



## Jahresbericht 2000

Über die Arbeiten gemäss Vertrag: 69121

**Titel des Projekts: Grundlagen der Aerosolbildung bei Holzfeuerungen**

### **Zusammenfassung:**

Im Berichtsjahr wurde die Versuchsanlage fertiggestellt und in Betrieb genommen. Weiter wurden die Partikelemissionen und weitere Betriebsdaten bei unterschiedlichen Feuerungsparametern bestimmt. Zur Charakterisierung der Partikel wurden Messungen mit Planfiltern, SMPS und ELPI sowie punktuell mit Andersen Impaktor durchgeführt. Im weiteren wurden die Abgaspartikel chemisch analysiert. Die bisherigen Versuche wurden mit Buchenwaldhackschnitzeln durchgeführt. Zur Parametervariation wurde von einem Standardbetrieb mit geeigneten Feuerungseinstellungen ausgegangen.

Bei guten Verbrennungsbedingungen bestehen die Abgaspartikel hauptsächlich aus Salzen und weisen einen Kohlenstoffgehalt von etwa 7 Gew.-% sowie einen Anteil an organischem Kohlenstoff von etwa 1 Gew.-% auf. Somit ist nur ein geringer Anteil der Partikel auf unvollständige Verbrennung zurückzuführen. In den bisherigen Messungen wurden die Betriebsparameter wie folgt variiert, wobei der Sekundärluftanteil immer ca. 35% betrug und für alle Versuche gute Ausbrandbedingungen erzielt wurden:

- Feinanteil kleiner 3 µm zwischen 1,3 Gew.-% und 27,6 Gew.-%
- Luftüberschusszahl zwischen 1,3 und 3,0 mit Flammtemperaturen von 640°C bis 1020°C.

Die mittels SMPS bestimmte Anzahlverteilung ist monomodal mit einem Maximum zwischen 60 nm und 80 nm. Die Massenverteilung (bei Standardbetrieb) ist dagegen bimodal mit einem zweiten Maximum bei etwa 10 µm, wobei die submikrone Partikelfraktion etwa drei Viertel der Masse ausmacht. Für zukünftige Emissionsminderungen sind diese submikronen Partikel aufgrund ihrer Lungengängigkeit und der langen Aufenthaltsdauer in der Atmosphäre von vordringlicher Bedeutung.

Aus der Variation des Feinanteils resultierte keine messbare Beeinflussung von Staubgehalt, Anzahl Partikel und Grössenverteilung. Der Luftüberschuss führte dagegen bei tiefen Werten zu einer höheren Partikelmassenkonzentration und bei sehr hohen Werten zu einer grösseren Partikelanzahl.

Die bisherigen Versuchsvariationen führten insgesamt lediglich zu einer Beeinflussung des Staubgehalts und der Anzahl submikroner Partikel um einen Faktor 1,6 (85 mg/Nm<sup>3</sup> bis 135 mg/Nm<sup>3</sup> bzw. 8,4 10<sup>7</sup>/Ncm<sup>3</sup> bis 13,8 10<sup>7</sup>/Ncm<sup>3</sup> bei 13 Vol.-% O<sub>2</sub>). Die Inbetriebnahme und die bisher durchgeführten Messungen entsprechen dem Terminplan des Projektantrags.

Für das folgende Jahr sind weitere Messungen vorgesehen wobei insbesondere der Einfluss von Temperatur, Luftstufung, Höhe des Glutbetts und Brennstoffart untersucht werden sollen.

