

# Holzfeuerungen: eine bedeutende Quelle von Feinstaub in der Schweiz

|                    |  |
|--------------------|--|
| Urs Baltensperger  | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)*                    |
| Emily Bruns        | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Josef Dommen       | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Imad El Haddad     | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Maarten F. Heringa | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| André S.H. Prévôt  | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Jay G. Slowik      | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Ernest Weingartner | Labor für Atmosphärenchemie, Paul Scherrer Institut (CH)                     |
| Christoph Hueglin  | Abteilung Luftfremdstoffe und Umwelttechnik, Empa (CH)                       |
| Hanna Herich       | Abteilung Luftfremdstoffe und Umwelttechnik, Empa (CH)                       |
| Alejandro Keller   | Institut für Aerosol- und Sensortechnik, Fachhochschule Nordwestschweiz (CH) |
| Heinz Burtscher    | Institut für Aerosol- und Sensortechnik, Fachhochschule Nordwestschweiz (CH) |
| Thomas Heck        | Labor für Energiesystemanalysen, Paul Scherrer Institut (CH)                 |
| Nickolas K. Meyer  | Labor für Energiesystemanalysen, Paul Scherrer Institut (CH)                 |

## Wood combustion: a substantial source of airborne particulate matter in Switzerland

Wood is a renewable energy source. Wood combustion for heating purposes therefore helps in reducing CO<sub>2</sub> emissions. However, it often results in high emissions of particulate matter (PM) which includes both black carbon (BC) and organic carbon (OC). PM has adverse health effects and should therefore be minimized. This paper reports on the latest methods to quantify the contribution of wood combustion to PM load and gives values for PM, BC, and OC from wood combustion at a number of different sites in Switzerland. State of the art methods to characterize emissions are presented and examples are given. It is shown that a major fraction of the emissions stems from small wood stoves, where the emissions are especially high during the starting phase. In addition, these small furnaces emit large amounts of gases which are rapidly oxidized and form secondary aerosols in the atmosphere. Improvements in the emissions of small wood stoves can be achieved by an increased deployment of pellet ovens, by the development and application of new technology for exhaust gas cleaning, as well as through other ways of wood usage.

**Keywords:** aerosol, air quality, biomass, particulate matter, wood combustion

**doi:** 10.3188/szf.2013.0420

\* CH-5232 Villigen PSI, E-Mail urs.baltensperger@psi.ch

**H**olz ist als eine wichtige Komponente der Biomasse eine erneuerbare Energiequelle und damit geeignet, die CO<sub>2</sub>-Emissionen zu reduzieren. Andererseits führt die Verbrennung von Biomasse in vielen Fällen zu hohen Emissionen von Feinstaub, insbesondere von schwarzem Kohlenstoff (black carbon, BC) und organischem Kohlenstoff (organic carbon, OC). Diese Partikel haben ungünstige Auswirkungen auf die Gesundheit: Gemäss zahlreichen Studien führen erhöhte Feinstaubkonzentrationen zu einer Zunahme der Mortalität (Laden et al 2000, Pope & Dockery 2006, WHO 2013 und Referenzen darin). Es geht deshalb darum, die Vorteile der energetischen Biomasseverwertung für das Klima

zu nutzen und dabei die negativen Auswirkungen auf die Gesundheit zu vermeiden.

Zur Quantifizierung der Auswirkung der Holzfeuerungen auf die Luftqualität und die menschliche Gesundheit sind verschiedene Untersuchungen notwendig. Einerseits muss an repräsentativen Standorten der Beitrag der Holzfeuerungen zu den Feinstaubkonzentrationen ermittelt werden. Andererseits müssen an Testständen Messungen durchgeführt werden, um die Feinstaubemissionen der verschiedenen Feuerungstypen zu bestimmen. Dies reicht für eine vollständige Beurteilung der Luftqualität allerdings noch nicht aus: Holzfeuerungen emittieren im Betrieb neben dem Feinstaub auch

## Was ist Feinstaub?

Feinstaub ist ein Gemisch von kleinsten Staubteilchen, die einen Durchmesser von weniger als 10 Mikrometer (0.01 mm) aufweisen und deshalb auch PM10 (englisch: Particulate Matter) genannt werden.

Feinstaub gelangt einerseits als primärer Feinstaub, z.B. durch die Verbrennung von fossilen Brennstoffen (Benzin, Öl und Kohle) und von Holz, in die Luft. Zum primären Feinstaub zählt auch der Anteil, welcher durch Abrieb und Aufwirbelung verursacht wird. Andererseits wird Feinstaub auch sekundär aus Verbrennungsabgasen und landwirtschaftlichen Prozessen (Schwefeloxide, Stickoxide, Ammoniak, flüchtige organische Verbindungen) in komplexen chemischen Reaktionen in der Atmosphäre gebildet. Feinstaub hat gesundheitliche Auswirkungen. Zahlreiche Studien belegen den Zusammenhang zwischen der Feinstaubkonzentration und Atemwegserkrankungen, Herz-Kreislauf-Krankheiten, Krebserkrankungen und Todesfällen.

**Kasten** Definition, Entstehung und Wirkung von Feinstaub.

grosse Mengen an Gasen. Diese Gase können einerseits direkt die Luftqualität beeinträchtigen, andererseits können sie durch Oxidationsprozesse in der Atmosphäre zu Verbindungen mit geringerer Flüchtigkeit umgewandelt werden. Dies führt dazu, dass Letztere aus der Gasphase in die Partikelphase transferiert werden, was eine zusätzliche Erhöhung der Feinstaubkonzentration zur Folge hat. In diesem Kontext wurde im Rahmen des Kompetenzzentrums für Umwelt und Nachhaltigkeit (CCES) des ETH-Bereichs<sup>1</sup> in den Jahren 2008 bis 2012 das Projekt IMBALANCE (Impact of biomass burning aerosol on air quality and climate) durchgeführt. Seit April 2012 läuft mit einer erweiterten Zielsetzung das Projekt OPTIWARES (Optimization of the use of wood as a renewable energy source) als gemeinsames Projekt des CCES und des Kompetenzzentrums für Energie und Mobilität (CCEM).<sup>2</sup> Im Folgenden werden diejenigen Aspekte dieser beiden Projekte, die den Zusammenhang zwischen den Emissionen von Holzfeuerungen und der Luftqualität betreffen, zusammengefasst und in den Kontext früherer Untersuchungen gestellt. Weitere Aspekte von IMBALANCE und OPTIWARES, wie zum Beispiel eine detaillierte thermodynamische Untersuchung des Aerosols aus Biomasseverbrennung oder die Modellierung der Auswirkungen dieses Aerosols auf das Klima, werden hier nicht behandelt.

