

Jahresbericht 2002, 2. Dezember 2002

Grundlagen der Aerosolbildung bei Holzfeuerungen

Autor und Koautoren	Dr. Michael Oser / PD Dr. Thomas Nussbaumer
beauftragte Institution	Verenum
Adresse	Langmauerstrasse 109, 8006 Zürich
Telefon, E-mail, Internetadresse	01/364 14 12, verenum@smile.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	26688 / 82347
Dauer des Projekts (von – bis)	1.1.99 bis 31.12.02

ZUSAMMENFASSUNG

Ziel der Untersuchung ist eine Beeinflussung der Partikelemissionen von automatischen Holzfeuerungen durch Betriebsparameter und feuerungstechnische Massnahmen sowie eine Beschreibung der Bildungsmechanismen. Dazu wurde eine Versuchsanlage aufgebaut, die verschiedene Variationsmöglichkeiten aufweist. Untersucht wurden der Einfluss von Brennstoffart, Feinanteil im Brennstoff, Kühlung im Glutbett, Leistung und Abgasrezirkulation sowie verschiedene Arten der gestuften Verbrennung durch Eindüsung der Sekundärluft in verschiedenen Zonen sowie durch Betrieb mit sehr tiefem Luftüberschuss im Glutbett.

Es konnte gezeigt werden, dass die Staubemissionen durch den Glutbett-Luftüberschuss signifikant beeinflusst werden, was durch die verstärkte Umsetzung von Mineralstoffen wie Kalium zu leichtflüchtigen Oxiden bei Anwesenheit von Sauerstoff erklärt wird. Durch Variation des Glutbett-Luftüberschusses konnte die Partikelkonzentration um einen Faktor 5 verändert werden von 160–195 mg/Nm³ auf 20–45 mg/Nm³ (13% O₂). Bei den meisten Brennstoffen konnten Staubemissionen unter 50 mg/Nm³ (13% O₂) erreicht werden. Dies erfordert allerdings einen Betrieb bei extrem tiefem Glutbett-Luftüberschuss und hohem Glutbett.

Der Einfluss des Glutbett-Luftüberschusses wird dadurch erklärt, dass der grösste Teil der Partikel Salze sind, die hauptsächlich aus Kaliumverbindungen (ca. 30 Massen-% K) bestehen und in der Abkühlphase des heissen Gases durch Nukleation, Koagulation und Kondensation entstehen. Kalium liegt im Brennstoff in schwer flüchtigen Verbindungen vor, die bei Anwesenheit von Sauerstoff zu leichter flüchtigen Oxiden umgesetzt und damit bei höherem Glutbett-Luftüberschuss verstärkt in das Abgas transferiert werden.

Projektziele

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

Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

DURCHGEFÜHRTE ARBEITEN

Die zu variierenden Parameter sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Die im Berichtsjahr untersuchten Parameter sind fett gekennzeichnet. Zudem wurden einige Ergänzungsversuche bei anderen Variationsparametern durchgeführt.

Tabelle 1: Übersicht der untersuchten Variationsparameter und -bereiche. Fett: Arbeiten im Berichtsjahr.

Bereich	Parameter	Jahr	Variationsbereich
Brennstoff	Holzart	2002	WHS Buche, WHS Fichte, HS Spanplatten, Pellets
	Feinanteil (Korngrößen)	2000	<1 Gew.-%, 15-20 Gew.-%, 25-30 Gew.-%
	Wassergehalt	2002	<10%, 25-35%, >40%
	Rindenanteil	2002	< 5 Gew.-%, > 95 Gew.-%
Verbrennung	Leistung	2000	75%, 30%, 100% von Maximum
	Gesamtluftüberschuss	2000	1.8, 1.3, 3.0
	Primärluftüberschuss	2001	<0.1, 0.5–0.55, 0.65–0.7
	Eindüsstelle Sekundärluft (früh/spät)	2001	Reduktionszone Nachbrennkammer
	Glutbetthöhe	2001	tief, hoch
Temperatur	Wasserkühlung Brennstoffbett	2001	ohne, mit (5 kW)
	Abgasrückführung	2001	Ohne, Mit

Im Berichtsjahr wurden zudem auf Basis der Versuchsergebnisse die Hauptmechanismen der Aerosolbildung in automatischen Holzfeuerungen beschrieben.