**Dauer des Projekts:** 1.1.1999 bis 31.12.2001

**Beitragsempfänger:** Verenum, EMPA Dübendorf, Tiba-Müller AG  
**Berichtersteller:** Dr. Michael Oser, PD Dr. Thomas Nussbaumer  
**Adresse:** Verenum, Langmauerstrasse 109, CH – 8006 Zürich

Telefon 01/364 14 12, Fax 01/364 14 12, E-Mail: [verenum@access.ch](mailto:verenum@access.ch)

# 1 Projektziele

- Evaluation der Hauptmechanismen der Aerosolbildung in automatischen Holzfeuerungen
- Analyse des Einflusses der Betriebsparameter auf die Aerosolbildung
- Analyse des Brennstoffeinflusses auf die Aerosolbildung
- Erarbeitung von Basismaterial für technische Entwicklungen an automatischen Holzfeuerungen zur Minderung der Partikelemissionen, insbesondere der gesundheitsrelevanten PM10-Emissionen

## 2 Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

### 2.1 Durchgeführte Arbeiten

Die gemäss Terminplan des Projektantrags für das Jahr 2000 vorgesehenen Arbeiten konnten vollständig durchgeführt werden. Dazu gehören:

- Bau der Versuchsanlage (Abb. 2.1)
- Installation und Inbetriebnahme der Versuchsanlage sowie der Messtechnik (Abb. 2.1)
- Durchführung mehrerer Versuchsreihen an der Versuchsanlage unter gezielter Variation der Versuchsparameter
- Analyse und Auswertung der Aerosolproben bezüglich Gesamtstaubgehalt, Partikelgrössenverteilung, chemischer Zusammensetzung der Partikel und Gaszusammensetzung

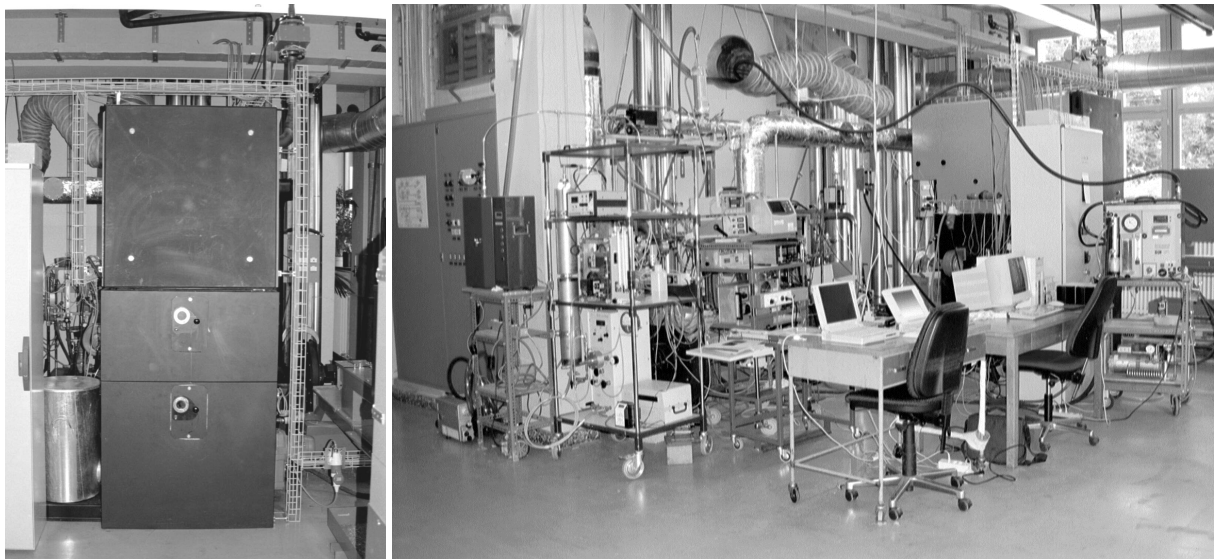


Abbildung 2.1: Ansicht der Versuchsanlage an der EMPA: Links: Automatische Unterschubfeuerung mit einer Nennleistung von 120 kW (Tiba-Müller AG). Rechts: Übersicht über die Versuchsanlage mit der Unterschubfeuerung, dem zugehörigen Steuerkasten, dem Abgaskanal, der gesamten Partikelmesstechnik (links) und der Datenerfassung.