## Methoden

Für die Bestimmung des Beitrags wichtiger Emissionsquellen zur gesamten Feinstaubbelastung an einem bestimmten Standort (Rezeptor) stehen verschiedene Methoden zur Verfügung. In diesem Abschnitt werden diejenigen Methoden erwähnt, welche in der Schweiz in verschiedenen wissenschaftlichen Studien zur Bestimmung des Beitrages von Holzfeuerungen zur Feinstaubbelastung der Aussenluft angewendet wurden. Ein etabliertes Verfahren zur Bestimmung der Beiträge wichtiger

Emissionsquellen an einem Rezeptor beruht auf detaillierten Messungen der chemischen Zusammensetzung von Feinstaub und der Analyse dieser Daten mittels statistischer Methoden wie der positiven Matrixfaktorisierung (PMF; Gianini et al 2012). Die PMF-Methode wurde einerseits auf chemisch umfassend charakterisierte Proben von PM10, welche während eines Jahres an fünf verschiedenen Orten in der Schweiz gesammelt wurden, angewendet (Gianini et al 2012, Hueglin et al 2012). Andererseits wurden mit einem Aerosolmassenspektrometer (AMS) kontinuierlich und mit hoher zeitlicher Auflösung die chemische Zusammensetzung des nicht refraktären Feinstaubes mit einem Durchmesser  $d < 1 \mu\text{m}$  an einer Reihe weiterer Standorte gemessen (Alfarra et al 2007) und mittels PMF aus diesen Daten die Beiträge von Holzfeuerungen zur Feinstaubkonzentration ermittelt. Die dabei verwendete Methode wurde in einer Zusammenarbeit der Eidgenössischen Materialprüfungs- und Forschungsanstalt (Empa) und des Paul Scherrer Institut (PSI) entwickelt (Lanz et al 2007, 2008) und hat sich innert kurzer Zeit weltweit etabliert (Jimenez et al 2009). Das PSI hat diese Methode bei Messungen in der Schweiz (Lanz et al 2010, Mohr et al 2011) wie auch im Ausland, beispielsweise in Barcelona (Mohr et al 2012) und in Paris (Crippa et al 2013), angewendet.

Eine weitere Möglichkeit zur Ermittlung des Beitrags von Holzfeuerungen zum kohlenstoffhaltigen Feinstaub (BC und OC) besteht in der Bestimmung des <sup>14</sup>C-Isotops in Feinstaubproben. Dabei wird ausgenutzt, dass in den Feinstaubpartikeln aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen das <sup>14</sup>C-Isotop vollständig abgebaut ist, während bei dem durch Verbrennung von Biomasse entstandenen Feinstaub der Anteil der <sup>14</sup>C-Isotope auf dem in der Atmosphäre üblichen Niveau liegt (Szidat et al 2006, 2007). Der Beitrag von Holzfeuerungen zum Anteil des schwarzen Kohlenstoffs kann auch mit der sogenannten Aethalometer-Methode bestimmt werden (Sandradewi et al 2008a, 2008b, Herich et al 2011). Hierbei wird ausgenutzt, dass BC aus Holzfeuerungen Licht im ultravioletten und sichtbaren Wellenlängenbereich stärker absorbiert als BC aus Motorabgasen. Daraus kann der Beitrag von Holzfeuerungen zum gesamten BC in der Aussenluft rechnerisch geschätzt werden.

Schliesslich kann der Beitrag von Holzfeuerungen an die Konzentrationen von Feinstaub auch mit Markersubstanzen abgeschätzt werden. Diese Methoden beruhen auf der Bestimmung der Konzentration von spezifischen Verbindungen wie den Anhydrozuckerverbindungen Levoglucosan und Mannosan in der Aussenluft, Verbindungen, die praktisch ausschliesslich durch Verbrennung von

<sup>1</sup> www.cces.ethz.ch (23.10.2013)

<sup>2</sup> www.ccem.ch (23.10.2013)

Biomasse in die Atmosphäre freigesetzt werden. Bei Kenntnis des typischen Anteils eines Markers in den Emissionen aus Holzfeuerungen kann anhand von dessen gemessenen Immissionskonzentrationen auf den Beitrag durch Holzfeuerungen geschlossen werden. Bei den nachfolgend diskutierten Resultaten wurde die Marker-Methode nicht angewendet. In einigen der Studien wurden jedoch Messungen von Levoglucosan und Mannosan zur Plausibilisierung der erzielten Ergebnisse verwendet (Herich et al 2011, Gianini et al 2012).

Bei den Emissionsmessungen wurden neben der chemischen Charakterisierung mit dem AMS (Heringa et al 2012) auch Partikelmassen- und Anzahlkonzentration sowie Grössenverteilungen gemessen. Zur Massenmessung wurde ein TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) eingesetzt. Die Grössenverteilung wurde mit einem SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) gemessen. Ein DiSC (Diffusion Size Classifier) diente zur Bestimmung von Anzahlkonzentration und mittlerem Durchmesser.

Zur Untersuchung der zusätzlichen Feinstaubbildung durch Reaktionen in der Atmosphäre (sekundäres organisches Aerosol, SOA) wurden die Gesamtemissionen in die PSI-Smogkammer (Paulsen et al 2005) eingeführt und mittels künstlichen Sonnenlichts eine atmosphärenchemische Alterung simuliert (Heringa et al 2011). Um das Potenzial zur

Bildung von sekundärem Aerosol bereits bei der Emissionsmessung abschätzen zu können, wurde zudem eine «Mikrosmogkammer» entwickelt, in der durch intensive UV-Bestrahlung die SOA-Bildung in Sekunden stattfindet (Keller & Burtscher 2012).

