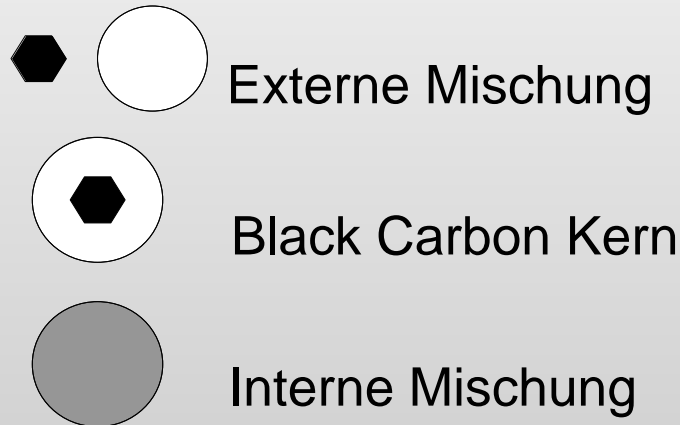
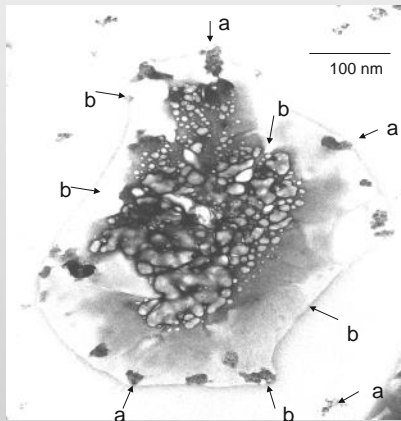


Quellenidentifizierung von Holzrauch

T.A.J. Kuhlbusch, M. Küpper



*Institut für Energie
und Umwelttechnik
“Luftreinhaltung &
Nachhaltige
Nanotechnologie“*






Gesundheitsrelevante Luftverunreinigungen durch Holzrauch, Wien, 24. Februar 2015







CeNiDE
CENTER FOR NANOINTEGRATION
DUISBURG-ESSEN

UNIVERSITÄT
DUISBURG
ESSEN




Natürlicher Hintergr.

-  Seesalz
-  nat. Mineral
-  Bio- + biogenes Aerosol

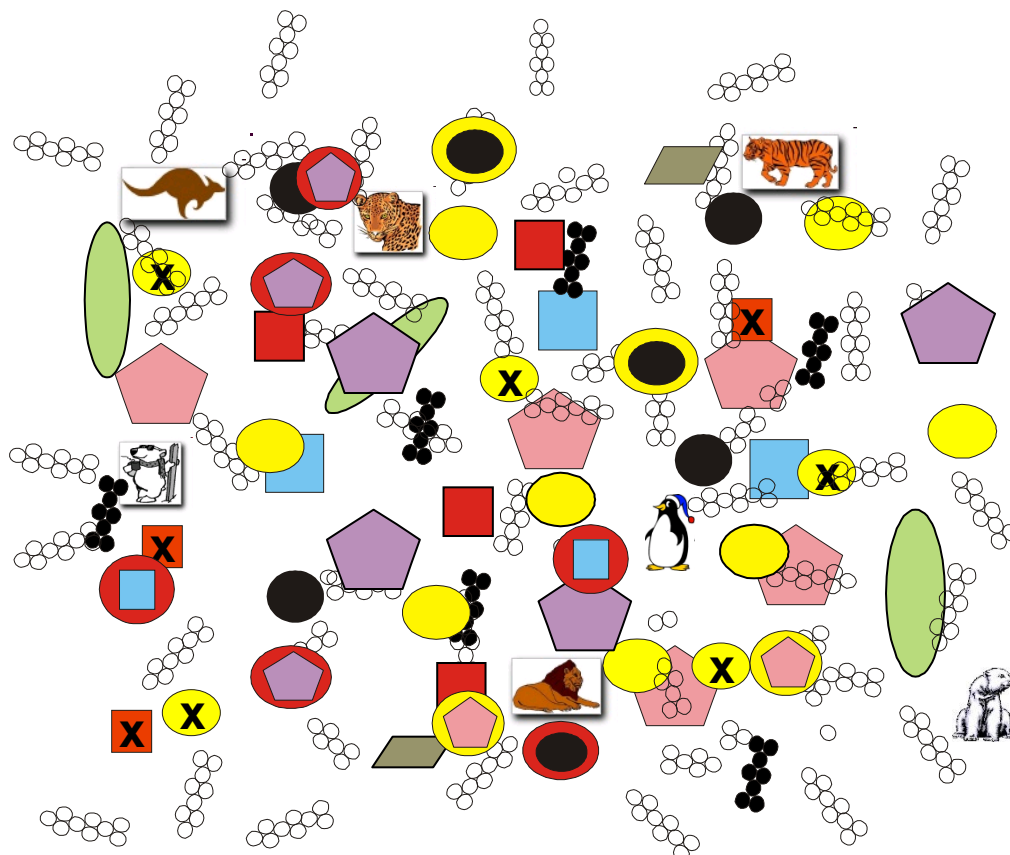
Lokale Emission

-  NH_4NO_3
-  Kohlenstoff (Russ, Verbr.)
-  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$
-  Bau, Straßenabrieb
-  Kohlenstoff (OC)
-  Metalle / Schwermetalle

Ferntransport

-  NH_4NO_3
-  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$
-  Kohlenstoff

