



DBFZ Report Nr. 3

Feinstaubminderung im Betrieb von Scheitholz-kaminöfen unter Berücksichtigung der toxikologischen Relevanz

Volker Lenz

**Feinstaubminderung im Betrieb von Scheitholzkaaminöfen
unter Berücksichtigung der toxikologischen Relevanz**

Vom Promotionsausschuss der
Technischen Universität Hamburg-Harburg

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor Ingenieur

genehmigte Dissertation

von

Volker Alfred Lenz

aus

Rain

2010

Gutachter

Prof. Dr.-Ing. Martin Kaltschmitt

Prof. Dr.-Ing. habil. Stefan Heinrich

Tag der mündlichen Prüfung

02. Dezember 2010

Widmung

Für die tatkräftige und immer hilfreiche Unterstützung auf meinem Promotionsweg möchte ich dem Betreuer dieser Arbeit, Martin Kaltschmitt, sowie einem langjährigen Weggefährten, Hans-Dieter Ließ, sehr herzlich und ausdrücklich danken. Dank gebührt auch meiner Frau, Annett Lenz, die mir während der Arbeit immer liebevoll zur Seite gestanden ist.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
1.1	Hintergrund	1
1.2	Zielsetzung	3
1.3	Aufbau der Arbeit.....	3
2	Grundlagen der Biomasseverbrennung und der Feinstaubbildung	5
2.1	Phasen der thermo-chemischen Umwandlung	6
2.1.1	Aufheizung und Trocknung.....	6
2.1.2	Pyrolytische Zersetzung	7
2.1.3	Vergasung.....	7
2.1.4	Oxidation	8
2.2	Schadstoffbildungsmechanismen und Einflussmöglichkeiten	8
2.2.1	Kohlenstoffmonoxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe	10
2.2.2	Feinstaub.....	12
3	Methodik der Messung, Charakterisierung und Bewertung.....	19
3.1	Messung.....	19
3.1.1	Versuchsprogramm.....	19
3.1.2	Kohlenstoffmonoxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe	25
3.1.3	Feinstaub.....	26
3.1.4	Sonstige Messgrößen.....	29
3.2	Analyse der Feinstaubproben	31
3.2.1	Eingrenzung.....	31
3.2.2	Analyseverfahren.....	33
3.2.3	Fehlerbetrachtung	35
3.3	Ergebnisdarstellung	36
3.4	Bewertung und Interpretation.....	36
4	Singuläre Betrachtung der Versuchsergebnisse	41
4.1	Inhaltsstoffe/Holzart.....	41
4.1.1	Emissionsmessergebnisse.....	41
4.1.2	Analyseergebnisse	43
4.1.3	Bewertung und Minderungsansätze	45
4.2	Wassergehalt	47
4.2.1	Emissionsmessergebnisse.....	48

4.2.2	Analyseergebnisse	49
4.2.3	Bewertung und Minderungsansätze	51
4.3	Stückigkeit.....	53
4.3.1	Emissionsmessergebnisse.....	54
4.3.2	Analyseergebnisse	55
4.3.3	Bewertung und Minderungsansätze	58
4.4	Brennraumbeladung	59
4.4.1	Emissionsmessergebnisse.....	59
4.4.2	Analyseergebnisse	61
4.4.3	Bewertung und Minderungsansätze	64
4.5	Manuelle Luftregelung.....	65
4.5.1	Emissionsmessergebnisse.....	66
4.5.2	Analyseergebnisse	67
4.5.3	Bewertung und Minderungsansätze	70
4.6	Passive Zugkontrolle	71
4.6.1	Emissionsmessergebnisse.....	71
4.6.2	Analyseergebnisse	72
4.6.3	Bewertung und Minderungsansätze	75
5	Integrative Betrachtung der Versuchsergebnisse.....	77
5.1	Emissionen und Einflussfaktoren.....	77
5.1.1	Kohlenstoffmonoxid.....	78
5.1.2	Kohlenwasserstoffe	79
5.1.3	Elementarer Kohlenstoff.....	80
5.1.4	Organischer Kohlenstoff.....	81
5.1.5	Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe.....	82
5.1.6	Benzo[a]pyren	83
5.1.7	Gesamtstaub	84
5.1.8	Zusammenfassung	85
5.2	Abhängigkeit einzelner Emissionen.....	86
5.2.1	Staubmasse	87
5.2.2	Benzo[a]pyren	88
5.2.3	Summe der PAK.....	89
5.2.4	Organischer Kohlenstoff.....	90
5.2.5	Elementarer Kohlenstoff.....	91

6	Schlussbetrachtung.....	95
	Literaturverzeichnis.....	98
	Anhänge.....	107

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzungen

Abkürzung	ausgeschriebene Bedeutung
ae. D.	aerodynamischer Durchmesser
AAS	Atomabsorptionsspektrometrie
Abb.	Abbildung
BaP	Benzo[a]pyren
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
BImSchV	Bundesimmissionsschutzverordnung
CC	Carbonat-Kohlenstoff
d. h.	das heißt
DBFZ	Deutsches BiomasseForschungsZentrum gemeinnützige GmbH
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
DIN	Deutsches Institut für Normung
dop. Men.	doppelte Menge
DT	dilution tunnel
EC	Elemental Carbon (elementarer Kohlenstoff)
EN	Euronorm
EPA	Environment Protection Agency (USA)
EU	Europäische Union
Fa.	Firma
FAO	Food and Agriculture Organisation
Fi.o.Ri.	Fichtenscheitholz ohne Rinde
FID	Flammenionisationsdetektor
FNR	Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe e.V.
FTIR	Fourier-Transformations-IR-Spektrometer
GC-MS	Gaschromatograph mit Massenspektrometer
Gesamt-C	Gesamtkohlenstoff
ggf.	gegebenenfalls
GmbH	Gesellschaft mit beschränkter Haftung
i. Allg.	im Allgemeinen
IARC	International Agency for Research on Cancer
IC	Ionenchromatographie
ICP-MS	Plasmaemissionsspektrometrie mit Massenspektrometer
ICP-OES	Plasmaemissionsspektrometrie mit optischem Emissionsspektrometer
inkl.	inklusive
k. A.	keine Angabe
k. W.	kein Wert
Kap.	Kapitel
MAK	maximale Arbeitsplatz Konzentration
max.	maximal
MW.	Messwert
Nicht-C-Staub	Nicht-Kohlenstoff-Feinstaub
Nm ³	Normkubikmeter
OC	Organic Carbon (organischer Kohlenstoff)
org. Komp.	organische Komponenten
PAK	polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe

PCDD	Dioxine
PCDF	Furane
PM	particulate mater – Partikel-/Feinstaubemissionen
REM	Raster-Elektronen-Mikroskop
TA	Technische Anleitung
Tab.	Tabelle
TFZ	Technologie- und Transferzentrum
th	thermisch
TM	Trockenmasse
TOC	total organic carbon
TUHH	Technische Universität Hamburg-Harburg
TS	Trockensubstanz
u. a.	unter anderem
UBA	Umweltbundesamt
v. a.	vor allem
vd.	verdünnt
VDI	Verein Deutscher Ingenieure
WHO	World Health Organisation
XRD	Röntgen-Fluoreszenz- Untersuchung
z. B.	zum Beispiel
z. T.	zum Teil
zw.	zwischen

Formelbezeichnungen

Formelabkürzung	Formelbezeichnung
A	Aschegehalt / spezifische Aschemenge
A_{wf}	Aschegehalt, bezogen auf die wasserfreie Substanz
c_N	Teilchen-Anzahlkonzentration
d	Durchmesser
ΔH	Enthalpie
H_u	Heizwert
K	Koagulationskoeffizient
Λ	Luftüberschusszahl Lambda
N	Anzahl
τ	Verweilzeit
T_{Abgas}	Abgastemperatur
w	Wassergehalt

Bezeichnung chemischer Elemente und Verbindungen

Kürzel	Name
Al	Aluminium
Al_2O_3	Aluminiumoxid
As	Arsen
C	Kohlenstoff
Ca	Kalzium
$CaCO_3$	Kalziumcarbonat

CaO	Kalziumoxid
Cd	Cadmium
CH [·]	Kohlenwasserstoffradikal
CH ₄	Methan
C ₂ H ₂	Ethin
C ₂ H ₄	Ethen
Cl	Chlor
C _n H _m	Kohlenwasserstoffe
Co	Kobalt
CO	Kohlenstoffmonoxid
CO ₂	Kohlenstoffdioxid
Cr	Chrom
Cu	Kupfer
Fe	Eisen
FeO	Eisen(II)-oxid
Fe ₂ O ₃	Eisen(III)-oxid
H	elementarer Wasserstoff
H ₂	Wasserstoff
H ₂ O	Wasser bzw. Wasserdampf
HCl	Chlorwasserstoff
Hg	Quecksilber
K	Kalium
K ₂ CO ₃	Kaliumcarbonat
K ₂ SO ₄	Kaliumsulfat
KCl	Kaliumchlorid
KOH(g)	Kaliumhydroxid gasförmig
Mg	Magnesium
MgCO ₃	Magnesiumcarbonat
MgO	Magnesiumoxid
Mn	Mangan
Mo	Molybdän
MS	Massenspektrometrie
N, N ₂	Stickstoff
N ₂ O	Distickstoffmonoxid
Na	Natrium
Na ₂ CO ₃	Natriumcarbonat
NH ₃	Ammoniak
NH ₄ ⁺	Ammonium
Ni	Nickel
Nm ³	Normkubikmeter
NO ₂	Stickstoffdioxid
NO ₂ ⁻	Nitrit
NO ₃ ⁻	Nitrat
NO _x	Stickstoffoxide (NO + NO ₂)
O	elementarer Sauerstoff
O ₂	Sauerstoff
O H [·]	Hydroxyl-Radikal
P	Phosphor

Pb	Blei
PO ₄ ³⁻	Phosphat
S	Schwefel
Se	Selen
Si	Silizium
SiO ₂	Siliziumoxid
SO ₂	Schwefeldioxid
SO ₃	Schwefeltrioxid
SO _x	Schwefeloxide
Zn	Zink
ZnO	Zinkoxid

Verzeichnis der verwendeten Einheiten

Einheit	Erklärung
%	Prozent
€	Euro
°C	Grad Celsius
µg	Mikrogramm
MJ	Megajoule
Mm	Mikrometer
g	Gramm
H	Stunde
hPa	Hektopascal
K	Kelvin
kg	Kilogramm
kJ	Kilojoule
kW	Kilowatt
kW _{th}	Kilowatt thermischer Leistung
m ³	Kubikmeter
Mg	Milligramm
MJ	Megajoule
mol	Teilchenzahl
MW _{th}	Megawatt thermischer Leistung
Ng	Nanogramm
Pa	Pascal
ppm	parts per million
s	Sekunde
Vol-%	Volumenprozent

1 Einleitung

Eine der größten Herausforderungen für die Menschheit ist der Klimawandel. Entsprechend hat sich u. a. die deutsche Bundesregierung das Ziel gesetzt bis 2020 die Emissionen an Treibhausgasen im Vergleich zum Stand 1990 um 20 % zu mindern [1]. Hierzu kann und soll eine verstärkte energetische Nutzung der Biomasse beitragen.

Ende 2007 hatte die Bioenergie einen Anteil von rund drei Viertel am erneuerbaren Primärenergieeinsatz. Davon wurden mehr als 45 % für die Wärmebereitstellung genutzt. Insgesamt wurden mehr als 90 % der erneuerbaren Wärme aus Biomasse bereitgestellt. Von der bereitgestellten Wärmemenge kommen über 80 % aus der Verbrennung von festen Biobrennstoffen – bisher fast ausschließlich Holzprodukte – in kleinen und mittleren Holzfeuerungsanlagen [2].

Zur Verminderung der Kohlenstoffdioxidemissionen wird von Seiten des Bundes ein weiterer Ausbau der energetischen Biomassenutzung im Wärmebereich forciert. Bei diesem Ausbau der thermischen Biomassenutzung dürfen aber aus Gründen des Immissionssschutzes nicht gleichzeitig die Emissionen an Luftschadstoffen wie z. B. Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxide oder Feinstaub ansteigen.

1.1 Hintergrund

Biogene Festbrennstoffe enthalten neben Kohlenstoff, Wasserstoff und Sauerstoff auch Elemente wie Stickstoff, Chlor, Schwefel, Phosphor, Kalium, Natrium, Magnesium, andere Metalle und Spurenstoffe. Diese Inhaltsstoffe führen bei der Verbrennung neben der Bildung von Wasser, Kohlenstoffdioxid und Kohlenstoffmonoxid u. a. zur Entstehung von Stickstoffoxiden und insbesondere von Feinstäuben. Neben den Produkten der vollständigen Verbrennung treten in realen Verbrennungsprozessen vielfältige Kohlenwasserstoffverbindungen aufgrund einer unvollständigen Verbrennung auf. Bisher wurden bis zu 500 verschiedene Verbindungen bei der Verbrennung von Biomasse identifiziert, wobei einige dieser organischen Emissionen erhebliche humantoxikologische Relevanz aufweisen [3].

Feinstäube sind in den vergangenen Jahren in den Fokus der öffentlichen Wahrnehmung geraten, nachdem verschiedene Studien deren gesundheitliche Risiken dargelegt haben [4], [5], [6], [7], [8]. Gleichzeitig unterliegen europäische Luftreinhalte-Grenzwerte u. a. für Feinstaubpartikel einer zunehmenden Verschärfung [9], [10].

Für Deutschland geht das Umweltbundesamt für 2005 von einem Anteil von etwa 8 bis 9 % der Feinstaubemissionsmengen aus Holzfeuerungsanlagen aus, der tendenziell eher zunehmend ist [11]. Damit liegen die Emissionen aus der Biomasseverbrennung auf einem ähnlichen Niveau wie die der Fahrzeugmotoren (ohne Land- und Baumaschinen) [12], [13]. Ein forcierter Ausbau der biogenen Festbrennstoffverbrennung verbunden mit einem verstärkten Einsatz von alternativen Brennstoffen zum Holz führt zumindest mit heutigen Feuerungsanlagen häufig zu höheren Feinstaubemissionen [14], [15].

Die installierten Biomassefeuerungsanlagen tragen nicht in gleichem Maße zu den Feinstaubemissionen bei. So sind Anlagen mit mehr als 1 MW_{th}-Leistung schon heute meist mit wirksamen Elektroabscheidern oder Gewebefiltern ausgerüstet, so dass diese Anlagen nur wenig zur Gesamtbilanz der Feinstaubemissionen beitragen. Im Unterschied dazu zeigt die in Abb. 1-1 dargestellte Verteilung der Emissionsanteile auf verschiedene Alters- und Feuerungsartengruppen der Kleinfeuerungsanlagen (unter 1 MW_{th}), dass insbesondere die Anla-

gen, die vor 1995 angeschafft wurden, und die Summe der Einzelfeuerstätten den jeweils weit überwiegenden Anteil der Feinstaubemissionen verursachen. Gleichzeitig decken die aufgeführten automatischen Feuerungsanlagen (Stückholz-, Pellet- und Holzhackschnittelkessel) etwa ein Drittel der Nutzenergiebereitstellung ab, bedingen aber nur rund 16 % der Feinstaubemissionen.

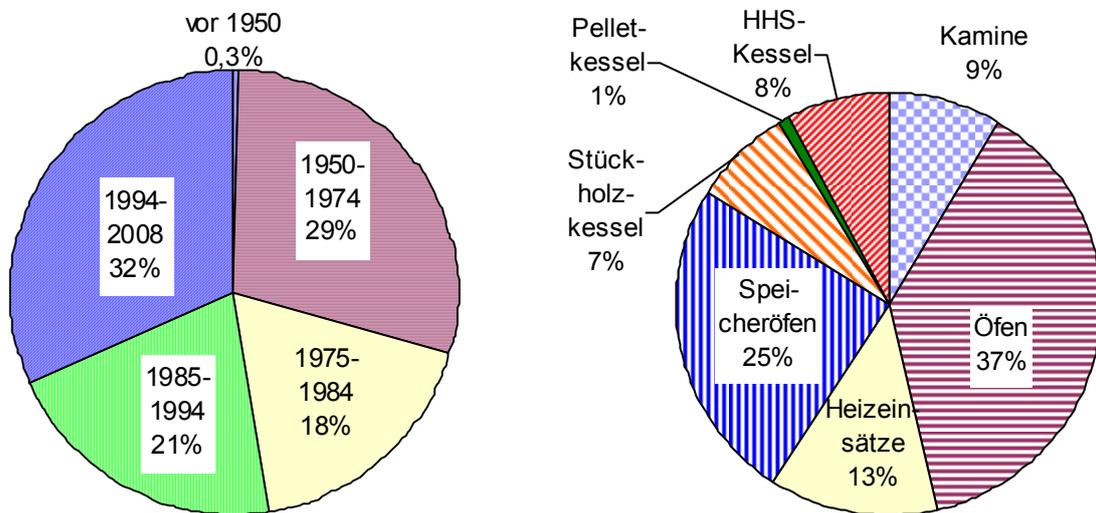


Abb. 1-1: Abschätzung der Gesamtstaubemissionen aus Holzfeuerungsanlagen bis 1 MW_{th} Leistung nach Alters- (links) und Feuerungsartengruppen (rechts) 2008 [16]; HHS .. Holzhackschnittel

Es sind also im Besonderen die Einzelfeuerstätten und hier schwerpunktmäßig die älteren Feuerungsanlagen für den größten Teil der Feinstaubemissionen aus Holzfeuerungsanlagen verantwortlich. Abb. 1-1 zeigt, dass 50 % der Feinstaubemissionen aus Öfen und Heizeinsätzen stammen, die in den kommenden Jahren im Hinblick auf ihre Emissionen überprüft und ggf. nachgerüstet oder ausgetauscht werden müssen [17]. Daher ist die beinhaltete Gruppe der Öfen mit Flachfeuerung mit einem Bestand von rund drei Millionen und im Jahr 2008 300 000 neu installierten Geräten für eine aktuelle Untersuchung zur Minderung der Emissionen von sehr hoher Relevanz [18], [19], [20], [21], [22]. Eine erste Einschätzung der Bedeutung der Feinstaubemissionen aus solchen meist Scheitholzkaminöfen im Vergleich zu Öfen für andere Brennstoffe zeigt Abb. 1-2.

Es ist erkennbar, dass Ölöfen grundsätzlich geringere spezifische Feinstaubemissionen aufweisen als die heutigen Festbrennstofffeuerungen. Ein optimaler Betrieb eines technisch optimierten Kaminofens (Abb. 1-2 innovativer Kaminofen) kann zu Feinstaubemissionen in der Nähe von Ölöfen führen. Dies unterstreicht den Bedarf, die eingesetzte Technik und das Nutzerverhalten bei Kaminöfen und anderen Einzelfeuerstätten zu verbessern.

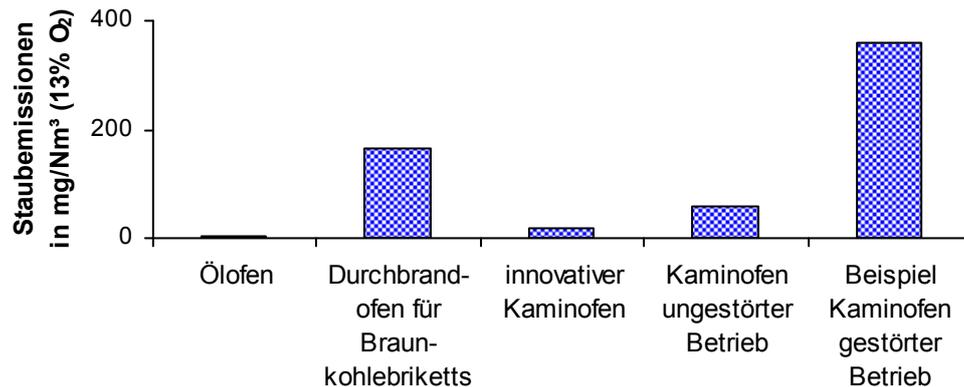


Abb. 1-2: Vergleich durchschnittlicher Feinstaubemissionen verschiedener Öfen zur Einzelraumbeheizung (Ölofen, Kohleofen mit Braunkohlebriketts, innovativer Kamin, Kaminofen im ungestörten Betrieb, Kaminofen im gestörten Betrieb – Messungen im unverdünnten Abgas bezogen auf 13 % O₂) [16], [23], [24], [25]

1.2 Zielsetzung

Vor dem dargestellten Hintergrund werden im Folgenden die abgasseitigen Emissionen von Kaminöfen für Stückholz und die Maßnahmen zur Minderung derselbigen betrachtet. Neben der durch gesetzliche Vorgaben [10], [17], [26] begrenzten Menge an Staub ist bei Biomasseverbrennungsanlagen insbesondere die Qualität der Verbrennung, d. h. die Vollständigkeit der Verbrennung, zu betrachten. Diese korreliert nach ersten Untersuchungen [27] stark mit der toxikologischen Relevanz der Emissionen. Dazu werden bei der Bestimmung der Inhaltsstoffe der im abgekühlten Abgas gewonnenen Stäube auch die für die Verbrennungsqualität üblichen Indikatoren CO und C_nH_m untersucht.

Ziel dieser Arbeit ist es somit am Beispiel eines marktüblichen Kaminofens neuerer Bauart beim Einsatz unbehandelten Scheitholzes stellvertretend für alle vergleichbaren Einzelfeuerstätten

1. eine Methodik zur Beschreibung und Bewertung der Qualität der Verbrennung anhand emissionsseitiger Messgrößen und der Analyse der entstehenden Feinstäube zu erarbeiten,
2. das Verständnis über den Einfluss der Faktoren Temperatur und Sauerstoffangebot auf die Bildung von Feinstäuben und deren toxikologische Relevanz zu erweitern und
3. konkrete Minderungsmaßnahmen abzuleiten.

Dies beinhaltet auch die Suche nach methodischen Ansätzen zur vereinfachten Abschätzung der Qualität einer Verbrennung, indem Zusammenhänge zwischen Mess- und Analysegrößen erforscht werden.

1.3 Aufbau der Arbeit

Nach der Einleitung werden in Kapitel 2 die Grundlagen des vierphasigen thermochemischen Umwandlungsprozesses beschrieben. Daran schließen sich eine Beschreibung der bekannten Mechanismen zur Schadstoffbildung – insbesondere auch der Feinstaubbildung – sowie der Einflussmöglichkeiten an. Dabei wird jeweils sowohl auf den Einfluss der Änderung von

Betriebsparametern als auch den Zusammenhang mit den Einflussfaktoren wie z. B. Temperatur und Luftüberschuss eingegangen (Abb. 1-3).

Im Kapitel 3 werden die methodischen Ansätze zur Erfassung der in dieser Arbeit betrachteten Schadstoffe und der chemischen Analysen der gravimetrisch gesammelten Feinstaubproben sowie die Methodik zur Darstellung der Ergebnisse und die Ansätze zur Bewertung und Interpretation derselbigen insbesondere im Hinblick auf die toxikologische Relevanz für den Menschen erarbeitet.

Kapitel 4 beinhaltet die Darstellung der Versuchsergebnisse für die betrachteten Variationen Inhaltsstoffe, Wassergehalt, Stückigkeit, Brennraumbeladung, manuelle Luftregelung und passive Zugkontrolle. Die Ergebnisse werden dann jeweils bezüglich der absoluten Staubemission und deren toxikologischer Relevanz bewertet und daraus Minderungsansätze abgeleitet.

Mittels des integrativen Vergleichs der in Kapitel 4 bereits beschriebenen Messergebnisse wird in Kapitel 5 sowohl auf die Zusammenhänge zwischen den Messgrößen Staub, polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe und hier insbesondere Benzo[a]pyren, den organischen und elementaren Kohlenstoff im Staub sowie auf die gasförmigen Emissionen Kohlenwasserstoffe und Kohlenstoffmonoxid im Vergleich zu den Einflussgrößen Luftüberschuss und Abgastemperatur als auch auf die Zusammenhänge untereinander eingegangen. Dadurch sollen übergreifende Ansätze zur Schadstoffminderung bei Kaminöfen identifiziert und zusätzlich Möglichkeiten gefunden werden, die aufwändig zu messenden Größen in ihren Emissionen durch die Einstellung z.B. der gasförmigen Emissionen zu begrenzen. Kapitel 6 schließt die Arbeit mit einer Zusammenfassung der gewonnenen Erkenntnisse insbesondere im Hinblick auf Minderungsmöglichkeiten unter Beachtung der toxikologischen Relevanz der Stäube und einem Ausblick auf die Nutzbarkeit der Ergebnisse ab.

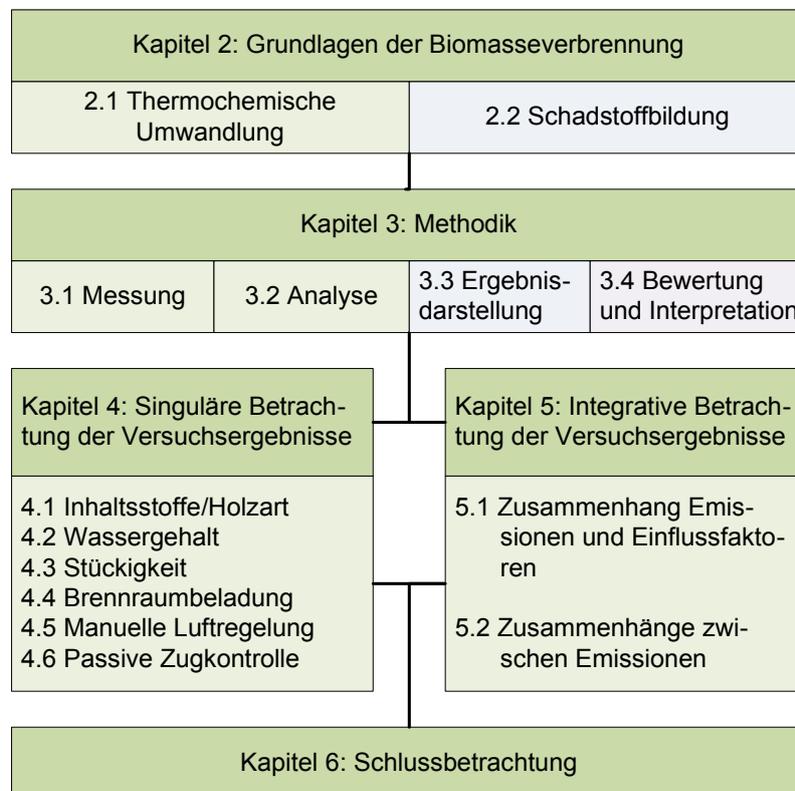
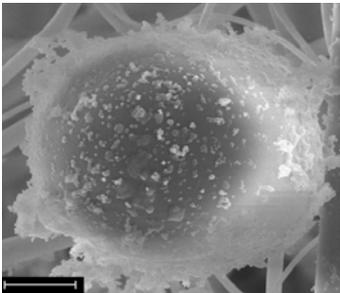
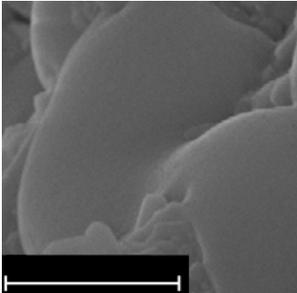
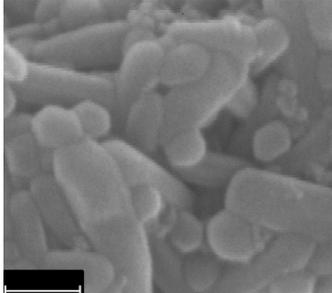


Abb. 1-3: Aufbau der Arbeit

2 Grundlagen der Biomasseverbrennung und der Feinstaubbildung

Biogene Festbrennstoffe besitzen im Unterschied zu gasförmigen Brennstoffen wie z. B. Erdgas einen nennenswerten anorganischen Ascheanteil, so dass bei der Verbrennung neben den üblichen gasförmigen Emissionen wie Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxide und Kohlenwasserstoffe auch Feinstäube freigesetzt werden. Die emittierten Staubteilchen und Aerosoltröpfchen, die je nach Qualität der Verbrennung auch aus anorganischem Kohlenstoff oder organischen Kohlenstoffkomponenten bestehen können, treten in verschiedensten Größen auf. Dabei gelten Partikel und Tröpfchen mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner $10\ \mu\text{m}$ (PM10) als Feinstaub, der in den Atemtrakt von Lebewesen eindringen kann. Eine differenziertere Betrachtung unterteilt die Feinstäube in die Grobfraction mit $2,5$ bis $10\ \mu\text{m}$ aerodynamischem Durchmesser und die Feinstpartikel mit kleiner $2,5\ \mu\text{m}$ (PM2,5). Aufgrund der hohen gesundheitlichen Relevanz werden zusätzlich noch die ultrafeinen Partikel unterschieden. Diese besitzen einen aerodynamischen Durchmesser von kleiner als $0,1\ \mu\text{m}$ (PM0,1) (Tabelle 2-1).

Tabelle 2-1: Größenklassifizierung von Staubpartikeln und Aerosoltröpfchen [28], [29]

	Grobfraction	Feinstpartikel	ultrafeine Partikel
Größenordnung	$2,5$ bis $10\ \mu\text{m}$	$< 2,5\ \mu\text{m}$	$< 0,1\ \mu\text{m}$
Wirkbereich	oberer Atemtrakt, Bronchien	Lungenbläschen	im gesamten Körper
Beispielbild			
Skala /	$2\ \mu\text{m}$	$1\ \mu\text{m}$	$200\ \text{nm}$
Vergrößerung	20 000-fach	50 000-fach	150 000-fach

Die verschiedenen Größenklassen korrelieren i. Allg. mit bestimmten Bildungswegen. Deshalb werden nachfolgend die Grundlagen der Verbrennung sowie die dabei ablaufenden Bildungsmechanismen für Feinstäube sowie einige für die toxikologische Bewertung relevante Stoffe beschrieben. Auch wird auf die bisher bekannten Einflussmechanismen eingegangen.

2.1 Phasen der thermo-chemischen Umwandlung

Die Oxidation von Biomassebrennstoffen erfolgt typischerweise in mehreren Phasen (Abb. 2-1). Das Verständnis über die jeweiligen Prozesse ist wichtig, um bestimmte Effekte bei der Verbrennung von Holz in Kaminöfen erklären zu können.

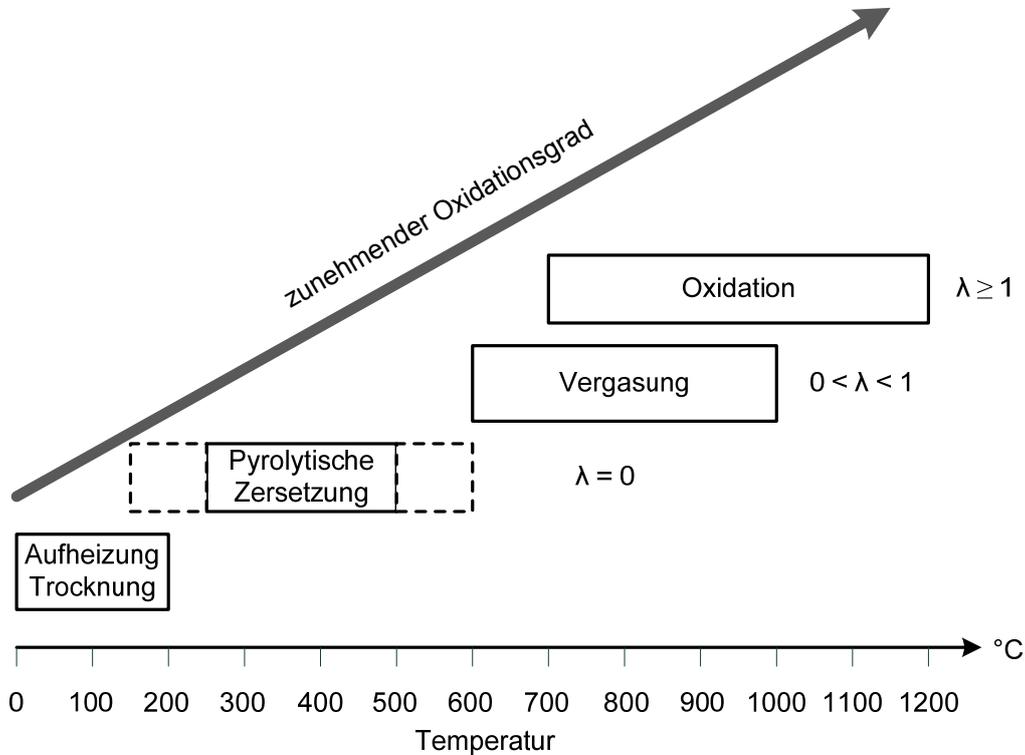


Abb. 2-1: Phasen der thermo-chemischen Umwandlung biogener Festbrennstoffe in Abhängigkeit der Luftüberschusszahl λ [30]

Bei der Verbrennung von Scheitholz in marktüblichen Kaminöfen mit oberem Abbrand und ohne bautechnische Trennung der Verbrennungszonen treten alle vier Stufen gleichzeitig auf, so dass sich die Prozesse gegenseitig stark beeinflussen können.

2.1.1 Aufheizung und Trocknung

Holz kommt in der Natur praktisch nie absolut trocken vor. Findet zu Beginn der thermo-chemischen Umsetzung eine Erwärmung des Holzes statt, wird das im Holz vorhandene freie und in der organischen Masse gebundene Wasser verdampft und ausgetrieben. Dabei wird eine entsprechende Menge an Energie benötigt, so dass die weitere Erwärmung des Holzes bis zum nahezu vollständigen Abschluss der Trocknungsphase gebremst wird.

Je nach Umgebungsbedingungen erfolgen die Erwärmung und Trocknung schneller oder langsamer. Bei einer sehr schnellen Aufheizung kann das Holz durch unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten in und quer zur Faserrichtung sowie das Ausdehnen des Wasserdampfes im Holz aufreißen und somit die reaktive Oberfläche vergrößern. Bei Umgebungstemperaturen bis ca. 200 $^{\circ}\text{C}$ wird vor allem Wasser in Form von Dampf ausgetrieben. Je nach Holzart werden bei diesen Temperaturen Spuren von leicht flüchtigen organischen Komponenten (z. B. Essig- und Ameisensäure) und Kohlenstoffdioxid mit freigesetzt. Mit dem Abschluss der Trocknung findet bei ausreichend hohen Umgebungstemperaturen eine weitere Aufheizung des Brennstoffs statt [30].

2.1.2 Pyrolytische Zersetzung

Unter pyrolytischer Zersetzung werden thermo-chemische Prozesse unter Ausschluss von externer Sauerstoffzufuhr verstanden. Sie beginnt in einem Temperaturbereich von rund 150 bis 250 °C und endet je nach Biomasse und Umgebungsbedingungen bei 500 bis 600 °C. Die pyrolytische Zersetzung führt zu einem Abbau von rund 80 bis 85 % des organischen Materials, das in Form von gasförmigen und teilweise flüssigen Komponenten freigesetzt wird.

Dabei unterscheiden sich die Abbauraten der drei Hauptbestandteile der Biomasse erheblich. So wird die Hemicellulose beginnend ab ca. 200 °C bis zu einer Temperatur des Brennstoffs von rund 450 °C mit einer maximalen Freisetzung an gasförmigen Komponenten bei 320 bis 350 °C fast vollständig abgebaut. Beginnend ab ca. 280 °C beginnt der Abbau der Cellulose mit einem Maximum bei rund 400 °C. Dieser ist mit einer Zersetzung von etwas über 90 % der Cellulose bei etwa 450 °C weitgehend abgeschlossen. Der Ligninabbau beginnt bei rund 150 °C, kann aber aufgrund der Komplexität der Ligninstruktur bis etwa 600 °C andauern, wobei am Ende knapp 60 % des Lignins abgebaut sind. Dabei entsteht eine Vielzahl von z. T. auch längerketigen Verbindungen, die ohne weitere sekundäre Abbaureaktionen als Pyrolyseöle anfallen würden. Die nicht abgebauten Reste verbleiben als Holzkohle im Reaktionsraum [30].

Die in den unterschiedlichen Temperaturbereichen ablaufenden Prozesse sind in Tabelle 2-2 im Einzelnen aufgeführt und beschrieben.

Tabelle 2-2: Temperaturabhängige Stufen der pyrolytischen Zersetzung von Biomasse [30]

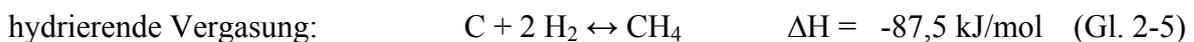
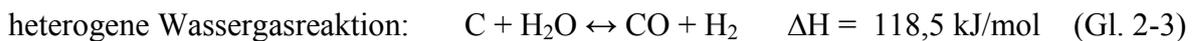
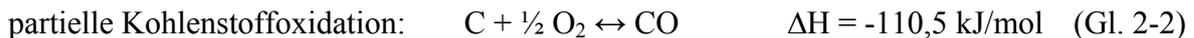
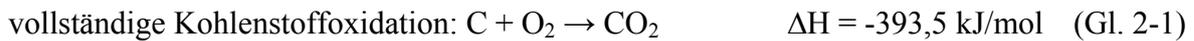
Temp.- Bereich in °C	Vorgänge der pyrolytischen Zersetzung
175 - 280	Freisetzung größerer Mengen an Kohlenstoffdioxid (CO ₂), Essig- und Ameisensäure, Reste von Wasserdampf aus der Trocknung – endothermer Prozess
280 - 500	Bildung v. a. von Kohlenstoffmonoxid (CO), Methan (CH ₄), Formaldehyd (CH ₂ O), Essig- (C ₂ H ₄ O ₂) und Ameisensäure (CH ₂ O ₂), Methanol (CH ₃ OH) und Wasserstoff (H ₂); Mitreißen von feinsten Tröpfchen organischer Verbindungen (Rauch); Holzkohle als Rückstand – exothermer Prozess mit rund 880 kJ/kg Holzmasse
über 500	aus dem Holz austretender Gasstrom wird an den äußeren verkohlten Schichten v. a. zu Kohlenstoffmonoxid (CO) und Wasserstoff (H ₂) aufgespalten – endothermer Prozess

Aufgrund der sehr niedrigen thermischen Leitfähigkeit existiert – mit Ausnahme sehr kleiner Partikel – im Pyrolysegut ein zeitabhängiger Temperaturgradient, so dass die verschiedenen stark von der vorherrschenden Temperatur beeinflussten Umsetzungsreaktionen parallel ablaufen können. Insofern ist eine genaue Vorhersage der Zusammensetzung des Produktgases schwierig [30].

2.1.3 Vergasung

Nach Abschluss der pyrolytischen Zersetzung gilt es, den verbliebenen Koks mit Hilfe eines sauerstoffhaltigen Vergasungsmittels ebenfalls in brennbare Gase umzuwandeln. Da im Brennstoff selbst Sauerstoff vorhanden ist und in Form von Wasserdampf und Kohlenstoff-

dioxid vorliegt, kann es bei ausreichenden Temperaturen von über 600 °C auch ohne zusätzliches Vergasungsmittel zu Vergasungsreaktionen kommen. Gekennzeichnet ist die Vergasung durch eine nicht vollständige Umsetzung des Kohlenstoffs aufgrund eines nicht ausreichenden Angebots an Sauerstoff. Die dadurch nur teilweise Oxidation des Pyrolysekokes führt trotzdem zu einem Anstieg der Temperatur auf 700 bis 1 000 °C. Abhängig von den Temperaturen und Drücken sowie den vorhandenen Ausgangsstoffen und Vergasungsmedien können im Wesentlichen folgende Reaktionen zur Umwandlung des Pyrolysekokes stattfinden [30]:



Das Gleichgewicht der umkehrbaren Reaktionen verschiebt sich mit steigenden Temperaturen entgegen der Enthalpiefreisetzung. Damit begünstigen hohe Temperaturen im Vergasungsprozess typischerweise hohe Kohlenstoffmonoxidkonzentrationen im Produktgas. Die Druckabhängigkeit zugunsten kleinerer Gasmengen bei höheren Drücken spielt bei Kaminöfen in der Regel keine Rolle, da mit der offenen Verbindung zur Umgebung über den Schornstein und den Schornsteinzug ein leichter und weitgehend konstanter Unterdruck im Ofen herrschen sollte [30].

2.1.4 Oxidation

Unter Oxidation wird die Umsetzung der bei der pyrolytischen Zersetzung und der Vergasung entstandenen brennbaren Gase mit einem Oxidationsmittel zu nicht mehr weiter oxidierbaren Stoffen verstanden. Dabei entstehen vor allem Kohlenstoffdioxid (CO₂) und Wasserdampf (H₂O) sowie Wärme, die in Form der Konvektion der heißen Abgase und in Form von Strahlungsenergie an die Umgebung (v. a. Wände der Feuerung, noch nicht umgesetzter Brennstoff und über die Glasscheibe des Kaminofens direkt an den Raum) abgegeben wird. Hinzu kommen Stickstoffoxide, Feinstaub, Asche und bei unvollständiger Oxidation nicht umgesetzte Brenngase wie Kohlenstoffmonoxid, Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe.

Für eine vollständige Oxidation muss neben ausreichendem Luftangebot auch die Temperatur im Brennraum hoch genug, die Durchmischung von Luft und Brenngasen möglichst optimal und die Verweilzeit in der Brennkammer bei hohen Temperaturen ausreichend lang sein. Je nach Luftüberschusszahl und Wassergehalt des Brennstoffs sind im Maximum Temperaturen von knapp über 2 000 °C theoretisch möglich. In der Realität sinkt diese Temperatur aufgrund von Wärmeverlusten, einer unvollständigen Oxidation, einem übermäßigen Angebot an Luft und dem Wassergehalt im Brennstoff auf unter 1 000 °C [30].

2.2 Schadstoffbildungsmechanismen und Einflussmöglichkeiten

Ein idealer kohlenstoffhaltiger Brennstoff würde lediglich aus den Elementen Kohlenstoff, Wasserstoff und Sauerstoff bestehen. Dann könnte unter optimalen Verbrennungsbedingungen mit reinem Sauerstoff als Oxidationsmittel eine vollständige Umsetzung zu Kohlenstoffdioxid und Wasser erreicht werden. Dieser ideale Prozess wird in der Realität der Bio-

masseverbrennung jedoch durch die Vielfalt der Inhaltsstoffe im Brennstoff, den Verbrennungsprozess mit Luft und die Feuerungstechnik gestört. Entsprechend gibt es eine Vielzahl von gasförmigen und aerosolartigen Stoffen, die bei einer Verbrennung von biogenen Festbrennstoffen gerade auch in heute marktüblichen Kaminöfen entstehen können. Da sich diese Arbeit im Wesentlichen darauf konzentriert, die Gesamtfinstaubfracht sowie deren toxikologische Relevanz zu untersuchen, zeigt Tabelle 2-3 einen Überblick über die bei der Verbrennung von naturbelassenem Holz relevanten Emissionen.

Tabelle 2-3: Unter Berücksichtigung des toxikologischen Gefährdungspotentials von Feinstäuben relevante Emissionen bei der Verbrennung von naturbelassenem Holz [30]

Stoffe	Bedeutung
Kohlenstoffmonoxid (CO)	leicht zu messen, erster Indikator für die Verbrennungsqualität
gasförmige Kohlenwasserstoffe (C_nH_m)	weiterer möglicher Indikator für die Verbrennungsqualität
Teere und Ruß	nennenswerter Einfluss auf Gesamtstaubmenge und toxikologische Relevanz in Form von OC und EC im Staub
polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)	hohe toxikologische Relevanz
Kohlenstoff als Teil von unverbrannten Brennstoffbestandteilen	Teil der Gesamtstaubmenge (OC und EC) – bei Biomassekleinfeuerungsanlagen in der Regel nur geringe Massenanteile
nicht-brennbarer Teil der Staubemissionen (z.B. Aschepartikel)	Teil der Gesamtstaubmenge
Schwermetalle	Teil der Gesamtstaubmenge – Einzelanalyse für Cu, Pb, Cr, Cd, Zn, Mn
Schwefel-, Chlor- und Kaliumverbindungen	Teil der Gesamtstaubmenge miterfasst – Einzelanalysen für Sulfat, Chlorid und Kalium

Insofern werden im Folgenden die gasförmigen Emissionen Kohlenstoffmonoxid und Kohlenwasserstoffe (C_nH_m) sowie die Gesamtstaubemissionen im verdünnten und unverdünnten Abgas einschließlich der für die Fragestellung relevanten Inhaltsstoffe des Staubes aus dem verdünnten Abgas - OC, EC, PAK und Nicht-Kohlenstoff-Feinstäube (Salze und Metalle) - betrachtet.

Art und Menge der bei der Verbrennung biogener Festbrennstoffe entstehenden Emissionen und dabei insbesondere auch Feinstäube sind von vielen Parametern abhängig. Da sich die Prozesse z. T. gegenseitig beeinflussen, sind bei weitem noch nicht alle Abhängigkeiten abschließend erforscht.

Grundsätzlich hängt die Feinstaubbildung von den Inhaltsstoffen der Brennstoffe und den Verbrennungsbedingungen ab. Diese werden im Wesentlichen durch die Temperaturen, das Sauerstoffangebot, die Qualität der Durchmischung von Brenngasen und Sauerstoff sowie den Verweilzeiten bei ausreichend hohen Temperaturen bestimmt [30]. Diesen fünf Einflussgrößen stehen Betriebsparameter gegenüber, die sich aus der Feuerung (z. B. Brennraumgestaltung, Art der Luftzuführung), deren Bedienung (z. B. Brennstoffzugabe, Luftregelung) und den eingesetzten Brennstoffen (z. B. Stückigkeit, Wassergehalt) ergeben. Letztere können versuchsstechnisch relativ einfach variiert werden. Erstere ändern sich im Unterschied dazu

vor allem in Folge der Änderung von Betriebsparametern, sind jedoch die eigentlichen Auslöser für Veränderungen in der Qualität der Verbrennung.

Insofern werden bei der folgenden Beschreibung der Schadstoffbildungsmechanismen jeweils sowohl die bekannten Zusammenhänge im Hinblick auf die Betriebsparameter als auch im Hinblick auf die Einflussgrößen betrachtet.

2.2.1 Kohlenstoffmonoxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe

Primäre Schadstoffbildung. Die pyrolytische Zersetzung sowie die ablaufenden Vergasungsreaktionen liefern ausgehend von den Hauptbrennstoffbestandteilen der Biomasse (C, H, O) Kohlenstoffmonoxid (CO) und gasförmige Kohlenwasserstoffe. Diese werden bei der vollständigen Oxidation in Kohlenstoffdioxid und Wasserdampf sowie bei nicht vollständiger Oxidation auch in Kohlenstoffmonoxid sowie Reste an gasförmigen Kohlenwasserstoffen umgesetzt. Die anschließende Oxidation von Kohlenstoffmonoxid erfolgt deutlich langsamer als der Kohlenwasserstoffabbau und ist neben der Konzentration an CO, H₂O und O₂ auch stark von der Höhe der Temperatur in der Verbrennung abhängig. Eine rasche Umsetzung des CO erfolgt bei Temperaturen von mehr als 800 °C, ausreichendem Sauerstoffangebot und genügend langen Verweilzeiten [30]. Entsprechend hohe Bedeutung haben die Zugabemenge und die Güte der Durchmischung mit Verbrennungsluft. Während bei einem zu hohen Luftüberschuss zwar ausreichend Sauerstoff zur Verfügung steht, dafür aber die Flamme zu sehr gekühlt wird, um eine vollständige Oxidation zu ermöglichen, nimmt bei einem zu niedrigen Luftüberschuss die Gefahr der Bildung von Zonen mit zu niedrigem Sauerstoffangebot zu, so dass hier die Emissionen an unverbrannten Kohlenwasserstoffen und nicht oxidiertem CO drastisch zunehmen können [30].

Durch die höhere Geschwindigkeit der Abbaureaktionen für die meisten Kohlenwasserstoffe im Vergleich zum CO sind die Konzentrationen von CO im Abgas in der Regel um eine Größenordnung höher als die Kohlenwasserstoffkonzentrationen. In den meisten Feuerungen wird eine gute Korrelation zwischen CO und C_nH_m beobachtet. Dies muss insbesondere bei einem Chargenabbrand nicht zwingend der Fall sein, da die Freisetzung an C_nH_m zum Ende des Zyklus mit dem Umsatz der Holzkohlenkokes deutlich abnimmt, während weiterhin nennenswert CO emittiert werden kann [31].

Sekundäre Schadstoffbildung. Bei der Verbrennung von festen Biomassen kann Kohlenstoffdioxid an Kohlenstoffpartikeln zu Kohlenstoffmonoxid reduziert werden (Gl. 2-4). Das Gleichgewicht liegt bei hohen Temperaturen fast ausschließlich beim Kohlenstoffmonoxid (Abb. 2-2 links). Auch kann bei hohen Temperaturen Kohlenstoff mit Wasserdampf zu CO und Wasserstoff reduziert werden (Gl. 2-3, Abb. 2-2 rechts).

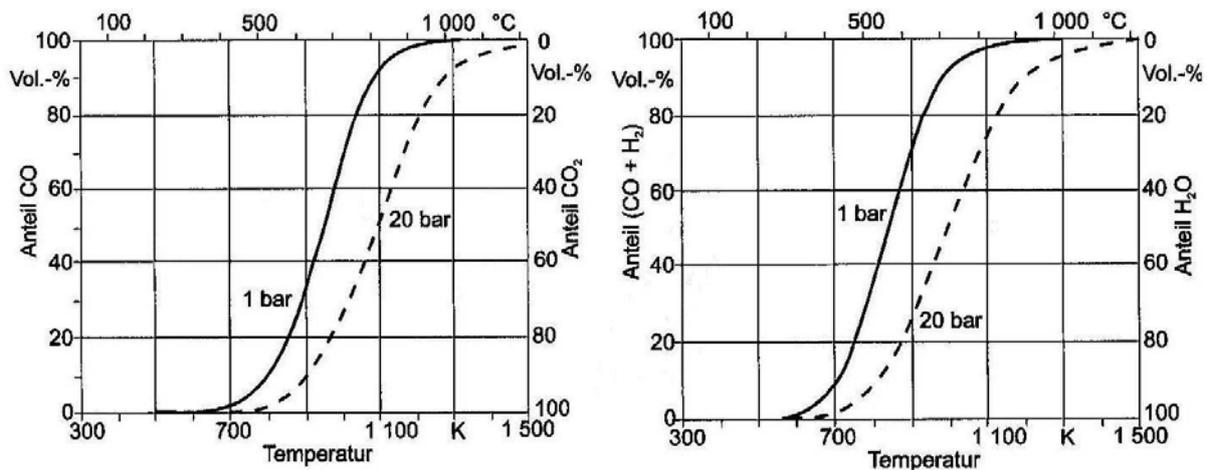


Abb. 2-2: CO/CO₂-Gleichgewicht der Boudouard-Reaktion (links) und H₂O/CO/H₂-Gleichgewicht der heterogenen Wassergas-Reaktion (rechts) [30]

Minderungsansätze. Aus diesen grundlegenden Betrachtungen zu den Einflussfaktoren Luftüberschuss, Durchmischung und Verweilzeit sowie letztlich auch der vorhandenen Temperaturen ergeben sich folgende Erkenntnisse zur Minimierung der Schadstoffbildung:

- Holz weist wie andere Biomassen einen hohen Anteil an Flüchtigen auf. Entsprechend ist eine Trennung von Pyrolyse- und Vergasungszone mit der Zugabe von Primärluft und der Verbrennungszone mit Zugabe der Sekundärluft empfehlenswert. Dadurch kann auch die Neubildung von CO durch den Kontakt mit Kohlenstoff in der Ausbrandzone vermindert werden.
- Für einen optimalen Ausbrand ist das Sauerstoffangebot in der Verbrennungszone einzustellen und möglichst automatisch entsprechend der sich ändernden Verbrennungsbedingungen nachzuregeln.
- Mit zunehmender Temperatur der Gase steigt deren Viskosität und die Durchmischung wird erschwert. Da die Oxidationsreaktion bei über 850 °C sehr schnell abläuft, ist der entscheidende Faktor eine gute und schnelle Durchmischung. Dazu sind hohe Einströmgeschwindigkeiten der Sekundärluft, starke Turbulenzen sowie Vermischungseinrichtungen in der Brennkammer mögliche Ansätze.
- Für eine vollständige Verbrennung ist außerdem eine ausreichende Verweilzeit bei hohen Temperaturen erforderlich (0,5 s bei über 850 °C), ohne rasche Abkühlung (z. B. unisolierte Sichtscheiben) oder kalte Zonen im Brennraum. Hierzu muss der Brennraum so gestaltet werden, dass das Brennraumvolumen möglichst vollständig ausgenutzt wird, es nicht zu Rückströmzonen oder undurchströmten Zonen kommt und das Verweilzeitspektrum der Gase möglichst eng gestaltet ist. Sinkt die Temperatur auf 600 °C, steigt die notwendige Verweilzeit selbst bei guten Durchmischungsverhältnissen bereits auf 2 bis 4 Sekunden an [30].
- Zur Vermeidung einer CO-Neubildung muss die Temperatur nach der Brennkammer schnell abgesenkt werden [32], auch sind die Oberflächen nach der Brennkammer frei von elementarem Kohlenstoff zu halten [30].

Insgesamt gilt es also die Gasverweilzeit, die Verbrennungstemperatur, die Gasdurchmischung und das Sauerstoffangebot optimal einzustellen [30].

2.2.2 Feinstaub

Der Begriff Feinstaubemission beschreibt die Emission von festen und flüssigen Teilchen (Partikel und Tröpfchen), die direkt aus den Verbrennungsprozessen freigesetzt werden (primäre Teilchen) oder in der Atmosphäre aus Vorläufersubstanzen wie SO_2 und NO_x gebildet werden (sekundäre Teilchen). Die Feinstaubbildung scheint sich in Biomassefeuerungsanlagen im Wesentlichen auf vier Wegen abzuspielen. Demnach können Aerosole aufgrund vollständiger und unvollständiger Verbrennung, aber auch durch Mitreißen von Partikeln aus dem Brennstoff oder der Asche entstehen (Abb. 2-3). Die Bildungsmechanismen werden nachfolgend kurz strukturiert.

2.2.2.1 Feinstäube aus dem Brennstoff

Bildung. Bei hohen Geschwindigkeiten der Luftströmung in der Feuerung, Brennstoffen mit niedriger Dichte, oberem Abbrand und nicht ausreichender Durchmischung von Verbrennungsluft und Brennstoff sowie nicht durchgängig ausreichenden Verbrennungstemperaturen können Teile des Brennstoffs mit dem Gasstrom mitgerissen werden, un- oder nur teilverbrannt den Kessel verlassen und in die Atmosphäre gelangen.

Eigenschaften. Die Größe derartiger Partikel liegt deutlich über $1\ \mu\text{m}$ (typischerweise bei Holzfeuerungen $>10\ \mu\text{m}$) und kann mehrere Millimeter erreichen. Da sie alle Inhaltsstoffe des Brennstoffs aufweisen können, erhöhen sie den Kohlenstoffanteil im Staub deutlich. Im Extremfall kommt es im unmittelbaren Umfeld des Kamins zu Ablagerungen von deutlich sichtbaren Partikeln mit faserartigen Strukturen, die den ursprünglichen Brennstoff noch erahnen lassen [30].

Minderung. Das Mitreißen größerer Partikel aus dem Glutbett ist auch bei modernen Feuerungsanlagen – trotz der bisherigen Verbesserungen [34] – bis zu einem bestimmten Maß unvermeidbar. Treten diese Partikel auf, sind sie ein Indiz für eine grundsätzliche Störung der Verbrennung, entweder durch einen behebbaren Defekt oder einen Konstruktionsmangel, der die Feuerungsanlagen für den gewählten Brennstoff ungeeignet macht.

2.2.2.2 Feinstäube aus unvollständiger Verbrennung

Bildung. Aerosole aus der unvollständigen Verbrennung entstehen, wenn die bei der pyrolytischen Zersetzung entstehenden Kohlenstoffverbindungen im Brennraum nicht vollständig oxidiert werden. Dabei wird zwischen den kohlenstoff(C)-haltigen festen oder flüssigen Zersetzungsprodukten sowie C-haltigen festen Syntheseprodukten unterschieden.

- **C-haltige Zersetzungsprodukte.** Sie entstehen bei der pyrolytischen Zersetzung des Brennstoffs aufgrund des hohen Flüchtigkeitsanteils der Biomasse und bilden sich durch die thermo-chemische Fragmentierung der polymeren Holzbestandteile Cellulose, Hemicellulose und Lignin. Diese Pyrolyseprodukte können in das Abgas gelangen, wenn z. B. die Vermischung mit Sauerstoff, die Verweilzeit oder die Temperatur im Brennraum ungenügend sind, so dass kein vollständiger Ausbrand stattfindet. Da Holz keine polyzyklischen aromatischen Verbindungen aufweist - lediglich im Lignin gibt es aromatische Strukturen [3] – entstehen auf diesem Weg keine polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK).

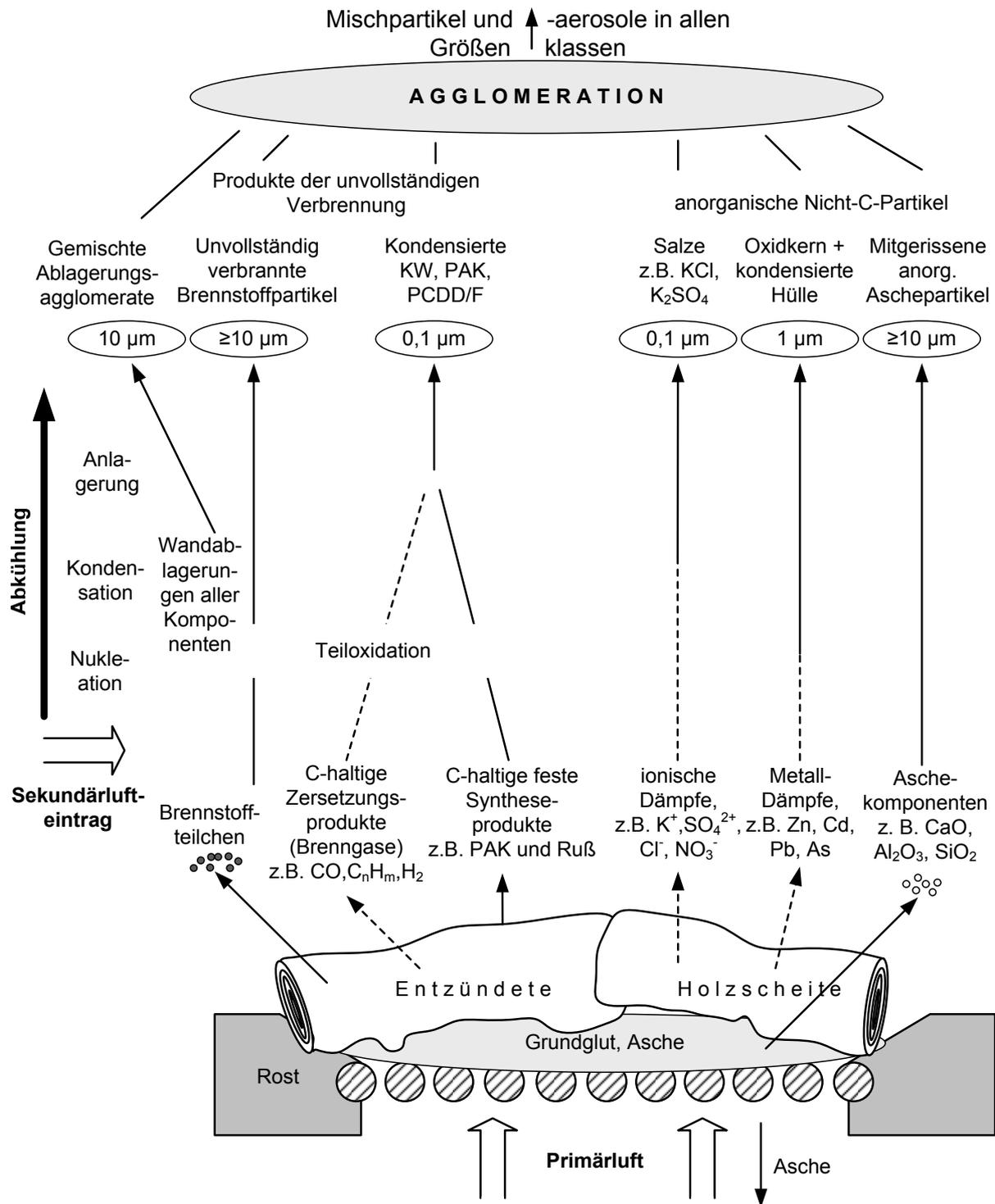


Abb. 2-3: Schematische Darstellung der Partikelbildung von naturbelassenem Holz in Feuerungen [33]; KW .. Kohlenwasserstoffe; gestrichelte Linien .. gasförmige Komponenten; durchgezogene Pfeile .. Partikel und Aerosole

- **C-haltige feste Syntheseprodukte.** Diese bilden sich in der Flamme durch Agglomeration kleinster Kohlenstoff-Cluster, welche ihrerseits aus Fragmenten von z. B. Ethin (C₂H₂) entstehen. Lagern sich diese Verbindungen an die aus der pyrolytischen Zersetzung vorhandenen monozyklischen Ringstrukturen an, können neue Ringe gebildet werden. Dadurch entstehen in brennstoffreichen Zonen der Flamme bei hohen Temperaturen

(500 bis 2 000 °C [35]) z. B. polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe mit einem möglichen Bildungsmaximum im Temperaturbereich von 750 bis 850 °C [3]. Geraten die PAK vor der vollständigen Oxidation in heißen sauerstoffreichen Zonen der Flamme in kältere Zonen (z. B. kalte Wände des Brennraums), wird der Abbau unterbrochen und sie werden emittiert [36]. Nach der Bildung der PAK adsorbieren diese teilweise an vorhandenen kleinen Partikeln. Je flüchtiger die PAK sind – v. a. Anthracen und Pyren - (Ausnahme Fluoranthen), desto leichter desorbieren sie mit sinkendem Dampfdruck im Abgasstrom und kondensieren ggf. auf größeren Partikeln, da hier der Oberflächendampfdruck entsprechend geringer ist [37]. Wachsen gasförmige PAK in heißen sauerstoffarmen Zonen weiter an, entstehen Makromoleküle, die feinste Partikel bilden können und durch Agglomeration immer weiter wachsen und somit Ruß bilden [30]. Die Rußbildung läuft v. a. über die Entstehung stabiler PAK ab. Von diesen kann dann ein Wasserstoffatom abgelöst werden und über die Anlagerung von Ethin- (C_2H_2) oder Ethen- (C_2H_4) Molekülen kommt es zum weiteren Wachstum bis zu einem Rußkeim mit einer Größe von rund 1 nm. Neben den weiter ablaufenden Oberflächenreaktionen, die neben dem Wachstum auch zu einem Abbau über die Oxidation mit Sauerstoff oder OH-Radikale führen kann, kann es durch Zusammenstöße zur Teilchenkoagulation oder durch das Aneinanderheften (Teilchenagglomeration) zu kettenartigen Verbindungen kommen. Die Rußbildung wird durch ungenügende Luftzufuhr, ungleichmäßige Entzündung und schlechte Durchmischung von Brennstoff und Luft begünstigt [38], [39], [40].