Ausgangspunkt für die Versuchsanlage ist eine Unterschubfeuerung der Tiba-Müller AG (Abb. 2.1). Um Temperaturen und Gaszusammensetzungen in der Feuerung gezielt variieren zu können, wurden

verschiedene Zusatzkomponenten angebracht. Dazu gehören eine Vorrichtung zur Kühlung des Brennstoffbetts, eine Vorrichtung zur Wassereindüsung in die Primärzone, eine Abgasrückführung wahlweise in die Primärluft oder in die Reduktionszone, eine Vorrichtung zur Vorwärmung der Primärluft und eine Sekundärlufteindüsung, welche alternativ Luft in die Reduktionszone oder in die Nachbrennkammer einbringen kann.

Zur gezielten Variation des Brennstoff-Feinanteils, welcher die bei der Verbrennung zur Verfügung gestellte Oberfläche beeinflusst und damit einen Einfluss auf die Verbrennungstemperaturen und auf die Aerosolbildung haben kann, wurde eine Vorrichtung eingesetzt, welche dem aus dem Tagessilo transportierten Holz den Feinanteil entnimmt und danach gezielt wieder zugegeben wird.

Ausgehend von einem Standardbetrieb bei geeigneten Feuerungseinstellungen (Luftüberschuss: 1.8; Sekundärluft: 35%; Leistung: 75% der Nennleistung) und geeignetem Brennstoff (Waldhackschnitzel Buche, ohne Zugabe von Feinanteil) wurden bis anhin hauptsächlich die Betriebsparameter Luftüberschuss und Holzfeinanteil systematisch variiert. Bei der Variation der Luftstufung zeigte sich, dass ein zu grosser Luftstrom durch die Holzzuführung in den Brennraum gelangte. Deshalb konnte die Luftstufung nur in begrenzt variiert werden. Aufgrund dieses Befundes wurde eine Zellradschleuse in die Holzbeschickung integriert, so dass in den zukünftigen Messungen die Variation der Luftstufung in weiten Bereichen möglich sein wird.

## 2.2 Ergebnisse bei Standardbetrieb

Der Verlauf des CO-Gehalts zeigt typischerweise ein Grundniveau von unter  $30 \text{ mg/Nm}^3$  bei 13 Vol.-%  $\text{O}_2$ , welchem einzelne kurzfristige Peaks bis maximal  $150 \text{ mg/Nm}^3$  bei 13 Vol.-%  $\text{O}_2$  überlagert werden. Ein typischer Verlauf der CO-Konzentration ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Das tiefe Niveau der CO-Konzentration bestätigt den guten Ausbrand im Standardbetrieb. Höhere CO-Konzentrationen treten in den ersten drei Stunden nach Inbetriebnahme der Feuerungsanlage auf.

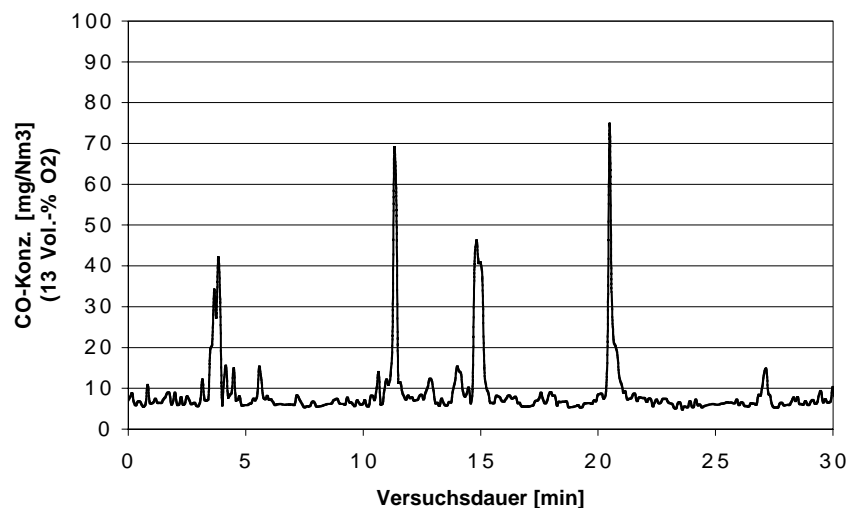


Abbildung 2.2: Verlauf des CO-Gehalts im Abgas bei Referenzbetrieb während einer Messphase von 30 Minuten. Typisch ist der Verlauf in Form eines Grundniveaus, welcher von einzelnen Konzentrationsspitzen überlagert wird.