EINFLUSS DES WASSERGEHALTS

Ein höherer Wassergehalt bewirkt, dass im Glutbett zusätzliche Energie für die Wasserverdampfung und Wassererhitzung aufgebracht werden muss. Dies bewirkt, dass der Glutbett-Luftüberschuss weniger weit gesenkt werden kann, bis die Verbrennungstemperatur zusammenfällt. Andererseits wird der Sauerstoffbedarf durch die Bevorzugung der Wassergasreaktion erhöht, so dass bei gleichem Glutbett-Luftüberschuss geringere Partikel-Konzentrationen entstehen (Bild 1). Insgesamt sind die tiefsten Partikel-Konzentrationen unabhängig vom Wassergehalt, allerdings bei unterschiedlichem Glutbett-Luftüberschuss.

In Kombination mit Brennstoffen mit sehr hohem Fremd-, Rinden- und/oder Fein-Anteil kann sich ein hoher Wassergehalt auch negativ auswirken, weil das Glutbett dann nicht mehr gleichmässig durchströmt wird. Ein hoher Feinanteil wirkt sich nicht negativ auf die Partikelemissionen aus, solange eine gleichmässige Durchströmung des Glutbetts gewährleistet ist [3].

Die chemische Zusammensetzung der Abgaspartikel wird durch den unterschiedlichen Wassergehalt nicht wesentlich verändert (auch nicht der H-Anteil). Auch die Partikelanzahl wird nicht wesentlich beeinflusst.

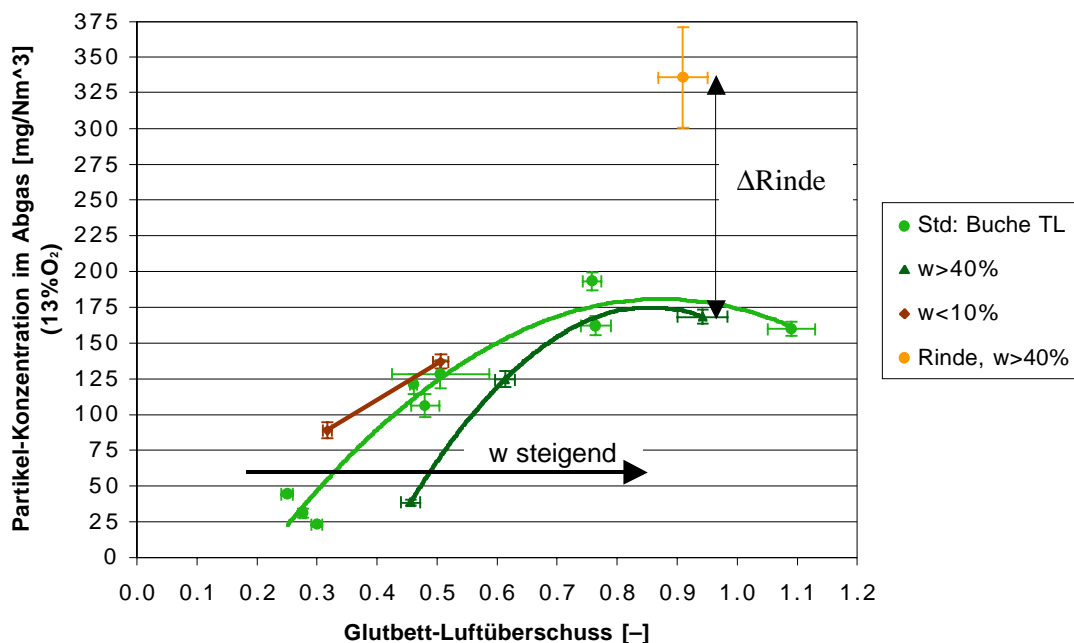


Bild 1: Partikelmassen-Konzentrationen im Abgas in Abhängigkeit vom Glutbett-Luftüberschuss bei der Verbrennung von WHS Buche mit unterschiedlichem Wassergehalt w ($<10\%$, $25-35\%$ (Std) und $>40\%$) und Rindenanteil ($<5\%$ und $>95\%$).

