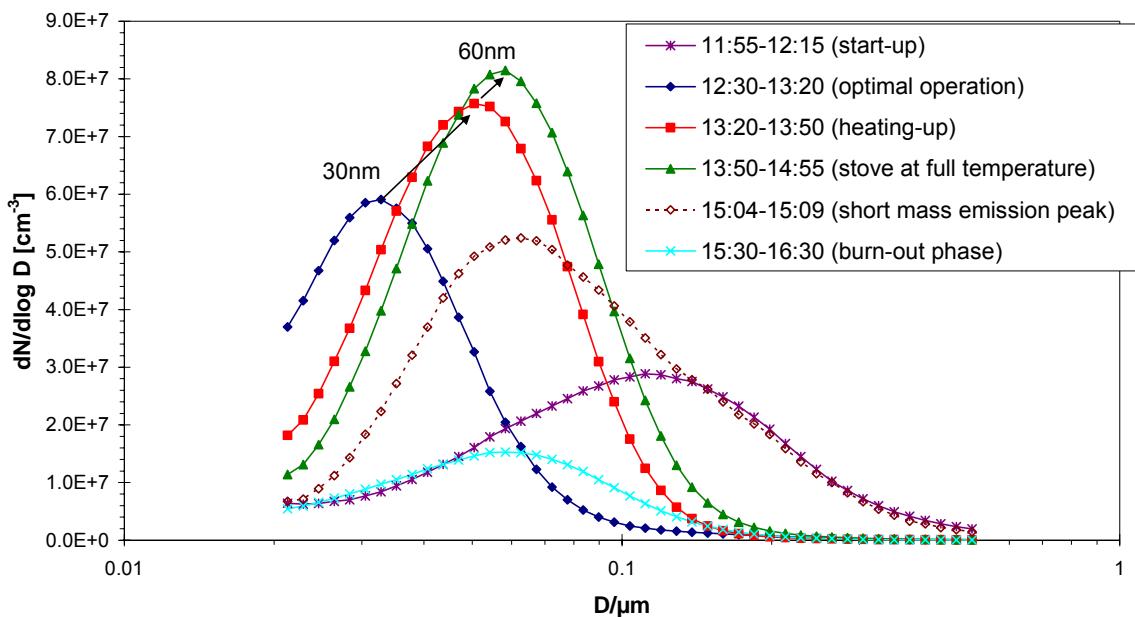


Bild 31: Partikelgrößenverteilung für die verschiedenen Betriebszustände von Ofentyp 3 im Betrieb mit Buchenholz w=10%.

Die höheren Emissionen im Bereich ab  $0.5 \mu\text{m}$  lassen sich durch – bei diesem Ofen kurzzeitige – schlechte Verbrennungsbedingungen mit unvollständigem Ausbrand (Russabbrand) erklären. Filterproben, die während der Anfeuerphase genommen wurden, sind durchwegs schwarz gefärbt von Russ. Filterproben zu späteren Zeitpunkten, während der Ofen bei voller Betriebstemperatur brennt, sind dagegen teilweise hellgrau gefärbt (Bild 33). Bei manchen Filterproben war auch zu erkennen, dass ein zunächst schwarzer Russbelag von einer dünnen weißen Schicht überzogen war. Die hellgefärbten Filter entstehen vor allem, wenn der Ofen bei voller Betriebstemperatur brennt und die Partikelanzahlkonzentration mit einem Peak bei 60 nm am höchsten ist. Bei diesen Partikeln handelt es sich somit nicht um Russ aus unvollständiger Verbrennung, sondern wahrscheinlich um Salze, die aus den anorganischen Bestandteilen des Brennstoffs freigesetzt werden. Dies erklärt auch, warum die höchste Partikelanzahl bei optimalen Verbrennungsbedingungen entsteht. In dieser Phase ist an den Sekundärluftdüsen teilweise eine bläuliche Flamme sichtbar. Verbunden mit den höheren Verbrennungstemperaturen ist auch eine stärkere Ausgasung von Vorläufersubstanzen anorganischer Salze wahrscheinlich.

Der Anstieg der Partikelemissionen von  $5 \text{ mg/m}^3$  auf maximal  $30 \text{ mg/m}^3$  während des kontinuierlichen Betriebs ist damit zumindest teilweise auf zusätzliche Bildung anorganischer Salze zurückzuführen. Diese Salze bilden den Hauptbeitrag der Partikelemissionen moderner automatischer Feuerungen mit sehr guter Verbrennungsführung.

Sirius operation with dry Swiss beech ( $w=10\%$ ) 6. Sept. 2005

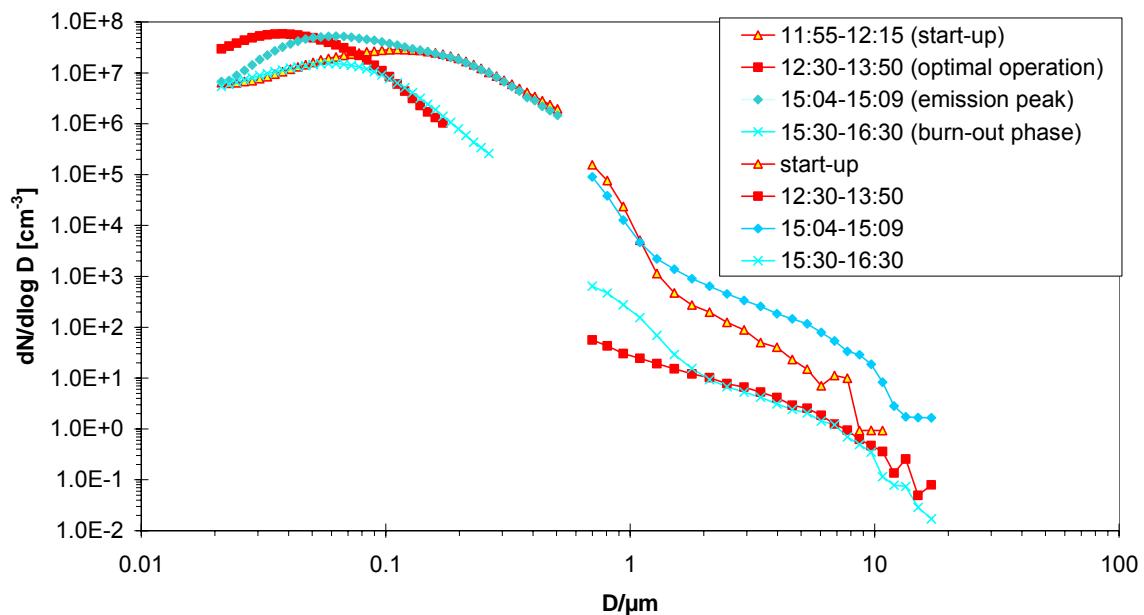


Bild 32: Partikelgrößenverteilung für die verschiedenen Betriebszustände von Ofentyp 3 im Betrieb mit Buchenholz  $w=10\%$ ; logarithmische Darstellung unter Einbezug der Partikel  $> 0.5 \mu\text{m}$ .

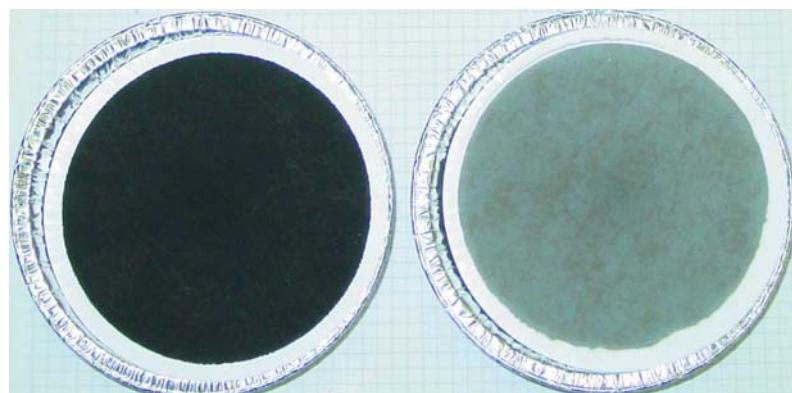


Bild 33: Filterproben von Ofentyp 3, links: Messung während der Anfeuerphase, rechts: Messung während konstantem Betrieb mit hohen Verbrennungstemperaturen.

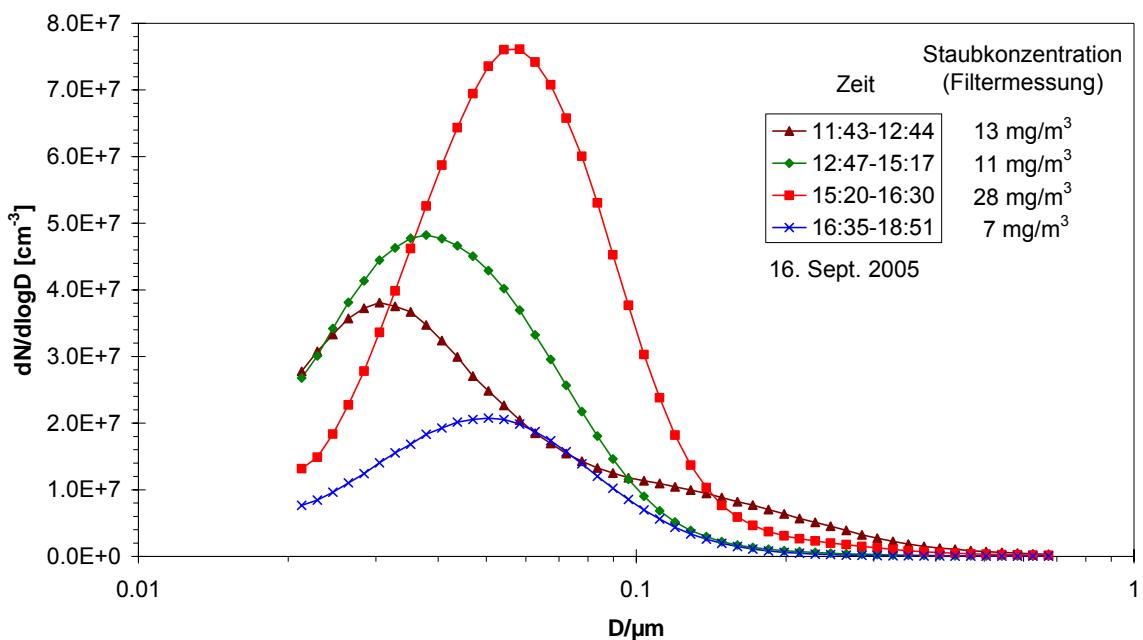


Bild 34: Zeitlich gemittelte SMPS-Messungen bei Ofentyp 3 mit trockener Buche ( $w=12\%$ ) und Ergebnis der parallel durchgeföhrten gravimetrischen Filtermessungen. Die zeitlich erste Kurve zeigt die Anfeuerphase, die letzte Kurve die Ausbrandphase. Beim dazwischenliegenden stabilen Betrieb lagen die Emissionen bei  $11\text{--}28 \text{ mg/m}^3$ .

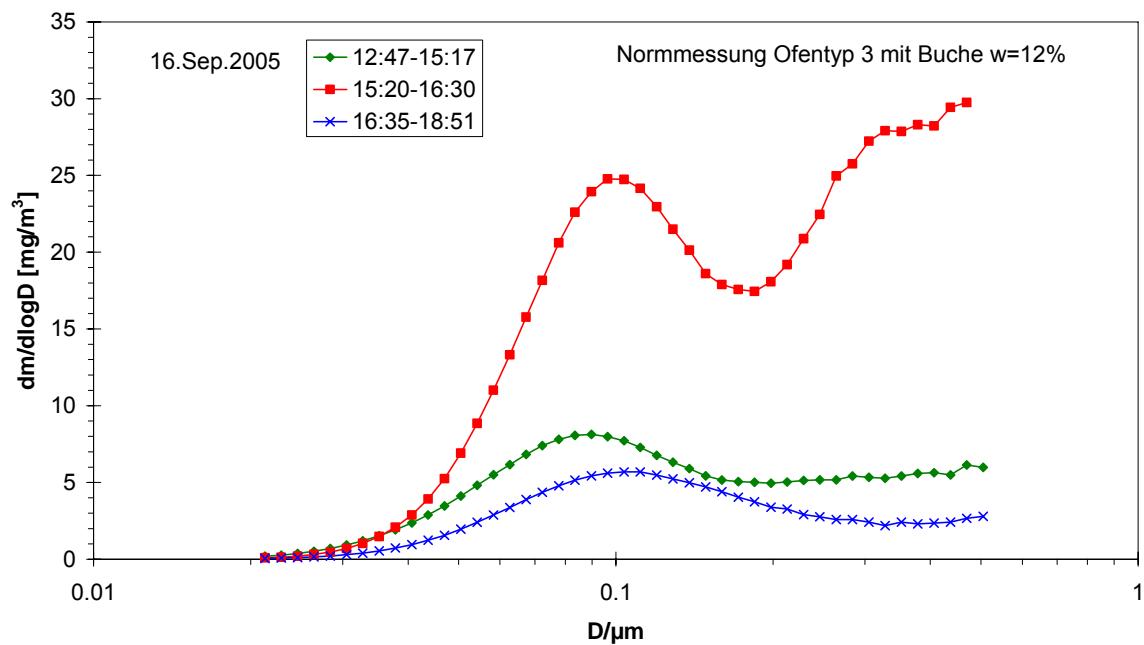


Bild 35: Umrechnung der Anzahlgrößenverteilungen in Bild 34 in Partikelmassengrößenverteilungen. Das Integral unter der jeweiligen Kurve ergibt die errechnete Massenkonzentration. Für Partikel grösser  $0.3\text{--}0.5\mu\text{m}$  wird die Konzentration mit dem SMPS teilweise zu hoch angegeben, da das Instrument einem sehr steilen Abfall in der Anzahlkonzentration während eines 3 Minuten-Scans nicht schnell genug folgen kann.

