**Chemische Zusammensetzung von PM10 aus Kleinfeuerungsanlagen – Faktoren für das Makrotracer Modell**

**Magdalena Kistler1, Christoph Schmidl2, Emmanuel Padouvas3, Carlos Ramirez Santa-Cruz1, Heidi Bauer1,†, Anne Kasper-Giebl1, Hans Puxbaum1**

**1Technische Universität Wien, Institut für Chemische Technologien und Analytik**

**2Bioenergy 2020+, Standort Wieselburg**

**3Technische Universität Wien, Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Techn. Biowissenschaften**

**magdalena.kistler@tuwien.ac.at**

***Abstract***

Biomasse gilt als moderner, umweltfreundlicher Brennstoff für Kleinfeuerungsanlagen. Gleichzeitig versuracht die Verbrennung von Biomasse, besonders wenn die Technologie der Feuerungsanlage veraltet ist, oder die Anlage nicht korrekt bedient, hohe Feinstaubemissionen. Diese können die Luftqualität lokal und regional massiv beeinflussen. Besonders stark ist dieses Problem in Wohngebieten, die aufgrund der geographischen Verhältnisse (z.B. einer Kessellage) schlecht durchlüftet werden. Zur Beurteilung des Einflusses der Biomasseverbrennung auf die Luftqualität ist es notwendig über Emissionsmessungen chemische Tracer für die Verbrennungsvorgänge zu bestimmen. Die abgeleiteten Emissionsfaktoren können dann in Modellrechnungen (z.B. dem Makrotracer Modell) verwendet werden. Im Projekt *PMinter* werden die Emissionsraten von ausgewählten Anhydrozuckern, organischem Kohlenstoff und Ruß verwendet, um den Anteil an Feinstaub aus der Holzverbrennung zu ermitteln. Die Daten stammen aus vier Projekten und beziehen sich zum Großteil auf die Scheitholzverbrennung (Buche und Fichte) in Einzelöfen. Einige zusätzliche Verbrennungsversuche mit Holzpellets zeigen, dass deren Feinstaubemissionen im Vergleich zu Scheitholz deutlich geringer sind.

**Einleitung**

Nach Angaben der Statistik Austria verwenden mehr als 17% aller Haushalte in Österreich Holz oder andere biogene Brennstoffe, um Wärme zu erzeugen. Allerdings umfassen diese Daten nur die Angaben für die Hauptheizung. Die aktuelle Marktanalyse (Biermayer et al., 2012) schätzt die Bestände an bereits installierten Einzelöfen in Österreich auf etwa 1 Mio. Stück. Im Jahr 2011 wurden rund 40.000 Einzelöfen verkauft. Viele davon sind als „Zweitheizung“ installiert und werden meistens in den Übergangszeiten im Herbst und Frühling betrieben.

Die große Anzahl an Biomassekleinfeuerungsanlagen zeigt sich, in den Gebieten wo Holz besonders häufig verwendet wird, in der schlechten Luftqualität wieder.

Die Kleinfeuerungsanlagen sind vor allem für erhöhte Werte von Feinstaub (PM10) verantwortlich. Rund 30% aller PM10 Emissionen in Österreich sind den Kleinfeuerungen zugeordnet (IIR, 2012, Umweltbundesamt). Das wurde auch durch Immissionsstudien zur Darstellung von Feinstaubquellen (AQUELLA Studie, Bauer et al. 2009, sowie die Ergebnisse des aktuellen Projekt *PMinter*) bestätigt. Holzverbrennung wurde zum wichtigsten regionalen Faktor, der zu mehreren Überschreitungen des PM10 Grenzwertes (2008/50/EG) geführt hat.

Die Immissionsstudien, deren Hauptziel die Erkennung der Feinstaubquellen ist, basieren auf den Informationen die durch die Quellencharakterisierung erworben wurden.

Die hier präsentierten Daten zur Charakterisierung der Holzverbrennung beruhen auf vier verschiedene Studien zur Darstellung des Feinstaubs aus Kleinfeuerungsanlagen, welche zwischen 2005 und 2011 auf der TU Wien durchgeführt wurden. Sie umfassen Emissionsfaktoren für einzelne Tracerkomponenten und die Darstellung der Verhältnisse der Tracerkomponenten Levoglucosan (LG) und Mannosan (MN), welche Aussagen zur Art des eingesetzten Brennstoffes liefern.

**Methoden**

Die chemischen Profile der Emissionen aus der Biomasseverbrennung wurden für 12 Anlagen (Öfen und Kessel mit einer Leistung bis maximal 50 kW) und rund um 50 verschiedene Biomassearten ermittelt. Neben Feinstaub wurden auch gasförmige Emissionen, sowie die Geruchsbelastung die durch Verbrennung entsteht untersucht (Schmidl et al., 2008; Schmidl et al., 2011; Kistler et al., 2012).