EINFLUSS DES RINDENANTEILS

Die Buchenrinde wirkt sich in zweierlei Hinsicht äusserst negativ auf die Partikelemissionen aus: Zum einen verschiebt sich der minimale Glutbett-Luftüberschuss, der eine stationäre Verbrennung erlaubt, zu deutlich höheren Werten (bei der verwendeten, nassen Rinde auf etwa 0.8). Zum andern erhöht sich die Partikel-Konzentration (Bild 1) um eine zusätzliche Fraktion, welche hauptsächlich aus Calcium-Verbindungen besteht (Bild 2). Die Calcium-Fracht lag bei der Verbrennung von WHS Buchenrinde bei 114 mg/Nm^3 , was etwa das dreifache der Kalium-Fracht ist und macht etwa 34% der Partikel aus. Neben der Calcium-Fracht nimmt bei der Rinde auch die Schwefel-Fracht und die Fracht der nicht bestimmten Elemente (z.B. Sauerstoff) zu. Die zusätzlichen Ionen sind somit hauptsächlich Ca^{2+} und SO_4^{2-} .

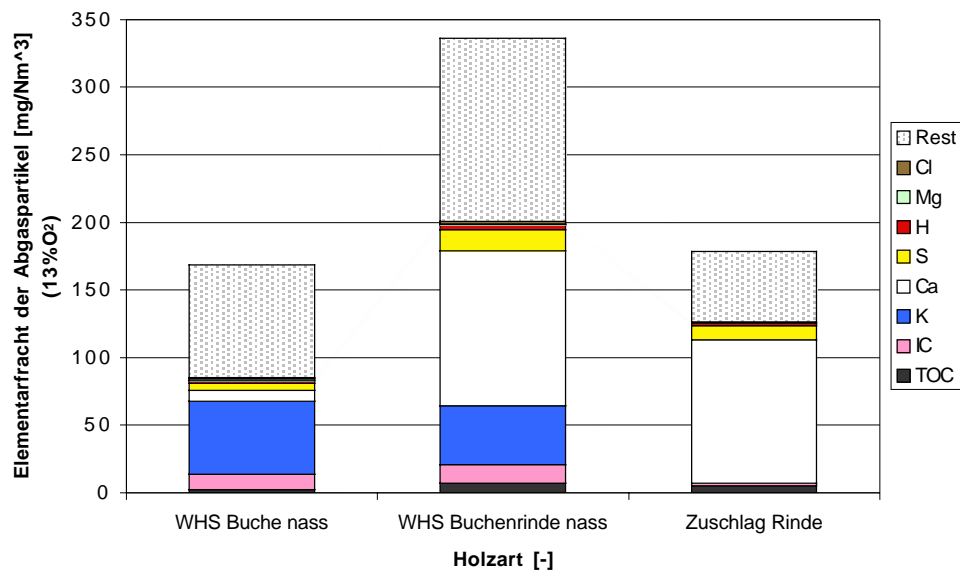


Bild 2: Elementare Partikelzusammensetzung bei sehr geringem und sehr hohem Rindenanteil bei Wassergehalten über 40 Massen-%. Weiter ist die Differenz zwischen den beiden Fraktionen dargestellt, welche als durch die Rinde entstandener Zuschlag betrachtet werden kann.

EINFLUSS DER HOLZART

Mit **WHS Fichte** (Waldhackschnitzel Fichte) können mindestens gleich geringe Partikel-Konzentrationen erreicht werden wie mit **WHS Buche** (Bild 3). Der Vorteil bei der Verbrennung von WHS Fichte liegt darin, dass der Anstieg der Partikel-Konzentration mit zunehmendem Glutbett-Luftüberschuss deutlich geringer ist als bei WHS Buche (Bild 3) und damit auch bei nicht ganz optimalem Glutbett-Luftüberschuss geringe Partikel-Konzentrationen erreicht werden können.