Die bisher beschriebenen Partikelspektren beziehen sich auf den Betrieb mit sehr trockenem Buchenholz ( $w=10\%$ ). Versuche mit Buchenholz bis zu  $w=20\%$  ergaben vergleichbare, reproduzierbare Resultate.

Bei Normmessungen auf Prüfständen wird Buchenholz mit  $w=12\%$  verwendet. Das Ergebnis einer Messung mit diesem Holz ist in Bild 34 und Bild 35 dargestellt und bildet die Vergleichsbasis für andere Ofentypen. Bei dieser Messung wurden nach der Anfeuerphase (11.43-12:44Uhr) zwei gravimetrische Filtermessungen bei kontinuierlicher Verbrennung durchgeführt. Der zeitliche Verlauf in Anzahl- und Massenkonzentration für diese Messung ist in Bild 36 verglichen. Der Verlauf ist vergleichbar mit der Messung von Bild 29 und Bild 30. Bemerkenswert sind hier die bereits zu Beginn tiefen Emissionen. Der Anfahrpeak wurde deutlich reduziert, indem zum Anfeuern keine handelsüblichen Zündwürfel, sondern nur trockenes Holz (Bild 37) verwendet wurde. Auf die nachfolgenden Normmessungen hat dies jedoch keinen Einfluss.

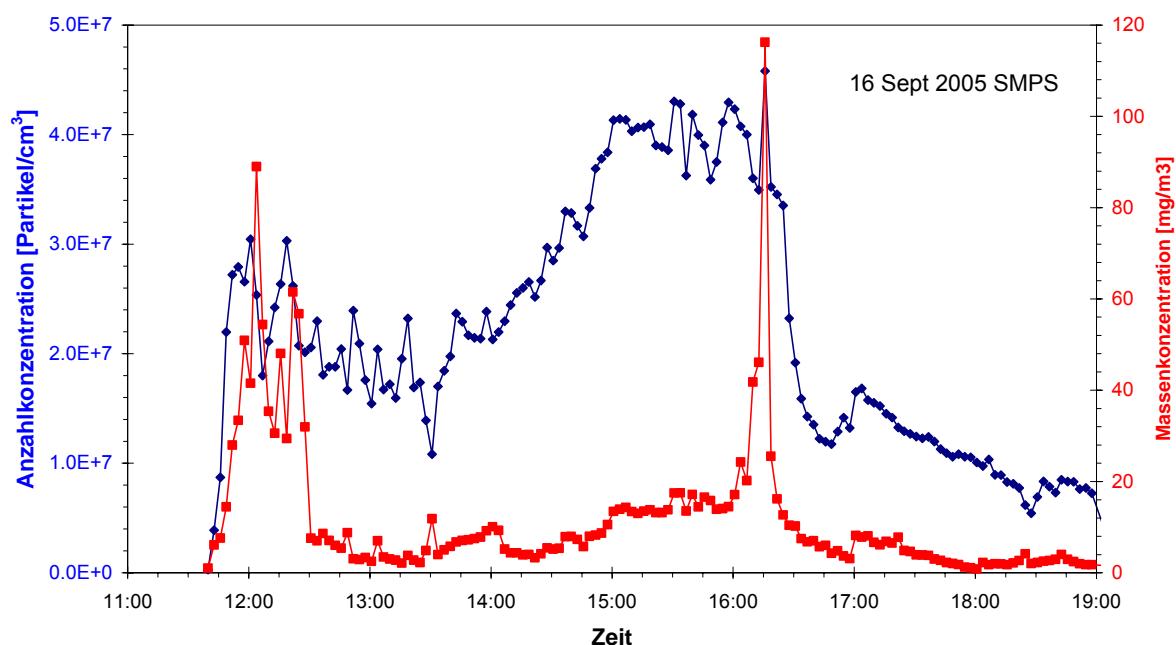


Bild 36: Zeitlicher Verlauf von Anzahl und Massenkonzentration während einer Normmessung bei Ofentyp 3 mit Buchenholz  $w=12\%$ .



Bild 37: Speziell präpariertes trockenes Holzstück als Anzündmaterial.

## 4.4 Zusammenfassung der Partikelspektren bei verschiedenen Bedingungen

Die unterschiedliche Größenverteilung bei verschiedenen Betriebspunkten von kleinen Öfen ist in Bild 38 verglichen. Höhere Emissionen führen zu einer Verschiebung des Partikelspektrums zu grösseren Partikeln, was mindestens teilweise auf Agglomeration von immer mehr gebildeten Primärpartikeln zurückzuführen ist. Ungeachtet dieser Verschiebung ist die wesentliche Partikelfracht in jedem Fall auf Partikel kleiner 3  $\mu\text{m}$  Durchmesser zurückzuführen. Alle diese Partikel sind inhalierbar und zu einem grossen Teil auch lungengängig.

Zur Beurteilung der Gesundheitsrelevanz ist auch ein Vergleich mit therapeutischen Aerosolen interessant. Stand der Technik sind derzeit Inhalationsgeräte, die therapeutische Aerosole von etwa 5  $\mu\text{m}$  Durchmesser erzeugen. Speziell für die Pädiatrie wurden inzwischen Dispergierer entwickelt, die Aerosole von etwa 2 bis 3  $\mu\text{m}$  Durchmesser erzeugen, um bei den noch engen Atemwegen von Kindern ein möglichst tiefes Eindringen in die Atemwege zu ermöglichen [4]. Die bestverfügbaren therapeutischen Aerosole haben daher etwa die gleiche Grösse wie die Partikel aus den schlechtesten Verbrennungsbedingungen.

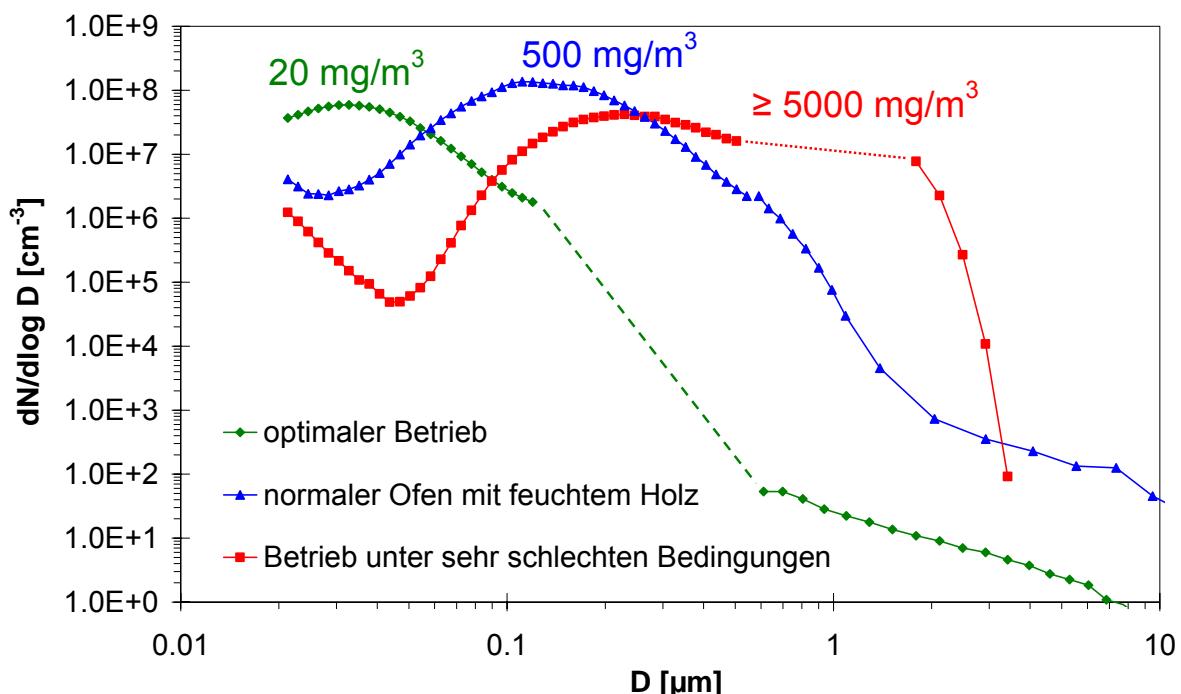


Bild 38 Anzahlgrößenverteilung und Gesamtemissionen bei unterschiedlicher Betriebsart von Stückholzöfen.

## 5 Pelletofen

### 5.1 Gravimetrische Staubmessungen

Als Vergleich zu den Stückholzöfen wurde das Emissionsverhalten eines Pelletofens (Typ Wodtke) gemessen. Dieser Ofen ist für den Betrieb mit Holzpellets ausgelegt. Testweise wurde auch der Betrieb mit Strohpellets gemessen, um zu beurteilen, wie sich die Emissionen hierdurch ändern.

Die Ergebnisse der gravimetrischen Staubmessungen sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Die Auswertung der Gasanalytik ist in Bild 39 enthalten.

Die Emissionen mit Holzpellets sind bei diesem Ofentyp stabil bei 15–17 mg/m<sup>3</sup> bei aktuellem O<sub>2</sub> im Abgas. Bei dem gemessenen mittleren Lambda-Wert von 4 ergibt sich daraus ein normierter Wert von 24–26 mg/m<sup>3</sup> bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>.

Die verfügbaren Strohpellets wiesen zu grosse Dimensionen für die Förderschnecke auf und mussten daher zu Beginn mechanisch zerkleinert werden, um eine automatische Zufuhr zur Brennkammerretorte überhaupt zu ermöglichen. Die Umstellung erfolgte während des Betriebs mit heissem Ofen, d.h. es wurden die Holzpellets im Vorratsbehälter vollständig entfernt und durch zerkleinerte Strohpellets ersetzt. Der Betrieb mit diesen Pellets war für etwas weniger als eine Stunde möglich. Durch den hohen Aschegehalt war die automatische Abreinigung der Retorte nicht mehr ausreichend. Das führte zu mangelnder Luftzufuhr in die Retorte mit entsprechendem Anstieg der CO-Emissionen und Leistungsabfall. Der Ofen musste daraufhin abgeschaltet werden.

In der noch stabilen Betriebsphase mit Strohpellets waren die unnormierten Staubemissionen mehr als doppelt so hoch wie bei Holzpellets. Korrigiert für den viel höheren Lambda-Wert von 8 ergibt sich eine Emission von 165 mg/m<sup>3</sup> bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>. Praktisch sofort mit der Brennstoffumstellung erhöhten sich auch die NO<sub>x</sub>-Emissionen von 165 mg/m<sup>3</sup> (13 Vol.-% O<sub>2</sub>) auf 820 mg/m<sup>3</sup>.

Die CO-Emissionen waren bei stabilem Betrieb mit Holzpellets < 50 ppm oder normiert < 100 mg/m<sup>3</sup> (13 Vol.-% O<sub>2</sub>). Nur während des Abreinigungsprogramms der Retorte mit hohem Luftüberschuss sind die CO-Emissionen kurzzeitig überhöht, was zu mittleren Emissionen von ca. 150 mg/m<sup>3</sup> führt.

