



Forschungsvorhaben EULV24

Schadstoffemissionen während des An-/Abfahrens (groß)technischer thermischer Anlagen

(EU Ziel-2 Programm Bayern: Phasing-Out-Gebiete)

Abschlussbericht zum 31.01.2008





Forschungsvorhaben EULV24

**Schadstoffemissionen während des
An-/Abfahrens (groß)technischer
thermischer Anlagen**
(EU Ziel-2 Programm Bayern: Phasing-Out-Gebiete)

Abschlussbericht zum 31.01.2008

Impressum

Forschungsvorhaben EULV24: Schadstoffemissionen während des An-/Abfahrens (groß)technischer thermischer Anlagen
Abschlussbericht zum 31.01.2008
ISBN (Online-Version): 978-3-940009-87-6

Herausgeber:

Bayerisches Landesamt für Umwelt
Bürgermeister-Ulrich-Straße 160
86179 Augsburg
Tel.: (0821) 90 71 - 0
Fax: (0821) 90 71 - 55 56
E-Mail: poststelle@lfu.bayern.de
Internet: www.lfu.bayern.de

Bearbeitung/Text/Konzept:

LfU, Josef-Vogl-Technikum

Redaktion:

LfU, Josef-Vogl-Technikum

Druck:

Eigendruck Bayer. Landesamt für Umwelt
Gedruckt auf Papier aus 100 % Altpapier.

Stand:

März 2008

Diese Druckschrift wurde mit großer Sorgfalt zusammengestellt. Eine Gewähr für die Richtigkeit und Vollständigkeit kann dennoch nicht übernommen werden. Sofern in dieser Druckschrift auf Internetangebote Dritter hingewiesen wird, sind wir für deren Inhalte nicht verantwortlich.



Dieses Projekt wird vom Bayerischen Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz im Rahmen der EU-Strukturförderung aus Mitteln des Europäischen Fonds für regionale Entwicklung (EFRE) kofinanziert.



Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Untersuchungsumfang, Probenahmestellen	4
3	Asphaltmischanlagen	5
3.1	Regulärer Anlagenbetrieb	6
3.2	An- und Abfahrbetrieb	7
3.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	8
3.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	12
4	Glasschümanlage	14
4.1	Regulärer Anlagenbetrieb	15
4.2	An- und Abfahrbetrieb	16
4.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	16
4.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	18
5	Zementwerk	20
5.1	Regulärer Anlagenbetrieb	21
5.2	Anfahrbetrieb	22
5.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	23
5.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	25
6	Ziegelwerk	27
6.1	Regulärer Anlagenbetrieb	27
6.2	Anfahrbetrieb	29
6.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	30
6.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	31
7	Deponie- und Holzgasverstromungsanlage	35
7.1	Regulärer Anlagenbetrieb	36
7.2	Anfahrbetrieb	38
7.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	39
7.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb	42

8	Holzheizkraftwerk	44
8.1	Regulärer Anlagenbetrieb	45
8.2	An- und Abfahrbetrieb	46
8.2.1	Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	47
8.2.2	Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb	50
9	Zusammenfassung	54
10	Danksagung	59
11	Literatur	60

1 Einleitung

Die Europäische Union unterstützt in den Mitgliedsstaaten die Angleichung des Entwicklungsstandes und des Lebensstandards über den Europäischen Fonds für regionale Entwicklung (EFRE). Gefördert werden Projekte u. a. in den sog. Phasing-Out-Gebieten. Diese Bezeichnung steht für Gebiete mit auslaufender (degressiver) Förderung (ehem. Ziel-5b-Förderung).

Das EFRE-Projekt „Schadstoffemissionen während des An-/Abfahrens (groß)technischer thermischer Anlagen“ hatte zum Ziel, die Emissionen an Anlagen in Phasing-Out-Gebieten während dieser instationären Betriebsphasen zu erfassen und mit dem Regelbetrieb zu vergleichen.

Instationäre Betriebszustände können in Abhängigkeit von den eingesetzten Brenn- und Betriebsstoffen gegenüber dem (quasi-)stationären Regelbetrieb durch erhöhte Emissionskonzentrationen und -frachten gekennzeichnet sein. Aus den gewonnenen Erkenntnissen lassen sich ggf. anlagenspezifische Handlungsempfehlungen zur Schadstoffreduktion ableiten.

Der Messumfang richtete sich generell nach dem jeweiligen Genehmigungsbescheid und nach der in der 17. BImSchV [1] genannten Parameterliste, um weitergehende Informationen über das System- und Schadstoffverhalten zu gewinnen.

Innerhalb der operativen Projektphase wurden (i) drei Asphaltmischanlagen, (ii) eine Glasschäumenanlage, (iii) ein Zementwerk, (iv) ein Ziegelwerk, (v) eine Deponiegas- und (vi) eine Holzgasverstromungsanlage sowie (vii) ein Holzheizkraftwerk untersucht. Die Ergebnisse wurden jeweils mit den Betreibern diskutiert und vollständig in Berichtsform dem jeweiligen Anlagenbetreiber, den zuständigen Genehmigungs- und Aufsichtsbehörden sowie dem Bayerischen Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz übersandt.

Die sieben Anlagentypen weisen ein breites verfahrenstechnisches Spektrum auf: (i) Trocknen von Mineralstoffen und Altasphaltgranulat mit nachfolgendem Mischvorgang mit Bitumen zu Asphalt, (ii) Trocknen und Blähen von Altglas zu einem porösen Granulat (Sekundärrohstoff) für die Baustoffindustrie, (iii) Brennen und Kalzinieren von Kalkstein, Eisen- und Aluminiumoxid zu Zementklinker als Baustoff, (iv) Brennen von Ton zu Ziegeln, (v) Deponie- und (vi) Holzgaserzeugung zur Energiegewinnung sowie (vii) Verbrennen von Altholz zur Schadstoffmineralisierung und Energiegewinnung.

Die Teilnahme der Anlagenbetreiber an dem Untersuchungsprogramm war v. a. auf die Anerkennung der Messungen im Regelbetrieb als wiederkehrende Messung nach § 26 BImSchG [2] durch die zuständige Kreisverwaltungsbehörde zurückzuführen; dabei steht im Wesentlichen die Kostenersparnis in vier- bis fünfstelliger Höhe im Vordergrund. Bei den Vorgesprächen wurde auch deutlich, dass sich die Anlagenbetreiber des schwer kalkulierbaren Risikos einer evtl. Feststellung überhöhter Abgasemissionen von bislang nicht untersuchten Stoffen/-gruppen bewusst sind. Beispielsweise sagte die Geschäftsführung eines Spanplattenwerks die Teilnahme ab, nachdem wir in Vorgesprächen dem Betriebsleiter den Untersuchungsumfang vorgestellt und darüber Einvernehmen erzielt hatten.

2 Untersuchungsumfang, Probenahmestellen

Die durchgeführten Messkampagnen beinhalteten an allen Anlagen die kontinuierliche Bestimmung von Abgastemperatur, -geschwindigkeit, -feuchte, Sauerstoff, Kohlenstoffdi-/monoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff (C_{org}) sowie die diskontinuierliche Ermittlung von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK), polychlorierten Biphenylen {Indikator-PCB und coplanare (dioxinähnliche) PCB nach WHO [3]} und polychlorierten Dibenzo-p-dioxinen/-furanen (PCDD/F). Je nach Anlagentyp und gültigem Genehmigungsbescheid wurden weitere Abgaskomponenten untersucht. In den folgenden Kapiteln werden – wenn nicht anders angegeben – die direkt gemessenen, normierten¹ Daten herangezogen, um die instationären Prozesse An-/Abfahren detailliert darzustellen.

Probenahmestellen. Die an den Anlagen eingerichteten Mess-/Probenahmestellen entsprechen oft nicht der Norm [4, 5] (fehlende Ein- und/oder Auslaufstrecke). Dies liegt v. a. an zu knapp bemessenen Abgasleitungen zwischen Umlenkungen, Krümmern oder Querschnittsänderungen. Meist war es nicht möglich, Rohgasmessstellen nachzurüsten, weshalb ausschließlich Reingasprobenahmen (vor oder am Kamin) durchgeführt werden konnten.

Die im Folgenden genannten Anlagentypen sind nach Baustoffproduktion und Energiegewinnung in alphabetischer Reihenfolge aufgeführt.

Asphaltmischanlagen. An den Asphaltmischanlagen wurde reingasseitig (am Kamin) jeweils zweimal der An-, Abfahr- und Regelbetrieb untersucht. Neben den o. g. Messgrößen erfolgte ausschließlich im Regelbetrieb die Bestimmung der Abgasgehalte an Gesamtstaub sowie Benzol und 1,3-Butadien.

Glasschäumenanlage. Die Ab-, Anfahr- und Regelbetriebsuntersuchungen wurden im Abgas eines von drei Glasschäumdrehrohröfen nach Gewebefilter und Saugzug bzw. vor dem Kamin durchgeführt.

Zementwerk. Die Abgasmessungen und -probenahmen am Zementwerk fanden ausschließlich im gereinigten Abgas nach Gewebefilter und Saugzug statt. Der Untersuchungsumfang im Anfahr- und Regelbetrieb schloss die Ermittlung von Chlor-/Fluorwasserstoff, Quecksilber und Gesamtstaub ein.

Ziegelwerk. Die Messkampagne am Ziegelwerk umfasste simultane Roh- und Reingasprobenahmen im Anfahr- und Regelbetrieb. Die Rohgasmessstelle lag nach dem Ofen bzw. vor der Abgasreinigungsanlage und die Reingasmessstelle nach der Abgasreinigung bzw. vor dem Kamin. Zusätzlich erfolgten Chlor-/Fluorwasserstoff- und Quecksilberprobenahmen im Anfahr- und Regelbetrieb.

Deponiegasverstromungsanlage. Die Abgasmessungen und -probenahmen an der Deponiegasverstromungsanlage fanden während eines Anfahrvorgangs und im Regelbetrieb nach Gasmotor und Abgasreinigung am Kamin statt. Neben den o. g. Messgrößen wurden die Konzentrationen an Chlor-/Fluorwasserstoff, Gesamtstaub und Benzol bestimmt.

Holzgasverstromungsanlage. Die kontinuierlichen und diskontinuierlichen Probenahmen an der Holzgasverstromungsanlage erfolgten im Anfahr- und Regelbetrieb im gereinigten Abgas des Gasmotors. Als zusätzliche Parameter wurden die Abgasgehalte an Gesamtstaub sowie Benzol und 1,3-Butadien ermittelt.

Holzheizkraftwerk. Die Abgasprobenahmen fanden nach dem Gewebefilter entlang der waagrechten, in den Kamin mündenden Abgasleitung statt. Der Untersuchungsumfang wurde in allen Betriebszuständen um die Ermittlung von Chlor-, Fluorwasserstoff und Quecksilber erweitert.

¹ normiert auf 273,15 K, 1.013 hPa, 0 % r. H.

3 Asphaltmischanlagen

In Asphaltmischanlagen wird durch einen thermischen Vermischungsprozess Asphalt in verschiedenen Sorten hergestellt. Bayernweit werden rd. 150 Asphaltmischanlagen betrieben. Die Abb. 1 zeigt das verfahrenstechnische Schema der drei untersuchten Asphaltmischanlagen. Sie liegen in den Landkreisen Oberallgäu (Anlage 1, 3) und Landsberg am Lech (Anlage 2).

Im Allgemeinen werden die bevorrateten Mineralstoffe (Kies, Splitt und Sand) mittels Brecher zerkleinert und durch mehrere Einzeldoseure in die Trockentrommel aufgegeben, wo sie im Gegenstrom getrocknet und erhitzt werden. Der Brenner der Trockentrommel wird i. d. R. mit Braunkohlenstaub befeuert, wobei meist auch der Einsatz von Heizöl oder Erdgas zulässig ist (vgl. Tab. 1). Die heißen Mineralstoffe gelangen über ein Becherwerk in die Siebmaschine (Heißgutsilo). In der Paralleltrommel trocknet und erhitzt ein Heißluftstrom granulierten Altasphalt schonend im Gleichstrom; der Brenner wird mit Heizöl EL oder Erdgas betrieben. Es erfolgt eine massebezogene Dosierung der erhitzten Mineralstoffe und des erwärmten Altasphalts in den Mischer. Dort findet eine homogene Vermengung des Guts aus den beiden Trommeln mit vorgewärmtem Bitumen sowie Füllstoffen statt. Das Produkt wird über einen Schrägaufzug in ein Verladesilo transportiert, wo es bis zur Verladung auf Lkw zwischengelagert wird. Die staub- und wasserdampfhaltigen Abgasströme aus Trocken- und Paralleltrommel werden gemeinsam mit der an Siebmaschine und Mischer austretenden Abluft abgesaugt und über ein Gewebefilter geleitet. Der abgeschiedene Staub findet als Füllstoff Verwendung. Das gereinigte Abgas verlässt die Anlage über den Kamin in die Umgebung.

Produktionsaufträge, die die maximal genehmigte Produktionsleistung (Volllast) der jeweiligen Anlage erfordern und für die vorgeschriebenen, wiederkehrenden Emissionsmessungen notwendig sind, liegen den Asphaltmischanlagen selten vor.

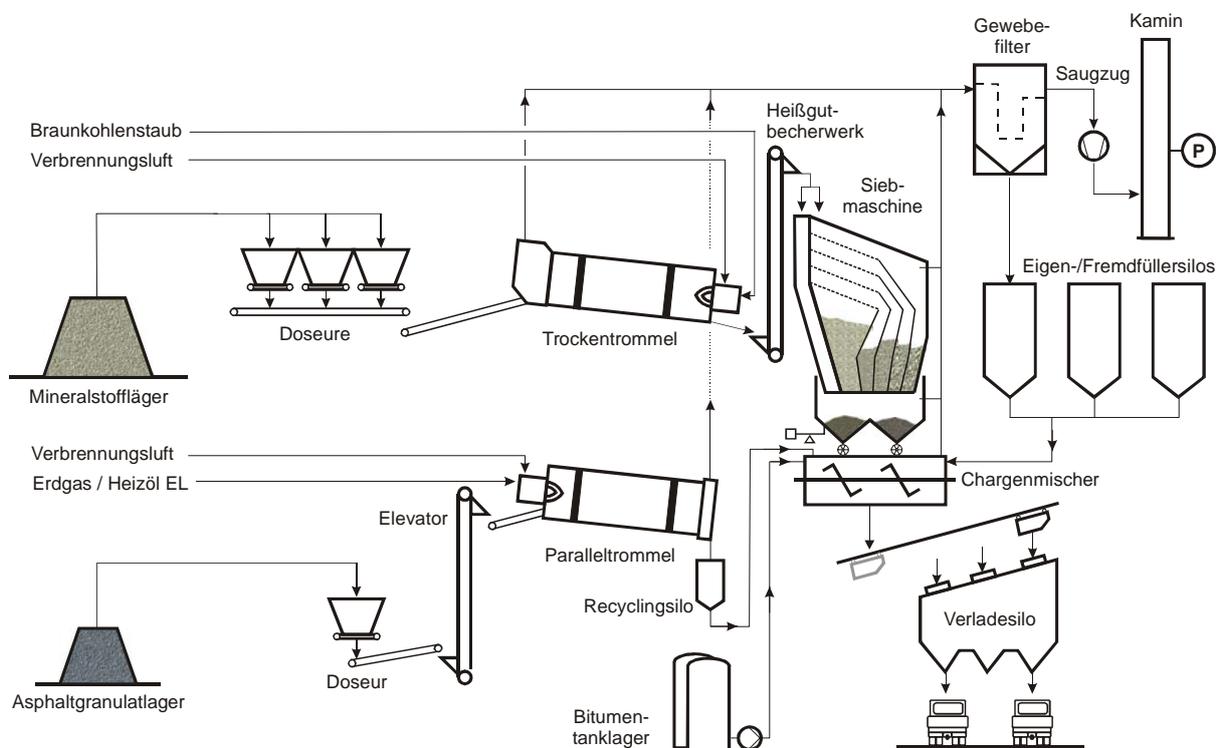


Abb. 1: Asphaltmischanlage – Allgemeines Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) im Reingas (am Kamin)

3.1 Regulärer Anlagenbetrieb

Die charakteristischen Auslegungsdaten der drei untersuchten Asphaltemischanlagen sind in Tab. 1 gegenübergestellt. Die angegebenen Brennerleistungen entsprechen dem Volllastbetrieb unter Einsatz des maximal genehmigten Brennstoffdurchsatzes. In den in Trocken- und Paralleltrommel eingebauten Mehrstoffbrennern können verschiedene Brennstoffe zum Einsatz kommen.