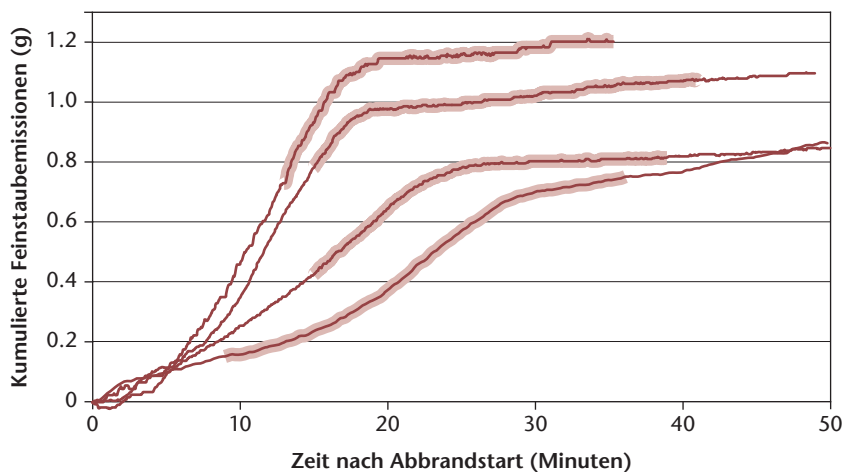
## Resultate

### Beitrag der Holzfeuerungen zu den Feinstaubkonzentrationen in der Schweiz

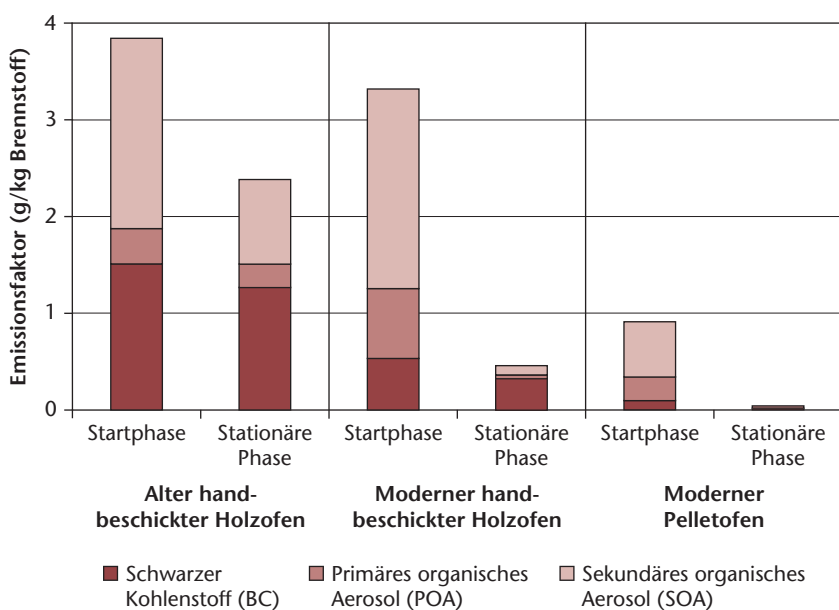
Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung der Ergebnisse von verfügbaren neueren Studien zur Bestimmung des Beitrags von Holzfeuerungen zur Feinstaubmassenkonzentration (particulate matter from wood burning,  $PM_{wb}$ ) sowie zum organischen ( $OC_{wb}$ ) und zum schwarzen Kohlenstoff ( $BC_{wb}$ ) während der kalten Jahreszeit an verschiedenen Standorten in der Schweiz. In den aufgeführten Studien wurden verschiedene Feinstaubfraktionen ( $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$ ,  $PM_1$ ) untersucht. Aus Tabelle 1 geht hervor, dass Holzfeuerungen während der kalten Jahreszeit eine bedeutende und lokal möglicherweise auch dominierende Quelle von Feinstaub darstellen. Die absoluten Beiträge von  $PM_{wb}$  reichen von ca. 5.3–6.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  an den Messstationen auf der Alpennordseite bis zu 17.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in Magadino-Cadenazzo und 22.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in Roveredo, beides Messstandorte in Tälern der Alpensüdseite.

| Station   | Stationstyp      | PM  | Methode         | Zeitraum              | $PM_{wb}$<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ | $OC_{wb}$<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ | $BC_{wb}$<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ | $\frac{PM_{wb}}{PM_{tot}}$<br>% | $\frac{OC_{wb}}{OC_{tot}}$<br>% | $\frac{BC_{wb}}{BC_{tot}}$<br>% | Referenz |
|-----------|------------------|-----|-----------------|-----------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|----------|
| Basel     | Vorstadt         | 10  | PMF             | Winter 2008/2009      | 5.3                                   | 1.7                                   | 0.4                                   | 20                              | 33                              | 30                              | a        |
| Bern      | Stadt, Verkehr   | 10  | PMF             | Winter 2008/2009      | 6.9                                   | 2.6                                   | 0.5                                   | 16                              | 37                              | 14                              | a        |
| Magadino  | Land             | 10  | PMF             | Winter 2008/2009      | 17.3                                  | 7.6                                   | 1.6                                   | 54                              | 75                              | 56                              | a        |
| Moleno    | Land, Autobahn   | 10  | $^{14}\text{C}$ | Feb. 2005             |                                       | 12.9                                  | 1.9                                   |                                 | 79                              | 24                              | b        |
| Payerne   | Land             | 10  | PMF             | Winter 2008/2009      | 6.0                                   | 2.0                                   | 0.4                                   | 38                              | 42                              | 43                              | a        |
| Roveredo  | Land             | 10  | $^{14}\text{C}$ | Jan./März 2005        |                                       | 9.8                                   | 1.6                                   |                                 | 91                              | 55                              | b        |
| Zürich    | Stadt            | 10  | PMF             | Winter 2008/2009      | 5.5                                   | 2.0                                   | 0.4                                   | 20                              | 42                              | 29                              | a        |
| Zürich    | Stadt            | 10  | $^{14}\text{C}$ | Feb. 2003             |                                       | 6.9                                   | 1.5                                   |                                 | 41                              | 34                              | c        |
| Magadino  | Land             | 2.5 | AE              | Winter 2008/2009/2010 |                                       |                                       | 0.7                                   |                                 |                                 | 30                              | d        |
| Payerne   | Land             | 2.5 | AE              | Winter 2008/2009/2010 |                                       |                                       | 0.3                                   |                                 |                                 | 33                              | d        |
| Zürich    | Stadt            | 2.5 | AE              | Winter 2008/2009/2010 |                                       |                                       | 0.4                                   |                                 |                                 | 24                              | d        |
| Massongex | Land/Industrie   | 1   | AMS-PMF         | Nov.–Dez. 2006        |                                       |                                       |                                       |                                 | 49                              |                                 | e, f     |
| Payerne   | Land             | 1   | AMS-PMF         | Jan. 2007             |                                       |                                       |                                       |                                 | 17                              |                                 | e        |
| Reiden    | Land, Autobahn   | 1   | AMS-PMF         | Feb. 2006             |                                       |                                       |                                       |                                 | 33                              |                                 | e, g     |
| Rheintal  | Mobile Messungen | 1   | AMS-PMF         | Feb. 2007/2008        |                                       |                                       |                                       |                                 | 26                              |                                 | e        |
| Roveredo  | Land             | 1   | AE              | Winter 2005           | 22.9                                  |                                       |                                       | 88                              |                                 | 51                              | h        |
| Roveredo  | Land             | 1   | AMS-PMF         | Winter 2005           |                                       |                                       |                                       |                                 | 31–46                           |                                 | e        |
| Zürich    | Stadt            | 1   | AMS-PMF         | Jan. 2006             |                                       |                                       |                                       |                                 | 38                              |                                 | e        |