Die Wärmeleistung wird beim Standardbetrieb mit 75% der Nennleistung vorgegeben. Gemäss Wärmezähler wird so eine Wärmeleistung von etwa 100 kW abgegeben. Die oberhalb der Retorte gemessene Feuerraumtemperatur liegt knapp unter 1000°C. Die an einer festen Stelle in der Retorte gemessene Glutbetttemperatur (Gastemperatur im Glutbett) ist ein Mass für die Glutbetthöhe: Je höher das Glutbett ist, desto grösser ist der Abstand von der Flamme zur Temperaturmessstelle und desto tiefer ist dort die Temperatur. Die Glutbetttemperatur beträgt beim Standardbetrieb etwa 380°C.

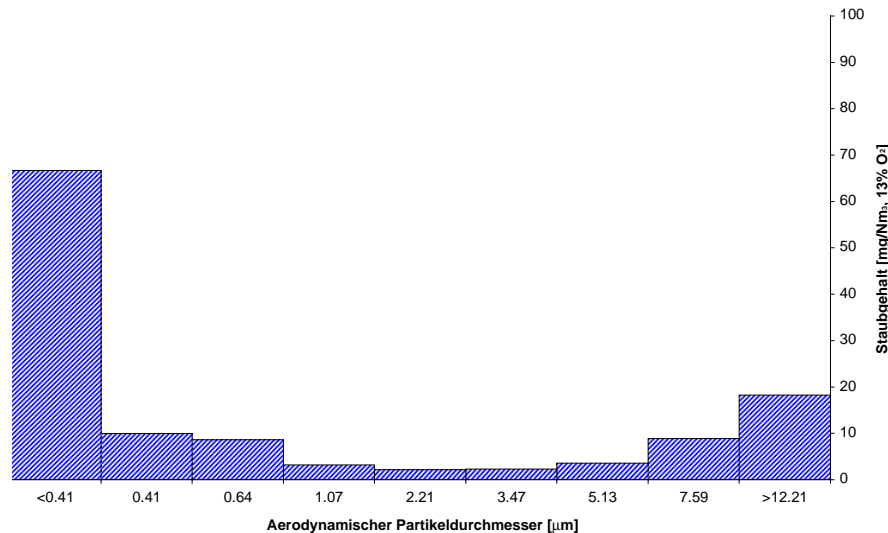


Abbildung 2.3: Beispiel einer Partikelmassenverteilung bei Standardbetrieb gemessen mit einem Andersen Impaktor. Die Gesamtstaubkonzentration beträgt 124 mg/Nm<sup>3</sup> bei 13% O<sub>2</sub>. Der Luftüberschuss liegt bei 1.79.

Die Partikelkonzentration beim Standardbetrieb liegt im Mittel bei 100 mg/Nm<sup>3</sup> bezogen auf 13% O<sub>2</sub> (aus insgesamt 18 Planfiltermessungen). Die mit einem Andersen Impaktor bestimmte Partikelgrössenverteilung (Abb. 2.3) zeigt eine bimodale Massenverteilung mit einem Hauptpeak unter 0.4 µm und einem zweiten, kleineren Peak bei etwa 10 µm (aus den Messungen geht nicht hervor, ob der zweite Peak bei 9 µm oder bei 15 µm – also bei der 1. oder 2. Stufe des verwendeten Impaktors liegt –, da die 1. Stufe auch die viel grösseren Partikel beinhaltet.) Bei der Anzahlverteilung ist der zweite Peak nicht vorhanden, da er von wenigen Partikeln mit relativ grosser Masse stammt.

Etwa drei Viertel der Partikelmasse stammt von Partikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser unter 1 µm. Diese Partikelfraktion kann mit einem Trägheitsabscheider nicht zurückgehalten werden. Dies bedeutet, dass ein Staubgehalt von 50 mg/Nm<sup>3</sup> (13% O<sub>2</sub>) mit Trägheitsabscheidern auch bei geeigneten Betriebsbedingungen nicht erreicht werden kann.