Unter schlechten Verbrennungsbedingungen in einfachen Holzfeuerungen können beträchtliche Mengen unverbrannter Kohlenstoffverbindungen emittiert werden [41], [42], [43], [44], [45], [46], [47], [48], [49], [50], [51].

Eigenschaften. Die Größe der Partikel und Tröpfchen, die Produkte der unvollständigen Verbrennung enthalten, variiert in einem weiten Bereich, da diese Produkte selbst je nach Verbrennungsbedingungen sehr unterschiedlich zusammengesetzt sein können und da sie sich zusätzlich an den verschiedensten im Aerosol vorhandenen Komponenten anlagern können. Die primären Rußpartikel haben eine Größe von z. B. 10 nm [52], [53].

Die als Staub erfassbaren Teilchen und Tröpfchen können in organischen Kohlenstoff, der in einem Temperaturfenster von 80 bis 620 °C verdampfbar ist, und in elementarem Kohlenstoff (einschließlich Carbonate) unterschieden werden [54]. Als toxikologisch besonders relevante Untergruppe des organischen Kohlenstoffs sind die PAK anzusehen.

Korrelationen. Bei einer sehr niedrigen Verbrennungsqualität mit hohen Temperaturen im Brennraum und zumindest partiellem Sauerstoffmangel könnte der Anteil an EC am Gesamtkohlenstoff im Abgas größer sein als bei einer nur leicht gestörten Verbrennung; da bei höheren Temperaturen und fehlendem Sauerstoff OC stärker abgebaut werden kann als EC. Gleichzeitig entstehen verstärkt PAK und in der Nachfolge möglicherweise auch mehr EC, so dass auch die Bildung von EC verstärkt ist. Da unter diesen Bedingungen auch der CO-Abbau gestört sein kann, deutet sich in diesem Fall eine Proportionalität zwischen EC und CO an [55].

Untersuchungen an Abgasen aus der offenen Verbrennung verschiedener biogener Festbrennstoffe zeigen, dass es drei Gruppen von PAK gibt, die jeweils untereinander gut korrelieren, es aber kaum Korrelationen zwischen den Gruppen gibt [56]:

1. Acenaphthylen, Fluoren, Phenathren, Anthracen (flüchtig)
2. Fluoranthen, Pyren, Benzo[a]anthracen, Chrysen, Benzo[g,h,i]perylen (halbflüchtig)

3. Benzo[b]fluoranthen, Benzo[k]fluoranthen, Benzo[a]pyren, Benzo[e]pyren, Perylen, Indeno[1,2,3-c,d]perylene (nicht-flüchtig).

Es besteht die Vermutung, dass zumindest bei hohen CO-Gehalten im Abgas eine gute Korrelation zwischen CO und den PAK besteht (z. B. [32]). Da jedoch für die PAK-Synthese ein Maximum bei z.B. über 600 °C vermutet wird, bei höheren Temperaturen der CO-Ausbrand jedoch in der Regel besser ist, darf keine allgemeingültige Korrelation vorausgesetzt werden. Das Gleiche gilt für Korrelationen zwischen C_nH_m und PAK [31]. Zwischen den PAK und den kondensierbaren Kohlenwasserstoffen (OC) sollte keine eindeutige Korrelation bestehen, da diese bei hohen Temperaturen besser abgebaut und zu leichtflüchtigen Komponenten umgewandelt werden, während bei diesen Bedingungen die PAK-Bildung begünstigt sein kann [57].

Minderung. Die Feinstäube aus der unvollständigen Verbrennung der Biomasse sind vermeidbar. Dazu müssen insbesondere alle Störungen des Verbrennungsprozesses unterbunden werden. Brennstoffseitig sind dazu nicht zu hohe Wassergehalte [3] und eine an die Feuerung angepasste Stückigkeit inkl. der Oberflächenbeschaffenheit von besonderer Relevanz [58], [59].

Der Nutzer von Kaminöfen hat bei den heutigen Anlagen einen erheblichen Einfluss auf die Qualität der Verbrennung und damit auf die Emission von Feinstäuben. Zunächst wählt er die eingesetzten Brennstoffe aus. Obligatorisch sollte die ausschließliche Nutzung von ausreichend getrocknetem naturbelassenem Holz ohne Verunreinigungen sein. Daneben führen ein ungeeignetes Anzündverfahren – hier hat sich mittlerweile das Anzünden von der Spitze des Brennstoffstapels als vorteilhafteste Variante erwiesen (Anhang 1) - sowie Fehlbedienungen der Luftklappen zu erhöhten Emissionen. Auch falsche Brennstofffüllmengen haben sich als Quellen zusätzlicher Feinstaubemissionen erwiesen [25], [58].

Als technische Maßnahmen für einen ungestörten Verbrennungsprozess sind folgende Aspekte zu beachten:

- Dichtheit der Konstruktion (insbesondere der geschlossenen Tür) auch nach Aufheizung
- Qualität der Schamottierung der Brennkammer (eingepasst und abgedichtet oder nur lose eingelegt)
- Ausgestaltung des Rostes sowie der Primärluftkontrolle
- Anordnung der Sekundärluftzufuhr (über Düsen auf etwa ein Drittel bis ein Halb der Brennkammerhöhe oder über Fronttür/Scheibe sowie Turbulenzgeber)
- verminderte Wärmeverluste über die Sichtscheibe
- Abgasschikanen und Reinigungsöffnungen
- außen liegende Wärmespeicherflächen
- Brennkammerform und Größe im Vergleich zur vorgesehenen Last
- mechanische Regelung der Primärluft (Bimetall).

Für die Zukunft scheint die Abkehr vom stromlosen Betrieb unvermeidbar [60], um auch Einzelfeuerstätten in allen Phasen des Abbrandzyklus mit akzeptablen Emissionen betreiben zu können. Wesentliche bekannte Verbesserungsmöglichkeiten in Verbindung mit einem Stromanschluss [35] liegen in der Möglichkeit,

- Temperaturen und Stoffkonzentrationen im Abgas messen zu können
- anhand dieser Messungen Regeleinstellungen berechnen zu können
- Primär- und Sekundärluft elektromechanisch einstellen zu können

- ein zusätzliches Saugzuggebläse (z. B. auf dem Schornsteinkopf) betreiben zu können
- eine Abgasrückführung ansteuern zu können
- akustische Warnsignale bei Fehlbetrieb abgeben zu können
- ggf. eine automatische Nachführung von Brennstoffstücken zu ermöglichen.

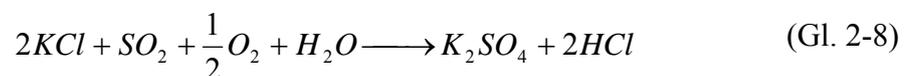
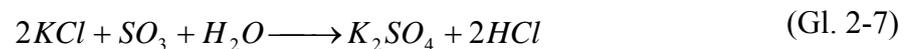
Einige dieser Ansätze sind in verschiedenen Entwicklungsprojekten bereits in der Erprobung und zeigen positive Ergebnisse [25], [61]. Vereinzelt gibt es technische Weiterentwicklungen mit unterem Abbrand [62], der bei vorschriftsmäßigem Betrieb die Feinstaubemissionen um rund 30 bis 50 % im Vergleich zu marktüblichen Modellen mindern kann [63].

Ziel muss es sein, in der Anbrennphase schnell die Temperatur zu erhöhen (Primärluft), in der Hauptverbrennungsphase den Brennstoffumsatz zu stabilisieren (Primärluft vermindern und Sekundärluft so zu dosieren, dass Sauerstoffmangel vermieden wird) und in der Ausbrandphase möglichst lange einen hohen Brennstoffumsatz bei hohen Temperaturen aufrecht zu erhalten (Primärluft erhöhen und Sekundärluft anpassen) [35].

2.2.2.3 Feinstäube aus vollständiger Verbrennung

Bildung. Bei den Aerosolen aus vollständiger Verbrennung handelt es sich um nicht-kohlenstoffhaltige Bestandteile des Brennstoffs, die nach einer Fragmentierung und Verdampfung des Brennstoffpartikels bei wieder sinkenden Temperaturen über die Nukleation¹ mit anschließender Koagulation sowie die direkte Kondensation² entstehen [64], [65], [66], [67], [68]. Ihre Bildung hängt neben den vorhandenen nicht-kohlenstoffhaltigen Inhaltsstoffen des Brennstoffs stark vom Sauerstoffangebot und der Temperatur im Glutbett ab. Bei Biomassefeuerungen gibt es vor allem zwei Bildungspfade:

- **Salze.** Während der Verbrennung bilden sich aus den Elementen Kalium, Chlor und Schwefel HCl(g) und SO₂ sowie oberhalb von 1 200 °C KOH(g). Bei einer Abkühlung der Gase reagieren KOH(g) und HCl(g) zu KCl, das bei diesen Temperaturen stabiler ist. Außerdem wird zwischen 820 bis 1 000 °C SO₂ zu SO₃ oxidiert (Gl. 2-6), wobei das gebildete SO₃ sofort zu Kaliumsulfat (K₂SO₄) umgewandelt wird (Gl. 2-7). Die beiden Reaktionen laufen parallel ab und können als Gl. 2-8 zusammengefasst werden [69].



¹ Unter der Nukleation wird bei der Feinstaubbildung das Wachstum einer Ansammlung von Molekülen, eines sogenannten Clusters zu einem Kern, bezeichnet. Dieser Vorgang ist abhängig vom Dampfdruck der kondensierbaren Spezies. Der Molekülcluster beginnt zu wachsen, sobald die Sättigungsgrenze überschritten ist und damit der Dampfdruck des Gases lokal den Gleichgewichtsdampfdruck übersteigt; d. h. einen Sättigungsgrad als Verhältnis von Partialdruck zu Sättigungspartialdruck von größer 1 erreicht [30].

² Kondensation tritt in einem übersättigten Medium als Resultat eines Zusammenstoßes zwischen einem Gasmolekül und einem bereits existierenden partikulären Keim auf. Da Kondensation - im Unterschied zur Nukleation - bereits bei sehr geringer Übersättigung in einem relevanten Maß auftritt, ist sie der dominierende Bil-

Unterhalb von 1 070° C liegt K_2SO_4 als Feststoff in Form sehr kleiner Partikel vor. Für Kaliumchlorid ist die heterogene Kondensation bevorzugter als die homogene Nukleation. Es kann aber bei niedrigerer Temperatur selber auch Kondensationskeime bilden und erstarrt erst bei niedrigeren Temperaturen als K_2SO_4 [70].

- **Metalle und Metalloxide.** Zink wird unter den im Glutbett vorherrschenden reduzierenden Bedingungen als elementares Zn gasförmig freigesetzt. Nach der Oxidation zu ZnO kommt es schnell zu einer Übersättigung und Nukleation als Partikel [36]. Insbesondere Cadmium, Zink, Blei, Arsen und Selen sind relativ leicht flüchtig und kondensieren in der Abkühlphase an den Staubpartikeln [71]. Bei sauerstoffreicher Verbrennung kann Chrom als krebserregende Chrom-VI-Verbindung emittiert werden [35].

Da der Anteil an Produkten der vollständigen Verbrennung und die Bedeutung von Schwermetallen aus naturbelassenem Holz für Kaminöfen eine eher untergeordnete Rolle zur Beurteilung der Staubemissionen und deren toxikologischer Relevanz spielen, wird hier nicht tiefergehend auf die Bildungsmechanismen der Nicht-Kohlenstoff-Stäube eingegangen.

Eigenschaften. Durch Wachstumsprozesse im Anschluss an die ursprüngliche Bildung können die Partikel und Tröpfchen Größen zwischen 0,1 und 1 μm haben [30]. Weitergehende Untersuchungen an Holz-Feuerungsanlagen mit deutlich mehr als 300 kW_{th} zeigen, dass die Hauptaschebildner K zu 16 bis 36 %, Zn zu 30 bis 82 %, S zu 87 bis 93 % und Cl zu 97 bis 99 % in Stäuben freigesetzt werden. Auch Pb wird mit 80 bis 100 % fast vollständig im Feinstaub wiedergefunden [72].

Häufig haben KCl (unterhalb von 760 °C fest [30]) und K_2SO_4 zusammen einen Anteil von 80 bis 90 % der gesamten anorganischen Aerosolfracht [73]. Das Verhältnis zwischen diesen beiden Verbindungen, das vom Verhältnis von Cl zu S abhängt [74], ist insofern von Bedeutung, als bei der Umwandlung von KCl und SO_2 zu K_2SO_4 in der Feuerung HCl freigesetzt wird [75]; letzteres tritt als toxische, gasförmige Emission auf und fördert zudem die Hochtemperaturchlorkorrosion [76].

Minderung. Zurückzuführen sind die Emissionen der vollständigen Verbrennung von Biomasse vor allem auf die Pflanzennährstoffe Stickstoff (N), Kalium (K), Phosphor (P), Kalzium (Ca), Magnesium (Mg) und Schwefel (S) sowie einiger der Spurenelemente Chlor (Cl), Natrium (Na), Silizium (Si), Eisen (Fe), Aluminium (Al), Mangan (Mn), Zink (Zn), Kupfer (Cu), Molybdän (Mo), Kobalt (Co), Chrom (Cr), Kadmium (Cd), Blei (Pb), Nickel (Ni), Quecksilber (Hg) und Arsen (As) [30], [32]. Der Anteil der aschebildenden Inhaltsstoffe hängt vom Brennstoff selbst, aber auch von möglichen Verunreinigungen ab.

Bei weitgehend vollständiger Verbrennung kann durch geminderte Mengen an aschebildenden Inhaltsstoffen [32] und in differenzierterer Form z. B. einer geminderten Menge an Inhaltsstoffen an K, Na, S und Cl im Brennstoff die Menge an Staubemissionen aus der vollständigen Verbrennung reduziert werden [14]. Die Menge der Emissionen hängt bei gleichen Brennstoffen aber auch von einer optimierten Verbrennungstechnik ab [14].

Neben der absoluten Mengen können die Feinstaubemissionen tendenziell auch durch ein verkleinertes Verhältnis von K/Si, Ca/K und S/Cl gemindert werden. Außerdem gibt es Hinweise dafür, dass bei einem molaren Verhältnis von $(K+Na)/(2S+Cl)$ deutlich größer eins der Anzahlanteil an K und S in den Feinstaubfraktionen kleiner 250 nm deutlich erniedrigt ist im Vergleich zu kleineren Molarverhältnissen, während gleichzeitig der Anzahlanteil an

dungsprozess in einem übersättigten Medium, sofern bereits Kondensationskerne in ausreichender Menge vorhanden sind [30].

Natrium, Chlor und Zink steigt. Bei höheren Molverhältnissen verbleiben K und Na in Form von Sulfaten und Chloriden verstärkt in der Bodenrasche. Insgesamt können sich dann um bis zu 25 bis 33 % niedrigere Gesamtfinstaubemissionen ergeben [77].

2.2.2.4 Feinstäube durch Mitreißen von Aschekomponenten

Bildung. In der Feuerung können Aschepartikel als Feststoffe mit dem Primärluftstrom aus dem Glutbett mitgerissen werden [30].

Eigenschaften. Diese Partikel haben häufig einen aerodynamischen Durchmesser um 1 µm [30]. Dabei handelt es sich vor allem um schwerflüchtige, mineralische Holzraschebestandteile wie z. B. CaO, CaCO₃, Al₂O₃, MgO, FeO, Fe₂O₃ und SiO₂ [78].

Minderung. Das Mitreißen hängt ab u. a. von der Feuerraum- und insbesondere der Glutzonegestaltung sowie den Strömungsverhältnissen in der Glutzone und den eingesetzten Brennstoffen bzw. den damit eingetragenen Verunreinigungen (z. B. Anteil an schwerflüchtigen Bestandteilen wie Sand und Erde). Werden sie nicht innerhalb der Feuerung wieder abgetrennt, tragen sie zur Gesamtfinstaubemission bei [30].

2.2.2.5 Partikelwachstum

Neben den beschriebenen Bildungsmechanismen ist bei der Feinstaubentstehung auch das Partikelwachstum zu betrachten. Durch Koagulation von Partikeln, welche aufeinanderstoßen und durch Oberflächenkräfte aneinander haften bleiben, erfolgt ein Korngrößenwachstum bereits gebildeter Aerosolbestandteile.

Im Unterschied zur Koagulation tritt bei der Koaleszenz ein Aufschmelzen der Partikel auf, das ebenfalls zu einem Korngrößenwachstum führt [79].

3 Methodik der Messung, Charakterisierung und Bewertung

In diesem Kapitel werden die methodischen Grundlagen zur Aufnahme von Versuchsdaten durch Messen zur Charakterisierung von gasförmigen Emissionen und Stäuben durch chemische Analysen und zur Bewertung der Daten aus den durchzuführenden Versuchsvariationen am Kaminofen erarbeitet.

3.1 Messung

3.1.1 Versuchsprogramm

Im Folgenden werden kurz die verwendete Feuerung, die eingesetzten Brennstoffe und der Versuchsplan mit den zu betrachtenden Betriebsvariationen vorgestellt.

3.1.1.1 Feuerung

Soll der Stand der heute marktüblichen Kaminöfen abgebildet werden, ergeben sich folgende Anforderungen an Bauart und Emissionsobergrenzen der zu betrachtenden Feuerungsanlage:

- Oberer Abbrand
- Einsatz eines Rostes zur Zuführung der Primärluft und zur Entaschung
- Einhaltung der Emissionsgrenzen des DIN_{plus}-Gütesiegels³.

Für die Versuche wurde der Kaminofen vom Typ KK 50 F Moon mit einer für den derzeitigen Einsatz typischen Nennwärmeleistung von 7 kW ausgewählt. Er erfüllt alle oben angegebenen Forderungen. Mit Anschaffungskosten von rund 3 000 € gehört er zum oberen Preissegment der Kaminöfen. Er weist eine qualitativ hochwertige Ausführung auf. Mit einer getrennten Sekundärluftzugabe in den Brennraum und einer Tertiärluftzugabe am oberen Ende der Brennkammer (Abb. 3-1) ist er für eine gute Verbrennung teiloptimiert. Ohne automatische Luftregelung gehört er zu den typischerweise heute am Markt abgesetzten Gerätetypen.

Der Feuerraum ist aus Vermiculit, Stahl und Guss aufgebaut. Der Ofen besitzt einen Feuerrost aus Guss und eine separate Verbrennungsluftzuleitung. Die selbstschließende Feuerraumtür ist aus Stahlblech mit einer integrierten Sichtscheibe. Brennstoffzufuhr, Zündung und Entaschung erfolgen manuell über die Fronttür. Die maximale Brennstoffauflage beträgt laut Hersteller 2,5 kg. Die Luftmenge wird ebenfalls manuell eingestellt. Neben dem Sekundärluftschieber zur Luftmengenregelung gibt es einen Brennstoffwähler zur Anpassung an die zugelassenen Brennstoffe: Scheitholz, Holzbriketts und Braunkohlebriketts.

³ Derzeit gültige Grenzwerte des DIN_{plus}-Gütesiegels des DIN CERTCO für Abgas im Normzustand bei 13 % Luftsauerstoffgehalt: CO ≤ 1.500 mg/Nm³; NO_x ≤ 200 mg/Nm³; Ges.-C ≤ 120 mg/Nm³; Staub ≤ 75 mg/Nm³; Wirkungsgrad > 75 % [80]

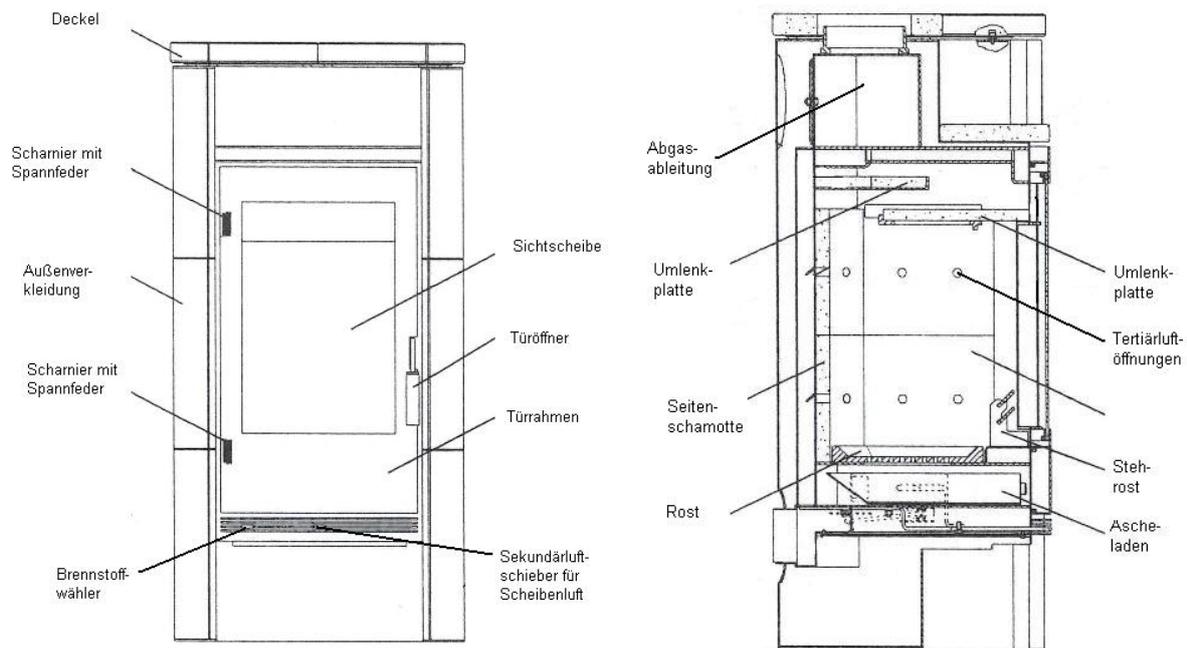


Abb. 3-1: Kaminofen KK 50 F („Moon“) Außen- und Innenansicht [81]

3.1.1.2 Untersuchte Brennstoffe

Regulär werden Kaminöfen bisher nahezu ausschließlich mit Holzbrennstoffen betrieben. Um den Einfluss der Inhaltsstoffe der Brennstoffe abschätzen zu können, werden neben Buchenholzscheiten auch Fichte, Birke und Fichte ohne Rinde als Scheite gehackt eingesetzt.

Die Analyse der Inhaltsstoffe wird nach den gängigen Normen durchgeführt. Tabelle 3-1 zeigt, dass die eingesetzten Brennstoffe bezogen auf die Masse sehr vergleichbare Heizwerte aufweisen. Bezüglich der Elementarzusammensetzung ergeben sich beim Kohlenstoffgehalt nur geringfügig höhere Anteile beim Fichtenholz im Vergleich zum Laubholz. Auffällig sind bei den Spurenstoffen die niedrigen Chlorgehalte beim Fichtenholz ohne Rinde und der sehr niedrige Wert bei der Birke (Tabelle 3-2). Insgesamt weisen die Fichtenbrennstoffe rund zweimal so hohe Gehalte an Silizium auf als die verwendeten Laubhölzer.

Die zwei Proben des Buchenscheitholzes zeigen die Schwankungsbreiten der Inhaltsstoffe auch innerhalb einer Holzart.

Wesentliche Unterschiede zeigen sich bei den untersuchten Brennstoffen vor allem beim Aschegehalt. Dieser variiert zwischen Birke und Fichte auf insgesamt niedrigem Niveau um fast 50 %. Deutliche Unterschiede zeigen sich auch zwischen Fichte und Fichte ohne Rinde. Hier bestätigt sich, dass viele der Spurenstoffe (Cl, Ca, Cr, Zn, Mn, Fe) verstärkt in der Rinde vorkommen und weniger im Kernholz. Der grundsätzliche Unterschied in den Si-Gehalten zwischen Buchen- und Birkenscheitholz auf der einen Seite und dem Fichtenscheitholz auf der anderen Seite ist sehr wahrscheinlich den unterschiedlichen Aufwuchsstandorten geschuldet. Fichte wächst typischerweise auf Sandböden, während Laubbäume häufig auf weniger sandigen Böden stehen.

Tabelle 3-1: Heizwert, Kohlenstoff-, Wasserstoff-, Stickstoff-, Schwefel- und Aschegehalt der verwendeten Versuchsbrennstoffe⁴ [16]

Brennstoff	Kurzbezeichnung	Heizwert H _u kJ/kg (TS)	C %	H %	N %	S %	Asche %
Buchenscheitholz 1	BuSH1	18540	49,7	6,0	0,19	0,04	0,45
Buchenscheitholz 2	BuSH2	18430	49,6	5,8	0,24	0,04	0,68
Birkenscheitholz	BiSH	18770	49,9	6,2	0,25	0,04	0,64
Fichtenscheitholz	FSH	18810	50,6	6,1	0,21	0,03	0,44
Fichtenscheitholz ohne Rinde	FSHoR	19000	50,8	6,2	0,2	0,03	0,31

Tabelle 3-2: Weitere Elementgehalte der eingesetzten Versuchsbrennstoffe⁴ [16], [82]

Brennstoff	Cl mg/kg	K mg/kg	Mn mg/kg	Cd mg/kg	Pb mg/kg	Cr Mg/kg	Cu mg/kg	Zn mg/kg	Si mg/kg
Buchenscheitholz 1	917	120	156	< 0,4	< 5	< 5	< 2	4	668
Buchenscheitholz 2	1050	927	182	< 0,4	< 5	< 5	< 2	6	660
Birkenscheitholz	< 20	402	280	< 0,4	< 5	< 5	< 2	44	516
Fichtenscheitholz	1350	387	391	< 0,4	< 5	36	< 2	15	1260
Fichtenscheitholz ohne Rinde	282	323	180	< 0,4	< 5	< 5	< 2	6	1480

3.1.1.3 Versuchsaufbau

Abb. 3-2 zeigt den verwendeten Prüfstand mit den entsprechenden Entnahmestellen und Messgeräten. Der Aufbau erfolgt in Anlehnung an VDI 2066 [83]. Durch eine Verjüngung des Abgasrohres nach dem Kamin auf 64 mm kann eine ausreichend Strömungsgeschwindigkeit erreicht werden. Durch die Zugabe von Verdünnungsluft ist die Erfassung der meisten kondensierbaren Kohlenwasserstoffe mit der gravimetrischen Staubentnahme möglich [16].

Bei dem gewählten Prüfstands-aufbau werden die gasförmigen Bestandteile der Verbrennungsrückstände im vertikalen unverdünnten Abgasweg entnommen und den Gasanalysatoren zugeführt. Im verjüngten Rohrquerschnitt erfolgt die Staubprobenahme im unverdünnten Abgas. Anschließend wird das Abgas um 90° in die Horizontale umgelenkt. In diesem horizontalen Teilabschnitt wird über ein T-Stück kalte Außenluft im Überschuss zugespeist. Die Außenluft wird zuvor mit Hilfe eines Feinfilters (Filterklasse F7, Abscheidegrad >99 % bis Partikelgröße 5 µm und 98 % bis Partikelgröße 3 µm) von eventuell vorhandenen Partikeln gereinigt und mittels eines Fördergebläses über den offenen Eingang des horizontalen Abgasrohres geströmt (keine feste Verbindung). Das am Ende des Abgaswegs arbeitende Saugzuggebläse erzeugt im gesamten Abgasweg einen Unterdruck, durch den die kühle Verdünnungsluft am offenen T-Stück des Abgasrohres in den Abgasweg eingesaugt wird. Dabei wird je nach Ver-

⁴ Aufgrund eines erhöhten Verbrauchs im Vergleich zur ursprünglichen Versuchsplanung musste Buchenscheitholz in einer zweiten Charge beschafft werden [16]. Da die Emissionen in dieser Arbeit durch die Produkte der unvollständigen Verbrennung dominiert werden, sind die auffälligen Abweichungen bei Asche und Kalium nur bedingt relevant.

suchsbedingungen der bei der Verbrennung entstehende Abgasvolumenstrom zwei- bis fünffach verdünnt. Über die vor und nach der Verdünnungsluftzugabe parallel gemessene CO_2 -Konzentration kann das Verdünnungsverhältnis kontinuierlich bestimmt werden. Nach der Verdünnung liegt die Abgastemperatur meist zwischen 50 und 60 °C.

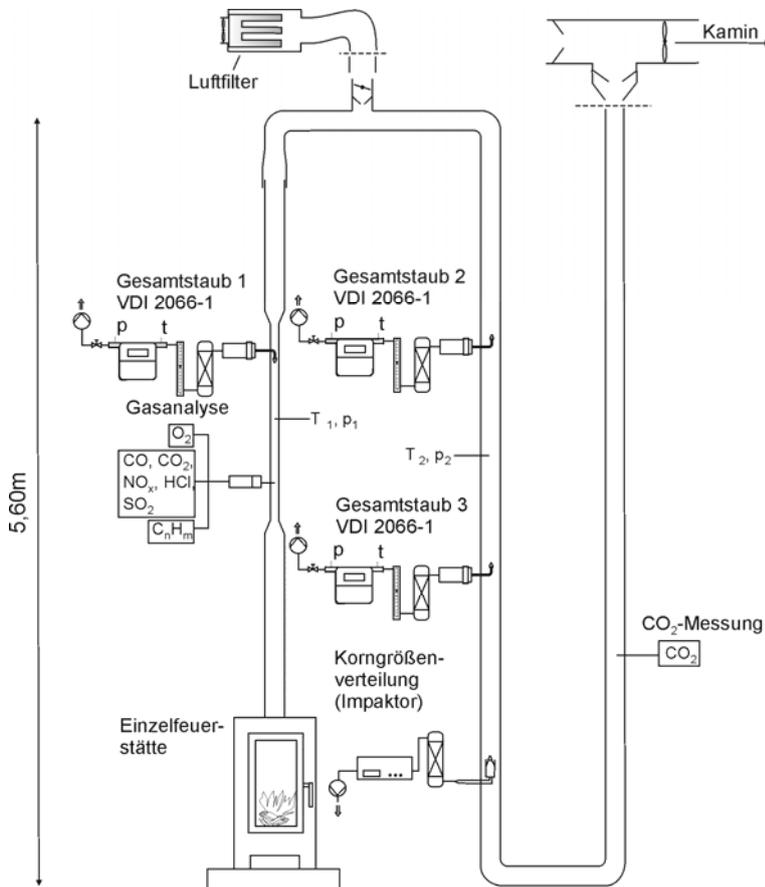


Abb. 3-2: Prüfstands Aufbau [16]

Neben der Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit und der weitgehend vollständigeren Erfassung aller Partikel ermöglicht die Verdünnung auch den Einsatz etwas größerer Rauchrohrdurchmesser, so dass auch größere Messköpfe und Entnahmesonden in das Rauchrohr eingebracht werden können [16].

Nach einer weiteren Umlenkung um 90° in die Vertikale wird im absteigenden Abgaskanal zunächst mit einem 45 mm-Filterkopfgerät und dann mit einem 50 mm-Filterkopfgerät die Staubemission gravimetrisch erfasst. Als letztes ist die Entnahmestelle für einen vierstufigen Kaskadenimpaktor vorgesehen. Danach wird der Abgasstrom erneut zweimal um 90° umgelenkt, um dann dem Schornstein zugeführt zu werden. In diesem aufsteigenden Abgasrohr wird die CO_2 -Messung im verdünnten Abgas vorgenommen, um das Verdünnungsverhältnis zu bestimmen.

3.1.1.4 Versuchsplan

Die Bildung von Schadstoffen bei der Verbrennung von Holz in einem Kaminofen wird vom Brennstoff, vom Bediener und von der Feuerungstechnik bestimmt. Einen Überblick über die wichtigsten beeinflussenden Parameter gibt Abb. 3-3.

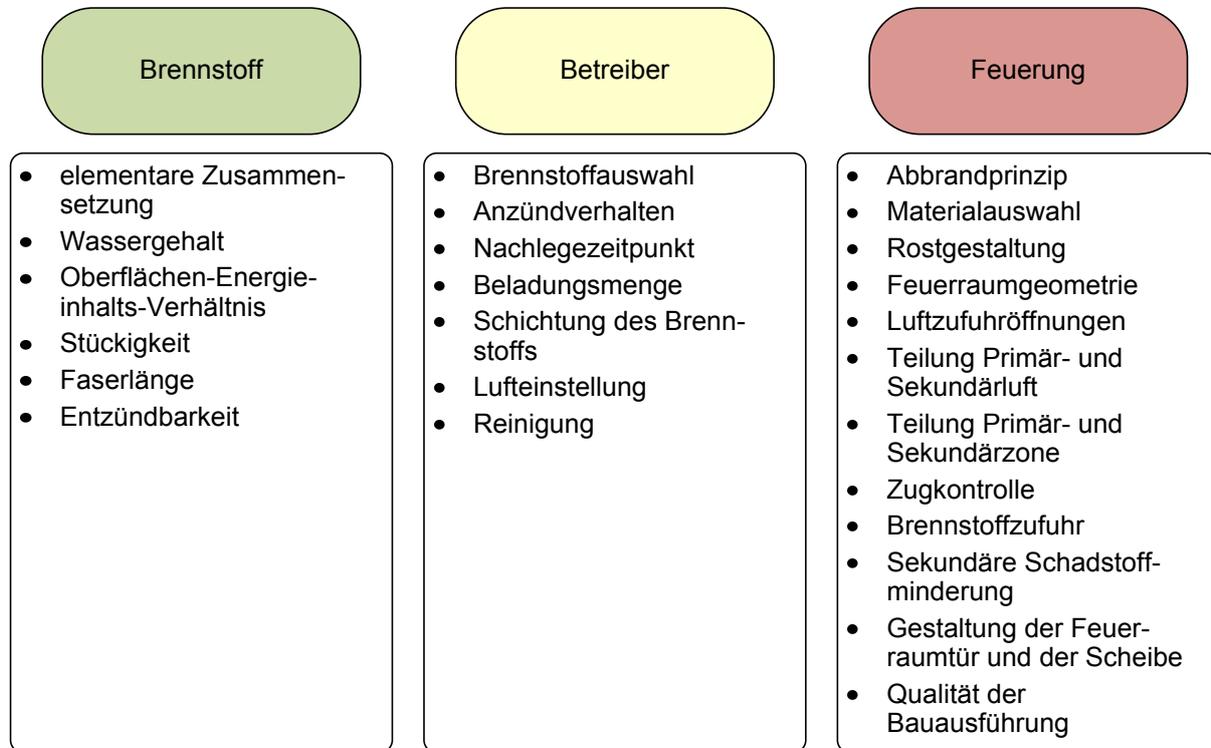


Abb. 3-3: Wesentliche Einflussparameter auf die Freisetzung von Schadstoffen aus einem mit Holz betriebenen Kaminofen

Ausgehend von den in Abb. 3-3 dargestellten Parametern erfolgt die Eingrenzung auf das Versuchsprogramm.

Brennstoff. Für die getesteten Holzbrennstoffe werden die Betriebsvariationen aus einer praxisorientierten Sichtweise gewählt; d. h., es werden die Parameter untersucht, die der Betreiber des Kaminofens bewusst einstellen kann. Daraus ergeben sich der Einfluss der elementaren Zusammensetzung über die gewählte Baumart, der Wassergehalt – vom Betreiber durch die Lagerung beeinflussbar – und die Stückigkeit des Brennstoffs. In der Kombination aus Stückigkeit und Baumart wird das Oberflächen-Energieinhaltsverhältnis der gewählten Holzauflagemenge bestimmt.

Die Faserlänge spielt bei Holz, eine ordnungsgemäße Einschichtung unterstellt, in Kaminöfen eine eher untergeordnete Rolle und kann zudem nicht losgelöst von anderen Parametern wie z. B. den Inhaltsstoffen untersucht werden. Daher wird sie im Folgenden genauso wenig betrachtet wie die Entzündbarkeit des Brennstoffs, da dieser u. a. stark von dem Wassergehalt und den Inhaltsstoffen abhängt. Zudem kann bei richtigem Betrieb eine rasche Entzündung von Holz mit geeignetem Wassergehalt und korrekt gewählter Luftzufuhr sichergestellt werden.

Betreiber. Im Hinblick auf den Betreiber ist die Frage der Brennstoffauswahl durch die Betrachtung von Holzart, Stückigkeit und Wassergehalt berücksichtigt. Es wird unterstellt, dass die eingesetzten Holzscheite in der Länge an den Feuerraum angepasst sind, so dass eine parallele Auflage der Scheite zueinander und zur Rückwand vorgegeben ist. Im Sinne der

Praxisnähe werden Holzscheite und keine normiert gesägten Kanthölzer mit definierten Auflageabständen (z. B. norwegische Prüfnorm [84]) eingesetzt. Zu berücksichtigen ist, dass dadurch die absolute Reproduzierbarkeit der Versuchsergebnisse sinkt, der gewonnene Mittelwert aber näher an der Realität liegt. Im Laborbetrieb ist eine Ascheentnahme nach jeder Versuchsreihe obligatorisch. Besondere Reinigungseinrichtungen oder leicht zugängliche Staubabsatzzonen haben marktübliche Kaminöfen nicht. Die Wände des Brennraums sollten sich bei einem vorgesehenen Betrieb selbst abreinigen. Insoweit lassen sich Reinigungseffekte hier nur sehr bedingt untersuchen und werden daher nicht weiter berücksichtigt.

Der Anzündvorgang hat einen kontrovers diskutierten Einfluss auf die Gesamtstaubemissionen. Zwar treten sehr hohe spezifische Emissionen auf, doch ist der Massenstrom an Abgas sehr gering, so dass vermutet wird, dass die absolute Emissionsmenge klein ist. In der Anzündphase von Kaminöfen liegt aber typischerweise eine unvollständige Verbrennung mit entsprechenden toxikologisch relevanten Schadstoffemissionen vor. Praktische Untersuchungen legen daher den Schluss nahe, dass ein Anzünden des Durchbrand-Kaminofens von oben zu einer nennenswerten Minderung der Staubemissionen über den kompletten Abbrand im Vergleich zu dem traditionellen Anzünden von unten führt (Anhang 1). Es muss nicht erst der gesamte Brennstoff getrocknet werden, sondern die Gase gelangen schnell in einen freien Reaktionsraum, um dort viel Hitze zur schnellen Aufheizung des Brennraums zu bilden. Dies verkürzt die Anzündphase und mindert die Emissionen. Da eine gravimetrische Staubprobe mit den hier genutzten Verfahren aufgrund der sehr niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten in der Anbrandphase zu erheblichen Messproblemen und Unsicherheiten führt, wird der Anfahrprozess nicht betrachtet.

Die Änderung des Nachlegezeitpunktes kann die Feinstaubemissionen erheblich beeinflussen. Untersuchungen über mehrere aufeinander folgende Abbrände zeigen deutliche Schwankungen in den Gesamtstaubemissionen je Zeitintervall (Anhang 2). Ein höheres Glutbett, d. h., ein früheres Nachlegen beschleunigt den Anzündprozess und führt dadurch tendenziell zu niedrigeren Gesamtstaubemissionen über den Abbrand. Um die Vorgaben des Herstellers bezüglich der Gesamtbeladung des Brennraums einzuhalten, muss bei einem früheren Nachlegen die Nachlegemenge vermindert werden, was dazu führt, dass ein häufigeres Nachlegen erfolgen muss. Dies widerspricht jedoch den Komfortwünschen des üblichen Betreibers. Durch die gleichzeitige Variation zweier Parameter wird eine eindeutige Auswertung erheblich erschwert, so dass diese Variation nicht im Rahmen dieser Arbeit untersucht wird.

Als gut interpretierbare, zuverlässig messbare und in der Praxis übliche Betriebsvariationen werden daher die Beladungsmenge und die Einstellung der Sekundärluftklappe untersucht.

Feuerung. Für eine systematische Untersuchung der technischen Aspekte der Feuerung müssten nacheinander die aufgelisteten Parameter variiert werden. Dies wäre nicht ohne erhebliche Umgestaltung der Feuerung und dem damit verbundenen Verlust der Vergleichbarkeit der Ergebnisse möglich. Deshalb werden bis auf die Zugkontrolle, die durch ein Saugzuggebläse am Schornstein simuliert werden kann, keine technischen Änderungen betrachtet. Die Ergebnisse aus den untersuchten Variationen erlauben trotzdem die Identifikation von technischen Verbesserungsansätzen.

Versuchsüberblick. Tabelle 3-3 zeigt die für den untersuchten Kaminofen betrachteten Variationen als Ergebnis der Eingrenzung der in Abb. 3-3 aufgeführten Parameter.

Tabelle 3-3: Untersuchte Versuchsvariationen und Varianten

Einflussparameter	Versuchsvariation
Brennstoffseitige Einflussparameter	
Inhaltsstoffe	Brennstoffarten: Buche (w = 11 %), Fichte (w = 10 %), Birke (w = 12 %), Fichte ohne Rinde (w = 10 %) jeweils als gleich schwere Scheite mit 0,7 kg/Scheit und einer Gesamtauflage von 1,4 kg in zwei Scheiten Wassergehalt: 11 %, 20 % und 30 % bei Buchescheiten
Stückigkeit	Scheitgröße: Buchenscheite mit 0,35, 0,7 und 1,4 kg/Scheit bei einer Auflage von jeweils 1,4 kg je Abbrand und annähernd gleichmäßigem Volumen zum Oberflächenverhältnis
Nutzerseitige Einflussparameter	
Brennstoffauswahl	siehe unter brennstoffseitige Einflussparameter
Befüllmenge	Brennraumbeladung: 1,4 kg in zwei Scheiten und 2,8 kg in vier Scheiten Buchenholz und Fichtenholz
Sekundärlufteinstellung (manuell)	Sekundärluftklappe: offen und zu bei Buchenscheitholz zwei Scheite mit insgesamt 1,4 kg Auflage
Technische Einflussfaktoren	
Passive Zugkontrolle	Zugbedingungen: -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa bei zwei Buchenscheiten mit insgesamt 1,4 kg Auflage

3.1.2 Kohlenstoffmonoxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe

Kohlenstoffmonoxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe werden im unverdünnten heißen Abgas gemessen. Die verwendeten Geräte inkl. des Messverfahrens und der Unsicherheiten sind in Tabelle 3-4 aufgeführt. Die beschriebenen Messverfahren und Messtoleranzen liegen im Rahmen der zu beachtenden Messvorschriften und den international üblichen Standards [85]. Deshalb wird hier auf eine ausführlichere Diskussion der Verfahren und Fehlertoleranzen verzichtet.

Zur Aggregation der Einzelversuchsdaten auf ein für die weitere Auswertung der Daten nutzbares Maß werden die Mess- und Analysedaten mit der Auswertungsdatei FMDA 9.3 zusammen mit einer Tabellenkalkulationssoftware aufbereitet [16]. Dazu werden in einem ersten Auswertungsschritt die Abgaskenngrößen Normdichte, Normvolumenstrom und Massenstrom als Minutenmittelwerte aus den Messwerten berechnet. Anschließend werden Mittelwerte der berechneten und gemessenen Werte über die Dauer der Staubprobenahme gebildet. Sämtliche erfassten Schadstoffemissionen werden als Massenkonzentrationen (mg/Nm^3 bei Bezugszustand 13 % O_2) ausgewiesen. Die organischen gasförmigen Kohlenwasserstoffverbindungen werden als organisch gebundener Kohlenstoff (Gesamt-C) bezogen auf trockenes Abgas angegeben [16].

Tabelle 3-4: Messung von Kohlenstoffmonoxid und gasförmigen Kohlenwasserstoffen inkl. der eingesetzten Messtechnik, des Messbereichs und der Fehlertoleranzen [16]

Messgröße	Messgerät/Hersteller	Messprinzip/ -verfahren	aktiver Messbereich	¹⁾ Max. Messsicherheit (k=2) beim Messbereichsendwert bzw. ²⁾ Fehlergrenze
CO	Gasmeter CX 4000 FTIR Fa. Ansyco	Fouriertransformierte Infrarotabsorption	0 – 100 ppm	3 ppm ¹⁾
			100 – 5000 ppm	3,3 % vom MW ¹⁾
	BINOS 1001, Fa. Fisher-Rosemount	Infrarotabsorption	0 – 100 ppm	3 ppm ¹⁾
			100 – 500 ppm	15 ppm ¹⁾
			500 – 2500 ppm	73 ppm ¹⁾
Gesamt-C ³⁾ als Propan- Äquivalent	Thermo-FID Fa. Mess-&Analysetechnik GmbH	Flammenionisation	2500 – 5000 ppm	147 ppm ¹⁾
			0 – 100 ppm	4 ppm ¹⁾
			100 – 1000 ppm	39 ppm ¹⁾
			1000 – 10000 ppm	394 ppm ¹⁾
	FID 3-100, Fa. J.U.M.	Flammenionisation	C ₃ H ₈ -Äquivalent	
			0 – 100 ppm	4 ppm ¹⁾
			100 – 1000 ppm	41 ppm ¹⁾
			1000 – 10000 ppm	408 ppm ¹⁾
			C ₃ H ₈ -Äquivalent	

³⁾ Summe der flüchtigen organischen Verbindungen

3.1.3 Feinstaub

Die Erfassung von Feinstäuben aus der Biomasseverbrennung wird bisher noch uneinheitlich realisiert. Daher sollen im Unterschied zu den anderen Messgrößen im Folgenden verschiedene Messprinzipien vorgestellt und danach das gewählte Verfahren beschrieben und bezüglich der bekannten Fehlerquellen detailliert diskutiert werden.

Messprinzipien. Zum einen wird darüber diskutiert, ob die derzeit übliche gravimetrische Messmethode (nach VDI 2066 [83] Blatt 1 und 3) zur Beschreibung der Feinstaubemissionen und deren toxikologischer Relevanz zielführend ist, oder ob vielmehr auf eine Erfassung der Partikelzahlen und -größen abgestellt werden sollte. Nachteilig bei der Anzahlbetrachtung ist, dass meist nur kleine Partikelmengen gesammelt werden können, die für eine chemische Analyse häufig nicht ausreichend sind. Zum anderen hat sich gezeigt, dass bei der in der VDI 2066 vorgesehenen Heißgasentnahme und Erfassung der Staubproben z. T. erhebliche Mengen an Aerosolkomponenten nicht gemessen werden, da sie bei einer vorgesehenen Messtemperatur von 160 °C teilweise noch gasförmig vorliegen (Abb. 3-4). Sie kondensieren erst bei einer deutlichen Temperaturabsenkung aus und sind dann gravimetrisch erfassbar und in chemischen Analysen nachweisbar [60], [85], [86]. Neben der Abkühlung des Abgases auf rund 50 °C durch eine Verdünnung mit gereinigter Umgebungsluft werden auch andere Verfahren wie z. B. eine Heißgasfilterung mit anschließender Durchleitung der Abgase durch eine Waschflaschenbatterie diskutiert, um die Schadstofffrachten weitgehend vollständig zu erfassen. Während beim Verdünnungstunnel aufgrund des niedrigen Dampfdrucks nicht alle

kondensierbaren Kohlenwasserstoffe erfasst werden, kommt es beim Einsatz von Waschflaschen durch Reaktionen gasförmiger Abgasbestandteile wie z. B. Schwefeldioxid mit anderen Komponenten des Abgases zu Feststoffen, die zu einer geringfügigen Überschätzung des gewünschten Ergebnisses führen (Abb. 3-4) [86].

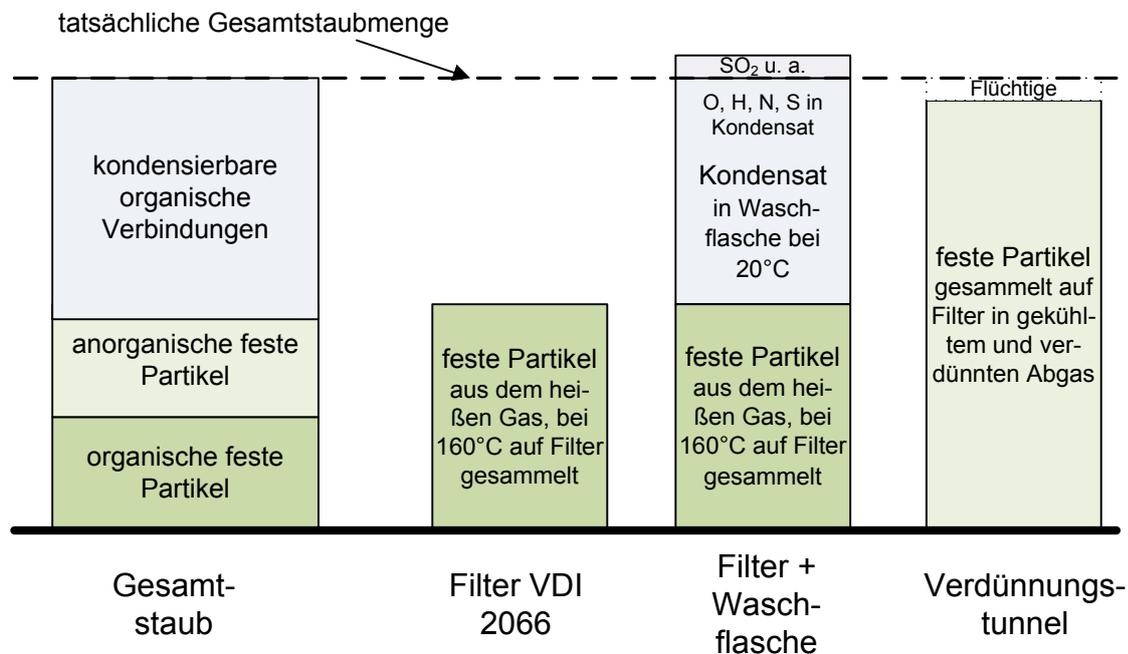


Abb. 3-4: Vergleich verschiedener Verfahren zur Bestimmung der Gesamtstaubmenge im Abgas [86]

Beide Verfahren ergeben jedoch insbesondere bei unvollständigen Verbrennungsprozessen mit hohen Anteilen an kondensierbaren Kohlenwasserstoffen deutlich realitätsnähere Messergebnisse als nach der VDI 2066 [86]. Je nach Qualität der Verbrennung kann der Fehler durch kondensierbare Kohlenwasserstoffe sehr groß sein (fast Faktor 10 bei Gesamtstaubmenge je MJ Brennstoffeinsatz).

Messverfahren. Da die toxikologische Relevanz der Feinstäube mittels chemischer Analysen erfasst werden soll, wird als Messverfahren eine gravimetrische Erfassung in Anlehnung an die VDI 2066 [83] mit Verdünnungstunnel gewählt⁵ [60]. Diese Festlegung entspricht auch der Situation, dass sich die rechtlich verbindlichen Staubgrenzwerte derzeit auf Massenangaben beziehen [10], [17], [26]. Um die kondensierbaren Kohlenwasserstoffe weitgehend zu erfassen, werden die Staubproben für die Analysen im verdünnten Abgas bei etwa 50 °C gesammelt. Das Verdünnungsverhältnis wird über die Vermessung der Kohlenstoffdioxidgehalte im Abgas vor und nach der Verdünnung bestimmt. Zu Vergleichszwecken wird jeweils auch eine Staubprobe im unverdünnten Abgas genommen. Insgesamt werden je Versuchsdurchgang neben der Vergleichsmessung im unverdünnten Abgas zwei verdünnte Gesamtstaubproben sowie eine Gesamtstaubprobe im verdünnten Abgas mittels eines Kaskadenimpaktors gesammelt. Die damit gewonnene Größenverteilung wird nicht ausgewertet, da für den tatsächlich besonders interessanten Bereich unter 1 µm aufgrund der bautechnischen Auslegung des Impaktors keine Aufteilung der Fraktionen vorliegt (Abb. 3-2).

⁵ Vergleiche Vorschlag an CEN/TC295 [87]

Die Auswertung der Staubprobennahme erfolgt mittels Berechnungsblättern. Dabei werden zuerst die abgesaugten Normvolumina aus den gemessenen Gasmengen und Gaszuständen berechnet. Damit werden dann die gravimetrisch ermittelten Filterbeladungen auf Massenkonzentrationen umgerechnet. Die Filterbeladungen werden jeweils mit entsprechenden, gleich behandelten Leerfiltern korrigiert. Die Staubmessung erfolgt Out-Stack unter isokinetischen Bedingungen mit einer beheizten Entnahmesonde und einem beheizten Filterkopf für einen Planfilter, der jeweils ca. 60 Minuten (einem kompletten Abbrand) beladen wird. Das eingesetzte Absaugrohr und das Rückhaltesystem werden mit einer Heizmanschette beheizt, um eine Unterschreitung des Abgastaupunktes im Filtersystem zu vermeiden. Nach dem Filterkopfgerät gelangt das Messgas in die Absaugapparatur. Diese besteht aus einer Einheit zur Gastrocknung, den Geräten zur Ermittlung des Volumenstroms sowie des Gaszustandes (Druck und Temperatur) und einer Saugpumpe. Mit Hilfe eines Schwebekörper-Durchflussmessgerätes wird der für die isokinetische Probennahme erforderliche Volumenstrom am Bypass der Pumpe eingestellt.

Die Dauer der Gesamtstaubprobennahme ist angepasst an die jeweilige Versuchsvariante und Staubemission. Außerplanmäßig abgebrochen wird die Staubmessung bei Filterbeladungen, bei denen die Leistungsgrenze der Absaugpumpe erreicht wird.

Staubfilter. Als Filter wurden Glasfaserplanfilterplättchen (Retention 99,998 % gemäß DOP (0,3 μm)) eingesetzt, die zunächst bei 250 °C für eine Stunde ausgeheizt werden. Direkt vor dem Einsatz erfolgt dann ein erneutes Ausheizen bei 120 °C für eine Stunde mit einer anschließenden Lagerung für drei Stunden in einem Exsikator. Unmittelbar danach wird das Gewicht mit einer Feinwaage bestimmt und der Einsatz im beheizten Out-Stack-Filterhalter vorgenommen. Direkt im Anschluss an die Beladung findet ein erneutes Ausheizen bei 120 °C für eine Stunde statt mit einem anschließenden Abkühlen über drei Stunden im Exsikator. Abweichend zur VDI 2066 wird nicht bei 180 °C ausgeheizt, da ansonsten nennenswerte Mengen an flüchtigen organischen Komponenten verloren gehen. Dann wird das Gewicht des beladenen Filterplättchens ermittelt. Die Proben werden anschließend in Aluminium-Folie eingepackt und zur weiteren Analyse transportiert [16]. Für die Impaktorfilter wird ein analoges Verfahren angewandt.

Kaminofenbetrieb. Der eingesetzte Kaminofen wird händisch beschickt. Dadurch ergibt sich ohne automatische Luftregelung ein diskontinuierlicher Betrieb mit ausgeprägtem zeitlichen Verlauf der (Anhang 2). Mit dem Nachlegen des kalten und noch nicht trockenen Brennstoffs sinkt in Verbindung mit dem Öffnen der Tür die Feuerraumtemperatur zunächst ab. Gleichzeitig schrumpft durch die Befüllung das Brennraumvolumen. Mit fortschreitender Reaktion nimmt der Anteil der Flüchtigen im Vergleich zum Reaktionsanteil des Biomassekokses ab und das verfügbare Brennraumvolumen steigt wieder an. Dies erklärt den ausgeprägten zeitlichen Verlauf während einer Abbrandphase. Um trotzdem vergleichbare Messungen in den einzelnen Versuchsvariationen zu erhalten, wird jeweils nach Vorheizen des Kaminofens die Stauberfassung direkt nach der Auflage begonnen und mit dem Erreichen des ursprünglichen Gewichts von Ofen, Grundglut und Ascheinhalt gestoppt. Der Einfluss der Asche mit 1 bis 2 % wird dabei aufgrund der Messungengenauigkeit der Waage nicht berücksichtigt [16], [32].

Fehlerbetrachtung. Das gravimetrische Verfahren zur Staubbestimmung ist mit einer erheblichen Anzahl von möglichen Fehlergrößen verbunden:

- Ungenauigkeiten der Messgeräte
- Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der Kernstromzone im Abgasrohr
- ungenügende Stabilität der Kernstromzone

- Schwankungen in der Verbrennung - ungenügende Stationarität der Verbrennung im Messzyklus
- Beschränkung der Messzeiten durch Zusetzen von Filtern
- Ablagerungserscheinungen im Rauchrohr (Anhang 3), insbesondere auch an Umlenkungen
- Auskondensation und Wiederverdampfung von Partikeln in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Dampfdruck
- Abweichungen von der Isokinetik bei der Staubprobennahme
- Ablagerungserscheinungen im Rauchgasentnahmesatz
- Ablagerungen im Filterhalter bzw. Impaktor
- Veränderungen bei der Entnahme der belegten Filter
- Verluste an Filtermaterial beim Umgang mit den Filtern z. B. durch Abbrechen und Herunterfallen von Fasern
- Verluste an Feinstaub beim Herausnehmen der Filterplatten aus den Filterköpfen
- Verluste durch die Nachbehandlung der Filter zum Herstellen der gleichen Wasserbeladung vor und nach der Messung mittels Ausheizen und Exsikator.

Die genaue Untersuchung all dieser Fehlerquellen und insbesondere ihre Verminderung ist Stand aktueller Forschungsarbeiten. Eine besondere Schwierigkeit besteht dabei in der Isolierung einzelner Effekte, die mit den bestehenden Verfahren häufig kaum möglich ist.

Der derzeitige Kenntnisstand lässt bei der Messung von Feinstäuben in den Abgasen von Biomassefeuerungsanlagen eine maximale Fehlertoleranz von $\pm 15\%$ des Messwerts jedoch mindestens 8 mg/Nm^3 erwarten [85]. Insofern sind im Vergleich von Ergebnissen unterschiedlicher Messeinrichtungen kleinere Abweichungen im einstelligen Bereich als wenig signifikant einzuschätzen. Bei Messungen an einem Versuchsstand unter strikter Einhaltung vergleichbarer Versuchsbedingungen kann bei Mittelwerten aus mehreren Messungen auch aus kleineren Unterschieden zumindest eine generelle Tendenz abgeleitet werden.

3.1.4 Sonstige Messgrößen

Neben den für die Bearbeitung der gestellten Aufgabenstellung erforderlichen Messgrößen (wie CO , C_nH_m und den gesammelten Stäuben) sind Daten zu den Einflussfaktoren – hier Abgastemperatur, Luftüberschusszahl und Analyse der Inhaltsstoffe der Verbrennung – sowie Hilfsmessgrößen (wie z.B. O_2 , CO_2 , H_2O , Drücke und Druckdifferenzen, Massen) notwendig, um die Versuche unter vergleichbaren und reproduzierbaren Bedingungen inkl. der gewollten Betriebsvariationen durchzuführen, Messungen korrekt umzusetzen und die Messwerte durch Bezugsgrößen wie den Sauerstoff zu normieren.

Die eingesetzten Messverfahren und –geräte inkl. ihrer Fehlerbandbreiten sind in Tabelle 3-5 aufgeführt.

Tabelle 3-5: Sonstige Messgrößen inkl. der eingesetzten Messtechnik, des Messbereichs und der Fehlertoleranzen [16]

Messgröße	Messgerät/Hersteller	Messprinzip/ -verfahren	Aktiver Messbereich	¹⁾ Max. Messunsicherheit (k=2) beim Messbereichsendwert bzw. ²⁾ Fehlergrenze
Umgebungsbedingungen und Betriebsparameter				
Luftdruck	Toss Kombisensor Typ 20500	Piezoresistiver Effekt	900 - 1.100 hPa	+/- 1 hPa ²⁾
Lufttemperatur	Toss Kombisensor Typ 20500	temperaturabhängige Widerstandsänderung (Pt 1000)	-20 - 50 °C	+/- 0,2 K ²⁾
Luftfeuchte	Toss Kombisensor Typ 20500	Mehrschichtsensor	0 - 100 %	+/- 3 %-Punkte ²⁾
Abgas-temperatur	Thermoelement (Typ K, Klasse 2), Fa. Philips-Thermocoax	Thermoelektrizität	0 - 1.000 °C	+/- 2,5 K ²⁾
Statischer Druck	Differenzdrucktransmitter, GE LPX 5000	Membran mit induktivem Abgriff	-200 Pa - 200 Pa	2 Pa ²⁾
dynamischer Druck	Differenzdrucktransmitter, GE LPX 9000	Membran mit induktivem Abgriff	0 - 50 Pa	0,05 Pa ²⁾
Abgasbestandteile				
CO ₂	Gasmeter CX 4000 FTIR Fa. Ansyco	Fouriertransformierte Infrarotabsorption	0 – 12,5 Vol.-%	0,4 Vol.-% ¹⁾
			12,5 – 20 Vol.-%	3,3 % vom MW ¹⁾
	BINOS 100, Fa. Fisher-Rosemount	Infrarotabsorption	0 – 20 Vol.-%	0,5 Vol.-% ¹⁾
H ₂ O	Gasmeter CX 4000 FTIR Fa. Ansyco	Fouriertransformierte Infrarotabsorption	0 – 12,5 Vol.-%	0,4 Vol.-% ¹⁾
			12,5 – 20 Vol.-%	3,3 % vom MW ¹⁾
	Hygrophil 4220 B, Fa. Ultrakust	Psychrometrie	0 – 20 Vol.-%	0,8 Vol.-% ¹⁾
O ₂	PMA 100-L Fa. M&C Products	Paramagnetismus	0 – 21 Vol.-%	0,3 Vol.-% ¹⁾
			OXYNOS 100, Fa. Fisher-Rosemount	0 – 21 Vol.-%
Wärmeleistung und Wirkungsgrad				
Temperatur ⁴⁾	Widerstandsthermometer, paarweise kalibriert (PT 100, Klasse B); Fa. Thermokon	temperaturabhängige Widerstandsänderung	0 - 100 °C	+/- 0,8 K ²⁾ (Gleichlauf 0,1 K zwischen Vor- und Rücklauf-temperatur)
Brennstoffverbrauch	Plattformwaage: Mettler Toledo KD 600	elektromagnetische Kraftkompensation	0 – 600 kg	37 g ¹⁾
	Plattformwaage: Pesa B5	2-Seiten-Messtechnik	0 – 1200 kg	63 g ¹⁾

³⁾ Summe der flüchtigen organischen Verbindungen⁴⁾ Raumtemperatur

MW .. Messwert

Zur Aggregation der Einzelversuchsdaten auf ein für die weitere Auswertung der Daten nutzbares Maß werden die Mess- und Analysedaten aufbereitet. Dazu werden in einem ersten Auswertungsschritt die Abgaskenngrößen Normdichte, Normvolumenstrom und Massenstrom als Minutenmittelwerte aus den Messwerten berechnet. Für die Betrachtung der Zusammenhänge zwischen den Messgrößen und der berechneten Luftüberschusszahl wird letztere aus dem Mittelwert der CO₂-Konzentration über die gesamte Messzeit ermittelt. Da die Staubproben und -analysen als Mittelwert über den gesamten Abbrand vorliegen, wird auch für die zugehörigen Einflussfaktoren Luftüberschusszahl und Abgastemperatur der gleiche Bezugszeitraum gewählt. Zu beachten ist an dieser Stelle, dass die Luftüberschusszahl durch den Betrieb mit Saugzuggebläse von einem Betrieb mit Naturzug abweichen kann.