Tabelle 5.1: Ergebnisse der gravimetrischen Staubmessung für den Pelletofen

Datum der Messung	25.01.2006		
Ofentyp	Pelletofen	Wodtke	
Bemerkung	Msg. ab Start	Dauerbetrieb ohne Abreinigung	
Laufzeit	11:46-14:49	15:14-16:02	16:45-17:35
Holzart	Holzpellets	Holzpellets	Strohpellets
Staubkonzentration gesamt	mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup>	16	18
Mittlere CO-Konzentration	ppm	< 50	< 50
Mittlere CO-Konzentration bei 13% O <sub>2</sub>	mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup>	150	< 100
Mittl. Luftüberschusszahl Lambda	-	4.1	4.0
Mittl. NOx-Konzentration bei 13% O <sub>2</sub>	mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup>	170	160
Staub-Konzentration gesamt bei 13% O <sub>2</sub>	mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup>	25	27
			820
			2300
			8.1
			165

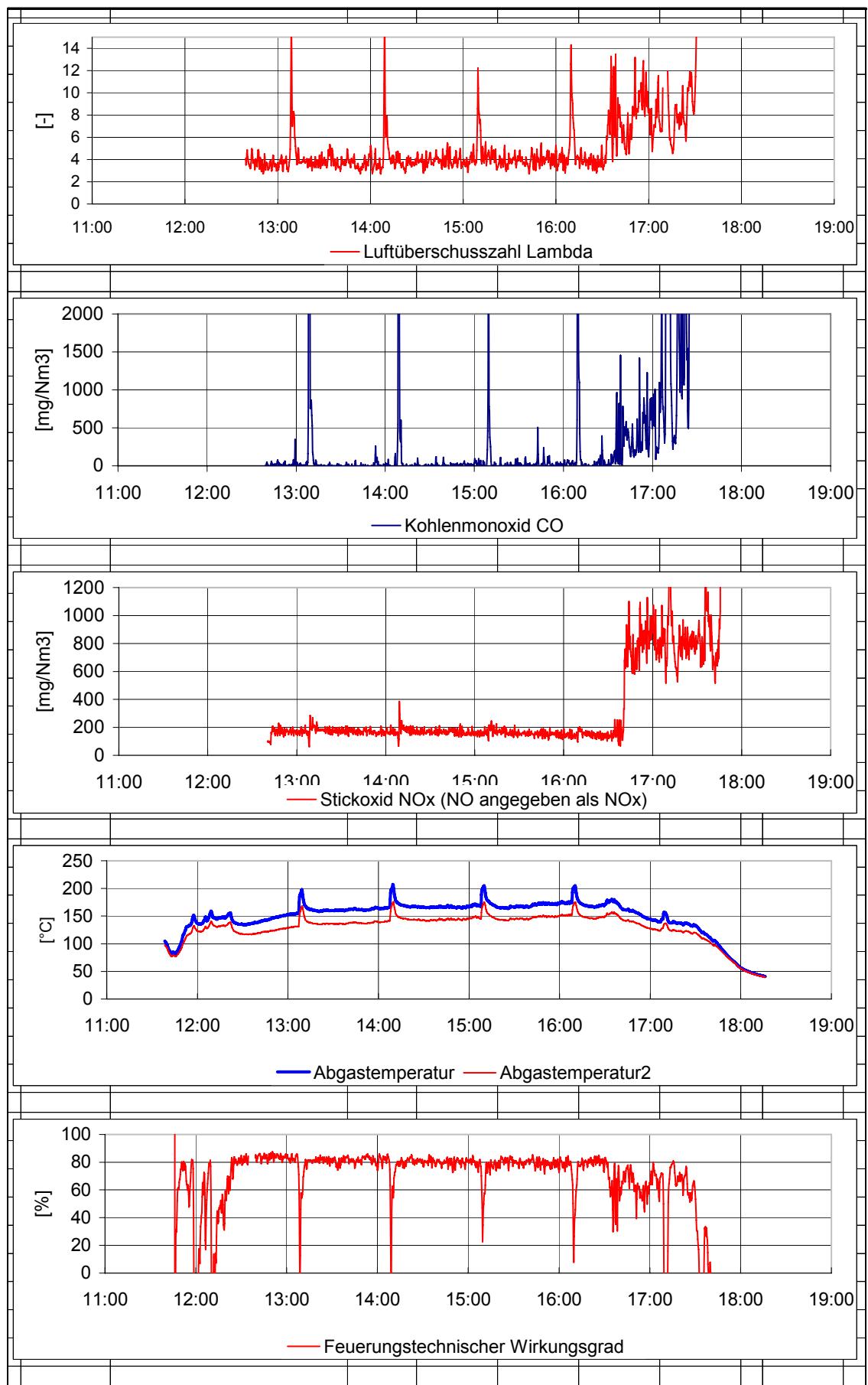


Bild 39: Standardmessungen und Kenngrößen beim Pelletofen; die Umstellung auf Strohpellets erfolgte um 16:40

Beim Betrieb mit Strohpellets stiegen die CO-Werte zunächst auf 400–700 mg/m<sup>3</sup> an. Nachdem die Retorte mit Asche gefüllt war und nicht abgereinigt werden konnte, stiegen die CO-Emissionen auf über 5000 mg/m<sup>3</sup>. Vor dieser markanten Überhöhung wurde die Staubmessung abgebrochen.

## 5.2 Partikelspektren

Parallel zur Filtermessung wurde die Korngrößenverteilung des Feinstaubs in 3-Minuten Intervallen mit dem SMPS bestimmt. In Bild 40 sind die mittleren Verteilungsfunktionen für Holz- und Strohpellets verglichen. Der Hauptteil der Emissionen liegt in beiden Fällen im Feinpartikelbereich unter 1 µm. Ergänzende Messungen der grösseren Partikel mit dem Streulichtzähler ergaben keinen wesentlichen Zusatzbeitrag zu den Gesamtemissionen. Mit Strohpellets erhöhten sich sowohl die Anzahlkonzentration als auch die Grösse der emittierten Partikel, was auf eine grösse Anzahl von Primärpartikeln und zunehmende Agglomeration schliessen lässt.

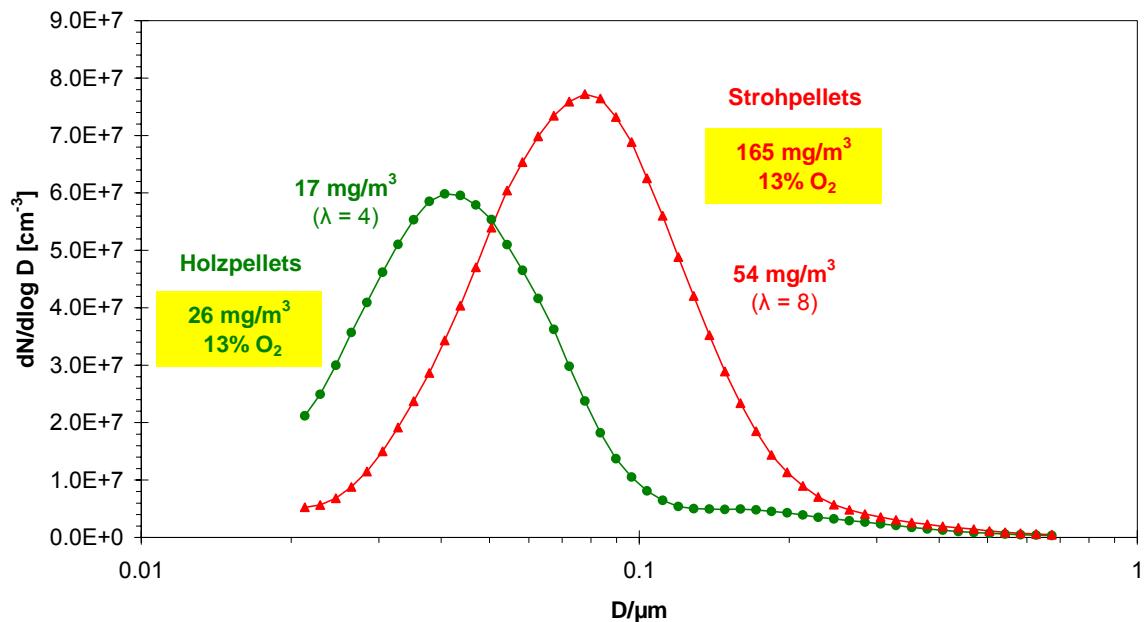


Bild 40: SMPS-Spektren Pelletofen.

## 6 Zusammenhang zwischen CO- und Staubemissionen

Die Messungen am Pelletofen zeigen eindrücklich, dass bei homogenem Brennstoff und kontrollierter Luftzuführung sehr tiefe CO-Emissionen möglich sind und mit tiefen Staubemissionen einhergehen. Da CO sehr einfacher zu messen ist als Staub, stellt sich die Frage, inwiefern eine CO-Messung eine einfache Abschätzung über die Staubemissionen ermöglicht.

In Bild 41 sind die mittleren Staub- und CO-Emissionen für verschiedene Messintervalle bei den drei untersuchten Stückholzöfen zusammengefasst. Der Zusammenhang ist nicht eindeutig, sondern hängt stark davon ab, in welcher Verbrennungsphase die Messung stattfindet. Aus dem gemessenen zeitlichen Verlauf von Staub- und CO-Emissionen ist erkennbar, dass die Anfeuerphase und die Zeit kurz nach dem Nachlegen von Holz jeweils zu hohen Staubemissionen führt (Bild 16, Bild 23). Die Ausbrandphase trägt praktisch nicht mehr zu den Gesamtstaubemissionen bei, ist aber durch hohe CO-Emissionen geprägt. Wie am Beispiel des Ofentyps 3 gezeigt wurde (Bild 9), können im Ausbrand die normierten CO-Emissionen auf Spitzenwerte über  $10'000 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.% O<sub>2</sub>) ansteigen, während die Staubemissionen sicher unter  $20 \text{ mg/m}^3$  liegen. Dieser Unterschied zwischen CO- und Staubemissionen gilt auch für die anderen Ofentypen. Bei Ofentyp 2 wurde im Ausbrand ein mittlerer CO-Wert von  $8'600 \text{ mg/m}^3$  bei Staubemissionen von etwa  $10 \text{ mg/m}^3$  gemessen (Tabelle A2). Es lässt sich daher in der Ausbrandphase eine klare Diskrepanz zwischen dem Trend der CO-Emissionen und den Staubemissionen feststellen. Diese Phase ist für Staubemissionen in keinem Fall kritisch, wie in mehreren Messungen bestätigt wurde.

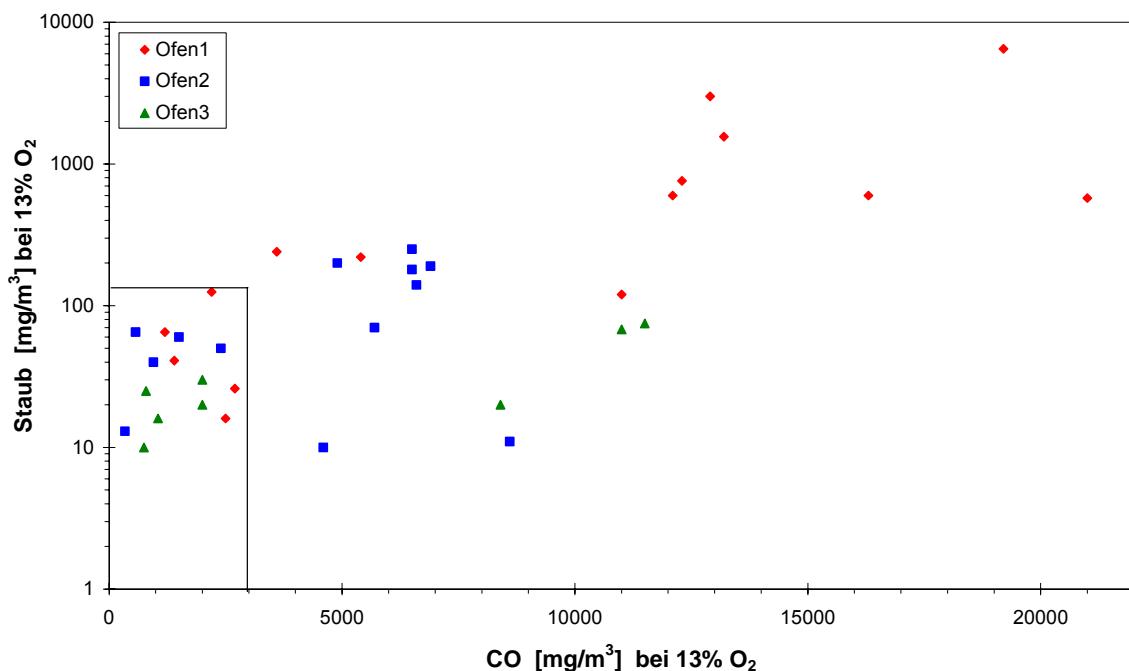


Bild 41: Zusammenhang zwischen CO- und Staubemissionen (auf 13 Vol.-% O<sub>2</sub> normiert) bei den 3 Stückholzöfen. Bei den Staubkonzentrationen wurde der Anteil Kondensat auf dem Back-up-Filter mit berücksichtigt (vgl. Tabelle A1-A3). Wegen der grossen Variabilität der Staubemissionen sind diese auf einer logarithmischen Skala aufgetragen. Bei Unterschreitung eines CO-Werts von  $3000 \text{ mg/m}^3$  liegen die Staubemissionen unter  $130 \text{ mg/m}^3$  (Rechteck im linken Teil der Grafik).

Bei ungünstigem Brennstoff lassen die CO-Emissionen auch in der normalen Verbrennungsphase keinen sicheren Rückschluss auf die Staubemissionen zu, wie ein Vergleich von Ofentyp 2 und Ofentyp 3 beim Betrieb mit feuchter chilenischer Buche zeigt. Ofentyp 3 konnte mit diesem Brennstoff auf Staubwerte  $< 70 \text{ mg/m}^3$  optimiert werden, hatte allerdings hohe CO-Emissionen von  $11'000 \text{ mg/m}^3$ . Beim Ofentyp 2 waren die CO-Werte halb so hoch, aber die Staubemissionen mindestens doppelt so hoch.

Die hohen CO-Werte in der Ausbrandphase sind zum Teil auf die Normierung auf 13 Vol.-% O<sub>2</sub> zurückzuführen. Beim Vergleich der unnormierten CO-Emissionen (Bild 42, Tab. A1-A3) fällt auf, dass besonders hohe Werte von > 0.4 % in der Regel auch mit überhöhten Staubemissionen einhergehen. Insbesondere lassen sich beim Überfüllen eines Ofens mit resultierender Luftmangelsituation CO-Emissionen nahe 1 % beobachten, die im Ausbrand nicht vorkommen. Bei Unterschreitung eines CO-Werts von 0,18 % wurden in allen Fällen tiefe Staubemissionen von  $< 70 \text{ mg/m}^3$  erzielt. Solche CO- und Staubemissionen wurden in allen Normmessungen mit trockenem Buchenholz erzielt, also auch beim einfach gebauten Ofentyp 1. Ein CO-Limit von 0,2 % und Staubemissionen nach VDI-Norm von  $< 100 \text{ mg/m}^3$  wurden sogar dann erreicht, wenn die kritische Anfeuerphase mitgemessen wurde.