Die **gehackten Spanplatten** zeigen ähnliche Partikel-Konzentrationen wie die WHS Buche mit ähnlichem Wassergehalt (Bild 3). Hingegen zeigen die **Pellets** bei entsprechendem Glutbett-Luftüberschuss deutlich geringere Partikel-Konzentrationen. Sowohl die Spanplatten als auch die Pellets (wie auch die trockenen WHS Buche) könnten bei noch tieferem Glutbett-Luftüberschuss und damit mit geringeren Partikel-Konzentrationen verbrannt werden.

Bezüglich der Partikelanzahl-Konzentrationen konnte bei gleichem Wassergehalt kein signifikanter Unterschied zwischen WHS Buche und den übrigen untersuchten Holzarten WHS Fichte, HS Spanplatten und Pellets festgestellt werden (Bild 4).

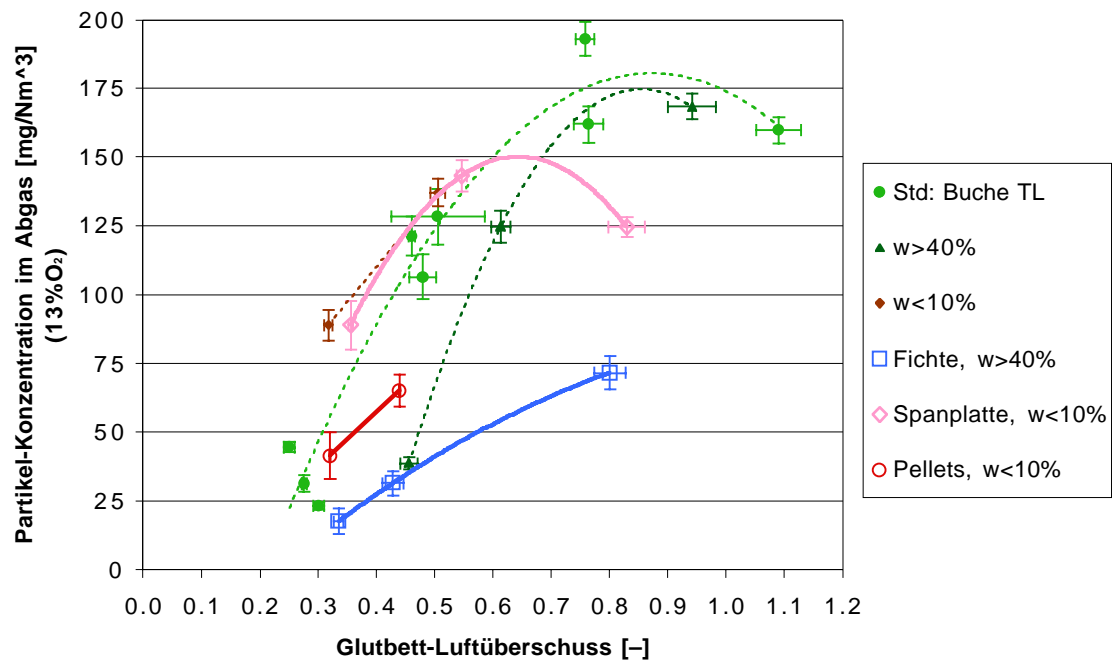


Bild 3: Partikel-Konzentrationen in Abhängigkeit des Luftüberschusses im Glutbett bei der Verbrennung von WHS Fichte, HS Spanplatte und Pellets im Vergleich zu WHS Buche mit unterschiedlichen Wassergehalten. (Die Messung mit WHS Fichte und Glutbett-Luftüberschuss von 0.34 liegt an der Grenze zwischen stationärem und instationärem Betrieb.)