Interaktion
zwischen Partikeln

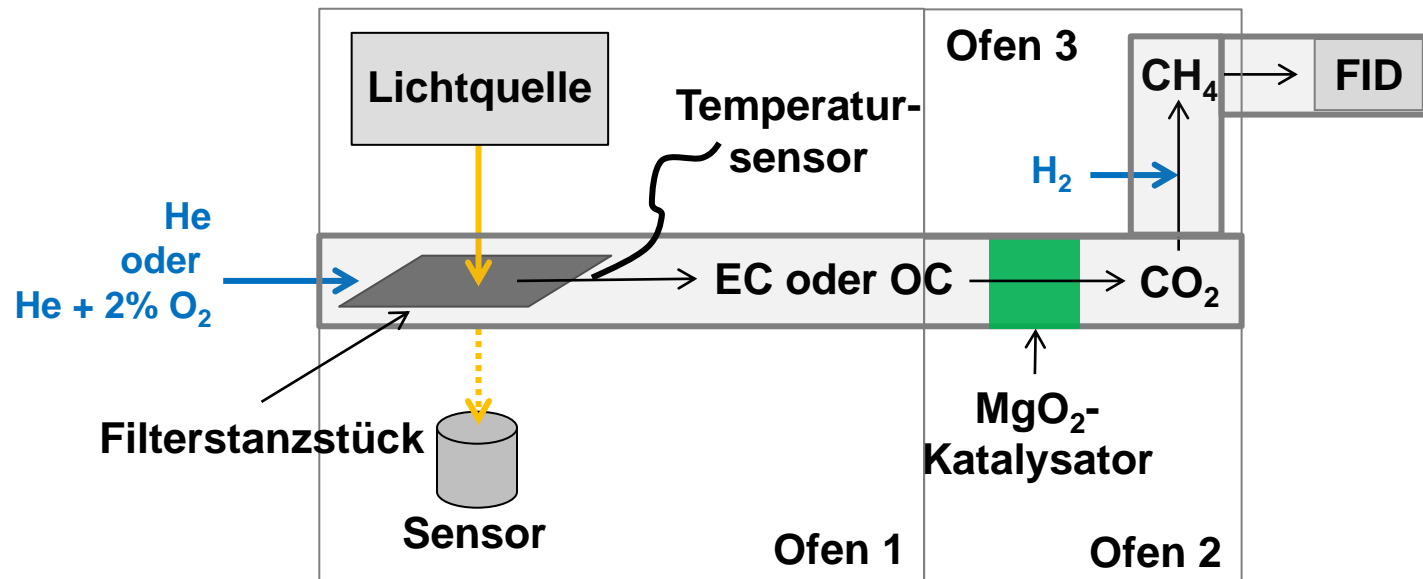


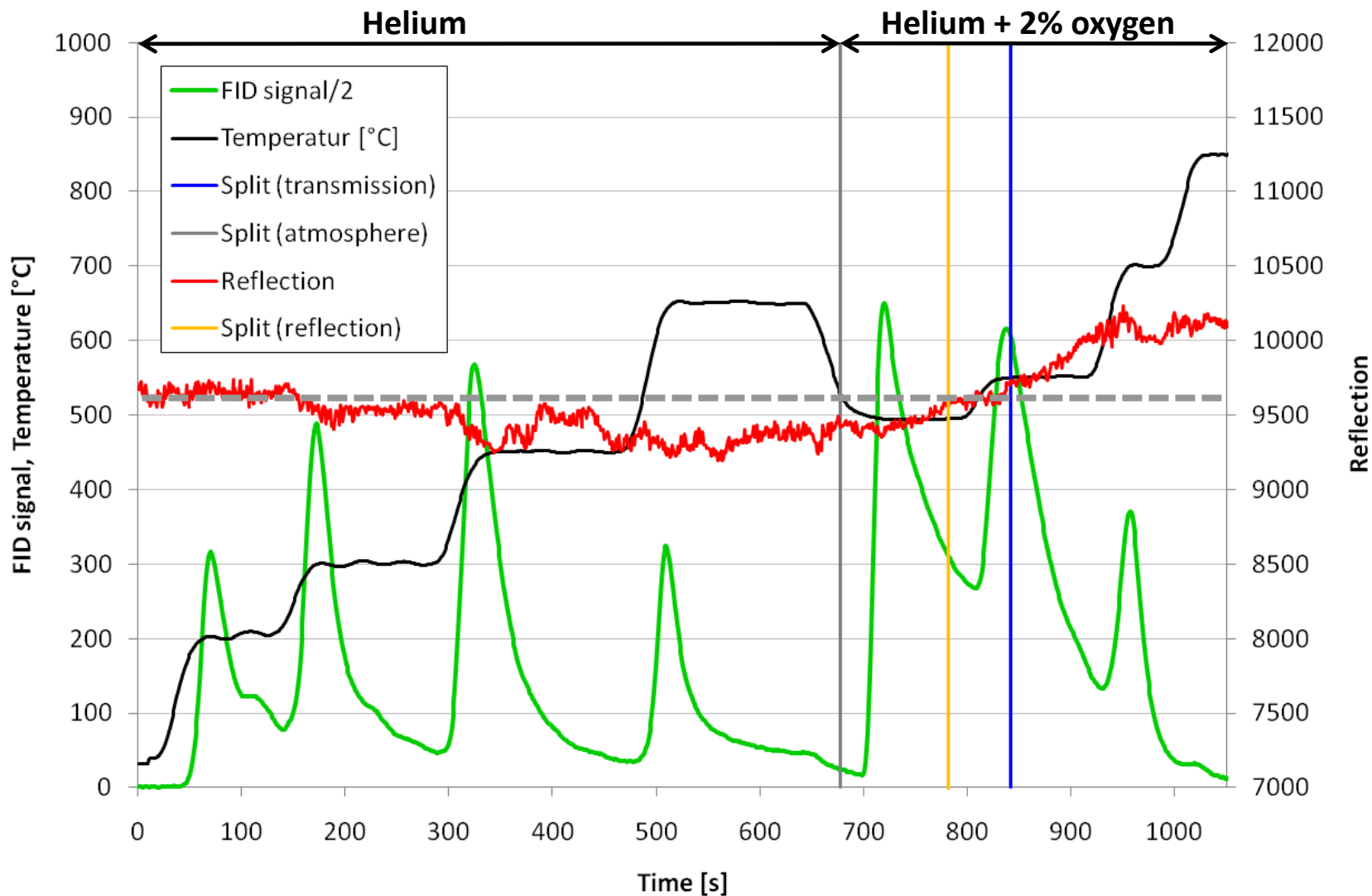
- EC, OC – thermo-optisches Verfahren
- BC – Aethalometer / MAAP
- Tracermethode - Levoglucosan

Referenzmethode: Messung von PM-Filtern



Quelle: *Sunset Laboratory Inc.*





EC/OC-Analysen – Thermogramm

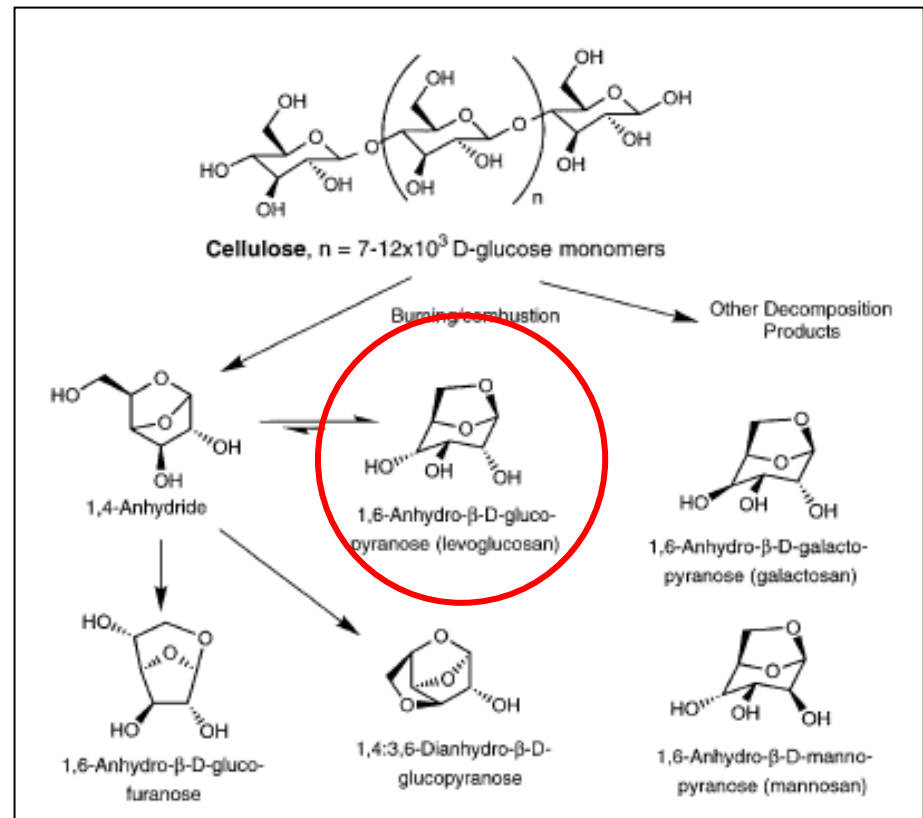


| | EUSAAR_2 | | IMPROVE | | IMPROVE_A | | NIOSH 5040 | | quartz.par (NIOSH-like) | | NIOSH870 (NIOSH-like) | |
|------|-------------------------------------|-------------------|---------------------------|-------------------|---------------------------|-------------------|---|-------------------|----------------------------|-------------------|--------------------------|-------------------|
| | Temp [°C] | Dura- tion [s] | Temp [°C] | Dura- tion [s] | Temp [°C] | Dura- tion [s] | Temp [°C] | Dura- tion [s] | Temp [°C] | Dura- tion [s] | Temp [°C] | Dura- tion [s] |
| He 1 | 200 | 120 | 120 | 150-580 | 140 | 150-580 | 250 | 60 | 310 | 80 | 310 | 80 |
| He 2 | 300 | 150 | 250 | 150-580 | 280 | 150-580 | 500 | 60 | 475 | 60 | 475 | 80 |
| He 3 | 450 | 180 | 450 | 150-580 | 480 | 150-580 | 650 | 60 | 615 | 60 | 615 | 80 |
| He 4 | 650 | 180 | 550 | 150-580 | 580 | 150-580 | 850 | 90 | 870 | 90 | 870 | 110 |
| He | Cooling | 30 | --- | --- | --- | --- | Cooling | 30 | Cooling | 45 | Cooling | 40 |
| Ox 1 | 500 | 120 | 550 | 150-580 | 580 | 150-580 | 650 | 30 | 550 | 45 | 550 | 45 |
| Ox 2 | 550 | 120 | 700 | 150-580 | 740 | 150-580 | 750 | 30 | 625 | 45 | 625 | 45 |
| Ox 3 | 700 | 70 | 800 | 150-580 | 840 | 150-580 | 850 | 30 | 700 | 45 | 700 | 45 |
| Ox 4 | 850 | 80 | | | | | 940 | 120-300 | 775 | 45 | 775 | 45 |
| Ox 5 | | | | | | | | | 850 | 45 | 850 | 45 |
| Ox 6 | | | | | | | | | 870 | 120 | 870 | 110 |
| | Transmission Reflectance | | Reflectance | | Reflectance | | Transmission Reflectance | | Transmission | | Transmission | |
| | <i>Cavalli et al. (2010)</i> | | <i>Chow et al. (2001)</i> | | <i>Chow et al. (2007)</i> | | <i>NIOSH Manual of Analytical Methods</i> | | <i>Sunset Laboratory</i> | | <i>Sunset Laboratory</i> | |

CEN TC 264 WG 35 nur Bestimmung von EC und OC!