Die Partikelgrössenverteilungen im submikronen Bereich, welche mit dem Andersen Impaktor nur dreistufig und nur bis zu 0.4 µm aufgelöst werden kann, wurden mit dem SMPS gemessen, welches eine Anzahlverteilung liefert.

Abbildung 2.4 zeigt die Mittelwertkurve und die zugehörigen Standardabweichungen aus 9 halbstündigen Messungen an drei unterschiedlichen Tagen, insgesamt über einen Zeitraum von zwei Monaten. Die Standardabweichungen liegen unter 10% des Messwerts. Die Messungen sind somit reproduzierbar.

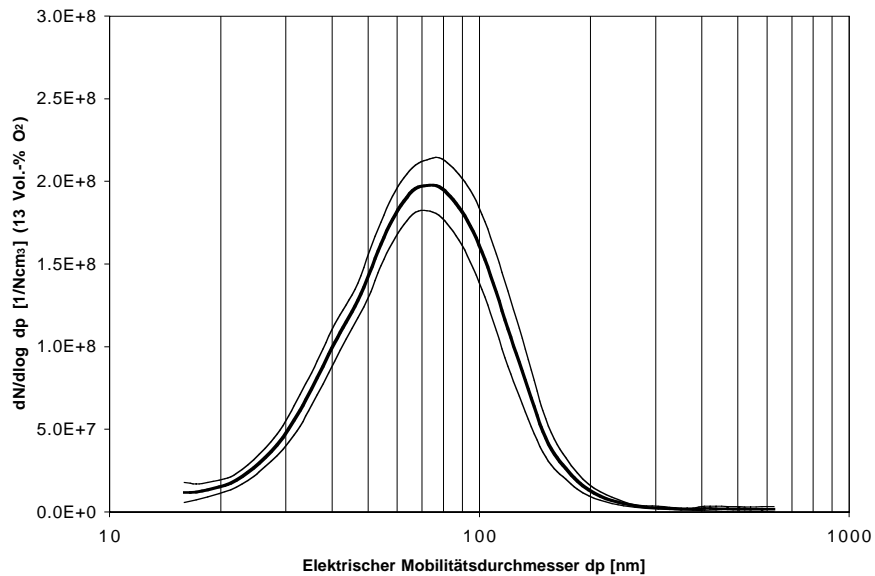


Abbildung 2.4: Partikelgrößenverteilung bei Standardbetrieb: Dargestellt sind die Mittelwertkurve und die zugehörigen Standardabweichungen aus 9 halbstündigen Messungen an drei verschiedenen Tagen über einen Zeitraum von zwei Monaten. Der häufigste Durchmesser beträgt 73 nm und die mittlere Konzentration der Partikel kleiner 700 nm ist  $1.05 \times 10^8 / \text{Ncm}^3$  bei 13%  $\text{O}_2$ .

Der häufigste Partikeldurchmesser liegt beim Standardbetrieb bei  $73 \pm 4$  nm (Abb. 2.4). Dies ist in der gleichen Größenordnung wie bei den Partikeln aus Dieselmotoren. Völlig unterschiedlich zu Partikeln aus motorischer Verbrennung ist hingegen die chemische Zusammensetzung, welche in Abbildung 2.5 zusammengestellt ist. So liegt der Kohlenstoffanteil nur bei knapp 7 Gew.-% und der organische Kohlenstoffanteil beträgt etwa 1 Gew.-%.

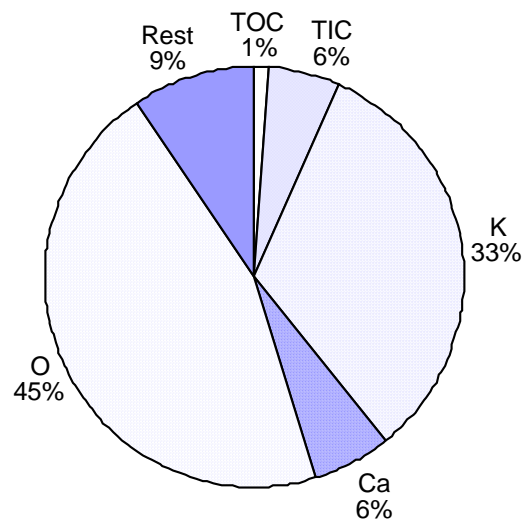


Abbildung 2.5: Chemische Zusammensetzung der Abgaspartikel aus der Holzverbrennung bei Standardbetrieb in Gew.-%. Der Anteil an Sauerstoff O ist als Differenz aus der Summe der übrigen Elemente zu 100% berechnet worden.