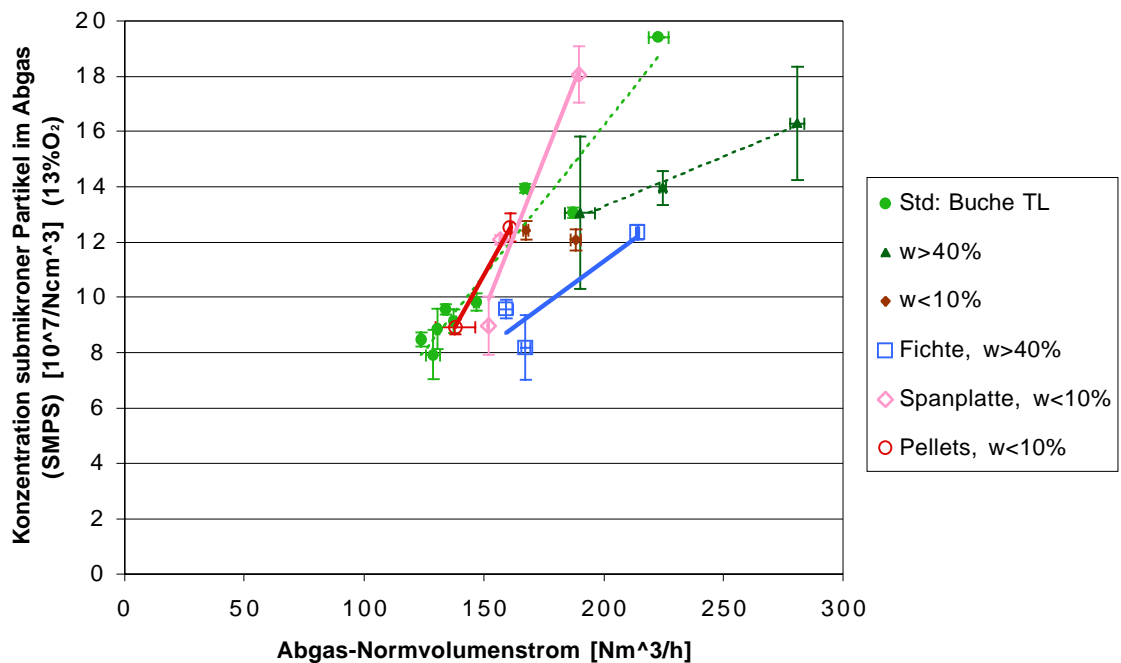


Bild 4: Partikelanzahl-Konzentration in Abhängigkeit vom Abgas-Normvolumenstrom für die Brennstoffe WHS Fichte, HS Spanplatte und Pellets im Vergleich zu WHS Buche.

PARTIKELBILDUNGSMECHANISMEN

Der grösste Teil der partikelförmigen Emissionen bei einer automatischen Holzfeuerung sind Salze. Dabei sind die positiven Ionen vor allem K^+ und Ca^{2+} , die negativen Ionen SO_4^{2-} , Cl^- , CO_3^{2-} , O^{2-} und OH^- . Je mehr Kalium- und Calciumatome im Abgas vorhanden sind, desto mehr Ionenpaare entstehen. Die Partikelmasse wird somit in erster Linie durch die Menge an Kalium und Calcium im Abgas bestimmt, wobei aufgrund der unterschiedlichen Molekülmassen der negativen Ionen die übrige Gaszusammensetzung einen sekundären Einfluss hat.

Mit Ausnahme von Brennstoffen mit hohem Rindenanteil ist der Kaliumanteil wesentlich wichtiger als der Calciumanteil. Der Anteil an Kalium im Abgas wird einerseits über den Kaliumgehalt des Brennstoffs, andererseits über den Glutbett-Luftüberschuss (bzw. Sauerstoffarmut im Glutbett) beeinflusst: Wenn die Oxidation der Kaliumverbindungen weitgehend verhindert wird, liegt Kalium zu einem grossen Teil in Verbindungen mit sehr hohen Schmelz- und Siedepunkten wie Kaliumsulfat und -chlorid vor und wird nur teilweise in die Gasphase transferiert. Wenn hingegen ausreichend Sauerstoff zur Verfügung steht, werden leichter flüchtige Verbindungen wie Kaliumoxid und Kaliumhydroxid gebildet.