**Tab 1** Beitrag von Holzfeuerungen zur Feinstaubbelastung in der Schweiz. Aufgeführt sind Resultate für die Feinstaubfraktionen  $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$  und  $PM_1$ . Die Ergebnisse beziehen sich auf die gesamte aus Holzfeuerungen stammende Feinstaubmasse ( $PM_{wb}$ ) sowie auf den organischen ( $OC_{wb}$ ) und den schwarzen Kohlenstoff ( $BC_{wb}$ ) im Feinstaub aus Holzfeuerungen. Die angegebenen prozentualen Beiträge durch Holzfeuerungen beziehen sich auf die gesamten Konzentrationen von PM, OC und BC in der Aussenluft. Methoden: PMF: Positive Matrixfaktorisierung,  $^{14}\text{C}$ : Bestimmung des  $^{14}\text{C}$ -Isotops, AE: Aethalometer-Methode, AMS: Aerosolmassenspektrometer. Referenz: a) Gianini et al (2012); b) Szidat et al (2007), aufdatiert gemäss Zhang et al (2012); c) Szidat et al (2006), aufdatiert gemäss Zhang et al (2012); d) Herich et al (2011); e) Lanz et al (2010); f) Perron et al (2010); g) Weimer et al (2008); h) Sandradewi et al (2008a).



**Abb 1** Zeitlich kumulierte Feinstaubemissionen für vier Abbrände aus einem modernen, handbeschickten Holzofen. Die kumulierten Feinstaubemissionen wurden aus kontinuierlichen Messungen des Abgasvolumens und der Feinstaubkonzentration gewonnen. Die Feinstaubmessung wurde nach einem zweistufigen Ejector-Verdünner (erste Stufe auf 150 °C beheizt, Gesamtverdünnung 1:300) mittels eines Tapered-Element-Oscillating-Microbalance (TEOM)-Instruments gemessen. Bei  $t=0$  wurde die Holzladung auf das Glutbett gelegt. Der rosa hinterlegte Bereich zeigt das für die Normmessung relevante Zeitintervall für die gravimetrische Filtermessung.



**Abb 2** Emissionsfaktoren (g/kg Brennstoff) von schwarzem Kohlenstoff, primärem organischem Aerosol und sekundärem organischem Aerosol (nach 5 Stunden Alterung) für verschiedene Feuerungen. Aus Heringa et al (2011).

Die Holzfeuerungen tragen an den untersuchten Standorten mit 17 bis 91% zum gesamten organischen Kohlenstoff im Feinstaub bei. Dabei ist der Anteil von Holzfeuerungen am gesamten OC an den Standorten nördlich der Alpen deutlich geringer als auf der Alpensüdseite. Gleiches gilt für den Beitrag aus Holzfeuerungen am schwarzen Kohlenstoff: Die höchsten mittleren Konzentrationen von  $BC_{wb}$  (Konzentrationen  $>1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) wurden an Standorten in der Südschweiz (Magadino, Moleno und Roveredo) gefunden. An allen anderen Standorten, mit Ausnahme des Standortes Zürich in der Untersuchung von Szidat et al (2006), ist der mittlere Beitrag von Holzfeuerungen an BC kleiner als  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

In der Untersuchung von Gianini et al (2012) wurde gezeigt, dass der Feinstaub aus Holzfeuerungen beim Standort Magadino auf der Alpensüdseite einen höheren Anteil des spezifischen Markers Levoglucosan aufweist als an den berücksichtigten Standorten auf der Alpennordseite. Dies bedeutet, dass die Holzfeuerungen im Einflussbereich des Standortes Magadino pro Mengeneinheit Feinstaub mehr Levoglucosan freisetzen als an den anderen Standorten. Einerseits zeigt dies, dass die Messstation Magadino stärker durch unvollständige Verbrennung von Biomasse beeinflusst ist als die Stationen nördlich der Alpen. Andererseits deutet dies auch auf das vorhandene Potenzial hin, Feinstaubemissionen durch verbesserte Verbrennung des Holzes weiter zu reduzieren.

### Emissionsmessungen

Abbildung 1 zeigt ein Beispiel für Feinstaubemissionen aus einer Kleinf Feuerung. Die grössten Emissionen erfolgen häufig in den ersten Minuten. Diese werden aus technischen Gründen in den Normmessungen nur partiell erfasst, wodurch die Emissionen aus Holzfeuerungen unterschätzt werden.

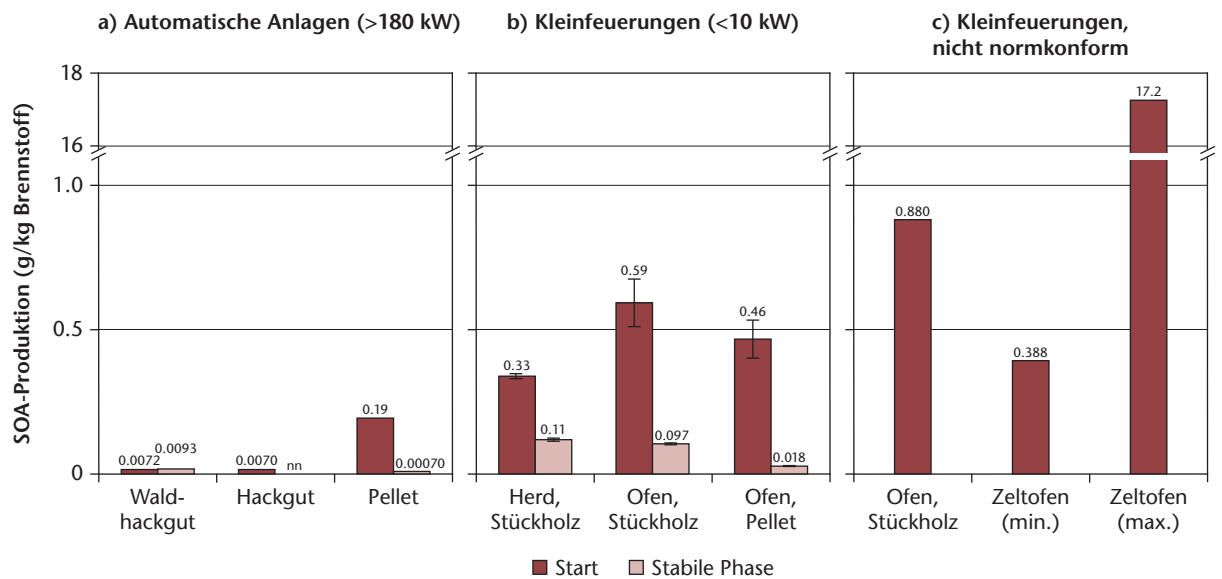
Für automatische Holzfeuerungen existieren bereits sehr effiziente Partikelabscheider (Elektroabscheider und mechanische Filter), für Kleinf Feuerungen gibt es einige kommerziell verfügbare Geräte (Elektroabscheider) und eine Reihe von Entwicklungsprojekten. Die heute verfügbaren Geräte erreichen eine Abscheideeffizienz von 50 bis 90%. Beispiele für Messungen mit Partikelabscheidern finden sich beispielsweise auf der Website des Bundesamts für Umwelt.<sup>3</sup>