3.2 Analyse der Feinstaubproben

Derzeit sind Grenzwertsetzungen für Feinstaub massenbasiert. Die Masse allein ist aber nicht aussagekräftig genug, um die vielfältigen gesundheitlichen Wirkungen der Feinstäube abzubilden. Insofern erscheint eine weitergehende Beschreibung der Feinstäube sinnvoll.

3.2.1 Eingrenzung

Neben den Auswirkungen der Feinstäube auf Natur, Gebäude und ggf. das Klima [30] liegt das wesentlichste Problemfeld in der toxikologischen Relevanz für die Menschen. In Ergänzung oder sogar alternativ zur Gesamtstaubmenge wäre also eine Kennzahl hilfreich, die diese toxikologische Relevanz der Feinstäube abbildet und sie damit bezüglich ihrer wesentlichsten Eigenschaft charakterisiert. Eine derartige Kennzahl gibt es jedoch bisher noch nicht, so dass die Feinstäube auf anderen Wegen charakterisiert werden müssen.

Charakterisierungsansätze. Eine Auswahl denkbarer Ansätze zur Beschreibung der Feinstäube zeigt Tabelle 3-6, wobei vielfach nur unvollständige Erkenntnisse zu den möglichen Wirkungen vorliegen.

Diskussion. REM-Aufnahmen zeigen, dass die meisten Komponenten der Feinstäube aus der Holzverbrennung bezüglich der äußeren Form rund oder plattenförmig mit abgerundeten Kanten sind [29]. Entsprechend ist eine hohe Eigenschädigung durch die äußere Form nicht zu erwarten. Es zeigen sich regelmäßig netzartige Strukturen aus Einzelpartikeln, die Hohlräume enthalten, in die sich weitere Stoffe einlagern könnten. Die Gebilde sind dann zum einen meist in einem toxikologisch nicht mehr ganz so relevanten Größenbereich und zum anderen ist bisher nicht geklärt, ob die Gebilde in der beobachteten Form im Abgas vorhanden sind oder sich erst beim Abscheiden auf dem Filtermaterial bilden. Insofern ist auch die Untersuchbarkeit des Einflusses der inneren Form mit den für die Arbeit zur Verfügung stehenden Messeinrichtungen nicht abschließend möglich.

Tabelle 3-6: Ansätze zur Beschreibung der Feinstäube aus der Holzverbrennung

Charakteristikum	Bandbreite der Eigenschaft	mögliche Wirkung	Einordnung der Feinstäube aus der Holzverbrennung
äußere Form	spitz bis rund	spitze Körper könnten ähnlich wirken wie Asbestfasern	vorwiegend abgerundet oder plattenförmig [29]
innere Form	viele Hohlräume bis dicht geschlossen	in den Hohlräumen könnten andere Schadstoffe eingelagert und so mittransportiert werden	z. T. Bildung vernetzter Strukturen mit vielen Hohlräumen; noch unklar, ob im Abgas oder erst auf Filter [29]
Größe der Staubkörper	ultrafein bis grob	Nanopartikel können die Lungen-Blut- und die Blut-Hirn-Schranke passieren, oder auch direkt über die Schleimhäute und sogar die Haut aufgenommen werden	häufig mehr als 90 % der Teilchenmasse aus Teilchen kleiner 1 µm [88]; Anzahlpeak oft zwischen 30 und 250 nm [63] => hohe Wahrscheinlichkeit eines sehr hohen Wirkungspotenzials
Größenverteilung	breit bis eng	bisher weitgehend unklar, ob sich durch das gleichzeitige Auftreten verschiedener Größenreize und Immunantworten verstärkte Schädigungen ergeben können	verschiedene Staubbestandteile aus Holzfeuerungen haben unterschiedliche typische Größen (Tabelle 2-1 und Abb. 2-3)
Anzahldichte	hoch bis gering	Schädigungspotenzial könnte an der Häufigkeit von Schädigungsreizen liegen	Anzahldichten sind nach der Feuerung sehr hoch, nehmen dann aber durch Agglomeration und Verdünnung nach dem Schornstein stark ab
Wasserlöslichkeit	gering bis hoch	je nach stofflicher Zusammensetzung variiert die Löslichkeit in Wasser und damit die Blockadewirkung der Lipidmembran und die Ausscheidung über den Urin [89]	salzartige Feinstäube aus der vollständigen Verbrennung sind meist gut wasserlöslich, toxikologisch sind sie eher weniger bedeutend [4], [27]
Fettlöslichkeit	hoch bis gering	fettlösliche Stoffe werden vom Körper resorbiert und passieren leichter Barrieren wie die Blut-Hirn-Schranke [89]	insbesondere höher molekulare PAK sind lipophil; gleichzeitig gehören sie vielfach zu den toxikologisch besonders relevanten Stoffen [35], [90], [91]
pH-Wert	schwach bis stark abweichend vom pH-Wert der Lunge	Schädigungspotenzial durch Säure o. Lauge oder durch die Störung notwendiger organischer Funktionen in der Lunge	Feinstäube der Holzverbrennung sind in wässrigen Lösungen typischerweise eher basisch [29]
elektrische Leitfähigkeit	stark bis leicht	ggf. Einfluss auf die Signalübertragung im Organismus	die elektrische Leitfähigkeit der Feinstäube der Holzverbrennung schwankt sehr stark in Abhängigkeit der Zusammensetzung der Stäube [29]
Inhaltsstoffe	toxikologisch relevant bis unbedeutend	unterschiedliche toxikologische Wirksamkeit der verschiedenen in Feinstäuben vorkommenden Stoffe ist bekannt	insbesondere Feinstäube aus Scheitholzkaminöfen können ein breites Spektrum an unterschiedlichen Stoffen aufweisen, von denen insbesondere PAK als besonders toxikologisch relevant gelten [35], [92]

Die Partikel sind in ihrer Wirkung in der Lunge umso kritischer einzuschätzen, je kleiner sie sind. Die zur Verfügung stehenden Messgeräte lassen jedoch in Kombination mit der Möglichkeit, ausreichende Staubmengen für eine chemische Analyse der Inhaltsstoffe zu sammeln, eine Auflösung der Größenfraktionen unter 1 µm nicht zu. Grundsätzlich kann aber davon ausgegangen werden, dass diese Fraktion, in der sich im Durchschnitt aus 34 Impaktormessungen 91,5 % der im verdünnten Abgas gemessenen Staubmassen wiederfinden [88], insgesamt als wirksam angesehen werden kann. Neben der direkten Wirkung in der Lunge, die entscheidend von der Größe der Partikel abhängen könnte, können aber auch größere Partikel, die zunächst abgehustet, dann aber durch Verschlucken in den Magen-Darm-Trakt gelangen, durch ihre Inhaltsstoffe toxisch wirken. Da die genauen Wirkungen und insbesondere auch die Kombinationswirkung verschieden großer Partikel derzeit noch erforscht werden [93], werden weder die Größe der Partikel noch die Größenverteilung als derzeit differenzierende aussagekräftige Kenngrößen eingeschätzt.

Die Anzahldichte könnte einen nennenswerten Effekt bei der toxikologischen Relevanz haben, da unter Umständen jedes Einzelereignis als Schädigungsauslöser dienen kann. Damit wäre die Gesamtschädigung oder zumindest die Wahrscheinlichkeit für eine irreversible Schädigung eng mit der Anzahldichte verbunden. Problematisch ist hierbei, dass ohne weitere Parameter die Art der Stäube unbeachtet bliebe. Außerdem nimmt die Anzahldichte in Abhängigkeit von der Verweilzeit im Schornstein und der Ausgangsanzahldichte der Partikel durch Agglomerations- und Koagulationsprozesse deutlich ab [94], [95]. Damit wäre der Effekt nicht mehr nur durch die Feuerung selbst, sondern wesentlich durch die Auslegung der Schornsteinanlage beeinflusst (Querschnitt und Länge). Aufgrund der in der Summe schwer nachvollziehbaren Einflüsse auf die Messergebnisse wird hier von dieser Art der Charakterisierung abgesehen.

Die Parameter Wasserlöslichkeit, Fettlöslichkeit, pH-Wert und elektrische Leitfähigkeit werden vor allem durch die Inhaltsstoffe der Feinstäube bestimmt, so dass sie als Charakteristika in der Betrachtung der Inhaltsstoffe indirekt enthalten wären.

Fazit. Insgesamt wird ausgehend vom gegebenen Kenntnisstand und den vorhandenen technischen Möglichkeiten die chemische Analyse der Inhaltsstoffe der Feinstäube als die zielführendste Charakterisierungsmöglichkeit gewählt.

3.2.2 Analyseverfahren

Probenbehandlung. Nach der in Kapitel 3.1 beschriebenen Probennahme werden diese nach einem Transport und einer Zwischenlagerung ausgepackt und verschiedenen Analysen zugeführt. Aufgrund der gewählten Trocknungsmethode bei einer Temperatur von 120 °C wird auf eine gekühlte Lagerung verzichtet, da die bei Umgebungstemperatur flüchtigen Komponenten schon bei der Nachbehandlung der Filterproben verloren gegangen sein sollten.

Aufgrund der Einwaagemengen und der Unsicherheit bezüglich der Homogenität der Filterplattenbeladung wird auf eine Teilung der Proben verzichtet und für jeden Analyseaufschluss eine eigene Probe verwendet, die entweder gleichzeitig oder in nacheinander durchgeführten Wiederholungsversuchen unter gleichen Bedingungen gewonnen werden.

Analysierte Stoffe. Auf eine durchgängige Analyse von Dioxinen/Furanen, Phenolen und Kresolen wird verzichtet, da bei der gewählten Methode der Nachbehandlung der Filter und bei den eingesetzten Holzbrennstoffen keine nennenswerten Nachweismengen zu erwarten sind und in Stichprobenmessungen auch entsprechend den Erfahrungen anderer Untersuchungen mit unbehandelten Holzbrennstoffen nicht gefunden werden können [3], [16], [32].

Um den Messaufwand überschaubar zu halten, erfolgt nach einigen Querabgleichen eine Konzentration auf folgende Inhaltsstoffe: Metalle, Ionen, OC/EC sowie PAK (16 U.S. EPA-PAK [4] Anhang 4). Die im Einzelnen analysierten Stoffe und angewandten Verfahren zeigt Tabelle 3-7.

Tabelle 3-7: Übersicht über angewandte Analysen, Analysewerte und Verfahren [16]

Analyse	Analysewerte	Verfahren
Metalle	Cu, Pb, Cd, Cr, Zn, Mn, K	nasschemischer Aufschluss, AAS, ICP-OES, ICP-MS
Salzbildner	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺	Wasserextraktion, Ionenchromatografie, Fotometrie
PAK	16 EPA-PAK	nasschemischer Aufschluss, Soxhlet-Extraktion, GC-MS
OC/EC	OC, EC ⁶	Reaktion unter Luftabschluss und anschließende Oxidation im Sauerstoffstrom

Bei der Analyse der 16 U.S. EPA-PAK zeigt sich, dass die drei sehr leichtflüchtigen Verbindungen – Naphthalin, Acenaphthalen und Acenaphthen – nie nachgewiesen werden können. Dies dürfte sowohl an den Probenahmebedingungen als auch an der Nachbehandlung der Proben im Trockenschrank bei 120 °C liegen. Auch für die nächsten drei etwas länger-kettigen Moleküle Fluoren, Phenanthren und Anthracen gibt es nur geringe nachweisbare Mengen, die aus den genannten Gründen sicherlich nicht der tatsächlichen Emission entsprechen [29]. Da die flüchtigen Kohlenwasserstoffe grundsätzlich mit der Konzentration an C_nH_m erfasst werden und die PAK mit weniger als vier Ringen, zu denen die sechs genannten PAK gehören, toxikologisch als weniger bedeutend einzuordnen sind als die anderen zehn, werden im Rahmen dieser Arbeit nur die zehn U.S. EPA-PAK mit vier bis sieben Ringen betrachtet (Fluoranthren, Pyren, Benzo[a]anthracen, Chrysen, Benzo[b]fluoranthren, Benzo[k]fluoranthren, Benzo[a]pyren, Indeno[1,2,3-c,d]pyren, Dibenzo[a,h]anthracen, Benzo[g,h,i]perylen) – sowohl als Summe wie auch bei den Fingerabdrücken [35], [96] (siehe Anhang 5, Anhang 6).

Abgasbezug. Die Ergebnisse der Analysen ergeben eine Konzentration der jeweils analysierten Inhaltsstoffe bezogen auf das Gewicht der Gesamtbeladung des analysierten Filterplättchens. Teilweise werden auch sämtliche Stufen von Impaktorplättchen analysiert und die Gesamtkonzentration über ein mit der Beladung der einzelnen Stufen gewichtetes Mittel hochgerechnet. Werden zwei Analysen der gleichen Stoffe aus einer gleichzeitigen Probenahme gewonnen, wird der Mittelwert der Konzentration angesetzt. Proben aus der gleichen Versuchsreihe, die nacheinander gewonnen werden, werden separat ausgewertet, da beim Kaminofen die Verbrennungsbedingungen z. T. selbst bei gleichen Versuchsbedingungen stark schwanken können. Für die Umrechnung der Massenkonzentrationen in mg/kg auf die Konzentration im Abgas in mg/Nm³ (bei 13 % O₂) wird jeweils der Gesamtstaubwert im verdünnten Abgas in mg/Nm³ (bei 13 % O₂) angesetzt, der sich als Mittelwert aus der analy-

⁶ Die Angabe zum elementaren Kohlenstoff enthält in dieser Arbeit auch die Karbonate (CC), z. B. K₂CO₃, Na₂CO₃, MgCO₃, CaCO₃ [4]. Wird davon ausgegangen, dass K und Na bevorzugt als Chloride und Sulfate vorliegen und nur der nicht durch S und Cl gebundene Rest als Karbonate auftritt, kann der Anteil des CC rechnerisch abgeschätzt und vom EC abgezogen werden [36]. Im Rahmen dieser Arbeit liegt der CC bis auf zwei Fälle unter oder knapp über 1% vom EC. Lediglich für die Brennraumüberladung mit Buche und den Schornsteinzug mit -22 Pa macht der so theoretisch bestimmte CC einen Anteil von 7 bis 8 % aus. Damit liegt er aber immer noch unter der zulässigen Fehlertoleranz für die Analysen. Daher wird auf das Herausrechnen des CC verzichtet.

sierten Probe und der gleichzeitigen Parallelmessung ergibt. Für Analysen von Impaktorproben wird aufgrund nennenswerter Abweichungen zwischen den Summen der Impaktorstufen und den Gesamtstaubproben der Mittelwert der beiden gleichzeitig im verdünnten Abgas gesammelten Gesamtstaubproben herangezogen. Mit diesem Vorgehen wird bewusst auf eine Gesamtstaubcharakterisierung zu Gunsten einer besseren Auswertbarkeit der Einzelanalysen im Hinblick auf die Einflussfaktoren Abgastemperatur und Luftüberschusszahl und eine genauere Untersuchbarkeit der Zusammenhänge zwischen Abgasparametern und einzelnen Inhaltsstoffen verzichtet.

3.2.3 Fehlerbetrachtung

Probenahmefehler. Im Vergleich zur nach VDI 2066 vorgegebenen Probenahme im heißen Abgas werden nach der Verdünnung bei 50 °C deutlich mehr Stoffe als kondensierte Partikel oder Tröpfchen mit dem Feinstaub abgeschieden. Trotzdem gibt es Stoffe (z. B. Quecksilber, leichtflüchtige PAK), die bei dieser Temperatur gasförmig sind. Hier würde aber auch eine weitere Abkühlung des Abgases nicht erfolgreich sein, da dann der Dampfdruck derart sinkt, dass diese Stoffe selbst bei Umgebungsbedingungen nicht auskondensieren. Insofern treten sie in der Realität meist nicht als Partikel, sondern als gasförmige Emissionen auf. Da für den Bezug auf die Emissionsmenge im Abgas eine Wägung erforderlich ist, muss das Wasser vor der Probenahme wie auch nach der Probenahme ausgetrieben werden. Deshalb müssen die Verluste durch Verdampfen leichtflüchtiger Stoffe als systematischer Fehler in Kauf genommen werden. Bezüglich der toxikologischen Relevanz der Feinstäube kann der Fehler zumindest in erster Näherung vernachlässigt werden, da er bei allen Proben in gleicher Weise auftritt, so dass ein Vergleich untereinander weiterhin möglich ist.

Transportverluste. An der Aluminiumfolie, in die die Filterplättchen zum Transport eingepackt sind, können nur selten offensichtliche Materialverluste erkannt werden, obwohl die Filterplättchen gefaltet werden. Insofern ist der Fehler durch den Transport für die zu betrachtenden Gesamtstaubfilter mit maximal 5 % an Verlust an Gesamtstaub einzuschätzen. Von einer Selektivität bei den Inhaltsstoffen ist hier nicht auszugehen.

Analysefehler. Die Analyseverfahren und Ungenauigkeiten entsprechen den Vorgaben für zertifizierte und akkreditierte Analyseeinrichtungen. Damit ist zu unterstellen, dass die geforderten maximalen Fehlertoleranzen von 10 % eingehalten werden und in der Regel mit etwa 5 % anzunehmen sind. Dies wird auch durch die Betrachtung der im gleichen Versuchsdurchgang vorkommenden Parallelbestimmungen der Summenwerte der PAK mit Abweichungen unter 10 % zum jeweiligen Mittelwert und bei den Einzel-PAK mit Abweichungen, die bis auf wenige Ausnahmen bei unter 20 % liegen, bestätigt. Bei den wenigen Ausnahmen werden Abweichungen von bis zu 47 % erreicht, wobei diese bei den Stoffen auftreten, die aufgrund ihrer Dampfdrücke im kritischen Bereich der zumindest teilweisen Wiederverdampfung oder einer fehlenden vollständigen Auskondensation liegen. Mögliche Einflüsse durch das Filtermaterial werden weitgehend berücksichtigt, indem regelmäßig Leerfilter parallel zu den eigentlichen Probefiltern eingesetzt werden, ohne mit Staub beladen zu werden. Auch diese Filter werden analysiert und die Ergebnisse bei der Auswertung der Konzentrationen berücksichtigt.

Reproduzierbarkeit. Die z. T. erheblichen Variationsbreiten bei den klassischen Schadstoffemissionen wie Kohlenstoffmonoxid sowie die nennenswerten Schwankungen in einer Versuchsvariation im Mittelwert der Abgastemperatur und der Luftüberschusszahl zeigen, dass die Reproduzierbarkeit gleicher Verbrennungsbedingungen über den kompletten erfassten Abbrand mit seinen verschiedenen Phasen bei marktüblichen Kaminöfen relativ schwierig ist.

Insofern müssten sehr viele Wiederholungen der Staubprobennahmen und –analysen durchgeführt werden, um einen belastbaren Mittelwert zu erhalten. Dies ist hier aus Zeit- und Kostengründen nicht möglich. Deshalb werden alle Analyseergebnisse immer nur auf den gleichzeitig bestimmten Gesamtstaubgehalt bezogen und zusammen mit den zugehörigen Werten für die Abgastemperatur und die Luftüberschusszahl angegeben. Dadurch können Trendaussagen in den Einzelbetriebsvariationen auf ihre Zuverlässigkeit überprüft werden, ohne eine große Zahl an Wiederholungen zu benötigen. Mögliche Ausreißer bei den Ergebnissen können aufgrund der geringen Wiederholungszahl nicht zweifelsfrei als Fehler erkannt werden und können daher nicht einfach von der Interpretation ausgeschlossen werden.

Fazit. Die Ergebnisse stellen weder Vollcharakterisierungen der Inhaltsstoffe noch grundsätzlich repräsentative und mit unter anderen Rahmenbedingungen gewonnenen Werten vergleichbare Ergebnisse für die Inhaltsstoffe in Bezug auf bestimmte Betriebsvariationen dar. Da jedoch die meisten der benannten Fehler systematischer Natur sind oder über die Betrachtung von Abgastemperatur und Luftüberschusszahl eingeordnet werden können, kann für die abgeleiteten Minderungsmaßnahmen und Korrelationen von stabilen Ergebnissen ausgegangen werden.

3.3 Ergebnisdarstellung

Die durch die Messung und Analyse der Feinstäube gewonnenen Ergebnisse werden jeweils für eine Betriebsvariationsreihe vergleichend dargestellt:

- Darstellung der Gesamtstaubmenge im verdünnten und unverdünnten Abgas als Mittelwert über alle durchgeführten Versuche einer Betriebsvariation mit Fehlerbalken und Angabe der Wiederholungen,
- Darstellung der Aufteilung der Gesamtstaubmenge der OC/EC-Analyse im verdünnten Abgas in OC, EC, Nicht-C-Feinstaub und Rest-Feinstaub; tabellarische Angabe der Abgastemperatur und des Luftüberschusses bei der jeweiligen analysierten Probe,
- Darstellung der Werte für die - auf die jeweilige Analyse bezogene Gesamtstaubmenge - im verdünnten Abgas ermittelten PAK-Summenwerte und die Benzo[a]pyren-Werte (Zusammenfassung zu einem Wert nur, wenn diese zeitgleich erfasst wurden),
- Darstellung von CO und C_nH_m als Mittelwerte über alle Messungen einer Betriebsvariation mit Fehlerbalken unter Angabe der Anzahl der Wiederholungen,
- Darstellung der Abgastemperatur in K und der Luftüberschusszahl λ als Mittelwerte über alle Messungen einer Betriebsvariation mit Fehlerindikatoren und Angabe der Anzahl der Wiederholungen,
- Darstellung der zehn höchsten U.S. EPA-PAK als diejenigen PAK mit den durchgehend signifikantesten Ergebnissen bezogen auf die zu den Analysen gehörenden Gesamtstaubgehalte im verdünnten Abgas und die tabellarische Angabe der Abgastemperatur und der Luftüberschusszahl bei der jeweils analysierten Probe.

Ausgehend von diesen Darstellungen werden die Ergebnisse bewertet und interpretiert.

3.4 Bewertung und Interpretation

Toxikologischer Hintergrund. Luftgetragene Emissionen und hier insbesondere die Feinstaubemissionen haben einen erheblichen Einfluss auf die Gesundheit der Bevölkerung. Die grundsätzliche Kopplung von Feinstaubbelastungen in der Atemluft und der Gesundheitsbe-

einträchtigung ist in verschiedenen epidemiologischen und auch an menschlichen Probanden durchgeführten Studien nachgewiesen worden [97], [98], [99], [100]. Daraus geht u. a. hervor, dass insbesondere Stäube mit einem Partikeldurchmesser kleiner $10\ \mu\text{m}$ (PM_{10} – Feinstäube) schwere Gesundheitsschäden ab einer Konzentration von $10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Atemluft verursachen können [101].

Derartige Studien zu den Effekten von Feinstaubemissionen auf den menschlichen Organismus beziehen sich in der Regel auf ihre Langzeitwirkung. Es können infolge von Feinstaubemissionen jedoch auch akute Wirkungen eintreten [102], [99]. Chronische Erkrankungen, die aufgrund von epidemiologischen Kohorten- und tierexperimentellen Studien nachweislich mit Feinstaubemissionen in Zusammenhang gebracht wurden, sind vorrangig Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen, ein erhöhtes Lungenkrebsrisiko und Gesamtsterblichkeit sowie ein erhöhtes Sensibilisierungsrisiko gegenüber Allergien. Diskutiert wird u. a. auch ein möglicher Zusammenhang zwischen PM_{10} und intrauteriner Wachstumsverzögerung und Frühgeburtlichkeit [103]. Auf Basis dieser Ergebnisse wurden Mortalitätsfaktoren für die EU und die Länder in der EU aufgrund der Staubbelastungen ermittelt und im Rahmen einer WHO Europe Studie veröffentlicht. Im Mittel verliert danach jeder EU-Bürger möglicherweise fast ein Lebensjahr durch Feinstaubemissionen [104].

Der Anteil der Biomassefeuerungen an den gesamten Feinstaubemissionen und an den gesamten Gesundheitsbeeinträchtigungen ist nur schwer abschätzbar. Es wird von einem Anteil im bundesdeutschen Schnitt von 8 bis 9 % (2005) ausgegangen [12], [13]⁷. Soll über die bundesweite Abschätzung hinaus eine konkrete Einschätzung der durch die Biomassefeuerungen in einer Region verursachten zusätzlichen Feinstaubkonzentrationen in der Luft und des damit verbundenen Gesundheitsrisikos gewonnen werden, sind umfangreiche Simulationen [105] und spezielle Immissionsanalysen über Tracer-Stoffe, die typisch für Holzfeuerungen sind, erforderlich [106].

Bei allen Unwägbarkeiten ist festzuhalten, dass die Feinstäube aus Biomassefeuerungsanlagen sehr wahrscheinlich negative Auswirkungen auf die Gesundheit der Menschen haben. Diese Gesundheitsbeeinträchtigungen hängen meist nicht nur an der Gesamtmenge der Feinstäube, sondern vielmehr an der Größe der Partikel und an den Inhaltsstoffen. Dabei können die verschiedenen Wirkursachen nicht getrennt voneinander betrachtet werden, sondern müssen in ihrer systemischen Wirkung berücksichtigt werden [107], woran derzeit noch intensiv geforscht wird [93], [108].

Bis es entsprechende Ergebnisse der Toxikologen gibt, müssen andere Bewertungsansätze zumindest generelle Aussagen zur Einschätzung von Minderungsmaßnahmen nicht nur im Hinblick auf die Gesamtstaubminderung, sondern auch die Minderung der toxikologischen Relevanz für die Gesundheit der Menschen liefern. Diese Ansätze können auch dazu beitragen, die Systemforschung der Toxikologen zu unterstützen, indem sie für Spezialfälle Vergleichspunkte und Schadstoffstandards liefern. Die Menge der Feinstäube und ihre toxikologische Relevanz werden bei Biomassefeuerungsanlagen letztlich durch die Qualität der Verbrennung bestimmt. Insofern stellt eine Bewertung der Emissionen von Biomassefeuerungsanlagen immer eine Einschätzung der Verbrennungsqualität dar.

Bewertungsansatz. Für die Bewertung der Biomasseverbrennung und der Minderung von Emissionen kann zwischen der Bewertung eines Zustandes und der Bewertung einer Zustandsänderung (d. h. Unterschied zwischen einem Zustand 1 und einem Zustand 2) unterschieden werden. Ersteres bedarf einer weitgehend vollständigen und korrekten Be-

⁷ Der prozentuale Anteil hängt immer sehr stark von den Quellen ab, die in die Betrachtung einbezogen wurden.

schreibung des Zustandes, der dann auch mit anderen Zustandsbeschreibungen ähnlicher Qualität gut vergleichbar ist. Demgegenüber kann die zweite Vorgehensweise gewisse systematische Fehler tolerieren, die sich dabei gegenseitig aufheben. Aufgrund der in Kapitel 3.2.3 diskutierten Fehlerquellen bei den Analysen der Feinstaubproben wird das zweite Verfahren gewählt.

Unabhängig davon ist die Änderung der Verbrennungsqualität insbesondere unter Berücksichtigung der toxikologischen Relevanz einzuschätzen. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Qualität der Verbrennung im Wesentlichen über die Parameter Gesamtstaub, CO, C_nH_m, PAK, OC/EC, ausgewählte Metalle und Nicht-Kohlenstoffstäube beschrieben. Obwohl sich gesetzgeberische Maßnahmen derzeit vor allem nach der Gesamtmasse von Partikeln – teilweise unter Beachtung der Partikelgrößen – richten [9], [10], bleibt dabei die unterschiedliche Gefährlichkeit der Stäube im Hinblick auf die menschliche Gesundheit unbeachtet. Erste Untersuchungen haben gezeigt, dass bezüglich der toxikologischen Relevanz vor allem die PAK-Emissionen bestimmend sein könnten. Erst wenn diese auf einem vergleichbaren Emissionsniveau liegen, wären OC, dann EC und dann andere Inhaltsstoffe von Bedeutung [27]. Diese Einschätzung ist bisher jedoch nicht quantifiziert belegt. Auch werden CO oder C_nH_m häufig als Leitindikatoren für die Güte der Verbrennung unter toxikologischer Relevanz gesehen, doch sind z. T. auftretende Korrelationen nicht unter allen Umständen gültig [31]. Daher kann keine der aufgeführten Messgrößen als alleinstehendes Kriterium herangezogen werden.

Systemische Tests, die direkt die Wirkung aller Parameter gemeinsam abbilden, sind derzeit noch in der Erforschung und Entwicklung [93], [107], [108], [109], wobei u. a. die unterschiedliche Empfindlichkeit verschiedener Personengruppen erschwerend wirken könnte [103], [110]. Zudem ist derzeit nicht absehbar, ob dieses Verfahren mit vertretbarem Aufwand in der Praxis anwendbar oder eher zur Entwicklung und Überprüfung vereinfachter Indikatorensysteme heranzuziehen ist.

Deshalb werden die aufgeführten Einzelparameter gleichzeitig nebeneinandergestellt und verbal-argumentativ abgewogen.

Singuläre Bewertungsmethodik. Für jeden Betriebsvariationsversuch werden jeweils die Betrachtungsgrößen Summe der PAK (zehn Einzel-PAK), Benzo[a]pyren - zur beispielhaften Abbildung der toxikologischen Relevanz der PAK-Zusammensetzung -, OC, EC, C_nH_m, CO, Gesamtstaub, Schwermetalle (Cr, Cd, Pb, Cu) – als toxikologisch relevanter Bestandteil des Nicht-Kohlenstoff-Feinstaubes -, und die Summe der erfassten Nicht-Kohlenstoff-Komponenten der Analyse (Ionen und Metalle) – als Maß für die Qualität der Emissionsfreisetzung bei einer vollständigen Verbrennung – erfasst. Die Messergebnisse werden jeweils mit den Messwerten des Versuchs Buchenscheitholz mit 11 % Wassergehalt mit zwei Scheiten zu je 0,7 kg mit halb geöffneter Sekundärluftklappe bei einem Schornsteinzug von -12 Pa verglichen – einzige Ausnahme ist die Versuchsvariation Brennraumüberladung bei Fichtenscheitholz, bei der der Bezug zu den Messwerten des Versuchs mit Fichtenscheitholz mit 10 % Wassergehalt mit zwei Scheiten zu je 0,7 kg mit halb geöffneter Sekundärluftklappe bei einem Schornsteinzug von -12 Pa erfolgt. Dazu wird für jede Messgröße die relative Änderung im Vergleich zum Basisversuch berechnet. Diese relative Veränderung wird anhand des in Tabelle 3-8 aufgeführten Rasters in eine von sieben Kategorien eingeordnet: starke Erhöhung (- - -), Erhöhung (- -), leichte Erhöhung (-), keine signifikante Veränderung (0), leichte Verringerung (+), Verringerung (+ +) und starke Verringerung (+ + +).

Tabelle 3-8: Raster zur Einordnung der prozentualen Zu- oder Abnahme der Messergebnisse der Versuchsvariation im Vergleich zum Basisversuch (Buchenscheit 11 % Wassergehalt bzw. Fichtenholzscheit mit 10 % Wassergehalt, zwei Scheite mit je 0,7 kg bei halb geöffneter Sekundärluftklappe und einem Schornsteinzug von -12 Pa)⁸

Messgrößen bei 13% O ₂ ; Änderungen in %	BW in mg/Nm ³	+++	++	+	0	-	--	---
PAK	0,09	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 100	101 – 500	> 500
Benzo[a]pyren	0,006	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 100	101 – 500	> 500
OC	8	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 100	101 – 500	> 500
EC	41	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 50	51 – 100	> 100
C _n H _m	84	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 100	101 – 500	> 500
CO	2,6·10 ³	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 50	51 – 100	> 100
Schwermetalle ^a	0,016	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 50	51 – 100	> 100
Nicht-C-Feinstaub ^b	5	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 50	51 – 100	> 100
Gesamtstaub	68	>-50	-21 – -50	-11 – -20	-10 – 20	21 – 50	51 – 100	> 100

BW .. Bezugswert; ^a hier Cd, Pb, Cr und Cu; ^b Feinstaub, der keine Kohlenstoffkomponenten enthält

Die Reihenfolge der in Tabelle 3-8 aufgeführten Messgrößen entspricht dem derzeitigen Wissensstand zur toxikologischen Relevanz der Messgrößen bei den Emissionen von Biomasseverbrennungsanlagen, wobei die Gesamtstaub-Emission als Vergleichsgröße und gesetzlicher Grenzwert separat zu sehen ist. Die Intervalle ergeben sich aus der größten und der kleinsten relativen Änderung aller Versuchsvariationen im Vergleich zum Basisfall, wobei neben einem Toleranzbereich, für den Abweichungen vom Basisfall als nicht signifikant angesehen werden, auch der halbe und der doppelte Wert im Vergleich zum Basisversuch als eine Grenze gewählt wird. Für Emissionsminderungen wird generell für leichte Verringerungen (+) ein Intervall von -11 bis -20 % angesetzt. Bei Erhöhungen der Emissionen wird bei maximalen Erhöhungen von mehr als dem 10-Fachen des Bezugswertes die Grenze für leichte Erhöhungen (-) mit der Verdopplung der Emission festgelegt und die nächste Abstufungsgrenze zu 500 % Änderung gewählt. Andernfalls wird die leichte Emissionserhöhung mit 50 % Anstieg gegenüber der Erhöhung abgegrenzt.

Die Bewertung einer Zustandsänderung wird anhand der nach obigem Einordnungsschema ausgefüllten Bewertungsmatrix (Aufbau wie Tabelle 3-8) durchgeführt. Da es derzeit noch keine gesicherten Erkenntnisse über die relative Bedeutung der einzelnen Messgrößen zueinander gibt, erfolgt für jeden Fall eine verbal-argumentative Bewertung, wobei bezüglich der toxikologischen Relevanz die Summe der PAK sowie der Wert für Benzo[a]pyren (Auswahlbegründung siehe Anhang 5) als besonders gesundheitsrelevant angesehen werden.

Integrative Bewertungsmethodik. Außerdem kann eine Bewertung über die gemeinsame Auswertung aller Versuchsdatensätze erfolgen. Mit 23 unabhängigen Datensätzen kann eine

⁸ Die Auswahl der Abstufung bei der Verschlechterung erfolgte orientiert an der maximalen Verschlechterung in einer Größe. Liegt diese über dem 10-Fachen des Ausgangswertes wurde die Abstufung 21 bis 100, 101 bis 500 und >500 gewählt; ansonsten die Feinere.

statistisch hinreichende Datenbreite angenommen werden. Anhand von Korrelationen zwischen einzelnen Mess- und Analysegrößen und den Einflussfaktoren Luftüberschusszahl und Abgastemperatur können Wirkungszusammenhänge aufgeklärt und daraus weitere Minderungsmöglichkeiten abgeleitet werden. In diesem Zusammenhang werden auch Korrelationen zwischen verschiedenen Messgrößen betrachtet, um ggf. vereinfachte Verfahren für die Einschätzung der Qualität der Verbrennung zu gewinnen.

Fehlerbetrachtung. Aufgrund methodischer Probleme wird die Veränderung der Partikel in der Atmosphäre nicht berücksichtigt. Auch wird die systemische Wirkung der Inhaltsstoffe und der Partikelgrößen und -formen auf unterschiedlich vorbelastete Personen nicht einbezogen. Außerdem ist die verbal-argumentative Zusammenfassung der Einzeleffekte zu einem Gesamtergebnis abhängig vom jeweiligen Wissensstand über die toxikologische Relevanz der einzelnen Betrachtungsgrößen im Vergleich zueinander.

Insofern ist die hier realisierte toxikologische Bewertung nur eine erste Einschätzung, die nicht als absolute Einordnung, sondern nur als vergleichende Bewertung zwischen den verschiedenen untersuchten Verbrennungsvarianten zu verstehen ist. Insbesondere Interpretationen, die auf teilweise widersprüchlichen Einzeleinschätzungen basieren, können sich durch zukünftige Erkenntnisse im Extremfall noch grundsätzlich ändern. Bei entsprechend kritischen Ergebnissen ist dies deutlich betont dargestellt.

4 Singuläre Betrachtung der Versuchsergebnisse

An einem marktüblichen Kaminofen, d. h. an einem modernen Gerät mit zusätzlicher getrennter Luftzumischung ohne automatische Luftregelung mit oberem Abbrand und Primärluftzuströmung von unten durch den Rost, werden der Einfluss der Brennstoffart, des Wassergehalts und der Größe der Scheite sowie die Befüllmenge im Brennraum, die Einstellung der Sekundärluftklappe und die Zugbedingungen am Schornstein variiert (Tabelle 3-3). Die Auswirkungen auf die Änderung der Schadstoffemissionen Kohlenstoffmonoxid, organische Komponenten im Abgas sowie der Gesamtstaubemissionen (Anhang 7) einschließlich deren Analyse (Anhang 8) werden jeweils einzeln betrachtet und bewertet.

4.1 Inhaltsstoffe/Holzart

Die Holzart bestimmt sowohl die Inhaltsstoffe als auch die Rohdichte des Brennstoffs. Bodengegebenheiten und klimabedingte Schwankungen führen zu teilweise nennenswerten Veränderungen der Zusammensetzung der Spurenstoffe des Holzes. Die grundsätzlichen Unterschiede sind jedoch durch die Holzart bestimmt. Inhaltsstoffe und Rohdichte können bei Scheitholz nicht entkoppelt voneinander untersucht werden. Sie sind deshalb für die Ergebnisinterpretation gemeinsam zu berücksichtigen.

4.1.1 Emissionsmessergebnisse

Im Kaminofen werden die Holzarten Buche, Birke, Fichte und Fichte ohne Rinde jeweils mit der gleichen Brennraumbeladung (Masse), einer vergleichbaren Stückigkeit (Anzahl der Scheite) und vergleichbarem Wassergehalt unter sonst gleichen Verbrennungsbedingungen verbrannt und die Emissionen, die Abgastemperatur und die Luftüberschusszahl Lambda erfasst.

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Die Kohlenstoffmonoxidemissionen liegen für alle Varianten in einem ähnlichen Bereich zwischen 2,6 und 3,2 g/Nm³ (bei 13 % O₂). Buche und Fichte weisen die niedrigsten Werte auf, während die Verbrennung von Birkenscheitholz zu etwas höheren Werten führt. Die gasförmigen Kohlenwasserstoffe schwanken in einem ähnlichen relativen Bereich zueinander: Buche und Fichte ohne Rinde zeigen die niedrigsten Werte, während die von Birke und Fichte auf einem höheren Niveau liegen (Abb. 4-1 links).

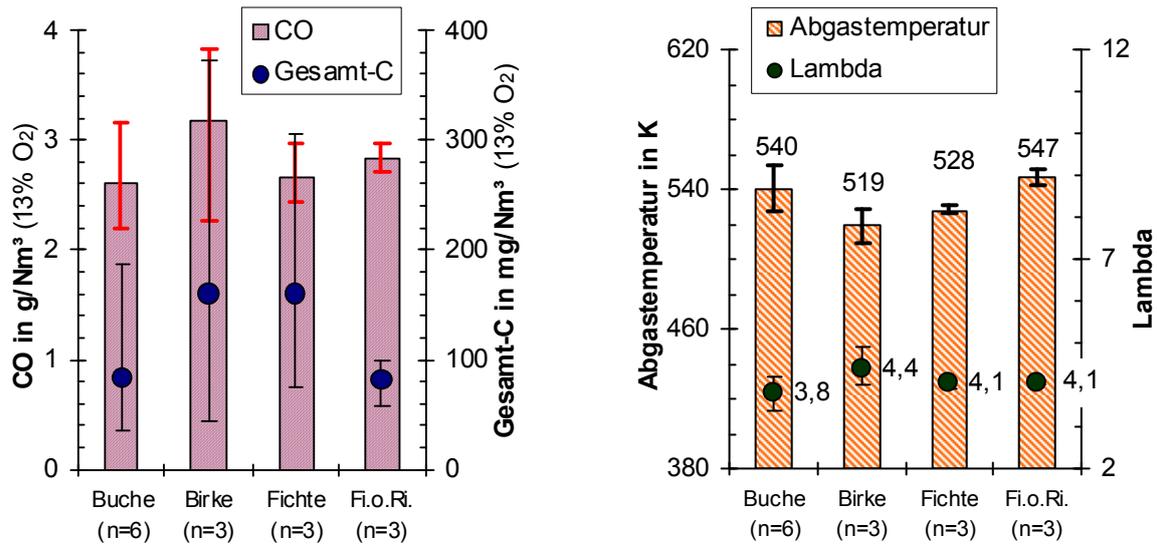


Abb. 4-1: Einfluss der Holzart in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO und Gesamt-C (links) sowie Abgastemperatur und Lambda (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$), Birkenscheitholz ($w = 12\%$), Fichtenscheitholz ($w = 10\%$), Fichtenscheitholz ohne Rinde (Fi.o.Ri.; $w = 10\%$) ($n =$ Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Eine vergleichbare Tendenz findet sich auch bei den Abgastemperaturen (Abb. 4-1 rechts). Hier liegen Buche und Fichte ohne Rinde um etwa 20 K über den Temperaturen der Verbrennung von Birke und Fichte. Bei der Luftüberschusszahl zeigt Buche einen vergleichsweise niedrigen Wert und Birke einen relativ hohen Wert; Fichte und Fichte ohne Rinde liegen im Mittelfeld.

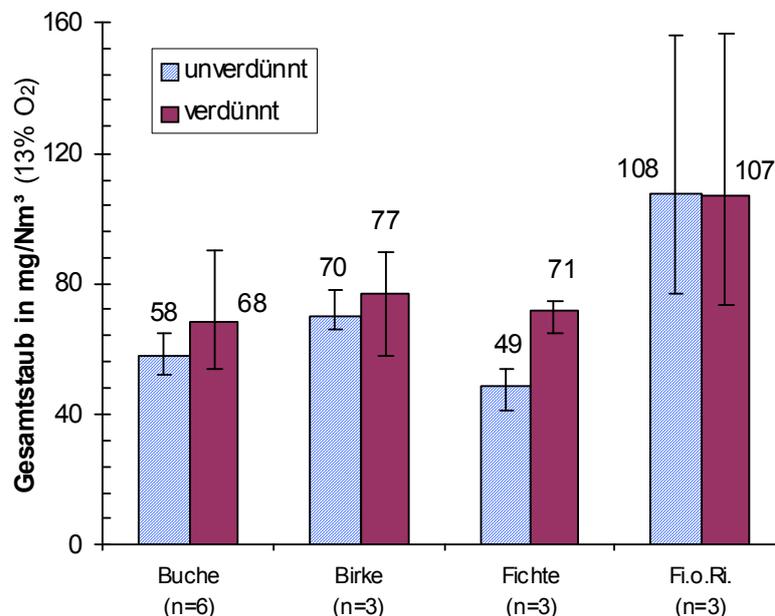


Abb.4-2: Einfluss der Holzart in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Gesamtstaubemissionen im unverdünnten und verdünnten Abgas. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$), Birkenscheitholz ($w = 12\%$), Fichtenscheitholz ($w = 10\%$), Fichtenscheitholz ohne Rinde (Fi.o.Ri.; $w = 10\%$) ($n =$ Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

Gesamtstaub. Nach Abb.4-2 ergibt sich für die Gesamtstaubemissionen im unverdünnten Abgas die Reihenfolge Fichte, Buche, Birke und Fichte ohne Rinde. Unter Berücksichtigung der Verdünnung des Abgases und der Miterfassung kondensierbarer Komponenten liegen die Varianten Buche und Fichte gleichauf, leicht vor den Ergebnissen der Birkenscheitholz-Verbrennung. Fichte ohne Rinde hat die höchsten Emissionen, wobei auffällt, dass die Emissionen sowohl im unverdünnten als auch im verdünnten Abgas sehr hohen Schwankungen unterliegen und beinahe gleichauf liegen, so dass hier im Unterschied zu allen anderen Varianten kein nennenswerter Effekt der Verdünnung zu erkennen ist.

4.1.2 Analyseergebnisse

Hauptinhaltsstoffe. Nach den Ergebnissen der Analyse der Feinstaubproben (Abb. 4-3) macht der elementare Kohlenstoff (EC) jeweils mindestens 50 % der gesamten Emissionen aus. Die Unterschiede in den Gesamtstaubwerten sind für Buche, Birke und Fichte bei annähernd gleichen Werten für den Rest vor allem auf die Änderung des Anteils an EC zurückzuführen. Auffallend sind auch die deutlich höheren Werte für den organischen Kohlenstoff (OC) bei der Verbrennung von Buche und Fichte im Vergleich zu Birke und Fichte ohne Rinde.

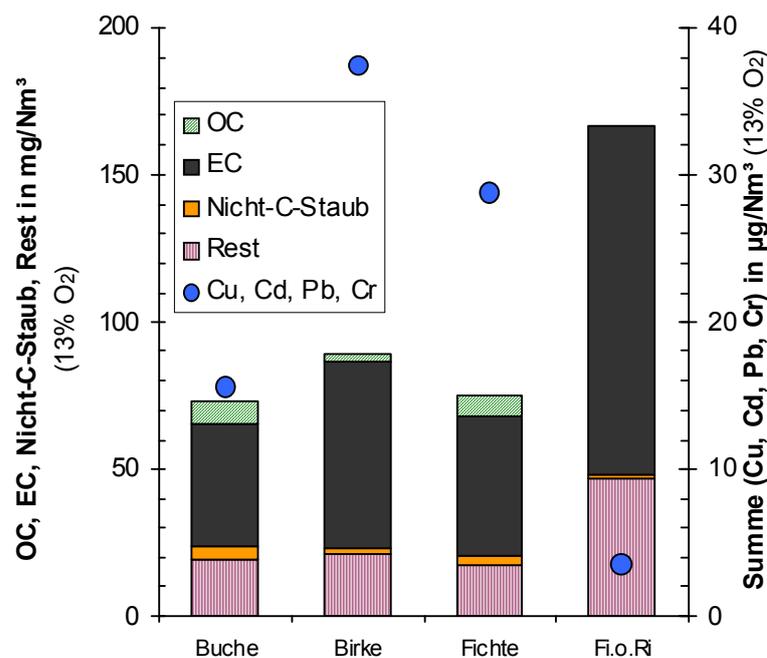


Abb. 4-3: Einfluss der Holzart in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Staubzusammensetzung aus organischem (OC) und elementarem (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat, Chlorid und Ammonium) und Rest, sowie separat als Konzentration im Abgas dargestellt die Summe der Schwermetalle Cu, Cd, Pb, Cr. Brennstoffe: Buchenscheitholz (w = 11 %), Birkenscheitholz (w = 12 %), Fichtenscheitholz (w = 10 %), Fichtenscheitholz ohne Rinde (Fi.o.Ri.; w = 10 %) (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Die Nicht-Kohlenstoff-Komponenten haben in allen vier Varianten einen niedrigen Anteil, wobei sie bei der Buche noch am höchsten ausgeprägt sind (Details zu Ionen und Metallen siehe Anhang 9). In allen vier Varianten hat der Anteil der Stäube aus vollständiger Verbrennung eine relativ niedrige Bedeutung. Bei den betrachteten Schwermetallen gibt es eine sehr

große Variationsbreite, wobei für Fichte ohne Rinde ein sehr niedriger Wert vorliegt, gefolgt vom Messwert für Buche. Fichte und Birke zeigen deutlich höhere Werte.

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Bezüglich der toxikologisch besonders relevanten Summe der PAK und des Benzo[a]pyrens liegen Buche, Birke und Fichte auf einem ähnlichen Niveau, wobei die Werte bei den beiden durchgeführten Analysen der Stäube aus der Birkenverbrennung relativ weit streuen (Abb. 4-4).

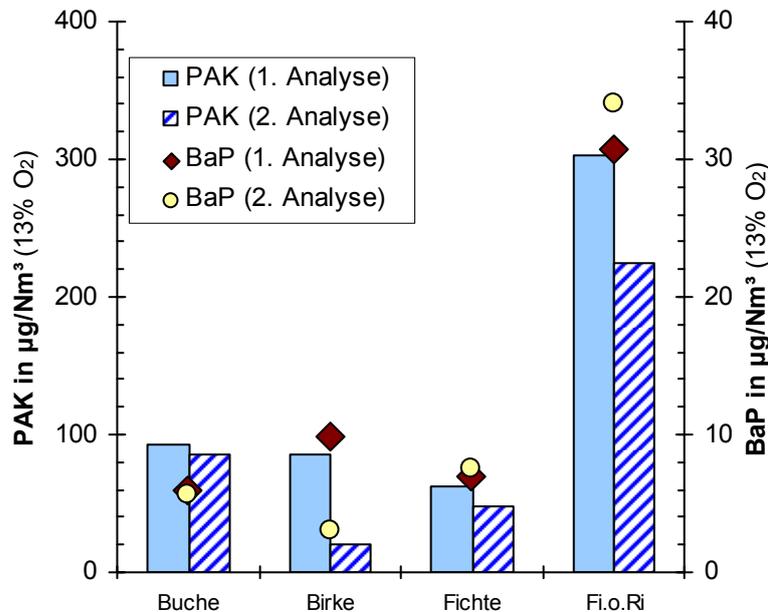


Abb. 4-4: Einfluss der Holzart in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoffe: Buchenscheitholz (w = 11 %), Birkenscheitholz (w = 12 %), Fichtenscheitholz (w = 10 %), Fichtenscheitholz ohne Rinde (Fi.o.Ri.; w = 10 %) (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Im Mittel zeigt die Birke die niedrigsten Werte. Bezüglich der PAK liegen die Werte bei Fichte leicht unter denen für Buche und bezüglich des Benzo[a]pyrens etwas über denen der Buche. Die Analyse-Werte für die Stäube der Fichte ohne Rinde liegen sowohl für die PAK als auch für das Benzo[a]pyren sehr deutlich über denen der drei anderen Brennstoffvarianten.

Anhand der grafischen Darstellung der Einzelanalysewerte der zehn ausgewählten EPA-PAK (Kapitel 3.2.2) wird die gute Übereinstimmung in der Doppelbestimmung der PAK bei der Buche, der Fichte und der Fichte ohne Rinde deutlich (Abb. 4-5).

Bei der Birke fällt eine vergleichbare relative Verteilung auf, wobei die erste Analyse meist etwa drei- bis fünfmal so hohe Einzelwerte aufweist wie die zweite Analyse. Eine besondere Stellung weisen Fluoranthren und Pyren auf, die sowohl bei der Buche als auch bei der ersten Analyse der Fichte ohne Rinde hohe Werte vorweisen, jedoch bei den anderen Analysen – insbesondere auch bei der zweiten Analyse der Fichte ohne Rinde – fast keine Rolle spielen. Abgesehen von dieser Auffälligkeit weisen alle acht Analysen eine sehr ähnliche relative Mengenverteilung der Einzel-PAK zueinander auf.

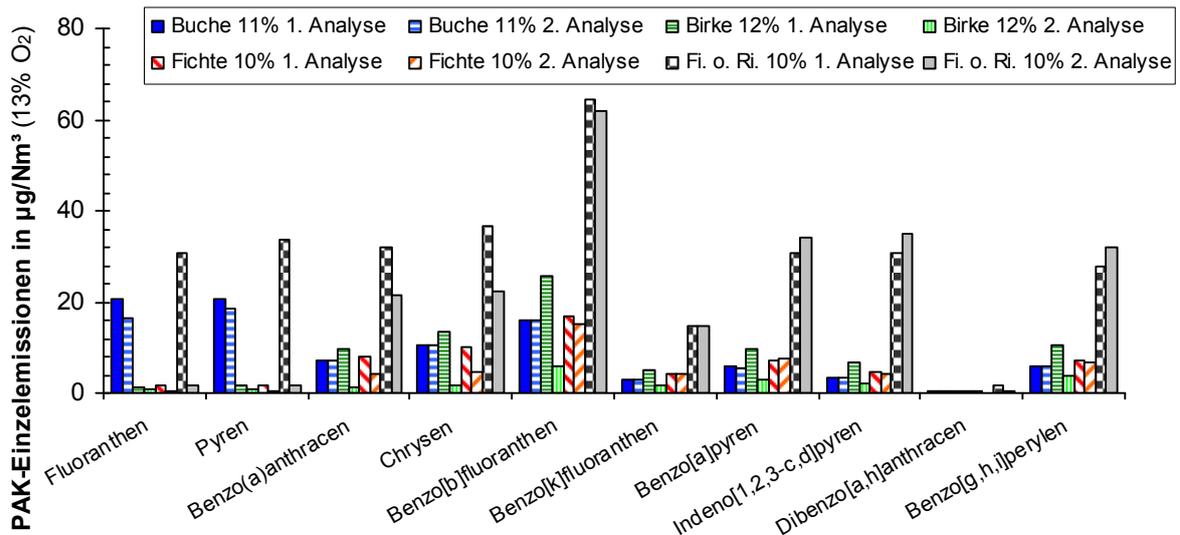


Abb. 4-5: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die acht durchgeführten PAK-Analysen der Variation des Brennstoffs im Kaminofen ohne automatische Luftregelung (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

4.1.3 Bewertung und Minderungsansätze

Grenzwerteinordnung.

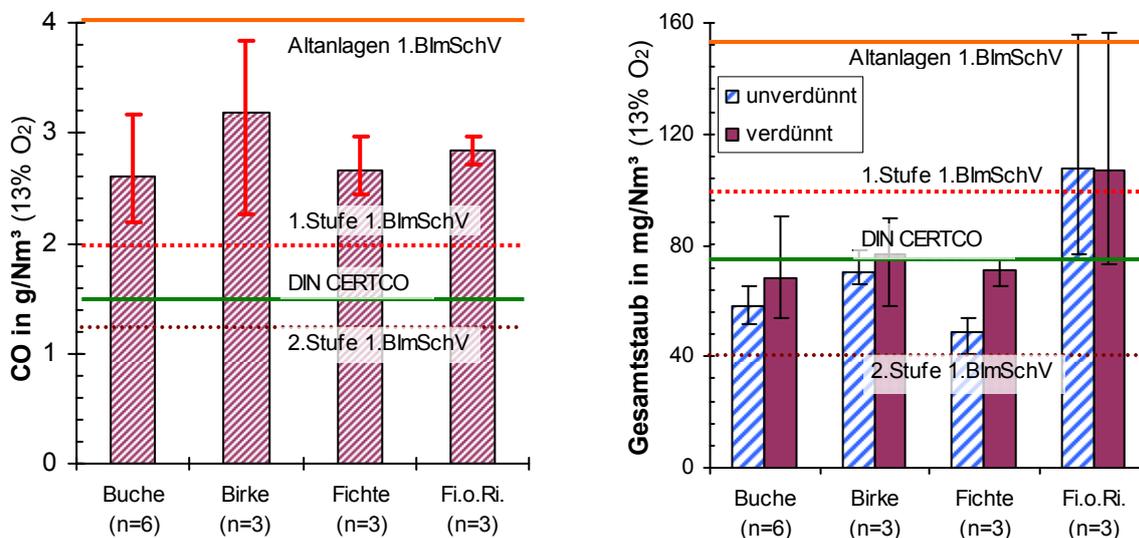


Abb. 4-6: Vergleich der Kohlenstoffmonoxidemissionen (links) und der Staubemissionen (rechts) mit den Grenzwerten der novellierten 1.BImSchV [17] und den Kriterien des DIN CERTCO Labels „schadstoffarme Verbrennung“ [80]

Bei den Versuchen zu den Holzarten handelt es sich insbesondere beim Buchenscheitholz und beim Fichtenscheitholz um die Basisversuche, auf die sich die weitere Versuchsauswertung in diesem Kapitel bezieht. Deshalb sollen die Messergebnisse mit den Grenzwerten für Kohlenstoffmonoxid und Gesamtstaub der Kleinanlagenfeuerungsverordnung (1.BImSchV)

[17] und den entsprechenden Kriterien des DIN CERTCO Label⁹ für „schadstoffarme Verbrennung“ [80] verglichen werden (Abb. 4-6).

Alle vier Brennstoffe liegen mit allen Einzelmessungen unterhalb des in der novellierten 1. BImSchV für Altanlagen vorgesehenen Grenzwertes von maximal 150 mg/Nm³ Staub und 4 g/Nm³ CO. Der CO-Grenzwert der ersten Stufe für Neuanlagen mit 2 g/Nm³ würde in keinem Fall eingehalten werden. Der Staubgrenzwert für Neuanlagen der ersten Stufe wäre mit 75 mg/Nm³ im unverdünnten Abgas für die Brennstoffe Buche, Birke und Fichte einhaltbar. Der Grenzwert der zweiten Stufe mit 40 mg/Nm³ würde mit allen Brennstoffen verfehlt [17]. Die nach dem DIN CERTCO Label⁹ für „schadstoffarme Verbrennung“ geforderten Kriterien würden mit den Brennstoffen Buche, Birke und Fichte bezüglich Staub und C_nH_m eingehalten. Lediglich beim CO würde die Vorgabe für alle Brennstoffe verletzt [80].

Bewertung der Emissionsänderungen. Von dem für Scheitholz-Kaminöfen relativ niedrigen Emissionsniveau der Verbrennung von Buchenscheithölzern ausgehend ergeben sich sehr differenzierte Veränderungen zu den Verbrennungsprodukten der Birke und der Fichte (Tabelle 4-1).

Tabelle 4-1: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen zwischen den Brennstoffvariationen (Buche, Birke, Fichte, Fichte ohne Rinde – Fi.o.Ri.) am Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
Birke zu Buche	++	0	+++	--	-	-	---	+++	0
Fichte zu Buche	++	-	0	0	-	0	--	+++	0
Fi.o.Ri. zu Buche	--	---	+++	---	0	0	+++	+++	--
Fi.o.Ri. zu Fichte	--	--	+++	---	++	0	+++	++	--

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Bezogen auf das absolute Niveau und in Anbetracht der sehr ähnlichen Gesamtstaubwerte und der Mischung aus positiven und negativen Veränderungen bei den PAK und dem BaP können Buche, Birke und Fichte als weitgehend gleichwertig in der Verbrennung trockener Scheite unter den vorgegebenen Brennstoffmengen, dem niedrigen Wassergehalt und einer üblichen Stückigkeit angesehen werden.

Einen deutlichen Ausreißer stellt die Verbrennung von Fichte ohne Rinde dar. Während die OC-Freisetzung sowie die Freisetzung an Schwermetallen und Nicht-C-Staub deutlich gemindert sind, liegen sowohl der Gesamtstaub als auch die toxikologisch besonders relevanten PAK- und BaP-Werte deutlich über denen der anderen drei Varianten. Insofern führt der Einsatz von Fichte ohne Rinde sowohl im Vergleich zu Buchenscheitholz als auch zu Fichtenscheitholz zu einer deutlichen Erhöhung der Emissionen.

⁹ CO ≤ 1,5 g/Nm³, C_nH_m ≤ 120 mg/Nm³ und Staub ≤ 75 mg/Nm³ bei 13 % O₂ [80]

Erklärungsansätze. Das vergleichbare Emissionsniveau bei Buche, Birke und Fichte ist aus Sicht der Inhaltsstoffe zu erklären, da die wesentlichen Unterschiede bei den Spurenstoffen auftreten, diese aber nur einen kleineren Anteil an den Gesamtstaubemissionen ausmachen (vergleiche auch Mengen an Nicht-C-Staub in Abb. 4-3). Durch die Aufgabe der gleichen Brennstoffmasse unterscheidet sich die Summe der Energiefreisetzung nicht grundsätzlich voneinander. Durch die gleiche Anzahl an Scheiten mit jeweils gleicher Masse ergibt sich beim Nadelholz aufgrund der geringeren Rohdichte lediglich eine etwas größere Oberfläche je Scheit, die zu einer etwas höheren Gasbildung pro Scheit führen könnte. Dieser Effekt dürfte durch den geringeren Energieinhalt je Flächenstück gemindert werden.

Die mit rund einem Viertel geringeren Aschebestandteile der Fichte ohne Rinde im Vergleich zur Fichte (Tabelle 3-1 und Tabelle 3-2) könnten sich letztlich in dem niedrigeren Gehalt an Nicht-C-Staub widerspiegeln. Ein vergleichsweise niedriger Ca-Gehalt bei gleichzeitig sehr hohem Silizium-Gehalt der Fichtenbrennstoffe könnte zu gewissen Störungen im Glutbett und damit zu einer erhöhten Freisetzung entsprechender Verbindungen als Partikel führen. Grundsätzlich könnte die z. B. im Vergleich zur Buche etwas größere Luftüberschusszahl bei gleichzeitig höchster Abgastemperatur auf eine etwas heftigere und gleichzeitig weniger gleichmäßige Reaktion mit stärkeren Störungen in der Durchmischung hindeuten. In diesem Fall könnte eine größere Menge von Partikeln aus dem Glutbett gerissen werden und gleichzeitig der Kohlenstoffausbrand (EC) zusammen mit dem Ausbrand der PAK und des BaP durch kalte Zonen gemindert sein, nachdem durch die hohen Temperaturen im Brennraum zwar der OC-Ausbrand verbessert, aber auch die PAK- und EC-Bildung unterstützt wurde.

Die große Variation der PAK- und BaP-Werte bei der Birke könnte auf den deutlich höheren Luftüberschuss und der um rund 10 K niedrigeren Abgastemperatur bei der zweiten Analyse zurückzuführen sein. Mehr Sauerstoff bei gleichzeitig niedrigeren Temperaturen im Verbrennungsraum vermindert die Ausdehnung der heißen sauerstoffarmen Zonen, so dass die Bildung von PAK insgesamt und des BaP gehemmt ist.

Minderungsansätze. Kaminöfen werden in Deutschland vom Hersteller häufig konstruktiv auf Laubholzscheite mit Rinde ausgelegt. Daher sollten rindenlose Nadelholzscheite nicht in entsprechenden Anlagen eingesetzt werden.