Aus den Normmessungen lässt sich daher ableiten, dass ein CO-Grenzwert von 0,2 % oder normiert  $3000 \text{ mg/m}^3$  erfüllbar ist, sofern trockener Brennstoff verwendet wird.

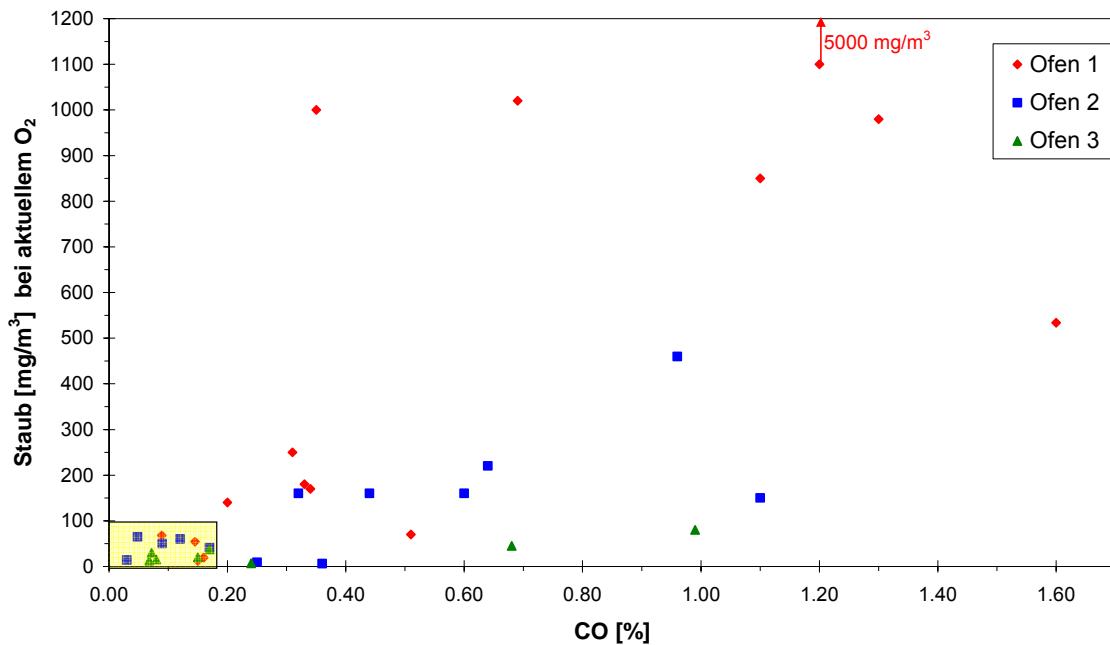


Bild 42: Zusammenhang zwischen CO- und Staubemissionen bei den 3 Stückholzöfen. In dieser Darstellung beziehen sich die Angaben auf den direkt gemessenen Gehalt im Abgas, die Werte sind also nicht auf 13% O<sub>2</sub> normiert. Bei den Staubkonzentrationen wurde der Anteil Kondensat auf dem Back-up-Filter mit berücksichtigt (vgl. Tabelle A1-A3). Der Zielbereich für tiefe Emissionen ist gelb markiert.

Der Fragestellung nach einem vereinfachten Messverfahren in der Praxis wurde in ausgewählten Messungen an handbeschickten Holzfeuerungen im Kanton Zürich nachgegangen [5]. Hierbei wurde zunächst die Bedeutung des Anfahrvorgangs bestätigt. Für eine einfache Praxisüberwachung kann

daraus abgeleitet werden, dass Rauch (nicht Wasserdampf) nur während kurzer Zeit während der Anfahrphase auftreten darf, da Rauch in der Regel mit einer deutlichen Überschreitung des Orientierungswerts von  $150 \text{ mg/m}^3$  bei 13 Vol.-%  $\text{O}_2$  verbunden ist. Dabei wurde ein optisches Rauchbild definiert (Bild 43) mit 0% (kein Rauch sichtbar), 10% (kaum sichtbar), 20% (schwach sichtbar), bis 100% (starker Rauch) und gezeigt, dass bereits ab 20% Rauchbild die Feinstaubemissionen in der Regel überschritten waren.

Obwohl die Emissionen an Kohlenmonoxid und Feinstaub wie oben beschrieben nicht eineindeutig miteinander korrelieren, zeigte sich für die ausgewählten Messungen an installierten Holzfeuerungen, dass der Orientierungswert für Staubemissionen in der Regel eingehalten wird, wenn der heutige Richtwert für Kohlenmonoxid von  $4'000 \text{ mg/m}^3$  unterschritten ist. Ein Vergleich mit den Labormessungen (Tabelle A1-A3) bestätigt diese Aussage auf Basis der VDI-Filtermessungen.



Bild 43: Abschätzung von Emissionen aufgrund von Rauchbildern, nach Wehrli [5].

Die Praxismessungen im Kanton Zürich sind somit konsistent mit den vorliegenden Labormessungen. Sie beziehen sich dabei auf bestehende Anlagen und höhere Emissionslimits als es das Qualitäts-siegel für neue Holzfeuerungen vorsieht.

Aus der Studie für das AWEL [5] kann geschlossen werden, dass eine Verbrennung nach 15 Minuten rauchfrei sein sollte und eine Kontrollmessung 15 Minuten nach dem Anfeuern beginnen sollte [6]. Diese Zeit erscheint aufgrund der vorliegenden Laborresultate als relativ lang und dürfte nur geeignet sein, sehr grobe Fehler beim Betrieb der Feuerung, wie vorzeitiges Schliessen der Luftklappe, zu erkennen. Beim optimalen Betrieb eines Ofens werden kleine Holzchargen von nur 1,5 kg verwendet. Die Abbranddauer beträgt dabei ca. 30 Minuten bis zum nächsten Nachlegen. Es ist deshalb zu prüfen, ob die Messung bereits ab Nachlegen auf Grundglut zu starten ist, um mit genügend langer Messzeit einen solchen Abbrand zu erfassen. Die teilweise übliche Praxis, einen Ofen zu füllen, führt in jedem Fall zu überhöhten Emissionen und sollte durch Schulung der Betreiber vermeiden werden.

Die Einhaltung eines tief genug gewählten CO-Limits in der Praxis kann zu einer merklichen Senkung der Staubemissionen führen. Für Kontrollen und Grenzwerte kritisch bleibt allerdings der Umstand, dass der Umkehrschluss von hohen CO-Emissionen auf hohe Staubwerte nicht eindeutig ist. Er gilt insbesondere nicht in der Ausbrandphase, was sich durch die Wahl des Messzeitpunkts noch berücksichtigen lässt.

## 7 Biologische Tests

### 7.1 Probennahme für biologische Tests

Für biologische Tests sind Staubprobenmengen von 0,3 bis 1 Gramm pro Versuch erforderlich. Die beheizten Filter für die gravimetrische Staubmessung sind für die Probennahme nicht gut geeignet, da sich bei quarzfaser gestopften Hülsen der Staub in der Quarzwolle verteilt und nicht mehr gut extrahiert werden kann. Filterpatronen aus Quarzfasern, die den Staub direkt an der Oberfläche sammeln, neigen dagegen zum Durchbruch bei hohen Beladungen, so dass die Staubmessung nicht mehr quantitativ auswertbar wäre. Es wurde daher eine Probennahme parallel zur gravimetrischen Staubmessung durchgeführt, um grössere Staubmengen für weitere Analysen zu sammeln.

Hierzu wurde ein Teil des Abgases zunächst in zwei Waschflaschen mit destilliertem Wasser geleitet und abgekühlt. Der grösste Teil der Partikelfracht wird dabei nicht im Wasserbad abgeschieden, da Russpartikel hydrophob sind. Diese Partikel wurden auf einem nachgeschalteten Planfilter bei Raumtemperatur gesammelt. Sowohl die Flüssigkeit in den Waschflaschen als auch die Partikel auf dem nachgeschalteten Filter wurden für ausgewählte Versuche analysiert.

Bei der normalen Staubprobennahme nach EPA-Norm wurde in einem beheizten Filter mit nachgeschalteten Waschflaschen gesammelt. Der Inhalt ausgewählter Waschflaschen aus dieser Probennahme wurde ebenfalls chemisch analysiert und für biologische Zelltests verwendet. Durch die Kombination dieser Analysen werden sowohl die filterbaren Partikel als auch die Kondensate erfasst.

Um eine Vergleichsbasis der Inhaltsstoffe und der biologischen Wirksamkeit zu haben, wurden zusätzlich Dieselrussproben untersucht. Hierzu wurden zunächst umfangreiche Probennahmen mit grossen Planfiltern im Abgasstrom eines Euro3-PKW an der EMPA Dübendorf durchgeführt [7]. Diese Probe konnte gut chemisch analysiert werden, war aber nur bedingt geeignet für biologische Zelltests, da sich der Russ nicht vollständig vom Filtermaterial separieren liess. Für besonders sensitive biologische Tests wurde eine weitere Dieselrussprobe verwendet. Der Dieselruss stammt aus einem Partikelfilter grosser Fläche und sehr tiefer Strömungsgeschwindigkeit, wie er testweise an einem Euro2-Stadtbus eingesetzt wurde [8]. Wegen der tiefen Filtrationsgeschwindigkeit konnte dieser Filter über einen längeren Zeitraum sehr stark beladen werden. Der Russ lässt sich dann als trockenes Pulver entfernen, ohne dass Filterfasern mitgerissen werden. Diese Probe wurde von Herrn Andreas Mayer, TTM, zur Verfügung gestellt.

Bei gutem Betrieb der Holzöfen waren die Staubkonzentrationen im Abgas zu klein, um genügend Probenmenge für biologische Zelltests zu sammeln. Um einen Anhaltspunkt für die Wirksamkeit von Stäuben aus guten bis durchschnittlichen Verbrennungsbedingungen zu erhalten, wurde vor Beginn der gesamten Versuchsreihe Staub aus dem Ofenrohr des Versuchsstandes entnommen. Der dort abgesetzte Staub entstand beim Testbetrieb mit verschiedenen Öfen über mehrere Monate. Da es sich um den Teststand eines Ofenbauers handelt, sind sehr schlechte Betriebspunkte durch Bedienungsfehler nahezu ausgeschlossen. Allerdings wird am Ofenrohr nur ein Teil der Partikel abgeschieden und es entsteht dabei eine Größenfraktionierung. Diese Probe liefert daher nur eine Abschätzung für einen durchschnittlichen guten Betrieb.

## 7.2 Methodik Zelltests

Die biologischen Zelltests wurden mit V79-Lungenfibroblastzellen des chinesischen Hamsters durchgeführt [9]. Vorteil dieser Zelllinie ist, dass die Zellkerne sehr verschieden geformte Chromosomen haben und sich dadurch Chromosomenschäden zuverlässig nachweisen lassen. In einer ersten Testreihe wurde die Toxizität der Stäube untersucht. Hierzu wurde eine genau definierte Menge an gesammelten Feinpartikeln der Nährösung der Zelle zugegeben. Die Überlebensrate der Zellen wurde für verschiedene Partikelkonzentrationen im Medium untersucht. Zur Messung der Zellaktivität, und damit des Überlebens der Zellen, diente bei diesem Test die mitochondriale Aktivität, die sich mit einem Standardverfahren gut bestimmen lässt [10].

In einer zweiten Testreihe wurden Chromosomenschäden in Abhängigkeit der zugegebenen Partikelkonzentration untersucht. Chromosomenschäden lassen sich einerseits detektieren durch festgestellte Chromosomenbrüche. Alternativ dazu lässt sich aber auch beobachten, ob sich sogenannte Mikrokerne gebildet haben. Diese Mikrokerne entstehen aus abgebrochenen Chromosomenbruchstücken und sind ein Mass für Chromosomenbrüche während der Zellteilung. Bei diesen Tests wurde die Schwellenkonzentration bestimmt, ab der sich Chromosomenbrüche, also Mikrokerne, nachweisen lassen.

## 7.3 Probenaufbereitung

Der gesammelte Staub wurde zusammen mit den Filtern zunächst vollständig in Zellkulturflüssigkeit dispergiert. Diese Flüssigkeit enthielt noch keine lebenden Zellen. Anschliessend erfolgte eine bestmögliche Abtrennung der Filterfasern aus der Flüssigkeit, so dass ein konzentriertes Gemisch aus Nährösung mit Partikeln zur Verfügung stand. Diese Lösung wurde in verschiedener Verdünnung einer Zellkultur zugegeben. Die Beobachtung der Zellüberlebensrate erfolgte durch eine Messung der mitochondrialen Aktivität der behandelten Zellen im Vergleich zu einer unbehandelten Referenzgruppe.