Der geringe organische Kohlenstoffanteil zeigt, dass der Ausbrand sehr gut ist (gute Verbrennungsbedingungen) und kaum Partikel aus unvollständiger Verbrennung im Abgas vorhanden sind.

Die hohen Anteile an Kalium und Calcium zeigen, dass bei den vorliegenden Verbrennungsbedingungen der weitaus grösste Teil der Abgaspartikel aus Salzen besteht. Die mittels Röntgendiffraktion gefundenen kristallinen Strukturen sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Weitere kristalline Verbindungen in relevanten Konzentrationen können mit dieser Methode nicht ausgeschlossen werden. Aufgrund des sehr hohen Kaliumgehalts von über 30% (Abb. 2.5) wird klar, dass weitere Kaliumverbindungen mit geringerer Molmasse (z.B.  $K_2O$ ) vorhanden sein müssen.

Tabelle 4 Mengenanteile kristalliner Verbindungen der auf Planfilter gesammelten Partikelfractionen unter Standardbetrieb. Die Verbindungen Calcium-Magnesium-Carbonat und Kaliumchlorid sind auf Grund der Interferenzlinienvielzahl nicht eindeutig nachweisbar. Calciumcarbonat ist in geringen Mengen auch im Blindfilter vorhanden.

Mengenanteil:	Kristalline Verbindungen:	Mineralname:	Chem. Formel
gross	Calciumcarbonat	Calcit	$CaCO_3$
mittel	Kaliumsulfat	Arcanit	$K_2SO_4$
	Calcium-Magnesium-Carbonat	Dolomit	$CaMgCO_3$
	Calciumoxid	Lime	$CaO$
klein	$\alpha$ -Kaliumsulfat	—	$K_2S_2O_7$
	Magnesiumoxid	Periklas	$MgO$
	Kaliumchlorid	Sylvit	$KCl$

### 2.3 Einfluss des Luftüberschusses

Zur Beurteilung des Einflusses des Luftüberschusses bei gleicher Luftstufung (35% Sekundärluft) wurde eine Variation in stationären Betriebszuständen von 1,3 bis 3,0 durchgeführt. Der Einfluss auf die Partikelkonzentrationen sind in diesem Variationsbereich relativ gering (Abb. 2.6). Die Senkung des Luftüberschusses von 1,8 auf 1,4 bzw. 1,3 bewirkt eine Zunahme der Partikelkonzentration um etwa 20%, während die Erhöhung des Luftüberschusses von 1,8 auf 3,0 zu keiner signifikanten Änderung der Partikelkonzentration führt.