Während der Untersuchungen wurde an allen drei Anlagen in der Trockentrommel der Regelbrennstoff Braunkohlenstaub und in der Paralleltrommel Heizöl EL (Anlage 1) bzw. Erdgas (Anlagen 2 und 3) eingesetzt. Das produzierte Asphaltemischgut war jeweils Tragschicht der Bezeichnung Bitukies

Tab. 1: Übersicht über wesentliche Kenndaten der untersuchten Asphaltemischanlagen; BKS: Braunkohlenstaub; fett: während der Messkampagnen eingesetzte Brennstoffe

			Anlage 1	Anlage 2	Anlage 3
Max. Asphaltdurchsatz ^{*)}			160 Mg/h	200 Mg/h	240 Mg/h
Max. Recyclinganteil ^{*)}			50 Mass.-%	60 Mass.-%	70 Mass.-%
Trocken-trommel	Brennerleistung		16,6 MW	16,6 MW	20,4 MW
	Max. Brennstoffdurchsatz ^{*)}	BKS Heizöl EL Erdgas	2.800 kg/h (1.400 kg/h) –	2.800 kg/h (1.400 kg/h) (1.880 m ³ /h)	3.500 kg/h (1.800 kg/h) (2.100 m ³ /h)
Parallel-trommel	Brennerleistung		9,4 MW	9,7 MW	12,8 MW
	Max. Brennstoffdurchsatz ^{*)}	Heizöl EL Erdgas	800 kg/h –	(821 kg/h) 970 m³/h	(1.100 kg/h) 1.275 m³/h

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid

Tab. 2: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen an den Asphaltemischanlagen; MK: Messkampagne

	Anlage 1	Anlage 2		Anlage 3		Grenzwerte [6]
		MK 1	MK 2	MK 1	MK 2	
Abgasrandparameter						
Temperatur [°C]	106	113 ^{***)}	85	98	93	–
Volumenstrom [m ³ /h]	39.000	34.700	45.000	37.500	27.100	–
Abgaskonzentrationen						
O ₂ [Vol.-%]	14,9	10,7	14,3	13,8	13,6	–
CO ₂ [Vol.-%]	6,1	8,3	6,1	6,6	7,7	–
CO [g/m ³] ^{*)}	0,48	0,47	0,45	0,27	0,58	1,0 ^{**)}
SO ₂ [g/m ³] ^{*)}	0,0057	0,027	0,008	0,0026	0,025	0,35 ^{***)}
Σ NO, NO ₂ [g/m ³] ^{*)}	0,20	0,10	0,16	0,18	0,29	0,35
C _{org} [g/m ³] ^{*)}	0,030	0,090 ^{****)}	0,032	0,021	–	0,10 (0,050) ^{*****)}

^{*)} Mittelwerte sind gemäß [6] auf 17 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{**)} gültig für den Einsatz von Braunkohlenstaub in der Trockentrommel, sonst 0,50 mg/m³

^{***)} gültig für Σ SO₂, SO₃

^{****)} Überlastbetrieb: Produktionsleistung mit überhöhter Material- und Trocknungstemperatur!

^{*****)} in Klammern: seit 30. Oktober 2007 auch für Altanlagen gültiger Grenzwert

Tab. 2 (Forts.): Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen an den Asphaltemischanlagen; MK: Messkampagne

	Anlage 1	Anlage 2		Anlage 3		Grenzwerte [6]
		MK 1	MK 2	MK 1	MK 2	
Abgaskonzentrationen						
PAK [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	252	3.390 ^{****)}	–	145	–	–
PCB _{Indikator} [ng/m^3]	3,5	125 ^{****)}	–	13,2	–	–
PCB _{coplanar} [ng WHO-TEQ/ m^3]	0,00003	0,0048 ^{****)}	–	0,00019	–	–
PCDD/F [ng I-TEQ/ m^3]	0,00001	0,0082 ^{****)}	–	0,00034	–	–
Σ Benzol, 1,3-Butadien [mg/m^3]	0,58	4,6 ^{****)}	0,89	0,61	–	5
Gesamtstaub [mg/m^3]	5,2	28,2	7,8	59,8	1,9	20

****) Überlastbetrieb: Produktionsleistung mit überhöhter Material- und Trocknungstemperatur!

0/32 CS, wobei an der Anlage 1 der genehmigte, maximale Altasphaltanteil zeitweise nicht erreicht bzw. bei Anlage 3 durchwegs unterschritten wurde. An der Anlage 2 überschritt die Mischleistung an einem Tag der Regelbetriebsuntersuchungen die maximal zulässige Produktionsleistung um rund 30 %, wogegen die Anlage 3 stets um mindestens 20 % unterhalb jener lag.

Aus dem zeitweisen Überlastbetrieb während der Erstmessung resultierten an der Anlage 2 im Halbstundenmittel mehrere erhebliche Grenzwertüberschreitungen für den organischen Gesamtkohlenstoff und deutlich erhöhte Emissionen an Kohlenstoffmonoxid, PAK, PCB und PCDD/F sowie für Σ (Benzol, 1,3-Butadien), so dass die Messkampagne im Regelbetrieb etwa ein halbes Jahr später wiederholt wurde; unter Einhaltung des genehmigten Asphaltdurchsatzes lagen die Halbstundenmittelwerte der einzelnen Schadstoffkonzentrationen durchgehend unterhalb des jeweiligen Grenzwerts. Der normierte Abgasvolumenstrom differierte bei der Wiederholungsmessung (MK 2) aufgrund der geringeren Abgastemperatur und des höheren Sauerstoffgehalts deutlich von der Messkampagne 1.

Bei der ersten Regelbetriebsuntersuchung an der Anlage 3 bewirkte ein gerissenes Gewebefiltertuch stark überhöhte Staubemissionen, weshalb dort ebenfalls eine Wiederholungsmessung durchgeführt wurde. Der Unterschied zwischen den jeweils ermittelten, durchschnittlichen Volumenströmen kann anhand der Aufzeichnungen nicht erklärt werden.

Die Messergebnisse aller insgesamt fünf Regelbetriebsuntersuchungen an den drei Asphaltemischanlagen sind in Tab. 2 zusammengestellt.

3.2 An- und Abfahrbetrieb

Eine Asphaltemischanlage wird i. d. R. zu Beginn jedes Produktionstages morgens aus dem Kaltzustand angefahren und zu Betriebsschluss wieder außer Betrieb genommen; dazwischen läuft sie abhängig von der Nachfrage in Voll- oder Teillast und/oder im Stand-by-Betrieb. Mit Start eines Anfahrvorgangs aus dem kalten Anlagenstillstand gehen nacheinander die Fördereinrichtungen für das Mineralgestein und der Saugzug in Betrieb. Wenige Minuten nach dem Einschalten des Trocken- und Paralleltrommelantriebs erfolgt die Zündung beider Brenner. Nach Erreichen der für das jeweilige zu erzeugende Produkt erforderlichen Mindesttemperaturen in den Trommeln schließt sich die Inbetriebnahme der Rohstoffdosierung in die Trommeln und des Mischers an. Ab diesem Zeitpunkt läuft die Anlage chargenweise im Automatikbetrieb. In umgekehrter Reihenfolge geht der Abfahrvorgang vonstatten. Die Abb. 2 zeigt das vereinfachte Ablaufschema eines An- und Abfahrvorgangs, wobei sowohl

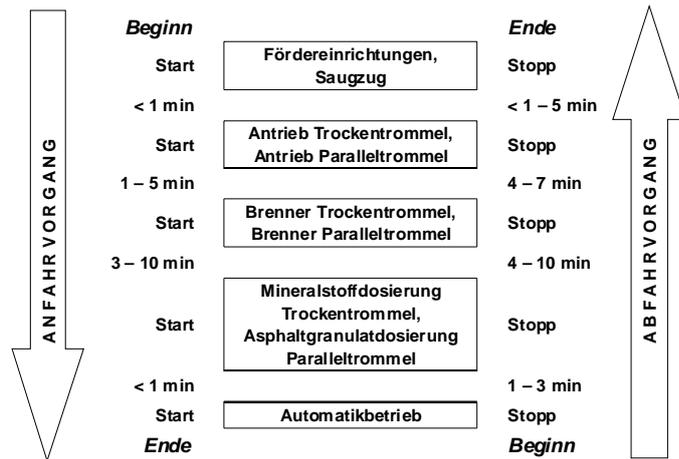


Abb. 2: Verallgemeinertes Ablaufschema von An- und Abfahrvorgängen an Asphaltmischanlagen

zwischen den als auch an jeder einzelnen Anlage teils deutliche Unterschiede in der Abfolge der In-/Außerbetriebnahme von Anlagenkomponenten auftreten können.

3.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

An den drei untersuchten Asphaltmischanlagen wurden jeweils zwei An- und Abfahrvorgänge messtechnisch begleitet. Die Verläufe der kontinuierlich aufgezeichneten Messgrößen Abgastemperatur, -volumenstrom, Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxide und organischer Gesamtkohlenstoff zeigten im Vergleich prägnante Ähnlichkeiten. Daher werden die Untersuchungsergebnisse im Folgenden anhand der in Abb. 3 dargestellten, verallgemeinerten halbquantitativen Kurven erläutert. Diese stehen beispielhaft für verschiedene Asphaltmischanlagen (mit Paralleltrommeleinsatz).

Anfahrbetrieb

Abgastemperatur. Beim Start der Anfahrvorgänge betrug die Temperatur im Kamin an den drei untersuchten Anlagen zwischen 8 °C und 15 °C (Umgebungstemperatur). Nach der sequenziellen Inbetriebnahme beider Brenner stieg die Abgastemperatur bis auf etwa 105 °C an (Ausnahme: Anlage 2, Anfahren I, bis zu 123 °C).

Abgasvolumenstrom. Der Abgasvolumenstrom der Anlage 1 erreichte innerhalb von wenigen Minuten den endgültigen Betriebspunkt. Bei den Anlagen 2 und 3 stellten sich nach dem Start des Saugzugs zunächst Maximalwerte von 100.900 m³/h (Anlage 2, Anfahren II; zu heiß gefahren mit der Folge einer Volumenstromabsenkung) bzw. 50.000 m³/h (Anlage 3, Anfahren I) ein, bevor je nach Anlage die Werte ein mittleres Niveau von 33.600 m³/h bis 40.000 m³/h erlangten.

Kohlenstoffmonoxid. Bedingt durch die aufeinander folgenden Inbetriebnahmen der Brenner in Trocken- und Paralleltrommel zeigten die Emissionen an Kohlenstoffmonoxid bei allen drei Anlagen deutliche Anstiege (Anlage 1, Anfahren II: > 2.000 mg/m³). Der weitere Verlauf war während des anhaltenden Einschwingens in den stationären Betriebszustand jeweils von Unstetigkeiten geprägt. Bei der Anlage 2 (Anfahren II) zog eine anhaltend „kalte“, unzureichende Verbrennung des Erdgasbrenners in der Paralleltrommel einen Anstieg über 7.000 mg/m³ nach sich.

Schwefeldioxid. Bei den Schwefeldioxidemissionen waren teilweise Korrelationen zum Kohlenstoffmonoxidgehalt (Konzentrationsanstieg des Schwefeldioxids bei schlechterer Verbrennung) signifikant. An den Anlagen 1 und 2 hatten die Inbetriebnahmen der beiden Brenner deutliche Auswirkungen auf den Verlauf; ansonsten lagen die Schwefeldioxidkonzentrationen auf einem niedrigen Niveau. Die Abgaskonzentrationen an Schwefeldioxid erreichten bei der Anlage 2 (Anfahren II) ein Konzentrationsniveau zwischen 202 mg/m³ und 287 mg/m³. Möglicherweise lag im Gewebefilter noch nicht genügend

kalkhaltiger Filterkuchen zur Adsorption von Schwefeldioxid vor, oder die Materialtemperatur des kalkhaltigen Mineralgesteins im Abgassystem und die Abgastemperatur waren dafür noch zu niedrig. Die Schwefeldioxidemissionen der Anlage 3 blieben überwiegend unterhalb der Bestimmungsgrenze von 5 mg/m^3 .

Stickstoffoxide. Der Stickstoffoxidgehalt stieg bei beiden Anfahrvorgängen der Anlage 1 mit der Inbetriebnahme der Brenner auf einen relativ gleichmäßigen Wert von im Mittel rd. 290 mg/m^3 (vgl. Abb. 3). Bei der Anlage 2 erreichte die Stickstoffoxidkonzentration ab dem Start des Trockentrommelbrenners jeweils Werte über 400 mg/m^3 und unterlag bis zum Ende der Anfahruntersuchung einem schwankenden Verlauf zwischen 279 mg/m^3 und 416 mg/m^3 . Innerhalb von fünf Minuten stieg bei den Anfahrmessungen an der Anlage 3 der Stickstoffoxidgehalt im Abgas auf jeweils rd. 370 mg/m^3 an. Der weitere Anfahrprozess sowie der einsetzende reguläre Anlagenbetrieb zeigten einen un stetigen Konzentrationsverlauf (evtl. Falschlufztutritt). Bis zum Ende der Anfahruntersuchung lag die Stickstoffoxidkonzentration bei durchschnittlich 380 mg/m^3 .

Organischer Gesamtkohlenstoff. Der Verlauf des organischen Gesamtkohlenstoffs war bei der Anlage 1 durch Peaks (max. 162 mg/m^3 , Anfahren I) nach der Inbetriebnahme der beiden Brenner gekennzeichnet. Bis zum Ende der Anfahruntersuchung lag der durchschnittliche Gehalt bei 32 mg/m^3 (Anfahren I) bzw. $40,4 \text{ mg/m}^3$ (Anfahren II). Bei den beiden Anfahrmessungen an der Anlage 2 folgte einer Emissionsspitze von 262 mg/m^3 bzw. 224 mg/m^3 (Anfahren I bzw. II) nach der Brennerzündung ein anhaltendes Niveau von $77,8 \text{ mg/m}^3$ (Anfahren I) bzw. 570 mg/m^3 (Anfahren II; Laststeigerung des Paralleltrommelbrenners auf 100 % bei unzulässiger Überhitzung des Altasphaltgranulats mit der Folge eines deutlich erhöhten Austritts organischer Schadstoffe aus dem Asphaltgranulat in das Abgas!). Letzterer Wert stellt eine einstündige, mehr als zehnfache Überschreitung des seit 30. Oktober 2007 für den Regelbetrieb gültigen Grenzwerts von 50 mg/m^3 [6] dar. Die Emissionen an organischem Gesamtkohlenstoff der Anlage 3 zeigten ein mit der Anlage 1 vergleichbares Verhalten auf (Peaks von jeweils rd. 300 mg/m^3 ; danach Niveau von $43,7 \text{ mg/m}^3$ bzw. $28,9 \text{ mg/m}^3$). Hierfür dürften Störungen des Verbrennungsprozesses aufgrund schwankender Verbrennungsbedingungen (Verbrennungsluftzutritt, Druckschwankungen, Brennstoffzufuhr; zu kalter Brennraum mit Störung des Brennstoffausbrandes durch den kalten Trockengut-Materialschleier, der die Brennerflammen in den Trockentrommeln behindert) und eine inhomogene Materialtrocknung und -erhitzung bzw. -überhitzung v. a. in der Paralleltrommel verantwortlich sein.