Als Blindproben wurden unbeladene (leere) Filter in der gleichen Weise aufbereitet wie die partikelbeladenen Filter. Die so erhaltene Konzentratlösung war partikelfrei, enthielt aber noch unvollständig separierte Filterfasern. Diese führten in den Zelltests ebenfalls zu einer Schädigung. Die mittlere Überlebensrate war nahezu unabhängig von der Menge zugegebenen Konzentrats etwa 70%. Hieraus ergibt sich eine reduzierte Nachweisempfindlichkeit bei den Proben von grossen Planfiltern, d. h. Zellschädigungen sind erst dann signifikant durch die zugegebenen Partikel hervorgerufen, wenn die Überlebensrate unter 70% liegt.

Diese Einschränkung gilt nicht für die pulverförmige Dieselrussprobe vom EURO2-Stadtbus und die Proben von Kleinfeuerungen, bei denen eine wesentlich höhere Staubbeladung pro Filterfläche erzielt wurde. In diesen Fällen sind entweder keine Filterfasern vorhanden oder ihr Beitrag ist so gering, dass sie nicht zur beobachteten biologischen Wirkung beitragen.

## 7.4 Zytotoxizitätstests

### 7.4.1 Ergebnisse für eine automatische Holzfeuerung

Im Projekt Partikelwirkung wurde vor der Zusatzmessung der Holzöfen bereits eine umfangreiche Untersuchung von Stäuben aus einer automatischen Holzfeuerung durchgeführt [7, 11, 12]. Hierzu wurden Filterproben im Abgas einer automatischen Holzfeuerung in der gleichen Weise auf Planfiltern gesammelt wie beim EURO3-Dieselmotor. Die Ergebnisse dieser Studie werden im Folgenden als Vergleichsbasis zusammengefasst.

Ein grosser Unterschied zwischen Dieselruss und den gesammelten Partikeln aus dem Abgas der automatischen Holzfeuerung ist schon rein optisch auf den Planfiltern erkennbar (Bild 44).

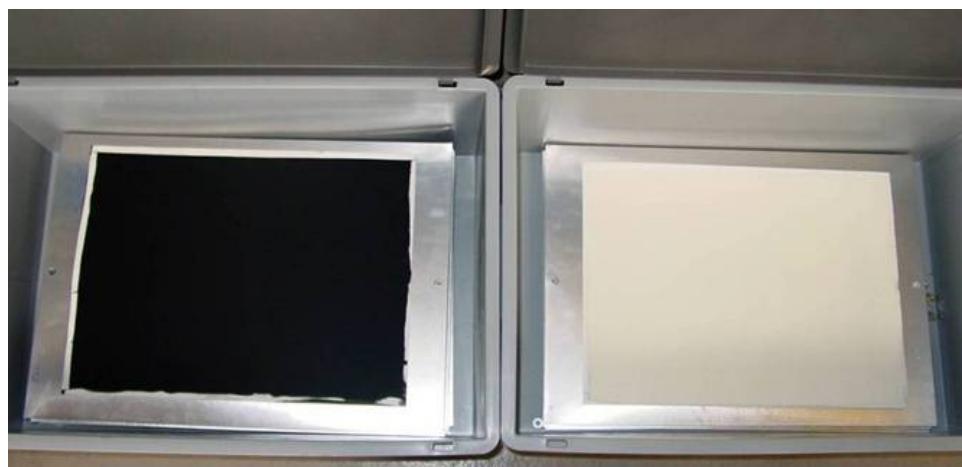


Bild 44 Filterproben von einem Dieselmotor (links) und einer automatischen Holzfeuerung (rechts). Die Filterbeladung mit Dieselruss beträgt 0,6 g. Für die Probe von der automatischen Holzfeuerung ist die Beladung deutlich höher (2 g), dennoch entsteht keine dunkle Färbung.

In Bild 45 ist die Zellüberlebensrate als Funktion der Partikelkonzentration in der Nährösung der Zellen (Zellmedium) aufgetragen. Die Zellschädigung durch Dieselpartikel war deutlich grösser als durch Partikel aus der automatischen Holzfeuerung (Bild 45). Bei einer Dieselpartikel-Konzentration von 3 mg/ml sind praktisch alle Zellen abgestorben, während bei derselben Konzentration an Partikeln aus der automatischen Holzfeuerung die Zellschädigung noch an der Nachweigrenze liegt.

Da diese Art von Holzfeuerung vorwiegend anorganische Salze emittiert, wurde als weiterer Vergleichstest eine reine Kalium-Salzlösung zu den Zellkulturen gegeben. Dieser Test hat den Vorteil, dass keinerlei Filterfasern in der Zellkulturlösung mehr vorliegen und damit auch kleine Schädigungen gut erfasst werden. Das Ergebnis dieses Tests ist in Bild 46 zusammengefasst: Eine  $K_2SO_4$  oder  $KCl$ -Lösung führt praktisch zur gleichen Dosis-Wirkungskurve wie die Holzfeuerungspartikel.

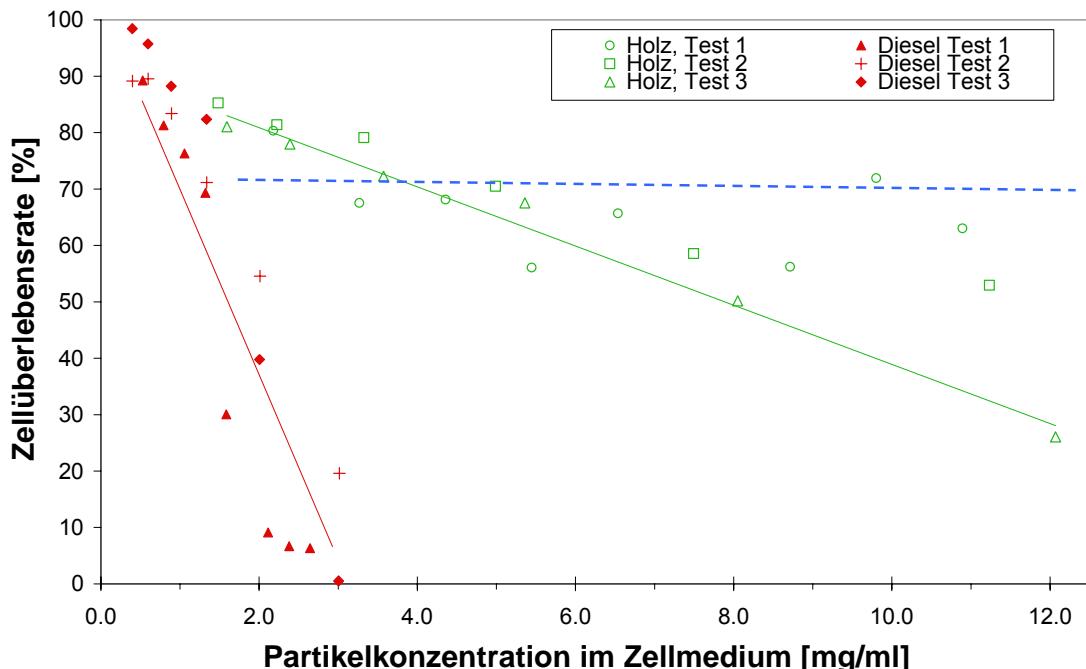


Bild 45: Zytotoxizitätstest für Staub aus einer automatischen Holzfeuerung im Vergleich zu Dieselruss. Die gestrichelte Linie gibt die Grenze der Nachweisempfindlichkeit dieses Tests an, d. h. erst bei einer Überlebensrate unter 70% ist die Schädigung signifikant.

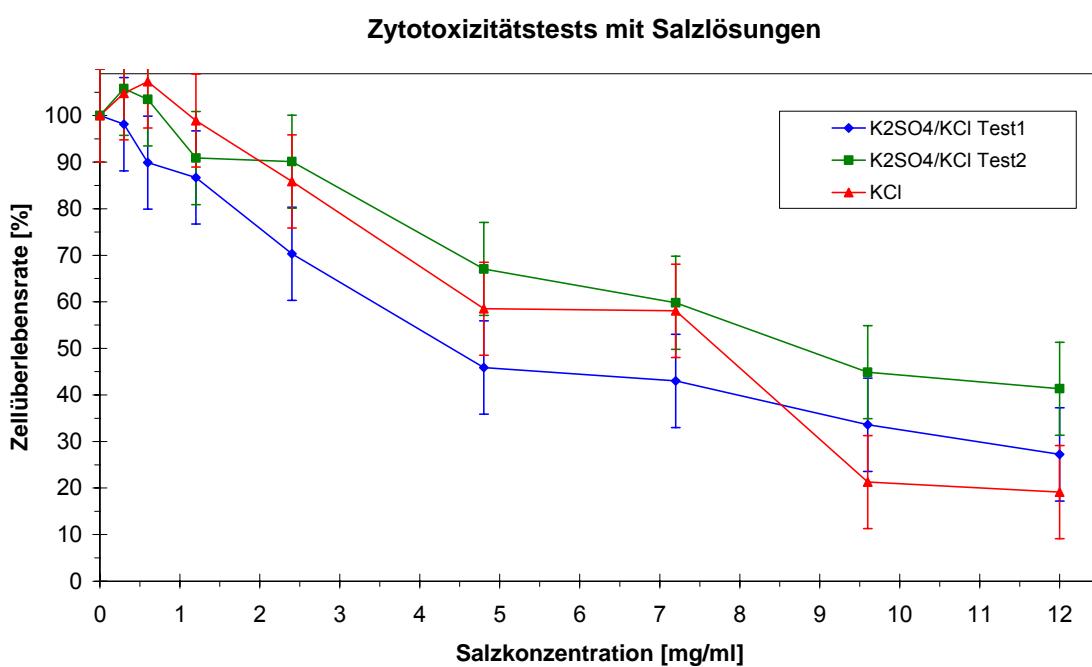


Bild 46: Zytotoxizitätstests mit reinen Kaliumsalzlösungen ohne jede Verunreinigung.

In hohen Konzentrationen sind daher auch reine Salze zelltoxisch. Die beobachtete Toxizität dieser Holzfeuerungspartikel kann also allein durch deren Hauptbestandteil, die anorganischen Salze, erklärt werden.

## 7.4.2 Ergebnisse für ausgewählte Stäube aus Kleinfeuerungen

Die Partikelemissionen aus Kleinfeuerungen sind nur teilweise auf die Bildung anorganischer Salze zurückzuführen. Bei hohen Emissionen dominiert die Bildung von Russ und führt zur Schwärzung der Filter. Unter optimierten Bedingungen ist ein Gemisch aus Russ und anorganischen Salzen zu erwarten. Die vier Teilproben von Holzverbrennungsstaub aus dem Kaminrohr der Versuchsanlage ergeben entsprechend Zellschädigungskurven, die zwischen dem Dieselruss und den rein salzhaltigen Stäuben aus der automatischen Verbrennung liegen (Bild 47). Als Vergleichsbasis wurde hierbei die pulverförmige Dieselrussprobe verwendet, um den Untergrundeffekt durch Filterfasern ganz auszuschliessen.

Die Filterproben aus sehr schlechter Verbrennung ( $\geq 5 \text{ g/m}^3$  Emission) waren hoch beladen, so dass eine Abtrennung der Russpartikel von den Filtern gut möglich war. Die Zelltests mit diesen Partikeln ergaben eine deutlich höhere Toxizität als für Dieselruss. Geringfügige Restverunreinigungen von Filterfasern hatten in Blindtests keinerlei signifikante Auswirkungen, so dass die beobachtete Schädigung eindeutig auf die Holzrusspartikel zurückzuführen ist. Ein Vergleich der 50% Schädigungskonzentration zeigt, dass diese Holzrusspartikel aus sehr schlechter Verbrennung etwa 10-mal zelltoxischer sind als Dieselruss.

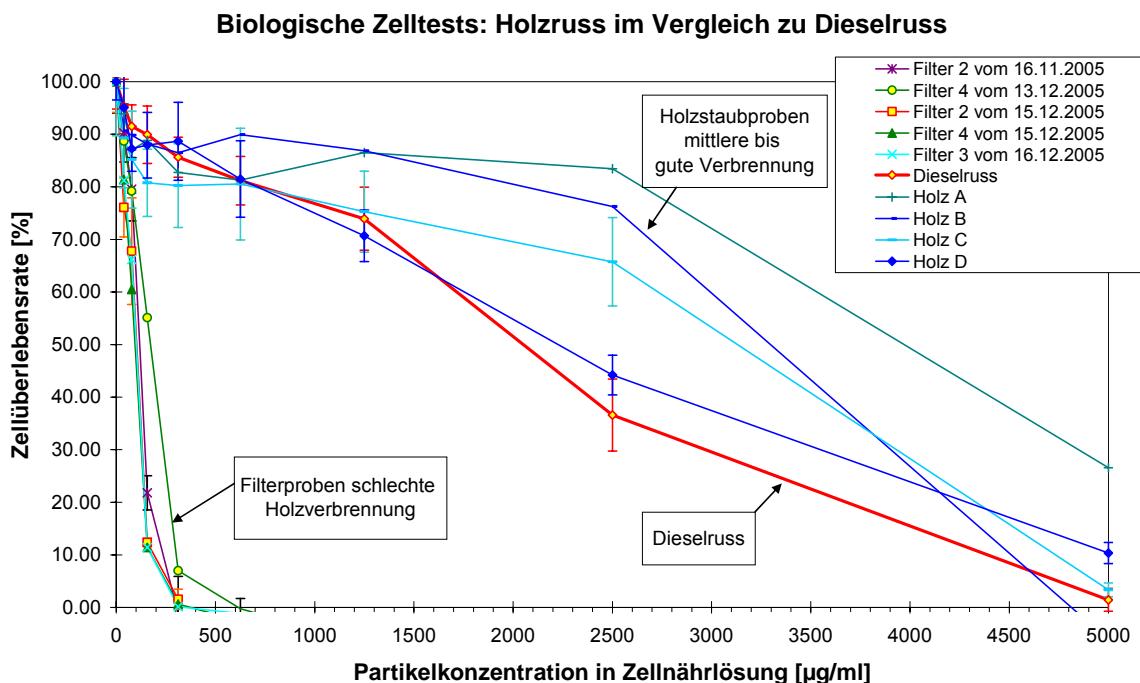


Bild 47: Zytotoxizitätstest für Holzruss aus Kleinfeuerungen im Vergleich zu Dieselruss

## 7.5 Mikrokerntests

Für ausgewählte Proben wurden zusätzlich Mikrokerntests durchgeführt, um die Schwellenkonzentration für Chromosomendefekte nachzuweisen. Diese Tests ergaben ein vergleichbares Ergebnis wie die Zytotoxizitätstests, allerdings sind die Konzentrationen hierbei deutlich kleiner (Bild 48). Für die Staubproben vom Dieselmotor und gesammelten Holzstaub aus dem Kaminrohr lagen die Schwellenkonzentrationen für den Nachweis von Chromosomenbrüchen bei 300 µg/ml und 600 µg/ml. Dieser scheinbar grosse Unterschied entspricht einer Stufe in der gewählten Verdünnungsreihe und ist an der Grenze der Signifikanz. Ähnlich wie beim Zytotoxizitätstest ist also auch hier die Holzstaubprobe vergleichbar bis geringfügig weniger toxisch als Dieselruss.