Bei hohem Rindenanteil gelangt ein Vielfaches an Calcium in das Abgas und überlagert die anderen Partikelfractionen. Es entstehen insgesamt deutlich höhere Partikel-Konzentrationen im Abgas.

Im Gegensatz zur Partikelmasse wird die Partikelanzahl in erster Linie aufgrund der Bedingungen bei der Abkühlung bestimmt und zwar über die konkurrierenden Prozesse Nukleation, Koagulation und Kondensation. Dabei hat das zur Verfügung stehende Gasvolumen eine besondere Bedeutung. Denn je grösser das Gasvolumen (bzw. der Abgasvolumenstrom), desto mehr Keime bzw. Partikel können nebeneinander existieren ohne zu koagulieren. Der durchschnittliche Partikeldurchmesser ergibt sich aufgrund der Partikelmasse und der Partikelanzahl und die Durchmesser-Verteilung entspricht ungefähr einer Normalverteilung, wobei das Maximum zwischen 50 und 120 nm liegt.

BEEINFLUSSUNG DER PARTIKELEMISSIONEN

Aufgrund der beschriebenen Mechanismen und den Messresultaten ist die bedeutendste Beeinflussungsmöglichkeit der Partikelkonzentrationen im Rohgas der Luftüberschuss und damit die Sauerstoffarmut im Glutbett. Mit der verwendeten Versuchsanlage konnte gezeigt werden, dass es bei den meisten Holzbrennstoffen durch Drosselung des Glutbett-Luftüberschusses möglich ist, Partikelkonzentrationen unter 50 mg/Nm^3 (13% O_2) zu erreichen. Allerdings gibt es auch Holzbrennstoffe, bei denen dies nicht möglich ist (z.B. nasse Buchenrinde). Der Glutbett-Luftüberschuss ist in der Regel gegeben durch das Verhältnis zwischen Primärluft-Volumenstrom und Holzeinschub, wobei er durch ungenügende Luftstufung (örtliche Trennung der Sekundärluft vom Glutbett) und Abgasrückführung beeinflusst werden kann. Zudem muss auf eine gleichmässige Durchströmung des Glutbetts geachtet werden.

Um eine möglichst geringe Partikelanzahl zu emittieren, sollte mit einem geringen Gesamt-Luftüberschuss gefahren werden um ein möglichst geringes Gasvolumen bei der Keimbildung zur Verfügung zu stellen, so dass Koagulation und Kondensation gegenüber der Nukleation bevorzugt werden.

Nationale Zusammenarbeit

Das Projekt wird als Zusammenarbeit der Verenum, Zürich, der EMPA Dübendorf und der Müller AG, Balsthal durchgeführt. In der Begleitgruppe sind BFE, BUWAL und Ardens GmbH vertreten.

Internationale Zusammenarbeit

Im Berichtsjahr wurden die erarbeiteten Resultate an folgenden Veranstaltungen vorgestellt:

- 12th European Conference and Technology Exhibition on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection vom 17. bis 21. Juni 2002 in Amsterdam. Titel: Reduction of particulate emissions by staged combustion. [1]
- 7. Holzenergie-Symposium: Luftreinhaltung und Explosionsschutz bei Holzfeuerungen und Stand der Technik der Holzvergasung vom 18. Oktober 2002: Titel: Aerosolbildung bei der Holzverbrennung und Beeinflussung der Staubemissionen durch gestufte Verbrennung. [2]

Bewertung 2002 und Ausblick 2003

Die vier Hauptziele für das vorliegende Projekt konnten erreicht werden. Im folgenden sind die wichtigsten Aspekte angeführt:

Ziel: Evaluation der Hauptmechanismen der Aerosolbildung in automatischen Holzfeuerungen

Das Projekt liefert einen Beitrag zum Verständnis der Aerosolbildung in automatischen Holzfeuerungen. Es konnte verifiziert werden, welche Komponenten und chemischen Elemente bedeutend für die Partikelbildung sind und welches hierbei die wichtigsten Prozesspfade und Bildungsmechanismen sind. Insbesondere konnte die besondere Bedeutung von Kalium bei der Holzverbrennung sowie von Calcium bei der Verbrennung von Rinde für die Partikelbildung in automatischen Holzfeuerungen aufgezeigt werden.