Zusammenfassung. Die Inbetriebnahme von Brennern (sprungartige Störungen der Verbrennungsbedingungen führen zu impulsartiger Antwort) als auch Laständerungen führten i. d. R. zu Unstetigkeiten im Kurvenverlauf der kontinuierlich erfassten Schadstoffe Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid und organischer Gesamtkohlenstoff. Die Spitzenwerte erreichten kurzfristig z. T. ein Mehrfaches des im Regelbetrieb vorliegenden Niveaus. Weiterhin war der Vollastbetrieb des Paralleltrommelbrenners der Anlage 2 verantwortlich für den Anstieg der Kohlenstoffmonoxid-, Schwefeldioxid- und organischen Gesamtkohlenstoffemissionen. In Anbetracht der kurzen Dauer der einzelnen Anfahrsschritte sind die hierbei gemessenen, etwas erhöhten Abgasemissionen ohne größere Bedeutung.

Abfahrbetrieb

An der Anlage 1 wurde im Regelbetrieb unmittelbar vor der ersten Abfahruntersuchung eine Optimierung der beiden Brenner in Trocken- und Paralleltrommel von der Herstellerfirma durchgeführt. Daher ist eine gewisse Einschränkung der Gültigkeit der zu Beginn des Abfahrens I registrierten Konzentrationsverläufe grundsätzlich gegeben. Demgegenüber wurde vor dem Abfahrvorgang I an der Anlage 2 Asphalt ohne Altasphaltanteil produziert; d. h., die Paralleltrommel war bei der Abfahrbeprobung außer Betrieb.

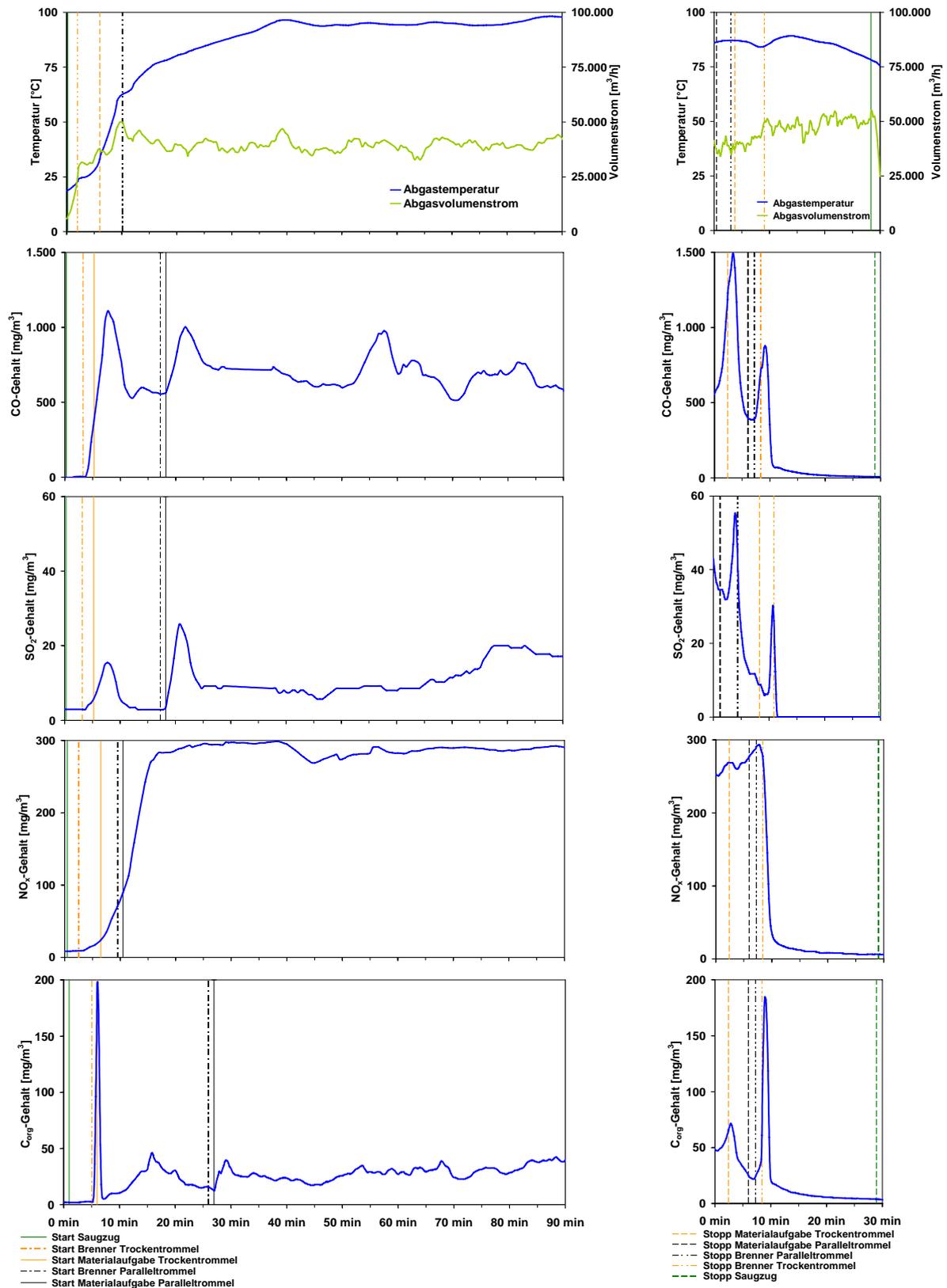


Abb. 3: Halbquantitative Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff während des Anlinks (links) und Abfahrens (rechts) von 3 Asphaltmischanlagen (pro Anlage je zwei durchgeführte Messungen)

Abgastemperatur. An der Anlage 1 betrug die Abgastemperatur zu Beginn der beiden untersuchten Abfahrvorgänge 94 °C bzw. 101°C. Bis zum Abschalten des Saugzugs sank sie jeweils auf ca. 85 °C. Bei der Anlage 2 fiel die Abgastemperatur während des Abfahrens I langsam und linear von 89 °C auf 67 °C und während des Abfahrens II von anfänglich 126 °C (Überlastbetrieb mit Materialüberhitzung!) auf 68 °C. An der Anlage 3 war jeweils ein temporärer Temperaturanstieg nach den Materialaufgabestopps signifikant. Erst nach dem Abschalten des Mehrstoffbrenners sank die Abgastemperatur auf durchschnittlich 75 °C.

Abgasvolumenstrom. Der Abgasvolumenstrom blieb bei allen Abfahrvorgängen nahezu unbeeinflusst von den einzelnen Verfahrensschritten. An den Anlagen 1 und 2 lag er bei etwa 30.000 m³/h und fiel erst nach dem Abstellen des Saugzugs auf 10.000 m³/h ab. Ein etwas anderes Bild lieferte der zweite Abfahrvorgang an der Anlage 3: ausgehend von 105.200 m³/h fiel der Abgasvolumenstrom zunächst um etwa 30.000 m³/h ab; bis zum Stopp des Trockentrommelbrenners erhöhte er sich auf 131.300 m³/h. In der Zeit bis zum Abschalten des Saugzugs betrug das durchschnittliche Niveau 41.600 m³/h.

Kohlenstoffmonoxid. Bei der Anlage 1 (Abfahren I) zeigten der Stopp der Materialaufgabe und das Abschalten des Ölbrenners (Paralleltrommel) keinen positiven Einfluss auf den Kohlenstoffmonoxidverlauf. Beim Abfahrvorgang II war die Emissionssituation deutlich verbessert (womöglich als Folge der Brenneroptimierung am Vortag). Das Abstellen der Brenner an Anlage 2 und 3 war von Peaks bis zu maximal 2.450 mg/m³ begleitet; danach fiel der Kohlenstoffmonoxidgehalt i. d. R. unter die Bestimmungsgrenze von 5 mg/m³ ab.

Schwefeldioxid. Die Schwefeldioxidemission der Anlage 1 (Abfahren I) erreichte nach dem Abschalten des Paralleltrommelbrenners eine Konzentrationsspitze von 56 mg/m³, da die „abgasverdünnenden“ Schwefeldioxid-ärmeren Abgasanteile aus der Paralleltrommel wegfielen. Am Ende des Abfahrens wurden Werte um durchschnittlich 10 mg/m³ gemessen. Beim Abfahren II lagen die Emissionen generell auf niedrigem Niveau von unter 23 mg/m³. Die Schwefeldioxidkurven der Anlage 2 zeigten Korrelationen zum Kohlenstoffmonoxidgehalt: die Emissionen erreichten kurzfristig maximal 88 mg/m³ und fielen danach bis unter die Bestimmungsgrenze von 5 mg/m³. An der Anlage 3 war während beider Abfahrvorgänge nahezu kein Schwefeldioxid bestimmbar. Dies ist ein Indiz für den sehr geringen Schwefelgehalt in den Einsatz- und Brennstoffen (Paralleltrommel mit Erdgas befeuert) bzw. vor allem für die Absorption im Kalk- und Filterstaub.

Stickstoffoxide. Bis zum Abschalten des ersten Brenners (Paralleltrommel) kam es durchgehend zu einem mäßigen Anstieg des Stickstoffoxidgehalts (Ausnahme: Anlage 2, Abfahren I, nur Trockentrommel in Betrieb), der zwischen 270 mg/m³ und 440 mg/m³ erreichte. Mit dem Abschalten des zweiten Brenners sank die Stickstoffoxidkonzentration bis unter die Bestimmungsgrenze von 5 mg/m³.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Der Abgasgehalt an organischem Gesamtkohlenstoff der Anlage 1 erreichte nach dem Stopp des Paralleltrommelbrenners kurzzeitig 180 mg/m³. Nach dem Leerlaufen von Parallel- und Trockentrommel lagen die Werte um 4 mg/m³ (Abfahren I). Infolge der Wartungsarbeiten zeigten die Werte im Vergleich zur ersten Abfahruntersuchung eine deutliche Verbesserung. Bei der Anlage 2 waren die Spitzenwerte zwischen 27,5 mg/m³ und 47,2 mg/m³ weniger stark ausgeprägt. An der Anlage 3 konnten signifikante Ähnlichkeiten zum Kohlenstoffmonoxidverlauf festgestellt werden. Dabei trat nach dem Abschalten des Trockentrommelbrenners ein Peak von 315 mg/m³ auf.

Zusammenfassung. Insbesondere das Abschalten der Brenner (unvollständige Verbrennung beim Erlöschen der Brennerflamme) und der Materialaufgabestopp zogen i. d. R. Spitzenwerte im Kurvenverlauf nach sich, die wie beim Anfahrprozedere z. T. ein Mehrfaches des im Regelbetrieb vorliegenden Niveaus erreichten. Aufgrund der kurzen Dauer der Emissionsspitzen sind die Abfahrvorgänge emissionsseitig bedeutungslos.

3.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

An den drei Asphaltmischanlagen wurde summarisch über die untersuchten Ab- und Anfahrvorgänge jeweils eine PAK-, PCB-, PCDD/F-Probenahme vorgenommen. Da bisher noch keine Erfahrungswerte zur Emissionsentwicklung während eines Anfahrprozesses vorlagen, wurde die Probenahme an der Anlage 1 vom Start des Saugzugs bis zum Erreichen der geforderten Abgastemperaturen in Trocken- und Paralleltrommel veranschlagt und betrug somit ca. 25 Minuten. Aus den Aufzeichnungen der kontinuierlich erfassten Messgrößen war ein weit darüber hinaus gehendes Einschwingen in den stationären Anlagenbetrieb zu erkennen. Daher erstreckten sich die Messzeiträume an den folgenden Anlagen 2 und 3 über insgesamt 1,5 Stunden, um diesen „Einschwingvorgang“ mit zu erfassen.

In Abb. 4 sind die mittleren Abgasgehalte an PAK, PCB und PCDD/F der insgesamt sechs An- und Abfahruntersuchungen an den drei Asphaltmischanlagen vergleichend dargestellt.

An der Anlage 1 kam es etwa ½ Stunde vor dem zweiten beprobten Abfahrprozess zu einer Betriebsstörung: Ausfall des Saugzugs mit Stillstand beider Trommeln. Die gesamte Anlage musste daraufhin neu gestartet werden.

Wie bereits in Abschnitt 3.2.1 erwähnt, war bei der ersten Abfahrmessung an der Anlage 2 lediglich die Trockentrommel in Betrieb. Während des zweiten Anfahrvorgangs dieser Anlage wurde die Last des Paralleltrommelbrenners aus uns nicht bekannten Gründen unüblicherweise sofort und anhaltend auf 100 % hochgefahren mit der Folge sehr hoher Emissionen organischer Kohlenstoffverbindungen.

PAK. An der Anlage 1 lagen die mittleren PAK-Gehalte im An- und Abfahrbetrieb auf ähnlichem Niveau ($< 200 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Nur bei der zweiten Abfahrbeprobung wurde ein erhöhter Wert von $1.010 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Die Ursache ist im o. g. vorangegangenen Ausfall des Saugzugs zu sehen: möglicherweise waren dadurch beide Trommeln nicht richtig temperiert bzw. überhitzt, weshalb mehr PAK freigesetzt wurden. Um bis zu zwei Größenordnungen höher lagen die PAK-Gehalte im Anfahrbetrieb der Anlage 2, wobei beim Anfahren II wohl der o. g., schnell erreichte Überlastbetrieb der Paralleltrommel die verstärkte Freisetzung von PAK aus dem überhitzten Altasphalt bedingte. An der Anlage 3 wurden die insgesamt niedrigsten PAK-Konzentrationen im Abgas gemessen. Die Anlage wurde untypisch verhalten (80 % der Volllast) betrieben mit sehr niedrigen Materialtemperaturen.

Indikator-PCB. Anders als bei den PAK wurde aufgrund der o. g. Betriebsstörung der insgesamt höchste Wert an Indikator-PCB bei der zweiten Abfahruntersuchung der Anlage 1 festgestellt. Bei der Anlage 2 lagen die Konzentrationen zwischen $7,9 \text{ ng}/\text{m}^3$ und $103 \text{ ng}/\text{m}^3$. Die Ursache für die deutlich erhöhten Werte der zweiten Anfahruntersuchung dürfte vor allem in dem o. g. unzulässigen Überlastbetrieb der Paralleltrommel mit Überhitzung des Altasphaltgranulats liegen. Die Anlage 3 emittierte während der beprobten An- und Abfahrprozesse die insgesamt niedrigsten Indikator-PCB-Gehalte (unterdurchschnittliche Auslastung).

Coplanare PCB. Das Bild der Abgasgehalte an coplanaren PCB der Anlage 1 entsprach denen der Indikator-PCB. Die insgesamt höchsten Werte lagen bei der Anlage 2 aufgrund des unzulässigen Überlastbetriebs während des zweiten Anfahrbetriebs vor. Auf einem niedrigen Niveau befanden sich die Abgaskonzentrationen an coplanaren PCB der Anlage 3 (unterdurchschnittliche Auslastung).

PCDD/F. An der Anlage 1 wurden bei der ersten Abfahruntersuchung $0,0038 \text{ ng I-TEQ}/\text{m}^3$ gemessen. Sämtliche anderen Werte dieser Anlage lagen um mindestens eine Zehnerpotenz niedriger. Die geringen Abfahrmissionen des ersten Anfahrvorgangs der Anlage 2 sind auf den alleinigen Betrieb der Trockentrommel zurückzuführen. Beim zweiten Anfahrvorgang an der Anlage 2 resultierte der deutlich erhöhte Wert wiederum aus dem Überlastbetrieb der Paralleltrommel. Generell auf sehr niedrigem Niveau befanden sich die PCDD/F-Konzentrationen im Abgas der Anlage 3. Bei drei der sechs Beprobungen (Anlage 1, Anfahren II; Anlage 3, Anfahren II und Abfahren I) lagen die Konzentrationen aller Einzelkongenere unterhalb ihrer jeweiligen Bestimmungsgrenze.