- EC, OC – thermo-optisches Verfahren
- BC – Aethalometer / MAAP
 - Vortrag Dr. Petzold
- Tracermethode - Levoglucosan

- **Simoneit et al. 1999:**
Als Monotracer für
Holzverbrennung eingeführt



- Analyse erfolgt von
PM-Quarzfaserfiltern:
 1. **Anfertigung von Stanzstücken**
 2. **Suspension in destilliertem Wasser (60 Minuten Ultraschallbad)**
→ **Wiederfindungsrate von 100 % (Simoneit et al., 2004)**
 3. Analyse über Ionenchromatografie

Quantitative Quellenzuordnung?

- Messungen
- Emissionskataster
- Ausbreitungsmodellierung
- Rezeptormodellierung

- **Messungen**
- Emissionskataster
- Ausbreitungsmodellierung
- Rezeptormodellierung

Quelldiskriminierung - BC-Messungen

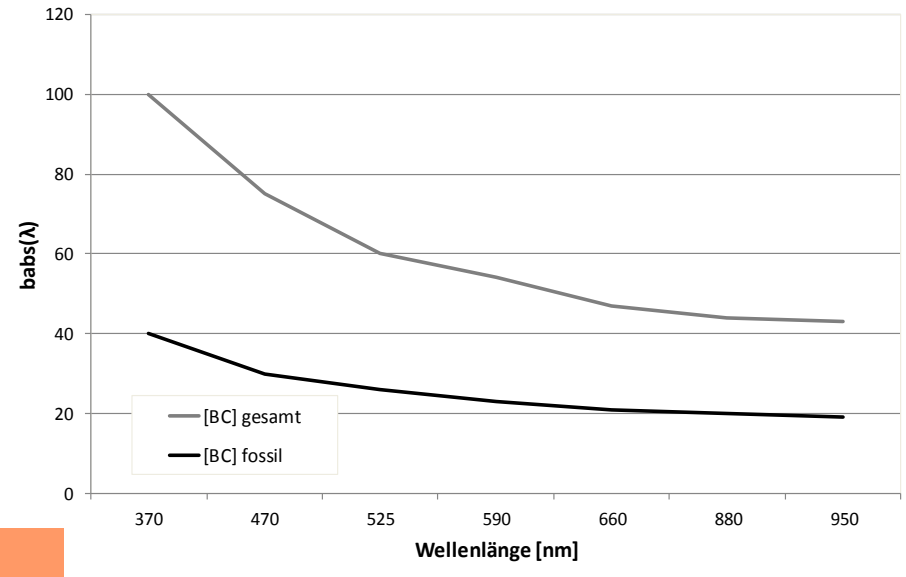
$$b_{abs}(470nm) = b_{abs}(470nm)_{Biomasse} + b_{abs}(470nm)_{Fossil}$$

$$b_{abs}(950nm) = b_{abs}(950nm)_{Biomasse} + b_{abs}(950nm)_{Fossil}$$

$$\left(\frac{470}{950}\right)^{-\alpha_{Biomasse}} = \frac{b_{abs}(470nm)_{Biomasse}}{b_{abs}(950nm)_{Biomasse}}$$

$$\left(\frac{470}{950}\right)^{-\alpha_{Fossil}} = \frac{b_{abs}(470nm)_{Fossil}}{b_{abs}(950nm)_{Fossil}}$$

Sandradewi et al. (2008)



Ångströmxponenten (Harrison et al., 2013):

$\alpha_{Biomasse} = 0,9 - 2,2$ und $\alpha_{Fossil} = 0,8 - 1,1$

$$CM = C_1 \cdot b_{abs,Fossil}(950nm) + C_2 \cdot b_{abs,Biomasse}(470nm) + C_3$$

Sandradewi et al. (2008a) und Herich et al. (2010)

Sandradewi et al. (2008) und Favez et al. (2009): $C_1 = 260000 \mu\text{g}/\text{Mm}^2$

Favez et al. (2009, 2010), Sandrewi et al. (2008) und Sciare et al. (2010, 2011): $C_2 = 490000 - 810000 \mu\text{g}/\text{Mm}^2$

- **Abschätzung des gesamten kohlenstoffhaltigen Materials:**

$$CM = EC + 1,8 \times OC$$

Harrison et al. (2013)

- **Quantifizierung der verschiedenen Quellbeiträge am CM**

$$CM = C_1 \cdot b_{abs,FF}(950nm) + C_2 \cdot b_{abs,BB}(470nm) + C_3$$

Sandradewi et al. (2008a) und Herich et al. (2010)

- **→ PM_{BB}**

Behauptung: relativ konstant bzw. ortsunabhängig

Quelldiskriminierung - Monotracer Levoglucosan

- Levoglucosan-Menge hängt ab von Verbrennungsbedingungen und Art der Biomasse (Laubhölzer, Nadelhölzer, ...)
- Stabilität in der Atmosphäre bedingt durch Reaktion mit •OH-Radikalen in der Atmosphäre

Hennigan et al. (2010): Abbau von Levoglucosan auf ca. 1/3 der Ausgangskonzentration erfolgt in 17 - 53 h
(bei 1×10^6 •OH-Molekülen/cm³ → typische Sommerkonzentration)

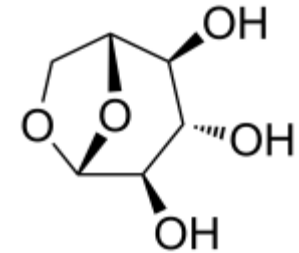
Neuer Ansatz über $\delta^{13}\text{C}$ -Messungen:

$$\delta^{13}\text{C} = \delta^{13}\text{C}_{\text{P/STD}} = \left(\frac{R\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{P}}}{R\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{STD}}} - 1 \right) \cdot 1000\text{‰}$$

Sang et al. (2012)

- Zur Berechnung des kohlenstoffhaltigen Anteils aus Biomasseverbrennungsprozessen wird Faktor genutzt

$$PM_{\text{Biomasse}} = F \times \text{Levoglucosan}$$



Abschätzung meist über Faktoren, z. B.:

$$OC_{\text{Biomasse}} = \text{Levoglucosan} \times 7,35 \text{ (Puxbaum et al., 2007)}$$

$$OM_{\text{Biomasse}} = OC_{\text{Biomasse}} \times 2,5 \text{ (Szidat et al. 2007)}$$

$$EC_{\text{Biomasse}} = OC_{\text{Biomasse}} / 6,25 \text{ (Sandradewi et al. 2008)}$$

$$PM_{\text{Biomasse}} = OM_{\text{Biomasse}} + EC_{\text{Biomasse}}$$

| | |
|-----------------------------------|----------------------------------|
| Maenhaut et al., 2012: | 10.7 (Flandern) |
| Fuller et al., 2014 | 11 (London) |
| Pfeffer et al., 2013: | 13 (Nordrhein-Westfalen) |
| Saarnio et al., 2012: | 24 ± 9 (Finnland) |
| Ducret-Stich et al., 2013: | 37 (schweizer Alpentäler) |

- Messungen
- Emissionskataster
- Ausbreitungsmodellierung
- Rezeptormodellierung

Holzfeuerung in Europa

Table 2. Wood use by appliance type in Europe in 2005 and related solid particle (SP) and dilution tunnel (DT) particle emission factors.

| Appliance type ^a | Wood use in Europe in 2005 (PJ) | Fraction of wood consumption | Emission factor (g GJ ⁻¹) ^b | | | |
|-------------------------------|---------------------------------|------------------------------|--|--------------|------|--------------|
| | | | avg | range | avg | range |
| Fire place | 140 | 6 % | 260 | 23–450 | 900 | ^d |
| Traditional heating stove | 1167 | 52 % | 150 | 49–650 | 800 | 290–1932 |
| Single house boiler automatic | 198 | 9 % | 30 | 11–60 | 60 | ^d |
| Single house boiler manual | 348 | 15 % | 180 | 6–650 | 1000 | 100–2000 |
| Medium boiler automatic | 267 | 12 % | 40 | ^c | 45 | ^c |
| Medium boiler manual | 141 | 6 % | 70 | 30–350 | 80 | 30–350 |
| Total Europe | 2262 | 100 % | | | | |