Fazit. Insgesamt ist für den Einsatz der Brennstoffe Buche, Birke und Fichte mit Rinde keine eindeutige Präferenz anzugeben. Aufgrund der hohen CO-Werte ist über eine automatisch kontrollierte Luftzugabe auf jeden Fall nachzudenken. Dies könnte auch dazu beitragen, die deutlich höheren Emissionen bei der Fichte ohne Rinde auf das Niveau der anderen Brennstoffe zu senken und die teilweise großen Schwankungen in den toxikologisch besonders relevanten Emissionen an PAK und z. B. BaP aufgrund der Änderung der Einflussfaktoren Abgastemperatur und Luftüberschusszahl zu verringern.

4.2 Wassergehalt

Bei Scheitholz kann der Wassergehalt in einem weiten Bereich schwanken. Für den Einsatz in Kaminöfen wird in der Regel lufttrockenes Holz eingesetzt, was einem Wassergehalt von 12 bis 18 % entspricht. Beim Einschlag hat das Holz je nach Alter, Jahreszeit des Einschlags und Baumart zwischen 40 und 65 % Wassergehalt. Innerhalb des Baumes weist das mit den Leitungsgefäßen zur Versorgung des Baumes versehene Splintholz höhere Wassergehalte auf als das geringeren jahreszeitlichen Schwankungen unterliegende Kernholz [111], so dass es in

der Praxis bei nicht ausreichender Trocknung in einem Scheit zu unterschiedlichen Wassergehalten kommen kann.

4.2.1 Emissionsmessergebnisse

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Bereits bei einer Steigerung des Wassergehalts des Buchenscheitholzes von 11 auf 20 % kommt es zu einer nennenswerten Zunahme der Emissionen an CO und C_nH_m , obwohl die Abgastemperatur nur minimal sinkt und die Luftüberschusszahl leicht zunimmt (Abb. 4-7). Mit dem Übergang auf 30 % Wassergehalt steigt das CO um das Drei- bis Vierfache und die organischen gasförmigen Komponenten steigen auf fast den 40-fachen Wert im Vergleich zu einem Wassergehalt von 11 %. Damit muss bei 30 % Wassergehalt davon ausgegangen werden, dass die für eine vollständige Verbrennung notwendige Verweilzeit bei ausreichend hohen Temperaturen nicht erreicht wird.

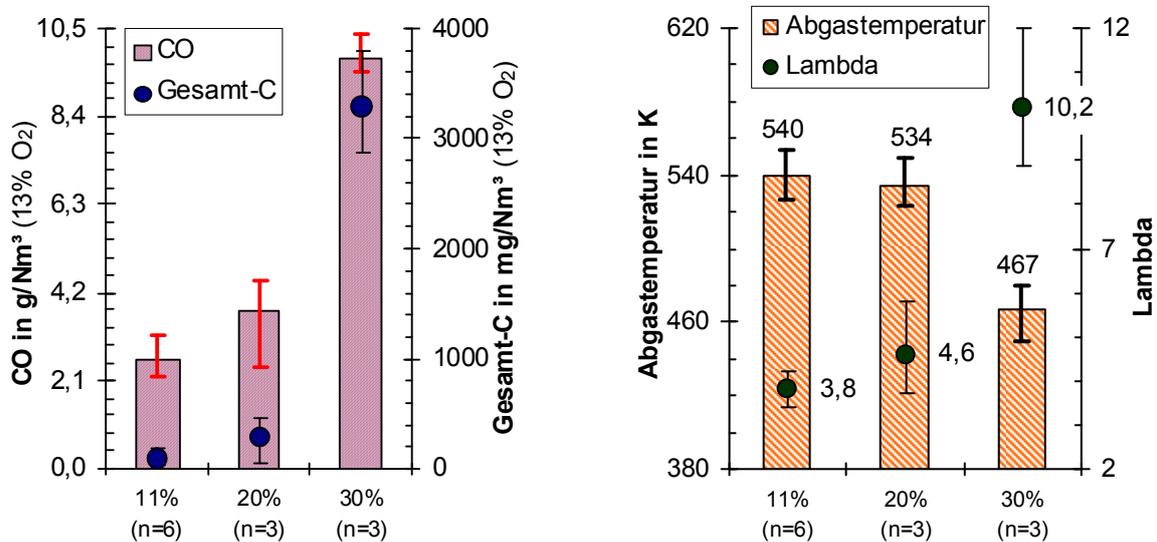


Abb. 4-7: Einfluss des Brennstoffwassergehalts in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO, Gesamt-C, Abgastemperatur und Lambda. Brennstoffe: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % bzw. äquivalente Masse bei 20 % / 30 % Wassergehalt (n = Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Der Anstieg des Wassergehalts des Buchenscheitholzes von 11 auf 20 % führt zu einer geringfügigen Minderung der Abgastemperatur um wenige Kelvin, gleichzeitig aber auch zu einer deutlichen Steigerung der Luftüberschusszahl um mehr als 20 % (Abb. 4-7). Mit dem Übergang auf 30 % Wassergehalt sinkt dann die Abgastemperatur drastisch um rund 70 K ab und gleichzeitig kommt es zu mehr als einer Verdopplung der Luftüberschusszahl.

Gesamtstaub. Die Variation des Wassergehalts bei Buchenholzscheiten zeigt mit rund 70 mg/Nm³ niedrige Feinstaubemissionen im verdünnten Abgas für 11 % und 20 % Wassergehalt mit einem sehr deutlichen Anstieg auf über 1 100 mg/Nm³ bei einem Wassergehalt von 30 % (Abb. 4-8). Bei diesen sehr nassen Scheiten kommt es größtenteils zu einem Schwelbrand mit zu geringer Wärmeproduktion für eine rasche Trocknung des Holzes.

Sehr ausgeprägt sind insbesondere bei einem Wassergehalt von 30 % die Unterschiede in den Messergebnissen zwischen unverdünntem und verdünntem Abgas. Diese ergeben sich durch einen hohen Anteil an Kohlenwasserstoffverbindungen (Abb. 4-7), die erst mit der Verdün-

nung auskondensieren und dadurch gravimetrisch auf den Filterproben nachweisbar werden. Die bei den verdünnten im Vergleich zu den unverdünnten Messungen deutlich größeren Fehlerbalken deuten auf die Schwierigkeit der Erfassung von kondensierten Kohlenwasserstoffen hin. Dies zeigt, dass ohne die Messung im verdünnten Abgas die Staubemissionen bei einem Wassergehalt von 30 % um fast eine Größenordnung unterschätzt würden.

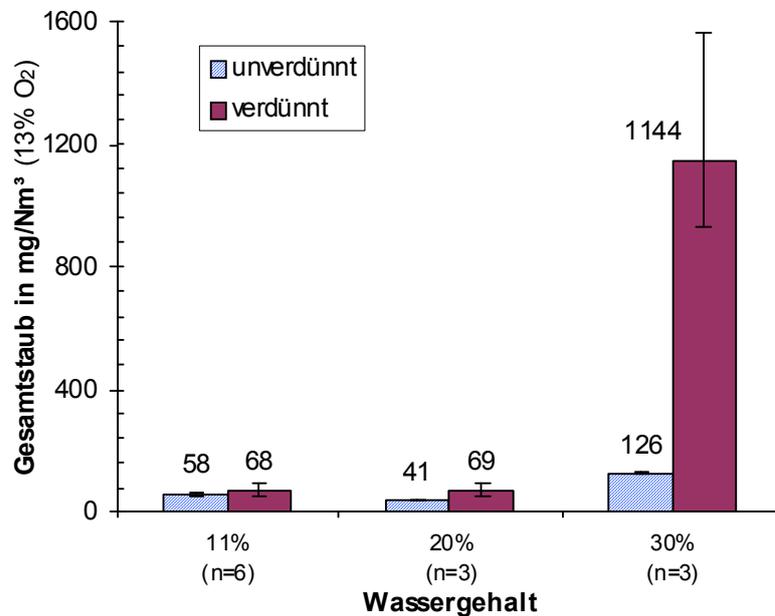


Abb. 4-8: Einfluss des Wassergehalts in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf Gesamtstaubgehalt im unverdünnten und im verdünnten Abgas. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % bzw. äquivalente Masse bei 20 % / 30 % Wassergehalt (n = Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

4.2.2 Analyseergebnisse

Hauptinhaltsstoffe. Während zwischen 11 und 20 % Wassergehalt die Summe aus elementarem und organischem Kohlenstoff nur leicht steigt, kommt es zu einem sehr starken Anstieg beim Übergang auf 30 % (Abb. 4-9). Beginnend mit dem Übergang von 11 auf 20 % und fortgesetzt zu 30 % Wassergehalt verschiebt sich das Verhältnis zwischen organisch gebundenem zu elementar gebundenem Kohlenstoff deutlich hin zum organisch gebundenen Kohlenstoff. Der stark anwachsende Rest bei 30 % Wassergehalt ist primär durch die zu den als Kohlenstoff erfassten organischen Kohlenwasserstoffen gehörenden Sauerstoff- und Wasserstoffmassen bestimmt.

Der Nicht-Kohlenstoff-Staub verdoppelt sich in seiner Menge bei einem Anstieg von 11 % auf 20 % Wassergehalt, um dann weitgehend konstant zu bleiben (Abb. 4-9). Die Schwermetall-emissionen sinken von 11 % Wassergehalt auf 20 % zunächst deutlich ab, um danach beim Übergang auf 30 % wieder auf das beinahe gleiche Niveau zu steigen.

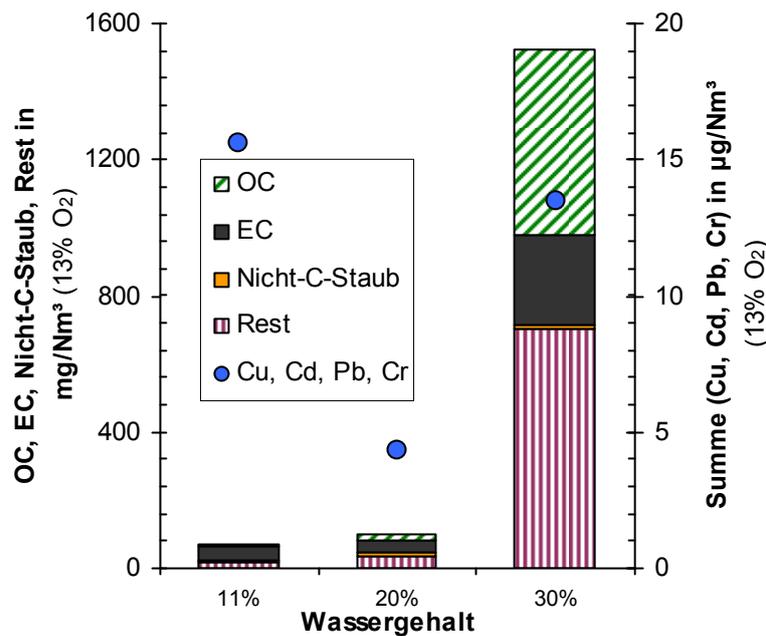


Abb. 4-9: Einfluss des Brennstoffwassergehalts in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf organischen (OC) und elementaren (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat Chlorid und Ammonium) und Rest sowie separate als Anteil dargestellt die Schwermetallgehalte als Summe aus Cu, Cd, Pb, Cr bezogen auf die zugehörige gemessene Staubmenge im verdünnten Abgas. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % bzw. äquivalente Masse bei 20 % / 30 % Wassergehalt (Details zu Ionen und Metallen siehe Anhang 9; Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Trotz signifikanter Steigerung von CO und Gesamt-C im Abgas (Abb. 4-8) ergibt sich bei einer Zunahme des Wassergehalts im Brennstoff von 11 % auf 20 % eine leichte Absenkung der PAK-Emissionen (Abb. 4-10). Für 30 % Wassergehalt kommt es demgegenüber im Mittel aus zwei Analysen zu einer Steigerung der auf den Feinstaubfiltern nachweisbaren PAK, die im ersten Versuch sehr deutlich und im Zweiten nur leicht ausfällt.

Deutlich wird auch, dass sich die Menge an Benzo[a]pyren mit dem Anstieg auf 20 % Wassergehalt im Mittel der beiden Analysen etwa verdoppelt und dann im Mittel für den Wassergehalt von 30 % auf dem gleichen Niveau verbleibt bzw. sogar leicht absinkt.

Bis auf Benzo[k]fluoranthen sind ganz unterschiedliche Mengen der einzelnen untersuchten PAK (Kapitel 3.2.2) in Abhängigkeit vom Wassergehalt der Buchenholzscheite nachzuweisen (Abb. 4-11). Für den Wassergehalt von 11 % und 20 % sind die Ergebnisse der jeweiligen Doppelanalyse relativ ähnlich. Auch die beiden PAK-Grafen für 30 % Wassergehalt folgen dem gleichen Verlauf, wobei die erste Analyse fast durchgehend etwa doppelt so hohe absolute Werte zeigt wie die zweite Analyse. Im Mittel weisen die Versuche mit 20 % Wassergehalt die höchsten Mengen an höhermolekularen PAK auf, während Fluoranthen, Pyren, Benzo[a]anthracen und Chrysen vor allem bei der 11 %- und der 30 %-Variante auftreten.

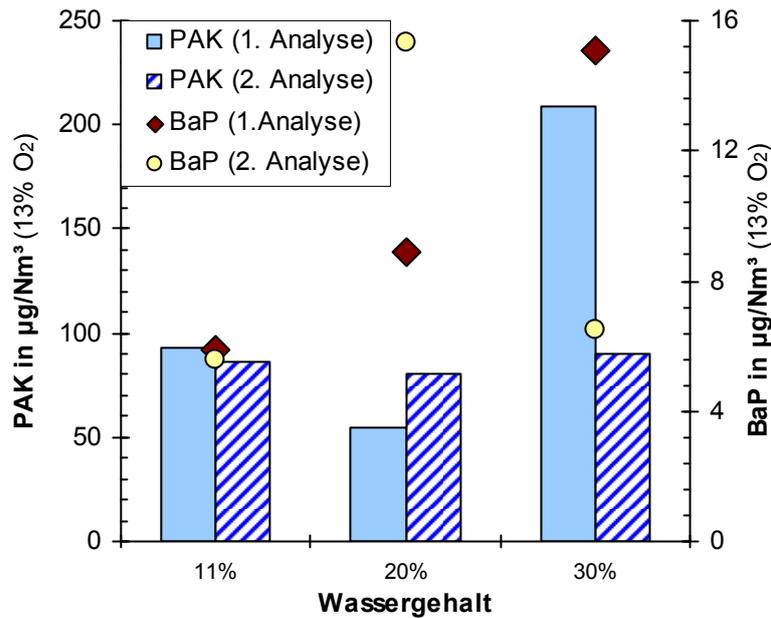


Abb. 4-10: Einfluss des Brennstoffwassergehalts in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % bzw. äquivalente Masse bei 20 % und 30 % Wassergehalt (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

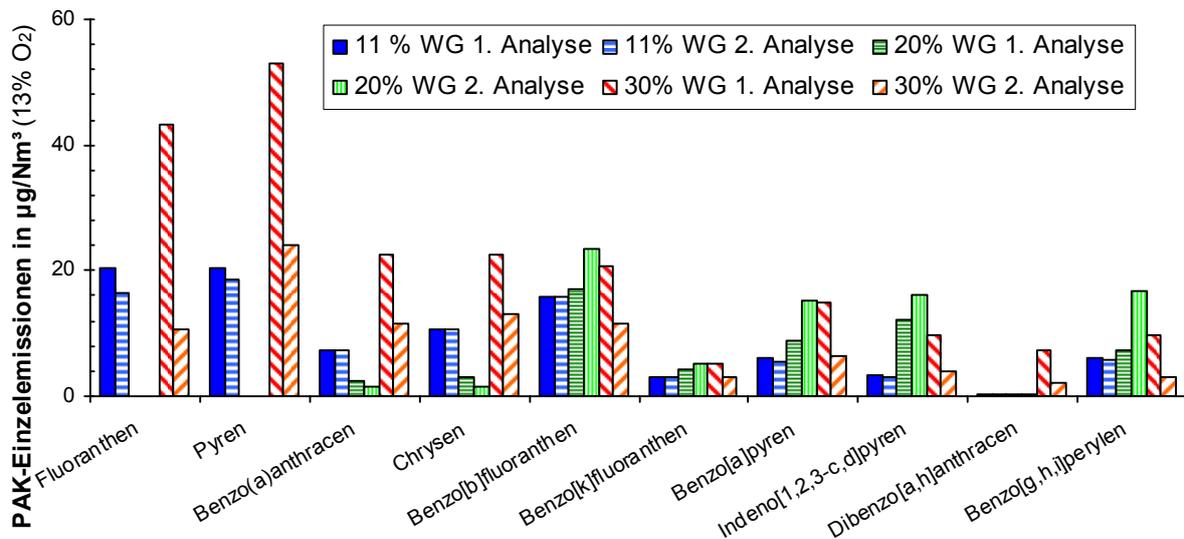


Abb. 4-11: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die sechs durchgeführten PAK-Analysen der Variation des Wassergehalts bei Buchenscheiten im Kaminofen ohne automatischen Luftklappe (11 %, 20 % und 30 % jeweils zwei Analysen; Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

4.2.3 Bewertung und Minderungsansätze

Bewertung der Emissionsänderungen. Tabelle 4-2 zeigt die Ergebnisse aus den Kapiteln 4.2.1 und 4.2.2 zusammenfassend auf der Basis des Bewertungsschemas nach Tabelle 3-8 bezüglich des Ausmaßes der jeweiligen Veränderung zum Referenzfall Buche 11 %.

Tabelle 4-2: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen zwischen den Wassergehaltsvariationen (11 %, 20 % und 30 %) am Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
20 % zu 11 %	+	--	--	0	--	-	+++	+++	0
30 % zu 11 %	--	-	---	---	---	---	+	+++	---

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Neben der in Tabelle 4-2 dargestellten sehr deutlichen Verschlechterung des Emissionsbildes zwischen einem Wassergehalt von 11 % und einem von 30 % deuten auch der starke Abfall der Abgastemperatur und der Anstieg auf sehr hohe Lambda-Werte auf eine erhebliche Störung des Verbrennungsbetriebs hin (Abb. 4-7 rechts). Dies konnte bei der Durchführung der Versuche an dem häufig auftretenden Schwelbrand im Ofen bestätigt werden.

Während die Bewertung des Übergangs von 11 % Wassergehalt auf 30 % bezüglich der Schadstoffemissionen und deren Toxizität eindeutig zu Ungunsten der 30 % Variante ausfällt, stellt sich das Bild für den Übergang von 11 % auf 20 % uneinheitlicher dar. Während die Gesamtstaubmenge konstant bleibt, nehmen der Schwermetallgehalt und die Menge an Nicht-Kohlenstoff-Feinstaub deutlich ab. OC, C_nH_m und CO nehmen leicht bis deutlich zu. Im Unterschied zu den anderen Emissionen zeigt sich bei der Verteilung der PAK zueinander und den anderen Inhaltsstoffen der Stäube bereits bei einem Anstieg des Wassergehalts von 11 % auf 20 % eine prägnante Veränderung, wobei auffällt, dass sich in dem gewählten Variationsbereich zwar die Zusammensetzung sehr deutlich, die Summenwerte aber nur wenig verändern. Toxikologisch besonders relevant erscheint die Zunahme der Benzo[a]pyren-Emission; gleichzeitig nimmt aber die Gesamtmenge der PAK inklusive des Benzo[a]pyrens ab. Da derzeit noch keine Möglichkeit besteht, die Änderung der Summe der PAK im Vergleich zur Veränderung der Zusammensetzung der PAK abzuwägen, kann bezüglich der Wassergehaltsänderung von 11 % auf 20 % keine abschließende Bewertung getroffen werden.

Erklärungsansätze. Ein höherer Wassergehalt im Brennstoff kann eine Hemmung der Verbrennungsreaktionen und eine Abkühlung des Glutbetts mit sich bringen. Generell scheint mit abnehmender Glutbetttemperatur die Entstehung von Nicht-Kohlenstoff-Feinstaub gemindert, wobei die Schwermetallfreisetzung beim Übergang von 20 % Wassergehalt auf 30 % wieder ansteigt; dies könnte an einer zunehmenden Oxidation einiger der Schwermetalle liegen, da durch die gehemmte Verbrennung mehr Sauerstoff im Glutbett verfügbar sein könnte.

Ausreichende Temperaturen und ein mehr an OH-Radikalen bei 20 % Wassergehalt könnten dazu führen, dass insbesondere die niedermolekularen PAK wie Fluoranthen, Pyren, Benzo[a]anthracen und Chrysen verstärkt nach der Entstehung abgebaut werden. Dafür verbleiben vermehrt die toxikologisch besonders relevanten PAK Benzo[a]pyren und Indeno[1,2,3-c,d]pyren im Abgas.

Trotz des sehr hohen Sauerstoffangebots bei 30 % Wassergehalt dürfte die Verbrennungstemperatur so niedrig und die Verweilzeiten bei ausreichend hohen Temperaturen so kurz sein, dass weder die aus der pyrolytischen Zersetzung entstandenen organischen Komponenten noch die nach der Bildung am Brennstoff entstandenen PAK und BaP vollständig abgebaut werden können. Durch die frühe Abkühlung könnten auch die teilflüchtigen PAK Fluoranthen und Pyren auf größeren Partikeln kondensieren, so dass sie verstärkt messtechnisch mit dem gesammelten Staub erfasst werden. Möglicherweise führen zudem zunehmende Wasser-

dampfstrahlen im Feuerraum zu verschlechterten Durchmischungsverhältnissen und damit zu einer veränderten Schadstoffbildung.

Minderungsansätze. Der hohe Einfluss des Wassergehalts auf die Qualität der Verbrennung ist wesentlich durch die fehlenden Nachregelmöglichkeiten bei dem untersuchten Kaminofen zu Stande gekommen. Insofern sind zwei Wege für eine dauerhafte Verbesserung denkbar.

Zum einen kann die Qualitätskontrolle im Hinblick auf den Wassergehalt der Brennstoffe ausgebaut werden. Hierzu können die Nutzer – wie in der 1. BImSchV vorgesehen [17] – z. B. vom Schornsteinfeger geschult werden. Überall wo der Platz für eine ausreichende Trocknungszeit fehlt, dürften ggf. nur noch zertifizierte Scheithölzer aus dem Fachhandel und nach trockener Vorratshaltung eingesetzt werden.

Zum anderen können entsprechende technische Komponenten an und in den Kaminöfen integriert werden, um mit den Schwankungen des Wassergehalts besser umzugehen. Hierzu könnten als einfachste Maßnahme CO- oder C_nH_m -Sensoren bei Überschreitung eines Schwellenwertes ein Alarmsignal geben, so dass der Nutzer auf die gestörte Verbrennung aufmerksam wird und Gegenmaßnahmen ergreifen kann. Dies könnte hohe Wassergehalte (hier z. B. 30 %) ausschließen. Weiterhin wäre eine Anpassung der Luftregelung an ein CO- und/oder C_nH_m -Signal vorstellbar, um kleinere Schwankungen im Wassergehalt zu kompensieren und bei größeren Schwankungen erst nach misslungener Nachregelung ein Alarmsignal zu geben und parallel die Verbrennung durch Abschotten der Luftzufuhr zu stoppen. Dies würde luftdicht schließende Konstruktionen erfordern, bei denen die Luft gezielt über den natürlichen Schornsteinzug in Kombination mit Klappen zur Minderung oder mittels Gebläse dosiert werden kann. Der Optimalfall wäre eine Ergänzung des geregelten Systems um eine Vortrockenzone für den Brennstoff in Kombination mit einer automatischen Nachbefüllung über einen Vorratsschacht. Damit wären dann auch Wassergehalte von 30 % tolerierbar.

Fazit. Die Ergebnisse zeigen eine hohe Relevanz des Wassergehalts bezüglich der Qualität der Verbrennung und damit auch auf Menge und Toxizität der Feinstäube. Aufgrund der fehlenden Vortrocknungsmöglichkeit in heute marktüblichen Kaminöfen und der aus toxikologischer Sicht sich andeutenden hohen Bedeutung auch kleiner Wassergehaltsänderungen kommen die Betreiberschulung und die Weiterentwicklung der Feuerungen – z. B. integrierte Vortrocknung, geregelte Luftdosierung, Sensorik zur Signalisierung von Störungen - als Minderungsansätze zu besonderer Bedeutung. Unter Berücksichtigung des technischen Aufwands Scheitholz von einem lufttrockenen Wassergehalt von 12 bis 18 % auf einen Wassergehalt von 11 % zu trocknen und dann auch trocken zu halten, erscheint der Einsatz von lediglich lufttrockenem Holz bei Buche im untersuchten Kamin als angemessen.

4.3 Stückigkeit

Kaminöfen sind für die Verbrennung von Holzscheiten vorgesehen. Hackschnitzel oder Späne lassen sich meist nur schlecht verbrennen. Holzscheite können grundsätzlich in der Länge und dem Querschnitt variieren. Der Brennstoffhandel bietet typischerweise gewisse Standardlängen (z. B. 25 cm) an, für die die meisten Hersteller ihre Kaminöfen in der Breite auslegen. Mit diesen Scheitlängen kann dann auch das vom Kaminofen-Hersteller vorgesehene Flammbild erreicht werden. Um nicht gleichzeitig zwei Variablen zu verändern, wird im Folgenden die Stückigkeit anhand gleicher Scheitlänge, aber unterschiedlichem Querschnitt untersucht. Dies entspricht auch der praktischen Herstellung von Holzscheiten. Die Länge der Scheite kann mit der Säge gut eingestellt werden. Der Querschnitt variiert beim manuellen Hacken

sehr stark und ist selbst beim teilmaschinellen Spalten stark vom Querschnitt des verarbeiteten Holzstammes abhängig.

Im Rahmen der Betriebsvariation „Stückigkeit“ werden als Standardfall Buchenscheite mit einem Wassergehalt von 11 % als „Sollscheite“ nach der Massenvorgabe des Kaminofen-Herstellers definiert (0,7 kg). „Halbscheite“ haben eine Masse von 0,35 kg und „Doppelscheite“ eine Masse von 1,4 kg. Die Anzahl der jeweils eingesetzten Scheite ergibt sich aus der vom Hersteller empfohlenen Auflagemenge von 1,4 kg je Auflage.

Hinzu kommt die Frage der Sphärizität, d. h. von möglichen Auswüchsen aus dem Grundscheid (z. B. durch Astansätze oder Auffaserungen beim Spalten), die sowohl die Oberfläche erhöhen als auch die Schichtung der Scheite in der Feuerung verändern und so zu Instabilitäten beim Abbrand führen können. Da es sich hierbei um sehr spezielle und wenig reproduzierbare Effekte handelt, wird die Sphärizität hier nicht untersucht.

4.3.1 Emissionsmessergebnisse

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Sowohl bei den Kohlenstoffmonoxidemissionen als auch bei den Emissionen an Kohlenwasserstoffen stellt sich der Sollscheite als die Variante mit den geringsten Emissionen dar (Abb. 4-12 links). Während der Halbscheite nur geringfügig höhere Emissionen in der Verbrennung aufweist, hat der Doppelscheite beim CO mehr als doppelt so hohe Emissionen und bei den Kohlenwasserstoffen mehr als eine Größenordnung höhere Emissionen als der Sollscheite.

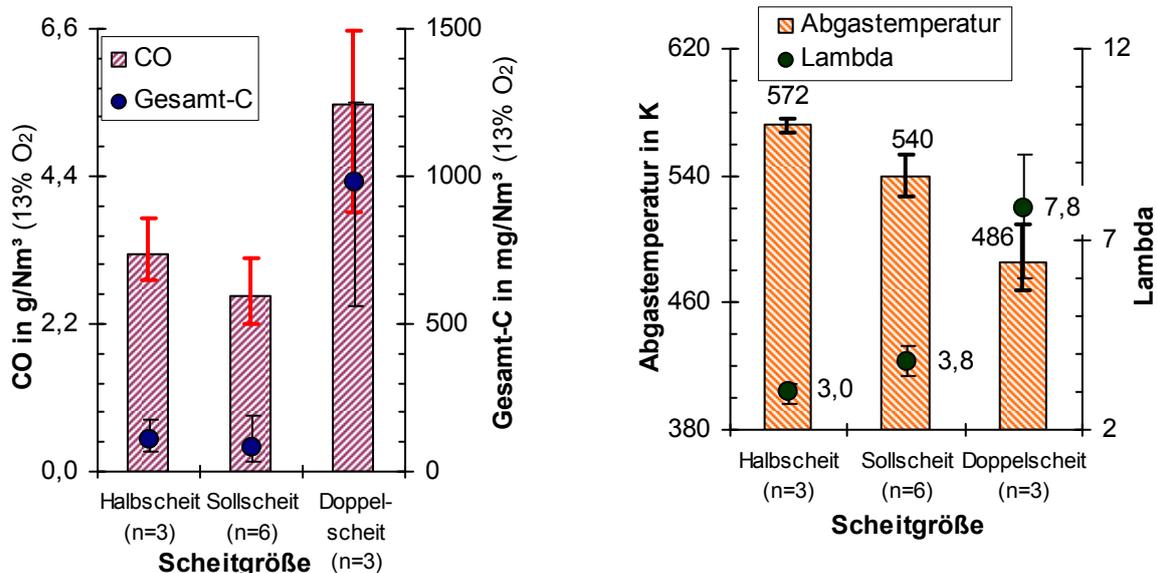


Abb. 4-12: Einfluss der Scheitgröße in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO, Gesamt-C (links), Abgastemperatur und Lambda (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz (w = 11 %) Halbscheite (0,35 kg), Sollscheite (0,7 kg) und Doppelscheite (1,4 kg) bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse von 1,4 kg (n = Anzahl Messungen)

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Die Scheitgröße korreliert direkt mit der Abgastemperatur und der Luftüberschusszahl (Abb. 4-12 rechts). Je größer der Scheit, umso niedriger ist die Abgastemperatur und desto höher ist bei dem konstant eingestellten Schornsteinzug die Luftüberschusszahl. Während beim Halbscheite die Abgastemperatur um mehr als 30 K im

Vergleich zum Sollscheit zunimmt, ist die mittlere Abgastemperatur beim Doppelscheit um fast 55 K niedriger.

Gesamtstaub. Auffällig sind die fast gleichen Staubemissionen im unverdünnten Abgas für die Halbscheite und den Doppelscheit (Abb.4-13). Bei Betrachtung der Staubemissionen im verdünnten Abgas erhöht sich das Ergebnis für den Doppelscheit um einen Faktor 3, während sich bei den Halbscheiten nur ein geringfügiger Anstieg ergibt. Insgesamt ist der Unterschied zwischen dem Sollscheit und dem Halbscheit bei beiden Gesamtstaubwerten deutlicher ausgeprägter als bei den Kohlenstoffmonoxid- und den Kohlenwasserstoffemissionen.

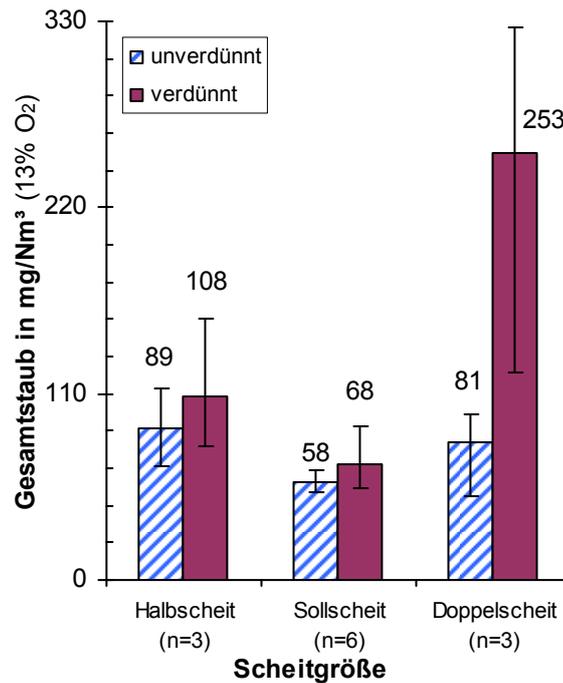


Abb.4-13: Einfluss der Scheitgröße in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Gesamtstaubemissionen im unverdünnten und verdünnten Abgas. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) Halbscheit (0,35 kg), Sollscheit (0,7 kg) und Doppelscheit (1,4 kg) bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse von 1,4 kg je Auflage ($n =$ Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

4.3.2 Analyseergebnisse

Hauptinhaltsstoffe. Auch die Ergebnisse der Analysen zeigen für die Variante mit der Verbrennung der Sollscheite die geringsten Werte (Abb. 4-14). Während bei der Verbrennung der Halbscheite die Menge des organischen Kohlenstoffes nur geringfügig zunimmt, kommt es zu mehr als einer Verdopplung der Masse der im verdünnten Abgas feststellbaren Konzentration an elementarem Kohlenstoff. Die Konzentration der erfassten kritischen Schwermetalle bleibt praktisch konstant (Anhang 9). In allen drei Varianten kommt es zu keiner signifikanten Änderung der Konzentration an Nicht-Kohlenstoff-Staub.

Bei der Verbrennung des Doppelscheits entsteht etwa 50 % mehr elementarer Kohlenstoff bezogen auf das Abgasvolumen bei 13 % O_2 . Gleichzeitig steigt die Konzentration an organischem Kohlenstoff um rund eine Größenordnung. Auch die Konzentration der Schwermetalle steigt auf fast das Dreifache.

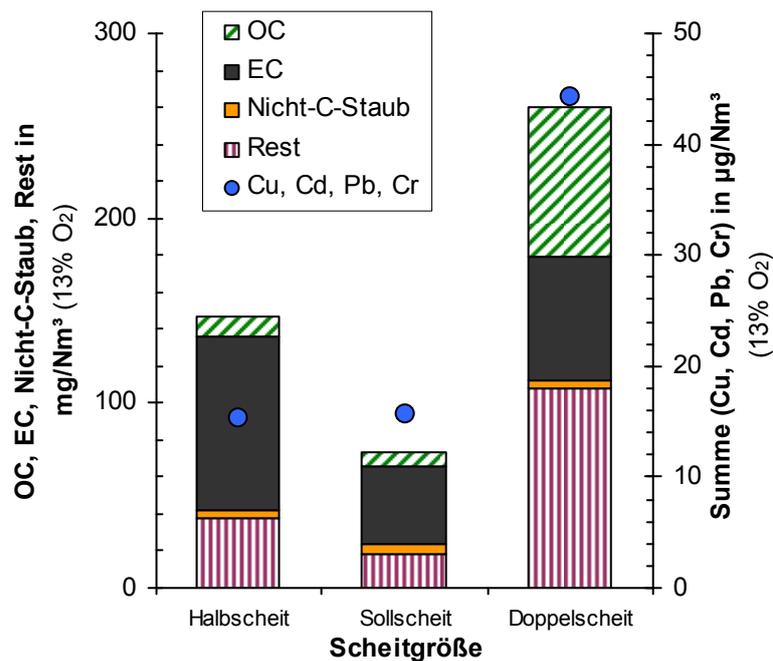


Abb. 4-14: Einfluss der Scheitgröße in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Staubzusammensetzung: organischer (OC) und elementarer (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat Chlorid und Ammonium) und Rest sowie separat als Konzentration im Abgas dargestellt die Summe der Schwermetalle aus Cu, Cd, Pb, Cr. Brennstoff: Halbscheit (0,35 kg), Sollscheit (0,7 kg) und Doppelscheit (1,4 kg) bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse von 1,4 kg je Auflage (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Im Unterschied zu obigen Ergebnissen zeigen PAK und BaP als Leitindikatoren für die toxikologische Relevanz der Feinstäube ein gegenläufiges Bild (Abb. 4-15). Während die PAK-Konzentration beim Doppelscheit nur um weniger als die Hälfte über der der Sollscheite liegt und auch der BaP-Wert nur etwa den doppelten Wert erreicht, steigt die PAK-Konzentration für die Halbscheite im Mittel auf rund das 3,5-Fache und die BaP-Konzentration im Mittel auf das 7-Fache.

Auffällig ist dabei, dass die Emissionskonzentrationen der ersten Analyse beim Halbscheit sowohl bei den PAK- als auch den BaP-Werten um mehr als doppelt so hoch ausfallen wie die Ergebnisse der zweiten Analyse. Der Vergleich der parallel zu den Analyseproben ermittelten Feinstaubemissionen zeigt mit 161 mg/Nm³ parallel zur Probe für die erste Analyse und 93 mg/Nm³ (bei 13 % O₂) bei derjenigen parallel zur Probennahme für die zweite Analyse ebenfalls einen fast doppelt so hohen Wert. Bezüglich des Luftüberschusses liegt dieser bei der ersten Analyse bei 2,7 und bei der Zweiten bei 3,1 (Anhang 8). Dies könnte ein Indiz für eine deutlich stärkere Störung der Verbrennung während der Probennahme zur ersten Analyse im Vergleich zur Zweiten sein.

Dieser Unterschied zwischen den beiden Halbscheit-Analysen findet sich auch bei den ausgewählten zehn höhermolekularen U.S. EPA-PAK (Kapitel 3.2.2) wieder, wobei sich die Relation zwischen den beiden Analysen bei deutlich unterschiedlicher Gesamthöhe der einzelnen Konzentrationen im Abgas grundsätzlich ähneln (Abb. 4-16).

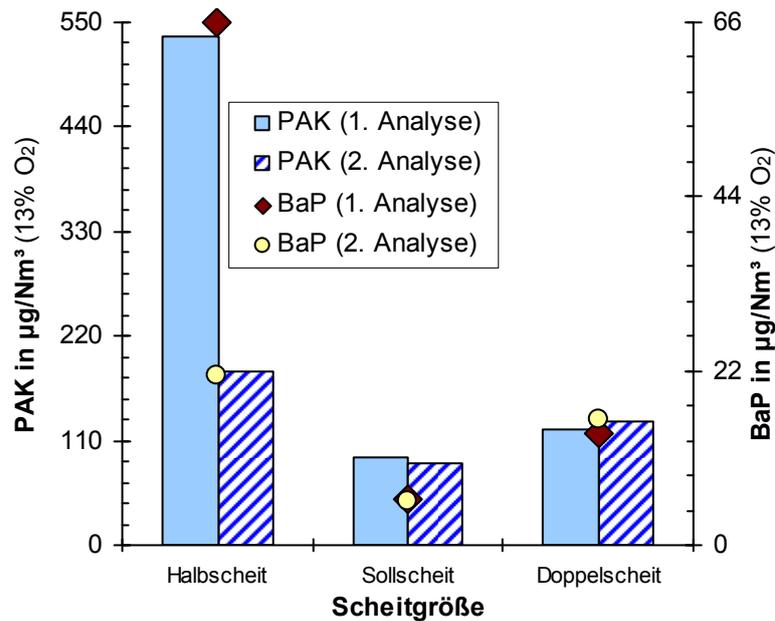


Abb. 4-15: Einfluss der Scheitgröße in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoff: Halbscheit (0,35 kg), Sollscheit (0,7 kg) und Doppelscheit (1,4 kg) bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse von 1,4 kg je Auflage (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

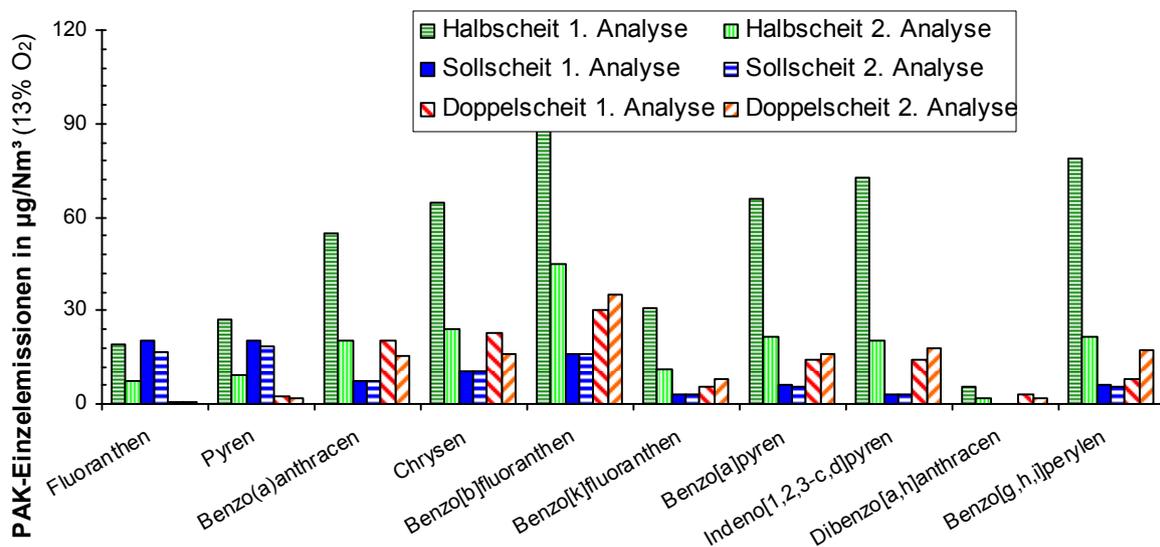


Abb. 4-16: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die sechs durchgeführten PAK-Analysen der Variation der Stückigkeit bei Buchenscheiten im Kaminofen ohne automatische Luftregelung (Brennstoff: halbe Scheite, Sollscheite und doppelt so schwere Scheite bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse, 11 % Wassergehalt; Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Insgesamt liegen die Analyseergebnisse aller drei Versuchsvarianten nicht nur auf einem unterschiedlichen Konzentrationsniveau, sondern zeichnen sich auch für jede Variante durch eine abweichende Relation der Konzentrationen zueinander aus.

4.3.3 Bewertung und Minderungsansätze

Bewertung der Emissionsänderungen. Abgesehen von minimalen Minderungen der Emissionen bei den Nicht-Kohlenstoff-Stäuben kommt es sowohl bei den Halbscheiten als auch beim Doppelscheit im Vergleich zum Referenzfall Buche 11 % mit Sollscheit (0,7 kg) bezüglich der in Kapitel 4.3.1 und 4.3.2 dargestellten Mess- und Analyseergebnissen zu einer eindeutigen Erhöhung der Emissionssituation (Tabelle 4-3).

Tabelle 4-3: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen zwischen den Stückigkeitsvariationen (Halbscheit, Sollscheit und Scheit mit doppelter Masse bei insgesamt gleicher Brennstoffauflagemasse) am Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
Halbscheit zu Sollscheit	--	---	-	---	-	-	0	+	--
Doppelscheit zu Sollscheit	-	--	---	--	---	---	---	+	---

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Sowohl die Gesamtstaubmenge als auch alle für die toxikologische Relevanz der Stäube entscheidenden Parameter erhöhen sich z. T. sehr stark. Während bezüglich der Emissionen an Kohlenstoffmonoxid und Kohlenwasserstoffen sowie bezüglich der Gesamtstaubmenge der Doppelscheit deutlich höhere Änderungen der Werte als die Halbscheite aufweist, ist dies in Bezug auf die toxikologisch besonders relevanten PAK und des BaP genau umgekehrt. Deshalb sollten sowohl zu kleine als auch zu große Scheite nicht in unregelmäßigen Kaminöfen eingesetzt werden.

Erklärungsansätze. Für den Doppelscheit deutet vieles darauf hin, dass aufgrund einer zu kleinen Reaktionsoberfläche und einer möglicherweise nicht mehr geschlossenen Überdeckung des Rostes mit Grundglut und der dadurch auftretenden Durchströmung mit zusätzlichem Sauerstoff eine zu geringe Umsetzung brennbarer Gase mit gleichzeitiger Bildung von Zonen mit ungenügender Durchmischung erfolgt. Damit erklären sich die niedrigen Abgastemperaturen und die hohe Luftüberschusszahl. Die Verbrennung ist nennenswert gestört, wodurch ein hoher Anteil an organischen Verbindungen im Gas und auf den Stäuben auftritt. Die PAK- und BaP-Emissionen steigen nicht im gleichen Maße an, da der hohe Sauerstoffgehalt und die niedrige Temperatur auch im Brennraum die heißen und sauerstoffarmen Zonen stark vermindert, so dass die Bildung der PAK und in der Folge des EC gehemmt sind.

Bei der Verbrennung der Halbscheite ist im Unterschied dazu von einer heftigen Reaktion durch die vergrößerte Oberfläche auszugehen. Dadurch steigt auch die Abgastemperatur an und der Luftüberschuss sinkt. Hohe Temperaturen und wenig Sauerstoff begünstigen die Entstehung von PAK und EC. Durch die in Kaminöfen immer vorhandenen kalten Wände und das Zuführen kalter Luft in den Brennraum wird der Abbau der PAK und des BaP gestört, so dass die Gehalte im Abgas stark ansteigen. Der Abbau von organischen Kohlenstoffverbindungen wird zwar durch die höheren Temperaturen begünstigt; am Ende fehlt aber ein ausreichendes Sauerstoffangebot, so dass auch der Gehalt an OC leicht ansteigt.

Insgesamt werden mit dieser Betriebsvariation Teile der Theorie der Feinstaubbildung bestätigt. So zeigt sich bei den Halbscheiten eine Erhöhung der Feinstaubemission bei einem gerin-

gen Unterschied zwischen verdünntem und unverdünntem Abgas. Hier liegen wenige organische Komponenten im Abgas vor, die bei einer Abkühlung kondensieren könnten. Vielmehr steigt der Staubgehalt durch nicht ausgebrannte Kohlenstoffpartikel (EC). Im Unterschied dazu entstehen beim Doppelscheit viele organische Komponenten, die nicht vollständig oxidiert werden, so dass bei der Abkühlung in der Verdünnung erhebliche Staubanteile aus kondensierbaren Komponenten hinzukommen können.

Minderungsansätze. Damit sollte als Minderungsmaßnahme darauf geachtet werden, weder zu kleine noch zu große Scheite einzusetzen. Typischerweise liegt die Gefahr zu großer Scheite höher, da hier Arbeit in der Aufbereitung und im Handling eingespart werden kann. Technisch könnte über einen CO- bzw. Kohlen(wasser)stoff-Sensor mit akustischem Signal eine höhere Sensibilität beim Nutzer zumindest im Hinblick auf zu große Scheite erreicht werden. Insbesondere im Hinblick auf die zu kleinen Scheite könnte eine kontrollierte Luftregelung mittels Lambda-Sonde und Abgastemperaturmesser die Primär- und Sekundärluft so einstellen, dass ein zu heftiger Abbrand mit besonders toxikologisch relevanten Emissionen vermieden wird. Da bei Scheitholz eine Variation der Scheitgröße fast unvermeidbar ist, sind Feuerungsprinzipien zu bevorzugen, die weniger anfällig auf die Scheitgröße reagieren. Hier würde sich eine Unterbrandfeuerung oder eine Feuerung mit seitlichem Abbrand anbieten.

Fazit. Die Untersuchung des Einflusses der Scheitgröße bestätigt zum einen die Gefahr erhöhter Feinstaubemissionen durch eine Störung der Verbrennung durch zu große Scheite. Zum anderen zeigt aber insbesondere die Untersuchung der toxikologisch relevanten Inhaltsstoffe der Feinstäube, dass auch zu kleinen Scheite zu einer erhöhten Gesundheitsgefährdung führen. Insofern müssen die Nutzer besser über die richtige Scheitgröße und deren Bedeutung aufgeklärt werden (u. a. Angaben des Kaminofen-Herstellers). Technisch könnte durch eine Unterbrandlösung mit sensor geregelter Luftzufuhr die Bedeutung der Scheitgröße gemindert werden. Dies erfordert jedoch neue Ofenkonzepte.

4.4 Brennraumbeladung

Marktübliche Kaminöfen haben bisher fast ausschließlich einen oberen Abbrand; d. h. von der Glutbettzone an beginnend steigt das Gas nach oben durch die gesamte Brennstoffauflage und verbrennt dann im und über dem Brennstoffstapel. Damit hat die Höhe des Brennstoffstapels bzw. die Menge an Brennstoff im Feuerraum einen erheblichen Einfluss auf die Verbrennungsverhältnisse. Neben der gleichzeitig sich in Zersetzung befindlichen Brennstoffmenge wird auch das für den Ausbrand der Brenngase zur Verfügung stehende Volumen beeinflusst. Diese Zusammenhänge lassen einen nicht unerheblichen Einfluss der Brennraumbeladung auf die Verbrennungsqualität vermuten. Deshalb wird hier der Vergleich zwischen der vom Hersteller empfohlenen Brennstoffmasse von 1,4 kg in zwei Scheiten und der doppelten Masse von 2,8 kg in vier Scheiten für Buchenholzscheite sowie für Fichtenholzscheite untersucht.

4.4.1 Emissionsmessergebnisse

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Bei der Verdopplung der Brennstoffmasse bei Buchenholzscheiten kommt es bei den Kohlenstoffmonoxidemissionen zu mehr als einer Verdopplung, gleichzeitig bleiben sie bei Fichtenscheitholz trotz Verdopplung der Auflagemenge nahezu konstant. Für die Gesamt-C-Emissionen kommt es bei Buche mit der Verdopplung der Auflage etwa zu einer Versechsfachung. Dahingegen nehmen die Gesamt-C-Emissionen für Fichtenholzscheite bei einer Verdopplung der Brennstoffauflagemasse deutlich ab.

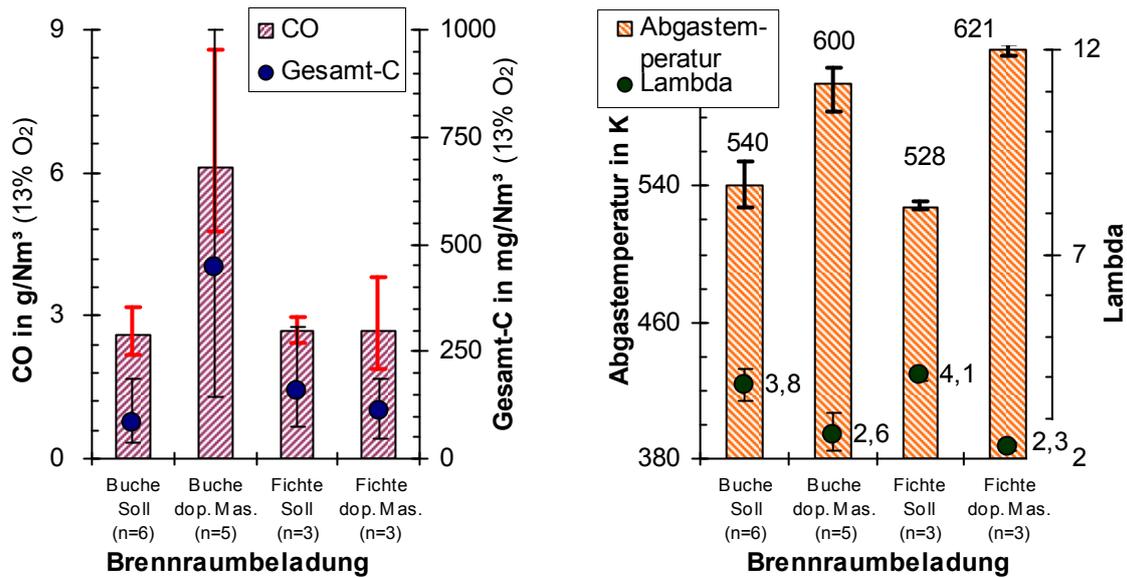


Abb. 4-17: Einfluss der aufgelegten Brennstoffmasse in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO, Gesamt-C (links), Abgastemperatur und Lambda (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage; Gleiches für Fichtenholzscheite ($w = 10\%$) ($n =$ Anzahl Messungen); dop. Mas. .. doppelte Masse

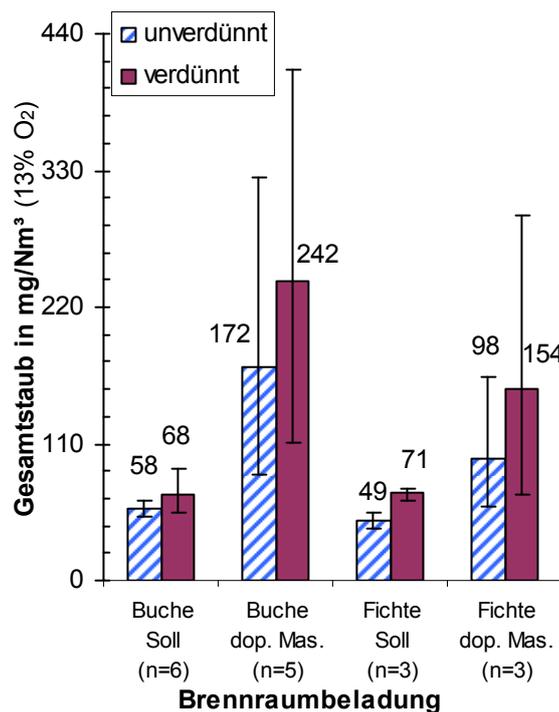


Abb.4-18: Einfluss der aufgelegten Brennstoffmasse in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Gesamtstaubemissionen im unverdünnten und verdünnten Abgas. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage; Gleiches für Fichtenholzscheite ($w = 10\%$) ($n =$ Anzahl separater Messungen); dop. Masse .. doppelte Masse

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Bei beiden Brennstoffen kommt es im Mittel durch die Verdopplung der aufgelegten Brennstoffmasse zu einem deutlichen Anstieg der Abgas-

temperatur um 60 K bei Buche und über 90 K bei Fichte (Abb. 4-17). Auch die Luftüberschusszahlen fallen in beiden Fällen deutlich auf ein ähnliches Niveau um 2,6 bzw. 2,3.

Gesamtstaub. In beiden Fällen kommt es sowohl im unverdünnten als auch im verdünnten Abgas zu einer signifikanten Steigerung der Emissionskonzentrationen an Staub (Abb.4-18). Beim Buchenscheitholz fällt sowohl der absolute als auch der relative Anstieg deutlich stärker aus als beim Fichtenscheitholz. Die großen Fehlerbalken für die jeweils doppelte Brennstoffmasse verdeutlichen das große Ausmaß der Störung und die damit verbundene Instabilität der Verbrennung durch die Brennraumüberladung. Die Emissionen können entweder nur leicht zunehmen oder um rund das Fünffache beim Buchenscheitholz bzw. das Dreifache beim Fichtenscheitholz steigen.

4.4.2 Analyseergebnisse

Hauptinhaltsstoffe. Für beide Brennstoffe steigt die Menge an Nicht-C-Feinstaub bei einer Verdopplung der Brennstoffmasse deutlich an; auch nimmt die Menge an elementarem Kohlenstoff stark zu (Abb. 4-19).

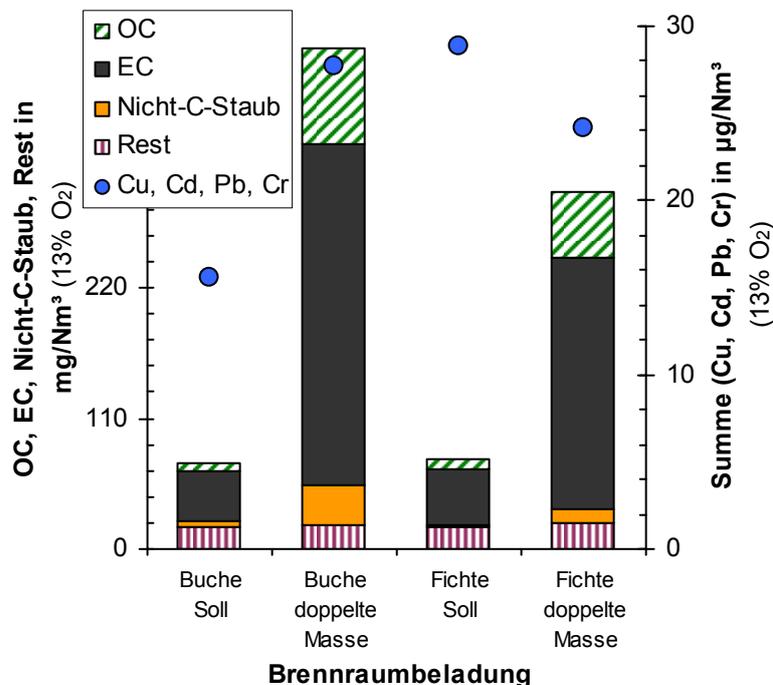


Abb. 4-19: Einfluss der aufgelegten Brennstoffmasse in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Staubzusammensetzung: organischer (OC) und elementarer (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat Chlorid und Ammonium) und Rest sowie separat als Konzentration im Abgas dargestellt die Summe der Schwermetalle aus Cu, Cd, Pb, Cr. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage; Gleiches für Fichtenholzscheite ($w = 10\%$) (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

Der Anstieg der organischen Kohlenstoffkomponenten fällt für die Variation mit den Buchenholzscheiten höher aus als bei der Verdopplung der Brennstoffmasse beim Fichtenscheitholz.

Für die betrachteten Schwermetalle gibt es ein unterschiedliches Bild (Anhang 9). Während bei der Verdopplung der Buchenholzmenge die Menge der betrachteten Schwermetalle steigt,

vermindert sie sich ausgehend von einem höheren Niveau leicht bei der doppelten eingesetzten Masse an Fichtenholz.

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Bezüglich der PAK- und der BaP-Emissionen wird der Unterschied im Verhalten der beiden Brennstoffe am deutlichsten. Während bei den Buchenholzscheiten mit der Verdopplung der Brennstoffmasse die PAK-Emissionen im Mittel rund um den Faktor 20 und die BaP-Emissionen um den Faktor 70 steigen, kommt es beim Fichtenscheitholz bei der gleichen Versuchsvariation zu einem vergleichsweise geringen Anstieg um einen Faktor 2 (PAK) bzw. 3 (BaP) (Abb. 4-19).

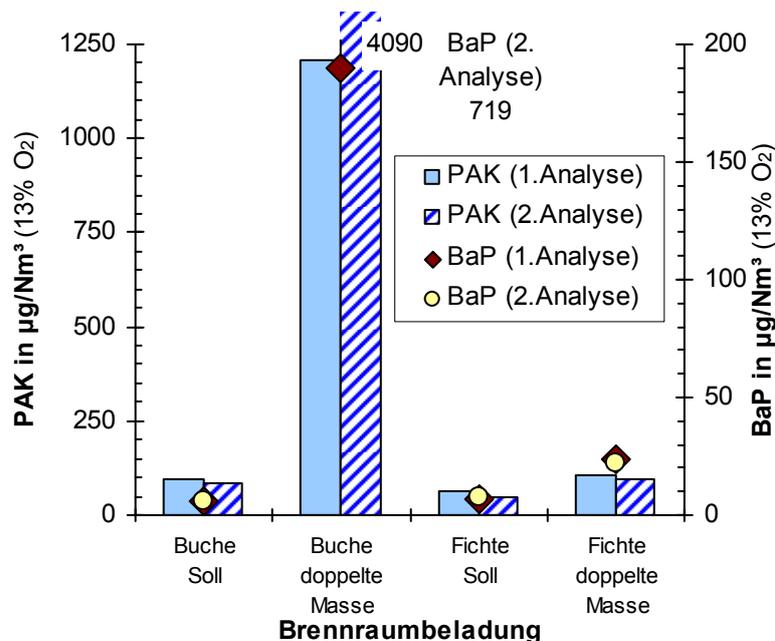


Abb. 4-20: Einfluss der aufgelegten Brennstoffmasse in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage; Gleiches für Fichtenholzscheite ($w = 10\%$) (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Der deutliche Unterschied zwischen den Summen-Werten der PAK für die beiden Analysen der Feinstäube aus der Versuchsvariation mit der doppelten Masse an Buchenholzscheiten setzt sich auch bei der Betrachtung der einzelnen analysierten PAK fort (Abb. 4-21). Im Vergleich zur vorgesehenen Beladungsmasse kommt es abgesehen von Fluoranthen und Pyren bei allen der zehn höhermolekularen U.S. EPA-PAK zu sehr starken Anstiegen der Emissionskonzentrationen.

Beim Fichtenscheitholz zeigen die beiden Analysen aus dem überladenen Betrieb mit doppelter Brennstoffmasse bei ausgewählten Einzel-PAK einen deutlichen Anstieg, während bei Fluoranthen, Pyren, Benzo(a)anthracen, Chrysen, Benzo[k]fluoranthen sowie Dibenzo[a,h]anthracen keine oder nur geringe Zunahmen der Emissionen zu beobachten sind (Abb. 4-22). Allerdings steigt das toxikologisch besonders relevante Benzo[a]pyren in der Relation zu den Emissionswerten bei einer den Herstellerangaben entsprechenden Beladung überproportional an.

