

Investigation of Particulate Matter Originating from Wood Combustion in Residential Areas

Von der Fakultät Energie-, Verfahrens- und Biotechnik der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines Doktors der
Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)
genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von

M.Sc. Md. Aynul Bari

geboren zu Dinajpur, Bangladesch

Hauptberichter:	Prof. Dr.-Ing. habil. Günter Baumbach
Mitberichter:	Prof. Dr. rer. nat. habil. Jörg W. Metzger
Tag der mündlichen Prüfung:	27.2.2009

Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart
Abteilung Reinhaltung der Luft

2009

Berichte aus der Umwelttechnik

Md. Aynul Bari

**Investigation of Particulate Matter Originating
from Wood Combustion in Residential Areas**

D 93 (Diss. Universität Stuttgart)

Shaker Verlag
Aachen 2009

Bibliographic information published by the Deutsche Nationalbibliothek

The Deutsche Nationalbibliothek lists this publication in the Deutsche Nationalbibliografie; detailed bibliographic data are available in the Internet at <http://dnb.d-nb.de>.

Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2009

Copyright Shaker Verlag 2009

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior permission of the publishers.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8322-8376-6

ISSN 0945-1013

Shaker Verlag GmbH • P.O. BOX 101818 • D-52018 Aachen

Phone: 0049/2407/9596-0 • Telefax: 0049/2407/9596-9

Internet: www.shaker.de • e-mail: info@shaker.de

Acknowledgements

This work has been carried out at the Institute of Process Engineering and Power Plant Technology (IVD), Department of Air Quality Control at Universität Stuttgart in co-operation with the the Institute of Sanitary Engineering, Water Quality and Solid Waste Management (ISWA), Universität Stuttgart. First of all, I would like to express my heartfelt thanks to Prof. Dr.-Ing. Günter Baumbach for taking the responsibility of being my supervisor deserves my sincere appreciation for all the help and support he provided. Without his insightful suggestion and continued guidance, life would have been very difficult during my PhD research. I thank also Prof. Dr. techn. Günter Scheffknecht the director of IVD for the possibility to carry out my research work at this institute. I would also like to extend my sincere thanks to my colleague Dr.rer.nat. Bertram Kuch at ISWA for his outstanding guidance, helpful tips whenever needed and valuable suggestions throughout the organic chemical analysis in the lab. I also want to express my gratitude to Dr.-Ing. Michael Struschka for the material support for this work through a research project. Finally, I want to give special thanks to the Ministry of Baden-Württemberg state for my doctoral grant.

Stuttgart, February 2009

Md. Aynul Bari

Abstract

During winter especially in residential villages, wood is used as a renewable fuel to a certain extent for room heating. Smoke emitted from wood burning in such areas can be a significant contributor to regional haze and high PM₁₀ concentrations. Exposure to elevated levels of wood smoke is likely to have both short and long-term negative health effects. This includes the increasing risk of cancer caused by some of wood smoke compounds. Therefore, the objective of this study was to find a method to determine the contribution of wood smoke particles to the total PM₁₀ load in residential areas. The developed method was applied during two winter seasons in two residential areas. From November 2005 to March 2006 particle-phase PM₁₀ samples were collected in Dettenhausen near Stuttgart which is surrounded by forests of the “Naturpark Schönbuch”. Within an UBA (Federal Environment Agency) project samples were also collected during winter 2006/07 in the residential site Bechtoldsweiler near Hechingen. These ambient air samples were collected on pre-baked quartz fibre filters and analysed by gas chromatography mass spectrometry (GC-MS). Forty-six different organic compounds were detected and quantified in this study including 16 US EPA priority pollutants (PAHs), different organic wood smoke tracers, primarily 21 species of syringol and guaiacol derivatives which result from the pyrolysis of wood lignin, a thermal degradation products of wood cellulose (e.g. levoglucosan) and resin acid (e.g. dehydroabietic acid). The concentrations of these compounds in ambient air were compared with the fingerprints of emissions from hardwood and softwood combustion carried out in test facilities at Universität Stuttgart and field investigations at a wood stove during real operation in Dettenhausen. It was observed that in the ambient air PM₁₀ samples the wood combustion PAHs were detected in higher concentrations than other PAHs. Syringol and its derivatives were found in large amounts in hardwood combustion but were not detected in softwood combustion emissions. On the other hand, guaiacol and its derivatives were found in softwood combustion but were not detected in significant quantities from hardwood combustion. So, these compounds can be used as typical tracer compounds for the different types of wood combustion emissions. In ambient air samples, both syringol and guaiacol derivatives were found which indicates the wood combustion contribution to the PM load in such residential areas. Levoglucosan, which is well known in the literature described as typical tracer for wood combustion was detected in relatively high concentrations in all ambient PM₁₀ samples. From the correlation of ambient concentrations of levoglucosan and dehydroabietic acid with PM₁₀, it can be qualitatively demonstrated that in the investigated residential site about 36 to 64% of ambient mass concentrations of PM₁₀ can be attributed to residential wood burning.