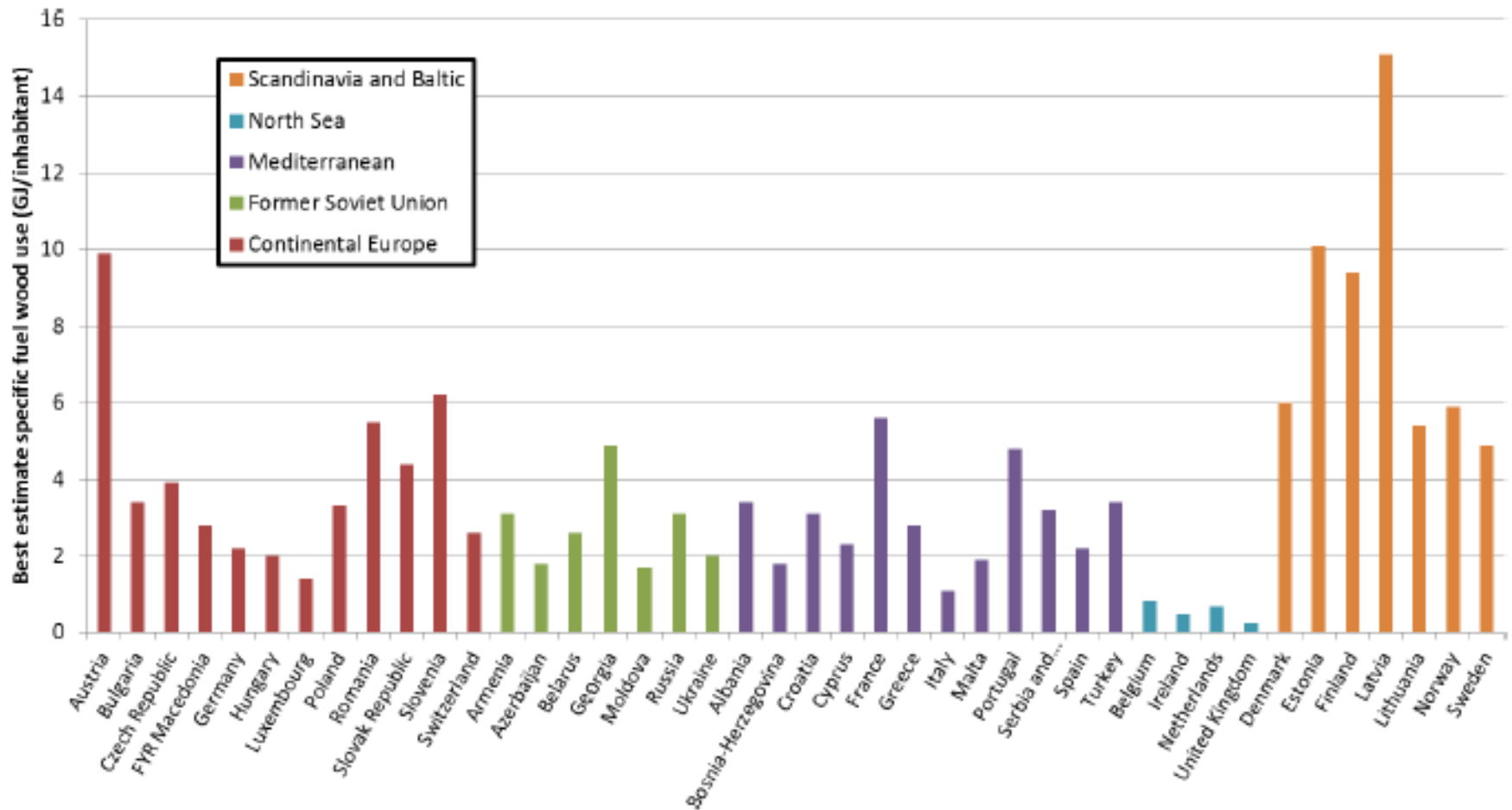
^a Following IIASA GAINS stove type definition (Klimont, 2002).

^b Derived from Nussbaumer (2008a, b).

^c Range in emission factor is determined by end-of-pipe emission control.

^d Not enough data available to indicate range.

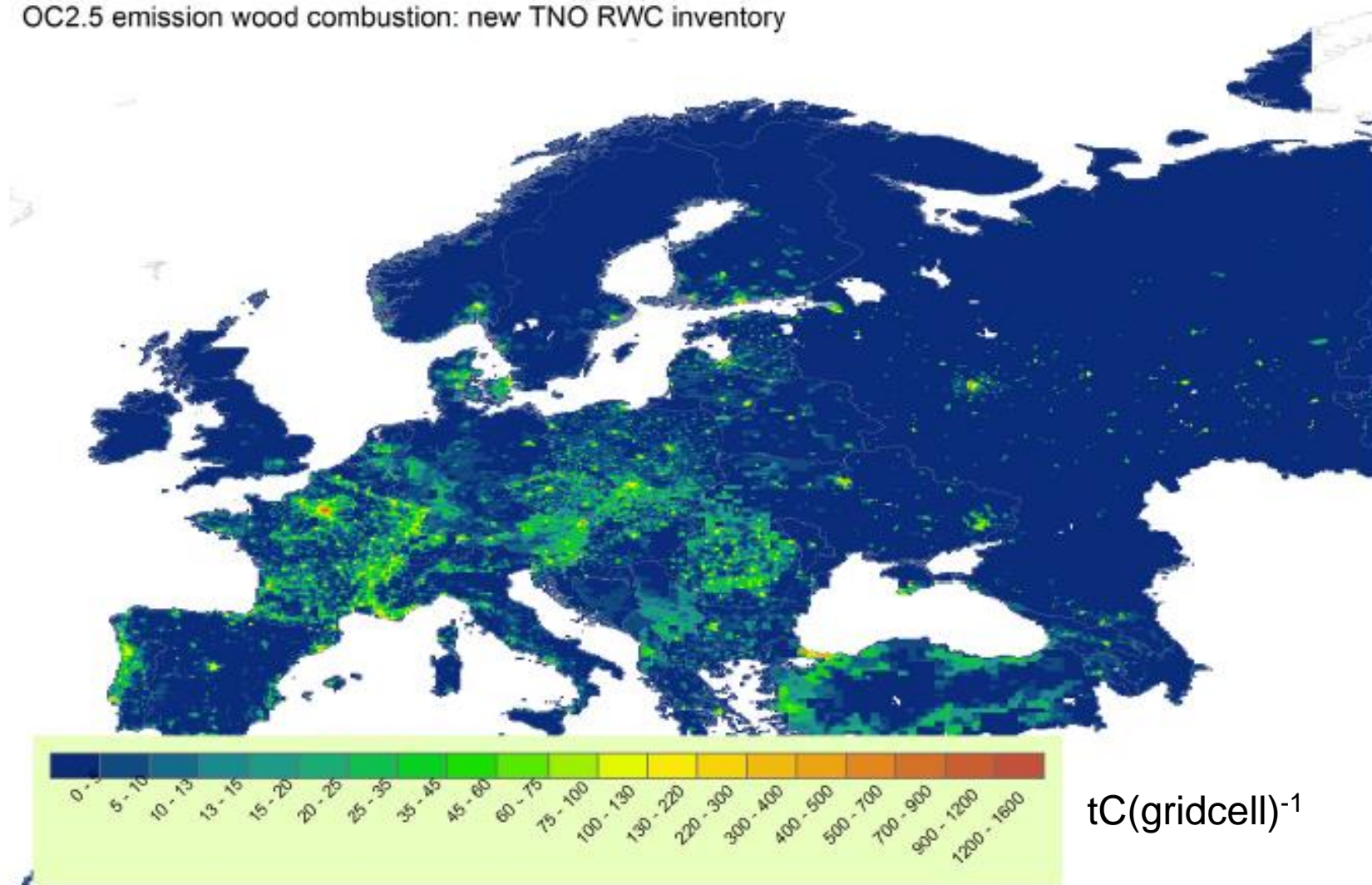
Heizen durch Holzfeuerung (GJ / Einwohner)