### Bildung von sekundärem organischem Aerosol aus gasförmigen Emissionen

Abbildung 2 zeigt die Emissionsfaktoren von schwarzem Kohlenstoff (BC), primärem organischem Aerosol (POA) und sekundärem organischem Aerosol (SOA) für verschiedene Feuerungssysteme aus Experimenten in der PSI-Smogkammer (Heringa et al 2011). Es ist ersichtlich, dass ein moderner Ofen zwar deutlich weniger BC emittiert, dass aber in der Startphase grosse Mengen an Gasen emittiert werden, die in der Atmosphäre rasch zu sekundärem Feinstaub (SOA) umgewandelt werden. Pelletfeuerungen emittieren im stabilen Betrieb hauptsächlich anorganische Salze, die mit dem AMS nicht gemessen werden. Allerdings werden jeweils in der Startphase grössere Mengen an Feinstaub und insbesondere auch an Gasen emittiert, sodass diese Startphasen in der Gesamtbeurteilung eine wichtige Rolle spielen können. Bei der Kapazitätsauslegung von Pelletkesseln ist deshalb auf eine Optimierung der Startzyklen zu achten.

<sup>3</sup> www.bafu.admin.ch/luft/11025/11028/11473 (23.10.2013)





**Abb 3** Potenzial zur Produktion von sekundärem organischem Aerosol (SOA) für a) moderne automatische Kesselanlagen und b) moderne Kleinf Feuerungen, gemessen mit der Mikrosmogkammer (Keller & Burtcher 2012); sowie c) alte, nicht normkonforme Kleinf Feuerungen, gemessen mittels traditioneller Smogkammerexperimente (Heringa et al 2011, Grieshop et al 2009). Der Begriff «Zeltofen» beschreibt einen tragbaren, zelttauglichen Holzofen (Cabela's Shepherd Packer Stove). Bei diesem Ofentyp wurden die Werte für die Startphase nicht publiziert. Das Potenzial zur SOA-Produktion für die Startphase der in c) aufgeführten Holzöfen beträgt  $2 \pm 1$  g/kg Brennstoff (Abbildung 2). nn: nicht nachweisbar.

Die Untersuchungen mit der Mikrosmogkammer ergeben bezüglich der SOA-Emissionen das exakt gleiche Bild. Abbildung 3 zeigt das Potenzial zur SOA-Produktion für verschiedene Anlagen, wobei der Vergleich die sehr grossen Unterschiede in der Verbrennungsqualität der verschiedenen Technologien deutlich macht. Bei gut ausgelegten automatischen Feuerungen ist der SOA-Anteil an den gesamten PM-Emissionen gering, während bei Kleinf Feuerungen der SOA-Beitrag allein bereits im Bereich der Grenzwerte gemäss schweizerischer Luftreinhalte-Verordnung vom 16. Dezember 1985 (Anh. 4 Ziff. 212; LRV, SR 814.318.142.1) beziehungsweise der Stufe 2 der deutschen Verordnung über kleine und mittlere Feuerungsanlagen vom 26. Januar 2010 (1. BImSchV Stufe 2; BGBl. I S. 38) liegt.<sup>4</sup> Bei älteren oder schlecht betriebenen Anlagen bestehen die Hauptemissionen aus SOA.

Über die Mechanismen der Wirkung von Feinstaubkomponenten auf die menschliche Gesundheit ist trotz zahlreichen Untersuchungen nach wie vor wenig bekannt. Eine weithin akzeptierte Hypothese ist, dass Feinstaub in der Lunge oder anderswo im Körper oxidativen Stress auslösen kann durch reaktive Sauerstoffspezies (reactive oxygen species, ROS). Diese können im Aerosol vorhanden sein und so direkt abgeschieden werden, oder gewisse redox-aktive Bestandteile des Feinstaubes führen zur endogenen Produktion von ROS nach der Abscheidung in der Lunge. Messungen des ROS-Potenzials von Aerosolen könnten deshalb ein Mittel darstellen, um Hinweise auf deren Oxidationspotenzial und damit auf eine mögliche gesundheitsschädigende Wirkung von Feinstaub zu erhalten. Es bestehen verschiedene

Möglichkeiten zur Bestimmung von ROS. Allerdings kann noch nicht gesagt werden, welche Methode den Zusammenhang zwischen Dosis und Wirkung am besten beschreibt. Die von Miljevic et al (2010) benutzte Methode zeigte, dass die in der Startphase eines kalten Ofens emittierten Aerosole besonders hohe ROS-Konzentrationen erzeugten und dass die ROS-Konzentration stark mit der Konzentration an partikelförmigem organischem Kohlenstoff (OC) korrelierte. Es sind jedoch weiter gehende Studien zur Abklärung dieser Wirkungsmechanismen notwendig.