Ein sehr deutlicher und signifikanter Unterschied ergab der Mikrokerntest für die beiden Proben aus sehr schlechter Holzverbrennung. Hier lag die Schwellenkonzentration für eine Schädigung bereits bei 6 µg/ml und 20 µg/ml. Auch hier korreliert das Ergebnis des Mikrokerntests mit dem Zytotoxizitätstest, d. h. die etwas weniger toxische Probe hat auch eine höhere Schwellenkonzentration für das Auftreten von Chromosomenbrüchen.

Ein Vergleich zur Dieselrussprobe ergibt für die getesteten Proben aus sehr schlechter Holzverbrennung eine mindestens 15-mal kleinere Schwellenkonzentration für den Nachweis von Chromosomenbrüchen.

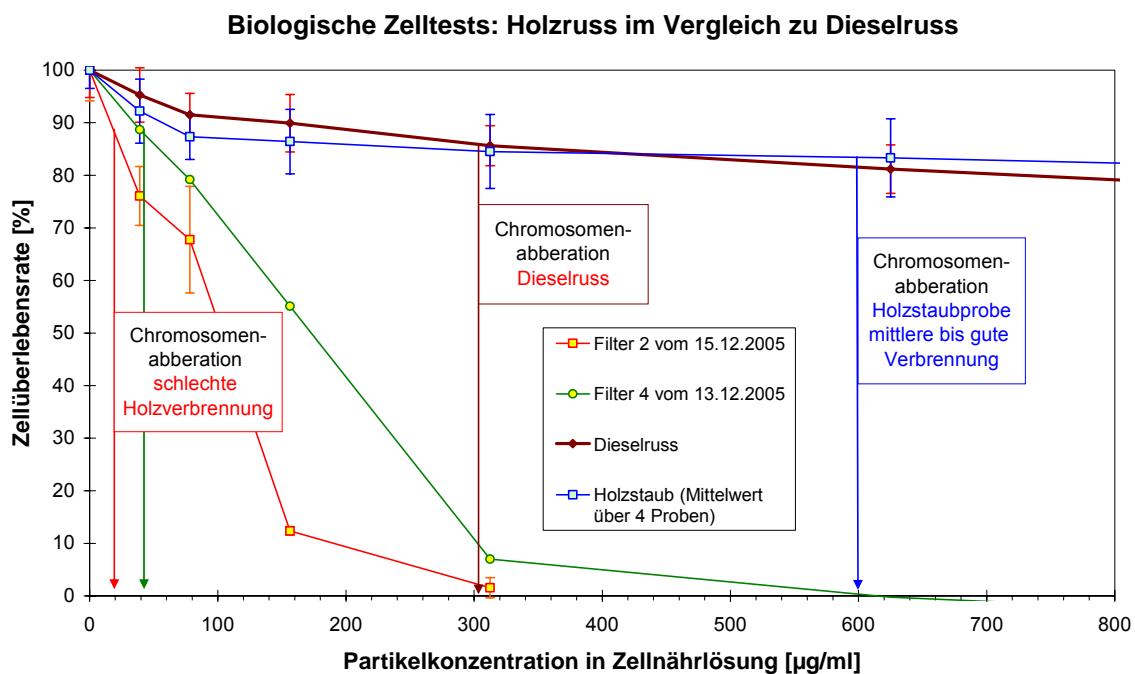


Bild 48: Mikrokerntest für Holzruss aus Kleinfürzungen im Vergleich zu Dieselruss

## 8 Chemische Analyse der Staubinhaltsstoffe

Die beobachteten grossen Unterschiede in der biologischen Wirksamkeit der untersuchten Stäube sind eine Folge der verschiedenen chemischen Zusammensetzung. Um diese zu quantifizieren wurden an einigen ausgewählten Proben chemische Analysen beim Institut Bachema durchgeführt. Der grösste beobachtete Unterschied in der Zelltoxizität besteht zwischen einer Probe aus einer gut betriebenen automatischen Holzfeuerung und einer Probe vom Holzofen bei sehr schlechtem Betrieb.

Die chemischen Inhaltsstoffe verschiedener Proben sind in Bild 49 verglichen. Eine korrekt betriebene automatische Feuerung erreicht CO-Emissionen unter 50 ppm, der gemessene Anteil von unverbranntem Kohlenstoff in der Staubprobe ist dabei 2 %. Bei nichtoptimalem Betrieb mit CO-Emissionen von 400 ppm erhöht sich dieser Anteil auf 4 %. Mit einem Anteil von > 90% sind die wesentlichen Bestandteile dieser Staubproben Kaliumsalze. Der geringe Anteil an unverbranntem Kohlenstoff (Russ) führt dazu, dass die Filterproben weiss bleiben (Bild 44).

Bei der Probe vom schlecht betriebenen Holzofen ist erwartungsgemäss der wesentliche Anteil unverbranntes Material in Form von Kohlenstoff und Kohlenwasserstoffverbindungen. Der Kaliumsalzanteil ist dagegen sehr klein (< 2%), wobei der Sulfatanteil ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) vernachlässigbar ist. Eine Gaschromatograph-Analyse bei dieser Probe zeigte eine Vielzahl verschiedenster Kohlenstoffverbindungen auf, deren genaue Aufschlüsselung nicht möglich war. Um eine Abschätzung über den Anteil toxischer Verbindungen zu ermöglichen, wurde für diese Probe der Gehalt an polzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) bestimmt.

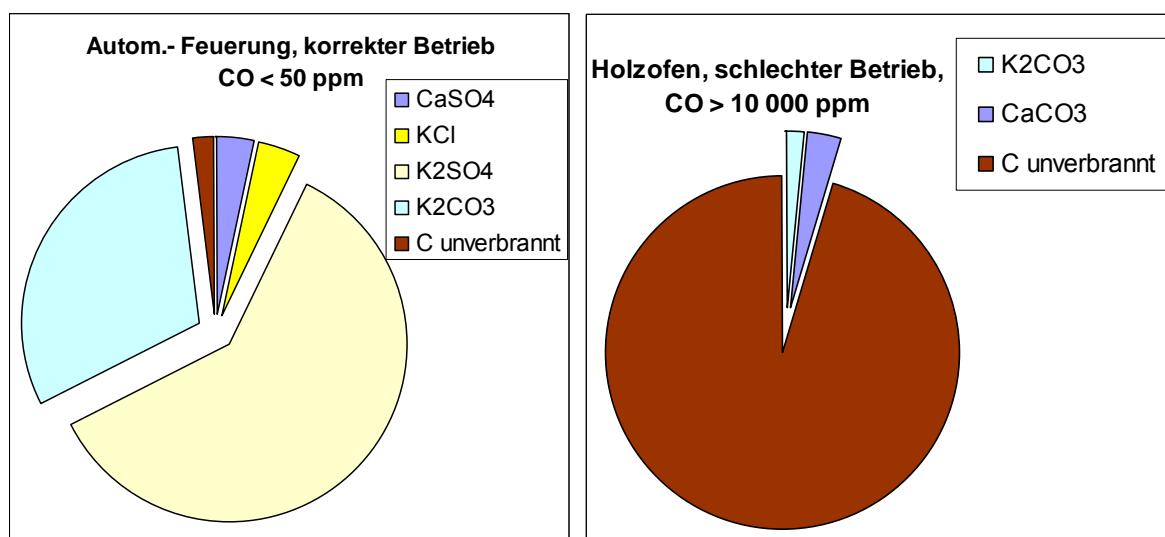


Bild 49: Chemische Zusammensetzung von Staubproben aus sehr unterschiedlicher Holzverbrennung.

Die amerikanische Umweltbehörde EPA hat eine Liste von 16 PAK herausgegeben, die als kanzerogene Leitsubstanzen gelten. Der bekannteste Vertreter hierbei ist das Benzo(a)pyren (BaP). PAK entstehen als Syntheseprodukte während der Holzverbrennung und werden bei unvollständigem Ausbrand der Gase emittiert. Um zu prüfen, ob die höhere Toxizität der Probe aus unvollständiger Verbrennung mit einem hohen PAK-Gehalt korreliert, wurde eine chemische Analyse dieser Probe im

Vergleich zu einer Dieselrussprobe durchgeführt. Das Ergebnis der PAK-Analyse ist in Tabelle 8.1 zusammengefasst und zeigt, dass der Staub aus schlechter Holzverbrennung mit 1,12 g/kg oder 0,112 Gew.-% etwa 20-mal mehr PAK enthält als die Dieselrussprobe. Der Unterschied wird noch grösser, wenn man die höheren Staubemissionen bei der schlechten Holzverbrennung mitberücksichtigt. Der Gehalt der partikelgebundenen PAK im Abgas einer solchen Feuerung ist etwa 5,6 mg/m<sup>3</sup> und damit einen Faktor 1000 höher als im Abgas eines Dieselmotors.

Die Staubprobe aus schlechter Holzverbrennung weist besonders hohe Konzentrationen von Fluoren, Phenanthren, Fluoranthen und Pyren auf. Fluoren zählt zu den besonders toxischen PAK und wird unter anderem zur Pestizidherstellung verwendet. Pyren ist im Zusammenhang mit Dieselabgasen als möglicher Auslöser von Allergien untersucht worden [13].

Tabelle 8.1 Gehalt an polzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in der Staubprobe aus sehr schlechter Holzverbrennung im Vergleich zu Dieselruss.

<b>PAK-Komponente</b>		<b>Staub von Holzverbrennung</b>	<b>Dieselruss</b>
Naphthalin	mg/kg	13	42
Acenaphthylen	mg/kg	129	7.1
Acenaphthen	mg/kg	17	< 3
Fluoren	mg/kg	173	< 3
Phenanthren	mg/kg	231	3.7
Anthracen	mg/kg	65	< 3
Fluoranthen	mg/kg	154	< 3
Pyren	mg/kg	170	< 3
Chrysene	mg/kg	54	< 3
Benzo(a)anthracen	mg/kg	44	< 3
Benzo(b)fluoranthen	mg/kg	30	< 3
Benzo(k)fluoranthen	mg/kg	11	< 3
Benzo(a)pyren	mg/kg	25	< 3
Indeno(1,2,3-cd)pyren	mg/kg	9	< 3
Dibenzo(a,h)anthracen	mg/kg	< 8	< 3
Benzo(g,h,i)perylene	mg/kg	< 8	< 3
<b>EPA-PAK-Gehalt im Staub</b>	<b>mg/kg</b>	<b>1 120</b>	<b>53</b>
bei Staubgehalt im Abgas von	mg/m <sup>3</sup>	5 000	100
beträgt der <b>EPA-PAK-Gehalt im Abgas</b>	µg/m <sup>3</sup>	<b>5 600</b>	<b>5,3</b>

## 9 Interpretation der biologischen Tests

Die durchgeföhrten Zelltests erlauben grundsätzlich einen relativen Vergleich der biologischen Wirksamkeit der Komponenten der Feinstäube, die untersucht wurden. Aufgrund ihrer Grösse ist bei allen Staubsorten davon auszugehen, dass sie in den Atmungstrakt und insbesondere dort auch in die Alveolen der Lunge eindringen können. Wenn sie dort eingedrungen sind, rufen Dieselrusspartikel eine höhere biologische Schädigung hervor als reine Salzpartikel aus einer guten kontrollierten Verbrennung in automatischen Holzfeuerungen. Staub aus Kleinfeuerungen, der aus Ablagerungen im Abgaskanal entnommen wurde, weist eine vergleichbare biologische Wirksamkeit auf wie Dieselruss. Stäube, die unter sehr schlechten Verbrennungsbedingungen gezielt auf Filtern gesammelt wurden, sind aufgrund der Zelltests etwa zehn Mal toxischer als Dieselrusspartikel und zwar sowohl in Bezug auf direkte Zellschädigung als auch auf Mutagenität der Zellen.