Ziel: Analyse des Einflusses der Betriebsparameter auf die Aerosolbildung

Es konnte gezeigt werden, dass die Partikelemissionen von automatischen Holzfeuerungen durch gezielte Variation der Betriebsparameter durch Primärmassnahmen deutlich beeinflusst werden können. Insbesondere konnte auf einer Unterschubfeuerung im stationären Betrieb gezeigt werden, dass unter den folgenden Voraussetzungen Partikelemissionen unter 50 mg/Nm^3 (bei 13 Vol.-% O_2) im Rohgas erreicht werden können (bei vernünftigem Brennstoff):

- konsequente Luftstufung
- tiefer Glutbett-Luftüberschuss und als Folge davon hohes Glutbett

Ziel: Analyse des Brennstoffeinflusses auf die Aerosolbildung

Es konnte gezeigt werden, dass mit den folgenden Brennstoffen die 50 mg/Nm^3 (13 Vol.-% O_2) erreicht werden können:

- naturbelassenes Holz mit tiefem oder üblichem Rindenanteil
- unbeschichtete Spanplatten
- Pellets

Rinde führt dagegen zu höheren Staubemissionen, was insbesondere auf die zusätzliche Calciumfracht zurückgeführt wird.

Ziel: Erkenntnisse für technische Entwicklungen an Holzfeuerungen zur Minderung der Partikelemissionen, insbesondere der gesundheitsrelevanten PM10-Emissionen.

Die Erkenntnisse zur Reduktion der Partikelemissionen sind bei den Feuerungsherstellern auf grosses Interesse gestossen – insbesondere weil die Grenzwerte in Deutschland verschärft

wurden und auch in andern europäischen Ländern mit Verschärfungen zu rechnen ist. Unter anderem gibt es in Deutschland für Anlagen ab 1 MW neu einen Grenzwert von 100 mg/Nm^3 (bei 11 Vol.-% O_2). Auf Grund der vorliegenden Untersuchung ist davon auszugehen, dass dieser Wert für die meisten Brennstoffe mit Primärmassnahmen erreicht werden kann.

Für die Umsetzung in die Praxis bei variablem Brennstoff und variablem Leistungsbedarf mit einem Zielwert von 50 mg/Nm^3 (13 Vol.-% O_2) fehlen allerdings geeignete Regelsysteme. Für eine optimale Umsetzung sollte zusätzlich die Feuerungsgeometrie angepasst werden.

AUSBLICK 2003:

Die Erkenntnisse aus den Untersuchungen an der Versuchsanlagen werden derzeit im Schlussbericht zusammengestellt, der anfangs 2003 vorliegen wird. Als Ergänzung wird allenfalls im Jahr 2003 eine Vergleichsmessung auf einer Praxisanlage mit grösserer Leistung durchgeführt, anhand derer der Effekt des Glutbett-Luftüberschusses in der Praxis verifiziert werden soll.

Referenzen

- [1] M. Oser, Th. Nussbaumer, B. Schweizer, M. Mohr und R. Figi: **Reduction of particulate emissions by staged combustion**. 12th European Conference and Technology Exhibition on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection, 17. bis 21. Juni 2002, Amsterdam 2002 (proceedings in press)
- [2] M. Oser, Th. Nussbaumer, B. Schweizer, M. Mohr und R. Figi: **Aerosolbildung bei der Holzverbrennung und Beeinflussung der Staubemissionen durch gestufte Verbrennung**. 7. Holzenergie-Symposium, 18. Oktober 2002, ETH Zürich, Bundesamt für Energie, Bern 2002, 35–52
- [3] M. Oser, Th. Nussbaumer, B. Schweizer, M. Mohr und R. Figi: **Untersuchung der Einflüsse auf die Partikelemissionen in einer Unterschubfeuerung**. 6. Holzenergie-Symposium, 20. Oktober 2000, ETH Zürich, Bundesamt für Energie, Bern 2000, 51–68