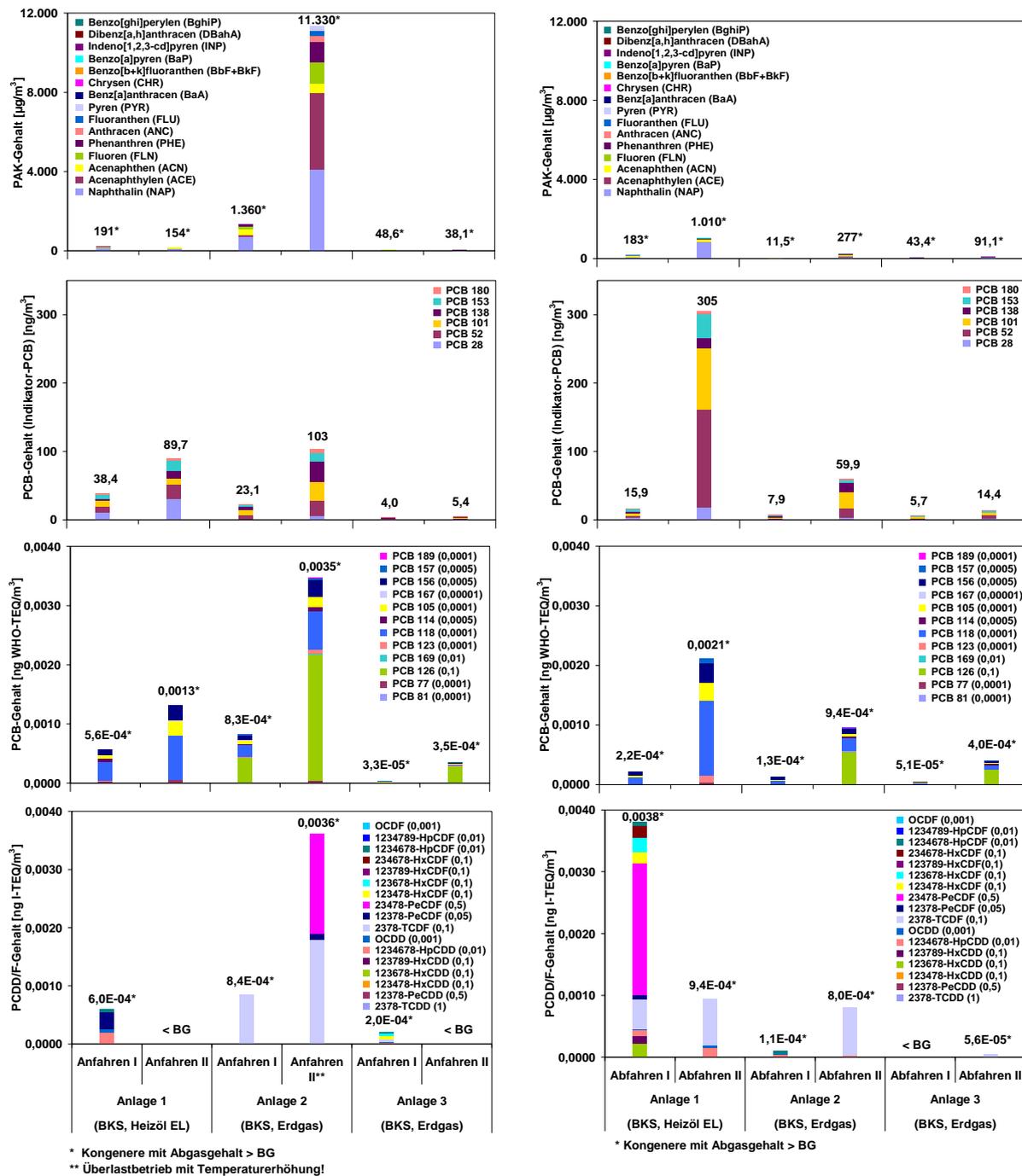


Abb. 4: Abgasgehalte an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F während je zwei An- (links) und Abfahrvorgängen (rechts) an den Asphaltmischanlagen mit eingesetzten Brennstoffen; BG: Bestimmungsgrenze, BKS: Braunkohlestaub

Zusammenfassung. Die Abgaskonzentrationen an PAK, PCB und PCDD/F weichen in ihren Größenordnungen z. T. um mehrere Zehnerpotenzen voneinander ab. Dies erfordert eine differenzierte Betrachtung der Emissionsrelevanz. Während bei der Anlage 1 kaum Auffälligkeiten auftraten (Ausnahme: Indikator-PCB, Abfahren II), verursachte der an der Anlage 2 vom Betreiber bewusst in Kauf genommene unzulässige Überlastbetrieb der Paralleltrommel stark erhöhte Emissionen. Demgegenüber ist davon auszugehen, dass der Teillastbetrieb der Anlage 3 (verminderte Produktionsleistung, niedrige Prozessstemperatur, schonende Trocknung) in allen An-/Abfahrvorgängen mit geringen Gehalten an den persistenten organischen Stoffen ein möglicherweise nicht repräsentatives Bild der tatsächlichen Emissionssituation in der Praxis zeigt.

4 Glasschümanlage

Beim Glasschümprozess wird aus dem Altglasanteil, der in der Glasindustrie aus technischen Gründen keine Verwendung mehr findet, ein hochwertiger Baustoff (Blähglasgranulat) produziert. Die untersuchte Glasschümanlage ist immissionsschutzrechtlich nicht genehmigungsbedürftig, da die Brennerleistung der Drehrohröfen unter der in der 4. BImSchV (Anhang Nr. 1.2 c) [7] angeführten Leistungsgrenze von 20 MW liegt und die Anlage nicht unter Nr. 2.8 des Anhangs der 4. BImSchV (Anlagen zur Herstellung von Glas) eingestuft ist. Die Abb. 5 zeigt eine Übersicht über den verfahrenstechnischen Prozess der Blähglasgranulatproduktion.

Per Lkw angeliefertes, von organischen Anhaftungen größtenteils befreites Altglas wird in einem mit Erdgas befeuerten Drehrohröfen im Gegenstrom bei 125 °C bis 130 °C getrocknet. In Kugelmühlen folgt das Aufmahlen des Rohmaterials. Das Feingut (Glasmehl) wird in einem Ansatzbehälter mit Wasser, Binde- (Natriumsilikat) und Blähmittel zu einer homogenen Masse (Schlicker) vermischt. Ein Teil des Schlickers gelangt auf einen Granulierteller und danach zur Trocknung bei 200 °C bis 400 °C in ein mit Erdgas befeuertes Drehrohr (Gleichstrom). Die Herstellung feinerer Granulatkörnungen findet in einem mit 450 °C heißer Luft betriebenen Zyklonsprühtrockner statt. Nach der Klassierung der Granulate in einzelne Brauchkornklassen (zwischen 0,25 mm und 16 mm) sowie Unter-/Überkorn werden sie in entsprechende Silos überführt. Von dort erfolgt die Dosierung zusammen mit Trennmittel (Kaolin), das ein Verkleben der Granulatpartikel während des Blähprozesses verhindert, in eines von drei mit Erdgasbrennern betriebenen Schümp- bzw. Drehrohren (Gegenstrom). Das bei 800 °C bis 900 °C entstehende Blähglasgranulat fällt am Drehrohrende in einen Kühler (konvektive Kühlung mit Umgebungsluft auf 70 °C), dem eine Messung der Schüttdichte und die Klassierung in Basis- und Sonderkörnungen folgt.

Die an den einzelnen Betriebsstationen entstehende Abluft wird abgesaugt, Gewebefiltern zugeführt und auf drei Kamine verteilt. Die Messungen im Ab-, Anfahr- und Regelbetrieb erfolgten an der Abgasrohrleitung des Glasschümpdrehrohrs III nach Gewebefilter und Saugzug vor der Einmündung in den Kamin II.

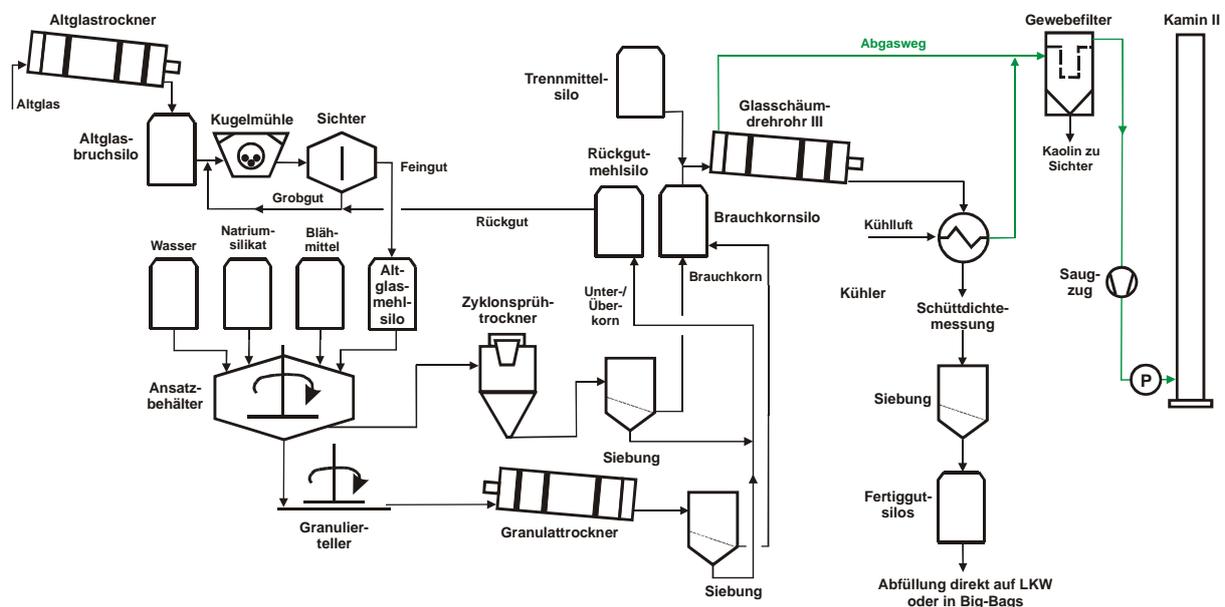


Abb. 5: Glasschümanlage – Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) nach dem Glasschümpdrehrohr III im Reingas (vor Kamin)

4.1 Regulärer Anlagenbetrieb

Unmittelbar vor der Abfahruntersuchung an der Glasschäumenlage erfolgte eine dreistündige Emissionsmessung im Regelbetrieb. In Tab. 3 sind die für den regulären Betrieb des beprobten Glasschäumdrehrohrs III gültigen Kenndaten zusammengestellt. Die Tab. 4 gibt die über die Regelbetriebsuntersuchung gemittelten Ergebnisse der gemessenen Abgasrandparameter und -konzentrationen wieder. Da die Glasschäumenlage – wie eingangs erwähnt – immissionsschutzrechtlich nicht genehmigungspflichtig ist, sind keine Emissionsgrenzwerte vorgegeben.

Tab. 3: Übersicht über wesentliche Kenndaten des Glasschäumdrehrohrs III der Glasschäumenlage

		Auslegungsdaten
Max. Durchsatz		2,5 Mg/h (Produkt und Trennmittel)
Drehzahl		4 – 4,5 min ⁻¹
Einsatzstoffe		Altglasmehl, Wasser, Binde- (Natriumsilikat), Bläh-, Trennmittel (Kaolin)
Brenner	Brennstoff	Erdgas
	Brennerleistung	1,4 MW
	Max. Brennstoffdurchsatz	122 m ³ /h

Tab. 4: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchung der Glasschäumenlage; BG: Bestimmungsgrenze

Abgasrandparameter	
Volumenstrom [m ³ /h]	12.000
Temperatur [°C]	155
Abgaskonzentrationen	
O ₂ [Vol.-%]	19,3
CO ₂ [Vol.-%]	1,0
CO [mg/m ³]	79,4
SO ₂ [mg/m ³]	< 5
Σ NO, NO ₂ [mg/m ³]	389
C _{org} [mg/m ³]	25,4
PAK [µg/m ³]	44,8
Indikator-PCB [ng/m ³]	60,0
PCB _{coplanar} [ng WHO-TEQ/m ³]	0,0045
PCDD/F [ng I-TEQ/m ³]	0,066

4.2 An- und Abfahrbetrieb

Die untersuchte Glasschäumenanlage wird i. d. R. am Ende jeder Woche, im Sommer meist alle zwei Wochen heruntergefahren und zu Anfang der darauf folgenden Woche wieder in Betrieb genommen. Mit Beginn eines Anfahrvorgangs werden der Saugzug und der Drehrohrantrieb gestartet, vgl. Abb. 6. Kurze Zeit danach zündet der Erdgasbrenner. Nach Erreichen einer Ofentemperatur von rd. 800 °C beginnt die Rohmaterialaufgabe am Drehrohreinlauf. In umgekehrter Reihenfolge geht der Abfahrvorgang vonstatten.

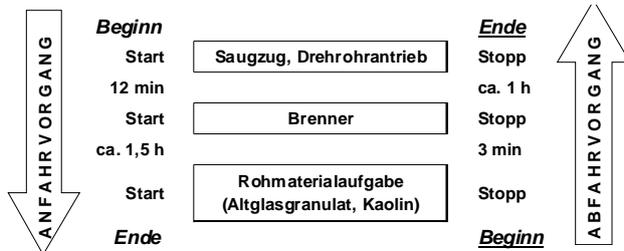


Abb. 6: Ablaufschema des An- und Abfahrvorgangs der Glasschäumenanlage

4.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

Die während je eines Ab- und Anfahrvorgangs kontinuierlich erfassten Abgasrandparameter und -konzentrationen werden anhand der in Abb. 7 dargestellten Kurvenverläufe erläutert. Zwischen beiden Messkampagnen fand eine ca. zweitägige Anlageninspektion und -wartung statt.

Der Schwefeldioxidgehalt im Abgas lag in allen Betriebszuständen unterhalb der Bestimmungsgrenze (5 mg/m³) und ist deshalb nicht dargestellt.

Anfahrbetrieb

Während der Anfahruntersuchung traten anlagenseitige Störungen auf, die den Aufheizprozess stark verzögerten. Bereits zwei Minuten nach der Brennerzündung brach eine der im Drehrohr verschweißten Einbauten („Mischblech“) ab, was das sofortige Abschalten von Brenner und Drehrohrantrieb erforderte. Etwa 50 Minuten nach dem neuerlichen Start musste die Anlage wiederum komplett außer Betrieb genommen werden, um eine defekte, aus ihrer Führung gerutschte Laufrolle des Drehrohrantriebs auszubauen und zu reparieren.

Abgastemperatur. Nach Behebung der ersten Störung bzw. der zweiten Inbetriebnahme des Brenners stieg die Abgastemperatur bis auf 89 °C an, bevor sie durch den nächsten außerplanmäßigen Brennerstopp erneut auf 38 °C zurück ging. Nach dem Beginn der Materialaufgabe näherte sie sich ausgehend von 109 °C dem Niveau des stationären Anlagenbetriebs von etwa 150 °C an.

Abgasvolumenstrom. Mit der Inbetriebnahme des Saugzugs wurde anfangs ein maximaler Abgasvolumenstrom von über 25.000 m³/h erreicht. Darauf folgte – bedingt durch die aufgetretenen Anlagenstörungen – ein unsteter Verlauf mit abnehmender Tendenz; gegen Ende des zweiten, längeren Zwischenstopps wurde der Saugzug sogar kurzzeitig abgeschaltet. Mit Erreichen des Regelbetriebs schwankte der Volumenstrom um einen Mittelwert von 13.200 m³/h.