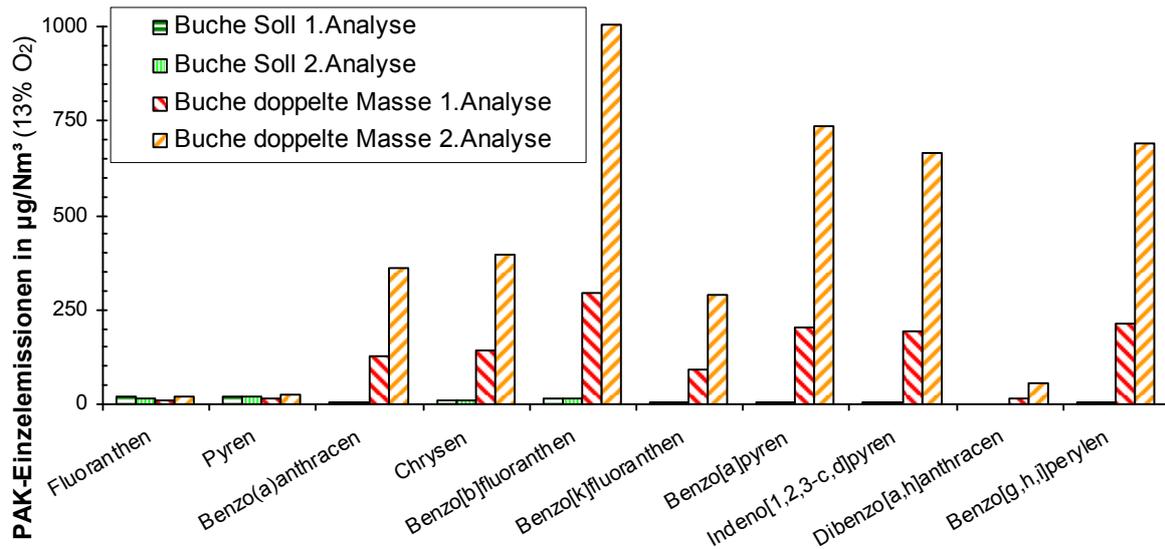


Abb. 4-21: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die vier durchgeführten PAK-Analysen der Variation der aufgelegten Brennstoffmasse bei Buchenholzscheiten im Kaminofen ohne automatische Luftregelung: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

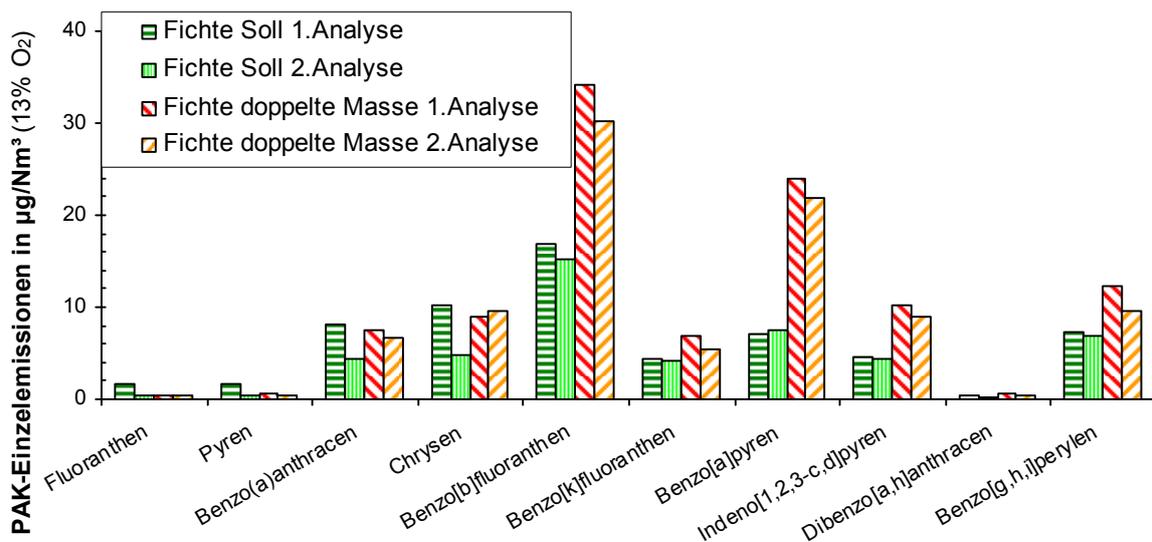


Abb. 4-22: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die vier durchgeführten PAK-Analysen der Variation der aufgelegten Brennstoffmasse bei Fichtenholzscheiten im Kaminofen ohne automatische Luftregelung: Fichtenscheitholz ($w = 10\%$) 1,4 bzw. 2,8 kg Brennstoffauflage (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Im Vergleich der Auswirkung einer Verdopplung der Brennstoffmasse zwischen Buchen- und Fichtenholzscheiten sind für das Buchenscheitholz um einen Faktor 25 bis 40 höhere Einzel-PAK-Emissionen zu beobachten. In der Relation zu den anderen Einzel-PAK zeichnen sich die Analysen der Überladung mit Buchenscheitholz im Vergleich zum Fichtenscheitholz insbesondere durch einen größeren Anteil des Indeno[1,2,3-c,d]pyren und des Benzo[g,h,i]perylene aus.

4.4.3 Bewertung und Minderungsansätze

Bewertung der Emissionsänderungen. Angesichts der für beide Brennstoffe mit Überladung des Brennraums stark steigenden Staubemissionen sollte eine Brennraumüberladung auf jeden Fall vermieden werden. Interessant sind die in Tabelle 4-4 deutlich werdenden offensichtlichen Unterschiede zwischen den Veränderungen durch die Brennraumüberladung bei Buchenscheitholz und bei Fichtenscheitholz.

Tabelle 4-4: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen bei einer Brennraumüberladung jeweils für Buchen- und für Fichtenscheitholz im Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
Buche 1,4 kg zu 2,8 kg	---	---	---	---	--	---	--	---	---
Fichte 1,4 kg zu 2,8kg	-	-	---	---	++	0	+	---	---

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Während beim Buchenscheitholz neben der Gesamtstaubmenge auch alle anderen Parameter einschließlich der toxikologisch besonders relevanten Größen stark ansteigen, zeigt sich für die Stäube aus dem mit Fichtenscheitholz überladenen Kaminofen ein differenzierteres Bild. Hier nehmen zwar neben dem Gesamtstaub auch die Nicht-C-Stäube sowie die organische und elementare Kohlenstoffmengen in den Stäuben stark zu, doch ändert sich CO kaum, die Kohlenwasserstoffe im Gas nehmen sogar deutlich ab und bezüglich der toxikologisch besonders relevanten Emissionen an PAK und BaP zeigt sich nur eine leichte Verschlechterung. Gleichzeitig nimmt die Emission der betrachteten Schwermetalle sogar etwas ab. Dies deutet auf grundsätzliche Unterschiede in den ablaufenden Prozessen in der überfüllten Brennkammer hin.

Erklärungsansätze. Die in beiden Fällen auftretende starke Zunahme an organischem und elementarem Kohlenstoff in den Stäuben dürfte zum einen durch den zu kurzen ungestörten Ausbrandweg bedingt sein. Zum anderen wird durch die Brennraumüberladung mehr Brenngas je Zeit freigesetzt (doppelte Scheitzahl entspricht etwa doppelter Reaktionsoberfläche). Damit sinkt der Luftüberschuss, da mehr Sauerstoff für die Reaktionen benötigt wird, dieser aber durch eine feste Einstellung der Luftöffnungen und den auf dem Prüfstand konstant gehaltenen Schornsteinzug nicht bereitgestellt wird. Weniger Sauerstoff und eine durch die vergrößerte Auflage im Brennraum verkürzte Ausbrandzone dürften Ursache sein, dass viel des entstandenen EC und OC nicht abgebaut wird.

Grundsätzlich dürften die höheren Temperaturen und die niedrigeren Luftüberschusszahlen bei der verdoppelten Brennstoffmasse zu mehr heißen und sauerstoffarmen Zonen führen, in denen die PAK- und BaP-Bildung begünstigt ist. Aufgrund der im Vergleich zur Buche noch etwas höheren Abgastemperaturen könnten die Störungen durch die Frontscheibe und die Wände des Ofens beim Fichtenscheitholz möglicherweise geringer ausfallen als bei der Buche, so dass ein besserer Abbau in der heißen sauerstoffreichen Zone der Flamme erfolgt. Die höheren Temperaturen beim Fichtenscheitholz könnten auch den guten Abbau von C_nH_m und CO erklären. Bei der Buche liegen Lambda und Temperatur möglicherweise gerade in einem Bereich, in dem der heftigen Freisetzung von organischen Komponenten und PAK sowie BaP

keine ausreichende Verweilzeit bei ungestörten hohen Temperaturen gegenübersteht. Aufgrund der im Vergleich zur Buche um rund 30 % niedrigeren Rohdichte der Fichte wird entsprechend mehr Volumen benötigt, um die Brennstoffmasse im Kaminofen unterzubringen. Gleichzeitig steigt die Reaktionsoberfläche. Bei einer insgesamt etwas heftigeren und schnelleren Reaktion bei im Vergleich höheren Temperaturen könnten die gasförmigen Komponenten im Unterschied zur Buche immer noch gut abgebaut werden. Kalte Reaktionsflächen sollten bei der fast vollständigen Beladung des Reaktionsraums nicht vorkommen. Außerdem könnten die Fichtenscheite im Verlauf der Reaktion schneller zerbrechen als Buchenscheite und damit schneller ein geschlossenes Glutbett bilden, so dass der Sauerstoffdurchtritt gleichmäßiger erfolgt und dadurch größere sauerstoffarme Bereiche verringert werden. Durch das schnellere „Zusammensinken“ des Brennstoffs steht der Brennraum schneller wieder für einen guten Ausbrand zur Verfügung, so dass die gemittelten Emissionen niedriger ausfallen würden als beim mit Buchenscheitholz überladenen Kaminofen.

Die übereinstimmende Zunahme der Nicht-C-Stäube dürfte der - aufgrund der in beiden Fällen gestiegenen Abgastemperatur - anzunehmenden deutlichen Steigerung der Temperatur in der Pyrolyse- und Vergasungszone geschuldet sein, wodurch zusätzlich nicht kohlenstoffhaltige Komponenten verdampfen dürften, um dann später als Partikel erfassbar zu sein.

Minderungsansätze. Die Überladung von Kaminöfen mit Brennstoff dürfte ein durchaus übliches Fehlverhalten der Nutzer sein. Häufig wird eine Verminderung der Nachlegehäufigkeit aus Komfortgründen angestrebt. Dieses Fehlverhalten kann nur durch eine Automatisierung der Brennstoffzufuhr zur Verbrennung oder eine Erziehung der Nutzer eingeschränkt werden. Technische Maßnahmen wären die Umgestaltung von Kaminöfen zu Unterbrandfeuerungen oder Feuerungen mit seitlichem Abbrand, so dass das Nachlegen außerhalb des eigentlichen Brennraums erfolgen kann. Damit würde gleichzeitig der thermochemische Umwandlungsprozess im Brennraum gleichmäßig. Für einen sicheren Betrieb ist dann aber auch ein Saugzuggebläse erforderlich, wodurch der Kaminofen nicht mehr stromautark betrieben werden könnte. Alternativ könnten Einschnürungen oder deutliche Markierungen im Brennraum kennzeichnen, bis zu welcher Höhe eine Brennstoffbefüllung erfolgen darf. Der Vergleich zwischen Buchen- und Fichtenscheitholz zeigt die Schwierigkeiten einer solchen Kennzeichnung, die letztlich entweder für Hart- oder Weichholz gilt. Über den Einbau von Verbrennungssensoren könnte entweder die Luftzufuhr geregelt werden oder der Nutzer gewarnt werden, wobei einfache CO oder C_nH_m -Sensoren nicht immer funktionieren müssen, wie an den geringen Emissionserhöhungen bei der Überladung mit Fichtenscheitholz an dem untersuchten Kaminofen zu beobachten ist.

Fazit. Grundsätzlich ist die Überladung des Feuerraums zu vermeiden. Hierzu können Markierungen im Brennraum oder bautechnische Begrenzungen helfen. Kohlenstoffmonoxid- oder Kohlenwasserstoff-Warner können, wie am Beispiel der Fichte deutlich wird, kein hinreichend sicheres Signal liefern. Alternativ würde in einem ständigen unteren Abbrand bzw. bei automatischer Nachführung der Holzscheite in eine definierte Brennstoffauflage das Nachlegeproblem deutlich entschärft werden.

4.5 Manuelle Luftregelung

Die Möglichkeiten der Luftregelung an marktüblichen Kaminöfen sind nur sehr begrenzt. An dem untersuchten Kaminofen ist im Betrieb mit Holz der vorhandene Primärluftschieber immer auf geschlossen einzustellen. Damit kann nur noch der Sekundärluftschieber eingestellt werden. Um den Effekt einer zu geringen Luftzufuhr zu untersuchen wurde, in Abweichung zu einer generellen Einstellung auf halb offen, im Folgenden auch die Einstellung ganz

geschlossen, betrachtet. Die vorhandenen Tertiärluftöffnungen stehen immer auf offen (Anlagenaufbau Kap. 3.1.1.1).

4.5.1 Emissionsmessergebnisse

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Obwohl die Emissionen an CO und C_nH_m bei geschlossener Sekundärluftklappe leicht steigen, fällt die Schwankungsbreite der Messergebnisse etwas kleiner aus als mit geöffneter Sekundärluftklappe. Dass trotz geschlossener Sekundärluft noch genug Sauerstoff zur Verfügung steht, dürfte an den nicht regelbaren Tertiärluftöffnungen liegen (Abb. 4-23 links).

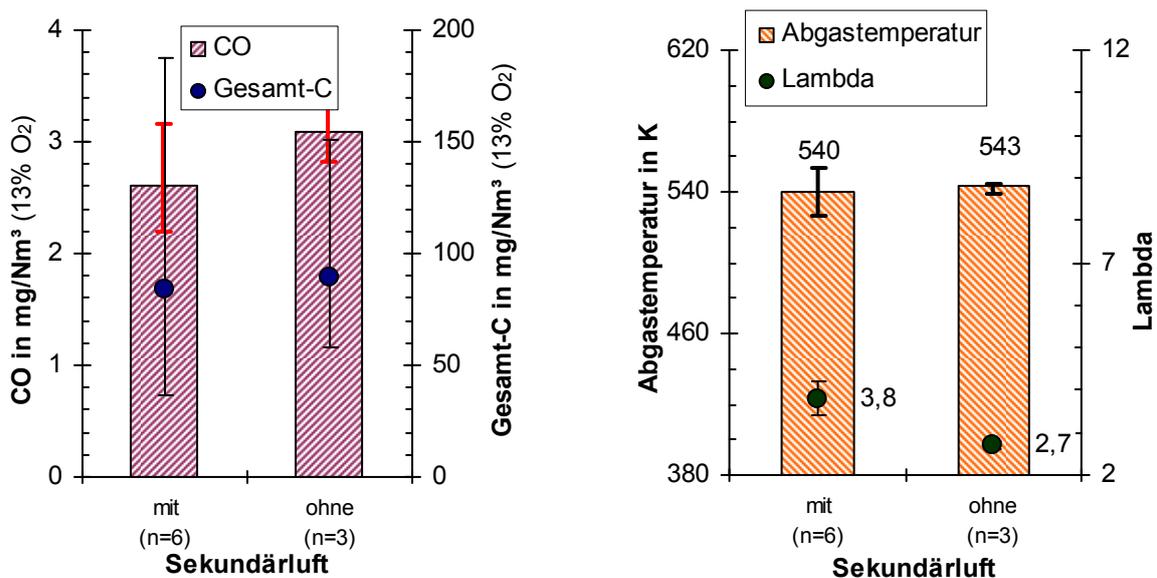


Abb. 4-23: Einfluss der Sekundärluft in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO, Gesamt-C (links), Abgastemperatur und Lambda (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % mit halb geöffneter bzw. geschlossener Schieberstellung für die Sekundärluft (n = Anzahl Messungen im Abgas)

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Die deutliche Abnahme der Luftüberschusszahl belegt, dass das Schließen des Sekundärluftschiebers eine direkte Auswirkung auf die Verbrennungsbedingungen im Feuerraum hat (Abb. 4-23 rechts). Gleichzeitig steigt die Abgastemperatur leicht an.

Gesamtstaub. Für die Gesamtstaubemissionen ergeben sich sowohl im verdünnten als auch im unverdünnten Abgas nur sehr geringfügige Änderungen mit einer grundsätzlichen Tendenz zu einem Anstieg der Staubbefreiung bei geschlossenem Sekundärluftschieber (Abb. 4-24).

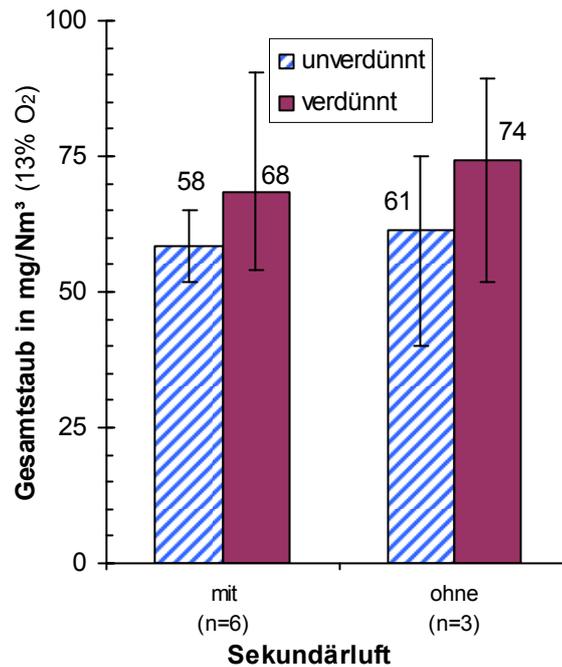


Abb. 4-24: Einfluss der Sekundärluft in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf Gesamtstaubgehalt im unverdünnten und im verdünnten Abgas. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % mit halb geöffneter bzw. geschlossener Schieberstellung für die Sekundärluft (n = Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

4.5.2 Analyseergebnisse

Beim Fichtenscheitholz zeigen die beiden Analysen aus dem überladenen Betrieb mit doppelter Brennstoffmasse bei ausgewählten Einzel-PAK einen deutlichen Anstieg während bei Fluoranthen, Pyren, Benzo(a)anthracen, Chrysen, Benzo[k]fluoranthen sowie Dibenzo[a,h]anthracen keine oder nur geringe Zunahmen der Emissionen zu beobachten sind (Abb. 4-22). Allerdings steigt das toxikologisch besonders relevanten Benzo[a]pyren in der Relation zu den Emissionswerten bei einer den Herstellerangaben entsprechenden Beladung überproportional an.

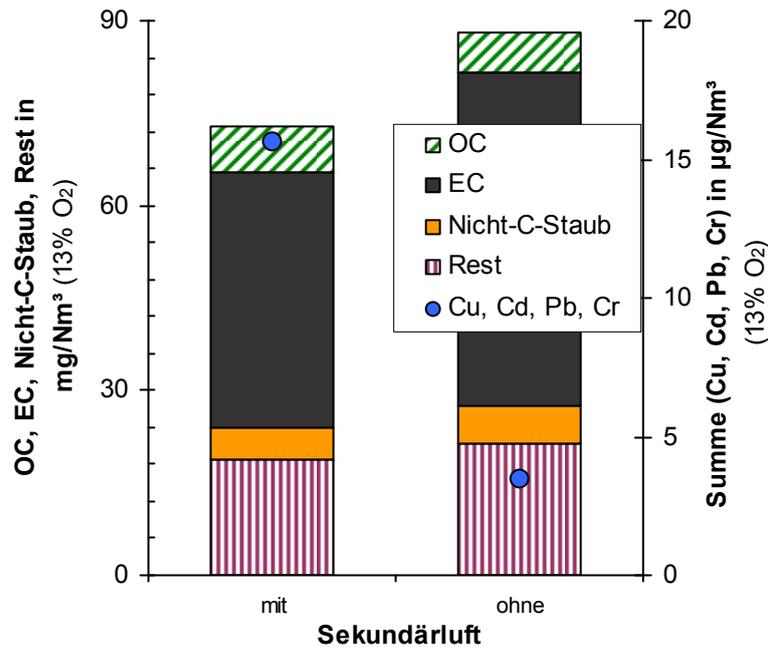


Abb. 4-25: Einfluss der Sekundärluft in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Staubzusammensetzung: organischer (OC) und elementarer (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat Chlorid und Ammonium) und Rest sowie separat als Konzentration im Abgas dargestellt die Summe der Schwermetalle aus Cu, Cd, Pb, Cr. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % mit halb geöffneter bzw. geschlossener Schieberstellung für die Sekundärluft (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Im Unterschied zu dem ansonsten eher moderaten Anstieg der Emissionen steigen die PAK und insbesondere auch das BaP im Mittel sehr deutlich an (Abb. 4-25 rechts).

Neben der Abweichung beim Fluoranthren und dem Pyren, die nur bei den beiden Analysen zum Standard-Vergleichsfall mit halb geöffneter Sekundärluftklappe nennenswert auftreten, fällt der deutliche Unterschied zwischen den beiden Analysen der Variation ohne Sekundärluft auf (Abb. 4-27).

Für beide Analysen ohne Sekundärluft steigen die Emissionen für die hochmolekularen PAK mit Ausnahme des Dibenzo[a,h]anthracens deutlich an. Während die zweite Analyse ein grundsätzlich ähnliches Verteilungsmuster wie bei der Verbrennung mit halb geöffnetem Sekundärluftschieber aufweist, hat die erste Analyse deutlich stärker ausgeprägte Spitzenwerte und auch das Muster der Mengenverhältnisse weicht signifikant ab. So kommt es insbesondere beim Indeno[1,2,3-c,d]pyren nicht zu einem Abfall der Menge im Vergleich zum Benzo[a]pyren, sondern zu einem sehr signifikanten Anstieg.

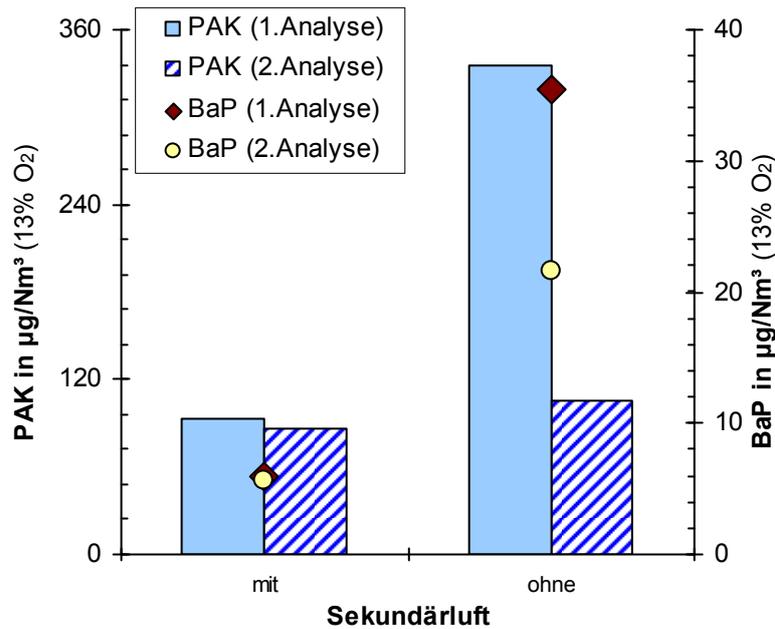


Abb. 4-26: Einfluss der Sekundärluft in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % Wassergehalt mit halb geöffneter bzw. geschlossener Schieberstellung für die Sekundärluft (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

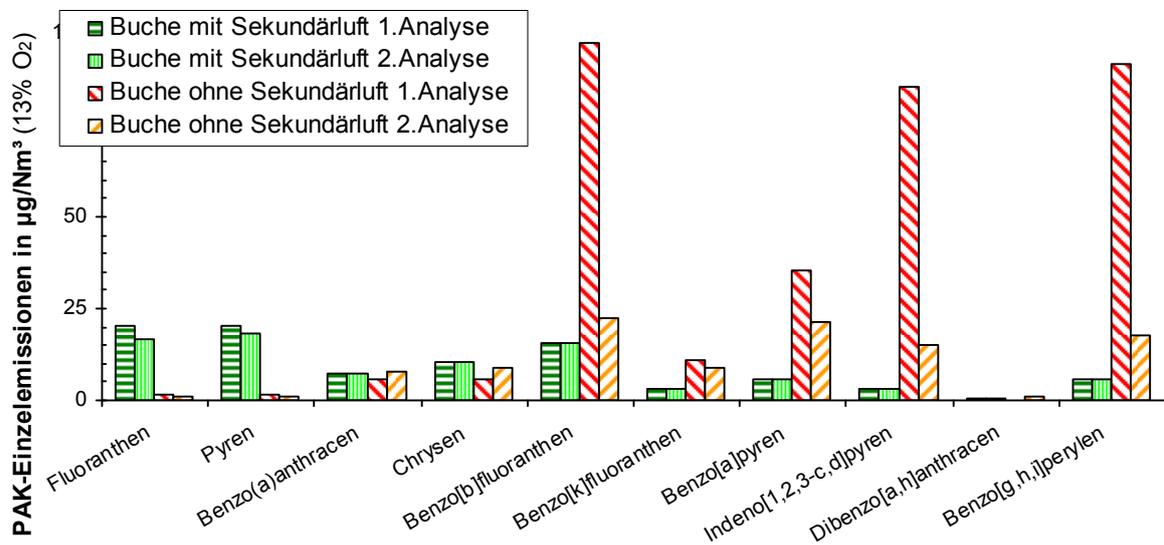


Abb. 4-27: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die vier durchgeführten PAK-Analysen der Variation der Sekundärluft bei Buchenholzscheiten im Kaminofen ohne automatische Luftregelung ($w = 11\%$) mit halb geöffneter oder geschlossener Schieberstellung für die Sekundärluft (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

4.5.3 Bewertung und Minderungsansätze

Bewertung der Emissionsänderung. Bis auf die deutliche Zunahme der toxikologischen Relevanz scheint die Veränderung des Sekundärluftschiebers von halb offen auf geschlossen nur wenige Veränderungen in den Emissionen zu bewirken (deutliche Minderung der emittierten Schwermetalle und eine Verschiebung der Verhältnisse zwischen OC und EC) (Tabelle 4-5).

Tabelle 4-5: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen zwischen den Sekundärluftvariationen (halb offener und geschlossener Sekundärluftschieber) am Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
halb offen zu geschlossen	--	--	+	-	0	0	+++	0	0

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Aufgrund der eindeutigen Erhöhung der PAK- und BaP-Werte ist der Betrieb mit der vorgesehenen Sekundärluftschieberstellung unbedingt zu empfehlen.

Erklärungsansätze. Grundsätzlich scheinen die Temperatur und das Lambda auszureichen, um CO und C_nH_m auf dem gleichen Niveau abzubauen wie mit halb geöffnetem Sekundärluftschieber. Der Abbau der organischen Komponenten und damit des OC könnte durch die leicht höhere Temperatur geringfügig begünstigt sein.

Die deutliche Absenkung der Luftüberschusszahl bei gleichzeitig leicht höherer Feuerraumtemperatur lässt die heißen sauerstoffarmen Zonen am Brennstoff zunehmen. Dadurch werden mehr PAK und BaP gebildet. Die Temperatur ist aber nicht so hoch, dass die durch die in marktüblichen Kaminöfen immer vorhandenen Störungen der Verbrennung auftretenden Unterbrechungen des PAK- und BaP-Abbaus ausreichend gemindert werden. Deshalb kommt es im Resultat zu einem Anstieg der PAK- und BaP-Emissionen. Dies korreliert auch mit der leichten Zunahme des elementaren Kohlenstoffs, da die Rußbildung über die Zwischenstufe der PAK abläuft.

Dass die Feuerung trotz „geschlossenem“ Primärluftschieber und geschlossenem Sekundärluftschieber ausreichend Luft zur Verbrennung bekommt, liegt sehr wahrscheinlich an den nicht regelbaren Tertiärluftöffnungen.

Minderungsansätze. Bei der Einstellung der Luftschieberstellungen kann es durch mangelnde Aufklärung der Nutzer oder durch „Übersehen“ schnell zu Fehleinstellungen kommen. Daher bieten sich insbesondere bei der Luftsteuerung technische Lösungen an. Neben einem Warnsignal bei zu geringer Luftüberschusszahl (Lambda-Sonde) könnte auch eine automatische, mechanische oder elektronische Luftschieberregelung integriert werden. CO bzw. C_nH_m-Sensoren erscheinen bei dem untersuchten Kaminofen für die Luftregelung der Sekundärluftklappe als wenig geeignet, da hier keine signifikante Änderung auftritt. Dies kann sich jedoch bei einem Modell ohne Tertiärluftöffnung anders darstellen.

Fazit. Insgesamt bestehen hier bautechnisch noch erhebliche Verbesserungspotenziale. Außerdem zeigt sich an der Zunahme der toxikologischen Relevanz der Feinstäube (PAK- und BaP-Werte), wie wichtig eine optimierte Luftregelung ist. Hier bieten sich die bereits erwähnten Regeleinrichtungen für die Einstellungen der Luftschieber an. Neben der

Aufrechterhaltung ausreichender Abgastemperaturen ist die Luftüberschusszahl die empfehlenswerteste Messgröße.

4.6 Passive Zugkontrolle

Schornsteine sind üblicherweise so im Durchmesser auszulegen, dass sie für eine durch die örtlichen Bedingungen gegebene Höhe auch unter relativ ungünstigen Bedingungen einen ausreichenden Mindestzug sicherstellen. Dies führt in vielen Fällen dazu, dass bei günstigen Zugbedingungen der Schornsteinzug schnell über die vorgesehenen etwa 12 Pa Unterdruck ansteigt. Da beim Anschluss vieler Feuerungen auf einen Zugbegrenzer verzichtet wird, ergibt sich häufig ein zumindest zeitweise zu hoher Schornsteinzug. Die sich daraus ergebenden Effekte werden durch die Variation des Schornsteinzugs von -12 Pa über -22 Pa auf -32 Pa untersucht.

4.6.1 Emissionsmessergebnisse

Kohlenstoffmonoxid und Gesamt-C. Beim Kohlenstoffmonoxid zeigt sich ein deutlicher Anstieg der Emissionen mit der Zunahme des Schornsteinzugs von den üblicherweise vorgesehenen -12 Pa auf -22 Pa mit einem darauf folgenden Rückgang bei einer weiteren Steigerung des Zuges auf -32 Pa. In gleicher Weise, lediglich noch ausgeprägter, stellt sich das Bild für die gasförmigen Kohlenwasserstoffe dar. Auffallend ist dabei auch die große Schwankungsbreite der Messungen bei -22 Pa (Abb. 4-28 links).

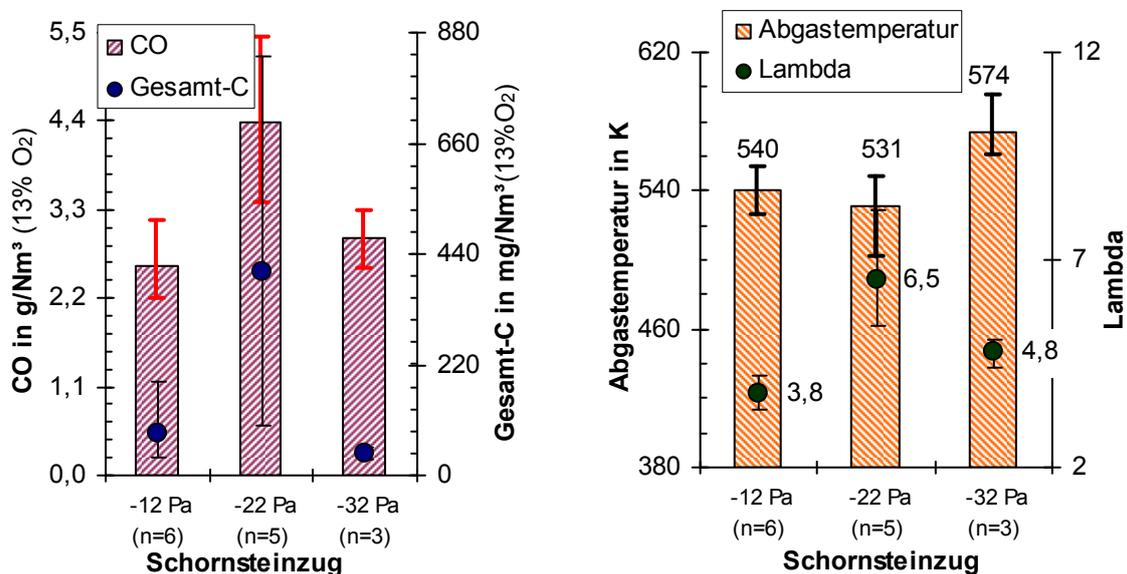


Abb. 4-28: Einfluss des Schornsteinzuges in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf CO, Gesamt-C (links), Abgastemperatur und Lambda (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % Wassergehalt; Schornsteinzug -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa (n = Anzahl Messungen)

Abgastemperatur und Luftüberschuss. Ein ähnliches Bild stellt sich mit dem Verlauf der Luftüberschussmesswerte dar. Bei deutlich kleinerer Schwankungsbreite liegt der Luftüberschuss bei -22 Pa Schornsteinzug mit 6,5 sowohl deutlich über dem von -12 Pa (3,8), aber

auch immer noch nennenswert über dem Wert für -32 Pa (4,8). Zu erwarten wäre als Mittelwert aus dem Zug von -12 und -32 Pa ein Wert von 4 bis 4,4. Entsprechend dem sehr hohen Lambda bei -22 Pa sinkt auch die Abgastemperatur auf einen Wert knapp 10 K unter dem bei -12 Pa. Für die -32 Pa-Varianten liegt eine gegenüber der -12 Pa-Variante um fast 35 K höhere Abgastemperatur vor (Abb. 4-28 rechts).

Gesamtstaub. Die bereits beschriebene Tendenz setzt sich auch bei den Gesamtstaubmessungen im Abgas fort. So steigt der Staubgehalt im unverdünnten Abgas für die -22 Pa-Variante im Vergleich zur -12 Pa-Variante leicht an, während der Wert im verdünnten Abgas sehr stark ansteigt. Die Werte für die -32 Pa-Varianten liegen auf demselben bzw. sogar niedrigerem Niveau wie bei der -12 Pa-Variante (Abb. 4-29).

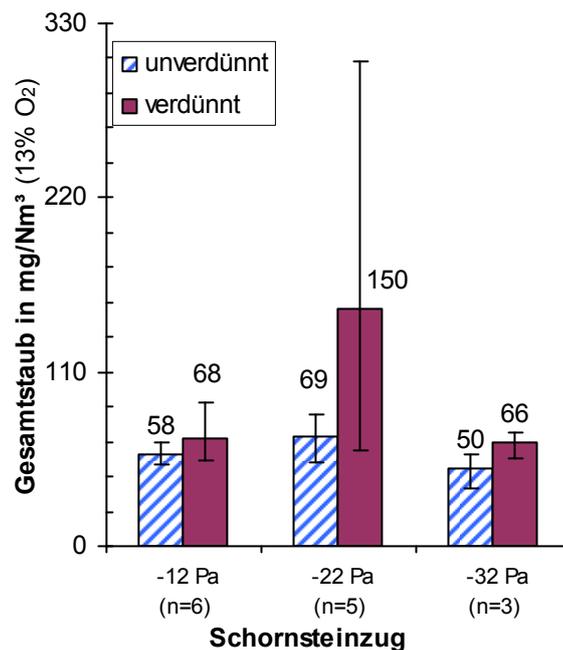


Abb. 4-29: Einfluss des Schornsteinzuges in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf Gesamtstaubgehalt im unverdünnten und im verdünnten Abgas. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % Wassergehalt; Schornsteinzug -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa (n = Anzahl Messungen im verdünnten Abgas)

Beachtenswert ist auch die große Schwankungsbreite der Ergebnisse für die -22 Pa-Variante im verdünnten Abgas.

4.6.2 Analyseergebnisse

Hauptinhaltsstoffe. Für den Übergang von -12 Pa auf -22 Pa steigen sowohl der elementare Kohlenstoff als auch die Nicht-Kohlenstoff-Emissionen deutlich an (Abb. 4-30). Der organische Kohlenstoff nimmt rund um einen Faktor 14 zu. Auch die Schwermetallemissionen steigen in der Freisetzung sehr stark an (Anhang 9).

Dahingegen ergeben sich im Vergleich zwischen der -12 und der -32 Pa-Variante deutlich schwächer ausgeprägte Änderungen, die sich im Kern mit einer Reduzierung der freigesetzten Mengen an organischem und elementarem Kohlenstoff bei gleichzeitiger Zunahme der Freisetzung an Nicht-C-Staub beschreiben lassen. Die Menge der betrachteten Schwermetalle sinkt leicht.

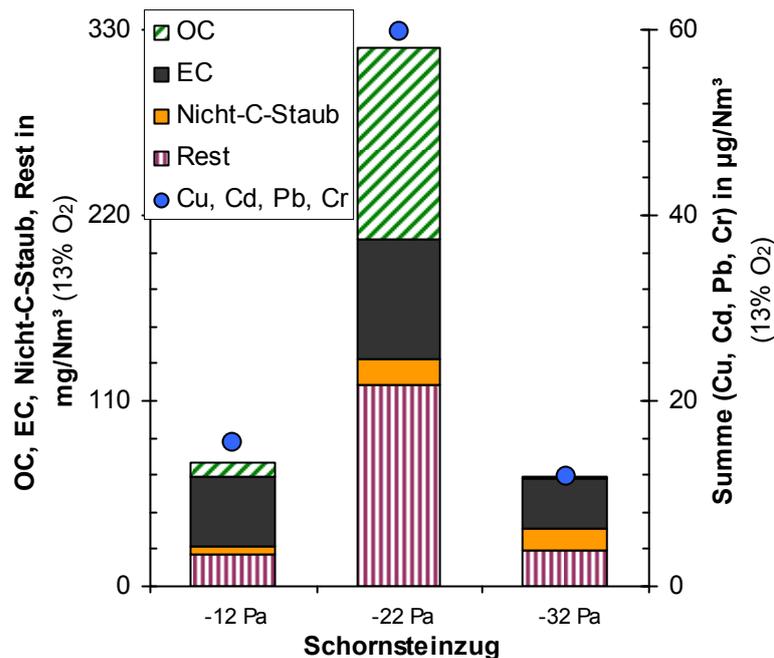


Abb. 4-30: Einfluss des Schornsteinzugs in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die Staubzusammensetzung: organischer (OC) und elementarer (EC) Kohlenstoff, Nicht-C-Staub (Summe aus Metallen, Kalium, Sulfat, Nitrat Chlorid und Ammonium) und Rest sowie separat als Konzentration im Abgas dargestellt die Summe der Schwermetalle als Summe aus Cu, Cd, Pb, Cr. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$); Schornsteinzug -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa (Beschreibung der Probennahmebedingungen siehe Anhang 8)

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. Die Analyseergebnisse der PAK-Emissionen auf den Staubproben ergeben ein etwas anderes Bild. So sinken PAK- und BaP-Emission beim Übergang von -12 Pa auf -22 Pa im Mittel deutlich ab. Für die -32 Pa-Variante liegen die PAK- und die BaP-Emissionen im Durchschnitt der beiden Analysen auf einem nochmals leicht niedrigeren Wert (Abb. 4-31).

Im Vergleich zwischen der -12 Pa-Variante und der -32 Pa-Variante zeigt sich im Mittel eine nennenswerte Abnahme aller Einzel-PAK-Emissionen (Abb. 4-32). Dabei sinkt die relative Abnahme zwischen den beiden Varianten mit Ausnahme des Benzo[g,h,i]perylens mit wachsender Molekülgröße. Grundsätzlich folgen die Analyseergebnisse beider Varianten einer vergleichbaren Relation der Einzel-PAK-Werte zueinander.

Für die -22 Pa-Variante zeigt sich ein sehr deutlicher Unterschied zwischen den beiden durchgeführten Analysen, sowohl im Hinblick auf die absoluten Einzel-PAK-Ergebnisse als auch im Hinblick auf die relative Verteilung der Werte zueinander innerhalb einer Analyse. Dies korreliert mit den beiden anderen Emissionen beobachteten großen Schwankungsbreiten der Ergebnisse. Es scheint also bei einem Schornsteinzug von -22 Pa eine hohe Varianz der thermochemischen Prozesse zu geben. Auffällig ist auch, dass die Mengen der drei größten Moleküle bei beiden Analysen unterhalb der Nachweisgrenze liegen.

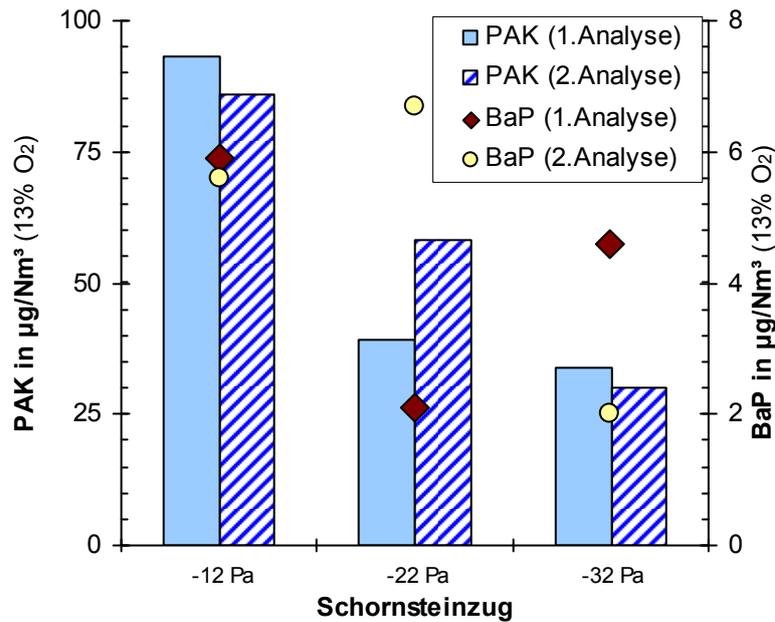


Abb. 4-31: Einfluss des Schornsteinzugs in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf die PAK sowie Benzo[a]pyren-Werte. Brennstoffe: Buchenscheitholz ($w = 11\%$); Schornsteinzug -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

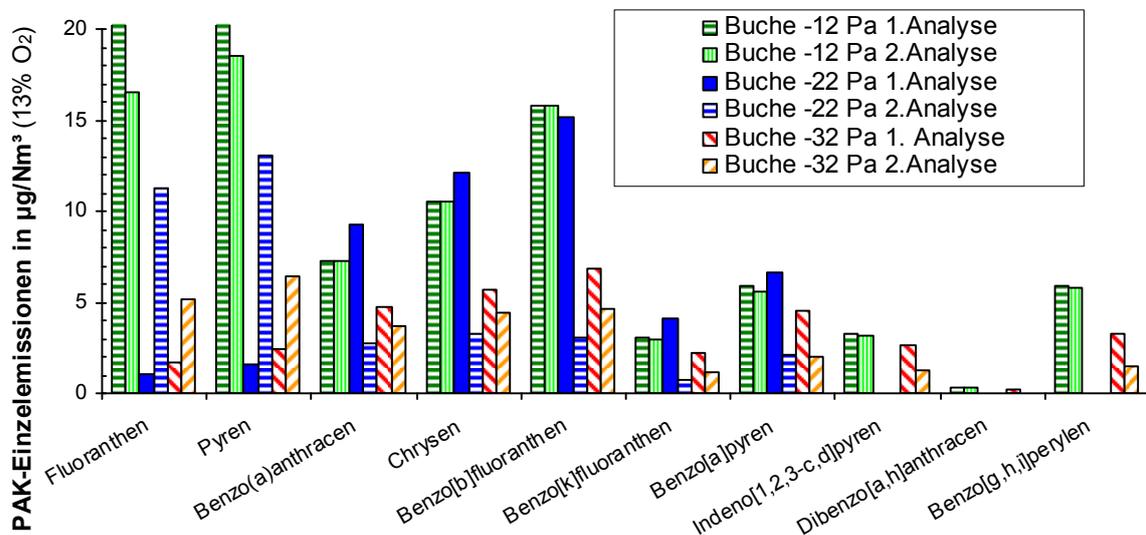


Abb. 4-32: Vergleich von zehn der 16 EPA-PAK für die sechs durchgeführten PAK-Analysen der Variation des Schornsteinzugs bei Buchenholzschichten im Kaminofen ohne automatische Luftregelung: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa (Beschreibung der Probenahmebedingungen siehe Anhang 8)

4.6.3 Bewertung und Minderungsansätze

Bewertung der Emissionsänderungen. Der Einzelvergleich zwischen den beiden Versuchsvariationen -22 Pa und -32 Pa jeweils im Vergleich zur Variante mit dem über einen Schornsteinabgassauger im Labor fest eingestellten Zug von -12 Pa erbringt die in Tabelle 4-6 dargestellten Ergebnisse.

Tabelle 4-6: Vergleich der Veränderung der wesentlichen Emissionen zwischen dem Schornsteinzug (-12 Pa, -22 Pa, -32 Pa) am Kaminofen

	PAK	BaP	OC	EC	C _n H _m	CO	Schwermetalle	Nicht-C-Staub	Gesamtstaub
-12 Pa zu -22 Pa	+++	+++	---	--	--	--	---	---	---
-12 Pa zu -32 Pa	+++	++	+++	++	++	0	++	---	0

Kategorien der Emissionsänderung: --- starke Erhöhung; -- Erhöhung; - leichte Erhöhung; 0 keine signifikante Veränderung; + leichte Verringerung; ++ Verringerung; +++ starke Verringerung

Im Vergleich von -12 Pa-Standardvariante und -32 Pa-Variante ergibt sich, abgesehen von dem Nicht-C-Staub, eine deutliche Minderung aller Emissionen - insbesondere auch der toxiologisch besonders relevanten – während die Gesamtstaubmenge in etwa konstant bleibt. In diesem Sinne ist der hohe Schornsteinzug im Falle des untersuchten Kaminofens uneingeschränkt zu empfehlen.

Dieses sehr eindeutige Bild wird durch die Versuchsergebnisse bei -22 Pa gestört. Für die Veränderung zwischen -12 und -22 Pa Schornsteinzug sinken zwar die besonders kritischen PAK- und BaP-Emissionen, dafür steigen aber gleichzeitig alle anderen Emissionen einschließlich des Gesamtstaubes im Mittel deutlich an, so dass dieser Zustand zu vermeiden ist. Dabei ist die große Variationsbreite insbesondere der Staubanalysen im verdünnten Abgas zu berücksichtigen, so dass eine umsichtige Interpretation der Versuchsdaten angeraten ist. Die Erhöhung des Schornsteinzuges von -12 Pa auf -22 Pa scheint zu einem labilen Zustand zu führen, indem es zu einer sehr unterschiedlichen Veränderung der Emissionen kommen kann.

Erklärungsansätze. Im Vergleich zwischen der -12 Pa-Variante und der -32 Pa-Variante wirkt sich der Anstieg des Schornsteinzuges in einer moderaten Steigerung der Luftüberschusszahl und einem deutlichen Anstieg der Abgastemperatur aus. Beides deutet bei sonst unveränderten Bedingungen auf einen besseren Ausbrand im Kaminofen mit der Folge niedrigerer Emissionen aller Kohlenstoffverbindungen hin. Mehr Sauerstoff im Brennraum verkleinert die heißen sauerstoffarmen Zonen, so dass weniger PAK und BaP und in der Folge auch weniger EC gebildet wird. Zudem ist der Ausbrand aller Komponenten bei ausreichendem Sauerstoffangebot und höheren Temperaturen besser. Der Anstieg der Nicht-C-Staubmenge ist im gleichen Sinne zu interpretieren. Ein Anstieg der Feuerraumtemperatur dürfte auch mit einem Anstieg der Glutbetttemperatur und damit mit einer stärkeren Freisetzung von Salzen verbunden sein. Außerdem führt der höhere Schornsteinzug zu einem verstärkten Mitreißen von Aschepartikeln und damit zu einer Erhöhung der Nicht-C-Staubmenge.

Ähnliche Effekte sollten auch für die Zunahme des Schornsteinzuges von -12 Pa auf -22 Pa gelten. Es kommt jedoch zu einer hohen Luftüberschusszahl von durchschnittlich 6,5 und niedrigeren Brennraumtemperaturen, die ein Indiz für eine zusätzliche Störung der Verbrennung sein können. Möglicherweise kommt es bei einem Schornsteinzug von -22 Pa in dem untersuchten Kaminofen zu ungünstigen Strömungsverhältnissen im Brennraum mit lokalen Rückströmungen sowie sauerstoffarmen Zonen. Dies würde den Anstieg der Emissionen an

OC, EC, CO und C_nH_m erklären. Die insgesamt gesunkenen Temperaturen bei höheren Luftüberschusszahlen mindern die Entstehung von PAK und BaP. Ein erhöhter Volumenstrom könnte durch das Mitreißen von Aschepartikeln zu einem Anstieg des Nicht-C-Staubes führen, genauso wie eine stärkere Freisetzung von Metalloxiden.

Mit einem weiteren Anstieg des Schornsteinzuges könnte sich wieder eine gleichmäßigere Durchströmung des Brennraums einstellen, so dass die beobachteten Emissionsminderungen zu erklären wären.

Minderungsansätze. Bei Naturzugfeuerungen wie z. B. dem hier untersuchten Kaminofen ist in den meisten Anwendungsfällen durch flukturierende Umgebungsbedingungen mit Schwankungen des Schornsteinzuges zu rechnen, da Zugbegrenzer in den wenigsten Fällen eingebaut werden. Zumindest bei dem untersuchten Kaminofen ist ein Schornsteinzug um -22 Pa zu vermeiden. Dies kann zum einen durch einen Zugbegrenzer, der auf einen Sollzug von kleiner oder gleich -12 Pa eingestellt ist, und zum anderen durch einen elektrisch angetriebenen Abgassauger, der in diesem Fall einen Zug von -32 Pa sicher gewährleistet, erreicht werden. Ein regelbarer Abgassauger würde in Verbindung mit einer entsprechenden Sensorik für z. B. Lambda, CO oder C_nH_m auch die Einstellung einer angepassten Luftdurchströmung erlauben.

Fazit. Für die untersuchte Feuerung sollte ein Schornsteinzug um -22 Pa vermieden werden. Dies könnte über eine an CO, die Luftüberschusszahl und ggf. C_nH_m angepasste Regelung des Schornsteinzuges mittels Abgassauger und der Zuluftöffnungen eine Minimierung der für die toxikologische Relevanz ausschlaggebenden PAK- und BaP-Emissionen erlauben.

5 Integrative Betrachtung der Versuchsergebnisse

Durch Abweichungen von den optimalen Betriebsparametern verändern sich die Emissionen, die Abgastemperatur und die Luftüberschusszahl. Deshalb lassen sich aus einer integralen Betrachtung aller Einzelergebnisse Einflussmöglichkeiten auf die Emissionsbildung für vergleichbare Feuerungsarten in Abhängigkeit von den eigentlichen Einflussfaktoren der Verbrennung ableiten. Außerdem können durch die Untersuchung von Zusammenhängen zwischen verschiedenen Messgrößen die Menge und die toxikologische Relevanz von Feinstaubemissionen anhand einfach zu messender Größen abgeschätzt werden. Ziel ist es daher, im Folgenden sowohl Zusammenhänge zwischen den gemessenen Emissionen und der Abgastemperatur und der Luftüberschusszahl aufzuzeigen als auch Abhängigkeiten zwischen den Emissionen herauszuarbeiten.

5.1 Emissionen und Einflussfaktoren

Für die Analyse von Abhängigkeiten zwischen den gemessenen Emissionen und den typischen Einflussfaktoren auf die Qualität der Verbrennung (Sauerstoffangebot, Temperatur, Durchmischung, Verweilzeiten und Inhaltsstoffe der Brennstoffe) sind hier gewisse Einschränkungen zu machen. So ist in Kaminöfen sowohl die Qualität der Durchmischung von Brenngasen mit dem Oxidationsmittel als auch die Verweilzeit bei ausreichend hohen Temperaturen im Brennraum messtechnisch nur schwer zu erfassen und wurde daher hier nicht gemessen¹⁰. Anhand des Feuerraumbildes (z. B. Heftigkeit der Reaktion, Rußen), der Luftüberschusszahl und der Abgastemperatur können aber Annahmen über Abweichungen vom Soll bei der Durchmischung und bei den Verweilzeiten aufgestellt werden (Anhang 10). Diese können jedoch nicht für eine exakte Bewertung herangezogen werden und dienen vielmehr nur zur Plausibilitätsprüfung und zur Erklärung von Verschlechterungen der Messgrößen im Vergleich zum Referenzfall. Quantitativ erfasst und daher nutzbar sind die Luftüberschusszahl λ als Mittelwert über die Messdauer eines Abbrandes¹¹ und die Abgastemperatur nach der Feuerung ebenfalls als Mittelwert über die Messdauer eines Abbrandes. Da keine weiteren Temperaturen messtechnisch erfasst wurden und da die Verbrennungsbedingungen in der Feuerung stark schwanken können, muss die Abgastemperatur nicht zwingend eine direkte Aussage zur Feuerraumtemperatur bzw. der Glutbetttemperatur zulassen. Da hohe Luftüberschusszahlen aber mit einer starken Durchmischung mit kühler Umgebungsluft verbunden sind, kommt es in der Regel auch zu einer Abkühlung der Temperatur im Abgas.

Neben der z. T. erheblichen Toleranzbreite der Abgastemperaturen bei Luftüberschusszahlen zwischen 2,5 und 8,2 zeichnet sich dennoch ein deutlicher Zusammenhang zwischen der Abgastemperatur und der Luftüberschusszahl mit einem Bestimmtheitsgrad von 76 % ab (Abb. 5-1).

¹⁰ Temperatursonden im Feuerraum und dem Glutbett nutzen sehr schnell ab und die Auswertemethodik stand während der Messphase genauso wenig zur Verfügung wie eine Gasentnahme und Analyse direkt aus dem Feuerraum.

¹¹ Die Luftüberschusszahl kann sowohl aus den Mittelwerten der minütlichen λ -Werte als auch als ein Wert über den Abbrand gemittelten CO_2 -Gehalt berechnet werden. Beide Werte weichen aufgrund der starken Änderung des Luftüberschusses im Verlauf eines Abbrandes z. T. sehr deutlich voneinander ab. Da die Gesamtstaubproben einschließlich der zugehörigen Analysen für OC, EC, PAK und BaP sowie die Abgastemperatur alle als Mittelwert über den gesamten Abbrand vorliegen, wird für die Auswertung der λ -Wert aus dem über die gesamte Messzeit gemittelten CO_2 -Gehalt berechnet.

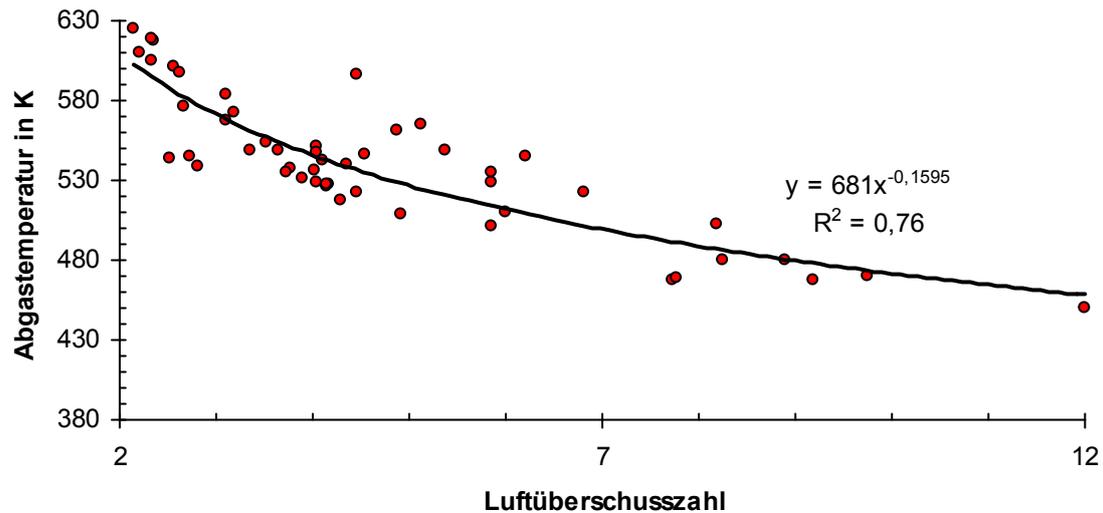


Abb. 5-1: Korrelation von Luftüberschusszahl und Abgastemperatur für 51 Messungen an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung für verschiedene Betriebsvariationen

Bei den zu betrachtenden Messgrößen erfolgt eine Einschränkung auf die für die Qualität der Verbrennung und die toxikologische Relevanz der Feinstäube besonders relevanten Größen BaP, PAK, OC, EC, C_nH_m und CO sowie Gesamtstaub. Auf eine detaillierte Betrachtung des Nicht-Kohlenstoff-Feinstaubes wird hier verzichtet, da dieser bei den Messungen am Kaminofen meist weniger als 10 % der Feinstaubmenge ausmacht, im Vergleich toxikologisch wenig bedeutend sein dürfte und die genauen Bildungsmechanismen in ihrem Umfang komplex und bisher weitgehend ungeklärt sind. Letzteres gilt auch für die Schwermetalle. Da die nachgewiesenen Emissionen deutlich kleiner als die in der TA Luft [26] festgelegten Werte sind (Anhang 8) und die Ergebnisse stark von dem Vorkommen der Schwermetalle in den Brennstoffen abhängen, diese aber aufgrund der niedrigen Konzentrationen in der Brennstoffanalyse meistens unterhalb der Nachweisgrenze liegen, wird auf die Betrachtung der Schwermetallkorrelationen ebenfalls verzichtet.

5.1.1 Kohlenstoffmonoxid

Korrelation. Die Veränderungen der Kohlenstoffmonoxidemissionen mit der Änderung der Luftüberschusszahl (Abb. 5-2 links) bzw. der Abgastemperatur (Abb. 5-2 rechts) zeigen, dass bei dem untersuchten Kaminofen bei Luftüberschusszahlen größer 4,3 und bei Abgastemperaturen unter 550 K die Kohlenstoffmonoxidemissionen deutlich ansteigen. Für Luftüberschusszahlen kleiner 3,2 und Abgastemperaturen über 580 K steigen die Kohlenstoffmonoxidemissionen mit wenigen Ausnahmen (Brennraumüberladung mit Fichtenscheitholz) ebenfalls deutlich an.

In den in Abb. 5-2 links und rechts grau markierten Bereichen werden Kohlenstoffmonoxidemissionen von unter $3,8 \text{ g/Nm}^3$ (13 % O_2) erreicht. Acht der 51 Einzelmessungen finden sich in beiden grau schraffierten Flächen. Darunter befinden sich auch zwei der sechs Messungen für die Bezugsvariante des Buchenscheitholzes mit 11 % Wassergehalt.

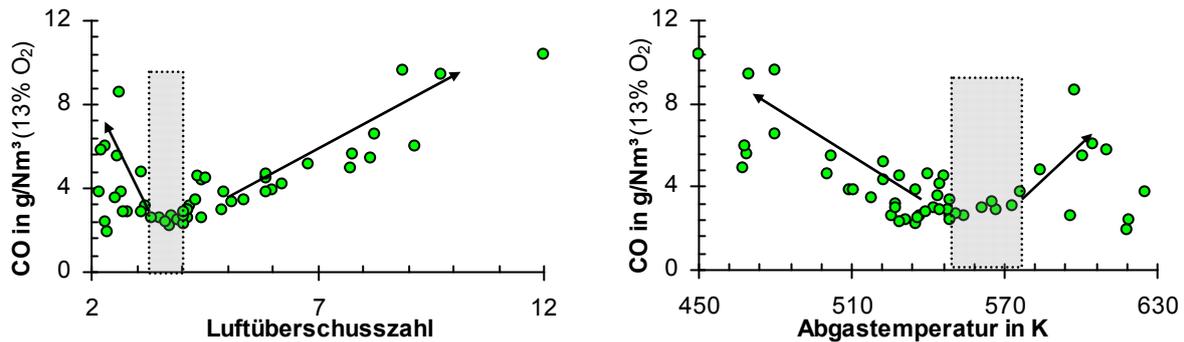


Abb. 5-2: Zusammenhang zwischen Kohlenstoffmonoxid-Emissionen (CO) im Abgas und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (51 Versuchsvariationen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen Kohlenstoffmonoxidemissionen

Erklärungsansätze. Zu niedrige Verbrennungstemperaturen sowie zu hohe Luftüberschusszahlen, die durch die Vermischung mit kalter Verbrennungsluft zu niedrigen Verbrennungstemperaturen führen, bedingen eine unvollständige Oxidation des Kohlenstoffmonoxids, das insbesondere bei der Vergasung entsteht. Aber auch bei einem zu niedrigen Lambda kommt es zu einem zumindest bei den meisten Brennstoffen (Ausnahme hier Fichtenscheitholz) deutlichen Anstieg der Kohlenstoffmonoxidemissionen, weil zumindest stellenweise im Brennraum nicht genug Sauerstoff vorhanden ist, um eine vollständige Oxidation der Brenngase und damit auch des CO zu erreichen. Hohe Abgastemperaturen können ein Indiz für nicht ausreichende Verweilzeiten in der Brennkammer sein, so dass der Verbrennungsprozess nicht abgeschlossen ist und somit hohe Emissionen an CO im Abgas verbleiben.

Fazit. Niedrige Kohlenstoffmonoxidemissionen (unter $3,8 \text{ mg/Nm}^3$ bei 13 \% O_2) können bei dem untersuchten Kaminofen bei einer Luftüberschusszahl von 3,2 bis 4,3 bzw. Abgastemperaturen von 550 bis 580 K erreicht werden.

5.1.2 Kohlenwasserstoffe

Korrelation. Neben den Kohlenstoffmonoxidemissionen werden auch die Emissionen an Kohlenwasserstoffen als Gesamt-C zur Einschätzung der Qualität der Verbrennung als gasförmige Emission gemessen und in Korrelation zur Luftüberschusszahl (Abb. 5-3 links) bzw. der Abgastemperatur gesetzt (Abb. 5-3 rechts). Die Emissionsverläufe ähneln grundsätzlich denen der CO-Emissionen (Abb. 5-2). Niedrige Gesamt-C-Emissionen von unter 100 mg/Nm^3 (13 \% O_2) werden an dem untersuchten Kaminofen für Luftüberschusszahlen von 3,2 bis 3,7 sowie für Abgastemperaturen von 547 bis 575 K erreicht. Beide Bedingungen erfüllen vier der 51 Messungen, wobei auch hier wieder zwei der Versuche der Standardvariante Buchenscheitholz mit 11 \% Wassergehalt zuzuordnen sind.

Erklärungsansätze. Hohe Luftüberschusszahlen mindern die Verbrennungsraumtemperatur, so dass die aus der pyrolytischen Zersetzung stammenden Kohlenwasserstoffe trotz ausreichendem Sauerstoffangebot nicht vollständig abgebaut werden können. Bei niedrigen Luftüberschusszahlen reicht das Sauerstoffangebot vielfach zumindest in Teilen des Brennraums nicht aus, um eine vollständige Umsetzung der Kohlenwasserstoffe zu erreichen. Hohe Abgastemperaturen können auch hier ein Anzeichen für einen nicht abgeschlossenen Verbrennungsprozess sein, so dass hohe Kohlenwasserstoffemissionen im Abgas verbleiben.

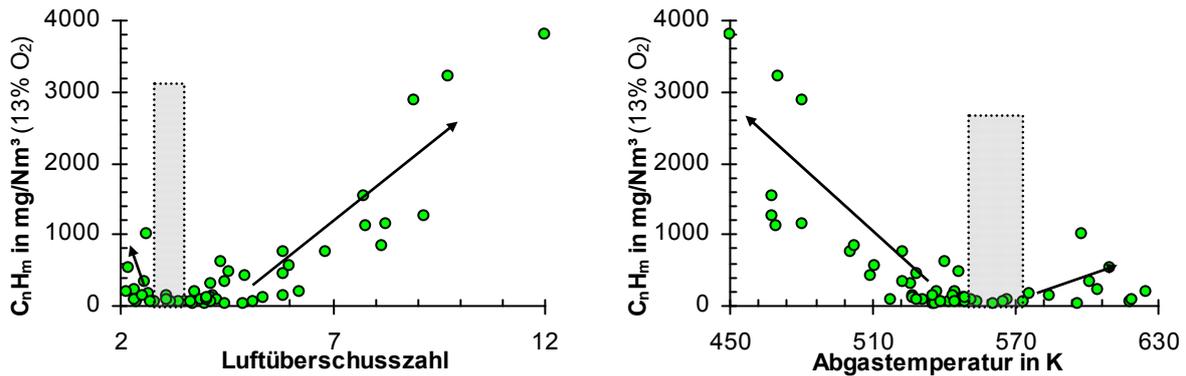


Abb. 5-3: Zusammenhang zwischen gasförmigen Kohlenwasserstoffemissionen (C_nH_m) gemessen als Gesamt-C und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (51 Versuchsvariationen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen Kohlenwasserstoffemissionen

Fazit. Niedrige Kohlenwasserstoff-Emissionen (unter $100 mg/Nm^3$ bei 13 % O_2) können bei Luftüberschusszahl von 3,2 bis 3,7 bzw. Abgastemperaturen von 547 bis 575 K erreicht werden.