Die viel höhere Toxizität korreliert mit einem gemessenen wesentlich höheren Anteil an polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK). Es kann daher nicht gesagt werden, ob die Partikelrusskerne selbst eine höhere Schädigung hervorrufen. Vielmehr erscheint es wahrscheinlich, dass die adsorbierten Substanzen, die bei sehr schlechten Verbrennungsbedingungen entstehen, zu einer höheren Schädigung führen.

Lungenfibroblastzellen aus dem chinesischen Hamster haben nicht notwendigerweise die gleiche Empfindlichkeit gegenüber Schadstoffen wie Epithelzellen des menschlichen Lungengewebes. Weiterhin sind Zellkulturen empfindlicher auf Fremdeinwirkungen als Zellen, die im Zellverband in einem gesunden Körper liegen. Eine exakte quantitative Übertragung der Resultate in Form einer Schwellenkonzentration für Gesundheitswirkungen im menschlichen Lungengewebe ist daher nicht möglich.

Laut Untersuchungen der EMPA in St. Gallen haben Epithelzellen des menschlichen Lungengewebes eine höhere Empfindlichkeit gegenüber Nanopartikeln als Fibroblastzellen des chinesischen Hamsters [14]. Tatsächliche Schäden am menschlichen Lungenepithelgewebe bei den hier gemessenen Konzentrationen sind daher möglicherweise noch höher, als es sich mit diesen Zelltest abschätzen lässt.

Der Umfang der tatsächlichen Schädigung im Atmungstrakt wird schliesslich durch die Effektivität des Immunsystems und seiner Möglichkeiten der Abreinigung dieser überhöhten Schadstoffkonzentration bestimmt. Die Immunantwort auf diese Belastungssituationen sollte demnach auch Gegenstand weiterer Untersuchungen werden. Hierdurch lassen sich Zusammenhänge über häufige Krankheitsbilder herausfinden, die bisher aus epidemiologischen Studien bekannt sind, deren biologische Wirkungskette aber noch nicht gut verstanden ist. Die Klärung des Einflusses von Schadstoffpartikeln auf eine mögliche Überreakтивität des Immunsystems ist insbesondere wichtig, um zu beurteilen, ob es einen Zusammenhang zwischen der Partikelbelastung in der Umgebungsluft und der zunehmenden Häufigkeit von Allergien und Asthma gibt.

# 10 Schlussfolgerungen

## 10.1 Partikelemissionen von Holzöfen

- Handbeschickte Holzöfen weisen mit Emissionswerten von unter 20 mg/m<sup>3</sup> bis zu über 5 000 mg/m<sup>3</sup> (bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>) eine riesige Bandbreite der Feinstaubemissionen auf. Obwohl die Feinstaubemissionen von der Feuerungstechnik abhängig sind, kann zumindest bei Holzöfen die Betriebsweise einen meist noch wesentlicheren Einfluss haben:

So stiegen die Emissionen eines Holzofens mit Qualitätssiegel von unter 50 mg/m<sup>3</sup> auf rund 250 mg/m<sup>3</sup> an, wenn anstelle eines idealen Betriebs mit sehr kleinen Chargen an sehr kleinen und trockenen Holzscheitern ein Betrieb mit einer grösseren Charge von üblich grossen Holzscheitern erfolgt. Bei Verwendung von feuchtem Holz betrugen die Emissionen sogar rund 500 mg/m<sup>3</sup>.

In einem einfachen Holzofen resultierten unter schlechten Betriebsbedingungen durch Schliessen der Luftklappen Staubemissionen von über 5000 mg/m<sup>3</sup>, was im Vergleich zu einem Idealbetrieb mit kleinen Holzchargen im gleichen Ofen einer Erhöhung um mehr als einen Faktor 100 entspricht.

- Aufgrund dieser riesigen Bandbreite ist davon auszugehend, dass die Emissionsfrachten handbeschickter Feuerungen in der Praxis deutlich unterschätzt werden, sofern für Emissionsinventare Emissionsfaktoren von Prüfstandsmessungen verwendet werden.
- Die grosse Bandbreite der Feinstaubemissionen zwischen Idealbetrieb und schlechtem Betrieb verdeutlicht, dass für die Praxis nicht nur das Abfallverbrennungsverbot in Holzfeuerungen durchgesetzt werden muss, sondern dass gleichzeitig auch Massnahmen notwendig sind, welche einen unsachgemässen Betrieb mit naturbelassenem Holz in Praxisanlagen sicher verhindert.
- Ein Holzofen mit räumlicher Trennung von Füllschacht und Brennkammer sowie mit zweistufiger Verbrennung durch in einer verjüngten Zone eingemischter Sekundär Luft vor der Nachbrennkammer erzielte bei idealem Betrieb sehr geringe Feinstaubemissionen von unter 20 mg/m<sup>3</sup>. Der wesentliche Vorteil dieses Verbrennungsprinzips besteht jedoch darin, dass selbst bei unüberwachtem Normalbetrieb mit typischen Holzscheitern und gefülltem Füllschacht Emissionen von sicher unter 50 mg/m<sup>3</sup> eingehalten wurden. Ein drastisches Ansteigen der Emissionen durch Überfüllen ist konstruktionsbedingt ausgeschlossen. Das Konstruktionsprinzip weist aber auch für andere Arten von Fehlbedienung ein geringeres Risiko auf. Bei Befüllung mit nassem Holz erfolgt nach kurzer Zeit ein Ablöschen, so dass ein langfristiger Betrieb mit dramatisch erhöhten Emissionen im Gegensatz zu dem einfachen untersuchten Holzofen nicht möglich ist. Weil die heutigen Vorschriften zur Typenprüfung jedoch einen weitgehend idealen Betrieb während der Prüfstandsmessung nicht sicher ausschliessen, weist das zweistufige Verbrennungsprinzip bei der heutigen Typenprüfung keinen relevanten Vorteil gegenüber konventionellen Holzöfen auf. Im Weiteren ermöglicht es für den Betreiber systembedingt nur eine eingeschränkte Betriebsart, welche auf das korrekte Heizen mit Stückholz ausgerichtet ist. Aus diesem Grund hat sich ein Funktionsprinzip in der beschriebenen Art oder allfällige weitere Alternativen zu konventionellen Holzöfen auf dem Markt nicht durchgesetzt.
- Der Anfahrvorgang führt bei Holzfeuerungen zu erhöhten Emissionen an Feinstaub und gasförmigen Schadstoffen aus unvollständiger Verbrennung. Zur Beurteilung der Emissionen von handbeschickten Holzfeuerungen ist deshalb die Erfassung des Anfahrvorgangs entscheidend. Der Ausbrand führt zwar als Folge der Vergasung von Holzkohle zu hohen Kohlenmonoxidemissionen, in der Regel aber nur zu geringen Emissionen an Feinstaub und organischen Verbindungen.

## 10.2 Messmethodik

- Durch die Ergänzung konventioneller Messtechnik mit den on-line Partikelmessungen mit einem SMPS und einem Streulichtgerät (OPC) kann nicht nur die Größenverteilung, sondern auch der zeitliche Verlauf der Partikelemissionen gut erfasst werden. Hierdurch ist es möglich, die wesentlichen Phasen der Verbrennung zu identifizieren und ihren Beitrag zu den Partikelemissionen zu quantifizieren. Diese Kenntnis ermöglicht es, die Zeitintervalle für gravimetrische Messungen sowohl für Prüfstands- als auch für Praxismessungen in der Zukunft besser festzulegen.
- In den vorliegenden Untersuchungen konnten bei optimalem Betrieb bei drei der vier untersuchten Feuerungen Staubemissionen von weniger als  $25 \text{ mg/m}^3$  (bei 13 Vol.-%  $\text{O}_2$ ) erzielt werden. Bei diesen Verbrennungsbedingungen mit geringer Staubfracht weisen die Feinstaubemissionen ein Korngrößenmaximum (angegeben als Anzahlverteilung) im Größenbereich zwischen 30 nm und 40 nm auf. Diese Größenklasse liegt im Bereich zwischen den bekannten Emissionen von Ölfeuerungen und Benzinmotoren [15] und ist aus bisherigen Arbeiten über Holzfeuerungen kaum bekannt. Mit zunehmend schlechter Verbrennung verschiebt sich das Maximum der Größenverteilungsfunktion auf Werte zwischen 100 nm und 200 nm, die auch in früheren Arbeiten publiziert wurden [15, 16, 17].
- Bei sehr ungünstigen Verbrennungsbedingungen werden relevante Konzentrationen an Partikeln im Bereich  $0,5 \mu\text{m}$  bis  $1 \mu\text{m}$  mit dem OPC registriert. Diese Partikel tragen wesentlich zu den überhöhten Emissionen von schlecht betriebenen Feuerungen bei und bewirken eine sichtbare Rauchfahne. Bemerkenswert ist, dass der Unterschied zwischen guter und schlechter Verbrennung einen Faktor 10'000 und mehr in den Emissionen von  $0,5 \mu\text{m}$  Partikeln ausmacht. Diese hohe Dynamik kann für vereinfachte optische Messverfahren in Praxistests genutzt werden. Mit dem SMPS ist dieser Unterschied nicht so deutlich erkennbar, so dass ein optisches Verfahren die bessere Methode ist, um schlechte Verbrennungsbedingungen zu identifizieren.
- Schlechte Verbrennungsbedingungen sind gleichbedeutend mit unvollständiger Verbrennung, die zusätzlich zur Emission von Kohlenwasserstoffen und kondensierbarem Material führt. Diese Kondensate werden in der bisherigen VDI- oder EU-Normmessung mit beheizten Filtern nicht erfasst. Ausgewählte Versuche haben gezeigt, dass diese Kondensate bei schlechter Verbrennung etwa gleichviel oder sogar mehr zu den Emissionen beitragen als filterbare Partikel. Bei guter Verbrennung ist der Kondensatanteil dagegen vernachlässigbar.
- Um die Feinstaubemissionen neuer Holzfeuerungen im Praxisbetrieb zu vermindern, sollten nebst der Umsetzung bisheriger Massnahmen wie FairFeuern [18] und Empfehlungen zum Betrieb [19] auch praxisgerechtere Messvorschriften zur Typenprüfung und für das Qualitätssiegel eingeführt werden. Diese sollten einen idealisierten Prüfstandsbetrieb verhindern und auch das Anfahren und Nachlegen erfassen.

## 10.3 Gesundheitswirkung der untersuchten Feinstäube

- Holzfeuerungen und Dieselmotoren weisen bei normaler Betriebsweise Feinstaubemissionen mit vergleichbaren Massenkonzentrationen in der Größenordnung von  $100 \text{ mg/m}^3$  und ähnlichen Korngrößen mit einem Maximum um  $0,1 \mu\text{m}$  auf. Bei sehr unvollständiger Verbrennung von Holz steigt der Staubgehalt deutlich an, was gleichzeitig mit einer Verschiebung des Korngrößenmaximums zu grösseren Partikeln verbunden ist. Holzstaub und Dieselruss sind aber in jedem Fall zum überwiegenden Teil lungengängige Feinstäube kleiner  $2,5 \mu\text{m}$  und damit potenziell gesundheitsrelevant. Aufgrund ihrer Korngrösse ist bei allen untersuchten Staubarten davon auszugehen, dass sie in den Atmungstrakt und insbesondere auch in die Alveolen der Lunge eindringen können.
- Feinstaub aus der nahezu vollständigen Verbrennung von naturbelassenem Holz in automatischen Holzfeuerungen ist grossteils anorganisch und besteht hauptsächlich aus Salzen. Dieser Feinstaub weist in den vorliegenden Tests eine mindestens rund fünffach geringere Zelltoxizität auf als der untersuchte Dieselruss.
- Feinstaub aus dem Kamin von unter Prüfstandsbedingungen betriebenen Kleinfeuerungen mit Holz weisen eine vergleichbare Toxizität und Chromosomenschädigung auf wie Dieselruss.
- Der Feinstaub aus sehr unvollständiger Verbrennung von Stückholz aus einem schlecht betriebenen Holzofen besteht grossteils aus Russ und organischen Substanzen und er weist einen rund 20-fach höheren PAK-Gehalt auf als der untersuchte Dieselruss. Dieser russartige Holzstaub ist rund zehnmal wirksamer in Bezug auf Zelltoxizität und Chromosomenschädigung als Dieselruss und somit rund zwei Größenordnungen schädlicher als salzartiger Holzstaub aus einer automatischen Holzfeuerung.
- Im Weiteren ist zu beachten, dass die Innenraumbelastung von schlecht betriebenen Holzfeuerungen ein erhöhtes Gesundheitsrisiko für die Bewohner darstellen kann. Untersuchungen an Personen, welche in Mexiko auf einfachen Feuerstellen mit Holz kochen, bestätigen denn auch ein mit Rauchen vergleichbares Lungenkrebsrisiko [20]. Erhebungen in Indien zeigen, dass in Indien jährlich rund 500'000 Kinder unter 14 Jahren an den Folgen der Innenraumbelastung durch Kochen mit biogenen Feststoffen sterben und dass zwei Drittel aller an Lungenkrebs erkrankten Frauen Nichtraucherinnen sind [21].
- Zur Ableitung der Konsequenzen von Feinstaub in der Umgebungsluft ist zu beachten, dass die Methode lediglich die biologische Reaktivität der Feinstäube sowie der an den Feinstäuben adsorbiert Schadstoffe erfasst. Einwirkungen gasförmiger Schadstoffe im Abgas sowie kombinierte Wirkungen von Schadgasen und Partikeln werden damit nicht erfasst. Ebenso werden allfällige Veränderungen der Partikel in der Atmosphäre, aber auch mögliche Veränderungen zwischen Probenahme und Zelltest nicht erfasst.