A source apportionment model, the “Positive Matrix Factorization” was implemented to quantify the wood smoke contribution to the winter ambient air pollution in the residential area. Wood smoke was found as the largest contributor (49%) to the PM₁₀-bound organic loadings in the winter ambient air of the investigated residential area.

Kurzfassung

In ländlichen Wohngebieten wird im Winter zum Teil Holz als erneuerbarer Brennstoff zur Raumheizung eingesetzt. Der Rauch, der in solchen Gebieten durch die Holzverbrennung emittiert wird, kann zu einem erheblichen Teil zu regionalem Smog und hohen PM_{10} -Konzentrationen beitragen. Die Exposition gegenüber erhöhten Konzentrationen von Holzfeuerungsrauch können sowohl gesundheitliche Kurzzeit- und Langzeiteffekte auslösen. Das schließt ein erhöhtes Krebsrisiko ein, verursacht durch manche Holzfeuerungsabgaskomponenten. Deshalb war es das Ziel dieser Arbeit eine Methode heraus zu finden, mit der Anteil der Partikel aus Holzfeuerungsrauch zur gesamten PM_{10} -Belastung in Wohngebieten bestimmt werden kann. Die entwickelte Methode wurde während zwei Winter in zwei Wohngebieten eingesetzt. Von November 2005 bis März 2006 wurden PM_{10} -Staubproben in Dettenhausen, nahe bei Stuttgart gelegen, gesammelt. Dettenhausen ist umgeben von den Wäldern des Naturparks Schönbuch. Im Rahmen eines Umweltbundesamt-Projektes wurden des weiteren im Winter 2006/07 PM_{10} -Proben in den reinen Wohnort Bechtoldsweiler bei Hechingen gezogen. Diese Umgebungsluftproben wurden auf ausgeheizten Quarzfaserfiltern gesammelt und anschließend mit der Gaschromatografie-Massenspektrometrie (GC-MS) analysiert. Es wurden 46 verschiedene organische Luftverunreinigungen (PAK), verschiedene organische Holzfeuerungsrauch-Leitkomponenten, insbesondere 21 Arten von Syringol- und Guaiacol-Derivaten, die aus der Pyrolyse des im Holz enthaltenen Lignins stammen, des weiteren thermische Zersetzungspunkte aus der Holz-Zellulose und Resin-Säure, z.B. die Dehydroabietic-Säure. Die Konzentrationen und Verhältnisse dieser Stoffe in der Umgebungsluft wurden mit den "Fingerabdrücken" aus der Laub- und Nadelholzverbrennung verglichen, die an den Versuchsständen des Instituts für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen an der Universität Stuttgart und durch Feldversuche an einen Holzbefeuerten Ofen in Dettenhausen während realer Betriebsweise gewonnen wurden. Als Ergebnis wurde festgestellt, dass Holzfeuerungs-PAK in den Umgebungsluft-Partikelproben in höheren Konzentrationen vorkamen als andere PAK. Syringol und seine Derivate wurden in hohen Anteilen bei der Laubholzverbrennung festgestellt, bei der Nadelholzverbrennung wurden diese Stoffe dagegen nicht gefunden. Andererseits traten Guaiacol und seine Derivate bei der Nadelholzfeuerungen auf, bei der Laubholzverbrennung konnten sie dagegen nicht in signifikanten Mengen festgestellt werden. Deshalb können diese Stoffe als typische Tracerverbindungen für die verschiedenen Arten der Holzfeuerungsmissionen verwendet werden. In den Umgebungsluft-PM-Proben wurden sowohl Syringol- als auch Guaiacol-Derivate gefunden, was ein Indikator für den Holzverbrennungsbeitrag zur Staubbelastung in Wohngebieten ist, in denen mit Holz geheizt wird. Levoglucosan, das in der Literatur als bekannter und typischer Tracer für Holzverbrennung beschrieben ist, wurde in relativ hohen Konzentrationen in allen PM_{10} -Umgebungsluftproben gefunden. Aus Korrelationen der Konzentrationen dieses und weiterer Tracersubstanzen mit den PM_{10} -Konzentrationen kann der Anteil der Holzverbrennungsabsage an den PM_{10} -Konzentrationen im untersuchten Wohngebiet zu 36 bis 64% abgeschätzt werden.