Unabhängig vom detaillierten Wirkungsmechanismus zeigen epidemiologische Studien einen klaren Zusammenhang zwischen Feinstaubbelastung und Gesundheitsbeeinträchtigungen (Abbey et al 1995, Brunekreef & Holgate 2002, Dockery et al 1993, Bickel et al 2005, Götschi et al 2008, Laden et al 2000, Ostro 1987, Pope & Dockery 2006, Pope et al 2009, Schindler et al 2009, Xu 1998, WHO 2013). Die Auswirkungen äussern sich in der Zunahme einer Reihe von Krankheiten wie etwa Bronchitis oder Asthmasymptomen bis hin zu einer erhöhten vorzeitigen Sterblichkeit beziehungsweise einer Verkürzung der Lebenserwartung. Um die Gesamtwirkungen abschätzen und verschiedene Systeme vergleichen zu können, werden in IMBALANCE/OP-TIWARES auch externe Kosten berechnet. Den Berechnungen liegt die sogenannte ExternE-Methodo-

<sup>4</sup> Die Emissionsgrenzwerte für Kleinf Feuerungen variieren zwischen 20 und 75 mg/m<sup>3</sup> bei 13% O<sub>2</sub> je nach Norm und Anlageart; diese Werte entsprechen rund 0.23 bis 0.85 g Staub/kg Brennstoff.

logie zugrunde (Bickel et al 2005, Heck & Hirschberg 2011). Neben den Emissionen aus dem Kamin werden auch Emissionen verschiedener Schadstoffe aus der Lebenszykluskette (z.B. Transport) und andere Umweltbelastungen (z.B. Landnutzung) berücksichtigt. Die Lebenszyklusdaten wurden der Datenbank Ecoinvent (Ecoinvent 2010) entnommen. Zur Berücksichtigung von Langzeiteffekten wurden durchschnittliche jährliche Emissionsfaktoren ermittelt (Meyer 2011, Bauer 2007). Abbildung 4 zeigt die externen Kosten pro MJ Nutzwärme einiger mit Holz respektive fossil befeuerter, kleinerer Heizungen. Bei den fossilen Systemen werden die externen Kosten durch Treibhausgase (THG), hauptsächlich Kohlendioxid, dominiert (beim Kohleofen entstehen zusätzlich grössere Mengen Feinstaub). Bei den Holzheizungen dagegen schlagen hauptsächlich die regionalen Gesundheitsschäden durch Feinstaub zu Buche. Während Holzheizungen mit niedrigen Feinstaubemissionen (z.B. Pellets) gut abschneiden, können die externen Kosten bei schlechter Holzverbrennung höher sein als bei modernen Öl- oder Erdgasheizungen. In solchen Fällen wird der Vorteil der Holzheizung bei der CO<sub>2</sub>-Bilanz durch Gesundheitsschäden kompensiert (im Detail ist dies abhängig vom Standort, hier wurden durchschnittliche Werte für die Schweiz angenommen). Die Tatsache, dass auch bei den Holzheizungen noch geringe Treibhauseffekte auftreten, erklärt sich hauptsächlich durch Methanemissionen und Lebenszyklusbeiträge, Holz selbst wird hier als CO<sub>2</sub>-neutral angenommen. Unter den «sonstigen Auswirkungen» in Abbildung 4 sind alle quantifizierten Effekte ausser Gesundheitsschäden und Klimaänderung zusammengefasst, insbesondere externe Kosten der Landnutzung sowie Auswirkungen auf Ökosysteme, Landwirtschaft und Material (z.B. Gebäudeschäden).

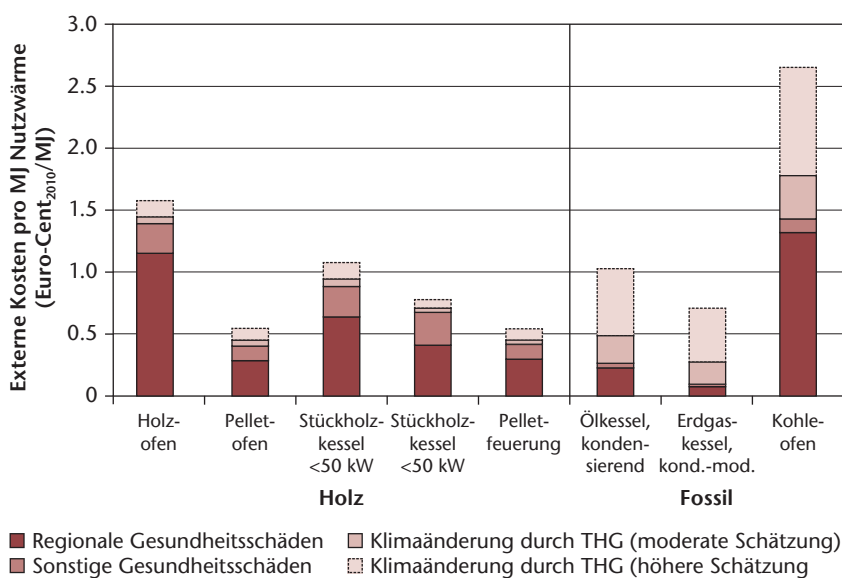


Abb 4 Vergleich der externen Kosten pro MJ Nutzwärme für verschiedene kleinere, mit Holz respektive fossil betriebene Heizungen (Heck & Meyer 2012). THG: Treibhausgase, kond.-mod.: kondensierend-modulierend.

## Diskussion, Folgerungen

Aus diesen Resultaten geht klar hervor, dass in der Schweiz die Emissionen aus Holzfeuerungen während der kalten Jahreszeit einen grossen Einfluss auf die Luftqualität haben. Holzfeuerungen sind im Winter sowohl in den ländlichen Gebieten als auch in den Städten eine bedeutende Quelle von Feinstaub. Insbesondere in Dörfern in alpinen Regionen können die Emissionen von Holzfeuerungen zu einer hohen lokalen Feinstaubbelastung führen, wobei die höchsten Konzentrationen auf der Alpensüdseite gefunden wurden. Dies liegt einerseits daran, dass Holz in diesen Regionen vielfach in kleinen Stückholzöfen verbrannt wird, welche nur schwer emissionsarm betrieben werden können. Andererseits herrschen in Alpentälern im Winter häufig Wetterbedingungen, welche eine Anreicherung der lokal emittierten Schadstoffe in den bodennahen Schichten begünstigen und dadurch zu hohen Feinstaubbelastungen führen.

Abschätzungen externer Kosten ergeben, dass bei schlechter Verbrennung die Vorteile der Holzenergie gegenüber modernen Erdgas- und Ölheizungen zunichtegemacht werden können. Den Nettoeinsparungen an CO<sub>2</sub>-Emissionen stehen die erhöhten Gesundheitsschäden durch Feinstaub gegenüber. Es sollte daher auf eine möglichst saubere Holzverbrennung geachtet werden, um die Gesundheitsbelastungen und die externen Kosten möglichst gering zu halten.