5.1.3 Elementarer Kohlenstoff

Korrelation. Niedrige Werte für den im Feinstaub nachgewiesenen elementaren Kohlenstoff (inkl. der Karbonate) ergeben sich für Luftüberschusszahlen zwischen 4,5 und 5,8 (Abb. 5-4 links) sowie für Abgastemperatur von 525 bis 545 K (Abb. 5-4 rechts). Dabei liegen die Emissionen an EC in Bezug auf die Eingrenzung der Luftüberschusszahl unter $40 mg/Nm^3$ (13 % O_2) und bezüglich der Abgastemperatur unter $60 mg/Nm^3$. Von den 14 durchgeführten Analysen erfüllt nur die Versuchsvariante des Buchenscheitholzes mit 20 % Wassergehalt beide Kriterien. Unabhängig davon gibt es noch eine ganze Reihe anderer Versuchsvarianten, die ähnlich niedrige EC-Emissionen aufweisen, die aber außerhalb der eindeutigen Einstellbereiche der Luftüberschusszahl bzw. der Abgastemperatur liegen, so dass diese nicht über die beiden betrachteten Betriebsparameter eingeregelt werden können.

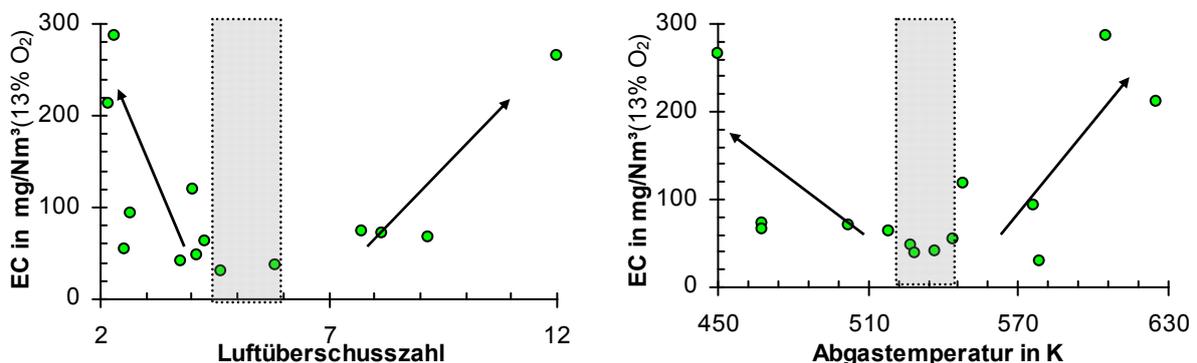


Abb. 5-4: Zusammenhang zwischen elementarem Kohlenstoff (EC) (inkl. Karbonaten) und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (14 Analysen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen EC-Emissionen

Erklärungsansätze. Niedrige Luftüberschusszahlen und hohe Abgastemperaturen können die Bildung von elementarem Kohlenstoff (Ruß) begünstigen. Beide Betriebsparameter können

zu einer Vergrößerung der heißen und sauerstoffarmen Zonen der Flamme führen, in denen die Rußbildung abläuft. Kommt es danach durch eine ungenügende Verweilzeit bei hohen Temperaturen oder lokalem Sauerstoffmangel zu einer Störung der Abbauprozesse, werden große Mengen an EC mit dem Abgas freigesetzt. Demnach sind sowohl zu niedrige Luftüberschusszahlen bzw. Abgastemperaturen genauso wie zu hohe mit einer erhöhten Rußbildung verbunden. Zu niedrige Luftüberschusszahlen bewirken die Vergrößerung der sauerstoffarmen Zonen in der thermischen Umsetzung, so dass viel EC gebildet wird, der dann aufgrund von Verbrennungsstörungen später nicht mehr abgebaut werden kann. Für hohe Luftüberschusszahlen und niedrige Abgastemperaturen verläuft die Rußbildung durch eine Verkleinerung der heißen und sauerstoffarmen Zonen etwas gehemmt, so dass erst bei extrem niedrigen Luftüberschusszahlen bzw. Abgastemperaturen die Oxidation derart gestört ist, dass die Emission an elementarem Kohlenstoff stark ansteigt.

Fazit. Bei Luftüberschusszahlen von 4,5 bis 5,8 und Abgastemperaturen von 525 bis 545 K können für den untersuchten Scheitholzkaminofen niedrige EC-Gehalte (kleiner 60 mg/Nm^3 bei 13 % O_2) in den Feinstaubemissionen sichergestellt werden. Für die Praxis ist diese Vorgabe als Regelgröße jedoch ungeeignet, da nur noch eine Versuchseinstellung beide Bedingungen erfüllt, obwohl mehrere andere Versuchsbedingungen, die obige Vorgaben verletzen, z. T. zu niedrigeren Emissionen führen.

5.1.4 Organischer Kohlenstoff

Korrelation. Niedrige Freisetzungen an organischem Kohlenstoff (OC) auf den im verdünnten Abgas gewonnenen Staubproben ergeben sowohl Luftüberschusszahlen von 2,5 bis 4,7 mit OC-Emissionen von $0,5$ bis $10,5 \text{ mg/Nm}^3$ (Abb. 5-5 links) als auch Abgastemperaturen zwischen 510 und 580 K mit OC-Emissionen von $0,5$ bis $17,6 \text{ mg/Nm}^3$ (13 % O_2) (Abb. 5-5 rechts). Beide Bedingungen erfüllen sieben der insgesamt 14 analysierten Versuchsvarianten inklusive der Standardvariante des Buchenscheitholzes bei 11 % Wassergehalt. Bei abweichenden Betriebsparametern werden grundsätzlich höhere OC-Gehalte der Feinstaubemissionen beobachtet. Damit können die gewählten Parameter als hinreichendes Kriterium für niedrige OC-Emissionen im untersuchten Kaminofen angesehen werden.

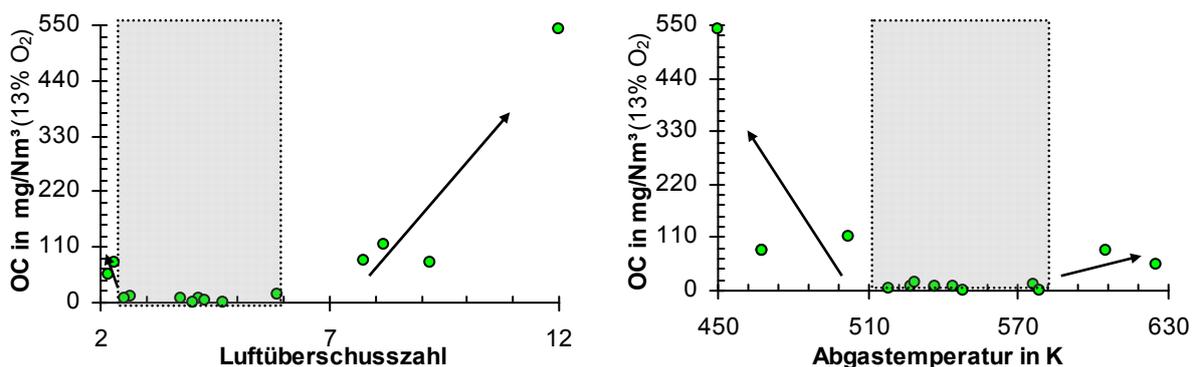


Abb. 5-5: Zusammenhang zwischen organischem Kohlenstoff (OC) und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (14 Analysen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen OC-Emissionen

Erklärungsansätze. Organischer Kohlenstoff stammt vor allem aus der pyrolytischen Zersetzung der Biomasse. Er kann bei ausreichenden Verweilzeiten und angemessenen Verbrennungstemperaturen mit der erforderlichen Menge an Sauerstoff gut oxidiert werden. Dies entspricht dem relativ breiten Band der zulässigen Betriebsparameter für niedrige Emissionen.

Bei sehr niedrigen Luftüberschusszahlen bzw. sehr hohen Abgastemperaturen – meist bedingt durch eine nicht ausreichende Reaktionszeit in der Brennkammer - kann die Oxidation der organischen Kohlenstoffe nicht abgeschlossen werden und sie werden mit dem Abgas freigesetzt. Sehr hohe Luftüberschusszahlen und damit verbunden sehr niedrige Abgastemperaturen bedingen einen vorzeitigen Abbruch der Oxidation oder führen dazu, dass die temperaturabhängige Reaktionsgeschwindigkeit zu niedrig wird, um bei gleichzeitig zugenommener Gasströmungsgeschwindigkeit eine vollständige Oxidation in der Brennkammer zu gewährleisten.

Fazit. Bei Einhaltung von Luftüberschusszahlen von 2,5 bis 4,7 bzw. Abgastemperaturen von 510 bis 580 K können die OC-Emissionen für den betrachteten Scheitholzkaminofen auf unter 20 mg/Nm³ (13 % O₂) begrenzt werden.

5.1.5 Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe

Korrelation. Konzentrationen von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen als Summe der 10 höhermolekularen U.S. EPA-PAK von maximal 85 µg/Nm³ (13 % O₂) werden bei Luftüberschusszahlen von 4,2 bis 7,0 (Abb. 5-6 links) und Abgastemperaturen von 505 bis 535 K erreicht (Abb. 5-6. rechts). Von den 29 durchgeführten Analysen erfüllen sechs beide Eingrenzungsparameter. Dabei handelt es sich jeweils mit beiden durchgeführten Analysen um die Versuchsvarianten Birken Scheitholz mit 12 % Wassergehalt, Buchenscheitholz mit 20 % Wassergehalt und Buchenscheitholz mit 11 % Wassergehalt bei einem Schornsteinzug von -22 Pa.

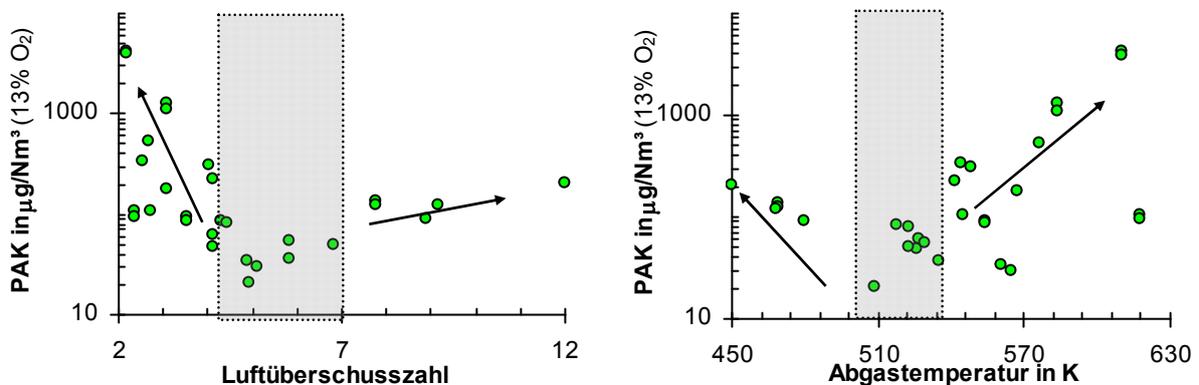


Abb. 5-6: Zusammenhang zwischen polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (29 Analysen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen PAK-Emissionen

Außerhalb des grau schraffierten Bereichs (Abb. 5-6 links) nehmen die PAK-Konzentrationen mit sinkender Luftüberschusszahl deutlich zu. Bei Überschreiten der optimalen Luftüberschusszahlen nehmen die PAK-Konzentrationen schwächer, aber genauso eindeutig zu. Im Vergleich dazu gibt es bei hohen Abgastemperaturen (Abb. 5-6 rechts) trotz der grundsätzlich deutlichen Tendenz zu steigenden PAK-Konzentrationen auf den Stäuben vereinzelte Ausreißer mit niedrigen Messergebnissen. Insofern ist die Abgastemperatur hier als Bewertungskriterium weniger eindeutig als die Luftüberschusszahl. Für sinkende Abgastemperaturen besteht eine eindeutige Korrelation zu steigenden PAK-Konzentrationen.

Erklärungsansätze. Sinkende Luftüberschusszahlen führen zu einem Anwachsen der heißen sauerstoffarmen Zonen der Flamme, so dass vermehrt polyzyklische aromatische Kohlenwas-

serstoffe gebildet werden können. Außerdem treten vermehrt Zonen im Brennraum auf, in denen ein vollständiger Ausbrand der PAK nach ihrer Entstehung aufgrund eines lokalen Sauerstoffmangels nicht mehr erfolgen kann.

Zu hohe Luftüberschusszahlen sind meist mit sinkenden Abgastemperaturen verbunden (Abkühlung des Verbrennungsgases durch Zumischung von zu viel kalter Luft), so dass hier zwar die Bildung der PAK gemindert, die Oxidation derselbigen aber noch stärker gestört ist, so dass am Ende mehr PAK mit dem Abgas freigesetzt werden.

Hohe Abgastemperaturen können in Verbindung mit niedrigen Luftüberschusszahlen bedeuten, dass die sauerstoffarmen und heißen Zonen der Flamme sehr ausgeprägt sind, so dass viele PAK gebildet werden können. Gleichzeitig kann eine hohe Abgastemperatur ein Indiz für zu kurze Verweilzeiten im Brennraum sein, so dass ein ausreichender Abbau der PAK nicht stattfinden kann. Hohe Abgastemperaturen können aber auch Folge einer heftigen aber weitgehend vollständigen Reaktion sein, so dass sie nicht zwingend mit hohen PAK-Emissionen verbunden sein müssen, wie die Ausreißer in Abb. 5-6 rechts belegen.

Die im Vergleich zu automatischen Holzfeuerungen insgesamt hohen PAK-Emissionen [14] dürften auf den Chargenabbrand und der damit verbundenen diskontinuierlichen Verbrennung zurückzuführen sein. Aufgrund einer fehlenden automatischen Luftregelung kommt es im Verlauf des Abbrandes immer wieder zu nicht optimalen Betriebszuständen, so dass in der Summe über einen Abbrand nennenswerte Mengen an PAK freigesetzt werden.

Fazit. Vergleichsweise niedrige PAK-Emissionen (bis maximal $85 \text{ } \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ bei 13 % O_2) können für die untersuchte Feuerung mit Luftüberschusszahlen von 4,2 bis 7,0 bzw. Abgastemperaturen von 505 bis 535 K sichergestellt werden. Insgesamt eignet sich die Luftüberschusszahl jedoch besser, um die niedrigsten PAK-Emissionen einzustellen. Für eine weitere Minderung der im Vergleich zu anderen Feuerungsarten hohen PAK-Emissionen müsste die Luftüberschusszahl über den gesamten Abbrand kontinuierlich an die jeweilige Abbrandphase angepasst werden.

5.1.6 Benzo[a]pyren

Korrelation. Niedrige Benzo[a]pyren-Gehalte unter $10 \text{ } \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ (13 % O_2) in den Feinstäuben stellen sich bei Luftüberschusszahlen zwischen 4,8 und 7,0 (Abb. 5-7 links) sowie Abgastemperaturen von 480 bis 520 K ein (Abb. 5-7 rechts). Beide Kriterien erfüllt nur ein Versuch von 29, so dass die gleichzeitige Erfüllung beider Kriterien nicht als zielführend angesehen werden kann. Grundsätzlich zeigt sich ein ähnliches Bild wie bei den PAK (Abb. 5-6).

Niedrige Luftüberschusszahlen führen zu einem deutlichen Anstieg der BaP, hohe Luftüberschusszahlen haben nur wenig Einfluss auf die BaP-Konzentration auf den Staubproben aus dem verdünnten Abgas. Bei niedrigen Abgastemperaturen ist ebenfalls nur eine niedrige Tendenz zu höheren BaP-Werten erkennbar. Für steigende Abgastemperaturen ist eine grundsätzliche Tendenz zu deutlich steigenden BaP-Konzentrationen zu erkennen. Diese Tendenz wird aber wiederholt durch Ausreißer zu deutlich niedrigeren BaP-Werten gestört.

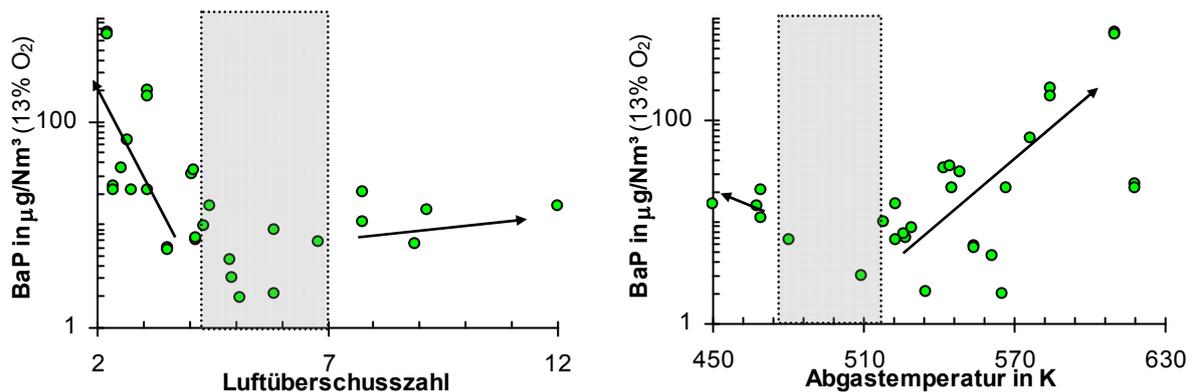


Abb. 5-7: Zusammenhang zwischen Benzo[a]pyren (BaP) und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (29 Analysen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen BaP-Emissionen

Erklärungsansätze. Als ein Einzelstoff der U.S. EPA-PAK sind die Zusammenhänge bei der Entstehung der Emissionen an BaP im Abgas sehr ähnlich zu denen der betrachteten PAK-Summen (Kapitel 5.1.5). Kleinere Unterschiede ergeben sich durch Verschiebungen bei der Relation höhermolekularer PAK zu niedermolekularer PAK aufgrund der Randbedingungen.

Fazit. Die grundsätzlichen Tendenzen sind zu denen der PAK-Emissionen vergleichbar. Die Abgastemperatur erscheint auch für die BaP-Eingrenzung als wenig geeignet. Mit Luftüberschusszahlen von 4,8 bis 7,0 können für den betrachteten Scheitholzkaminofen vergleichsweise niedrige BaP-Werte (kleiner $10 \text{ } \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ bei 13 % O_2) sichergestellt werden.

5.1.7 Gesamtstaub

Korrelation. Für die Betrachtung der Staubwerte wird auf die Messungen im verdünnten Abgas zurückgegriffen. Wird ein Staubwert von $100 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ (13 % O_2) als Maximalwert zu Grunde gelegt, so müsste die Luftüberschusszahl auf 3,2 bis 5,9 (Abb. 5-8 links) und die Abgastemperatur auf 525 bis 575 K (Abb. 5-8 rechts) eingeschränkt werden. Innerhalb beider Bereiche liegt ein einzelner Ausreißer, bei dem die beiden Versuche der gleichen Versuchsvariation Staubwerte von weniger als $100 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ aufweisen, insofern wird auf eine weitere Einengung der zulässigen Bereiche verzichtet. Insgesamt liegen 21 der 48 Messwerte unterhalb $100 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ Staub im verdünnten Abgas und haben Betriebsparameter, die innerhalb der aufgeführten Bereiche liegen. Beide Korrelationen weisen trotz der schon relativ breiten Korridore der zulässigen Betriebsparameter noch niedrige Staubemissionswerte außerhalb dieser Korridore auf. Grundsätzlich steigen jedoch für zunehmende Luftüberschusszahlen und sinkende Abgastemperaturen die Staubkonzentrationen im Abgas eindeutig an. Andererseits ergeben sich für sinkende Luftüberschusszahlen und steigende Abgastemperaturen tendenziell steigende Staubemissionen, wobei auch eine nennenswerte Anzahl an Messwerten unterhalb $100 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ liegt.

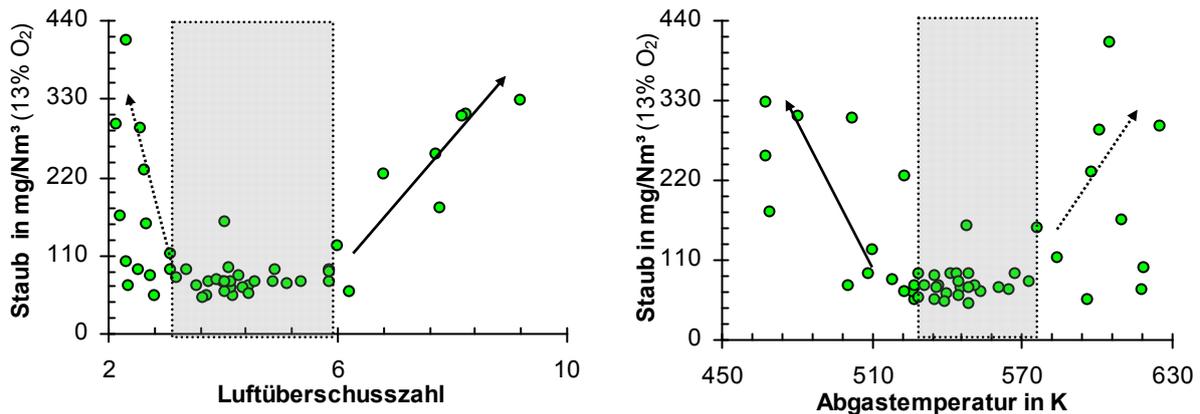


Abb. 5-8: Zusammenhang zwischen Staub im verdünnten Abgas und der Luftüberschusszahl (links) und der Abgastemperatur (rechts) (48 Versuchsvariationen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen Staub-Emissionen (ein Ausreißer)

Erklärungsansätze. Bei der Feinstaubbildung kommen mehrere Bildungspfade in Frage, die meist auch gleichzeitig ablaufen (Kapitel 2.2.2). Dadurch ist eine gute Korrelation allein über die Luftüberschusszahl und die Abgastemperatur schwierig. Da im verdünnten Abgas auch die Produkte der unvollständigen Verbrennung weitgehend vollständig miterfasst werden und diese bei Kaminöfen häufig deutlich mehr als die Hälfte der Stäube ausmachen, gelten viele der in den vorangegangenen Korrelationsbetrachtungen aufgeführten Erklärungsansätze auch hier.

Außerdem wirkt sich zusätzlich das Mitreißen von Asche- und Brennstoffpartikeln aus. Dieses wird durch hohe Strömungsgeschwindigkeiten am Glutbett begünstigt, wie sie bei hohen Luftüberschusszahlen auftreten können. Umgekehrt können niedrige Luftüberschusszahlen und hohe Abgastemperaturen zu hohen Temperaturen im Glutbett führen, wodurch mehr Nicht-Kohlenstoff-Stäube verdampft und dann als Partikel im Abgas freigesetzt werden können.

Fazit. Für eine sichere Beschränkung des Staubs unter 100 mg/Nm^3 müsste das Lambda für den untersuchten Kaminofen auf 3,2 bis 5,9 bzw. die Abgastemperatur auf 525 bis 575 K begrenzt werden.

5.1.8 Zusammenfassung

Aus der obigen Betrachtung ausgewählter Zusammenhänge zwischen einzelnen Emissionswerten und den Einflussfaktoren Luftüberschusszahl und Abgastemperatur ergibt sich die in Tabelle 5-1 aufgeführte Zusammenstellung für den untersuchten Kaminofen.

Tabelle 5-1: Übersicht über die Zielgrößen der Einflussfaktoren Luftüberschusszahl und Abgastemperatur für niedrige Emissionen

Parameter	Grenzwert	Luftüberschusszahl	Abgastemperatur	Anmerkung
CO	3,8 g/Nm ³	3,2 – 4,3	550 – 580 K	
C _n H _m als Gesamt-C	100 mg/Nm ³	3,2 – 3,7	547 – 575 K	
EC	60 mg/Nm ³	4,5 – 5,8	525 – 545 K	beide Faktoren gleichzeitig in der Praxis ungeeignet
OC	20 mg/Nm ³	2,5 – 4,7	510 – 580 K	
PAK	bis 85 ○g/Nm ³	4,2 – 7,0	505 – 535 K	Luftüberschusszahl geeigneter als Abgastemperatur
BaP	10 ○g/Nm ³	4,8 – 7,0	-	Abgastemperatur weitgehend ungeeignet
Staub	100 mg/Nm ³	3,2 – 5,9	525 – 575 K	

Demnach scheint die Luftüberschusszahl im Vergleich zur Abgastemperatur besser geeignet zu sein, um niedrige Emissionen sicherzustellen. Die Abgastemperatur wird meist dann relevant, wenn es lediglich um den Ausschluss sehr hoher Emissionen geht, die aber in Summe deutlich die Zielvorgaben zukünftiger Regelungen verletzen dürften. Für die Erreichung niedriger Emissionen an CO, Gesamt-C und OC sollte deshalb die Luftüberschusszahl in einem Bereich von 3,2 bis 3,7 eingestellt werden, wobei sich die Beschränkungen hier vor allem aus der Begrenzung der gasförmigen Kohlenwasserstoffe ergibt. Wird vor allem auf die toxikologisch besonders relevanten Komponenten PAK und BaP geachtet, sind eher höhere Luftüberschusszahlen von 4,8 bis 7,0 anzustreben. Für die Begrenzung der EC-Emissionen wäre der Bereich der Luftüberschusszahl weiter auf 4,8 bis 5,8 einzugrenzen. Damit lassen sich entweder niedrige gasförmige Emissionen über die Luftüberschusszahl oder niedrige Emissionen der toxikologisch relevanten Emissionen einregeln.

In der Konsequenz sind weder Luftüberschusszahl noch die Abgastemperatur alleine ausreichend, um Regelvorgaben für insgesamt niedrige Emissionen festzulegen. Außerdem wird die Notwendigkeit der getrennten Regelung der Zone der pyrolytischen Zersetzung und der Vergasung des Restkohlenstoffs sowie der Zone der Oxidation der Brenngase deutlich.

5.2 Abhängigkeit einzelner Emissionen

Zwischen den Messgrößen, die den Grad der Vollständigkeit und damit die Qualität der Verbrennung beschreiben, bestehen erwartungsgemäß gewisse Beziehungen. Deshalb ist es das Ziel in diesem Teilkapitel, mögliche Ableitungen zu finden, durch die schwer zu erfassende oder aufwändig zu messende Größen wie BaP, PAK, OC und EC auf einzelne oder mehrere leicht zu messende Größen wie CO oder C_nH_m zurückgeführt werden können. Dabei wird von den toxikologisch relevantesten Messgrößen zu den weniger kritischen Größen vorgegangen. Außerdem wird auch die Frage der vereinfachten Abschätzung der zu erwartenden Gesamtstaubemissionen im verdünnten Abgas betrachtet.

5.2.1 Staubmasse

Korrelation. Da sowohl die PAK als auch EC und OC auf den Gesamtstaubproben analysiert werden, liegen diese Messgrößen genauso diskontinuierlich vor wie die gravimetrische Staubprobennahme. Außerdem erfordert ihre Bestimmung eine isokinetische Staubprobennahme und eine Bestimmung des Gewichts der analysierten Probenmenge. Damit ist dann aber auch die gravimetrische Staubmengenerfassung möglich. Deshalb führen Korrelationen zwischen PAK, EC und OC einerseits und dem Gesamtstaub andererseits nicht zu einer schnelleren oder einfacheren Bestimmung der Staubmasse.

Von den Gesamtstaubmengen kann nicht auf die PAK-Gehalte zurückgeschlossen werden. Beispielsweise zeigt Abb. 5-9, dass im Bereich von 60 bis 120 mg/Nm³ (13 % O₂) an Staubemissionen die Konzentrationen an PAK um fast zwei Größenordnungen variieren können. Andererseits kann die gleiche PAK-Konzentration im Abgas bei um fast eine Größenordnung variierende Gesamtstaubmengen vorkommen.

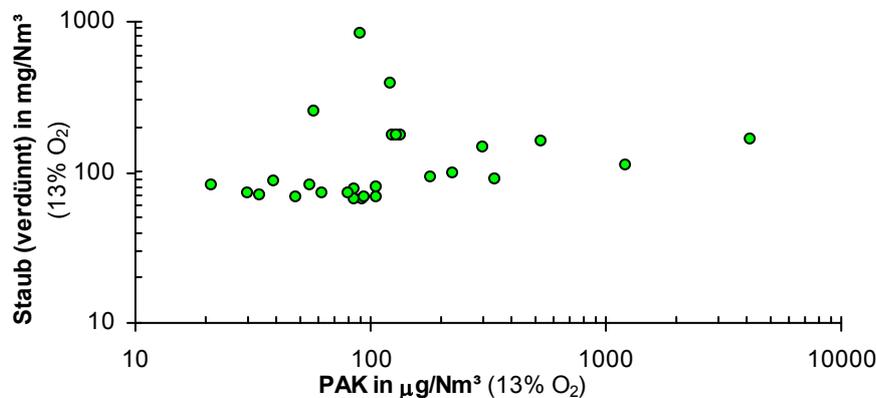


Abb. 5-9: Korrelation zwischen den PAK-Analysen und dem Gesamtstaub gemessen im verdünnten Abgas (27 Analysen) an einem Scheitholzheizkaminofen ohne automatische Luftregelung

OC und Staub im verdünnten Abgas sowie EC und Staub im verdünnten Abgas lassen ebenfalls keine eindeutige Ableitung des einen Messwerts aus dem anderen zu. Da beim untersuchten Kaminofen der Staub v. a. aus OC und EC besteht, ergibt sich erwartungsgemäß eine relativ starke Korrelation zwischen den Staubemissionen und der Summe an Emissionen aus OC und EC (Anhang 11). Damit bleibt die Untersuchung einer möglichen Korrelation der Gesamtstäube mit den gasförmigen Emissionen CO und C_nH_m. Da diese mit den Messungen des Staubes im unverdünnten Abgas keine auffällige Korrelation aufweisen (Anhang 12), werden im Folgenden nur die Korrelationen mit dem im verdünnten Abgas gemessenen Staubmengen betrachtet. Dabei wird nur der Messbereich betrachtet, der für die Einhaltung von Grenzwerten relevant ist (CO kleiner 6 g/Nm³ und C_nH_m kleiner 200 mg/Nm³ bei 13 % O₂).

Grundsätzlich kann in dem für die Optimierung der Feuerungsanlage relevanten Bereich kein direkter Zusammenhang zwischen den Kohlenwasserstoffemissionen und den Staubemissionen im verdünnten Abgas (Abb. 5-10 links) bzw. den Kohlenstoffmonoxidemissionen und den Staubemissionen (Abb. 5-10 rechts) nachgewiesen werden, auch wenn oberhalb von 5 g/Nm³ an CO-Emissionen ein Trend zu einer Proportionalität zu erkennen ist.

Bis zu Kohlenwasserstoffgehalten von knapp 100 mg/Nm³ bzw. Kohlenstoffmonoxidkonzentrationen im Abgas von unter 2,8 g/Nm³ bleiben die Staubemissionen sicher unter 100 mg/Nm³ (13 % O₂). Werden diese Werte als Einstellgrenze angenommen, liegen für die Kohlenwasserstoffemissionen 21 Messungen und für die Kohlenstoffmonoxidemissionen 14

Messungen im angestrebten Bereich. Insofern würde ein Kohlen(wasser)stoffsensor eine höhere Praktikabilität in Bezug auf die Einstellung niedriger Staubwerte bei dem untersuchten Kaminofen sicherstellen. Mit der Eingrenzung der zulässigen Kohlenwasserstoffemissionen auf unter 100 mg/Nm^3 würde bei dem untersuchten Kaminofen die CO-Emission auch sicher auf unter $3,5 \text{ g/Nm}^3$ beschränkt. Insofern könnte mit einem Kohlenwasserstoffsensor und Integration einer Regelung zur Einstellung der Luftzugabe nicht nur die Staubemission begrenzt, sondern auch die Kohlenstoffmonoxidemissionen in einem für den untersuchten Kaminofen akzeptablen Rahmen gehalten werden.

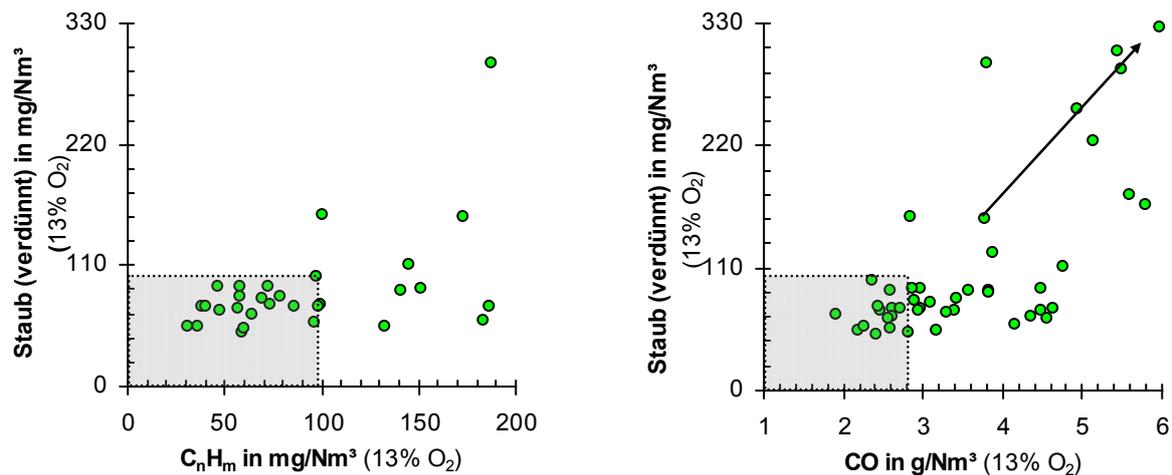


Abb. 5-10: Korrelation zwischen den Gesamtstaubproben im verdünnten Abgas und den Emissionen an Kohlenwasserstoffen (links, 30 Messungen) und an Kohlenstoffmonoxid (rechts, 45 Messungen) an einem Scheitholzaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen Staubemissionen

Fazit. Es besteht kein eindeutiger Zusammenhang zwischen Staubemissionen und den Emissionen an PAK, OC oder EC. Auch für die Emissionen an Kohlenwasserstoffen und Kohlenstoffmonoxid können in dem für die Optimierung relevanten Bereich keine eindeutigen Abhängigkeiten aufgestellt werden. Es kann jedoch durch die Begrenzung der C_nH_m-Emissionen auf unter 100 mg/Nm^3 bei 13 % O₂ die Emission an Staub im verdünnten Abgas bei dem untersuchten Kaminofen auf unter 100 mg/Nm^3 und die Kohlenstoffmonoxidemissionen auf unter $3,5 \text{ g/Nm}^3$ beschränkt werden.

5.2.2 Benzo[a]pyren

Korrelation. Durch die Bestimmung der PAK auf den Staubproben im verdünnten und damit abgekühlten Abgas werden vor allem die höhermolekularen PAK erfasst. Zu diesen gehört auch das Benzo[a]pyren. In dem für eine weitere Optimierung der Feuerung relevanten Bereich von unter $200 \text{ } \mu\text{g/Nm}^3$ (13 % O₂) an PAK-Emissionen korrelieren diese mit den BaP-Konzentrationen nur mit einem Bestimmtheitsgrad von 65 % (Abb. 5-11). Dennoch kann für PAK-Werte kleiner $70 \text{ } \mu\text{g/Nm}^3$ eine direkte Proportionalität zu den BaP-Werten mit geringen absoluten Abweichungen unterstellt werden. Umgekehrt gilt dies jedoch nicht. Insofern kann von niedrigen PAK-Werten sicher auf niedrige BaP-Werte zurückgeschlossen werden.

Fazit. Niedrige PAK-Emissionen stellen auch niedrige BaP-Emissionen sicher. Da beide Werte im gleichen Analyseschritt ermittelt werden, kann auf eine weitere Untersuchung der Korrelationen des BaP verzichtet werden.

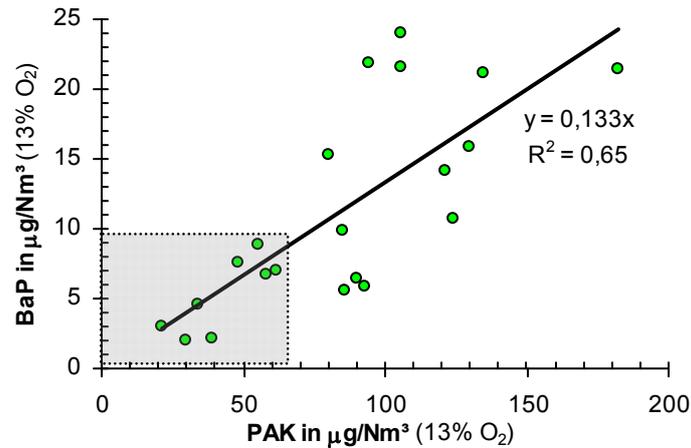


Abb. 5-11: Korrelation zwischen der Summe der auf den Staubproben im verdünnten Abgas erfassten PAK und dem Benzo[a]pyren (21 Analysen) an einem Scheitholzkaaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit hoher Korrelation zwischen PAK- und BaP-Emissionen

5.2.3 Summe der PAK

Korrelation. Die Summe der PAK ist von den in dieser Arbeit untersuchten Größen für die toxikologische Relevanz der Feinstäube der entscheidende Parameter. Der organische und elementare Kohlenstoff in den Stäuben hat sehr wahrscheinlich eine deutlich niedrigere Relevanz [27]. Gleichzeitig zeigen OC und EC als auch die Summe der beiden keine eindeutigen Korrelationen mit den PAK-Emissionen (Anhang 13).

Elementarer Kohlenstoff benötigt zur Bildung genauso wie die PAK heiße Flammzonen, die durch ein zumindest lokales Unterangebot an Sauerstoff gekennzeichnet sind. Je nach Ausprägung dieser Zonen und den gegebenen Ausbrandmöglichkeiten im Nachgang kann das Verhältnis zwischen den EC und PAK schwanken. OC hat mit der PAK-Bildung zumindest in der Theorie keine direkte Kopplung. Vielmehr sind die PAK dem organischen Kohlenstoff zuzuordnen. Unter gewissen Verbrennungsbedingungen können aber als organischer Kohlenstoff zu messende Verbindungen (z. B. PAK) entstehen. Dabei entstehen die PAK typischerweise in heißen und sauerstoffarmen Flammzonen, während die meisten organischen Kohlenstoffverbindungen im Rahmen der pyrolytischen Zersetzung entstehen und bei hohen Temperaturen besser abgebaut werden. Da EC und OC ebenfalls anhand einer Staubprobe zu analysieren sind und damit keine Online-Methode darstellen (bzw. sehr teure Messgeräte eingesetzt werden müssen), erscheint eine weitere Untersuchung der Korrelationen im Sinne der Vereinfachung der messtechnischen Erfassung wenig sinnvoll.

Deutlich vielversprechender ist daher die Betrachtung der Korrelationen zu den gasförmig gemessenen Kohlenwasserstoffen (Abb. 5-12 links) und dem Kohlenstoffmonoxid (Abb. 5-12 rechts). Für die zur weiteren Optimierung der Feuerung interessanten Bereiche ergeben sich für die gasförmigen Kohlenwasserstoffe und die Kohlenstoffmonoxide jedoch keine eindeutigen Abhängigkeiten (C_nH_m kleiner $200 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ und CO kleiner $6 \text{ g}/\text{Nm}^3$ bei 13 % O_2). Mit der Begrenzung der C_nH_m -Emissionen auf unter $140 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ bzw. der CO -Emissionen auf unter $3,7 \text{ g}/\text{Nm}^3$ bei 13 % O_2 können PAK-Emissionen von unter $340 \text{ O g}/\text{Nm}^3$ eingehalten werden.

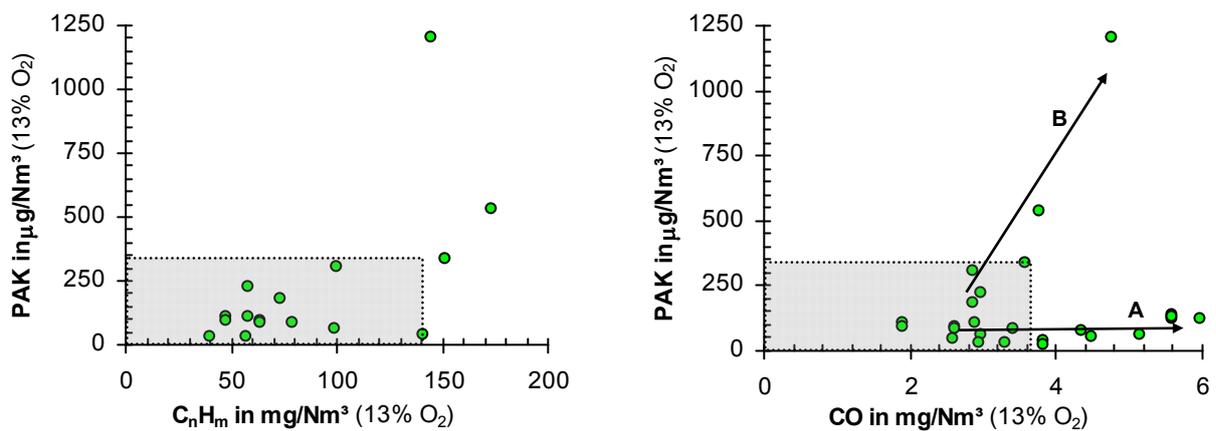


Abb. 5-12: Korrelationen zwischen den gemessenen PAK-Emissionen und den zugehörigen Kohlenwasserstoff- (links, 16 Messungen) bzw. Kohlenstoffmonoxid-Emissionen (rechts, 26 Messungen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen PAK-Emissionen; A .. Korrelationstendenz zu niedrigen PAK-Emissionen bei steigenden CO-Konzentrationen; B .. Korrelationstendenz zu stark steigenden PAK-Emissionen bei steigender CO-Konzentration

Niedrigere PAK-Werte lassen sich nur durch die Betrachtung der Luftüberschusszahl erreichen, die dann aber unabhängig von den C_nH_m - bzw. CO-Werten als Begrenzung genügt (Kapitel 5.1.5). Für die Korrelation zwischen CO- und PAK-Emissionen lässt sich dies gut anhand der Zuordnung zu den Tendenzen A für Luftüberschusszahlen größer 4,1 und B für Luftüberschusszahlen kleiner 4,1 veranschaulichen (Abb. 5-12 rechts). Als Begründung sind die Schadstoffbildungswege und -abbaumechanismen anzusehen, deren Ausprägung u. a. durch die Luftüberschusszahl beeinflusst wird.

Fazit. Korrelationen zwischen PAK und OC bzw. EC erscheinen wenig zielführend. Eine Eingrenzung der PAK-Emissionen über C_nH_m bzw. CO ist grundsätzlich möglich, aber für den untersuchten Kaminofen weniger genau als die Eingrenzung über die Luftüberschusszahl.

5.2.4 Organischer Kohlenstoff

Korrelation. Organischer Kohlenstoff kann sowohl direkt als auch auf den Staubproben diskontinuierlich erfasst werden. Da beide Verfahren entweder sehr teuer oder zeitaufwendig sind, sollte durch die Einstellung leichter erfassbarer Messgrößen eine Minimierung der OC-Emissionen angestrebt werden. In dem für eine weitere Optimierung interessanten Bereich (C_nH_m -Emissionen kleiner 200 mg/Nm^3) gibt es eine schwache Tendenz zu steigenden OC-Emissionen bei einem Anstieg der C_nH_m -Emissionen mit einer deutlichen Abweichung oberhalb von 180 mg/Nm^3 (13 % O_2) (Abb. 5-13 links). Unterhalb dieser Grenze können niedrige Kohlenwasserstoff-Emissionen (als Gesamt-C) OC-Emissionen von weniger als 12 mg/Nm^3 sicherstellen.

Für Kohlenstoffmonoxid und OC ist keine Korrelation zu erkennen (Abb. 5-13 rechts).

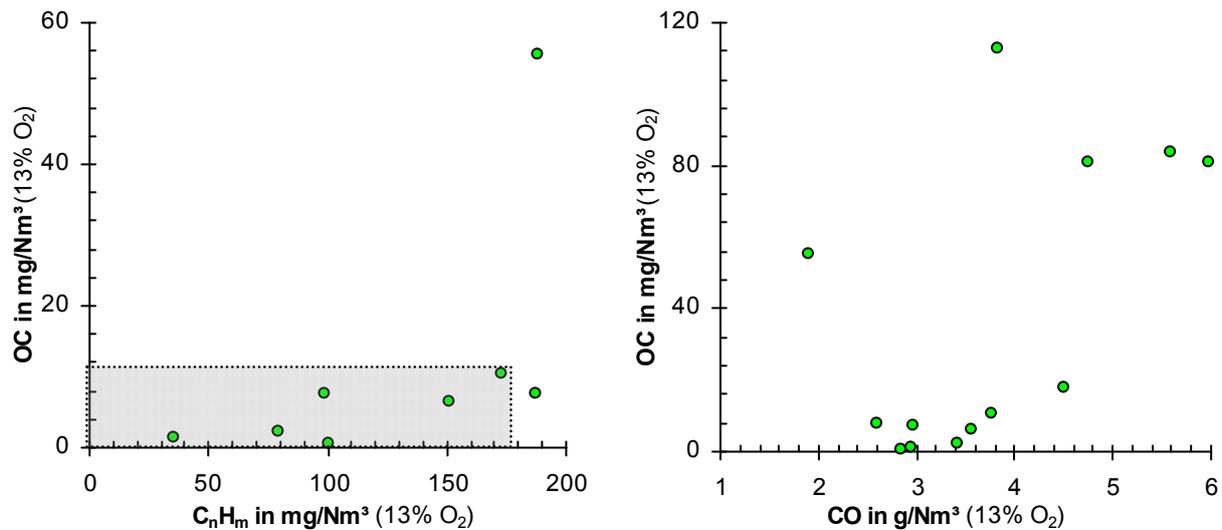


Abb. 5-13: Korrelation der Analyseergebnisse des Organischen Kohlenstoffs (OC) zu Kohlenwasserstoffen (C_nH_m) als Gesamt-C (links, acht Messungen) bzw. Kohlenstoffmonoxid (rechts, dreizehn Messungen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen C_nH_m-Emissionen

Fazit. Auf Basis der am Kaminofen mit der gewählten Methodik gewonnenen Ergebnisse wäre also ein Kohlen(wasser)stoffsensor gut als Regelsignal zur Minimierung der OC-Emissionen über eine Luftregelung geeignet. Bei einer Begrenzung des Kohlenwasserstoffgehaltes auf maximal 180 mg/Nm³ würde bei dem hier vermessenen Kaminofen die OC-Emission unter 12 mg/Nm³ begrenzt werden.

5.2.5 Elementarer Kohlenstoff

Korrelation. Für den elementaren Kohlenstoff gilt bezüglich der Messbarkeit das für den organischen Kohlenstoff Gesagte, da beide mit den gleichen Geräten erfasst werden. Für die Zusammenhänge zwischen dem elementaren Kohlenstoff und den zugehörigen Kohlenwasserstoffwerten (Abb. 5-14 links) bzw. den Kohlenstoffmonoxid-Emissionen (Abb. 5-14 rechts) lassen sich in dem für die weitere Optimierung interessanten Emissionsbereich (C_nH_m kleiner 200 mg/Nm³ und CO kleiner 6 mg/Nm³ bei 13 % O₂) jeweils zwei Abhängigkeiten vermuten. Da diese nicht einfach über die Luftüberschusszahl unterschieden werden können, muss davon ausgegangen werden, dass auf der erfassten Datenbasis die Aufstellung einer Korrelation zwischen EC und C_nH_m (als Gesamt-C) bzw. CO nicht möglich ist. Dies entspricht auch der Theorie zur Bildung von Elementarem Kohlenstoff (Ruß) über die PAK-Bildung, die sich deutlich von den Prozessen zur Emission von C_nH_m und CO unterscheidet. Mit CO-Werten kleiner 2,8 g/Nm³ könnten ggf. vergleichsweise niedrige EC-Werte kleiner 50 mg/Nm³ erreicht werden.

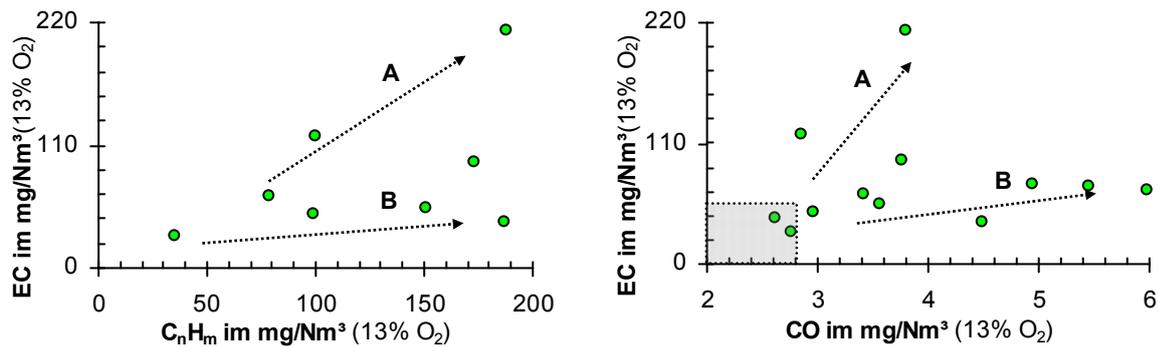


Abb. 5-14: Korrelation der Analysen des Elementaren Kohlenstoffs (EC) zu Kohlenwasserstoffen (C_nH_m) als Gesamt-C (links, acht Messungen) bzw. Kohlenstoffmonoxid (rechts, zwölf Messungen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; A, B jeweils zwei unterschiedliche Korrelationstendenzen; grau schraffierter Bereich als mögliche Empfehlung für niedrige EC-Emissionen

Fazit. Weder Kohlenwasserstoff- noch Kohlenstoffmonoxidemissionen sind bei dem untersuchten Kaminofen als Parameter für niedrige EC-Emissionen geeignet. Erst wenn der Betrieb der Feuerung mit durchgehend niedrigeren C_nH_m - und CO-Emissionen erreicht werden kann, besteht die Möglichkeit, dass diese Werte als Regelparameter für EC in Frage kommen könnten (z.B. CO kleiner $2,8 \text{ g/Nm}^3$ bei 13 % O_2).

5.2.5.1 Kohlenwasserstoffe

Korrelation. Grundsätzlich korrelieren die Kohlenwasserstoff-Emissionen für den untersuchten Kaminofen und die durchgeführten Messungen im für die weitere Optimierung interessanten Bereich (CO kleiner 6 g/Nm^3 bei 13 % O_2) relativ gut mit den Kohlenstoffmonoxidemissionen. Dies belegt der Bestimmtheitsgrad von rund 73 % (Abb. 5-15).

Für den Bereich bis zu einer Kohlenstoffmonoxidemission von $3,8 \text{ g/Nm}^3$ (13 % O_2) liegen die Kohlenwasserstoffemissionen unter 200 mg/Nm^3 . Bei dem einzigen Ausreißer aus dem grau schraffierten Bereich in Abb. 5-15 handelt es sich um einen Messwert, der innerhalb seiner Versuchsvariante deutlich nach oben von den sonst gemessenen Werten abweicht. Bei der Nutzung von Naturholzscheiten sind solche Ausreißer immer möglich. Wird ein ähnlicher weiterer Ausreißer akzeptiert, kann mit einer Begrenzung des CO auf kleiner $3,1 \text{ g/Nm}^3$ eine C_nH_m -Emission von maximal 100 mg/Nm^3 erreicht werden.

Mit wachsenden CO-Emissionen steigt auch die Schwankungsbreite der Kohlenwasserstoffemissionen. Im Chargenabbrand verändert sich beim Übergang von der pyrolytischen Zersetzung zur Vergasung der verbliebenen Holzkohle das Verhältnis zwischen den im Glutbett entstandenen Kohlenwasserstoff- und den Kohlenstoffmonoxid-Gasmengen. Je nach Ausprägung dieser Phasen und den auch im Abbrandverlauf sich ändernden Ausbrandbedingungen kann sich die Korrelation zwischen CO und C_nH_m verändern (Anhang 2). Je unvollständiger die Verbrennung ist, desto höher können die Abweichungen sein (Anhang 7).

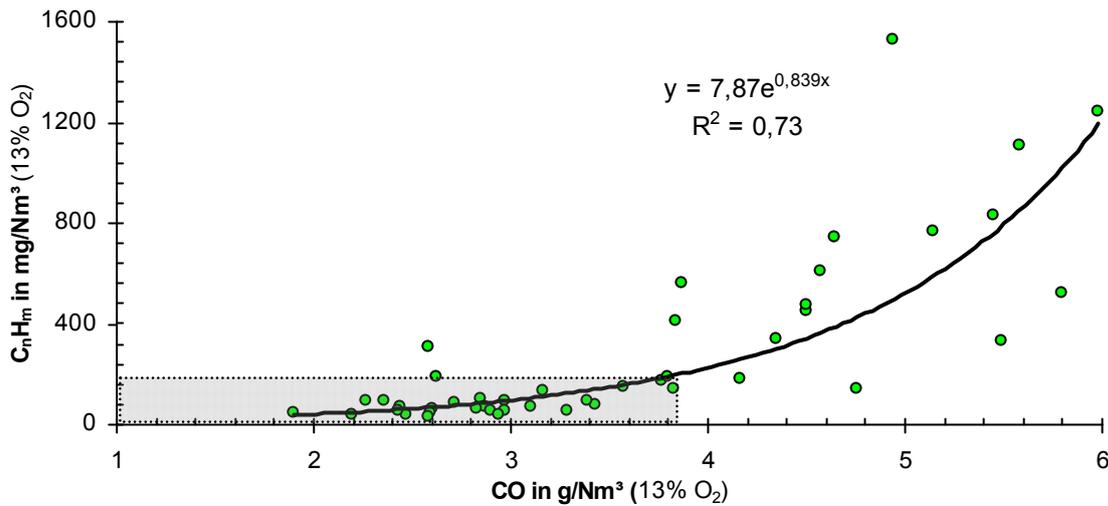


Abb. 5-15: Korrelation der Kohlenstoffmonoxid(CO)-Emissionen mit den Kohlenwasserstoff (C_nH_m)-Emissionen (45 Messungen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung; grau schraffierter Bereich mit niedrigen C_nH_m-Emissionen

Fazit. Für CO-Emissionen kleiner 3,8 g/Nm³ besteht beim untersuchten Kaminofen eine weitgehend stabile Korrelation zu den C_nH_m-Emissionen mit einer Freisetzung kleiner 200 mg/Nm³ (13 % O₂).

5.2.5.2 Zusammenfassung

In Tabelle 5-2 sind die Erkenntnisse aus den vorangegangenen Untersuchungen zur vereinfachten Einstellung niedriger Emissionen an Gesamtstaub, BaP, PAK, OC, EC und C_nH_m durch die leichter zu messenden Größen CO und C_nH_m zusammengefasst.

Tabelle 5-2: Zusammenfassung der Erkenntnisse zu möglichen Zusammenhängen zwischen den untersuchten Messgrößen (alle Angaben bei 13 % O₂)

einzustellende Messgröße	vorgeschlagene Regelgröße	Ergebnis
Gesamtstaub	C _n H _m < 100 mg/Nm ³	Staub < 100 mg/Nm ³ und CO < 3,5 g/Nm ³
BaP	PAK	gute Korrelation, d. h. mit PAK-Begrenzung auch eingestellt
PAK	Lambda > 4,1	PAK ≤ 85 μ g/Nm ³
OC	C _n H _m < 180 mg/Nm ³	OC < 12 mg/Nm ³
EC	CO < 2,8 g/Nm ³	EC < 50 mg/Nm ³ (nur zwei Messwerte)
C _n H _m	CO < 3,8 g/Nm ³	in diesem Bereich Korrelation hinreichend; C _n H _m < 200 mg/Nm ³

Je stärker die Verbrennung in dem untersuchten Kaminofen gestört ist, desto schwieriger wird es in den meisten Fällen, eine Korrelation zwischen den verschiedenen Messgrößen aufzustellen. Für einen emissionsarmen Betrieb lassen sich jedoch gewisse Regelgrößen ableiten. In der Summe der Untersuchungen ist erkennbar, dass je nach Messgrößen Kohlenwasserstoffsensoren, Lambda-Sonden oder CO-Sensoren von Vorteil wären. Aufgrund der guten Korre-

lation zwischen Kohlenwasserstoffen und Kohlenstoffmonoxid im betrachteten Bereich können C_nH_m -Emissionen kleiner 100 mg/Nm^3 bei 13 % O_2 bei dem untersuchten Kaminofen auch durch eine CO-Begrenzung kleiner dem für niedrige EC-Emissionen geforderten Wert von $2,8 \text{ mg/Nm}^3$ erreicht werden.

Fazit. Ein emissionsarmer Betrieb des untersuchten Kaminofens könnte mit Hilfe einer Lambda-Sonde und eines CO-Sensors vorgegeben werden. Um diese Werte auch aktiv beeinflussen zu können, müsste mindestens eine automatische Regelung der Luftzufuhr ermöglicht werden, was in der Regel auch ein elektrisch betriebenes Saugzuggebläse erfordert. Um den im Vergleich zu anderen Feuerungsarten hohen Anteil an EC (Ruß) deutlich zu senken, sind sehr wahrscheinlich weitere technische Änderungen an Kaminöfen notwendig. Es empfiehlt sich die Trennung der Zone der pyrolytischen Zersetzung und Vergasung von der eigentlichen Brennkammer [112], eine eher runde Brennkammer mit hohen Lufteindüsungsgeschwindigkeiten von vorgewärmter Luft, eine gute Isolation der Brennkammer inkl. der Sichtscheibe mit vorgewärmter Sekundärluft und die getrennte Regelung von Primär- und Sekundärluft.

6 Schlussbetrachtung

Feinstäube aus häuslichen Biomassefeuerungsanlagen stellen eine zu beachtende Schadstoffemission dar [12], [13]. Ziel dieser Arbeit war es, Möglichkeiten zur Verminderung der Feinstaub-Emissionen insbesondere auch unter Beachtung der toxikologischen Relevanz am Beispiel eines Kaminofens aufzuzeigen.

Grundsätzlich muss bei der Feinstaubproblematik zwischen den Stäuben aus einer unvollständigen Verbrennung – vor allem elementarer und organischer Kohlenstoff in den verschiedensten Verbindungen – und denen einer vollständigen Verbrennung – vor allem Nicht-Kohlenstoff-Verbindungen wie Salze und Metalle – unterschieden werden. Während letztere vor allem durch die Inhaltsstoffe an S, Cl, K sowie einige andere Elemente (Si, Ca, P, Na, N sowie Zn, Mn, Fe ...) und die Freisetzungsbedingungen im Glutbett – bestimmt durch Sauerstoffangebot und Glutbetttemperatur – bedingt werden, sind erstere vor allem durch die Qualität der Kohlenstoffverbrennung geprägt. Insbesondere die toxikologisch besonders relevanten PAK und Kohlenstoffverbindungen im Staub werden essentiell von ausreichenden Verweilzeiten bei hohen Temperaturen und guten Durchmischungsverhältnissen geprägt.

Kaminöfen für Scheitholz sind in ihrer heute marktüblichen Bauform mit unregelmäßiger Luftzufuhr, Naturzug und Chargenbetrieb im oberen Abbrand durch im Vergleich zu anderen Biomassefestbrennstoffverbrennungsanlagen hohen Staubemissionen geprägt, die v. a. aus organischem und elementarem Kohlenstoff bestehen. Fehlverhalten der Nutzer können die ohnehin verbesserungsbedürftigen Emissionslasten weiter deutlich erhöhen.

Hier wurde gezeigt, dass mit einem Wassergehalt von unter 20 %, angepassten Scheitgrößen, der vom Hersteller vorgeschriebenen Brennraumbefüllmenge, der optimalen Lufteinstellung und einem angepassten Schornsteinzug sowohl die Gesamtstaubemissionen als auch deren toxikologische Relevanz gemindert werden können. Die Holzart hat sich, abgesehen vom Fichtenscheitholz ohne Rinde, als wenig relevant erwiesen. Dabei spielt möglicherweise die durch die fehlende Rinde höhere Reaktivität der Scheite eine Rolle, die bei der Auslegung der Kaminöfen bisher nicht berücksichtigt ist.

Durch den Ansatz, die gravimetrischen Staubemissionen konsequent zusammen mit den freigesetzten Gehalten an toxikologisch besonders relevanten Komponenten zur Bewertung von Betriebsvariationen heranzuziehen, haben sich in einigen Fällen neue Einschätzungen ergeben (z. B. Vermeidung des Einsatzes von zu kleinen Scheiten, die v. a. eine Erhöhung der toxikologischen Relevanz der emittierten Stäube mit sich bringen). Solange geeignete toxikologische Systemtests nicht zur Verfügung stehen, erscheint die Methode grundsätzlich geeignet, um Feuerungsanlagen, Brennstoffeigenschaften und Nutzerverhalten im Sinne einer Minimierung der Staubemissionen und deren toxikologischer Relevanz zu optimieren.

Im Vergleich der einzelnen Messergebnisse konnten einige bekannte Erklärungsansätze für die Bildung von PAK, OC und EC bei der Biomasseverbrennung bestätigt werden:

- OC stammt aus kondensierten Kohlenwasserstoffen, die primär bei der pyrolytischen Zersetzung entstehen und in ihrer Menge durch den Abbau bestimmt werden; d. h. bei höheren Temperaturen und höherem Sauerstoffangebot werden sie besser abgebaut.
- Für die Freisetzung von PAK und EC spielen zwei Prozesse eine Rolle. Zum einen wird die Bildung durch hohe Temperaturen und sauerstoffarme Zonen (niedrige Luftüberschusszahlen) in unmittelbarer Nähe des Brennstoffs begünstigt. Zum anderen wird der

Abbau durch niedrigere Temperaturen in der sauerstoffreichen Zone der Flamme bzw. kalten Zonen und Zonen mit zu geringem Sauerstoffangebot gehemmt.