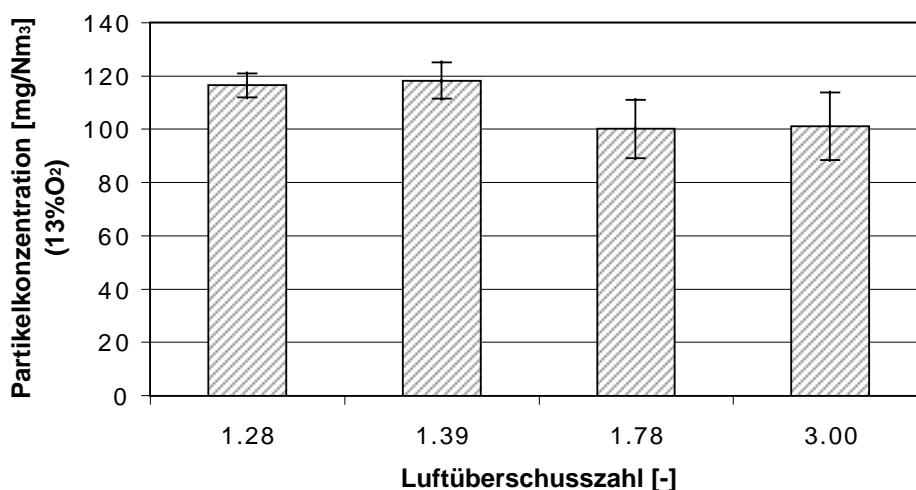


Abbildung 2.6: Partikelkonzentrationen im Holzfeuerungsabgas in Abhängigkeit des Luftüberschusses bei gleicher Luftstufung (35% Sekundärluft) und Feuerungsleistung (75% der Nennleistung).

Auch bei Betrachtung der submikronen Partikelgrößenverteilungen sind die Unterschiede aufgrund der Luftüberschussvariation relativ klein (Abb. 2.7). Der häufigste Partikeldurchmesser liegt stets zwischen 60 nm und 80 nm. Durch die Senkung des Luftüberschusses von 1,8 auf 1,4 steigt die Anzahl der submikronen Partikel (Abb. 2.7) nicht signifikant, obwohl die Gesamtpartikelmasse um knapp 20% angestiegen ist (Abb. 2.6). Die Steigerung des Luftüberschusses von 1,8 auf 3,0 bewirkt einen Anstieg der Anzahl submikroner Partikel um etwa 25%, obwohl die Gesamtpartikelmasse unverändert bleibt. Aufgrund dieser Resultate ist zu vermuten, dass der Anteil submikroner Partikel an der Partikelgesamtheit mit steigendem Luftüberschuss im Bereich von 1,4 bis 3,0 (35% Sekundärluft) etwas ansteigt.

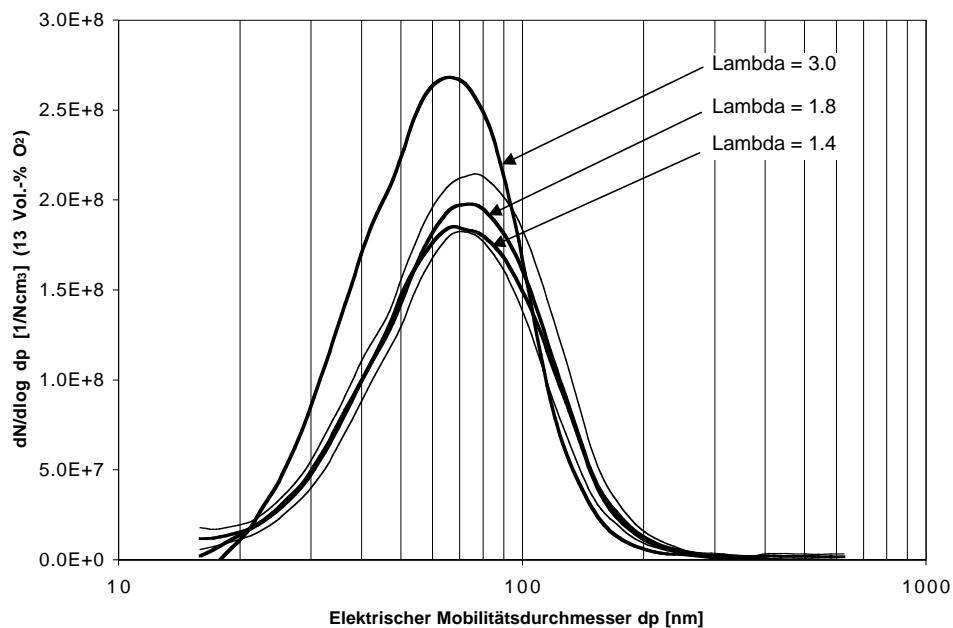


Abbildung 2.7: Einfluss des Luftüberschusses (Lambda) auf die Bildung submikroner Partikel bei gleicher Luftstufung (35% Sekundärluft) und Feuerungsleistung (75% der Nennleistung). Für den Luftüberschuss von 1,8 sind neben der Mittelwertkurve die Standardabweichungen eingetragen.