**Estimated specific fuel wood use (in GJ person-1)
in UNECE Europe grouped by regions**

OC Emission inventory for wood combustion

OC2.5 emission wood combustion: new TNO RWC inventory

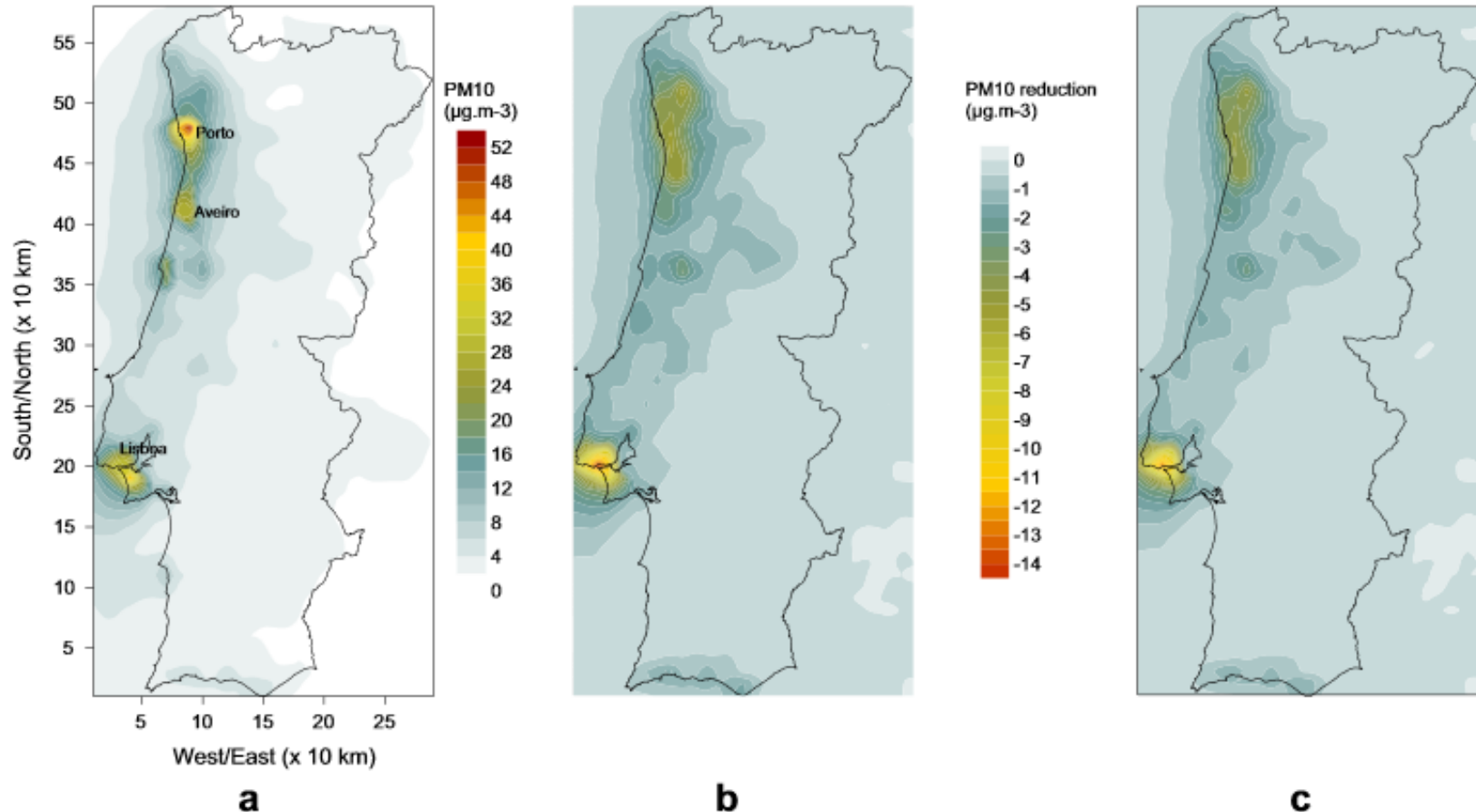


tC(gridcell)⁻¹

CTM Modellierung der Holzfeuerungsmissionen

C. Borrego et al. / Atmospheric Environment 44 (2010) 642–651

649



Räumliche Verteilung der PM10 Konzentrationen (a), PM10 Reduktion durch Verbot der Holzfeuerung (b) und durch Ersatz durch zertifizierte Verbrennungsöfen

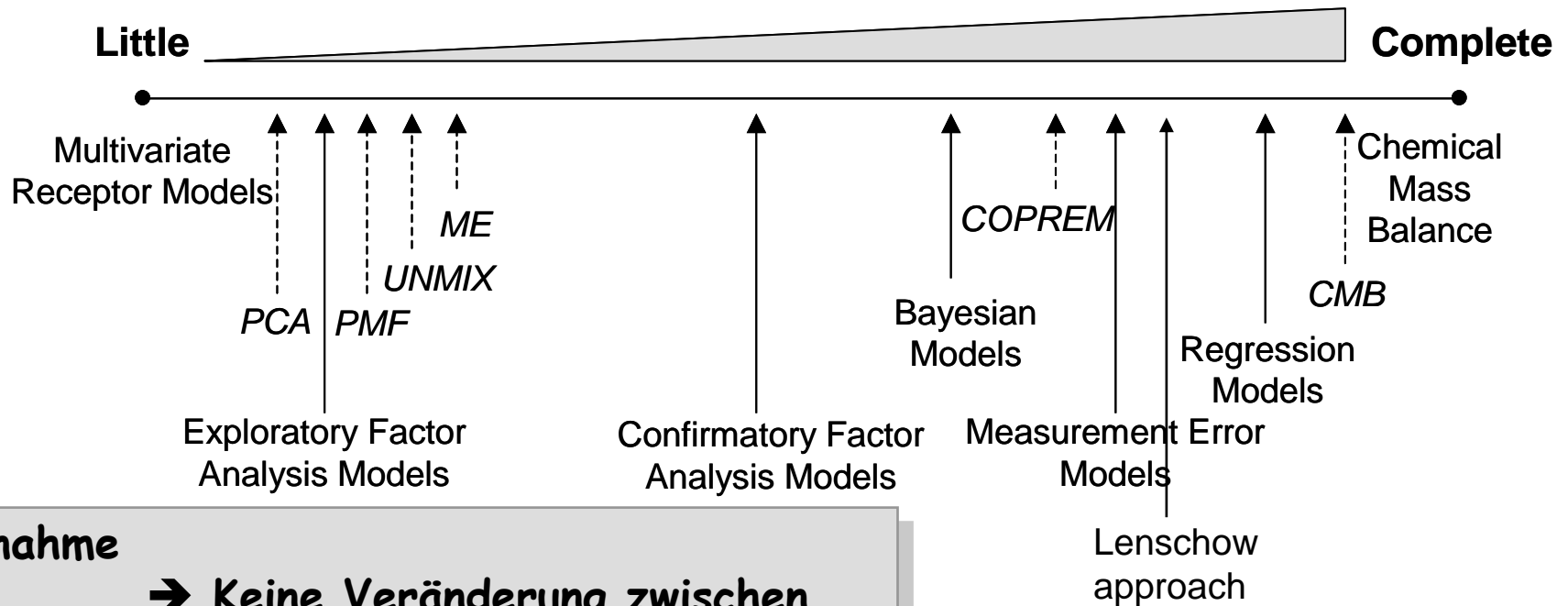
- Messungen
- Emissionskataster
- Ausbreitungsmodellierung
- Rezeptormodellierung

Receptor models

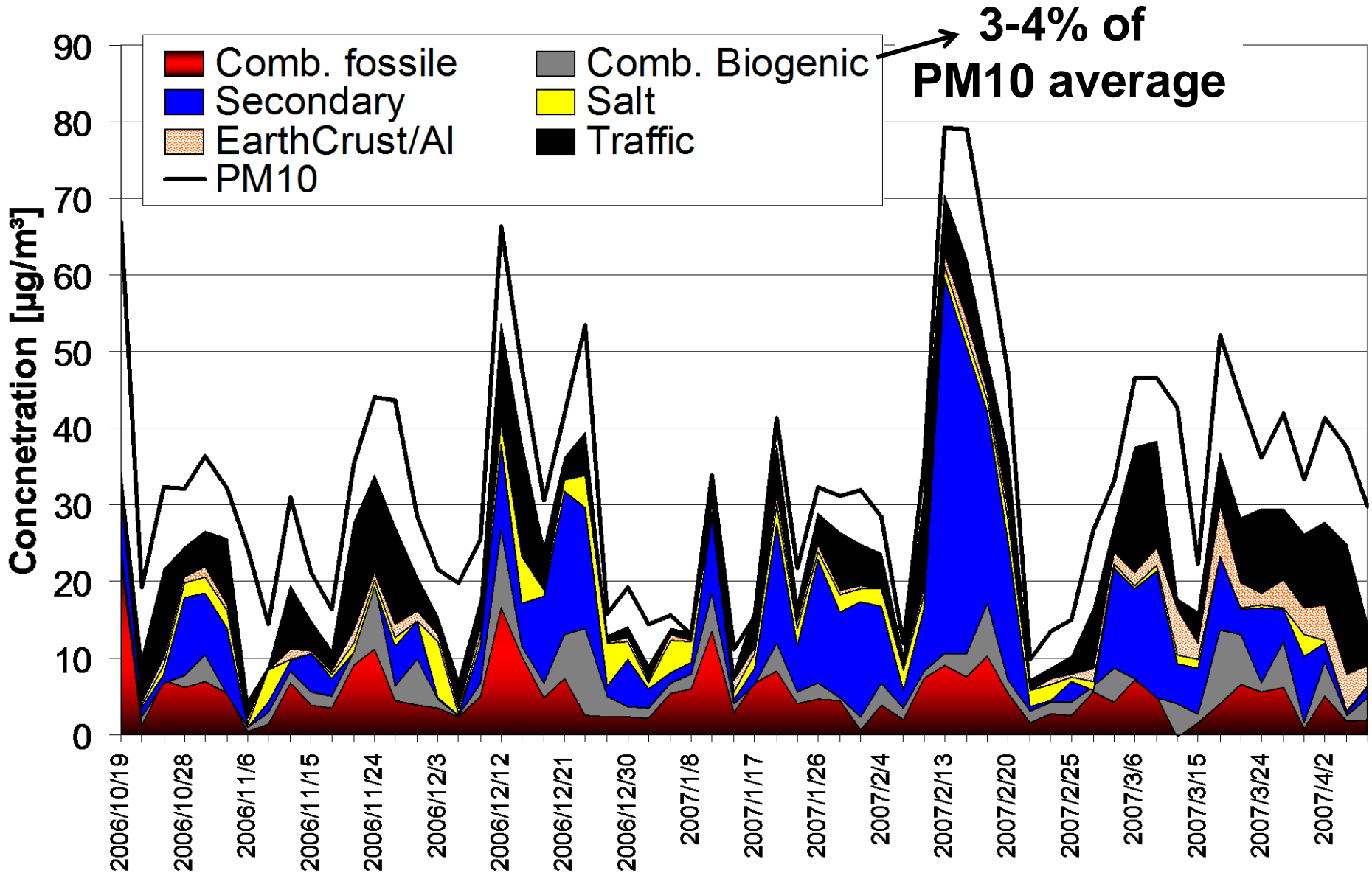
$$\mathbf{X}_t = \mathbf{\Lambda} \mathbf{f}_t + \mathbf{e}_t$$