Verbrennungen wurden auf einem Teststand (Inst. f. Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Techn. Biowissenschaften), beziehungsweise „im Feld“ durchgeführt. Der Feinstaub wurde „kalt“, i.e. bei Raumtemperatur gesammelt, was durch einen Verdünnungssystem erreicht werden konnte. Die Beprobung fand jeweils während des gesamten Abbrandes (Brennstoffmenge und Anlageneinstellungen nach Angaben der Zulieferer) statt. Der Feinstaub wurde auf Quarzfaserfiltern gesammelt und anschließend folgenden analytischen Verfahren unterzogen:

* Gravimetrische Bestimmung der Masse (PM10),
* Thermisch-optischen Kohlenstoffanalytik (Ruß (EC), organischer Kohlenstoff (OC)),
* Flüssigchromatographie (anorganische Ionen und Anhydrosaccharide).

Die hier präsentierten Ergebnisse umfassen Holzpellets, Hackgut, Briketts, Fichten- und Buchenscheitholz, da nach der österreichischen Waldinventur, 2010; beziehungsweise Cop (2007) diese Brennstoffe für das in Rahmen der *PMinter* Projektes untersuchte österreichisch-slowenischen Grenzgebiet relevant sind.

Das Makrotracer Modell berechnet den Holzrauachanteil über den Anhydrozucker Levoglucosan, der bei der Pyrolyse von Zellulose entsteht. Diese Verbindung ist unter atmosphärischen Bedingungen weitgehend stabil und kann deshalb als Marker für die Biomasseverbrennung verwendet werden (Simoneit et al., 1999). Die Methode umfasst einen Vergleich der Verhältnisse von LG zur Partikelmasse (PM) sowie zur Konzentration von organischem Kohlenstoff, um die Anteile am Feinstaub, beziehungsweise an der kohlenstoffhaltigen Fraktion des Feinstaubs zu berechnen. Das LG/MN Verhältnis wird benutzt, um zwischen auf den Anteil von Weichholz beziehungsweise Hartholz an der Verbrennung zu schließen.

**Ergebnisse**

Die Emissionsfaktoren, beziehungsweise die Emissionsraten (bezogen auf die gesamte Feinstaubmasse) von EC, OC und Levoglucosan für Holzpellets, Hackgut, Brikettes, Fichte, Buche wurden in vier Kategorien ermittelt:

* Traditionelle Österreichische Kachelofen,
* Moderne Kaminöfen,
* Moderne Pellets-Einzelöfen,
* Moderne Pellets-Kessel.

Die Emissionsfaktoren für Feinstaub liegen in einem breiten Bereich zwischen 5 mg/MJ bis über 400 mg/MJ wobei Mehrheit der höheren Werte aus Einzelöfen und Scheitholz stammt. Die Pellets-Einzelöfen, beziehungsweise Kessel lagen mit Ihren durchschnittlichen Feinstaubwerten deutlich niedriger als Scheitholz/Brikett Einzelöfen.

Die Studien zeigten keine signifikante Unterschiede zwischen PM10 Emissionsfaktoren für Fichten- und Buchenscheitholz, allerdings einen deutlichen Trend hinsichtlich der Werte für Levoglucosan und Mannosan. Die Levoglucosan Anteile im Feinstaub hängen stark von der Holzart ab, obwohl die Bildung dieser Verbindungen ebenso durch bestimmte Verbrennungsbedingungen unterstützt ist. Sehr geringe Werte fanden sich bei der Verbrennung von Holzpellets, sowohl im Einzelofen als auch im Kessel. Dagegen wurden bei der Scheitholzverbrennung Anteile an LG bis zum 10% der PM10 Masse gefunden. Weiters wurden auch für Buche und Fichte, als Vertreter der Hart- und Weichhölzer, signifikante Unterschiede ermittelt. Für eine erfolgreiche Immissionsmodellierung über LG ist es somit wesentlich die Zusammensetzung des verwendeten Brennstoffs Gemisch zu kennen.

Für diese Aussage kann das LG/MN Verhältnis genützt werden. Dank der Unterschiede in der chemischen Zusammensetzung der verschiedenen Holzarten, werden diese beiden Anhydrozucker während der Verbrennung nicht in den gleichen Mengen gebildet. Das Verhältnis kann als ein robustes Werkzeug für die Interpretation des eingesetzten Brennstoffs verwendet werden (Schmidl et al., 2008).