Es ist unbestritten, dass in der Schweiz weitere Massnahmen zur Reduktion der Feinstaubemissionen aus Holzfeuerungen notwendig sind. Die Erarbeitung von Massnahmen gestaltet sich allerdings nicht einfach. Holz ist ein lokal verfügbarer und erneuerbarer Energieträger, die Nutzung von Holz zum Heizen und Kochen weist in der Schweiz eine lange Tradition auf und ist aus Gründen des Klimaschutzes sinnvoll. Diesen Zielkonflikt zwischen Lufthygiene und Klimaschutz gilt es zu lösen. Es sind deshalb bei der Holzverbrennung weitere Massnahmen zur Emissionsminderung zu ergreifen. Die automatischen Anlagen sind schon heute optimiert, grössere Anlagen verfügen zudem über Partikelabscheider oder können damit nachgerüstet werden. Der Grossteil der Emissionen stammt aus kleinen Feuerungen. Hier ergibt sich ein grosses Optimierungspotenzial durch den vermehrten Einsatz von Pelletfeuerungen, die ebenfalls bereits heute sehr sauber sind. Dem Problem der erhöhten Emissionen in der Startphase sollte allerdings die notwendige Aufmerksamkeit geschenkt werden. Weiter sollten Entwicklung und Einsatz von Verfahren zur Abgasnachbehandlung (Partikelabscheider, Katalysatoren zur Reduktion gasförmiger Emissionen) vorangetrieben werden; dies ist eines der Ziele des eingangs erwähnten OPTIWARES-Projekts. Damit könnten in Zu-

kunft moderne optimierte Stückholzheizungen mit entsprechenden Abgasnachbehandlungen ebenfalls eine ökologische Nutzung der Ressource Holz darstellen. Um diese Entwicklungen zu forcieren, sollten auch die heutigen Methoden zur Typenprüfung und eventuell auch zur Feldüberwachung den neuen Erkenntnissen angepasst werden. Insbesondere sollten die sekundären organischen Aerosole in geeigneter Weise einbezogen werden, da diese in gleicher Grössenordnung wie die direkten Emissionen zur Feinstaubbelastung beitragen. Daneben sind aber auch andere Formen der Biomassenutzung, wie sie zum Beispiel im geplanten Kompetenzzentrum Biomasse im Rahmen der Schweizer Kompetenzzentren für Energieforschung (SCCER) angestrebt werden (z.B. Produktion von Elektrizität, Biomethan, flüssige Biobrennstoffe), vielversprechend, da diese in vielen Fällen deutlich niedrigere Emissionen als die direkte Verbrennung mit sich bringen. ■

*Eingereicht: 12. Juli 2013, akzeptiert (mit Review): 23. Oktober 2013*

## Dank

Diese Arbeiten wurden durch das Projekt IMBALANCE des Kompetenzzentrums für Umwelt und Nachhaltigkeit (CCES), das Projekt OPTIWARES, ein gemeinsames Projekt der Kompetenzzentren für Umwelt und Nachhaltigkeit (CCES) und Energie und Mobilität (CEEM), den Schweizerischen Nationalfonds, das Bundesamt für Energie, das Bundesamt für Umwelt sowie durch das EU-Projekt COFUND unterstützt.

## Literatur

- ABBEY DE ET AL (1995)** Long-term ambient concentrations of particulates and oxidants and development of chronic disease in a cohort of nonsmoking California residents. *Inhal Toxicol* 7: 19–34.
- ALFARRA MR ET AL (2007)** Identification of the mass spectral signature of organic aerosols from wood burning emissions. *Environ Sci Technol* 41: 5770–5777.
- BAUER C (2007)** Holzenergie. Villigen: Paul Scherrer Institut, Ecoinvent 6-IX. 140 p.
- BICKEL P ET AL, EDITORS (2005)** ExternE – Externalities of energy – methodology 2005 update. Brussels: European Commission. 287 p.
- BRUNEKREEF B, HOLGATE ST (2002)** Air pollution and health. *Lancet* 360: 1233–1242.
- CRIPPA M ET AL (2013)** Wintertime aerosol chemical composition and source apportionment of the organic fraction in the metropolitan area of Paris. *Atmos Chem Phys* 13: 961–981.
- DOCKERY DW ET AL (1993)** An association between air pollution and mortality in six US cities. *New Engl J Med* 329: 1753–1759.
- ECOINVENT (2010)** Ecoinvent, database version 2.2. Dübendorf: Empa, Swiss Center Life Cycle Inventories.
- GIANINI MFD ET AL (2012)** Sources of PM10 in Switzerland: An analysis for 2008/2009 and changes since 1998/1999. *Atmos Environ* 54: 149–158.

- GÖTSCHI T, HEINRICH J, SUNYER J, KÜNZLI N (2008)** Long-term effects of ambient air pollution on lung function – a review. *Epidemiology* 19: 690–701.
- GRIESHOP A, LOGUE J, DONAHUE N, ROBINSON A (2009)** Laboratory investigation of photochemical oxidation of organic aerosol from wood fires. 1: measurement and simulation of organic aerosol evolution. *Atmos Chem Phys* 9: 1263–1277.
- HECK T, HIRSCHBERG S (2011)** China: Economic impacts of air pollution in the country. In: Nriagu JO, editor. *Encyclopedia of Environmental Health*. Burlington: Elsevier. pp. 625–640.
- HECK T, MEYER NK (2012)** External costs of wood combustion systems in Switzerland. doi: 10.5071/20thEUBCE2012-5AV.1.25
- HERICH H, HUEGLIN C, BUCHMANN B (2011)** A 2.5 years' source apportionment study of black carbon from wood burning and fossil fuel combustion at urban and rural sites in Switzerland. *Atmos Meas Tech* 4: 1409–1420.
- HERINGA MF ET AL (2011)** Investigation of primary and secondary particulate matter of different wood combustion appliances with a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer. *Atmos Chem Phys* 11: 5945–5957.
- HERINGA MF ET AL (2012)** Time-resolved characterization of primary emissions from residential wood combustion appliances. *Environ Sci Technol* 46: 11418–11425.
- HUEGLIN C, GIANINI M, GEHRIG R (2012)** Chemische Zusammensetzung und Quellen von Feinstaub. Untersuchungen an ausgewählten NABEL-Standorten. Dübendorf: Empa, Projektbericht. 93 p.
- JIMENEZ JL ET AL (2009)** Evolution of organic aerosols in the atmosphere. *Science* 326: 1525–1529.
- KELLER A, BURTSCHER H (2012)** A continuous photo-oxidation flow reactor for a defined measurement of the SOA formation potential of wood burning emissions. *J Aerosol Sci* 49: 9–20.
- LADEN F, NEAS LM, DOCKERY DW, SCHWARTZ J (2000)** Association of fine particulate matter from different sources with daily mortality in six U.S. cities. *Environ Health Perspect* 108: 941–947.
- LANZ VA ET AL (2007)** Source apportionment of submicron organic aerosols at an urban site by factor analytical modelling of aerosol mass spectra. *Atmos Chem Phys* 7: 1503–1522.
- LANZ VA ET AL (2008)** Source attribution of submicron organic aerosols during wintertime inversions by advanced factor analysis of aerosol mass spectra. *Environ Sci Technol* 42: 214–220.
- LANZ VA ET AL (2010)** Characterization of aerosols chemical composition by aerosol mass spectrometry in central Europe: an overview. *Atmos Chem Phys* 10: 10453–10471.
- MEYER NK (2011)** Particulate, black carbon and organic emissions from small-scale residential wood combustion appliances in Switzerland. *Biomass Bioenerg* 36: 31–42.
- MILJEVIC B ET AL (2010)** Oxidative potential of logwood and pellet burning particles assessed by a novel profluorescent nitroxide probe. *Environ Sci Technol* 44: 6601–6607.
- MOHR C ET AL (2012)** Identification and quantification of organic aerosol from cooking and other sources in Barcelona using aerosol mass spectrometer data. *Atmos Chem Phys* 12: 1649–1665.
- MOHR C, RICHTER R, DECARLO PF, PRÉVÔT ASH, BALTENSPERGER U (2011)** Spatial variation of chemical composition and sources of submicron aerosol in Zurich during wintertime using mobile aerosol mass spectrometer data. *Atmos Chem Phys* 11: 7465–7482.
- OSTRO BD (1987)** Air pollution and morbidity revisited: A specification test. *J Environ Econ Manage* 14: 87–98.
- PAULSEN D ET AL (2005)** Secondary organic aerosol formation by irradiation of 1,3,5 trimethylbenzene-NO<sub>x</sub>-H<sub>2</sub>O in a new reaction chamber for atmospheric chemistry and physics. *Environ Sci Technol* 39: 2668–2678.