# Literatur

---

- [1] Klippel N. und Nussbaumer T. (2007): Wirkung von Verbrennungspartikeln. Schlussbericht Bundesamt für Energie, Bundesamt für Umwelt, ISBN 3-908705-16-9.
- [2] Umhauer H.: "Particle size distribution analysis by scattered light measurements using an optically defined measuring volume", *J. Aerosol Sci.* 14 (1983), p 765-770.
- [3] Burtscher H. und Fierz M. (2005), Fachhochschule Nordwestschweiz, private Mitteilung
- [4] Schuepp K. et al.: In vitro determination of the optimal particle size for nebulized aerosol delivery to infants, *Journal of Aerosol Medicine*, Vol. 18, no. 2 (2005), 225-235
- [5] Wehrli T.: Messbericht, Emissionsmessung an 4 Stückholzfeuerungen, Messbericht vom 28. 7. 2006 zu Handen AWEL Kanton Zürich Abteilung Lufthygiene, Zürich 2006
- [6] AWEL, Kanton Zürich: „Optimierte Anfeuermethode, vereinfachte CO-Messung“, „Kontrolle von Holzfeuerungen, Züricher Vollzugskonzept“, Dokumente auf [www.luft.zh.ch](http://www.luft.zh.ch), Zürich 2006
- [7] Oser M. und Nussbaumer T.: „Wirkung von Verbrennungspartikeln“ Jahresbericht 2004, Forschungs- und P+D Programm Biomasse im Auftrag des BfE
- [8] Mayer A., TTM (2005): private Mitteilung
- [9] Ford D., Yerganian G.: Observations on the chromosomes of Chinese hamster cells in tissue culture. *J. Natl. Cancer Inst.*, 21: 393-425, (1958)
- [10] Roehm N., Rodgers G., Hatfield S., Glasebrook A.: An improved colorimetric assay for cell proliferation and viability utilizing the tetrazolium salt XTT. *Journal of Immunological Methods*, 142 (1991), 257-265.
- [11] Nussbaumer T., Klippel N., Oser M.: Health relevance of aerosols from biomass combustion in comparison to Diesel soot indicated by the cytotoxicity on lung cells, *Aerosols in Biomass Combustion*, Series Thermal Biomass Utilization, Graz University of Technology, Vol. 6, ISBN 3-9501980-2-4, 45–54 (2005)
- [12] Klippel N., Nussbaumer T.: Health relevance of combustion particles from automatic wood furnaces and Diesel engines indicated by cytotoxicity, *14th European Biomass Conference*, Paris, 17–21 October 2005
- [13] Duschl A.: "Impact of Diesel exhaust to the immune system", 7<sup>th</sup> ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zürich, 2003
- [14] Brunner T. et al. (EMPA St. Gallen): "In vitro cytotoxicity of oxide nanoparticles: comparison to asbestos, silica, and the effect of particle solubility", *Environ. Sci. Technol.*, **40** (14), 4374 -4381, 2006
- [15] Schmatloch V., ETH Conf. on Nanoparticle Measurement, Zürich, August 2000
- [16] Hüglin C., Dissertation ETH No. 11975 (1996)
- [17] Johansson L. S., "Characterisation of particle emissions from small-scale biomass combustion", Thesis for the degree of licentiate of engineering, Chalmers University, Göteborg, 2002
- [18] Zürcher F., 9. Holzenergie-Symposium, 20. Oktober 2006, ETH Zürich
- [19] Amt für Umwelt Graubünden: Merkblatt „Cheminéefeuer ohne Rauch“, [www.umwelt-gr.ch](http://www.umwelt-gr.ch), 2006
- [20] Delgado J., Martinez L., Sanchez T., Ramirez A., Iturria C., Gonzalez-Avila G.: Lung Cancer Pathogenesis Associated With Wood Smoke Exposure, *Chest* (2005) 128, 124–131
- [21] Ali Z., Narain M.: Case Study: Indian Cookstove Program, *Rethinking our Energy Future, Dialogue on Science*, Academia Engelberg, October 9 to 11, 2006, Engelberg

# Anhang: Zusammenfassung der Staubmessungen

Tabelle A1: Staubmessungen an Ofentyp 1 (einfacher Metallofen)

Betriebsweise	Holzart	w [%]	T <sub>Verbr.</sub> [°C]	T <sub>Abgas</sub> [°C]	λ	CO <sub>2</sub> [%]	CO [%]	CO [mg/m <sup>3</sup> ] bei 13% O <sub>2</sub>	Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] bei aktuellem O <sub>2</sub>			Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] normiert auf 13% O <sub>2</sub>			Messzeit [min]	Bemerkung		
									VDI	Filter 2	VDI + Filter 2	TOC	EPA	VDI	VDI + Filter 2	EPA		
<b>1. ideal/nach Norm</b>																<b>1.5kg Holz pro Charge</b>		
	Buche	12	550	280	2.4	8.6	0.20	2200	100	40	140			90	125	30	Messung ab Start, von unten angezündet, 2 Chargen	
	Buche	12	470	300	2.0	10.1	0.15	1400	49	5	54			37	41	20	Messung 10Min. nach Anfeuern	
	Buche	12	570	270	2.6	7.9	0.09	1200	65	3	68			65	65	45	Messung ab Start, von oben angezündet	
<b>Normmessung:</b>	Buche	12	510	280	3.5	5.9	0.15	2500	12	0	12			16	16	20	<b>Nachlegen auf Grundglut (3 Messungen)</b>	
	Buche	12	500	270	3.6	5.6	0.16	2700	19	0	19			26	26	50	Nachlegen auf Grundglut und Ausbrand	
<b>2. typisch</b>	Buche	12-20	490	250	2.5	7.9	0.31	3600	95	155	250			90	240	55	Anfeuern mit trockenem Holz (w=12%), 4kg Holz (w=20%) nachgelegt	
	Buche	20	220	130	7.8	2.3	0.35	12900	360	640	1000			1100	3000	55	Nachlegen grösserer Holzstücke auf schwach glimmendes Restfeuer	
	Buche	20	440	225	3.4	5.7	0.34	5400	50	120	170			70	220	40	Nachgelegtes Holz hat Feuer gefangen und brennt normal	
<b>3. schwieriger Brennstoff</b>  (chil. Buche)	Roble	33	560	290	1.9	9.4	1.10	12100	550	300	850			400	600	30	Anfeuern mit trockenem Holz, 4kg Holz (w=33%) nachgelegt	
	Roble	33	215	150	8.6	2.1	0.33	16300	140	40	180			450	600	90	Nachlegen grösserer Holzstücke auf schwach glimmendes Restfeuer	
	Roble	33	440	240	4.5	4.1	0.51	11000	50	20	70			90	120	30	Ausbrandphase	
	Roble	16-33	320	155	4.0	4.4	0.69	13200	510	510	1020			780	1560	70	grössere Holzmenge (5 kg) mit Luftklappe 1/4 bis 1/2	
	Roble	33	480	200	2.0	8.8	1.30	12300	-	-	980			-	760	70	grössere Holzmenge (3.4kg) mit Luftklappe 1/8 bis 1/2	
	Roble	33	340	130	2.8	5.6	1.60	21000	530	4	534			570	575	25	Ausbrandphase der 3.4 kg Holz mit Luftklappe 1/4	
<b>4. sehr schlecht</b>	Buche	20	195	105	3.5	4.8	1.20	19200	3700	1300	5000	5700	10700	4800	6500	13800	50	Schliessen der Luftklappe bei gefülltem Ofen

Tabelle A2: Staubmessungen an Ofentyp 2 (moderner Ofen mit Qualitätslabel, Tiba Modell "Montanino 2")

Betriebsweise	Holzart	w [%]	T <sub>Verbr.</sub> [°C]	T <sub>Abgas</sub> [°C]	λ	CO <sub>2</sub> [%]	CO [%]	CO [mg/m <sup>3</sup> ] bei 13% O <sub>2</sub>	Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] bei aktuellem O <sub>2</sub>				Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] normiert auf 13% O <sub>2</sub>				Messzeit [min]	Bemerkung
									VDI	Filter 2	VDI + Filter 2	TOC	EPA	VDI	VDI + Filter 2	EPA		
<b>1. ideal/nach Norm</b>																		
	Buche	12	520	175	2.6	7.6	0.12	1500	60	0	60			60	60		je 45	<b>1.5kg Holz pro Charge</b> Messung ab Start, von oben angezündet (2 Messungen)
<b>Normmessung:</b>	Buche	12	650	230	2.2	9.1	0.09	950	50	0	50			<b>40</b>	<b>40</b>		100	<b>Nachlegen auf Grundglut (2 mal),</b> Luftklappe 1/2
	Buche	12	650	240	2.5	8.0	0.05	570	65	0	65			65	65		20	Messung 15 Min. nach Nachlegen bis Beginn Ausbrand
	Buche	20	590	230	3	6.5	0.17	2400	33	8	41			40	50		40	Nachlegen auf Grundglut (Luftklappe offen wg. feuchtem Holz)
<b>2. typisch</b>																		
	Buche	20	720	280	1.4	13.4	0.96	6500	240	220	460	990	1450	130	250	790	35	4 kg Holz (w=20%) nachlegen auf Grundglut
	Buche	20	700	270	2.4	8.4	0.03	340	<11	3	≤14			<10	≤13		30	Beginn der Ausbrandphase
	Buche	20	420	190	5.0	3.7	0.36	8600	4	2	6			9	11		35	Ende der Ausbrandphase
	Buche	20	480	180	2.3	8.2	0.60	6600	140	20	160			125	140		40	Ofen von unten angezündet, mittl. Holzmenge
	Buche	20	810	360	1.2	16.4	1.10	5700	135	15	150			60	70		35	Ofen überfüllt
	Buche	20	570	280	3.2	6.1	0.25	4600	8	1	9			9	10		50	anschliessende Ausbrandphase
<b>3. schwieriger Brennstoff</b> (chil. Buche)	Roble	16/33	450	150	3.3	5.9	0.32	4900	110	50	160			140	200		40	Anfeuern mit trockenem Holz, Nachlegen von feuchtem Holz
	Roble	33	470	210	3.3	5.9	0.44	6900	80	80	160			100	190		70	Nachlegen von feuchtem Holz auf starke Glut (Luftklappe offen)
	Roble	16/33	550	200	2.1	8.9	0.64	6500	100	120	220			80	180		55	Anfeuern und Nachlegen von feuchtem Holz (Wdhlg.)

Tabelle A3: Staubmessungen an Ofentyp 3 (Sonderentwicklung mit 2-stufiger Verbrennung, Tiba Modell "Sirius")

Betriebsweise	Holzart	w [%]	T <sub>Verbr.</sub> [°C]	T <sub>Abgas</sub> [°C]	λ	CO <sub>2</sub> [%]	CO [%]	CO [mg/m <sup>3</sup> ] bei 13% O <sub>2</sub>	Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] bei aktuellem O <sub>2</sub>			Staubemission [mg/m <sup>3</sup> ] normiert auf 13% O <sub>2</sub>			Bemerkung
									VDI	Filter 2	TOC Wasch- flaschen	VDI	EPA		
<b>1. ideal/nach Norm</b>	Buche	10	680	350	2.1	9.9	0.08	750	15±5	< 1	15±5	10±5	10±5	150	kontinuierliche Brennstoffzufuhr über Füllschacht (ca. 15kg) kontinuierlicher Betrieb mit sehr trockenem Holz Messung ab Start, ohne Anzündwürfel Messung 0.5-1h nach Start <b>bei kontinuierlichem Betrieb</b> Ausbrandphase
	Buche	12	440	240	3.3	6.2	0.07	1050	13	< 1	13	16	16		
	Buche	12	510	300	2.8	7.1	0.15	2000	10-30	< 1	10-30	20±10	20±10		
	Buche	12	300	195	7.4	2.5	0.24	8400	≤7	< 1	≤7	≤20	≤20		
<b>2. typisch</b>	Buche	20	600	320	2.2	9.1	0.07	790	30	< 1	30	25	25	Messung ab Start, von oben angezündet Messung 0.5-1h nach Start bei kontinuierlichem Betrieb	
	Buche	20	650	340	2.1	9.6	0.17	2000	37	< 1	37	30	30		
<b>3. schwieriger Brennstoff</b>	Roble (chil. Buche)	16 / 33	540	350	2.5	7.3	0.99	11500	80	≤ 1	80	75	75	70	Messung ab Start, trockenes und feuchtes Chile-Holz optimierter Betrieb mit neuer Primärluftklappe
<b>4. sehr schwieriger Brennstoff</b>	Thuja / Buche	50 / 20	620	340	2.5	7.6	0.87	9900	42		42	40	40	70+60	nasses Holz (Thuja) 1:1 gemischt mit Buche 20%