Kohlenstoffmonoxid. Die mehrmaligen Brennerzündungen hatten Peaks im Kohlenstoffmonoxidverlauf zur Folge, denen stets ein Absinken bis unter die Bestimmungsgrenze (5 mg/m³) folgte. Auch beim Start der Rohmaterialaufgabe stieg der Kohlenstoffmonoxidgehalt sprunghaft an und erreichte im (quasi-)stationären Betrieb durchschnittlich 67,1 mg/m³.

Stickstoffoxide. Der Stickstoffoxidgehalt im Abgas resultiert vor allem aus dem beim Glasschäumenverfahren eingesetzten Blähmittel. Mit Beginn der Produktion stieg er auf durchschnittlich 328 mg/m³ an.

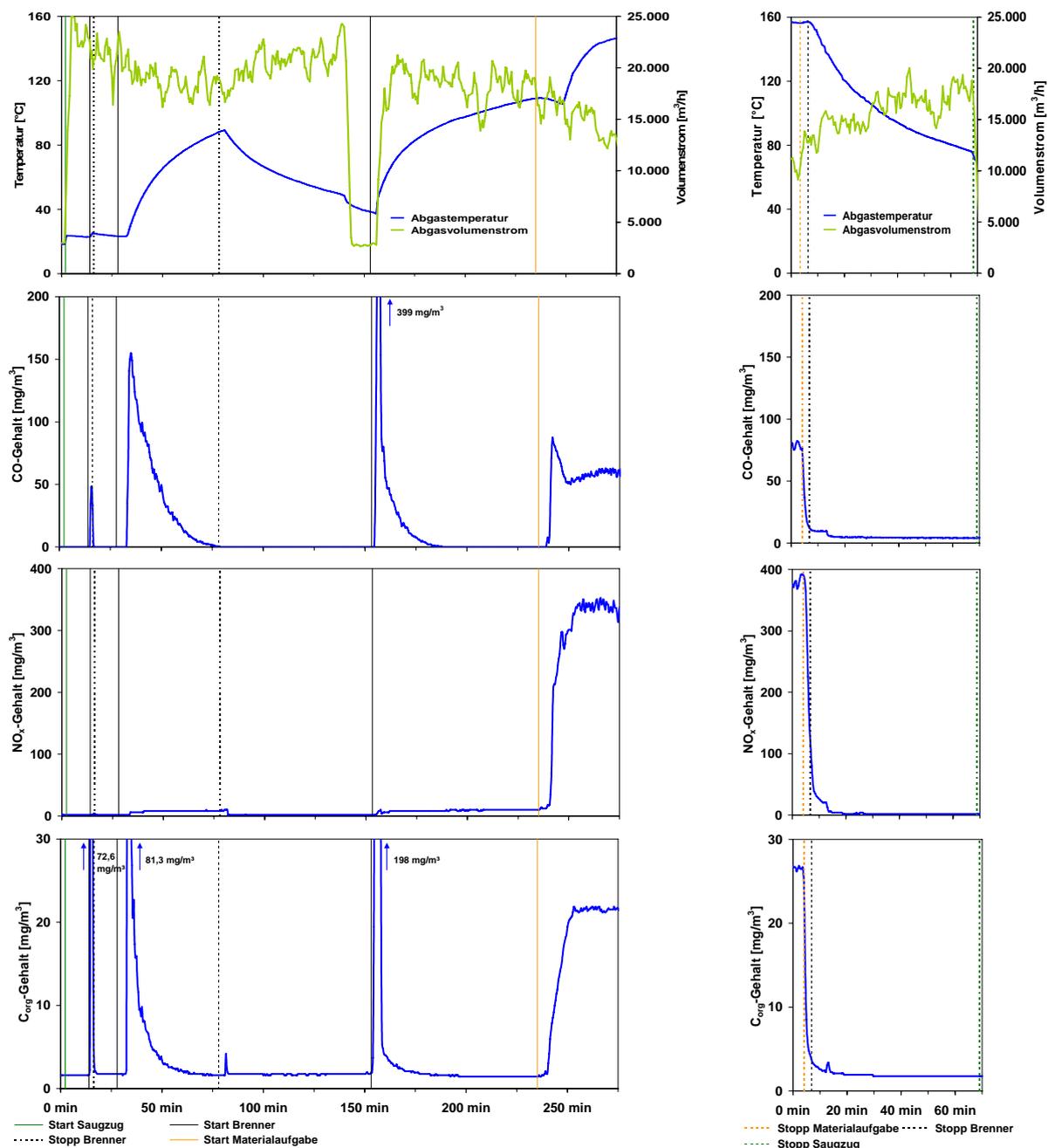


Abb. 7: Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff während des An- (links) und Abfahrens (rechts) der Glasschümanlage

Organischer Gesamtkohlenstoff. In Korrelation mit dem Kohlenstoffmonoxidgehalt bewirkte die dreimalige Brennerzündung hohe Konzentrationsspitzen. Nach dem Start der Materialaufgabe lag der Abgasgehalt an organischem Gesamtkohlenstoff bei durchschnittlich $20,4 \text{ mg/m}^3$.

Zusammenfassung. Die Ergebnisse belegen, dass die Zündung des Erdgasbrenners stets mit einer kurzzeitig unvollständigen Brennstoffoxidation einhergeht. Ansonsten sind die Abgasgehalte der kontinuierlich ermittelten Messgrößen im Anfahrbetrieb erst ab dem Zeitpunkt der Materialaufgabe relevant.

Abfahrbetrieb

Abgastemperatur. Nach Beenden der Materialaufgabe und Abschalten des Brenners fiel die Abgastemperatur – begünstigt durch eine Volumenstromerhöhung – auf 70 °C ab.

Abgasvolumenstrom. Ausgehend von etwa 12.000 m³/h wurde der Abgasvolumenstrom zur beschleunigten Abkühlung des Drehrohrs manuell um 40 % gesteigert. Das Abschalten des Saugzugs bewirkte ein Absinken bis auf den natürlichen Kaminzug.

Kohlenstoffmonoxid. Zu Beginn des Abfahrens schwankte die Kohlenstoffmonoxidkonzentration um durchschnittlich 80,8 mg/m³. Der Stopp von Materialzufuhr und Brenner hatte eine Abnahme bis unter die Bestimmungsgrenze (5 mg/m³) zur Folge.

Stickstoffoxide. Mit Beenden der Materialaufgabe entfiel die Stickstoffoxidfreisetzung aus dem Blähprozess, was einen steilen Gradienten bis unter die Bestimmungsgrenze (5 mg/m³) nach sich zog.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Analog zur Kohlenstoffmonoxid- und Stickstoffoxidkonzentration fiel der Gehalt an organischem Gesamtkohlenstoff auf ein nur geringfügig oberhalb der Bestimmungsgrenze von 1 mg/m³ liegendes Niveau.

Zusammenfassung. Die Schadstoffemissionen der kontinuierlich erfassten Messgrößen sind im Abfahrbetrieb bzw. nach Beenden der Rohmaterialaufgabe von untergeordneter Bedeutung.

4.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

Während des An- und Abfahrens fand jeweils eine summarische PAK-, PCB-, PCDD/F-Probenahme statt, die sich von der Inbetriebnahme des Saugzugs bis zum Start der Rohmaterialaufgabe in das Drehrohr bzw. vom Stopp der Materialaufgabe bis zum Abschalten des Saugzugs erstreckte. Die Ergebnisse sind in Abb. 8 vergleichend dargestellt.

PAK. Im Anfahrbetrieb lag eine sehr geringe PAK-Konzentration im Abgas vor, wobei lediglich das leichtflüchtige Kongener Naphthalin quantitativ erfasst werden konnte. Das Abfahren wies einen um zwei Größenordnungen höheren, aber ebenfalls niedrigen PAK-Abgasgehalt (nur drei Kongenere quantifizierbar) auf.

Indikator-PCB. Ähnlich den PAK waren die Abgasgehalte an Indikator-PCB sowohl im An- wie auch im Abfahrbetrieb gegenüber dem regulären Anlagenbetrieb (vgl. Tab. 4) relativ gering.

Coplanare PCB. Aus den Abgasuntersuchungen im An-/Abfahrbetrieb ergaben sich für die coplanaren PCB Zahlenwerte von vernachlässigbarer Größenordnung.

PCDD/F. Der PCDD/F-Abgasgehalt lag während des Abfahrens um den Faktor 3.750 über dem Wert des Anfahrens, aber um eine Größenordnung unter dem der Regelbetriebsbeobachtung (vgl. Tab. 4).

Zusammenfassung. Die diskontinuierlich ermittelten Abgasgehalte der persistenten organischen Verbindungen waren im Ab- gegenüber dem Anfahrbetrieb um bis zu drei Zehnerpotenzen höher. Insgesamt blieb das Niveau allerdings stets niedrig.

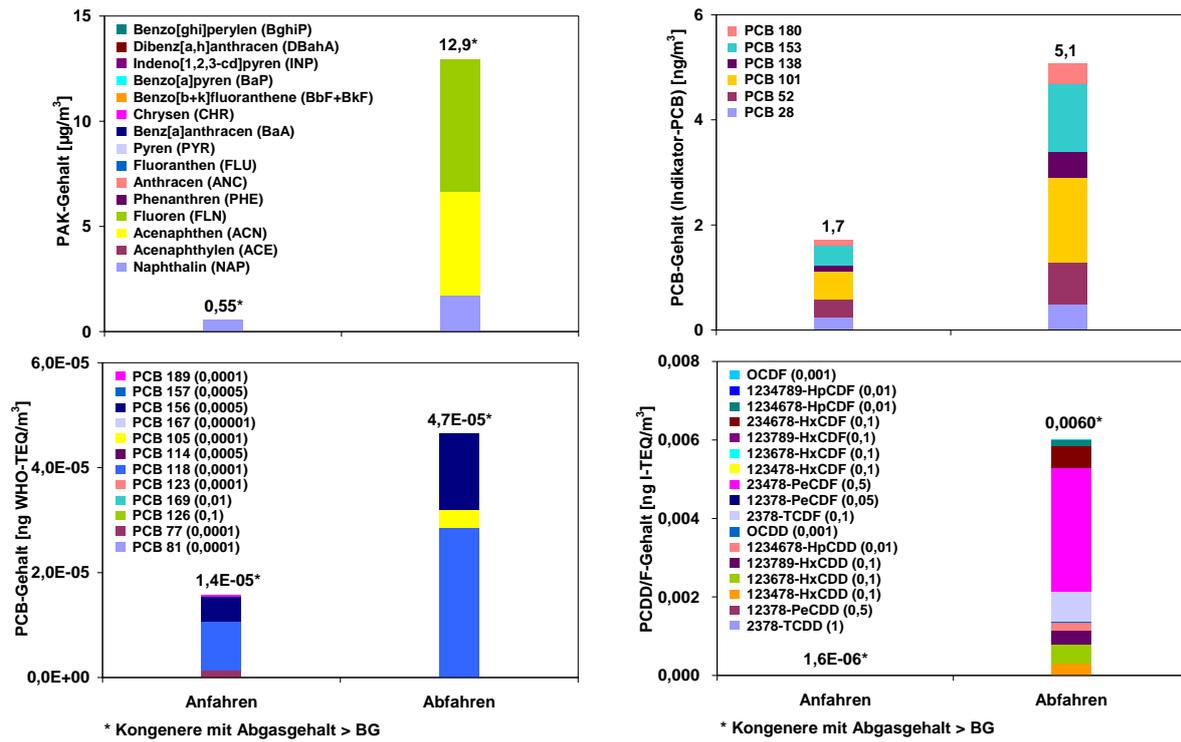


Abb. 8: Abgasgehalte an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F während des An- und Abfahrens der Glasschäumenanlage; BG: Bestimmungsgrenze

5 Zementwerk

Im Jahr 2006 wurde in Deutschland in 58 Werken (6 davon in Bayern) insgesamt 33,5 Mio. Mg Zement produziert [8]. Das verfahrenstechnische Schema des untersuchten Zementwerks ist in Abb. 9 dargestellt. Die zur Zementherstellung notwendigen Rohstoffe Kalkstein (Kalziumcarbonat) und Tonerde (Silizium-, Aluminium- und Eisenoxid) werden mit einem Brecher grob und anschließend in einer Mühle mit integriertem Sieber zu einem mehlfeinen Pulver zerkleinert. Mithilfe der Abgasenthalpie aus dem Verbrennungsprozess (Drehofen) wird im sog. Verbundbetrieb das Mahlprodukt in der Rohmühle zeitgleich getrocknet. Die mit dem Abgasstrom aus dem Sieber getragene Feinfraktion gelangt über ein Gewebefilter zur Homogenisierung in die Rohmehlsilos. Aus dem letzten Silo wird sog. Ofenmehl abgezogen, das z. B. in einen vierstufigen Zyklonvorwärmer (Schwebegas-Wärmetauscher) dosiert und dort im Gegenstrom von den aus dem Drehofen kommenden heißen Abgasen sukzessive bis auf 850 °C erwärmt wird. Dabei findet u. a. die Abspaltung von gebundenem Kristallwasser sowie die Kalzinierung statt. Danach tritt das Ofenmehl in den mit einem Mehrstoffbrenner (Heizöl S, ggf. Sekundärrohstoff Flugasche) betriebenen Drehofen, wo es auf 1.450 °C erhitzt wird; der Kalk und die Tonerde reagieren zu dem Sinterprodukt Zementklinker. Dieser kühlt in einem mit Umgebungsluft betriebenen Wärmetauscher auf etwa 200 °C ab, bevor er in Silos eingelagert und zu Zement gemahlen wird. Die Verbrennungsgase treten am höher gelegenen Ende des Drehofens in die unterste Stufe des Zyklonvorwärmers ein und kühlen bis in die oberste Zyklonstufe sukzessive auf 375 °C ab. Entweder in einem nachgeschalteten SCR-Reaktor oder mittels einer SNCR-Einheit (Eindüsen von Ammoniakwasser) zwischen Zyklonvorwärmer und Drehofen erfolgt die Entstickung der Abgase. Im Verbundbetrieb (Mahltrocknung ein) teilt sich der Abgasstrom nach SCR-DeNOx-Anlage und Wärmetauschergebläse auf: ca. 70 Vol.-% werden der Rohmühle zugeführt, 30 Vol.-% werden im Verdampfungskühler unter Eindüsung von Wasser auf etwa 200 °C abgekühlt. Davon tritt ein Teil zur Entstaubung direkt in das Gewebefilter; der andere Teil wird mit dem Abgasstrom Richtung Rohmühle vereint. Das gereinigte Abgas gelangt über das Saugzuggebläse und den Kamin in die Umgebung. Im Bedarfsfall (z. B. bei Störungen) strömt das Abgas im Direktbetrieb (Mahltrocknung abgeschaltet) vollständig über den Verdampfungskühler in das Gewebefilter, wobei das Filter mit dem Staub aus der Rohmühle nicht beladen wird.