Im Vergleich der Emissionen von Benzo[a]pyren und den zehn erfassten EPA-PAK führen die gewonnenen Erkenntnisse zur Theorie, dass je nach Ausprägung der heißen sauerstoffarmen Zone mehr oder weniger große PAK gebildet werden. Sehr niedrige Lambda-Werte mit hohen Temperaturen im Brennraum vergrößern die Bildungszonen für PAK, so dass hier höhermolekulare PAK vermehrt aufgebaut werden können. Durch die üblichen Störungen in marktüblichen Kaminöfen und das fehlende Sauerstoffangebot zur Verbrennung werden diese dann auch freigesetzt. Für mittlere Temperaturen und niedrige Sauerstoffangebote kann angenommen werden, dass die PAK-Bildung und das Größenwachstum deutlich gebremst ablaufen und verstärkt niedermolekulare PAK auftreten. Weiterhin könnten niedermolekulare PAK immer dann gut auf Stäuben nachweisbar sein, wenn die genannten Bildungsbedingungen vorliegen und gleichzeitig hohe Staubkonzentrationen ein Auskondensieren auf den Partikeln erleichtern.

Die dargestellten Ergebnisse legen den Schluss nahe, dass für die heutige Qualität von Kaminöfen eine einzelne Regelgröße nicht als hinreichend anzusehen ist. Es sollte vielmehr eine Kombination aus Lambda- und Kohlenstoffmonoxid-Kontrolle genutzt werden, wobei statt des Kohlenstoffmonoxidsensors auch ein Kombisensor C_nH_m/CO zum Einsatz kommen könnte.

Die Zusammenhänge zwischen den Staubemissionen und verschiedenen anderen Messgrößen unterstreichen den internationalen Diskussionsstand, dass der Staub im verdünnten Abgas unter weitgehender Erfassung kondensierbarer Bestandteile gemessen werden sollte. Für die Bewertung der toxikologischen Relevanz müssen Verfahren gefunden werden, um auch die synergistischen Effekte der Einzelkomponenten der chemischen und physikalischen Charakterisierung einzubeziehen. Die PAK-Analysen zeigen gewisse Ähnlichkeiten in den relativen Verhältnissen zueinander. In weitergehenden Untersuchungen besteht die Möglichkeit, typische „PAK-Fingerabdrücke“ aus der Verbrennung von Biomassen zu finden, die dann beispielgebend umfangreichen toxikologischen Untersuchungen unterworfen werden könnten. Damit ließe sich die toxikologische Relevanz ggf. durch eine Typ-Zuordnung und ein Skalierungsmaß für die absolute Höhe der Emission beschreiben.

Hohe EC-Gehalte, die nur in wenigen Fällen die Einhaltung der 2. Stufe der 1.BImSchV erlauben, und CO-Werte, die in allen Fällen weit über zukünftig geltenden Werten liegen, unterstreichen den Bedarf nach einer grundsätzlichen Umgestaltung von Einzelfeuerstätten, wie z. B. Kaminöfen und Heizeinsätzen, damit diese Geräte dauerhaft einen nachhaltigen Beitrag zur Energieversorgung leisten können:

1. Trennung der Zone der pyrolytischen Zersetzung und Vergasung von der Oxidationszone, um die Überladung des Brennraums zu unterbinden, Primär- und Sekundärluft getrennt einstellen und den Brennraum im Sinne einer optimalen Durchmischung gestalten zu können. Zudem kann der Ausbrand der Brenngase getrennt von der Holzkohle realisiert werden, so dass eine Neubildung von CO an elementarem Kohlenstoff vermieden wird (Kapitel 2.2.1).
2. Sekundärluft muss so in den Brennraum eingedüst werden, dass eine vollständige Durchmischung erreicht wird. Hierzu ist neben der Gestaltung der Eindüsöffnungen und deren Anordnung ein Gebläse erforderlich.
3. Störungen bei der Oxidation der Brenngase müssen vermieden werden. Dazu ist eine optimierte Brennraumgestaltung (eher aufrechter Zylinder als querliegender Quader) mit allseits isolierten Flächen (Vermeidung kalter Zonen) – insbesondere auch der Sichtschei-

be – sowie ggf. eine Vorwärmung der Sekundärluft erforderlich (Temperatur sollte oberhalb 800°C für eine Verweilzeit von mindestens 1 Sekunde sein).

4. Nach der Brennkammer ist für eine schnelle Abkühlung der Abgase zu sorgen, um eine Neubildung von CO zu vermeiden.
5. Lambda- und Kohlen(wasser)stoffsensoren sollten dazu genutzt werden, die Sekundärluft automatisch auf einen optimalen Punkt einzuregeln.
6. Zur Verminderung der Störungen der Verbrennung durch häufige manuelle Nachlegeprozesse sollte eine Integration eines Brennstoffvorratsbehälters für Scheitholz wie bei Stückholzvergaserkesseln oder Pelletöfen vorgesehen werden. Durch einen seitlichen oder unteren Abbrand könnten ein automatisches Nachrutschen des Holzes sowie eine Vortrocknung außerhalb der Zone der pyrolytischen Zersetzung und der Vergasung erfolgen [27].
7. Ergänzend zu den hier vorgeschlagenen primären Maßnahmen kann ein katalytisch wirkender Abscheider integriert werden, um die Gesamtstaubemission und deren toxikologische Relevanz weiter zu senken [63].

In der vollständigen Umsetzung der identifizierten Entwicklungsansätze, die über die bisher realisierten Systeme hinausgehen, sollte ein Gesamtstaubwert vergleichbar zu Ölöfen ($< 5 \text{ mg/Nm}^3$) [113] und eine PAK-Emission kleiner $1 \text{ } \mu\text{g/Nm}^3$ erreicht werden.

Kurzfristig können mittels Nutzerschulung und bautechnischer Hilfen (z. B. Kennzeichnung maximaler Brennraumfüllung und minimaler Glutbetthöhe) zur Vermeidung extremer Fehlbedienungen 20 % Feinstaubminderung und wahrscheinlich noch höhere Minderungen der toxikologischen Relevanz der Feinstäube erreicht werden [16]. Aufgrund der Pflicht, auch alte Kaminöfen und Heizeinsätze zukünftig den Grenzwerten der 1.BImSchV zu unterwerfen, besteht jetzt die Chance, einen technologischen Sprung in der Verbrennungstechnik von Einzelfeuerstätten zu erreichen, um auch zukünftig ökologisch nachhaltig einen nennenswerten Beitrag zur Energieversorgung mit Biomasse im Endkundenbereich zu leisten.

Literaturverzeichnis

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Gabriel: Klimaschutz bedeutet Umbau der Industriegesellschaft; Pressemitteilung Nr. 116/07, 2007 (Zugegriffen 14.03.2008 auf: <http://www.bmu.de/pressemitteilungen/aktuelle/pressemitteilungen/pm/39237.php>)
- [2] Lenz, V.; Kaltschmitt, M.; Brauer, S.: Erneuerbare Energien. Stand 2007; *BWK*, Bd. 60 (2008), Nr. 4, S. 106-1171
- [3] Launhardt, T.; Hurm, R.; Schmid, V.; Link, H.: *Dioxin- und PAK-Konzentration in Abgas und Asche von Stückholzfeuerungen*; Band 1, Textband, München, 1998
- [4] United States Environmental Protection Agency (EPA): *Air Quality for Particulate Matter*; Volume I and II, Research Triangle Park, NC, 2004
- [5] Weltgesundheitsorganisation Europa: Wie der Feinstaub in der Luft die Gesundheit schädigt; Faktenblatt EURO/04/05, Berlin, Kopenhagen, Rom, 2005
- [6] Lahl, U.: Feinstaub – eine gesundheitspolitische Herausforderung; 46. Kongress Deutsche Gesellschaft für Pneumologie, Berlin, 2005
- [7] WHO Regionalbüro für Europa: Eine geringere Luftverschmutzung würde viele Menschenleben retten und in der Europäischen Union jährlich bis zu 161. Mio. € Kosten sparen; Pressemitteilung EURO/08/05, Berlin, Kopenhagen, Rom, 2005
- [8] Kersten, N.; Bräunlich, A.; Schneider, W. D.: Chronische Lungenkrankheiten durch Stäube und chemische Atemtraktirritantien. Fb 1037 Schriftenreihe der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin. Dortmund/Berlin/Dresden, 2005
- [9] Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft; L163/41, Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaft, 1999
- [10] Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlamentes und des Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa; L152/1, Amtsblatt der Europäischen Union, 2008
- [11] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit nach einer Vorlage von Ewens, H.P.: Novellierung der 1. BImSchV. Veranlassung, Eckpunktepapier, Arbeitsentwurf, Referentenentwurf; Vortrag, 2007
- [12] Behnke, A. (Hrsg.: Umweltbundesamt): Die Nebenwirkungen der Behaglichkeit: Feinstaub aus Kamin und Holzofen; aktualisierte Fassung eines Papiers von 2006, Roßlau-Dessau, 2007
- [13] Jörß, W.; Handke, V.: *Emissionen und Maßnahmenanalyse Feinstaub 2000 – 2020*; UBA-Texte 38/07, Dessau-Roßlau, 2007

-
- [14] Lenz, V., Thrän, D.; Hartmann, H.; Turowski, P.; Ellner-Schuberth, F.; Gerth, J.: Feinstaubemissionen aus Kleinfeuerungsanlagen für Getreide- und Strohbiobrennstoffe – Einflüsse und Minderungsmöglichkeiten; Projektergebnisse, Leipzig, 2008
- [15] Hering, T.; Peisker, D.; Vetter, A.: Stand der Felduntersuchungen an Kleinfeuerungsanlagen mit Biobrennstoffen; Seminarveranstaltung AG „Alternative Biobrennstoffe“, Landesvertretung Thüringen, Berlin, 2006
- [16] Lenz, V.; Thrän, D.; Hartmann, H.; Turowski, P.; Ellner-Schuberth, F.; Gerth, J.: *Feinstaubemissionen aus häuslichen Holzfeuerungen – Einflüsse und Minderungsmöglichkeiten*; Projektbericht, Leipzig, 2008
- [17] Erste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über kleine und mittlere Feuerungsanlagen (ab 22.03.2010) – 1.BImSchV); BGBl. I (2010), S. 38
- [18] Merten, D.; Falkenberg, D.; Nill, M.; Kaltschmitt, M.: *Wärmegewinnung aus Biomasse – Energieverbrauch der privaten Haushalte und des Sektors Gewerbe, Handel und Dienstleistungen (GHD)*; Anlagenband zum Abschlussbericht, Institut für Energetik und Umwelt gGmbH, Leipzig, 2004
- [19] HKI – Industrieverband Haus-, Heiz- und Küchentechnik e.V.: Persönliches Anschreiben, Frankfurt, 2006
- [20] Anonymus: Dynamik bei den Festbrennstoffen hält an; *Brennstoffspiegel*, Heft 2. (2007), S. 47-49
- [21] Mantau, U.; Sörgel, C.: *Energieholzverwendung in privaten Haushalten. Marktvolumen und verwendete Holzsortimente*; Zwischenbericht, Hamburg, 2006
- [22] Pfeiffer, F.; Struschka, M.; Baumbach, G.: Ermittlung der mittleren Emissionsfaktoren zur Darstellung der Emissionsentwicklung aus Feuerungsanlagen im Bereich Haushalte und Kleinverbraucher; Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben 295 46 364, UBA-TEXTE Nr. 14-00, Umweltbundesamt, Berlin, 2000
- [23] Landesamt für Umweltschutz Sachsen-Anhalt: Untersuchungen zur Emission von Luftschadstoffen aus Hausbrandfeuerstätten beim Einsatz von Braunkohlenbriketts; in Sonderheft 5/98, 11th World Clean Air and Environment Congress in Durban, Südafrika, 1998
- [24] Kompass-Umweltberatung Viernheim e.V.: Feinstaub aus dem Holzofen. Behaglichkeit mit Nebenwirkungen; (Zugegriffen 27.02.2010 auf: http://www.umwelt-kompass.de/060c_gesundheit_feinstaub_holzofen.html)
- [25] Klippel, N.; Nussbaumer, T.: *Einfluss der Betriebsweisen auf die Partikelemission von Holzöfen*; Projektzusatz 1+2 zum Projekt Wirkung von Verbrennungspartikeln, Schlussbericht, Zürich, 2007
- [26] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft -TA Luft) vom 24. Juli 2002

-
- [27] Klippel, N.; Nussbaumer, T.: *Wirkung von Verbrennungspartikeln*; Schlussbericht, Verenum, Zürich, 2007
- [28] Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft: Feinstaub PM10. Fragen und Antworten zu Eigenschaften, Emissionen, Immissionen, Auswirkungen und Maßnahmen; Stand 1. Dezember 2005
- [29] Gerth, J.: Analyseergebnisse und REM-Aufnahmen zum Projekt Feinstaubemissionen aus häuslichen Holzfeuerungen – Einflüsse und Minderungsmöglichkeiten; Hamburg, 2007 - 2008
- [30] Kaltschmitt, M.; Hartmann, H.; Hofbauer, H. (Hrsg.): *Energie aus Biomasse. Grundlagen, Techniken und Verfahren*; Springer Verlag, Dordrecht, Heidelberg, London, New York, 2009, 2. Auflage
- [31] Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft: *Dioxin- und PAK-Emissionen der privaten Abfallverbrennung*; Literaturstudie und Situationsanalyse, Umwelt-Materialien Nr. 172, Bern, 2003
- [32] Launhardt, T.: *Umweltrelevante Einflüsse bei der thermischen Nutzung fester Biomasse in Kleinanlagen*; Dissertation, Lehrstuhl für Landtechnik TU München; 2002
- [33] Oser, M.; Nussbaumer, T.; Müller, P.; Mohr, M.; Figi, R.: *Grundlagen der Aerosolbildung in Holzfeuerungen, Beeinflussung der Partikelemissionen durch Primärmaßnahmen und Konzept für eine partikelarme automatische Holzfeuerung (Low-Particle-Feuerung)*; i. A. Bundesamt für Energie, Bern, 2003
- [34] Nussbaumer, T.; Hustad, J.: Overview on Biomass Combustion; *Developments in Thermochemical Biomass Conversion*, (1997), S. 1229-1243, Blackie Academic, Chapman & Hall, London
- [35] Greiselis-Bailer, S.; Kemper, B.-M.: *Ermittlung und Minderung der Emissionen krebs-erzeugender und weiterer besonders gesundheitsgefährdender Stoffe bei Kleinfeuerungsanlagen für feste Brennstoffe*; UFOPLAN 20344358, Dessau, 2006
- [36] Brunner, T.; Bärnthaler, G.; Obernberger, I.: Feinstaubemissionen aus modernen Pellet-Kleinfeuerungsanlagen – Charakterisierung, Bildung und Möglichkeiten zur Emissionsminderung; Eingereicht in Österreichische Ingenieur- und Architektenzeitschrift ÖIAZ, Heft 10-12, Wien, 2006
- [37] Pistikopoulos, P.; Wortham, H.M.; Gomes, L.; Masclet-Beyne, S.; Bon Nguyen, E.; Masclet, P.A.; Mouvier, G.: Mechanisms of formation of particulate polycyclic aromatic hydrocarbons in relation to the particle size distribution; effects on meso-scale transport; *Atmospheric Environment*, Bd. 24A (1990), Nr. 10, S. 2573-2584
- [38] Czerwinski, J.: Combustion Particles Number Concentrations with Different Engines and Fuels; 1st Int. ETH-Workshop on Nanoparticle Measurement, ETH Zürich, Laboratorium für Festkörperphysik, 1997
- [39] Kittelson, D.B.: Engines and Nanoparticles; 1st Int. ETH-Workshop on Nanoparticle Measurement, ETH Zürich, Laboratorium für Festkörperphysik, 1997

-
- [40] Goldberg, E.: *Black Carbon in the Environment*; John Wiley & Sons, New York, 1985
- [41] Butcher, S.S.; Sorenson, E.M.: A Study of Wood Stove Particulate Emissions; *J. Air Pollution Control Association*, Bd. 29 (1979), Nr. 7, S. 724-728
- [42] Cooper, J.: Environmental Impact of Residential Wood Combustion Emissions and its Implications; *J. Air Pollution Control Association*, Bd. 30 (1980), S. 855-861
- [43] Fissan, H.; Helsper, C.; Muggli, J.; Scheidweiler, A.: Particle Number Distribution of Aerosols from Test Fires; *J. Aerosol. Science*, Bd. 11 (1980), S. 439-446
- [44] Hall, R.; De Angelis, D.: EPA's Research Program for Controlling Residential Wood Combustion Emissions; *J. Air Pollution Control Association*, Bd. 30 (1980), S. 862-867
- [45] Butcher, S.; Ellenbecker, M.: Particulate Emission Factors for Small Wood and Coal Stoves; *J. Air Pollution Control Association*, Bd. 32 (1982), S. 380-384
- [46] Muhlbaier, J.: Particulate and Gaseous Emissions from Wood-Burning Fireplaces; *Environ. Sci. Technol.*, Bd. 16 (1982), Nr. 10, S. 639-645
- [47] Travis, C. u. a.: Health Risks of Residential Wood Heat; *Environmental Management*, Bd. 9 (1985), Nr. 3, S. 209-216
- [48] Baltensperger, U.: *Chemische und morphologische Charakterisierung von partikel-förmigen Luftfremdstoffen*; Dissertation, Universität Zürich, 1985
- [49] Edgerton, S. u. a.: Source Emission Characterization of Residential Wood-Burning Stoves and Fireplaces; *Env. Sci. Technol.*; Bd. 20 (1986), S. 803-807
- [50] Rau, J.A.: Composition and Size Distribution of Residential Wood Smoke Particles; *J. Aerosol Science and Technology*, Bd. 10 (1989), S. 181-192
- [51] Houck, J.E.: Atmospheric emissions of carbon dioxide, carbon monoxide, methane, non-methane hydrocarbons and sub-micron elemental carbon particles from residential wood combustion; in: *Air Ampersand Waste Management Association (Hrsg.): 86th Annual Meeting Ampersand Exhibition*, S. 245-246, Pittsburgh, USA, 1993
- [52] Sojka, J.: *Simulation der Rußbildung unter homogenen Verbrennungsbedingungen*; Inaugural – Dissertation, Heidelberg, 2001
- [53] Kaiser, G.; Wiedemann, T.; Ballschmiter, K.: *Organische Spurenstoffe als Emissionen aus Verbrennungsanlagen und deren humantoxikologische und ökotoxikologische Einordnung. Teil 1: Organische Emissionen*, Arbeitsbericht Nr. 101 der Akademie für Technikfolgenabschätzung in Baden-Württemberg, Stuttgart, 1998
- [54] VDI 2465 Blatt 2: Messen von Ruß (Immission). Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffes nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffes; Mai 1999
- [55] Gaegauf, C.; Schmid, M.; Güntert, P.: *Elemental and Organic Carbon in flue gas particles of various wood combustion systems*. Langenbruck, 2005

-
- [56] Jenkins, B.M.; Daniel Jones, A.; Turn, S.Q.; Williams, R.B.: Particle concentrations, gas-particle partitioning and species intercorrelations for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) emitted during biomass burning; *Atmospheric Environmental*, Bd. 30 (1996), Nr. 22, S. 3825-3835
- [57] Nussbaumer, T.; Doberer, A.; Klippel, N.; Bühler, R.; Vock, W.: Influence of ignition and operation type on particle emissions from residential wood combustion; 16th European Biomass Conference and Exhibition, Valencia, 2008
- [58] Tissari, J.; Hytönen, K.; Sippula, O.; Jokiniemi, J.: The effects of operating conditions on emissions from masonry heaters and sauna stoves; *Biomass and Bioenergy*; Bd. 33 (2009), S. 513-520
- [59] Hartmann, H.; Roßmann, P.; Turowski, P.; Link, H.; Marks, A.: *Staubemissionen aus Holzfeuerungen – Einflussfaktoren und Bestimmungsmethoden*; Berichte aus dem Technologie- und Förderzentrum (TFZ) 10, Eigenverlag TFZ, Straubing, 2006
- [60] Gaegauf, C.; Griffin, T.: *Vorschlag einer europäischen Staubmessnorm für Feststoff-Feuerstätten. Ausarbeitung und Untersuchung eines Typenprüf-Messverfahrens für Staubemissionen*; Schlussbericht, Langenbruck, 2007
- [61] Schmatloch, V.: Einzelraumfeuerstätten: Bedeutung & technische Entwicklung; Fachgespräch Ökodesign für Festbrennstoff-Kleinfeuerungsanlagen, Berlin, 2009
- [62] Specht Modulare Ofensysteme GmbH & Co. KG: Operating and Installation Instructions Xeoos 5 kW/ 8 kW Model Year 2008; Hatzfeld-Reddighausen, 2008
- [63] Deutsches BiomasseForschungsZentrum: unveröffentlichte Messungen im Technikum; Leipzig, 2009
- [64] Kauppinen, E.I.; Pakkanen, T.A.: Coal Combustion Aerosols: A Field Study; *Environ. Sci. Technol.*, 1990
- [65] Jokiniemi, J.; Mäkynen, J.; Kauppinen, E.: Aerosol Behaviour in Coal Combustion Processes; *J. Aerosol Sci.*, Bd. 21 (1990), Nr. 1, S. 741-744
- [66] Baxter, L.L.: Char Fragmentation and Fly Ash Formation During Pulverized-Coal Combustion; *Combustion and Flame*, Bd. 90 (1992), Nr. 2, S. 174-184
- [67] Baxter, L.L.; Jenkins, B.M.; Miles, T.R. u. a.: Alkalis in alternative biofuels; *FACT*, Bd. 18 (1994), Combustion Modeling, Scaling and Air Toxins, ASME
- [68] Baxter, L.L.; Miles, T.; Miles, T. (Jr.); Jenkins, B.; Dayton, D.; Milne, T.; Bryers, R.; Oden, L.: *Alkali Deposits found in Biomass Boilers*; Sandia National Laboratory, Livermore (CA, USA), 1996
- [69] Jensen, J.R.; Nielsen, L.B.; Schulz-Moller, C.; Wedel, S.; Livbjerg, H.: The nucleation of aerosols in flue gases with a high content of alkali – a laboratory study
- [70] Christensen, K. A.; Stenholm, M.: The formation of submicron aerosol particles, HCl and SO₂ in straw-fired boilers; *J. of Aerosol Sci.*, Bd. 29 (1998), Nr. 4, S. 421-444

-
- [71] Hartmann, H.; Kaltschmitt, M.; v. Puttkamer, T.; Hering, T.; Pilz, M.: Auswirkungen der Eigenschaften biogener Festbrennstoffe; in: *Voraussetzungen zur Standardisierung biogener Festbrennstoffe*, Schriftenreihe „Nachwachsende Rohstoffe“, Landwirtschaftsverlag GmbH, Münster, 2004, Bd. 23
- [72] Obernberger, I.: Aktuelle Forschungsergebnisse bei der Feinstaub- und NO_x-Bildung bei der Verbrennung von Stroh; 1. Internationale Fachtagung Strohenergie, Jena, 2008
- [73] Christensen, K.A.; Livbjerg, H.: A Field Study of Submicron Particles from the Combustion of Straw; *Aerosol Sci. and Tech.*, Bd. 25 (1996), S. 185-199
- [74] Obernberger, I. u. a.: *Aerosols in fixed-bed biomass combustion – formation, growth, chemical composition, deposition, precipitation and separation from flue gas*; Studie ERK6-CTI1999-0003, 2003
- [75] Someshwar, A.V.: A study of kraft recovery furnace hydrochloric acid emissions; Tech. bull., 674, Nat. council of the paper ind. for air and steam improvement (CASI), New York, 1994
- [76] Michelsen, H.P.; Larsen, O.H.; Fleming, F.; Dam-Johansen, K.: Deposition and high temperature corrosion in a 10 MW straw fired boiler; Eng. Foundation Conference on Biomass Usage for Utility & Ind. Power, Snowbird, Utah
- [77] Boman, C.; Boström, D.; Öhman, M.: Effect of fuel additive sorbents (Kaolin and Calcite) on aerosol particle emission and characteristics during combustion of pelletized woody biomass; 16th European Biomass Conference & Exhibition, Valencia, 2008
- [78] Brunner, T.; Obernberger, I.; Scharler, R.: Primary measures for low-emission residential wood combustion – comparison of old with optimised modern systems; 17th European Biomass Conference & Exhibitions, Hamburg, 2009
- [79] Koch, W.; Friedlander, S.K.: Particle Growth by Coalescence and Agglomeration; *J. Aerosol Sci.*, Bd. 21 (1990), Nr. 1, S. 73-76
- [80] DINplus: Zertifizierungsprogramm: Raumheizer für feste Brennstoffe mit schadstoffarmer Verbrennung nach DIN EN 13240 (Stand: Juni 2008); DIN CERTCO, Berlin
- [81] Wodtke GmbH: Gerätebeschreibung KK 50 F „Moon“
- [82] eurofins-AUA GmbH – Analytik-Ökotoxikologie, Niederlassung Freiberg: Prüfbericht Nr. 10806054, Freiberg, 2008
- [83] VDI 2066 Teil 1: Messen von Partikeln, Staubmessung in strömenden Gasen, Gravimetrische Bestimmung der Staubbelastung; Beuth Verlag, Düsseldorf, 2006
- [84] Norsk Standard NS 3058-1: Enclosed wood heaters – Smoke emission – Part 1: Test facility and heating pattern; Standard norge and pronorm, Lysaker
- [85] Eder, G.; Haslinger, W.; Carvalho, L.; Becher, N.; Brauer, S.; Lenz, V.; Seidenberger, T.; Rönnbäck, M.; Hartmann, H.; Turowski, P.; Roßmann, P.; Ellner-Schuberth, F.;

- Mark, A.; Lasselsberger, L.; Oravainen, H.: *Development of test methods for non-wood small-scale combustion plants*; Wieselburg, 2008
- [86] Nussbaumer, T.; Czasch, C.; Klippel, N.; Johansson, L.; Tullin, C.: *Particulate Emissions from Biomass Combustion in IEA Countries*; Survey on Measurements and Emission Factors, Zürich, 2008
- [87] CEN/TC 295 ...E: Residential solid fuel burning appliances. Determination of particulate emission – Test method – draft; 2007
- [88] Hartmann, H.; Turowski, P.: Messergebnisse zu Feuerungen zum Projekt Feinstaubemissionen aus häuslichen Holzfeuerungen – Einflüsse und Minderungsmöglichkeiten. Straubing; 2006 - 2008
- [89] OFD Hannover: Grundlagen der Human- und Ökotoxikologie; Referat LA 21, Leitstelle des Bundes für Altlasten, 1999
- [90] Geller, A.: Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe; in: Umweltbundesamt (Hrsg.): *Leitfaden „Biologische Verfahren zur Bodensanierung“*, FKZ1491064, Berlin, 2002
- [91] Europäische Behörde für Lebensmittelsicherheit (EFSA): Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe in der Nahrung – Wissenschaftliches Gutachten des Gremiums für Kantaminaten in der Lebensmittelkette; (Zugegriffen 04.08.2008 auf: http://www.efsa.europa.eu/EFSA/efsa_locale-1178620753824_1211902034842.htm.)
- [92] Kaiser, G.; Wiedemann, T.; Ballschmiter, K.: *Organische Spurenstoffe als Emissionen aus Verbrennungsanlagen und deren humantoxikologische und ökotoxikologische Einordnung. Teil 2: Humantoxikologische und ökotoxikologische Einordnung*; Arbeitsbericht Nr. 102 der Akademie für Technikfolgenabschätzung in Baden-Württemberg, Stuttgart, 1998
- [93] DBFZ: Projekt des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: *Wärme aus Holz – Feinstaubemissionen: Brennstoffeinfluss, Nutzer, Feuerungs-Wettbewerb, Sekundärmaßnahmen, Charakterisierung und Toxizität*: Projektlaufzeit 1.11.2008-31.10.2011. Interne Antragschrift. DBFZ u. a., Leipzig, u. a., 2008
- [94] Hinds, W.: *Aerosol Technology Properties, behaviour and measurement of airborne particles*; John Wiley & Sons, New York, 1998
- [95] Gretscher, H.: *Entstehung von Aerosolen durch heterogene Keimbildung bei der Absorption und Kondensation*; VDI Verlag GmbH, Düsseldorf, 2000
- [96] Kim Oanh, N.T.; Albina, D.O.; Ping, L.; Wang, X.: Emission of particulate matter and polycyclic aromatic hydrocarbons from select cookstove-fuel systems in Asia; *Biomass & Bioenergy*, Bd. 28. (2005), S. 579-590
- [97] Pope et.al.: *American Cancer Society Study II*, 2002

- [98] Nacher, L. P.; Brauer, M.; Lipsett, M.; Zelikoff, J.T.; Simpson, C. D. and Koenig, J. Q.: Woodsmoke Health Effects: A Review; *Inhalation Toxicology*, Bd. 19 (2007), S. 67-106
- [99] Bayerisches Landesamt für Gesundheit und Lebensmittelsicherheit: Höpfe, P.; Guth, W.; Schierl, R.; Nowak, D.: *Longitudinale Kohortenstudie zur Erfassung akuter pulmonaler, kardialer und hämatologischer/hämostaseologischer Wirkungen von Feinstaub unter realen Umweltbedingungen (CorPuScula)*; Erlangen, 2005
- [100] Barregard, L.; Sällsten, G.; Gustafson, P. and Andersson, L.; Johansson, L.; Basu, S.; Stigendal, L.: Experimental Exposure to Wood-Smoke Particles in Healthy Humans: Effects on Markers of Inflammation, Coagulation and Lipid Peroxidation; *Inhalation Toxicology*, Bd. 18 (2006), S. 845-853
- [101] Umwelt- und Prognose-Institut e.V.: Feinstaub; (Zugegriffen 02.05.2006 auf: <http://www.upi-institut.de/feinstaub.htm>)
- [102] Oehlmann, J.; Markert, B.: *Humantoxikologie – Eine Einführung für Apotheker, Ärzte, Natur- und Ingenieurwissenschaftler*; Internationales Hochschulinstitut Zittau, Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft mbH Stuttgart, 1997
- [103] Bayerisches Landesamt für Gesundheit und Lebensmittelsicherheit (Hrsg.): Fomme, H.; Bolte, G.; Roscher, E.: *Umweltmedizinische Bedeutung von Dieselruß/Feinstaub; Materialien zur Umweltmedizin, Band 11*, 2005
- [104] WHO Europe: *Health risks of particulate matter from long-range transboundary air pollution*; Denmark, 2006
- [105] Schmoeckel, G.; Kunde, R.; Lautenbach, M.; Gaderer, M.: Wie groß ist die Feinstaubbelastung im Umfeld von Pellet- und Scheitholzkesseln? Zusatzbelastung kann im Nahbereich relevant sein; *Erneuerbare Energien*, (2007), Nr.3, S. 65-68
- [106] Bayerisches Landesamt für Umwelt (Hrsg.): *Einfluss von Emissionen aus der Gebäudeheizung auf Feinstaubemissionen im Raum Augsburg; Schlussbericht, Vorhaben U47, Augsburg*, 2009
- [107] Ahlf, W.: *Von der Umwelt- zur Feinstaubbewertung*; BMU-Toxizitätsworkshops, Leipzig, 2007
- [108] Fachgespräch zum Thema „Toxizität der Feinstaubemissionen von Kleinfeuerungsanlagen mit Biobrennstoffen“: Forschungsprojekt des BMELV/FNR FKZ 07NR155: *Toxische Wirkung von Nanopartikeln aus Biomasseverbrennung*. Reutlingen, 3. April 2009
- [109] Paur H.-R., Diabaté, S.: *Expositionssystem für Bioassays. Bestimmung der Toxizität gasgetragener Nanopartikeln*; Faltblatt 0095, Karlsruhe
- [110] Fenner, T.: *Aspekte zur Labordiagnostik in der Umweltmedizin*; (Zugegriffen 27.02.2010 auf: http://www.fennerlabor.de/Labor_und_Umweltmedi.373.0.html)

-
- [111] Hartmann, H.; Hering, T.: Eigenschaften biogener Festbrennstoffe; in: *Voraussetzungen zur Standardisierung biogener Festbrennstoffe*, Schriftenreihe „Nachwachsende Rohstoffe“, Landwirtschaftsverlag GmbH, Münster, 2004, Bd. 23
- [112] Kohler, H.: persönliche Auskunft, Karlsruhe, 2009
- [113] Umweltbundesamt (Hrsg.): Struschka, M.; Kilgus, D.; Springmann, M.; Baumbach, G.: *Effiziente Bereitstellung aktueller Emissionsdaten für die Luftreinhaltung*; Texte 44/08, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart, Dessau-Roßlau, 2005
- [114] Vock, W.; Jenni, A.: Bericht zur 1. und 2. Mess-Serie: Emissionsarme Anfeuermethoden für Stückholzfeuerungen; Bundesamt für Energie, Bundesamt für Umwelt, Kantone AG, BE, BL/BS, LU, SH, SG, SO, TG, TI, VD, ZH, Maschwaden, 2007
- [115] Gaegauf, C.; Sattler, M. für Bundesamt für Energie BFE: *Brennkammer für Holzfeuerstätten mit geringen Partikelemissionen – Erste Messergebnisse zum Stand der Technik*; Zwischenbericht. Ittigen, 2007
- [116] Sattler, M.: Physikalisch-chemische On-line Charakterisierung von Feinstaubemissionen aus Holzfeuerungen; 14. Internationalen Fachtagung „Energetische Nutzung nachwachsender Rohstoffe“, Ökozentrum Langenbruck, 2008

Anhang 1: Anzündvorgang bei Einzelfeuerstätten

In der Anzündphase besteht bei allen Biomassefeuerungsanlagen ein besonders hohes Risiko für eine unvollständige Verbrennung und für Feinstaubemissionen mit hohem Gesundheitsgefährdungspotenzial. Während bei Kesselanlagen mit automatischer Brennstoffzufuhr und -zündung sowie automatischer Regelung der Nutzer abgesehen von der Brennstoffwahl und der Missachtung von Reinigungs- und Wartungsintervallen keine fahrlässigen Fehler machen kann, sind sowohl bei Scheitholzkesseln als auch bei allen Scheitholzeinzelfeuerstätten vielfältige Fehler u. a. beim Anzünden möglich.

Ziel ist es, die Anheizphase mit nicht optimalem Betrieb möglichst kurz zu halten.

Für einen schnellen Übergang zum regulären Betrieb ist es erforderlich, dass Brennraum und Abgassystem schnell aufgeheizt werden, um sowohl die Ausbrandqualität im Brennraum als auch den natürlichen Zug des Abgassystems rasch auf die vorgesehenen Parameter zu bringen. Hierzu ist eine von Beginn an heftige Reaktion mit einer auf die im Vergleich zur Hauptabbrandphase geringeren Brenngasmenge angepassten Luftdosierung und Feuerraumgeometrie anzustreben. Dies lässt sich in Einzelfeuerstätten nach dem Durchbrandprinzip am besten mit einer Anzündung von oben mittels eines kleinen Scheithaufens auf einer regulären Brennstofffüllung erreichen. Die kleinen Scheite des Anzündfeuers mit hohem Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis beginnen sehr rasch zu reagieren. Da die entstehenden Gase der pyrolytischen Zersetzung direkt in einen freien Brennraum eintreten und nicht erst an Energie einbüßen, indem sie wie bei der Anzündung von unten zur Trocknung und Erwärmung der weiter oben liegenden Scheite dienen müssen, kann schnell eine weitgehend vollständige Verbrennung erreicht werden. Außerdem reduziert die unter dem „Scheiterhaufen“ liegende reguläre Brennraumfüllung das Volumen der Brennkammer, so dass ein geringeres Gasvolumen und eine kleinere Wandfläche von Beginn an aufzuheizen sind. Dadurch können über den gesamten ersten Abbrand gemittelt rund 2/3 der sonst üblichen Feinstaubemissionen vermieden werden (Abb. 7-1) [57], [114], [115].

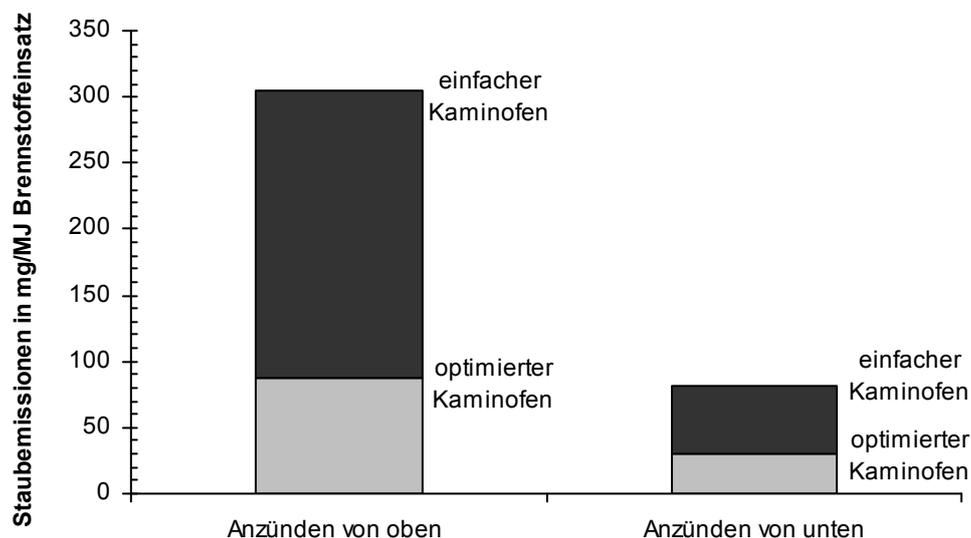


Abb. 7-1: Vergleich der Partikelemissionen bei Anzündung von unterschiedlichen Holzkaminöfen von unten und von oben. Die Emissionsfaktoren beschreiben den kompletten Abbrand beginnend mit der Anzündung. Die Anzündung von oben erfolgt mit vier Stücken trockenem Holz (3 cm x 3 cm x 20 cm) auf mit Wachs getränkter Holzwole [57], [114]

Wichtig ist bei fehlender automatischer Überwachung oder Regelung eine ständige Kontrolle des manuellen Anzündvorgangs, um zu vermeiden, dass unerkannte Schwelbrände mit sehr hohen Emissionen entstehen und über längere Zeit anhalten. Gleichzeitig sollte darauf geachtet werden, dass der Luftdurchsatz nicht zu hoch gewählt wird, da dies die Feuerraumtemperatur senkt und somit einer raschen Aufheizung von Feuerraum und Abgassystem entgegenwirkt. Dies erfordert eine kontinuierliche Nachstellung der Luftzufuhr während der Anzündphase.

Anhang 2: Abbrandverlauf im Kaminofen als Anhalt für den Nachlegezeitpunkt

Problematik. Bei allen Feststofffeuerungen ohne automatische Brennstoffzufuhr ist in regelmäßigen Abständen ein Nachlegen von Brennstoff erforderlich, bis der Wärmebedarf gedeckt ist. Das manuelle Nachlegen stellt einen wesentlichen Eingriff des Nutzers dar. Eine wesentliche Fehlerquelle liegt bereits bei der Wahl des geeigneten Nachlegezeitpunktes. Der Nutzer möchte dabei ein aufwendiges Neuanzünden des Feuers vermeiden, so dass er einen Zeitpunkt vor dem Ende der thermochemischen Reaktion der Holzkohle wählen wird. Bezüglich des frühesten Nachlegezeitpunktes gibt es aus Nutzersicht keine eindeutige Präferenz. Aus Komfortgründen wird zum einen ein möglichst später Nachlegezeitpunkt angestrebt, zum anderen wird das Nachlegen in den aktuellen Tätigkeitsablauf so eingebunden, dass der am spätesten mögliche Nachlegezeitpunkt nicht überschritten wird. Dadurch wird selten der optimale Zeitpunkt gewählt. Von besonderer Relevanz ist der Nachlegezeitpunkt für alle Durchbrandfeuerungen. Beim Unterbrand oder dem seitlichen Abbrand wird bei rechtzeitigem Nachlegen nur minimal in das Glutbett und praktisch nicht in den Brennraum eingegriffen, so dass im Wesentlichen nur eine kurzzeitige Störung der Verbrennung durch den Falschlufteintritt über die geöffnete Nachfülltür stattfindet. Dies kann kurzfristig zu einer Spitze bei den Feinstaubemissionen führen.

Mit der Neuaufgabe an noch kaltem und mit einer gewissen Restfeuchte versehenem Brennstoff in Durchbrandfeuerungen kommt es zu einer Abkühlung des Glutbetts und des Brennraums. Dadurch verändern sich im Glutbett die Freisetzungsprozesse für Mineralien und Metalle. Gleichzeitig kann die Abkühlung im Brennraum zu einer Zunahme der Freisetzung von Produkten einer unvollständigen Verbrennung führen, so dass die Feinstaubemissionen bis zur vollständigen Austrocknung des neuen Brennstoffs nennenswert ansteigen können. Die Freisetzung brennbarer Gase steigt deutlich an, bei gleichzeitig verringertem freien Feuerraumvolumen. Ohne eine automatische Regelung der Luftzufuhr ist eine adäquate Reaktion auf die sich ändernden Rahmenbedingungen praktisch nicht möglich, so dass im Zusammenhang mit dem Nachlegezeitpunkt immer mit erhöhten Emissionen zu rechnen ist.

Abbrandverlauf. Bei der Betrachtung verschiedener Abbrandphasen bei einem Kaminofen [16] zeigt sich außerdem, dass zum Ende der Ausbrandphase die Emissionen, u. a. CO und Feinstaub, wieder ansteigen. Der etwa 60minütige Abbrand wird in sechs 10-Minuten-Mittelwerte unterteilt. Als erster Nachlegezeitpunkt wird die „Grundglut“ definiert. Die darauf folgenden Nachlegezeitpunkte ergeben sich über den kompletten Gewichtsverbrauch des nachgelegten Brennstoffs.

Im Versuchsablauf ist zu beobachten, dass die Flammen im Brennraum nach ca. 30 Minuten erlöschen. Gleichzeitig steigen die Sauerstoff- und die Kohlenstoffmonoxidkonzentration an. Die anschließende flammenlose Phase ist durch hohe Kohlenstoffmonoxidkonzentrationen gekennzeichnet (Abb. 7-2, unten links).

Hier können Kohlenstoffmonoxidkonzentrationen von bis zu 9 g/Nm^3 erreicht werden. Dies könnte auf den Kohlenstoffausbrand (vergleichbar dem Kohleausbrand) mit kurzer Flamme in einem Holzbrennraum mit einer Lufteinstellung für den Holzausbrand zurückzuführen sein. Die Staubkonzentration (Abb. 7-2, oben) und die Gesamt-C-Konzentrationen (Abb. 7-2, unten rechts) sind im Unterschied dazu direkt nach der Brennstoffauflage am höchsten und sinken dann im Laufe des Abbrands nahezu kontinuierlich ab. Wie in Abb. 7-2 dargestellt, beträgt der Gesamtstaub-Mittelwert bei allen Abbränden zwischen 65 und 79 mg/Nm^3 , wohingegen direkt nach der Brennstoffauflage auch Werte von 130 mg/Nm^3 möglich sind.

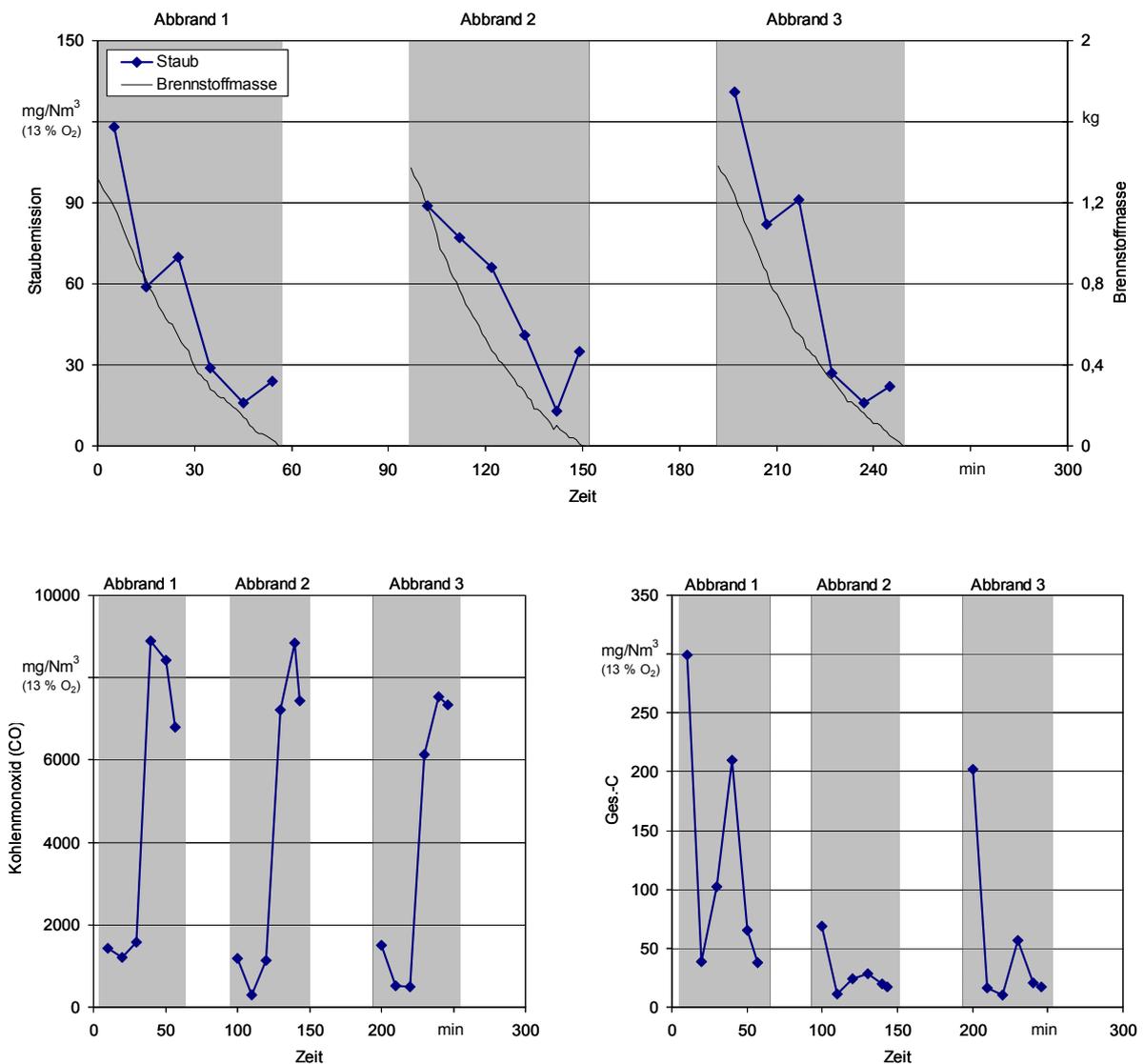


Abb. 7-2: Verlauf von Gesamtstaub- (oben), Kohlenstoffmonoxid- (unten links) und Gesamt-C-Konzentration (unten rechts) während dreier Abbrände. Jeweils 10-Minuten-Mittelwerte. Feuerung: Kaminofen ohne automatische Luftregelung. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg [16]; grau schraffierte Bereiche stellen den jeweils vermessenen Abbrand von Auflage bis vollständiger Umsetzung dar; Zwischenräume ergeben sich durch jeweils einen nicht gemessenen Abbrand mit reduzierter Auflage zur Vorbereitung der nächsten Messung

Bei den Einzelwerten der Schadstoffkonzentrationen darf allerdings nicht übersehen werden, dass es sich um Konzentrationsangaben handelt, die wegen des uneinheitlichen Abgasvolumenstromes nicht mit Emissionsraten (d. h. zum Beispiel Staub- oder Gesamt-C-Frachten) verwechselt werden dürfen. Aus messtechnischen Gründen (hohe Messunsicherheit für den kurzzeitigen Brennstoffverbrauch bzw. den Abgasvolumenstrom in umsatzschwachen Phasen) ist eine Bestimmung tatsächlicher spezifischer Staubfrachten (d. h. in mg/MJ oder g/h) nicht mit ausreichend hoher zeitlicher Auflösung möglich. Der Anstieg der Staubemission am Ende des Abbrands wäre bei Betrachtung der Staubfracht (in g/h) vermutlich nicht zu beobachten. Zukünftig wäre für eine detailliertere Untersuchung der Emissionsverläufe eine Realzeit-Aufnahme der Emissionen – auch der Staubfrachten – anzustreben. Dies wird derzeit

an einigen häuslichen Holzfeuerungsanlagen in der Schweiz vom Ökozentrum Langenbruck [116] umgesetzt.

Die starken Veränderungen der Verbrennungsbedingungen während eines Abbrands zeigt auch der Verlauf der Luftüberschusszahl und der Abgastemperatur (Abb. 7-3).

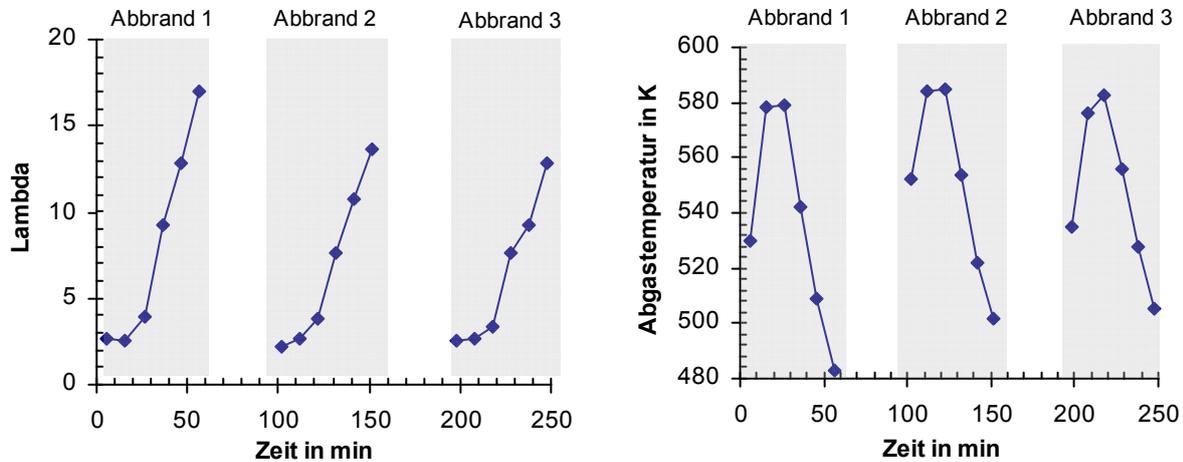


Abb. 7-3: Verlauf von Luftüberschuss (links) und Abgastemperatur (rechts) während dreier Abbrände. Jeweils 10-Minuten-Mittelwerte. Feuerung: Kaminofen ohne automatische Luftregelung. Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg [16]; grau schraffierte Bereiche stellen den jeweils vermessenen Abbrand von der Auflage bis zur vollständigen Umsetzung dar; Zwischenräume ergeben sich durch jeweils einen nicht gemessenen Abbrand mit reduzierter Auflage zur Vorbereitung der nächsten Messung

Luftüberschusszahl, Abgastemperatur und Emissionen an Kohlenstoffmonoxid lassen eine Zweiteilung des Abbrandverlaufs erkennen. So wird in der ersten Hälfte das neu aufgelegte Scheitholz mit starker Gasentwicklung pyrolytisch zersetzt. Es kommt zu einer heftigen Reaktion im Feuerraum begleitet von niedrigen Luftüberschusszahlen und nach der Anzündung hohen Abgastemperaturen. Die Emissionen an Kohlenwasserstoffen und Staub sinken nach hohen Werten in der Entzündungsphase ab. Nach knapp 30 Minuten sinkt die Gasfreisetzung durch den Übergang zur deutlich weniger heftigen Vergasung des Holzkohlekokes. Die Flamme erlischt. Aufgrund der fehlenden Luftregelung ergeben sich bei gleicher Sauerstoffzufuhr stark ansteigende Luftüberschusszahlen und damit einhergehend sinkende Abgastemperaturen. Dies trägt dazu bei, dass die Kohlenstoffmonoxidemissionen sprunghaft ansteigen. Auch die Kohlenwasserstoffemissionen zeigen einen kurzen Anstieg. Aufgrund der fehlenden Produkte aus der pyrolytischen Zersetzung nehmen sie im weiteren Verlauf wieder ab.

Fazit. Aufgrund der stark schwankenden Emissionen während eines Abbrands ist es zur Charakterisierung einer Feuerung ohne automatische Brennstoffzuführung – auch im Vergleich zu anderen Anlagen – erforderlich, dass die Messung einen vollständigen Abbrand vom Auflegen bis zum vollständigen Ausbrand des Brennstoffs erfasst.

Die Wahl des richtigen Nachlegezeitpunktes kann bei Durchbrandfeuerungen ohne automatische Luftregelung zur Minderung der Feinstaubemissionen beitragen. Rechtzeitig vor dem Übergang zur ausschließlichen Vergasung des Holzkohlekokes, also vor dem Erlöschen der Flamme, ist eine kleinere Brennstoffmenge mit ca. der Hälfte bis zwei Drittel der vom Hersteller vorgesehenen Auflage nachzulegen.

Anhang 3: Beispielhafte Fehlerbetrachtung Gesamtstaubmessung

Bei der Gesamtstauberfassung wurden stets gleichzeitig zwei Gesamtstaubmessungen im verdünnten Abgas durchgeführt. Ein Filterkopfhalter hatte 50 mm Filterplättchen und einer 45 mm Plättchen. Die Probenahmen waren mit einem Abstand von etwa 2 m Rohrleitung hintereinander angeordnet. Aus einer Gesamtheit von 45 unterschiedlichen Versuchen ergibt sich die in Abb. 7-4 dargestellte Größenkorrelation.

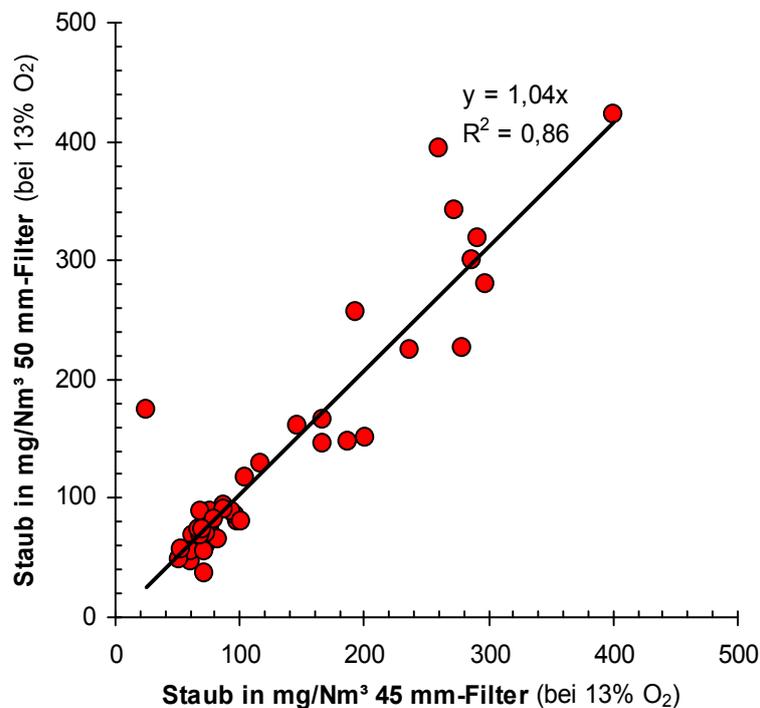


Abb. 7-4: Korrelation der gleichzeitig mit zwei Meter Abstand durchgeführten Gesamtstaubmessungen im verdünnten Abgas (45 Messungen) an einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung

Dass die beiden Messungen mit einem hohen Bestimmtheitsgrad (hier über 98 %) korrelieren, war zu erwarten. Auffällig ist, dass die Messwerte eine mit 4 % signifikante Abweichung aufweisen. Neben einer Vielzahl von Messungen, die statistisch sehr nahe an der Gerade mit der systematischen Abweichung liegen, fallen immer wieder Ausreißer mit einer Abweichung von bis zu 150 mg/Nm³ auf. Insofern kann sowohl von stochastischen Fehlern als auch systematischen Fehlern ausgegangen werden. Sollte der systematische Fehler nicht durch die Größe der Filterplättchen gegeben sein, so läge die Vermutung nahe, dass ca. 4 % der Staubmasse auf dem zwei Meter langen Weg zwischen den Probenahmeöffnungen verloren gehen, d. h. deponiert werden. Dies ließe aber die Vermutung zu, dass je Meter Rohrleitung bei den vorliegenden Strömungsverhältnissen etwa 2 % an Staub durch Ablagerung an den Rohrwänden verloren gehen. Das Wiederablösen größerer (agglomerierter Flocken) innerhalb des Abgasrohres kann zur beobachteten stochastischen Verfälschung der Messergebnisse beitragen.

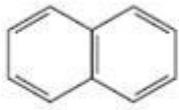
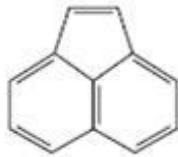
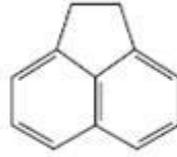
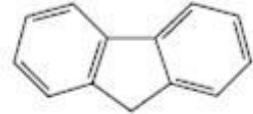
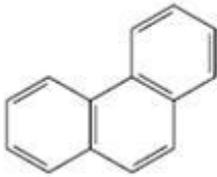
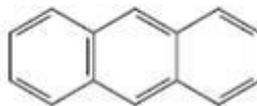
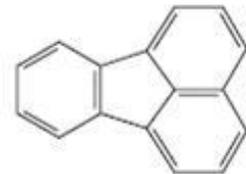
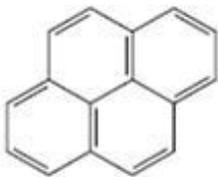
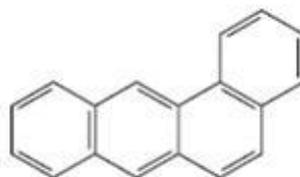
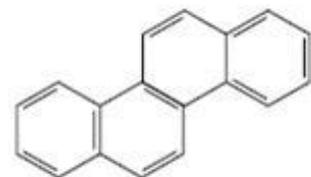
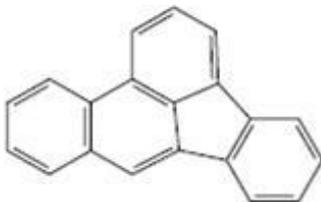
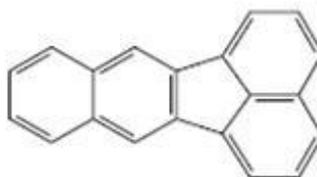
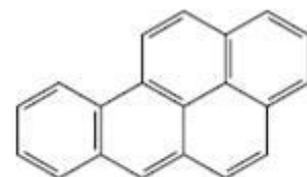
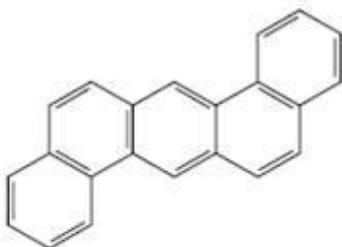
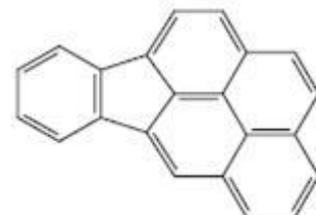
Anhang 4: Molekülstruktur der 16 U.S. EPA-PAKNaphthalin (C₁₀H₈)Acenaphtylen (C₁₂H₈)Acenaphtthen (C₁₂H₁₀)Fluoren (C₁₃H₁₀)Phenanthren (C₁₄H₁₀)Anthracen (C₁₄H₁₀)Fluoranthen (C₁₆H₁₀)Pyren (C₁₆H₁₀)Benz(a)anthracen (C₁₈H₁₂)Chrysen (C₁₈H₁₂)Benzo(b)fluoranthen (C₂₀H₁₂)Benzo(k)fluoranthen (C₂₀H₁₂)Benzo(a)pyren (C₂₀H₁₂)Dibenz(a,h)anthracen (C₂₂H₁₄)Benzo(ghi)perylen (C₂₂H₁₂)Indeno(1,2,3-cd)pyren (C₂₂H₁₂)

Abb. 7-5: Molekülstrukturen der 16 U.S. EPA-PAK [90]

Anhang 5: Toxikologische Relevanz von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen

Bei Holzfeinstäuben tragen vor allem die Gruppe der PAK zur toxikologischen Relevanz bei [27]. Die Gruppe der polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK) umfasst mehr als 500 unterschiedliche Einzelverbindungen [92]. Die Moleküle besitzen mindestens zwei miteinander verbundene aromatische Ringe. Durch verschiedene Studien und Untersuchungen an Mensch(en) und Tier(en) wurde herausgefunden, dass sich die als gesundheitsrelevantest eingestuften Verbindungen in der Gruppe der Moleküle mit vier bis sieben Ringen befinden [35], [96]. Aufgrund des geschlossenen Molekülaufbaus sind sie sehr temperaturbeständig. Neben industriellen Prozessen entstehen sie vor allem bei der unvollständigen Verbrennung in einem Temperaturbereich zwischen 500 und 2 000 °C [35].

Bei ausreichender Abkühlung der Abgase sind die höhermolekularen PAK zum größten Teil auf Partikeln auskondensiert und können so durch die Analyse von Feinstaubfilterproben bestimmt werden. Die niedermolekularen verbleiben dagegen tendenziell eher in der Gasphase. Für eine vollständige Analyse müssten also beide Phasen untersucht werden [35].

Typischerweise werden aufgrund der Häufigkeit des Vorkommens und der toxikologischen Relevanz in verschiedenen Studien gewisse Verbindungen als besonders wichtig hervorgehoben. Dazu gehören insbesondere die in Tabelle 7-1 zusammen mit den zugehörigen Grenzwerten aufgeführten 16 U.S. EPA-PAK (Anhang 4) [4]. Je nach Brennstoff, Feuerung und Betriebszustand können sich ganz unterschiedliche Emissionsprofile der PAK ergeben. Es wird jedoch angenommen, dass sich nach einer Durchmischung in der Atmosphäre ein einheitliches Verteilungsprofil ergibt, so dass ein einzelner Stoff als Indikator für die Gesamtbelastung bzw. die Kanzerogenität der Gesamtemission angesehen werden kann. Als Leitindikator wurde aufgrund des umfangreichen Wissens über die Wirkungen des Stoffes Benzo[a]pyren definiert [92].