$$p \times 1 \quad p \times k \quad k \times 1 \quad p \times 1$$

Knowledge required about pollution sources
prior to receptor modelling

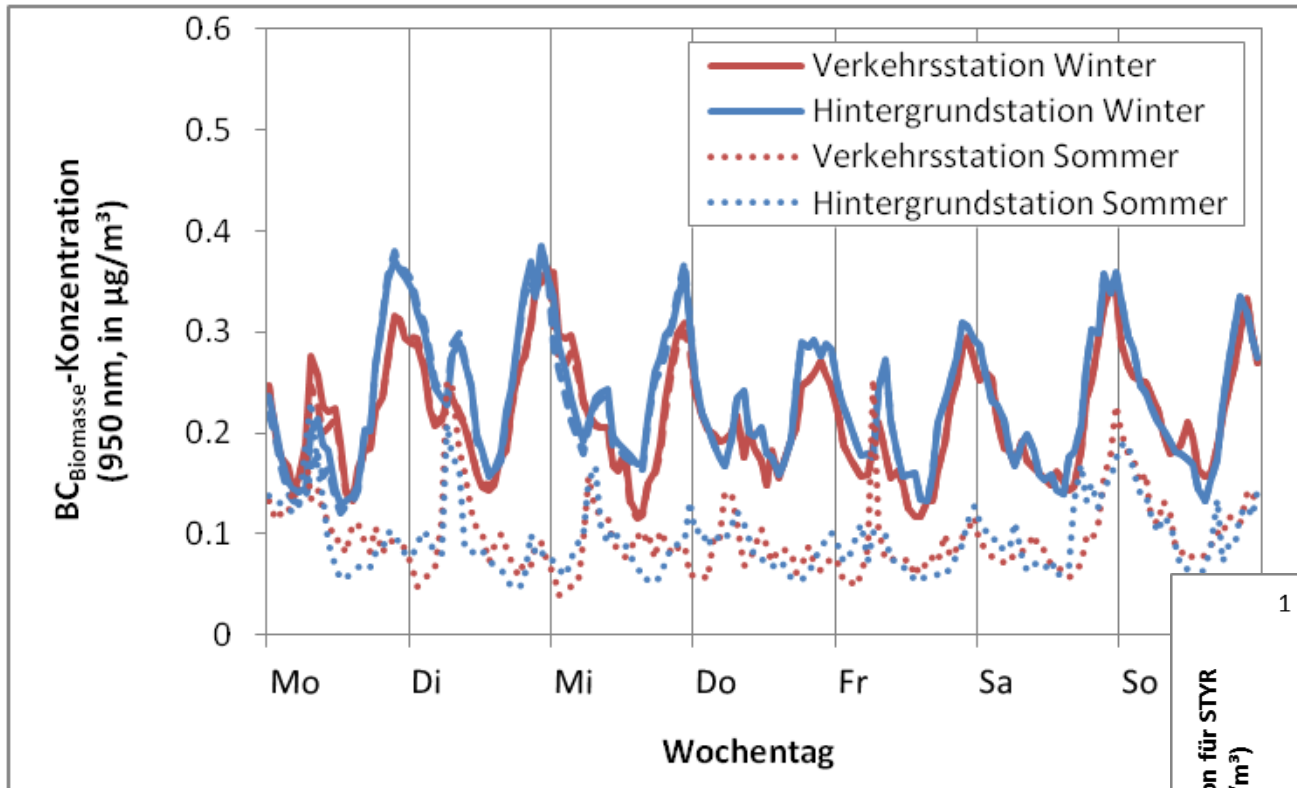


PMF Faktorbeiträge (Verkehrsstation Frankfurt)



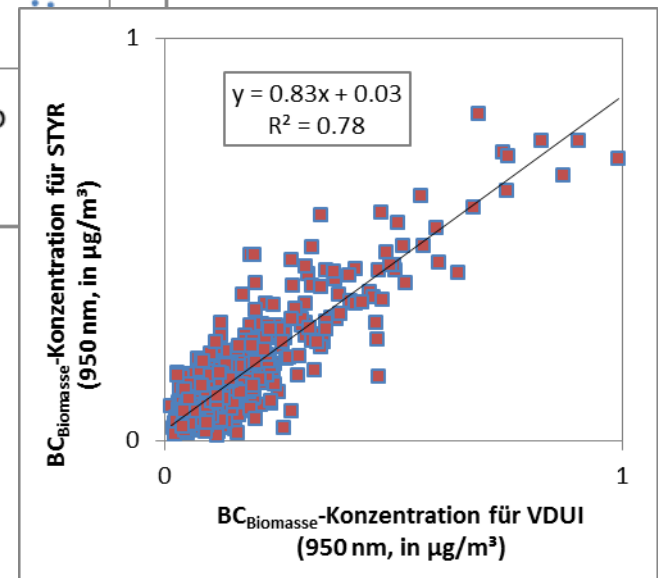
Ergebnisse





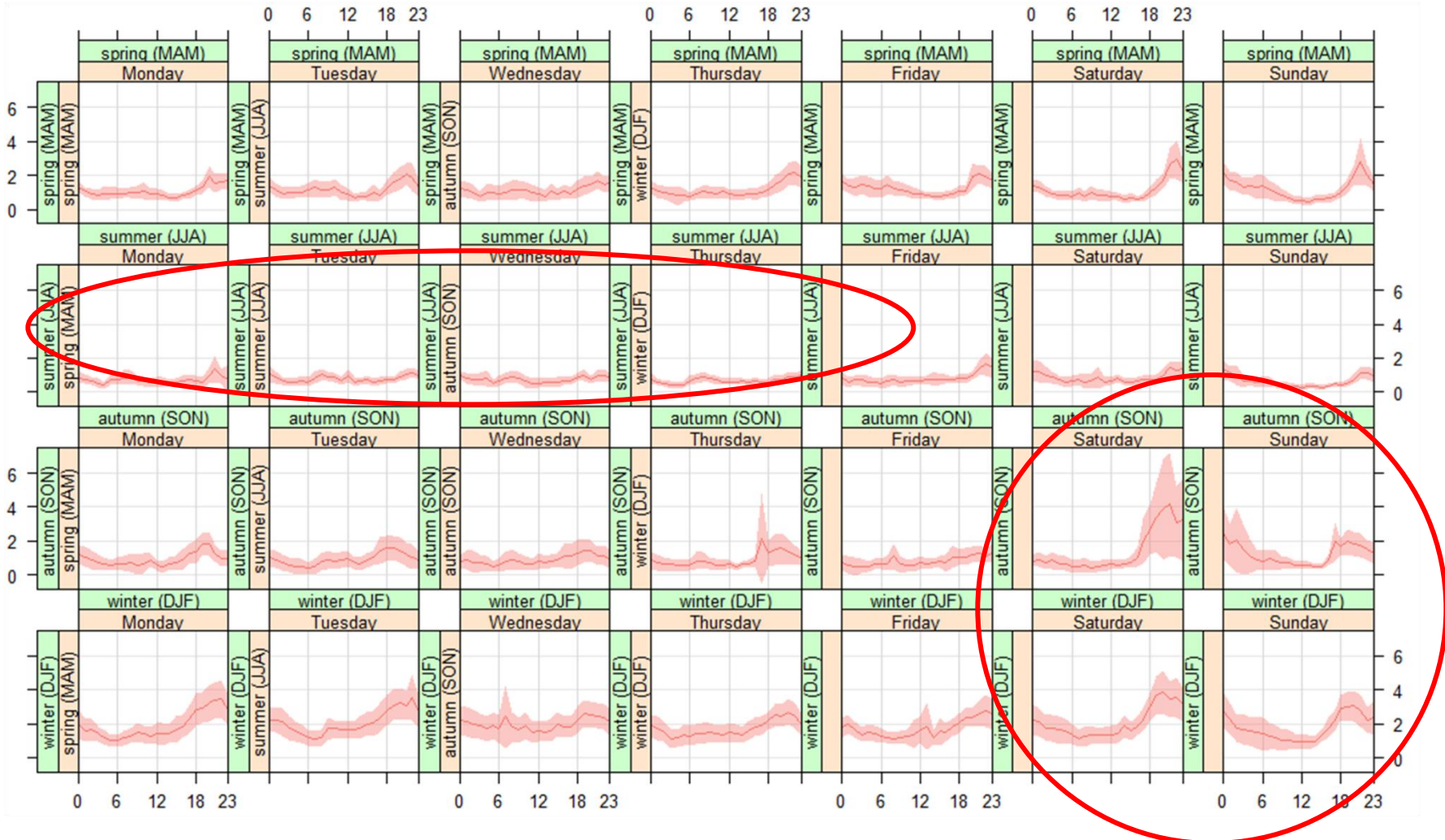
Tagesmittel (n = 500)