Der Anteil an organischem Kohlenstoff steigt bei Senkung des Luftüberschusses von 1,8 auf 1,4 nur geringfügig um 1,3 Gew.-% auf 2,4 Gew.-%, was auch etwa der Änderung des Gesamtkohlenstoffanteils entspricht. Der Partikelanteil aus unvollständiger Verbrennung ist also auch bei Luftüberschüssen von 1,4 (35% Sekundärluft) gering.

Der tiefere Luftüberschuss von 1,4 und damit die geringere zur Verfügung gestellte Menge an Sauerstoff bewirkt auch in den Abgaspartikeln einen geringeren Anteil an Sauerstoffatomen (24% anstatt 48%). Hingegen ist der Anteil an Kalium noch höher (über 50%). Aufgrund des Verhältnisses zwischen Kalium und Sauerstoff ist zu schliessen, dass vor allem der Anteil an niedrigmolekularen Kaliumverbindungen wie Kaliumoxid ansteigt.

## 2.4 Einfluss des Holzfeinanteils



Die bis anhin dargestellten Untersuchungen wurden alle mit Buchen-Waldhackschnitzeln mit geringem Feinanteil durchgeführt. Der Massenanteil an Schnitzeln unter 3 mm lag bei 1,3%. Zur Beurteilung des Einflusses der Schnitzelgrösse wurde der vorgängig dem Brennstoff entnommene Feinanteil in grossen Mengen zudosiert, so dass der verwendete Brennstoff gegenüber dem Ausgangsmaterial etwa das 7-fache bzw. das 12-fache an Feinanteil aufweist. Der Massenanteil an Schnitzeln unter 3 mm liegt dann bei 19,1% bzw. bei 27,6%.

Beim Versuch mit 12-fach überhöhtem Feinanteil und gleichem Holzeinschub über die Förderschnecke (gleiches Schüttvolumen) sinkt der Luftüberschuss geringfügig von 1,78 auf 1,69 ab. Auf die Partikelkonzentration im Abgas hat die hohe Menge an Feinanteil keine signifikante Auswirkung. Der Mittelwert steigt von 100 mg/Nm<sup>3</sup> auf 111 mg/Nm<sup>3</sup> (7-facher Feinanteil) bzw. 110 mg/Nm<sup>3</sup> (12-facher Feinanteil) an. Auch die elementaren Zusammensetzungen der Abgaspartikel aus der Verbrennung mit geringem Feinanteil (Standardbetrieb) und hohem Feinanteil (7-fach überhöht) zeigen nur geringfügige und nicht signifikante Unterschiede.

Der Feinanteil bei Waldhackschnitzeln Buche hat somit unter den untersuchten Bedingungen, bei denen immer eine gute Ausbrandqualität gewährleistet war, keinen wesentlichen Einfluss auf die Partikelbildung. Rückschlüsse auf den Einfluss noch feinerer Anteile wie zum Beispiel Sägespäne sind damit allerdings nicht möglich.

### **3 Zusammenarbeit**

Die Arbeit erfolgt in Zusammenarbeit zwischen Ingenieurbüro Verenum, EMPA und Tiba-Müller AG.

### **4 Transfer von Ergebnissen in die Praxis**

Die Ergebnisse dieses Projektes wurden im Rahmen des 6. Holzenergie-Symposiums an der ETH Zürich vom 20. Oktober 2000 vorgestellt.

### **5 Ausblick für das Jahr 2001**

An der Versuchsanlage werden weitere Parameter variiert, insbesondere Luftstufung (und als Folge davon die Höhe des Brennstoffbetts), Feuerraumtemperatur, und Holzart, und deren Einfluss auf die Partikelemissionen bestimmt.

### **6 Publikationen 2000**

Oser, M., Nussbaumer, T., Schweizer B., Mohr M., Figi R.: Untersuchung der Einflüsse auf die Partikelemissionen in einer Unterschubfeuerung. 6. *Holzenergie-Symposium*, 20. Oktober 2000, ETH Zürich, Bundesamt für Energie, Bern 2000, 51–68