- PERRON N ET AL (2010)** Composition and sources of particulate matter in an industrialised Alpine valley. *Atmos Chem Phys Discuss* 10: 9391–9430.
- POPE III CA, DOCKERY DW (2006)** Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect. *J Air Waste Manage Assoc* 56: 709–742.
- POPE III CA, EZZATI M, DOCKERY DW (2009)** Fine-particulate air pollution and life expectancy in the United States. *New Engl J Med* 360: 376–386.
- SANDRADEWI J ET AL (2008A)** Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter. *Environ Sci Technol* 42: 3316–3323.
- SANDRADEWI J ET AL (2008B)** A study of wood burning and traffic aerosols in an alpine valley using a multi-wavelength aethalometer. *Atmos Environ* 42: 101–112.
- SCHINDLER C ET AL (2009)** Improvements in PM10 exposure and reduced rates of respiratory symptoms in a cohort of Swiss adults (SAPALDIA). *Am J Respir Crit Care Med* 179: 579–587.
- SZIDAT S ET AL (2006)** Contributions of fossil fuel, biomass-burning, and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by <sup>14</sup>C. *J Geophys Res* 111: D07206. doi: 10.1029/2005JD006590
- SZIDAT S ET AL (2007)** Dominant impact of residential wood burning on particulate matter in alpine valleys during winter. *Geophys Res Lett* 34: L05820. doi: 10.1029/2006GL028325
- WEIMER S ET AL (2008)** Organic aerosol mass spectral signatures from wood-burning emissions: Influence of burning conditions and wood type. *J Geophys Res* 113: D10304. doi: 10.1029/2007JD009309
- WHO (2013)** Review of evidence on health aspects of air pollution – REVIHAAP. Copenhagen: World Health Organization, Regional Office for Europe. 302 p.
- XU X (1998)** Air pollution and its health effects in urban China. In: McElroy MB, Nielson CP, Lydon P, editors. *Energizing China*. Cambridge: Harvard Univ Press. pp. 267–285.
- ZHANG Y ET AL (2012)** On the isolation of OC and EC and the optimal strategy of radiocarbon-based source apportionment of carbonaceous aerosols. *Atmos Chem Phys* 12: 10841–10856.

## Holzfeuerungen: eine bedeutende Quelle von Feinstaub in der Schweiz

Holz ist eine erneuerbare Energiequelle und hilft deshalb, die CO<sub>2</sub>-Emissionen zu reduzieren. Holzfeuerungen führen jedoch oft zu hohen Emissionen an Feinstaub (particulate matter, PM), der sowohl schwarzen wie auch organischen Kohlenstoff (BC und OC) enthält. Dieser Feinstaub ist gesundheitsschädlich und soll deshalb minimiert werden. Die Publikation beschreibt die neuesten Methoden zur Quantifizierung des Beitrags von Holzfeuerungen zur Feinstaubkonzentration und präsentiert die entsprechenden Werte für verschiedene Standorte in der Schweiz. Zudem werden die dem neuesten Stand der Forschung entsprechenden Methoden zur Charakterisierung der Emissionen aus Holzfeuerungen dargestellt und entsprechende Beispiele gegeben. Es zeigt sich, dass der Grossteil der Emissionen aus kleinen Feuerungen stammt, bei welchen die Emissionen in der Startphase zusätzlich erhöht sind und die eine grosse Menge an Gasen ausstossen, die in der Atmosphäre rasch zu sekundärem Feinstaub umgewandelt werden. Verbesserungen bei den Kleinfeuerungen lassen sich erzielen durch den vermehrten Einsatz von Pelletheizungen sowie durch die Entwicklung und den Einsatz von Verfahren zur Abgasnachbehandlung oder durch andere Formen der Holzverwendung.

## Chauffage au bois: une importante source d'émission de poussières fines en Suisse

Le bois est une source d'énergie renouvelable qui permet de réduire les émissions de CO<sub>2</sub>. Les chauffages au bois émettent toutefois d'importantes quantités de poussières fines (particulate matter, PM) contenant à la fois du carbone suie (BC) et du carbone organique (OC). Cette poussière fine doit être minimisée, car elle est nocive pour la santé. Cet article décrit les méthodes les plus récentes pour quantifier la part de poussières fines issue des chauffages à bois et présente les valeurs PM, BC et OC issues de la combustion de bois pour différentes localités en Suisse. De plus, les méthodes les plus avancées pour caractériser les émissions de chauffage au bois sont présentées et des exemples donnés. Il peut être démontré qu'une grande partie des émissions provient de petites installations qui ont des pics d'émission dans la phase de démarrage. De plus, ils produisent des gaz qui rapidement s'oxydent et forment des aérosols secondaires dans l'atmosphère. Une amélioration des émissions de ces petites installations pourrait être atteinte par une plus large diffusion des chauffages à pellets, tout comme par le développement et l'utilisation de système d'épuration de gaz d'échappement, ou par d'autres formes d'utilisation du bois.