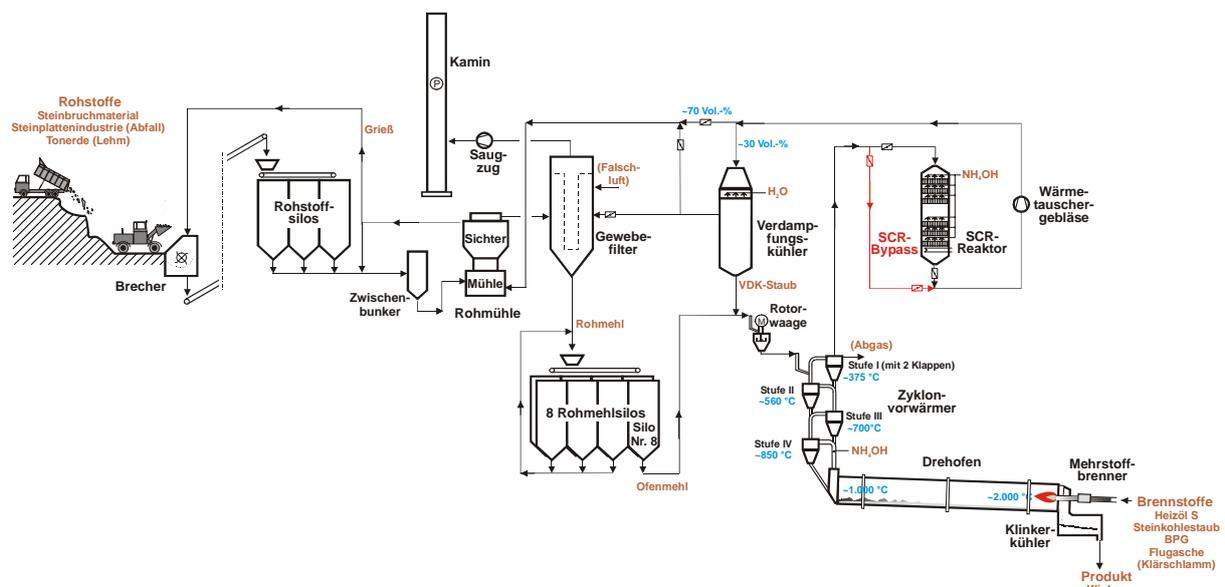


Abb. 9: Zementwerk – Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) im Reingas (am Kamin)

5.1 Regulärer Anlagenbetrieb

Am untersuchten Zementwerk wurde eine Woche nach dem abgeschlossenen Anfahrvorgang zum Vergleich der Regelbetrieb über sechs Stunden messtechnisch begleitet. In Tab. 5 sind charakteristische Betriebskenngrößen des regulären Anlagenbetriebs dargestellt. Die angegebene Brennerleistung entspricht dem Volllastbetrieb. Neben dem Regelbrennstoff Heizöl S ist der Einsatz von Sekundärbrennstoff (EBS) bis zu einem Anteil von 60 % an der Feuerungswärmeleistung zulässig; während der Messkampagne wurde kein EBS eingesetzt. Je nach Verfügbarkeit wird zudem Flugasche in den Brenner mit eingedüst. Die entsprechenden Mittelwerte der Messgrößen zeigt Tab. 6.

Gleich zu Beginn der Regelbetriebsbeobachtung trat eine Störung auf, die für einen Zeitraum von 35 Minuten die Umschaltung der Anlage in den Direktbetrieb erforderte. Infolge dessen lagen hinsichtlich der Stickstoffoxide vier von zwölf Halbstundenmittelwerten (max. 1.325 mg/m^3) höher als der Tagesmittelgrenzwert von 500 mg/m^3 .

Tab. 5: Übersicht über wesentliche Kenndaten des Zementwerks

		Auslegungsdaten
Max. Durchsatz		94 Mg/h Ofenmehl
Drehzahl		3 min^{-1}
Brennleistung		1.500 Mg/d Klinker
Einsatzstoffe		Kalkstein, Tonerdemineralien
Brenner	Brennstoff	Heizöl S
	Brennerleistung	64 MW
	Max. Brennstoffdurchsatz	Ca. 4.800 kg/h

Tab. 6: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchung des Zementwerks

		Grenzwerte: HMW ^{*)} / TMW ^{*)}	
Abgasrandparameter			
Volumenstrom [m^3/h]	143.500	–	
Temperatur [$^{\circ}\text{C}$]	100	–	
Abgaskonzentrationen			
O ₂ [Vol.-%]	11,3	–	
CO ₂ [Vol.-%]	16,8	–	
CO [mg/m^3]	117	–	
SO ₂ [mg/m^3] ^{**)}	1,3	200 ^{***)} / 50 ^{***)}	
$\Sigma \text{NO, NO}_2$ [mg/m^3] ^{**)}	566	1.000 / 500	
C _{org} [mg/m^3]	15,3	–	
HCl [mg/m^3] ^{**)}	< 0,16	60 / 10	

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid (HMW: Halbstundenmittelwert, TMW: Tagesmittelwert)

^{**)} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid auf 10,4 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{***)} gültig für $\Sigma \text{SO}_2, \text{SO}_3$

Tab. 6 (Forts.): Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchung des Zementwerks

		Grenzwerte: HMW ^{*)} / TMW ^{*)}
Abgaskonzentrationen		
HF [mg/m ³] ^{**)}	< 0,16	4 / 1
Hg [mg/m ³] ^{**)}	0,025	0,05 / 0,03
Σ Cd, Tl [mg/m ³] ^{**)}	0,0026	0,03
Σ As, Co, Cr, Cu, Mn, Ni, Pb, Sb, Sn, V [mg/m ³] ^{**)}	0,014	0,4
Σ As, Cd, Co, Cr [mg/m ³] ^{**)}	0,0039	0,05
PAK [µg/m ³]	37,8	–
Indikator-PCB [ng/m ³]	4,0	–
PCB _{coplanar} [ng WHO-TEQ/m ³]	1,5E-04	–
PCDD/F [ng I-TEQ/m ³] ^{**)}	1,6E-04	0,05
Gesamtstaub [mg/m ³] ^{**)}	3,0	36 / 16

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid (HMW: Halbstundenmittelwert, TMW: Tagesmittelwert)

^{**)} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid auf 10,4 Vol.-% Sauerstoff bezogen

5.2 Anfahrbetrieb

Nach jeweils einer Reisezeit von rd. einem Jahr und der sich anschließenden umfangreichen Anlagenrevision geht ein Zementwerk wieder in Betrieb. Der Aufheizvorgang beginnt mit dem Zünden des Brenners mit Heizöl EL (Durchsatz ca. 350 kg/h) zum Trocknen und Aushärten des Schamotts, bis eine Ofeneingangstemperatur von rd. 175 °C erreicht ist (vgl. Abb. 10). Nach ca. 24 h erfolgt eine Brennstoffumstellung auf Heizöl S. Gleichzeitig wird ab diesem Zeitpunkt die Ofeneingangstemperatur (Durchsatz ca. 600 kg/h) weiter erhöht. Das Temperaturfenster von 400 °C bis 500 °C wird ca. 12 h gehalten. Danach schließt sich eine weitere Temperaturerhöhung bis auf 800 °C (Durchsatz: ca. 650 kg/h bis 1.100 kg/h) an. Die Beprobung des Anfahrbetriebs begann mit der Aufgabe von Ofenmehl (40 Mg/h) in den Drehofen (Durchsatz an Heizöl S ca. 3.500 kg/h). Ab diesem Zeitpunkt wurden die Massenströme von Ofenmehl und Brennstoff sukzessiv bis ca. 94 Mg/h bzw. 4.800 kg/h gesteigert. Beim untersuchten Anfahrvorgang traten Probleme mit der Gewebefilterabreinigung auf; die Ursache blieb zunächst unklar, siehe unten. Die Anlage musste daher temporär im Direkt- anstatt im Verbund-

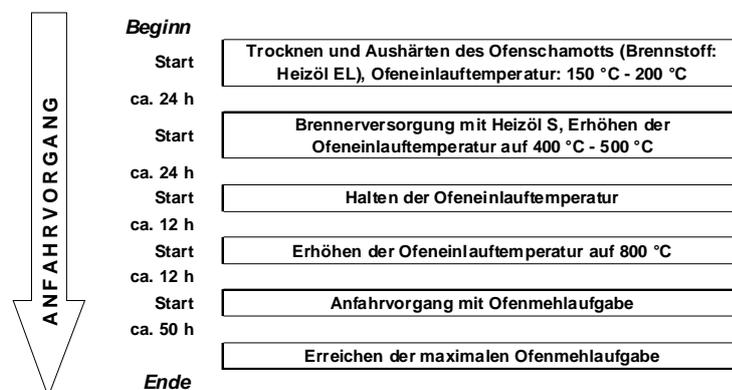


Abb. 10: Ablaufschema des Anfahrvorgangs des Zementwerks

betrieb gefahren werden. Das Umschalten auf Direktbetrieb ist charakterisiert durch peakartige Erhöhungen der Abgasrandparameter Temperatur und Volumenstrom. Etwa 21 Stunden nach Beginn des Anfahrens fiel die Ofenmehldosierung aus. Für einen Zeitraum von vier Stunden wurde die Rohmehlaufgabe gestoppt, der Brennstoffdurchsatz auf ca. 1.000 kg/h abgesenkt und das Abgas gelangte über zwei Klappen in die Umgebung.

Seitens des LfU war in der Folgewoche nach dem Anfahren eine Regelbetriebsbeprobung (vgl. Tab. 6) vorgesehen. Wegen eines Schadens am Abgasventilator konnte der Regelbetrieb nicht, wie zunächst geplant, beprobt werden. Bei der Durchsicht der Anlage wurden schadhafte Pneumatikventile als Ursache der Problematik der Gewebefilterabreinigung entdeckt und ausgetauscht. Anstelle der Regelbetriebsmessung wurde nach der Schadensbehebung ein weiterer, auf vier Stunden verkürzter, Anfahrprozess gemessen. Die Regelbetriebsmessung fand tags darauf statt.

5.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

In den Diagrammen der Abb. 11 sind neben den nachfolgend beschriebenen Messgrößen die Zeitfenster des notwendigen Direktbetriebs beim Anfahren aus dem Kaltzustand gekennzeichnet.

Beim zweiten, verkürzten Anfahrvorgang (nicht dargestellt, kein Direktbetrieb) fielen die Spitzenkonzentrationen an Schadstoffen (Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxide, organischer Gesamtkohlenstoff) bei Durchsatzsteigerungen geringer aus als bei dem eigentlichen Anfahrvorgang. Die Abgasgehalte an Schwefeldioxid lagen über weite Zeiträume unter bzw. geringfügig oberhalb der Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3).

Abgastemperatur. Die Abgastemperatur stieg während des Anfahrens aus dem Kaltzustand rasch auf $97 \text{ }^\circ\text{C}$ an. Die temporären Umschaltungen in den Direktbetrieb gingen an allen drei Tagen mit Erhöhungen der Abgastemperatur einher. Die über die gesamte Anfahruntersuchung höchste Abgastemperatur am Kamin betrug $117 \text{ }^\circ\text{C}$. Aufgrund der Anlagenstörung (Abgas über zwei Klappen abgeführt) ging die Abgastemperatur zurück. Der Temperaturrückgang vollzog sich langsam mit einem durchschnittlichen Temperaturgradienten von 16 K/h . Nach Behebung der Anlagenstörung stieg die Temperatur wieder rasch an und lag im Verbundbetrieb bei etwa $97 \text{ }^\circ\text{C}$.

Abgasvolumenstrom. Zu Beginn des Anfahrens stieg der Abgasvolumenstrom auf über $180.000 \text{ m}^3/\text{h}$ an. Nach ca. drei Stunden wurde ein stabiles Niveau von etwa $105.000 \text{ m}^3/\text{h}$ erreicht. Hiervon ausgehend wurde die Luftzufuhr sukzessive mit der Rohmehlaufgabe und dem Brennstoffdurchsatz gesteigert. Beim Ausfall der Rohmehldosierung reduzierte sich der gemessene Abgasvolumenstrom auf den natürlichen Kaminzug. Im weiteren Verlauf nach Behebung der Störung (mit Durchsatzsteigerungen an Ofenmehl und Brennstoff) stellte sich im Verbundbetrieb ein Abgasvolumenstrom auf einem Niveau von ca. $140.000 \text{ m}^3/\text{h}$ ein, das durch mehrfache Spitzen über $200.000 \text{ m}^3/\text{h}$ während des Direktbetriebs gekennzeichnet war.

Kohlenstoffmonoxid. Einen anderen Verlauf zeigte Kohlenstoffmonoxid. Nach einem Startwert von $17,5 \text{ mg/m}^3$ stieg die Konzentration mit der Erhöhung des Öldurchsatzes kurzfristig auf 264 mg/m^3 an. Bis 13 h nach dem Start verharnte der Kohlenstoffmonoxidgehalt auf einem relativ konstanten, niedrigen Niveau im zweistelligen mg/m^3 -Bereich. Die auftretenden Peaks spiegelten einerseits die Durchsatzänderungen an Brennstoff, andererseits die zeitweisen Umstellungen von Verbund- auf Direktbetrieb wider. Nach 37 h betrug der durchschnittliche Gehalt an Kohlenstoffmonoxid bis zum Ende des Anfahrvorgangs knapp 100 mg/m^3 .

Schwefeldioxid. Die Konzentrationen an Schwefeldioxid im Abgas lagen generell auf einem niedrigen Niveau, überwiegend unterhalb der Bestimmungsgrenze von 5 mg/m^3 . Nach einer Steigerung des Brennstoffdurchsatzes konnte ein temporärer Spitzenwert von $41,0 \text{ mg/m}^3$ (nach sieben Stunden) festgestellt werden. Nach weiteren sechs Stunden traten Korrelationen zwischen Kohlenstoffmonoxid und Schwefeldioxid in Form von simultan auftretenden Peaks auf.

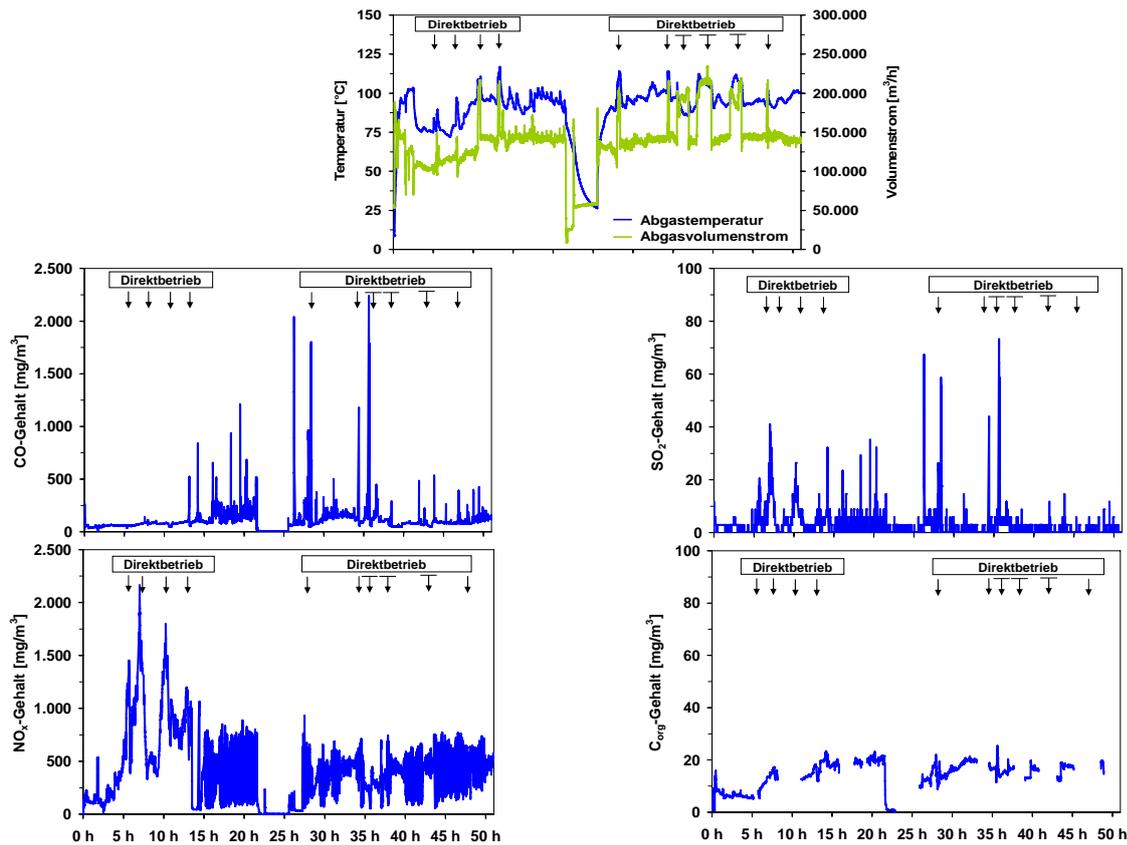


Abb. 11: Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff im Reingas während des Anfahrens des Zementwerks

Stickstoffoxide. Ab dem Beginn des Anfahrvorgangs stieg der Gehalt an Stickstoffoxiden an und erreichte teils hohe Konzentrationsspitzen. Ursache war eine Störung der Abgasentstickungsanlage, die 13,5 h nach dem Start des Anfahrprozesses wieder bestimmungsgemäß arbeitete. Dies zeigte auch die im Mittel relativ konstante Abgaskonzentration von ca. 400 mg/m^3 bis zum Ausfall der Ofenmehldosierung nach 21 h. Gegen Ende des Anfahrvorgangs lag die Stickstoffoxidkonzentration wieder im bestimmungsgemäßen Bereich.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Aufgrund des mehrfachen Ausfalls des entsprechenden Gasanalysators konnten die Emissionen an organischen Stoffen nicht über den gesamten Zeitraum der Anfahruntersuchung erfasst werden. Korrelationen mit anderen Abgaskomponenten (Direktbetrieb) wurden sporadisch festgestellt. Dennoch war ab dem Start des Anfahrvorgangs eine tendenzielle Erhöhung der Abgasgehalte signifikant. Bis zum Ausfall der Ofenmehldosierung betrug der höchste Wert $23,4 \text{ mg/m}^3$. Danach war ein weiterer, tendenzieller Anstieg der Abgaskonzentrationen aufgrund Erhöhung des Brennstoffdurchsatzes festzustellen. Bis zum Ende der Anfahruntersuchung betrug der durchschnittliche Gehalt an organischem Gesamtkohlenstoff $15,7 \text{ mg/m}^3$.