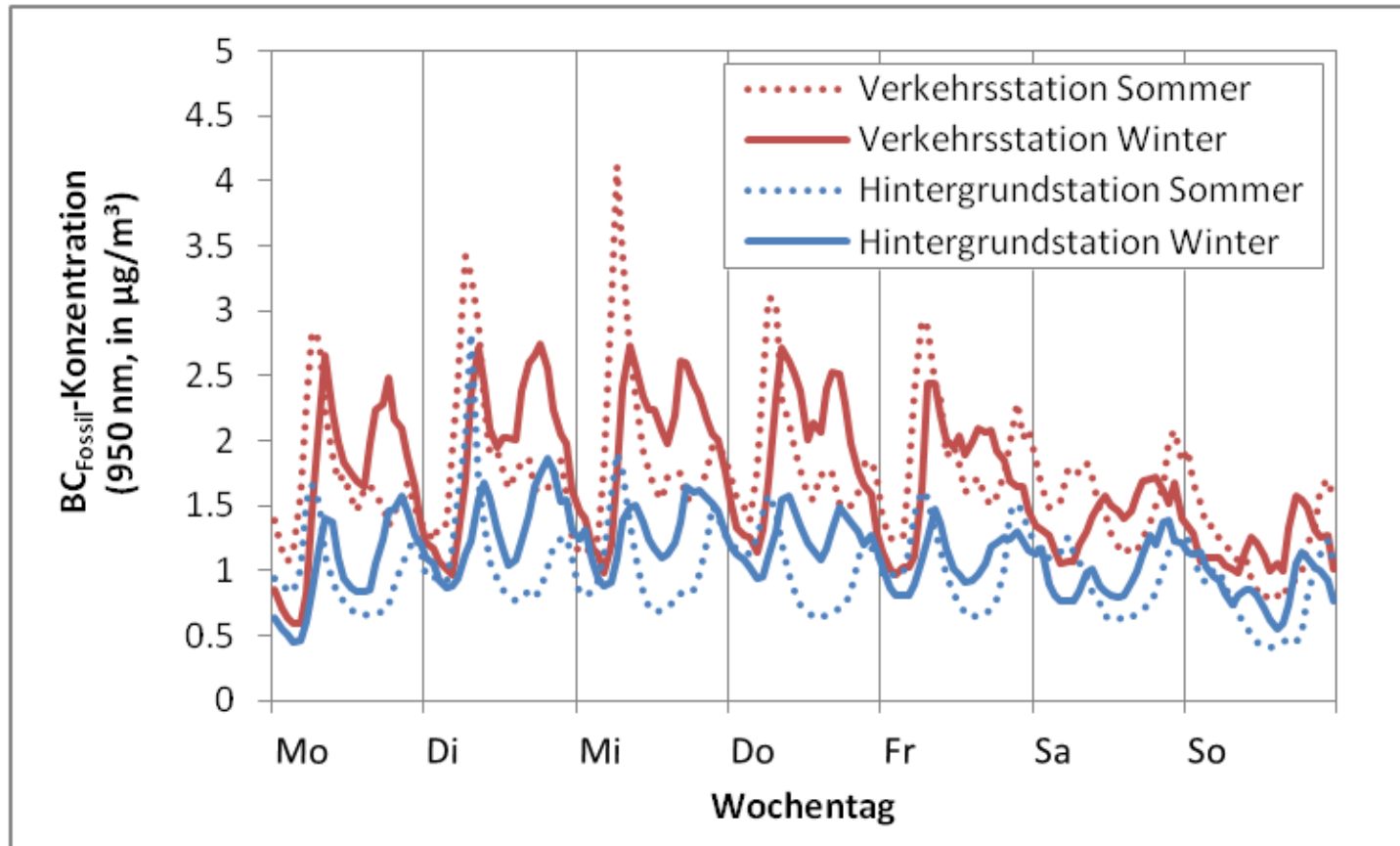
ähnliche Tagesgänge wurden für Werktage in London ermittelt (Fuller et al., 2014)



Aethalometer – Woolwich

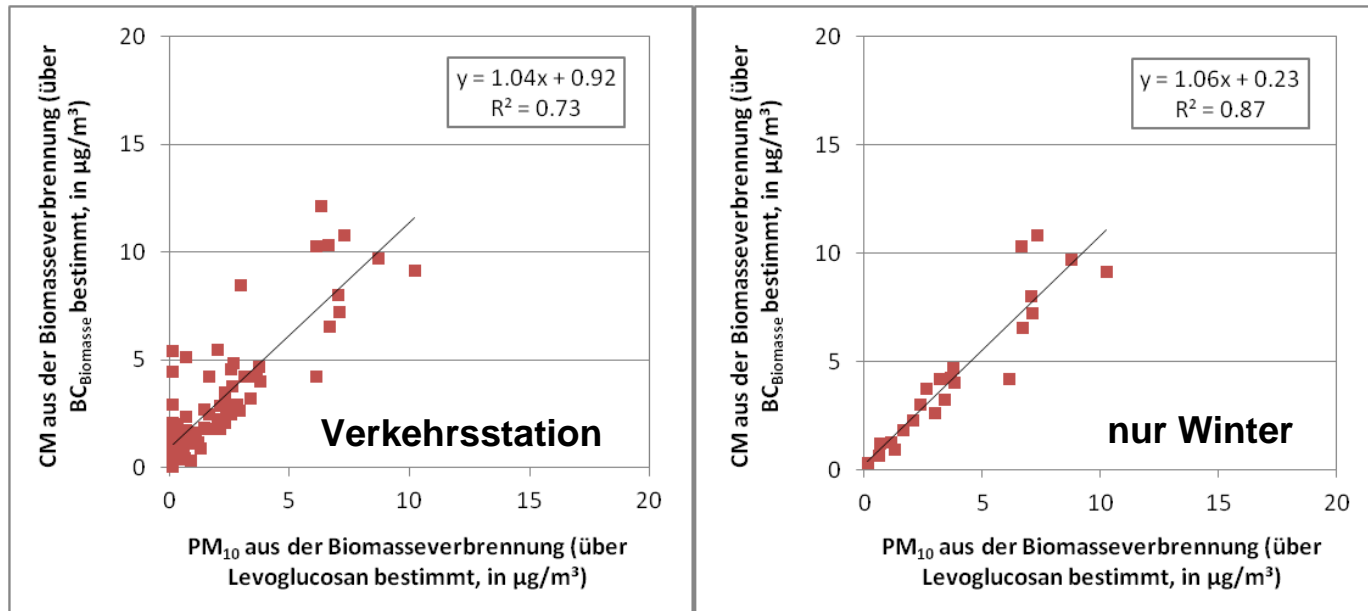
Diurnal and day of week PM from wood burning ($\mu\text{g m}^{-3}$) calculated from aethalometer measurements (370 nm, 880 nm) at Woolwich.