Zum Schluss wurde ein statistisches Quellenidentifizierungs-Modell, die "Positive-Matrix-Faktorisierung", angewendet, um in den Wintermonaten den Anteil der Holzfeuerungsabgase zur Staubbelastung in Wohngebieten zu quantifizieren. Holzfeuerungsrauch wurde im Winter mit 49% als der größte Verursacher der organisch gebundenen PM_{10} -Belastung in der Umgebungsluft der untersuchten Wohngebiete identifiziert.

Index

	Page
1 Introduction.....	1
1.1 Motivation	1
1.2 State of research	2
1.3 Methodology.....	3
1.4 Objectives of the study.....	4
2 Ambient PM₁₀ levels in residential areas	6
2.1 PM ₁₀ levels in Dettenhausen	6
2.1.1 Meteorological influence on PM ₁₀	7
2.1.2 PM ₁₀ sampling programme.....	8
2.1.2.1 Sampling sites.....	8
2.1.2.2 Sampling procedure.....	9
2.1.3 Results of PM ₁₀ sampling	10
2.1.3.1 Filter characteristics.....	10
2.1.3.2 PM ₁₀ levels in 2005 campaign.....	12
2.1.3.3 PM ₁₀ levels in winter 2005/06 campaign.....	13
2.2 PM ₁₀ levels in Bechtoldswailer	15
3 Emission fingerprints of wood smoke and other sources.....	18
3.1 Overview.....	18
3.2 Emission fingerprints	19
3.3 Sampling programme	20
3.4 Chemical analysis.....	23
3.5 Results – source fingerprints.....	24
4 Wood smoke as a source of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs).....	31
4.1 Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs).....	31
4.2 Ambient air measurements and analysis.....	32
4.3 Results and discussion.....	33
4.3.1 PAH profiles and ambient levels in Dettenhausen.....	33
4.3.2 Temporal variation of PAH concentrations.....	38
4.3.3 Determination of PAH emission sources – ratio analysis.....	43
4.4 PAH levels in Bechtoldswailer.....	46
5 Methoxyphenols in ambient air: Tracers for wood smoke emissions....	48
5.1 Characterisation of wood lignin.....	48
5.2 Sample collection.....	50
5.3 Organic chemical analysis.....	50
5.4 Results and discussion.....	53
5.4.1 Emission profiles.....	53
5.4.2 Ambient levels.....	55
6 Levoglucosan and dehydroabietic acid: Evidence of wood smoke	60
6.1 Characterisation of wood cellulose.....	60
6.2 Sampling.....	62

6.3	Chemical analysis.....	62
6.4	Results and discussion.....	63
6.4.1	Analytical detection.....	63
6.4.2	Emission and ambient levels of levoglucosan and dehydroabietic acid.....	66
7	Characterisation of ambient air particles by morphological and elemental analyses.....	71
7.1	Background.....	71
7.2	Methodology.....	72
7.2.1	Sample collection.....	72
7.2.2	SEM/EDX analysis.....	72
7.3	Results and discussion.....	73
7.3.1	Particle size distribution with cascade impactor.....	73
7.3.2	SEM/EDX results.....	74
7.3.2.1	Particle size range 1.1 – 2.1 μm	75
7.3.2.2	Particle size range 0.7 – 1.1 μm	76
7.3.2.3	Particle size range 0.4 – 0.7 μm	77
7.3.2.4	Particle size range < 0.4 μm	78
8	Source identification and apportionment.....	81
8.1	Positive Matrix Factorization (PMF).....	81
8.2	Results and discussion.....	82
9	Summary and conclusion	88
10	References.....	89