Zusammenfassung. Bei den kontinuierlich erfassten Schadstoffen war die Durchsatzerhöhung von Heizöl S teilweise durch peakartige Konzentrationsanstiege gekennzeichnet. Diese lagen bei Kohlenstoffmonoxid im Vergleich zum Grundniveau um bis zu zwei Größenordnungen höher. Die Konzentrationsanstiege trafen in geringerem Umfang auch auf Schwefeldioxid zu. Ebenso hatte der Direktbetrieb signifikanten Einfluss auf die Kurvenverläufe.

5.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

Bei der Beprobung des Anfahrvorgangs (I) und des verkürzten Anfahrens (II) wurden wechselweise halbstündige Beprobungen zur Bestimmung der Abgaskonzentrationen an Chlor-/Fluorwasserstoff, Quecksilber und Metalle durchgeführt. Für die diskontinuierliche Bestimmung der PAK-, PCB- und PCDD/F-Gehalte wurde der Anfahrvorgang I in fünf Phasen unterteilt (Phase 1 ca. 1 Std., Phase 2 ca. 8 Std., Phasen drei bis fünf jeweils 12 Std.). Zwischen Phase drei und vier stand die Anlage vier Stunden lang still (Beschreibung vgl. Abschnitt 5.2).

Chlor-, Fluorwasserstoff. Sowohl die Chlor- als auch die Fluorwasserstoffgehalte im Abgas waren während des untersuchten Anfahrvorgangs am Zementwerk vernachlässigbar gering. Fluorwasserstoff unterschritt in sämtlichen Fällen die Bestimmungsgrenze.

Quecksilber. Auch die Quecksilberkonzentration wies während des Anfahrprozesses Halbstundenmittelwerte im einstelligen $\mu\text{g}/\text{m}^3$ -Bereich auf. Mit den Durchsatzsteigerungen an Brennstoff und Ofenmehl stieg der Abgasgehalt an Quecksilber ebenfalls leicht an.

Metalle. Der Summenwert von Cadmium und Thallium lag bei der Anfahruntersuchung überwiegend in der Größenordnung $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Summenkonzentrationen der Gruppe Antimon, Arsen, Blei, Chrom, Kobalt, Kupfer, Mangan, Nickel, Vanadium und Zinn schwankte über die Probenahmephasen hinweg bez. der summarischen Zusammensetzung und dem Wert ($0,0060 \text{ mg}/\text{m}^3$ bis $0,033 \text{ mg}/\text{m}^3$). Krebserrregende Stoffe der Klasse I nach Nr. 5.2.7.1.1 TA Luft [6] (Arsen, Cadmium, Kobalt, Chrom) waren im Abgas mit Summengehalten zwischen $0,0011 \text{ mg}/\text{m}^3$ und $0,011 \text{ mg}/\text{m}^3$ enthalten.

PAK. Im gesamten Untersuchungszeitraum bewegten sich die Abgasgehalte an PAK stets in der gleichen Größenordnung und in einem engen Wertebereich auf einem eher niedrigen Niveau. Die Verbindung Naphthalin war bei der Summenbildung stets dominant. Lediglich bei der ersten Probe wurde ein höherer Anteil an Phenanthren und Acenaphthen bestimmt.

Indikator-PCB. Zu Beginn des Anfahrens konnte der insgesamt höchste Indikator-PCB-Gehalt im Abgas festgestellt werden. Über die weiteren Probenahmen sank die Konzentration an Indikator-PCB; auffällig war jedoch eine Messwerterhöhung während der Probenahmephase 5.

Coplanare PCB. Auf einem niedrigen Niveau zeigten die coplanaren PCB nach WHO ein ähnliches Bild wie die Indikator-PCB. Um eine Größenordnung niedriger als im Anfahrprozess lagen die Gehalte an coplanaren PCB beim verkürzten Anfahren.

PCDD/F. Über die ersten vier Probenahmen hinweg war in Korrelation mit den Indikator- und coplanaren PCB ein kontinuierlicher Rückgang der Dioxin-/Furanemissionen signifikant. Bei der verkürzten Anfahruntersuchung lag der Gehalt an PCDD/F um eine Zehnerpotenz niedriger und damit in der gleichen Größenordnung wie im Regelbetrieb.

Gesamtstaub. Zu Beginn des Anfahrvorgangs lag eine sehr hohe Staubkonzentration von über $1,3 \text{ g}/\text{m}^3$ vor (mögliche Ursachen: Dichtungen zwischen Gewebefiltergehäuse und -schläuchen dichteten im Kaltzustand wegen mangelnder thermischer Ausdehnung noch nicht hinreichend zwischen Roh- und Reingasseite ab, Abplatzen von Anbackungen im Kamin, Staubablagerungen auf Reingasseite des Gewebefilters infolge der Revisionsarbeiten), die sich danach im maximal zweistelligen mg/m^3 -Bereich normalisierte.

Zusammenfassung. Die Abgaskonzentrationen an Chlor-/Fluorwasserstoff blieben vernachlässigbar; die des Quecksilbers zeigte über den Anfahrvorgang hinweg einen gewissen Anstieg. Metalle wurden überwiegend in der gleichen (geringen) Größenordnung wie im Regelbetrieb bestimmt und sind damit emissionsseitig ohne Bedeutung. Während sich die Abgasgehalte an PAK in einem engen Wertebereich

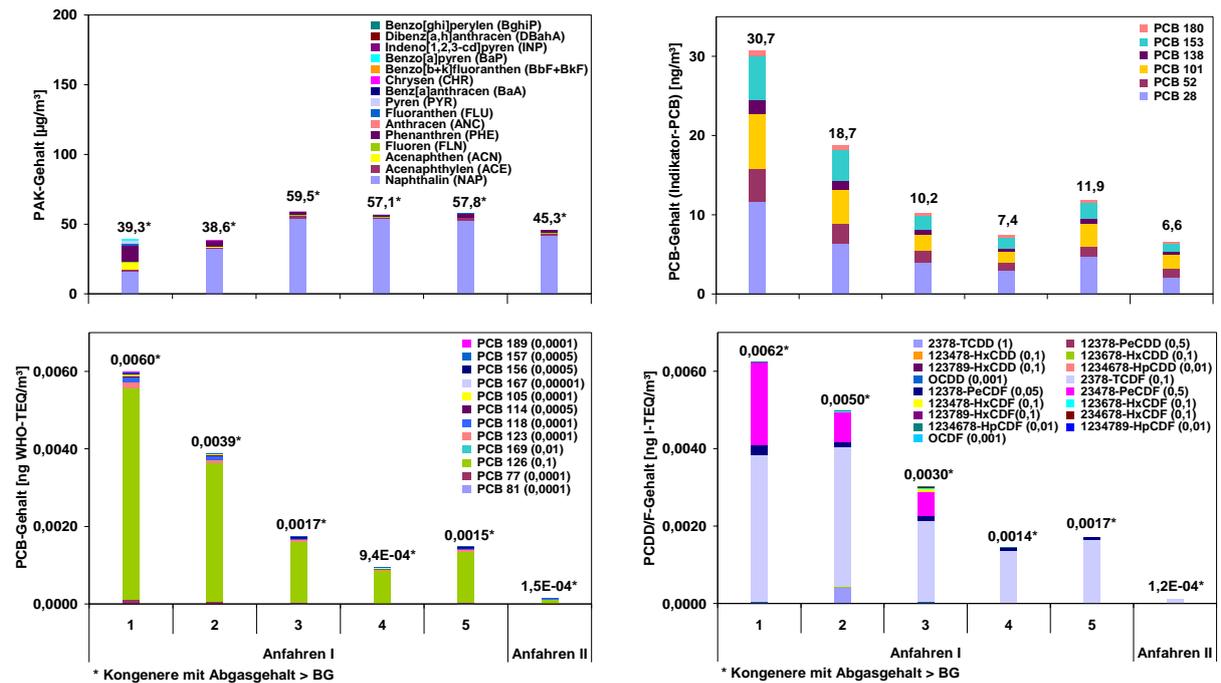


Abb. 12: Abgasgehalte an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F während der Anfahrvorgänge I (Probennahmephase 1 bis 5) und II des Zementwerks; BG: Bestimmungsgrenze

reich auf niedrigem Niveau bewegten, sanken die der PCB und PCDD/F über den Anfahrprozess von geringen Ausgangswerten ausgehend bis auf eine Ausnahme ab. Wie im Regelbetrieb lagen auch beim Anfahrbetrieb die PCDD/F-Messwerte deutlich unterhalb des festgelegten Grenzwerts von 0,05 ng I-TEQ/m³. Ein zu Anfahrbeginn sehr hoher Staubgehalt im Abgas normalisierte sich schnell.

6 Ziegelwerk

Wie Asphalt und Zement zählen auch Ziegel (Dach-, Mauerziegel) zu den wichtigsten Materialien der Bauindustrie. In Bayern stehen etwa 50 bis 60 Ziegelwerke.

In Abb. 13 ist das verfahrenstechnische Schema des untersuchten Ziegelwerks dargestellt. Die per Lkw angelieferten Ziegelrohstoffe Ton und Lehm werden zerkleinert, homogenisiert und mit Porosierungsmittel (Sägespäne, Papierfangstoffe) und Basaltsand (als Schalldämmmaterial) versetzt. Eine Strangpresse formt das Gemisch unter Vakuum zu einem Tonstrang, aus dem die „Ziegel-Formlinge“ geschnitten werden. In einem Durchlauftrockner wird der Wassergehalt ausgehend von 20 % bis 30 % auf eine Restfeuchte von ca. 2 % (bez. auf TS) reduziert. Die getrockneten und auf sog. Ofenwagen gestapelten Rohformlinge werden in einem kontinuierlich arbeitenden, 104 m langen Tunnelofen bei einer Maximaltemperatur von ca. 950 °C nach dem Durchlaufverfahren (Schubgeschwindigkeit ca. 20 min pro halbe Wagenlänge bzw. 3,9 m/h) im Gegenstrom gebrannt. Insgesamt ist der Tunnelofen mit zehn Brennergruppen zu jeweils acht Brennern bestückt. Die getrockneten Formlinge gelangen zunächst in die sog. Vorwärmzone, wo sie bei etwa 300 °C über erdgasbefeuerte Deckenbrenner sowie durch Ofenabgas im Gegenstrom aufgeheizt werden. In der Hauptbrennzone findet der Brennprozess der Ziegel mit Hilfe von mit Heizöl S betriebenen Brennergruppen statt. Im Anschluss werden die gebrannten Ziegel in der Kühlzone mit der angesaugten Umgebungsluft gekühlt. Nach dem Ofenausritt werden die Ziegel maschinell abgeladen und ggf. nachbehandelt (z. B. Schleifen).

Das Abgas des Tunnelofens gelangt zur Reinigung in eine 3-Kammer-Regenerative-Nachverbrennungs(RNV)-Anlage. Organische Verbindungen werden zerstört, die sich bei der Verschmelzung natürlicher organischer Rohstoff- und Porosierungsmittelbestandteile bilden und im Tunnelofen nicht ausreichend verbrannt bzw. oxidiert werden. Über die Reingasrohrleitung und den Kamin tritt das gereinigte Abgas an die Umgebung.

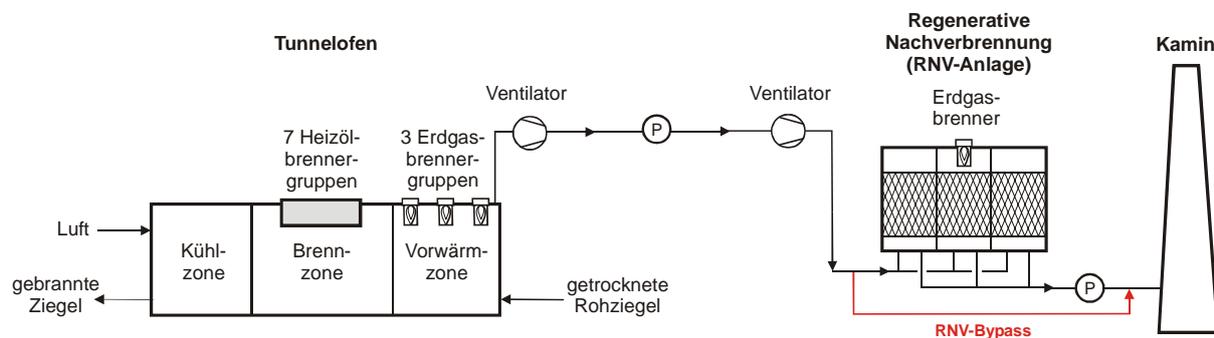


Abb. 13: Ziegelwerk – Verfahrensschema mit den eingerichteten Probenahmestellen (P) im Roh- (nach Tunnelofen) und Reingas (vor Kamin)

6.1 Regulärer Anlagenbetrieb

Eine Woche nach Beginn des untersuchten, etwa dreitägigen Anfahrprozesses fand eine sechsstündige Vergleichsmessung im Regelbetrieb statt. Eine Übersicht über die wichtigsten Kenndaten des regulären Anlagenbetriebs gibt Tab. 7. Die über den Zeitraum der Regelbetriebsmessung gemittelten Werte der an der Reingasmesstelle erfassten Abgasrandparameter und -konzentrationen zeigt Tab. 8. Während der Untersuchung wurden die im Genehmigungsbescheid bzw. in der TA Luft [6] genannten Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffoxide, organischen Gesamtkohlenstoff und Fluorwasserstoff zuverlässig eingehalten.