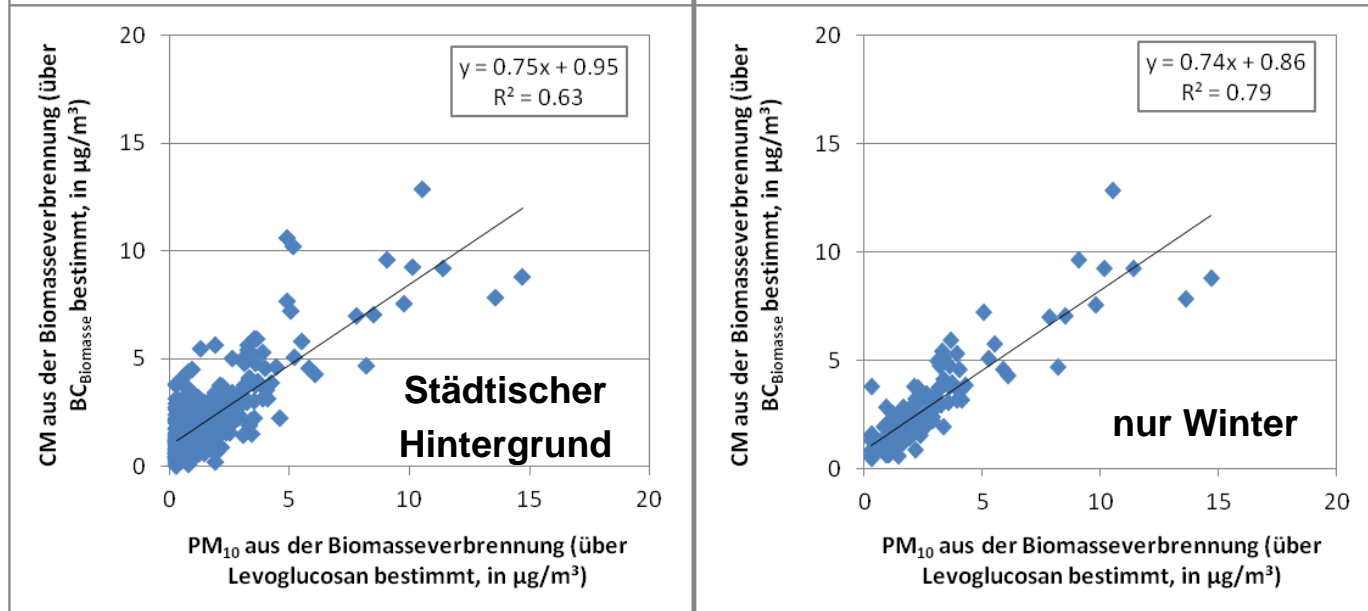


Quantifizierung der Biomasseverbrennungskomponente

(n = 79)



(n = 258)



Anteile $PM_{10,Biomasse}$ im Winterhalbjahr in Europa

Ca. 11 % in NRW (Pfeffer et al., 2013)

Max. 15 % in Mailand (Piazzalunga et al., 2011)

Ca. 10 % in Wien (Caseiro et al., 2009)

7 – 9% in London (Fuller et al., 2014)

Anteile $PM_{2.5,Biomasse}$ im Winterhalbjahr in den USA

44 – 76 % in Tälern in West-Montana (Ward & Lange, 2010)

25 % in Alabama, Georgia und South Carolina (Zang et al., 2010)

Anteile $PM_{2.5,Biomasse}$ im Jahresmittel in den USA

Ca. 40 % in Südwest-Oregon (Hwang & Hopke, 2007)

Anteile $CM_{Biomasse}$ im Winterhalbjahr in Asien

66 % in West-Indien (Gustafsson et al., 2008)

Anteile $PM_{Biomasse}$ im Winter in Afrika

Ca. 20 % des PM_{10} in Südafrika (Engelbrecht et al., 2002)

Regulation?

MEASUREMENTS AT RURAL BACKGROUND LOCATIONS IRRESPECTIVE OF CONCENTRATION

A. Objectives

The main objectives of such measurements are to ensure that adequate information is made available on levels in the background. This information is essential to judge the enhanced levels in more polluted areas (such as urban background, industry related locations, traffic related locations), assess the possible contribution from long-range transport of air pollutants, support source apportionment analysis and for the understanding of specific pollutants such as particulate matter. It is also essential for the increased use of modelling also in urban areas.

MEASUREMENTS AT RURAL BACKGROUND LOCATIONS IRRESPECTIVE OF CONCENTRATION

B. Substances

Measurement of $PM_{2,5}$ shall include at least the total mass concentration and concentrations of appropriate compounds to characterise its chemical composition. At least the list of chemical species given below shall be included. SO_4^{2-} , Na^+ , NH_4^+ , Ca^{2+} , elemental carbon (EC), NO_3^- , K^+ , Cl^- , Mg^{2+} , organic carbon (OC)

C. Siting

Measurements should be taken in particular in rural background areas in accordance with parts A, B and C of Annex III

**Mandatory measurements since 2010.
European standard to come likely in 2017.**

Zur Zeit

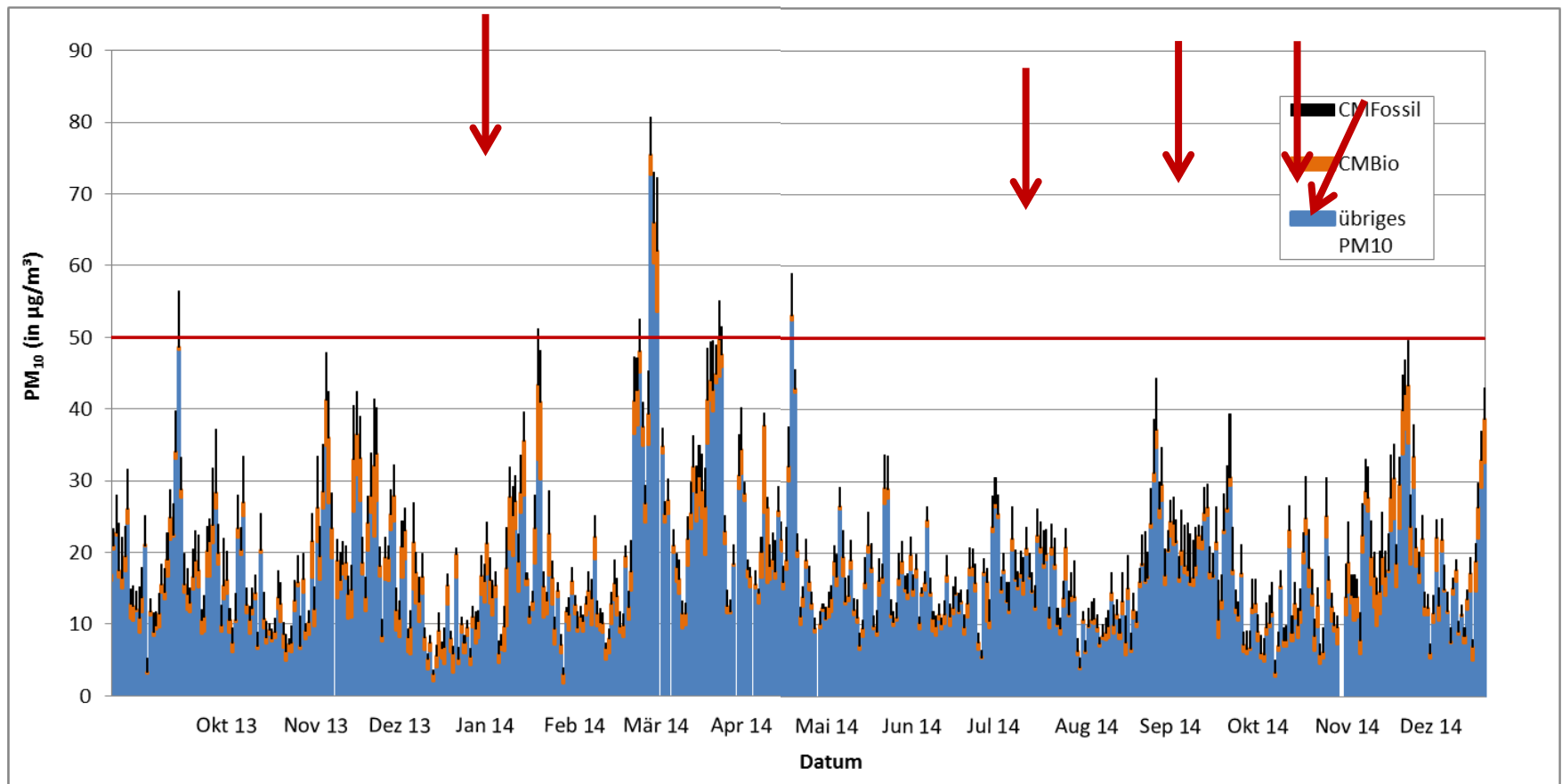
nur eine Regulation der Emissionen,

z. B. Novellierung 1. BImSchV,

nicht der Immissionen in Deutschland und der EU

nur indirekt über EC

- **Verkehrsstation: Insgesamt 10 Überschreitungstage**
 - **4 Tage weniger abzüglich CM_{Biomasse}**
 - **Dieselben Tage + ein zusätzlicher ohne CM_{Fossil}**



Danke für Ihre Aufmerksamkeit