Vereinzelt wurde versucht für spezielle Fragestellungen zusammenfassende Summenwerte aus einer unterschiedlichen Anzahl von PAK zu bilden, wobei die Ergebnisse nicht uneingeschränkt aus dem untersuchten Lebensmittelbereich auf die Feinstaubproblematik übertragbar sind [91]. Für einzelne PAK wurde das krebserzeugende Potenzial im Vergleich zu Benzo[a]pyren untersucht (Tabelle 7-1). Grundsätzlich besteht aber die Einschätzung, dass aufgrund der schlechten Vorhersagbarkeit der synergistischen Wirkung von Gemischen derzeit eine Anwendung von Äquivalenzwerten nicht haltbar ist [91]. Beispielsweise gibt es Untersuchungen, die zeigen, dass die Tumorraten von Benzo[a]pyren in Abhängigkeit des PAK-Profiles um einen Faktor 100 schwanken kann [92].

Entsprechend sollte eine Bewertung den PAK-Fingerabdruck und den absoluten Wert des Bezugs-PAKs, auf den der relative Fingerabdruck bezogen ist, berücksichtigen. In diesem Sinne ist die Erarbeitung von Standard-PAK-Fingerabdrücken für Holzverbrennungsprozesse eine zentrale Aufgabenstellung, da nur so eine Identifikation weniger typischer Kombinationen von PAK möglich ist, die dann aufwendig biologisch untersucht werden können. Da diese Untersuchungen noch nicht durchgeführt wurden, bleibt im Rahmen dieser Arbeit nur die Möglichkeit, die erfassten PAK als Summenwert und als Indikator für die toxikologische Relevanz das üblicherweise angegebene Benzo[a]pyren (BaP) heranzuziehen. Aus der Betrachtung aller PAK-Analysen (Anhang 6) ergibt sich die Einschätzung, dass unter Berücksichti-

gung des Auftretens und der Werte zum vergleichenden Krebserzeugungspotenzial gemäß Tabelle 7-1 BaP der dominierende Einzelfaktor sein dürfte¹².

Tabelle 7-1: Einstufung, Grenz- und Orientierungswerte für polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe [35], [92]

U.S. EPA-PAK	Mol- masse	IARC	MAK- Liste /DFG	EU	EPA	TA Luft in mg/Nm ³	krebserzeugendes Potenzial im Ver- gleich zu Benzo- [a]pyren [35]
Naphthalin	128	3	III B	n.r.	D	100/II ²⁾	
Acenaphthalen	152	3	n.r.	n.r.		²⁾	
Acenaphthen	154	3	n.r.	n.r.		²⁾	
Fluoren	166	3	n.r.	n.r.	D	²⁾	
Phenanthren	178	3	n.r.	n.r.	D	²⁾	0,0005
Anthracen	178	3	n.r.	n.r.	D	²⁾	0,0005
Fluoranthren	202	3	n.r.	n.r.	D	²⁾	0,05
Pyren	202	3	n.r.	n.r.		²⁾	0,001
Benz[a]anthracen	228	1A	III A2 ¹⁾	2		²⁾	0,005
Chrysen	228	3	III A2 ¹⁾	n.r.		²⁾	0,03
Benzo[b]fluoranthren	252	2B	III A2 ¹⁾	2		²⁾	0,1
Benzo[k]fluoranthren	252	2B	III A2 ¹⁾	2		²⁾	0,05
Benzo[a]pyren	252	2A	III A2 ¹⁾	2	B2	0,1 ³⁾	1
Indeno[1,2,3-cd]pyren	276	2B	III A2 ¹⁾	n.r.		²⁾	0,01
Dibenz[a,h]anthracen	278	2A	III A2 ¹⁾	2		0,1 ³⁾	1,1
Benzo[ghi]perylen	276	3	n.r.	n.r.		²⁾	0,002

1) III A1 .. Stoffe, die beim Menschen erfahrungsgemäß bösartige Geschwülste verursachen;
III A2 .. Stoffe, die bislang nur im Tierversuch krebserzeugend sind;
III B .. Stoffe mit begründetem Verdacht auf krebserzeugendes Potenzial

2) TA Luft Abs. 3.1.7 und Anhang E

3) Krebserzeugende Stoffe: TA Luft Abs. 2.3, Emissionsklasse I

MAK .. Maximale Arbeitsplatz-Konzentration, DFG .. Deutsche Forschungsgemeinschaft,
EPA .. Environmental Protection Agency, IARC .. International Agency for Research on Cancer,
n.r. .. nicht reguliert

U.S. EPA: Gruppe A .. Stoffe, die beim Menschen Krebs erzeugen; Gruppe B .. Stoffe, die beim Menschen wahrscheinlich Krebs erzeugen; Gruppe B1 .. begrenzte Beweise für die Krebserzeugung beim Menschen; Gruppe B2 .. ausreichende Beweise für die Krebserzeugung bei Tieren und

¹² Dibenz[a,h]anthracen mit einem etwas höheren Krebserzeugungspotenzial als BaP tritt in deutlich geringeren Mengen – meist sogar weniger als 10 % - als BaP auf (Anhang 6). Auch sehr häufig auftretenden PAK wie Benzo[b]fluoranthren, Indeno[1,2,3-c,d]pyren und Benzo[ghi]perylen haben im Krebserzeugungspotenzial im Einzelvergleich zu BaP mindestens einen Faktor 10 geringere Bedeutung (Tabelle 7-1), so dass der Fehler ohne Beachtung von Synergien und Antagonismen bei maximal 50 % liegen sollte und somit die generelle Einschätzung eines Vergleichs auf der Basis von BaP nicht in Frage stehen sollte.

inadequate Beweise für den Menschen; Gruppe C .. Stoffe, die beim Menschen möglicherweise Krebs erzeugen; Gruppe D .. Stoffe, die hinsichtlich ihrer Krebserzeugung beim Menschen nicht klassifizierbar sind; Gruppe E .. Beweise, dass der Stoff beim Menschen nicht krebserzeugend ist

IARC der WHO: Gruppe 1: Stoffe, die beim Menschen Krebs erzeugen; Gruppe 2A: Stoffe, die beim Menschen wahrscheinlich Krebs erzeugen; Gruppe 2B .. Stoffe, die beim Menschen möglicherweise Krebs erzeugen; Gruppe 3 .. Stoffe, die hinsichtlich ihrer Krebserzeugung beim Menschen nicht klassifizierbar sind; Gruppe 4 .. Stoffe, die wahrscheinlich beim Menschen nicht krebserzeugend sind

Der Wissenschaftliche Lebensmittelausschuss hat aufgrund von In-Vivo-Tierversuchen für folgende 15 Verbindungen eine eindeutige Mutagenität/Genotoxizität in somatischen Zellen identifiziert: Benz[a]anthracen, Benzo[b]fluoranthren, Benzo[j]fluoranthren, Benzo[k]fluoranthren, Benzo[g,h,i]perylen, Chrysen, Cyclopenta[c,d]pyren, Dibenz[a,h]anthracen, Dibenz[a,e]pyren, Dibenz[a,h]pyren, Dibenz[a,i]pyren, Dibenz[a,l]pyren, Indeno[1,2,3-c,d]pyren, 5-Methylchrysen und Benzo[a]pyren. Mit Ausnahme von Benzo[g,h,i]perylen kann eine eindeutige karzinogene Wirkung in verschiedenen Arten von Bioassays in Tierversuchen nachgewiesen werden [91]. Eine Studie des FAO/WHO-Sachverständigenausschusses für Lebensmittelzusatzstoffe kam mit Ausnahme von Benzo[g,h,i]perylen und Cyclopenta[c,d]pyren auf die gleichen kritischen Stoffe. Beide Gruppen schlagen Benzo[a]pyren als Marker vor.

Wie bereits in Kapitel 3.2.2 beschrieben, werden für die Summenbildung aufgrund der Messunsicherheiten bei den niedermolekularen PAK (Verdampfungsneigung bei den in der Erfassung und Aufbereitung der Filter genutzten Temperaturen) und der toxikologischen Relevanz, die vor allem bei den PAK mit vier bis sieben Ringen gegeben ist, hier nur die zehn höhermolekularen U.S. EPA-PAK herangezogen: Fluoranthren, Pyren, Benzo[a]anthracen, Chrysen, Benzo[b]fluoranthren, Benzo[k]fluoranthren, Benzo[a]pyren, Indeno[1,2,3-c,d]pyren, Dibenz[a,h]anthracen, Benzo[g,h,i]perylen.

Anhang 6: Analyseergebnisse der PAK-Bestimmung

Tabelle 7-2: Analyseergebnisse der PAK-Bestimmung (vier- bis siebenringige U.S. EPA-PAK) mit gelber Kennzeichnung hoher Fluoranthen- und Pyren-Werte [29], [88]

Betriebsvariation	Analyse	µg/Nm ³										Summe 10 EPA-PAK	mg/Nm ³		Lambda bei Analyse	CO g/Nm ³	C ₁ -H _m als Gesamt-C mg/Nm ³
		Fluoranthen	Pyren	Benzo(a)anthracen	Chrysen	Benzo(b)fluoranthen	Benzo(k)fluoranthen	Benzo(a)pyren	Indeno(1,2,3-c,d)pyren	Dibenzof(a,h)anthracen	Benzo(g,h,i)perylene		Gesamtstaub bei Analyse	Abgastemperatur bei Analyse K			
Buchenscheitholz	1	20,5	20,5	7,3	10,6	15,8	3,0	5,9	3,3	0,3	5,9	93	66	554	3,5	2,61	64
11% Wassergehalt	2	16,5	18,5	7,3	10,6	15,8	3,0	5,6	3,2	0,3	5,7	86	66	554	3,5	2,61	64
Fichtenscheitholz	1	1,6	1,7	8,0	10,2	16,8	4,3	7,0	4,7	0,5	7,3	62	73	527	4,1	2,97	99
10% Wassergehalt	2	0,4	0,4	4,4	4,7	15,2	4,1	7,6	4,3	0,1	6,9	48	69	526	4,1	2,58	305
Birkenscheitholz	1	0,8	0,8	1,2	1,5	5,8	1,5	3,0	2,2	0,4	3,8	21	81	509	4,9	3,84	409
12% Wassergehalt	2	1,4	1,8	9,9	13,7	25,8	4,9	9,9	6,6	0,3	10,6	85	76	518	4,3	3,43	79
Fichtenscheitholz ohne Rinde	1	30,7	33,6	32,1	36,5	64,2	14,6	30,7	30,7	1,8	27,7	303	146	548	4,0	2,85	100
10% Wassergehalt	2	1,6	1,7	21,3	22,3	62,1	14,6	34,0	34,9	0,3	32,0	225	97	542	4,1	2,97	58
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	1	12,3	16,7	127,1	140,5	295,5	89,2	202,9	194,0	14,5	210,7	1303	112	584	3,1	4,75	145
	2	8,8	11,2	92,5	103,7	255,3	78,1	175,1	172,8	13,4	184,0	1095	112	584	3,1	4,75	145
	3	21,6	23,2	358,6	396,7	1006,0	287,2	735,4	667,3	54,8	690,6	4241	166	610	2,2	5,80	521
	4	16,6	18,3	320,4	351,9	944,5	230,7	702,2	639,1	49,8	664,0	3938	166	610	2,2	5,80	521
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit halber Masse	1	19,3	27,4	54,7	64,4	115,9	30,6	66,0	72,5	5,5	78,9	535	161	576	2,7	3,77	173
	2	7,2	9,0	20,5	24,2	44,6	11,2	21,4	20,5	1,9	21,4	182	93	567	3,1	2,87	73
Buchenscheitholz	1	0,1	0,1	2,5	3,0	17,0	4,2	8,9	12,2	0,2	7,2	55	81	529	5,8	4,50	453
20% Wassergehalt	2	0,1	0,1	1,5	1,5	23,4	5,3	15,3	16,1	0,3	16,8	80	73	523	4,4	4,35	340
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit doppelter Masse, -3 Pa Schornsteinzug	1	0,9	0,9	12,8	12,1	36,9	7,9	21,1	20,7	2,3	19,3	135	176	469	7,8	5,59	1107
	2	1,0	2,3	17,4	19,3	33,3	7,7	10,7	15,4	1,6	14,9	124	176	469	7,8	5,59	1107
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit doppelter Masse	1	0,7	2,8	20,5	22,8	29,9	5,5	14,2	14,2	3,0	7,9	121	394	468	9,2	5,98	1247
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, - 22 Pa Schornsteinzug	1	1,1	1,6	9,3	12,1	15,2	4,1	6,7	3,6	0,7	3,6	58	257	523	6,8	5,15	765
	2	11,3	13,1	2,7	3,3	3,0	0,8	2,1	1,1	k.N.	1,2	39	87	535	5,8	3,82	141
Buchenscheitholz	1	43,3	52,9	22,4	22,4	20,8	5,1	15,1	9,6	7,2	9,8	209	1602	450	12,0	10,34	3800
30% Wassergehalt	2	10,8	24,0	11,6	13,2	11,6	2,9	6,5	4,0	2,2	3,1	90	828	480	8,9	9,64	2873
Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	1	0,5	0,6	7,5	8,9	34,3	6,9	24,0	10,3	0,7	12,3	106	68,5	618	2,4	1,90	48
	2	0,4	0,5	6,6	9,6	30,1	5,5	21,9	8,9	0,5	9,6	94	68,5	618	2,4	1,90	48
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, keine Sekundärluft	1	1,4	1,5	5,8	5,8	97,4	10,9	35,5	85,5	0,2	91,9	336	91	544	2,5	3,57	151
	2	1,2	1,2	8,0	8,8	22,4	8,8	21,6	15,2	1,3	17,6	106	80	545	2,7	2,90	58
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -32 Pa Schornsteinzug	1	1,7	2,4	4,7	5,7	6,8	2,2	4,6	2,7	0,2	3,3	34	70	561	4,9	2,94	40
	2	5,1	6,4	3,7	4,4	4,7	1,2	2,0	1,3	k.N.	1,5	30	73	565	5,1	3,29	57

Anhang 7: Ausgangsdaten der Messungen am TFZ

Tabelle 7-3: Rohdaten der Messungen [88]

Betriebsvariation	Wiederholung	λ (bezogen auf Mittelwert CO_2)	O_2	CO_2	Abgastemperatur	CO	NO_x	C_nH_m	Gesamstaub unverdünnt	Gesamstaub verdünnt (50mm-Filter)	Gesamstaub verdünnt (45mm-Filter)	Mittelwert Gesamstaub verdünnt
Einheit			%	%	$^\circ\text{C}$	g/Nm^3	mg/Nm^3	mg/Nm^3	mg/Nm^3	mg/Nm^3	mg/Nm^3	mg/Nm^3
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt	1	3,8	15,3	5,4	264	2,62	167	187		76	70	73
	2	3,5	14,9	5,8	281	2,61	163	64		69	63	66
	3	3,4	14,6	6,1	276	2,59	164	47		94	87	90,5
	4	3,7	15,3	5,5	262	2,19	156	36	52	47	61	54
	5	4,0	15,7	5,1	263	2,47	157	38	65	65	80	72,5
	6	4,2	15,9	4,9	254	3,17	166	133	58	37	71	54
Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt	1	4,1	15,8	4,9	253	2,58	122	305	41	61	69	65
	2	4,1	15,8	4,9	254	2,97	113	99	54	73	75	74
	3	3,9	15,5	5,2	258	2,44	116	74	51	73	76	74,5
Birkenscheitholz 12% Wassergehalt	1	4,0	15,7	5,0	256	2,27	157	96	66	56	60	58
	2	4,9	16,7	4,1	236	3,84	146	409	66	81	98	89,5
	3	4,3	15,9	4,7	245	3,43	149	79	78	89	76	82,5
Fichtenscheitholz ohne Rinde 10% Wassergehalt	1	4,1	15,2	4,9	269	2,97	63	58	90	86	97	91,5
	2	4,0	15,1	5,0	278	2,71	74	86	77	67	79	73
	3	4,0	15,1	5,0	275	2,85	72	100	156	146	167	156,5
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	1	2,6	12,0	8,0	328	5,49	116	335	131	281	297	289
	2	2,6	12,1	7,8	325	8,60	109	1002	141	224	236	230
	3	3,1	13,4	6,6	311	4,75	119	145	85	118	105	111,5
	4	2,3	11,6	8,8	332	6,02	101	227	324	422	400	411
	5	2,2	11,2	9,3	337	5,80	95	521	179	166	166	166
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit halber Masse	1	3,2	14,1	6,4	300	3,10	110	69	67	89	69	79
	2	2,7	13,5	7,7	303	3,77	112	173	123	161	147	154
	3	3,1	13,9	6,6	294	2,87	123	73	78	89	93	91
Buchenscheitholz 20% Wassergehalt	1	5,8	16,6	3,5	256	4,50	179	453		81	101	91
	2	4,4	15,5	4,6	250	4,35	139	340	41	61	73	67
	3	3,7	14,6	5,6	276	2,42	136	59	40	48	51	49,5
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheit mit doppelter Masse, -3 Pa Schornsteinzug	1	5,9	16,7	3,5	228	4,64	196	747	37	65	82	73
	2	7,7	17,6	2,6	195	4,94	258	1526	82	226	278	252
	3	7,8	17,6	2,6	196	5,59	233	1107	71	151	200	176
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheit mit doppelter Masse	1	6,0	16,8	3,4	237	3,87	174	561	49	130	117	123
	2	8,2	17,7	2,5	207	6,56	258	1136	98	343	272	308
	3	9,2	18,0	2,2	195	5,98	225	1247	96	394	260	327
Buchenscheitholz 30% Wassergehalt	1	4,4	15,4	4,7	267	4,57	206	606	42	56	72	64
	2	4,5	15,6	4,5	273	4,50	211	475	47	71	73	72
	3	9,7	18,3	2,1	197	9,44	369	3225	128	971	907	939
	4	8,9	18,0	2,3	207	9,64	352	2873	123	1030	828	929
	5	12,0	18,7	1,7	177	10,34	430	3800		1602	1523	1562,5
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Abbrand 10 Minuten-Werte	1	2,7	12,8	7,7	257	1,42	221	299		118		
	2	2,6	12,5	7,9	305	1,21	167	39			59	
	3	3,9	14,8	5,2	306	1,58	155	102		70		
	4	9,3	17,7	2,2	269	8,90	116	210			29	
	5	12,8	18,5	1,6	236	8,42	89	65		16		
	6	17,1	19,0	1,2	210	6,80	86	38			24	
Abbrand 2	1	2,2	11,2	9,2	279	1,17	164	69		89		
	2	2,7	12,7	7,6	311	0,29	152	11			77	
	3	3,9	14,5	5,3	312	1,13	151	24		66		
	4	7,6	17,1	2,7	281	7,21	119	28			41	
	5	10,8	18,0	1,9	249	8,85	110	20		13		
	6	13,6	18,6	1,5	229	7,44	105	17			35	
Abbrand 3	1	2,5	12,1	8,1	262	1,50	168	202		131		
	2	2,7	12,5	7,7	303	0,52	145	16			82	
	3	3,4	13,8	6,0	310	0,49	143	10		91		
	4	7,6	17,0	2,7	283	6,13	125	57			27	
	5	9,3	17,7	2,2	255	7,54	112	21		16		
	6	12,8	18,3	1,6	232	7,33	105	17			22	
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -22 Pa Schornsteinzug	1	6,8	17,4	3,0	250	5,15	247	765	74	257	193	225
	2	8,2	17,8	2,5	229	5,45	299	832	83	319	292	305,5
	3	6,2	17,4	3,3	272	4,17	212	183	53	60		60
	4	5,4	16,8	3,8	276	3,39	180	98	60	72		72
	5	5,8	17,0	3,5	262	3,82	196	141	75	87		87
Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	1	2,4	11,8	8,6	345	1,90	92	48	59	68	69	68,5
	2	2,2	11,0	9,4	352	3,79	91	188	163	301	286	293,5
	3	2,3	11,7	8,7	346	2,36	79	97	72	174	25	99,5
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, keine Sekundärluft	1	2,8	13,1	7,3	266	2,82	135	60	40	52		52
	2	2,5	12,3	8,1	271	0,57	117	151	75	91	88	89,5
	3	2,7	12,9	7,5	272	2,90	107	58	69	82	80	81
Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -32 Pa Schornsteinzug	1	4,4	15,7	4,6	323	2,59	174	31	37	57	53	55
	2	5,1	16,3	4,0	292	3,29	171	57	54	73	67	70
	3	4,9	16,1	4,2	288	2,94	149	40	58	74	70	72

Anhang 8: Analyseergebnisse und Versuchsbedingungen

Tabelle 7-4: Analyseergebnisse und Versuchsbedingungen [29], Staub im verdünnten Abgas, NG ..
Nachweisgrenze

Versuch	Einheit	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt	Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt	Birkenscheitholz 12% Wassergehalt	Fichtenscheitholz ohne Rinde 10% Wassergehalt	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit halber Masse	Buchenscheitholz Wassergehalt 20%	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit doppelter Masse, -3 Pa Schornsteinzug	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit doppelter Masse	Buchenscheitholz 30% Wassergehalt	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -22Pa Schornsteinzug	Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, keine Sekundärluft	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -32Pa Schornsteinzug
Mittelwert- Gesamtstaub	13% O ₂ mg/Nm ³	68,3	71,2	76,7	107	242	108	69	167	253	1144	150	154	74	66
Mittelwert CO	g/Nm ³	2,6	2,7	3,2	2,8	6,1	3,2	3,8	5,1	5,5	9,8	4,4	2,7	3,1	2,9
Mittelwert C _n H _m	mg/Nm ³	84	159	159	81	446	105	284	1127	981	3299	404	111	90	43
T EC/OC	K	537	527	518	548	605	576	529	468	468	450	502	625	544	579
λ EC/OC		3,8	4,1	4,3	4,0	2,3	2,7	5,8	7,7	9,2	12,0	8,2	2,2	2,5	4,7
CO EC/OC	g/Nm ³	2,62	2,97	3,43	2,85	6,02	3,77	4,50	4,94	5,98	10,34	5,45	3,79	3,57	2,76
C _n H _m EC/OC	mg/Nm ³	187	99	79	100	227	173	453	1526	1247	3800	832	188	151	35,5
Staub EC/OC	mg/Nm ³	73	75	89	167	422	147	101	278	260	1523	319	301	88	65,5
EC	mg/Nm ³	41	47	64	119	287	94	38	73	67	266	71	212	54	30
OC	mg/Nm ³	7,7	7,5	2,3	0,5	81	11	18	84	81	542	113	55	6,4	1,3
T PAK 1.Analyse	K	554	527	518	548	584	576	529	469	468	450	535	618	544	561
λ PAK 1.Analyse		3,5	4,1	4,3	4,0	3,1	2,7	5,8	7,8	9,2	12,0	5,8	2,4	2,5	4,9
CO PAK 1.Analyse	g/Nm ³	2,61	2,97	3,43	2,85	4,75	3,77	4,50	5,59	5,98	10,34	3,82	1,90	3,57	2,94
C _n H _m PAK 1.Analyse	mg/Nm ³	64	99	79	100	145	173	453	1107	1247	3800	141	48	151	40
Staub PAK 1.Analyse	mg/Nm ³	66	73	76	146	111,5	161	81	176	394	1602	87	68,5	91	70
PAK 1.Analyse	µg/Nm ³	93	62	85	303	1206	535	55	135	121	209	39	106	336	34
BaP 1.Analyse	µg/Nm ³	5,9	7	9,9	30,7	190	66	8,9	21,1	14,2	15,1	2,1	24	35,5	4,6
T PAK 2.Analyse	K	554	526	509	542	610	567	523	469,23	469,2	480	523	618	545	565
λ PAK 2.Analyse		3,5	4,1	4,9	4,1	2,2	3,1	4,4	7,8	7,8	8,9	6,8	2,4	2,7	5,1
CO PAK 2.Analyse	g/Nm ³	2,61	2,58	3,84	2,97	5,80	2,87	4,35	5,59	5,59	9,64	5,15	1,90	2,90	3,29
C _n H _m PAK 2.Analyse	mg/Nm ³	64	305	409	58	521	73	340	1106,75	1107	2873	765	48	58	57
Staub PAK 2.Analyse	mg/Nm ³	66	69	81	97	166	93	73	175,503	175,5	828	257	68,5	80	73
PAK 2.Analyse	µg/Nm ³	86	48	21	225	4090	182	80	124	129,5	90	58	94	106	30
BaP 2.Analyse	µg/Nm ³	5,6	7,6	3	34	719	21,4	15,3	10,7	15,9	6,5	6,7	21,9	21,6	2
T Ionen	K	535	527	509	551	605	567	549	469	468	450	545	619	545	561
λ Ionen		3,7	4,1	4,9	4,0	2,3	3,1	3,7	7,8	9,2	12,0	6,2	2,3	2,7	4,9
CO Ionen	g/Nm ³	2,19	2,97	3,84	2,71	6,02	2,87	2,42	5,59	5,98	10,34	4,17	2,36	2,90	2,94
C _n H _m Ionen	mg/Nm ³	36	99	409	86	227	73	59	1107	1247	3800	183	72	58	40
Staub Ionen	mg/Nm ³	54	74	89,5	73	411	91	49,5	176	327	1563	60	174	81	72
Chlorid	mg/Nm ³	0,74	0,72	0,51	0,38	1,26	0,56	0,9	0,22	0,41	0,51	0,99	1,09	0,72	0,55
Nitrat	mg/Nm ³	0,68	0,17	0,18	<NG	<NG	0,39	0,89	0,57	1,06	0,74	1,27	<NG	0,53	0,71
Sulfat	mg/Nm ³	1,56	0,52	0,65	0,22	0,61	1,5	3,72	1,63	3,04	3,34	2,99	1,23	2,06	7,03
NH ₄	µg/Nm ³	3,96	3,01	6,42	3,68	<NG	3,58	2,86	<NG	<NG	<NG	<NG	<NG	3,96	11,2
T Metalle	K	537	526	529	542	605	573	523	468	510	480	523	625	544	565
λ Metalle		3,8	4,1	4,0	4,1	2,3	3,2	4,4	7,7	6,0	8,9	6,8	2,2	2,5	5,1
CO Metalle	g/Nm ³	2,62	2,58	2,27	2,97	6,02	3,10	4,35	4,94	3,87	9,64	5,15	3,79	3,57	3,29
C _n H _m Metalle	mg/Nm ³	187	305	96	58	227	69	340	1526	561	2873	765	188	151	57
Staub Metalle	mg/Nm ³	73	65	58	91,5	400	79	67	252	130	929	193	286	89,5	70
Kalium	mg/Nm ³	2,11	0,76	0,43	0,62	31,62	2,03	3,33	2,34	<NG	4,89	9,99	8,2	2,79	4,43
Zn	µg/Nm ³	59,9	116	245	138,9	220	42,7	38	10,1	<NG	15	287	91,2	76,4	72,3
Mn	µg/Nm ³	1,47	29,3	2,23	2,67	8,64	4,73	5,05	87,13	<NG	35,07	<NG	20,65	6,12	13,2
Cd	µg/Nm ³	1,27	19,3	13,8	2,94	3,18	5,8	2,88	14,16	4,45	11,56	10,3	1,91	2,4	9,91
Pb	µg/Nm ³	1,82	5,85	18,2	0,59	11,04	1,68	1,09	1,14	0,65	1,89	29,9	9,18	1,08	1,2
Cr	µg/Nm ³	4,98	0,25	<NG	<NG	2,18	<NG	0,33	0,73	19,87	0,045	6,62	5,98	<NG	<NG
Cu	µg/Nm ³	7,51	3,39	5,51	<NG	11,36	7,81	<NG	4,98	19,22	<NG	13	7,04	<NG	0,66

Anhang 9: Analyseergebnisse der Betriebsvariationen bezüglich Metalle und Ionen

1. Inhaltsstoffe

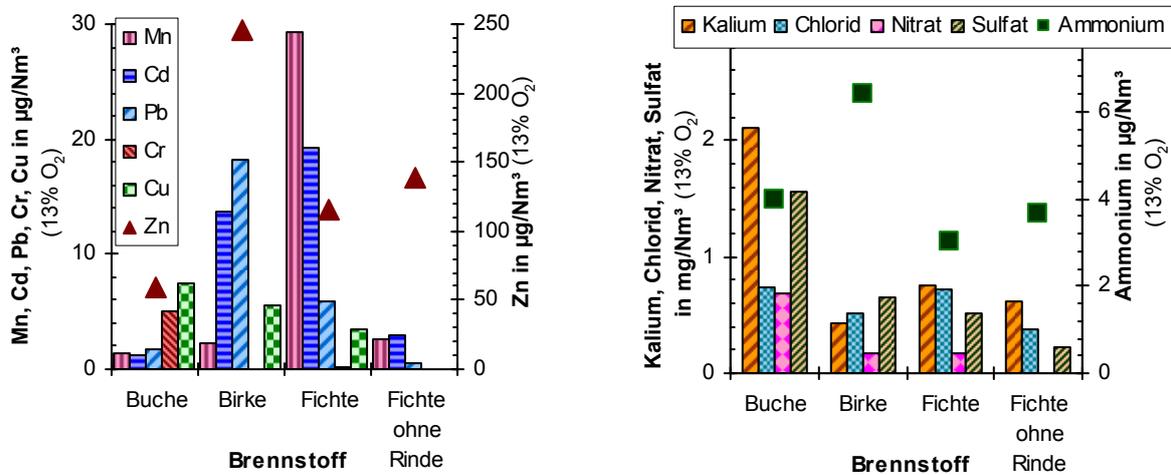


Abb. 7-6: Einfluss der Holzart in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoffe: Buchenscheitholz (w = 11 %), Birkenscheitholz (w = 12 %), Fichtenscheitholz (w = 10 %), Fichtenscheitholz ohne Rinde (w = 10 %)

2. Wassergehalt

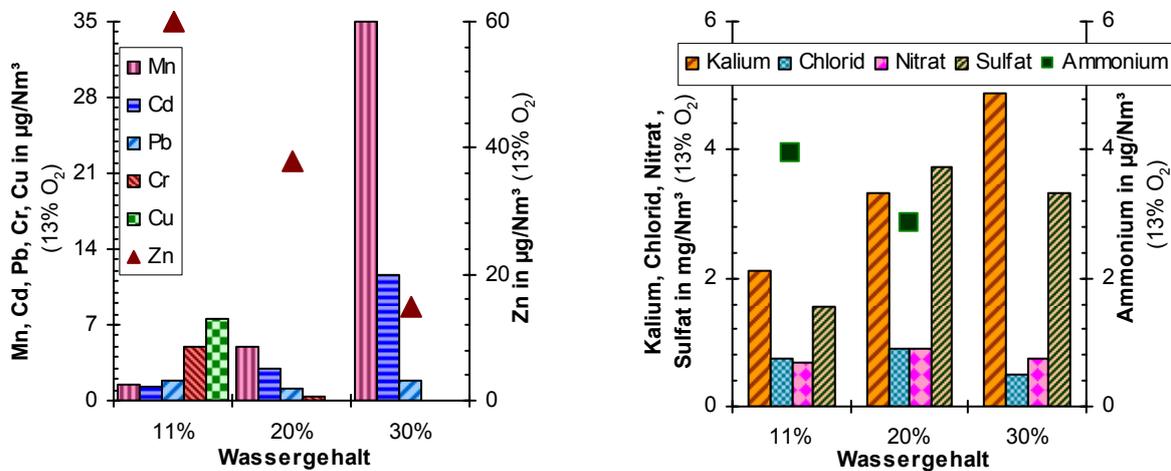


Abb. 7-7: Einfluss des Brennstoffwassergehalts in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoff: Buchenscheitholz, Scheitlänge: 25 cm, Brennstoffmasse: 1,4 kg bei 11 % bzw. äquivalente Masse bei 20 % und bei 30 % Wassergehalt

3. Stückigkeit

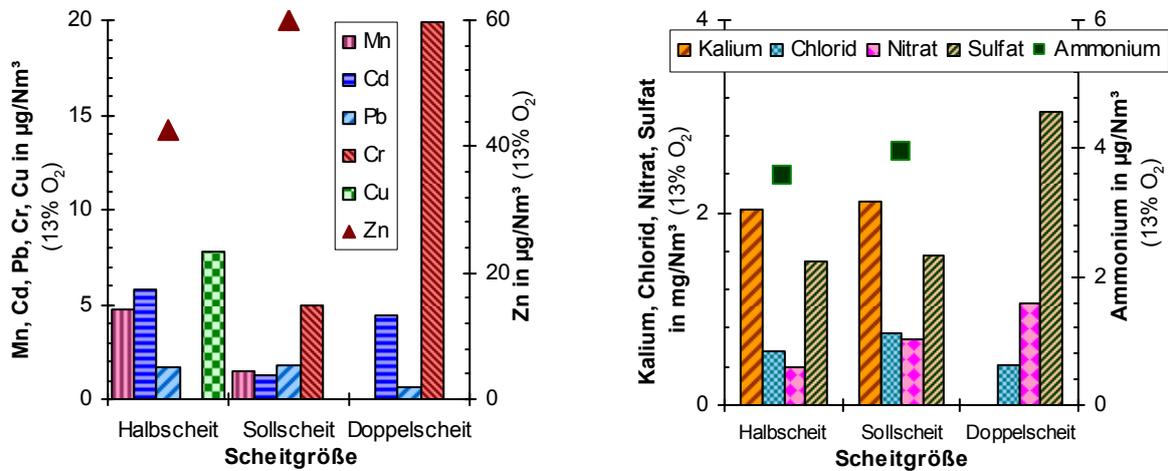


Abb. 7-8: Einfluss der Scheitgröße in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoff: Buchenscheitholz ($w = 11\%$), Scheite mit halber Masse (0,35 kg), Sollscheite (0,7 kg) und Scheite mit doppelter Masse (1,4 kg) bei gleicher Gesamtbrennstoffmasse (1,4 kg)

4. Brennraumbelastung

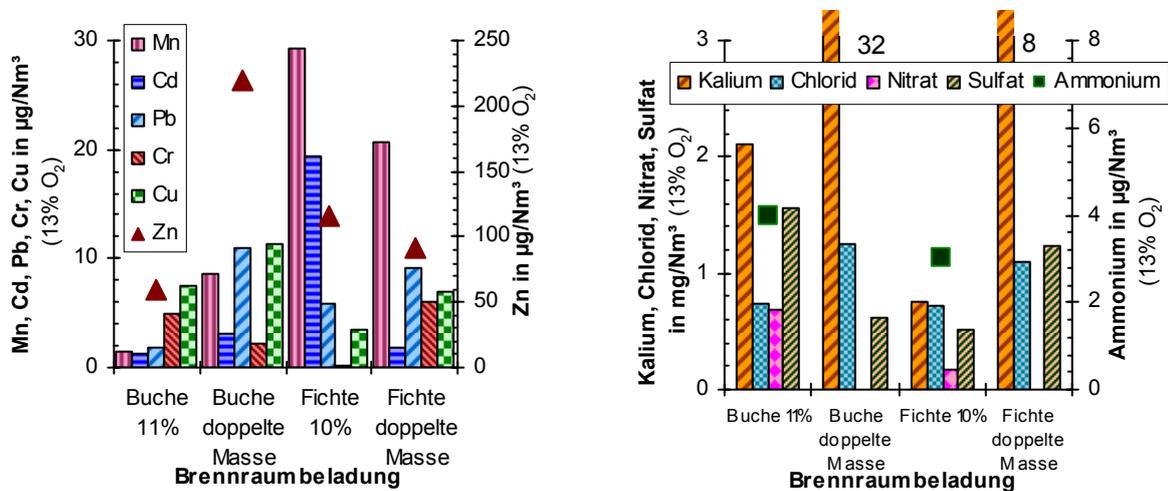


Abb. 7-9: Einfluss der Brennraumbelastung in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoff: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) und Fichtenscheitholz ($w = 10\%$), jeweils normale (1,4 kg) und doppelte Beladung (2,8 kg) bezogen auf die Massenangabe des Herstellers

5. Manuelle Luftregelung

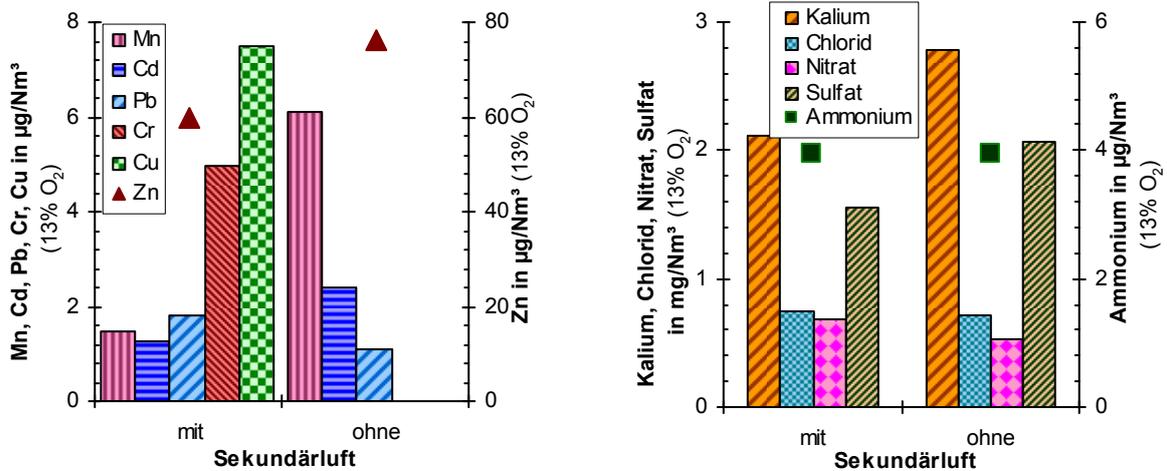


Abb. 7-10: Einfluss der Sekundärluft in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoff: Buchenscheitholz ($w = 11\%$), mit halb geöffneter und geschlossener Sekundärluftklappe

6. Passive Zugkontrolle

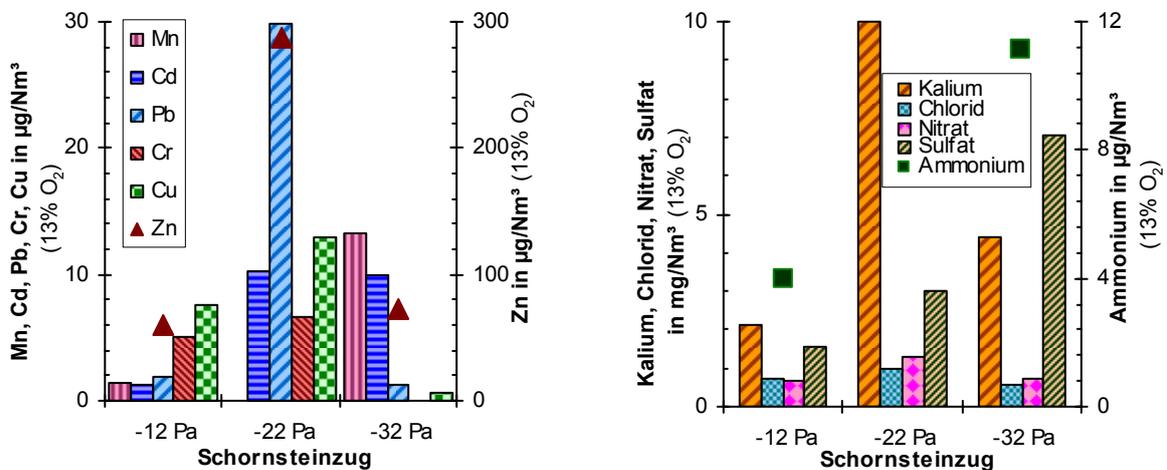


Abb. 7-11: Einfluss des Schornsteinzuges in einem Kaminofen ohne automatische Luftklappe auf ausgewählte Metalle (Mn, Cd, Pb, Cr, Cu, Zn) (links) und Kalium, Chlorid, Nitrat, Sulfat und Ammonium (rechts). Brennstoff: Buchenscheitholz ($w = 11\%$) bei -12 Pa, -22 Pa und -32 Pa Schornsteinzug

Anhang 10: Einschätzung von Verweilzeit und Durchmischungsgrad

Die Einschätzung der Verweilzeit und des Durchmischungsgrades ist aufgrund der vorhandenen Messgrößen und Beobachtungen (v. a. Luftüberschusszahl, Abgastemperatur, Befüllungszustand der Feuerung und Flammenbild) erfolgt. Es wurden keine speziellen Messungen durchgeführt.

Tabelle 7-5: Phänomenologische Einschätzung von Verweilzeit und Durchmischung in den einzelnen Betriebsvariationen

Versuch	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt	Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt	Birkenscheitholz 12% Wassergehalt	Fichtenscheitholz ohne Rinde 10% Wassergehalt	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheite mit halber Masse	Buchenscheitholz Wassergehalt 20%	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheit mit doppelter Masse, -3 Pa Schornsteinzug	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, Scheit mit doppelter Masse	Buchenscheitholz 30% Wassergehalt	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -22Pa Schornsteinzug	Fichtenscheitholz 10% Wassergehalt, doppelte Masse der Brennstoffauflage	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, keine Sekundärluft	Buchenscheitholz 11% Wassergehalt, -32Pa Schornsteinzug
Verweilzeit	0	0	0	1	-1	1	0	-1	-1	-1	0	-1	0	0
Durchmischung	0	0	0	0	-1	0	0	0	0	-1	0	-1	-1	0

Verweilzeit: 0 .. im Rahmen der gegebenen Bauform in Ordnung

-1 .. Brennraum ausreichend, aber Temperaturen nicht ausreichend

1 .. ausreichende Temperaturen, aber zu kurze Zeit im Brennraum

Durchmischung: 0 .. im Rahmen der gegebenen Bauform in Ordnung

-1 .. ungenügend

Anhang 11: Zusammenhänge zwischen Kohlenstoffkomponenten im Staub und den Staubemissionen

Scheitholzkaminöfen der untersuchten Bauart sind in ihrem Abbrandverhalten durch erhebliche Kohlenstoffanteile in den Feinstaubemissionen geprägt (Abb. 7-12 unten). Dabei kann zwischen organischem Kohlenstoff (OC) (Abb. 7-12 oben links) und elementarem Kohlenstoff (EC) (Abb. 7-12 oben rechts) – v. a. Ruß - unterschieden werden.

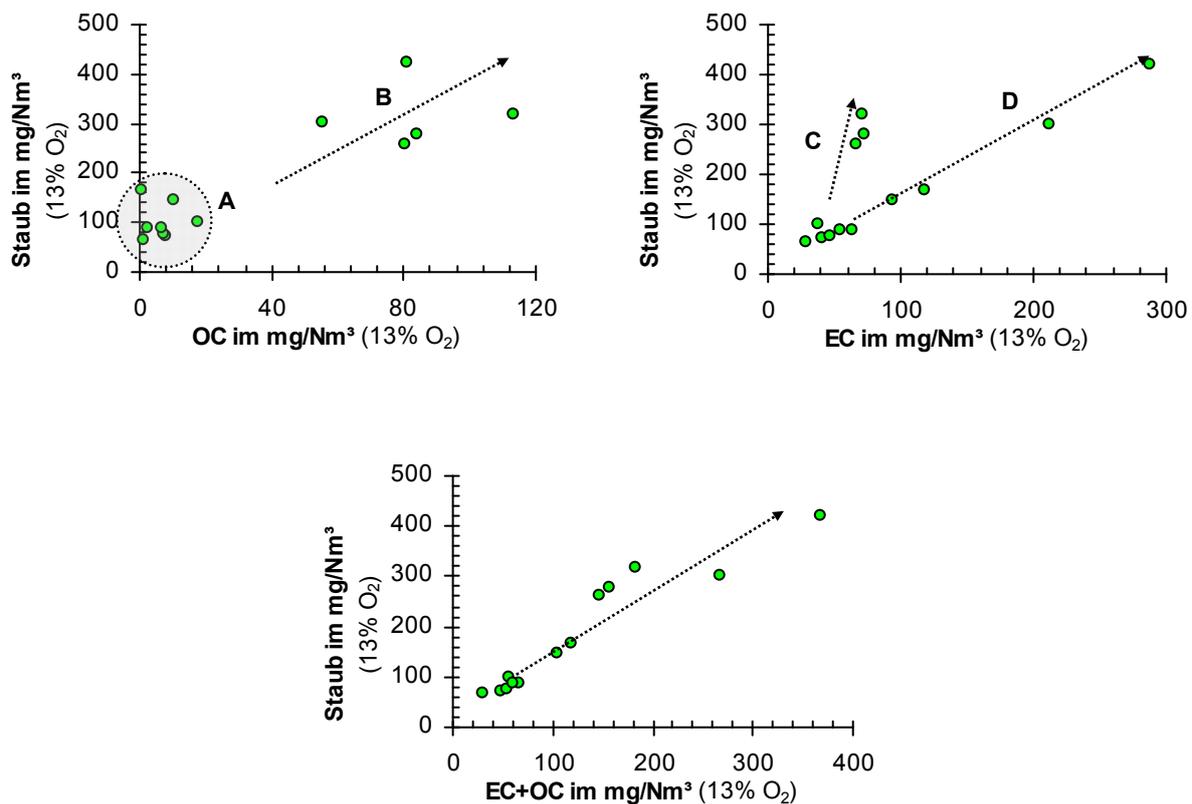


Abb. 7-12: Zusammenhang zwischen den Emissionen an organischem Kohlenstoff (OC) und den Staubemissionen im verdünnten Abgas (links oben), den Emissionen an elementarem Kohlenstoff (EC) und den Staubemissionen im verdünnten Abgas (rechts oben) und der Summe der Emissionen an organischem und elementarem Kohlenstoff (OC + EC) im Vergleich zu den Staubemissionen im verdünnten Abgas (unten) in einem Scheitholzkaminofen ohne automatische Luftregelung bei verschiedenen Betriebsvariationen (13 Analysen); A .. Bereich ohne Korrelation; B, C, D .. Tendenzen für Abhängigkeiten der betrachteten Größen

Der Anteil der Nicht-Kohlenstofffeinstäube ist zu einem erheblichen Anteil durch die Anteile an Aschebildnern im Brennstoff bestimmt. Betriebsvariationen haben nur einen begrenzten Einfluss auf die Freisetzung im Abgas. Entsprechend sind sehr hohe Feinstaubemissionen bei der Verbrennung von Holzbrennstoffen im Wesentlichen auf die Emission von Partikeln der unvollständigen Verbrennung zurückzuführen. Dies zeigt sich in der erkennbaren Korrelation zwischen den Feinstaubemissionen im verdünnten Abgas und der Summe an OC- und EC-Emissionen (Abb. 7-12 unten).

Zwischen den organischen Kohlenstoffkomponenten im Feinstaub und der Gesamtfinstaubemission im verdünnten Abgas besteht für niedrige OC-Emissionen keine erkennbare Korre-

lation (Abb. 7-12 oben links A) und für höhere OC-Emissionen nur eine sehr grobe Tendenz (Abb. 7-12 oben links B). Für den Zusammenhang zwischen den Emissionen an EC und den Gesamtfeinstaubemissionen ist für viele Versuchsvariationen eine grundsätzliche Proportionalität vorhanden (Abb. 7-12 oben rechts, D), wobei einige Variationen eine gänzlich andere Tendenz aufweisen (Abb. 7-12 oben rechts, C). Alle vier Beobachtungen können auf die Unterschiede in der OC- und EC-Bildung zurückgeführt werden. Während die Summe der beiden maßgeblich zur Feinstaubmenge beiträgt, können sich die Verteilungen zwischen EC und OC je nach Versuchsvariation erheblich ändern.

Insgesamt kann also weder von den Emissionen an OC noch von EC allein auf die Gesamtstaubemission zurückgeschlossen werden, während für hohe Staubemissionen die Abhängigkeit zur Summe der Emissionen von OC und EC trivial ist.

Anhang 12: Zusammenhänge zwischen Gesamtstaubmenge im unverdünnten Abgas und Kohlenstoffmonoxid- bzw. Kohlenwasserstoffemissionen

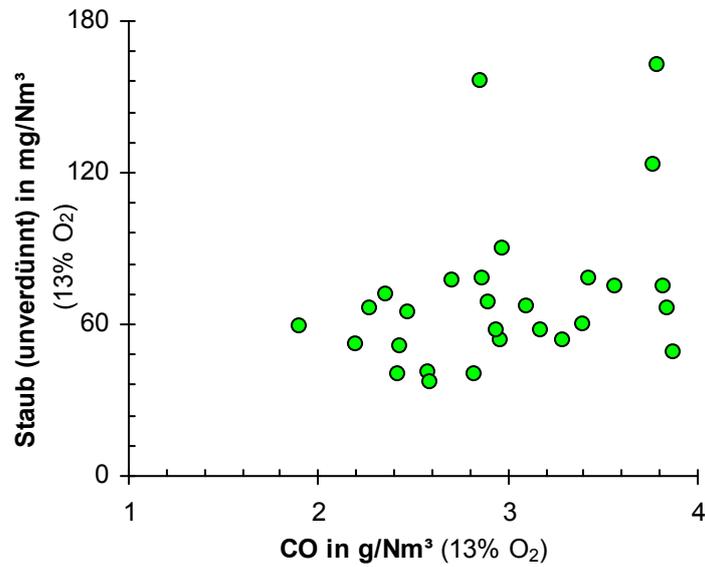


Abb. 7-13: Gesamtstaubmenge im unverdünnten Abgas in Abhängigkeit der Kohlenstoffmonoxidemissionen bei verschiedenen Betriebsvariationen eines Scheitholzkaminofens ohne Luftregelung (28 Messungen)

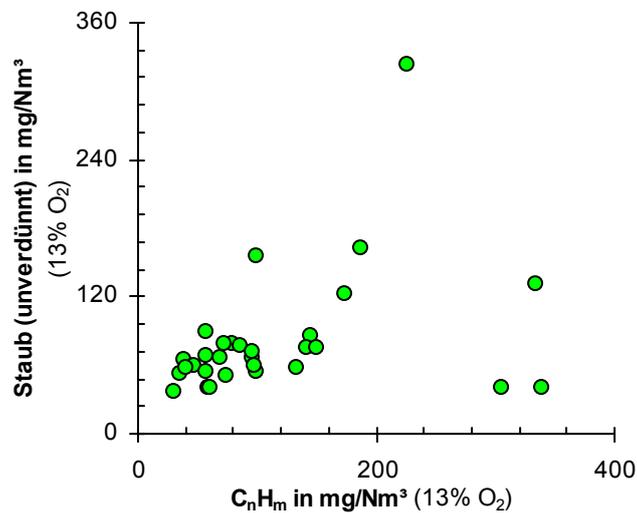


Abb. 7-14: Gesamtstaubmenge im unverdünnten Abgas in Abhängigkeit der Kohlenwasserstoffemissionen bei verschiedenen Betriebsvariationen eines Scheitholzkaminofens ohne Luftregelung (30 Messungen)

Anhang 13: Korrelationen zwischen Kohlenstoffkomponenten und PAK im Staub

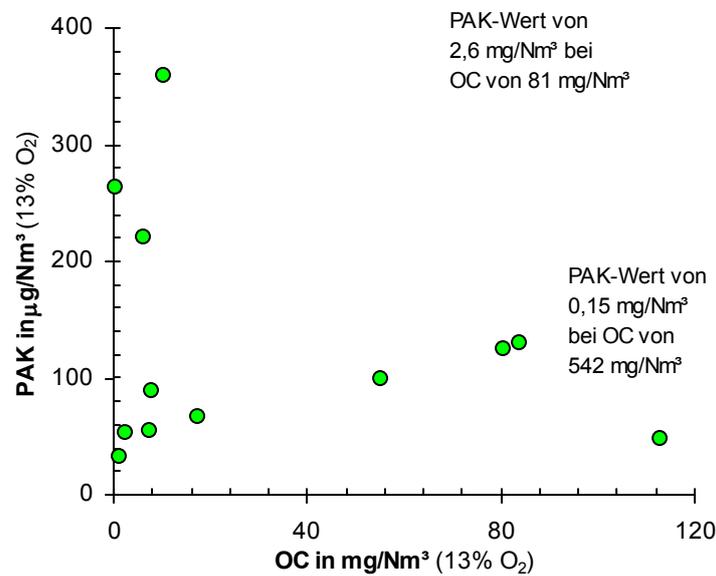


Abb. 7-15: Zusammenhänge zwischen organischem Kohlenstoff (OC) und polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) bei 14 Analysen von Staubproben aus dem verdünnten Abgas eines Scheitholzkaminofens ohne automatische Luftregelung

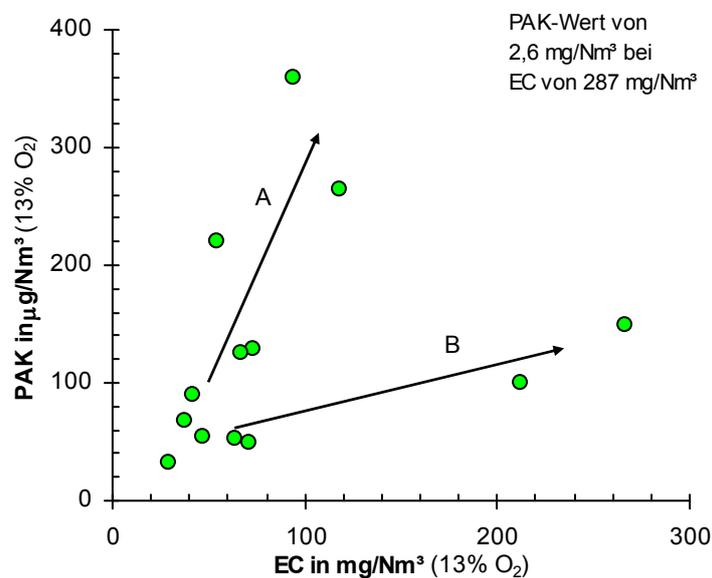


Abb. 7-16: Zusammenhänge zwischen elementarem Kohlenstoff (EC) und polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) bei 14 Analysen von Staubproben aus dem verdünnten Abgas eines Scheitholzkaminofens ohne automatische Luftregelung; A, B .. Tendenzen für Abhängigkeiten zwischen den betrachteten Größen

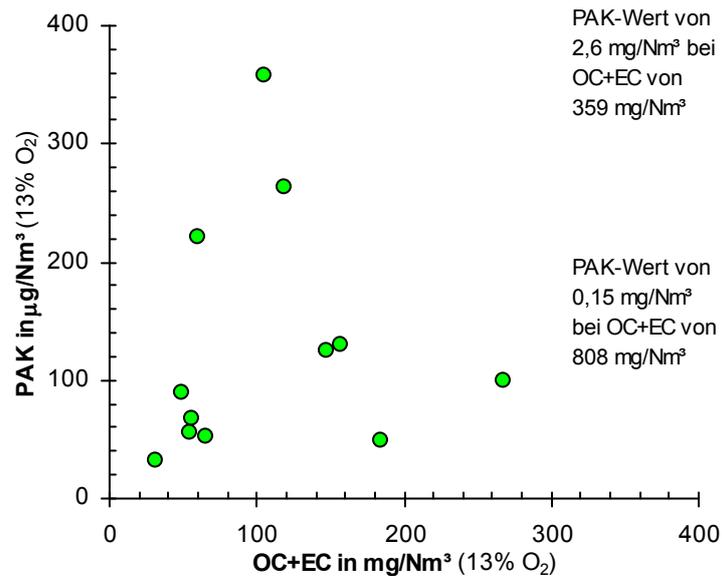
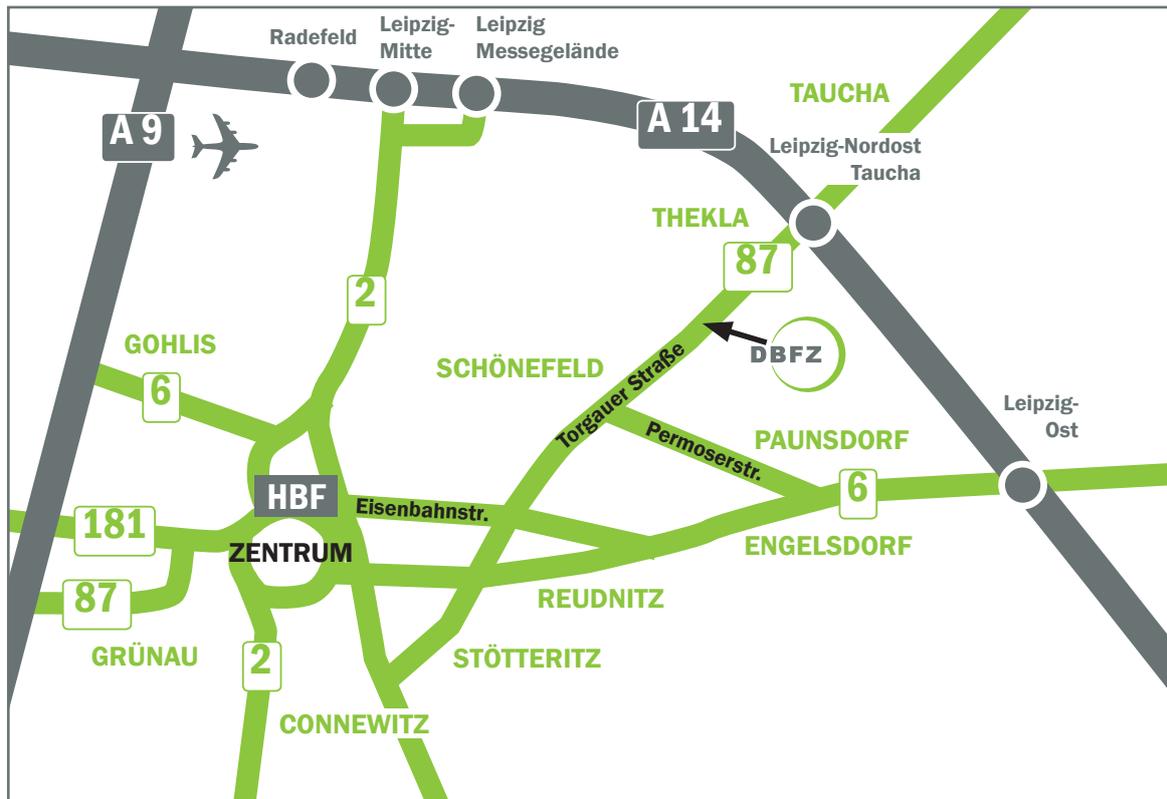


Abb. 7-17: Zusammenhänge zwischen der Summe aus organischem (OC) und elementarem Kohlenstoff (EC) und polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) bei 14 Analysen von Staubproben aus dem verdünnten Abgas eines Scheitholzaminofens ohne automatische Luftregelung

Zwischen den organischen Kohlenstoffkomponenten (OC) und den Emissionen an polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) im Staub im verdünnten Abgas gibt es keinen eindeutigen Zusammenhang (Abb. 7-15). Sowohl bei niedrigen als auch hohen OC-Emissionen können niedrige und hohe PAK-Emissionen nachgewiesen werden. Dies stimmt gut mit der Theorie überein, dass die PAK-Bildung ein von der Freisetzung von OC-Emissionen unabhängiger Prozess ist. Unterstrichen wird dies durch hohe PAK-Emissionen bei nahezu keinen OC-Emissionen.

Für die Korrelation zu den EC-Emissionen stellt sich grundsätzlich ein ähnliches Bild dar. Erkennbar ist aber sowohl für hohe PAK-Emissionen als auch für niedrige PAK-Emissionen eine tendenzielle Zunahme derselbigen mit steigenden EC-Emissionen (Abb. 7-16). Diese Beobachtungen passen ebenfalls gut zur dargestellten Theorie. Elementarer Kohlenstoff entsteht sehr wahrscheinlich über die Bildung von PAK. So kann sich das Verhältnis von PAK-Emissionen zu EC-Emissionen unter bestimmten Bedingungen so verschieben, dass relativ weniger EC gebildet bzw. weniger der PAK abgebaut werden. Dann liegen verhältnismäßig mehr PAK im Staub des verdünnten Abgases im Vergleich zu den EC-Emissionen vor (Abb. 7-16 A). Andererseits kann auch nach einer intensiven EC-Bildung ein überproportionaler Abbau der PAK erfolgen, so dass verhältnismäßig weniger PAK im Vergleich zu EC im Staub im verdünnten Abgas vorliegen (Abb. 7-16 B). Insofern ist trotz der Tendenz, mit steigenden EC-Emissionen höhere PAK-Emissionen nachweisen zu können, keine eindeutige Korrelation ableitbar.

Für das Verhältnis zwischen der Summe aus OC und EC im Vergleich zu den PAK-Emissionen überdecken sich dann beide Effekte (Abb. 7-17), so dass noch weniger eine eindeutige Zuordnung zwischen beiden Parametern getroffen werden kann. Ohne weitere Parameter ist also keine Vorhersage der PAK-Emissionen anhand der OC-, EC- oder der Summe aus OC- und EC – Emissionen möglich.



Anfahrt

... mit dem Zug:

Ankunft Leipzig Hauptbahnhof; Straßenbahn Linie 3/3E (Richtung Taucha/Sommerfeld) bis Haltestelle „Bautzner Straße“; Straße überqueren, Parkplatz rechts liegen lassen und geradeaus durch das Eingangstor Nr. 116, nach ca. 150 m links.

... mit dem Auto:

Über die Autobahn A 14; Abfahrt Leipzig Nord-Ost, Taucha; Richtung Leipzig; Richtung Zentrum, Innenstadt; nach Jet Tankstelle links einfahren (siehe „... mit dem Zug“).

... mit der Straßenbahn

Linie 3/3E Richtung Taucha/Sommerfeld bis zur Haltestelle „Bautzner Straße“ (siehe „... mit dem Zug“).

Impressum

Herausgeber

DBFZ Deutsches BiomasseForschungszentrum gemeinnützige GmbH, Leipzig, mit Förderung des Bundesministeriums für Ernährung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages.

Kontakt

DBFZ Deutsches BiomasseForschungszentrum gemeinnützige GmbH
Torgauer Straße 116
D-04347 Leipzig
Tel.: +49 (0)341 2434-112
Fax: +49 (0)341 2434-133
info@dbfz.de
www.dbfz.de

Geschäftsführung

Prof. Dr.-Ing. Frank Scholwin
(wissenschaftlicher Geschäftsführer)
Daniel Mayer
(administrativer Geschäftsführer)

DBFZ Report Nr. 3

ISSN: 2190-7943

Bilder: Deutsches BiomasseForschungszentrum (DBFZ), Pixelio

Druck: Fischer Druck

DBFZ, Leipzig 2010

© Copyright: Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil dieser Broschüre darf ohne die schriftliche Genehmigung des Herausgebers vervielfältigt oder verbreitet werden. Unter dieses Verbot fällt insbesondere auch die gewerbliche Vervielfältigung per Kopie, die Aufnahme in elektronische Datenbanken und die Vervielfältigung auf CD-ROM.