Ein weiterer wichtiger Aspekt für die Modellierung der Feinstaubquellen sind die Ergebnisse der Kohlenstoffanalytik. Dadurch ist eine weitere Zuordnung der kohlenstoffhaltigen Fraktionen des Feinstaubs möglich, was in weiterer Folge auch den Vergleich mit anderen Methoden zur Quellenzuordnungs (zum Beispiel der 14C Methode) erlaubt. Der EC Anteil lag zwischen 20 und 50%. Die Heizanlagen mit den niedrigsten PM10 Emissionen zeigten in der Regel höhere EC Werte. Das älteste Gerät, ein Kachelofen, wies den höchsten OC Anteil auf. Diese Ergebnisse wurden durch den Vergleich mit Studien von Goncalves et al (2012) bestätigt und in weitere Folge auch als Basis für die Makrotracer Modellierung im *PMinter* Projekt benutzt.

**Literatur**

Statistik für das Jahr 2001, Statistik Austria 2007, [www.statistik.at](http://www.statistik.at)

P. Biermayr, M. Eberl, R. Ehrig, H. Fechner, C. Kristöfel, P. Eder-Neuhauser, N. Prüggler, A. Sonnleitner, C. Strasser, W. Weiss, M. Wörgetter: "Innovative Energietechnologien in Österreich, Marktentwicklung 2011- Biomasse, Photovoltaik, Solarthermie und Wärmepumpen. Berichte aus Energie und Umweltforschung, 12/2012“; Bundesministerium für Verkehr Innovation und Technology, 2012.

M. Anderl, S. Haider, H. Jobstmann, T. Köther, K. Pazdernik, D. Perl, S. Poupa, M. Purzner, B. Schodl, M. Sporer, G. Stranner, M. Wieser, A.Zechmeister: „Austria´s Informative Inventory Report (IIR) 2012“; Wien, 2012 Reports, Band 0380 ISBN: 978-3-99004-183-3, 364 S.

H. Bauer, A. Kasper-Giebl, A. Limbeck, C. Ramirez - Santa Cruz, N. Jankowski, B. Klatzer, P. Pouresmaeil, A. Dattler, M. Handler, Ch. Schmidl, H. Puxbaum: „Endbericht für das Projekt "AQUELLA“ Graz Süd PM2.5 Quellenanalyse von PM10- und PM2,5 Belastungen in Graz“; Wien, 17.3.2009, Bericht UA/AQ Graz-Süd 2009 – 49S, Bericht-Nr. Lu-03-09.

A. Kasper-Giebl, M. Kistler, E.C. Cetintas, E. Schreiner, C. Ramirez Santa-Cruz, S. Szidat, Y. Zhang, H. Bauer: „Makrotracer Modell zur Feinstaubquellenzuordnung (PM10) an 7 PMinter Luftgütemessstationen (Februar 2011)“; Eingereicht für Internationale Konferenz *PMinter,* 18-18.09.2013, Maribor.

Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa, Amtsblatt der Europäischen Union, L 152/1

C. Schmidl, I. Marr, A. Caseiro, P. Kotianova, A. Berner, H. Bauer, A. Kasper-Giebl, H. Puxbaum: “Chemical characterisation of fine particle emissions from woodstove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions"; Atmospheric Environment, 42 (2008), 126 - 141.

C. Schmidl, M. Luisser, E. Padouvas, L. Lasselsberger, M. Rzaca, C. Ramirez-Santa Cruz, M. Handler, G. Peng, H. Bauer, H. Puxbaum: “Particulate and gaseous emissions from manually and automatically fired small scale combustion systems”; Atmospheric Environment 45 (2011) 7443 - 7454.

M. Kistler, C. Schmidl, E. Padouvas, H. Giebl, J. Lohninger, R. Ellinger, H. Bauer, H. Puxbaum: “Odor, gaseous and PM10 emissions from small scale combustion of wood types indigenous to Central Europe”; Atmospheric Environment 51 (2012) 86 – 93.

Die österreichische Waldinventur für Jahren 2000 - 2002, 2010, http://bfw.ac.at.

T. Cop: “Forestry and Food, Slovenian Agriculture, Forestry and Food Processing Industry: Basic Characteristic and Numbers”; Slovenian Ministry of Agriculture, Ljubljana, 2007.

B.R.T. Simoneit, J.J. Schauer, C.G. Nolte, D.R. Oros, V.O. Elias, M.P. Fraser, W.F. Rogge, G.R. Cass: “Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles”; Atmospheric Environment 33 (1999), 173–182.

C. Gonçalves, C. Alves, M. Evtyugina, F. Mirante, C. Pio, A. Caseiro, C. Schmidl, H. Bauer, F. Carvalho: “Characterisation of PM10 emissions from woodstove combustion of common woods grown in Portugal”; Atmospheric Environment 44 (2010) 4474 - 4480.