Tab. 7: Übersicht über wesentliche Kenndaten des Tunnelofens im Ziegelwerk

		Auslegungsdaten
Max. Ziegeldurchsatz		17,1 Mg/h (bezogen auf gebrannte Ware)
Ofenbesatz		40 Wagen
Nutzvolumen je Wagen		17,86 m ³
Einsatzstoffe		Ton, Lehm, Porosierungsmittel (Sägespäne, Papierfangstoffe), Schalldämmmaterial (Basaltsand)
Vorwärmzone	Wagenanzahl	11
	Brenneranzahl	24
	Brennstoff	Erdgas
	Max. Feuerungswärmeleistung	8,1 MW
Brennzone	Wagenanzahl	9
	Brenneranzahl	56
	Brennstoff	Heizöl S, optional: Heizöl EL
	Max. Feuerungswärmeleistung	Heizöl S: 3,0 MW, Heizöl EL: 8,1 MW

Tab. 8: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchung am Tunnelofen im Ziegelwerk

		Grenzwerte ¹⁾
Abgasrandparameter		
Volumenstrom [m ³ /h]	33.300	–
Temperatur [°C]	240	–
Abgaskonzentrationen		
O ₂ [Vol.-%]	15,2	–
CO ₂ [Vol.-%]	7,8	–
CO [mg/m ³]	115	–
SO ₂ [g/m ³ **)	0,0044	0,5****)
Σ NO, NO ₂ [g/m ³ **)	0,10	0,5
C _{org} [mg/m ³]	3,1	20****)
HCl [mg/m ³]	6,1	–
HF [mg/m ³ **)	1,1	5
Hg [µg/m ³]	15,9	–

1) lt. Genehmigungsbescheid

**) Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid auf 17 Vol.-% Sauerstoff bezogen

***) gültig für Σ SO₂, SO₃

****) Grenzwert lt. TA Luft [6] für externe Nachverbrennungsanlagen

Tab. 8 (Forts.): Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchung am Tunnelofen im Ziegelwerk

		Grenzwerte ^{*)}
Abgaskonzentrationen		
PAK [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	11,2	–
PCB _{Indikator} [ng/m^3]	4,8	–
PCB _{coplanar} [$\text{ng WHO-TEQ}/\text{m}^3$]	8E-05	–
PCDD/F [$\text{ng I-TEQ}/\text{m}^3$]	0,0091	–

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid

6.2 Anfahrbetrieb

Die Ziegelproduktion wird einmal pro Jahr jahreszeitlich bedingt für rund drei Monate (Dezember bis Februar) unterbrochen und nach einer umfangreichen Anlagenrevision wieder in Betrieb genommen. Wie Abb. 14 zeigt, startet der mehrtägige Anfahrprozess mit dem Vorheizen des Tunnelofens über die Erdgasbrenner der Vorwärmzone. Nach Überschreiten einer Gastemperatur nach dem Tunnelofen von 80 °C zündet der Erdgasbrenner der RNV-Anlage, um die Wabenkammern auf ihre Betriebstemperatur von 850 °C aufzuheizen. Danach werden zwei bereits in der Vorwärmzone positionierte, mit getrockneten Ziegeln bestückte Ofenwagen weiter bis in die Brennkammer geschoben, wo anschließend die ersten Ölbrenner mit Heizöl EL im Dauerfeuer in Betrieb gehen. Die jeweils aus zwei Reihen à vier Brennern bestehenden sechs Ölbrennergruppen werden während des folgenden Aufheizprozesses schrittweise in Betrieb genommen, um den Brennraum sowie die bereits eingeschobenen, bestückten Ofenwagen materialschonend (spannungsarm) zu temperieren. Bei Erreichen einer Gastemperatur von 500 °C (mit Thermoelementen registriert) wird jeweils das Dauerfeuer auf Impulsfeuer umgestellt. Am Ende der sequenziellen Brennerzündung bzw. -umstellung auf Impulsfeuer geht der Ofenschub in den Automatikbetrieb über. Das Zeitintervall, nach dem ein neuer Wagen in den Ofen geschoben wird, beträgt anfangs 90 Minuten und wird später bis auf 35 Minuten verkürzt. Sobald der Anfahrprozess abgeschlossen ist, wird als letzter Schritt die Versorgung der Ölbrenner von Heizöl EL auf Heizöl S umgestellt.

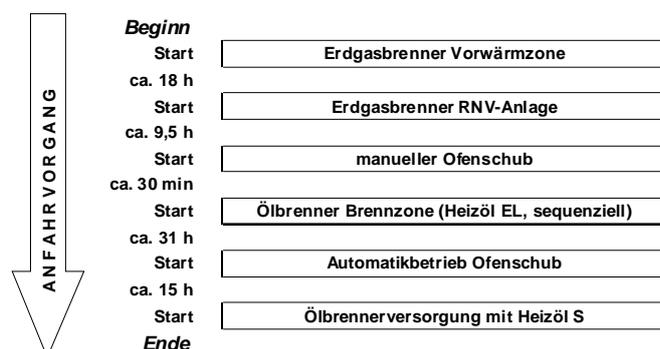


Abb. 14: Ablaufschema des Anfahrvorgangs am Tunnelofen im Ziegelwerk

6.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

Die Verläufe der während des etwa dreitägigen Anfahrprozesses im Roh- (nach Tunnelofen) und Reingas (vor Kamin) kontinuierlich erfassten Messgrößen zeigt Abb. 15. Mit der Aufzeichnung des Anfahrbetriebs konnte an der Rohgasmessstelle nicht wie geplant begonnen werden, da sich die Druckdifferenz (Abgaskanal – Absaugpumpe) für die Pumpenleistung des tragbaren Gasanalysators als zu groß herausstellte und die Probenahmesonde gegen eine mit größerer Einlassöffnung getauscht werden musste. Die Reingasmessung begann etwa fünf Stunden später, bevor die Abgasreinigung (RNV-Anlage) in Betrieb ging.

Der ebenfalls kontinuierlich gemessene Schwefeldioxidgehalt ist nicht dargestellt, da die Konzentrationen während des gesamten Anfahrvorgangs im Roh- und Reingas unterhalb der Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3) lagen.

Roh- und Reingastemperatur. Die ab der Zündung der Brenner der Vorwärmzone gemessene Rohgastemperatur stieg bis zum Start des Erdgasbrenners in der RNV-Anlage kontinuierlich auf über 80°C an. Etwa eine Stunde später fiel der RNV-Brenner für zwei Stunden aus, was zu einem kurzzeitigen Rückgang um etwa 20 K führte. Danach folgte ein Sprung auf 100°C und bis zur Zündung der ersten Ölbrennergruppe (Brennzone) eine lineare Zunahme bis auf 127°C . Das im weiteren Verlauf sichtbare „Sägezahnprofil“ resultierte aus dem zunächst manuell und später automatisch betriebenen Ofenschub: durch den jeweils kurzzeitig geöffneten Ofeneinlauf strömte Umgebungsluft in den Tunnelofen. Nach einem Maximum von knapp 230°C pendelte sich die Rohgastemperatur zum Ende des Anfahrprozesses hin aufgrund der höheren Ofenschubfrequenz auf einen etwas geringeren Wert von 210°C ein.

Die Temperatur an der Reingasmessstelle zeigte einen zum Rohgas in etwa parallelen Verlauf. Sie lag bis zum Ausfall des RNV-Brenners geringfügig unter und ab der Zündung der ersten Ölbrenner durchgehend um etwa 30 K bis 40 K über der Abgastemperatur nach dem Tunnelofen. Gegen Ende des Anfahrzeitraums betrug die Reingastemperatur durchschnittlich ca. 260°C .

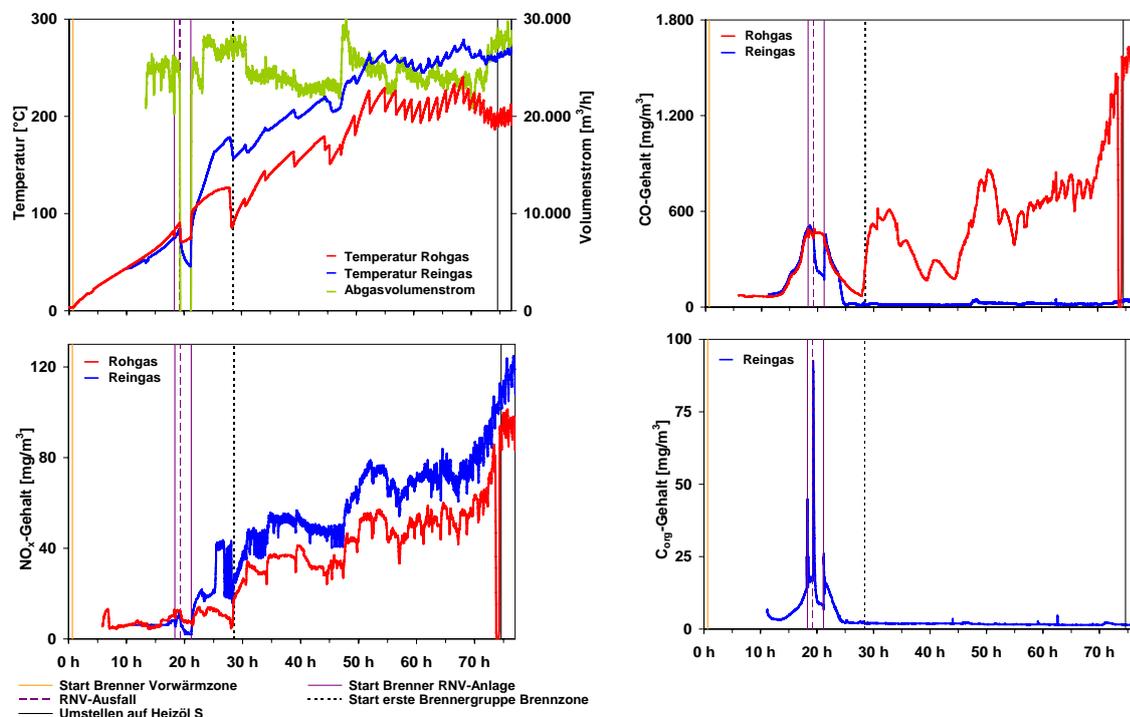


Abb. 15: Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff im Roh- und Reingas während des Anfahrens des Tunnelofens

Abgasvolumenstrom. Zunächst lag der im Reingas registrierte Volumenstrom im Mittel bei 24.600 m³/h, bis mit dem Ausfall des Erdgasbrenners der RNV-Anlage das Abgas etwa zwei Stunden lang über den RNV-Bypass in den Kamin und nicht über die Reingasmesssstelle strömte. Im weiteren Aufheizprozess schwankte der Volumenstrom zwischen rd. 23.000 m³/h und 27.000 m³/h. Ca. 19 Stunden nach der ersten Ölbrennerzündung ging die kontinuierliche Abgasumwälzung im Tunnelofen in Betrieb, was sich in einem sprunghaften Anstieg des Volumenstroms auf kurzzeitig knapp 30.000 m³/h widerspiegelte. Nach der Umstellung der Ölbrennerversorgung auf Heizöl S betrug der Abgasvolumenstrom rd. 28.000 m³/h.

Kohlenstoffmonoxid. Die Kohlenstoffmonoxidkonzentrationen in Roh- und Reingas lagen zunächst bei knapp über 70 mg/m³, bevor sie bis zur Inbetriebnahme der Abgasreinigung auf im Mittel 480 mg/m³ anstiegen. Nach der wiederholten Zündung des RNV-Brenners sanken sie deutlich ab: der Rohgasgehalt lag beim Start der ersten Ölbrennergruppe bei einem Minimum von 70 mg/m³; die Reingaskonzentration zeigte verbunden mit der Annäherung an die RNV-Solltemperatur von 850 °C (verstärkte Oxidation von Kohlenstoffmon- zu -dioxid) eine sprunghafte Abnahme auf ein Niveau von durchschnittlich 15 mg/m³, das über den weiteren Anfahrprozess annähernd konstant blieb. Der Rohgasgehalt verlief im Folgenden uneinheitlich und stieg auf über 1.700 mg/m³ an.

Stickstoffoxide. Ab dem Zünden der ersten Ölbrennergruppe bzw. dem Erreichen der geforderten RNV-Betriebstemperatur erhöhten sich die Stickstoffoxidkonzentrationen in Roh- und Reingas aufgrund der vermehrten Bildung thermisch bedingter Stickstoffoxide sukzessive bis auf maximal 103 mg/m³ (Rohgas) bzw. 133 mg/m³ (Reingas). An der Reingasmesssstelle herrschte bedingt durch die zusätzliche Stickstoffoxidbildung in der RNV-Anlage ein durchgehend um etwa 20 mg/m³ höherer Abgasgehalt. Die „negativen“ Peaks in den Kurvenverläufen korrelieren – wie bei Roh- und Reingastemperatur genannt – mit dem regelmäßigen Öffnen des Ofeneinlaufs (Ofenschub).

Organischer Gesamtkohlenstoff. Der ausschließlich im Reingas gemessene Gehalt an organischem Gesamtkohlenstoff stieg anfangs auf 14 mg/m³ an. Die Brennerzündung in der RNV-Anlage sowie der plötzliche Brennerausfall führten jeweils zu unterschiedlich hohen Peaks (max. 92,6 mg/m³). Nachdem die Abgasreinigung vollständig in Betrieb war, sank der Gehalt auf ein Niveau von ca. 2 mg/m³, das über den weiteren Anfahrprozess nahezu unverändert blieb.

Zusammenfassung. Mit Ausnahme des organischen Gesamtkohlenstoffs durchliefen die kontinuierlich erfassten Schadstoffe die überwiegende Zeit des Anfahrens im Vergleich zum Regelbetrieb deutlich geringere Konzentrationsniveaus. Die relativ hohen Kohlenstoffmonoxidgehalte im Rohgas wurden durch die Nachverbrennung (RNV-Anlage) zuverlässig weit abgesenkt.

6.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

Entlang des etwa 74-stündigen Anfahrvorgangs fanden im Roh- und Reingas diverse simultane halbstündige Chlor-, Fluorwasserstoff und Quecksilberprobenahmen statt. Die diskontinuierlichen Probenahmen zur Bestimmung der Abgasgehalte an PAK, PCB und PCDD/F erfolgten durch Unterteilung des Anfahrzeitraums in acht Phasen: die Phase 1 dauerte ab der Zündung der Erdgasbrenner in der Vorwärmzone 9¼ Stunden, die Phase 2 erstreckte sich bis zur Zündung des RNV-Brenners über 8¼ Stunden, die Phase 3 schloss das fast zehnstündige Vorheizen der RNV-Anlage ein, die Phase 4 startete mit der Zündung der ersten Ölbrennergruppe und dauerte wie die Phasen 5 und 6 zwölf Stunden, die Phase 7 erstreckte sich bis zur Umstellung der Ölbrennerversorgung auf Heizöl S über zehn Stunden und mit der Phase 8 wurden die ersten drei Stunden des regulären Anlagenbetriebs erfasst. An der Reingasmesssstelle fanden jeweils erst ab der Phase 3 Probenahmen statt. Die diskontinuierlichen Messgrößen sind grafisch in Abb. 16 und 17 dargestellt.

Chlor-, Fluorwasserstoff. Während des Ofenvorwärmens (Phasen 1, 2) lag der Chlorwasserstoffgehalt im Rohgas bei durchschnittlich $0,30 \text{ mg/m}^3$. Nach der Inbetriebnahme der Abgasreinigung (Phase 3) bzw. der Zündung der ersten Ölbrenner stieg er an beiden Messstellen allmählich an. Gegen Ende der Phase 6 lagen Maximalkonzentrationen von $4,1 \text{ mg/m}^3$ (Rohgas) und $9,4 \text{ mg/m}^3$ (Reingas) vor. Anschließend sanken die Roh- und Reingasgehalte bis zum Erreichen des Regelbetriebs auf $2,2 \text{ mg/m}^3$ bzw. $4,0 \text{ mg/m}^3$. Der i. d. R. über den Rohgaswerten liegende Reingasgehalt resultierte möglicherweise aus der Zersetzung chlorhaltiger Kohlenwasserstoffe in der RNV-Anlage. Die Fluorwasserstoffgehalte verhielten sich größtenteils ähnlich den Chlorwasserstoffkonzentrationen und nahmen ab der Phase 4 bis in die Phase 6 auf $2,9 \text{ mg/m}^3$ (Roh-) und $2,5 \text{ mg/m}^3$ (Reingas) zu. Während der Rohgasgehalt – nach einem kurzzeitigen Rückgang – in den letzten beiden Phasen auf über 4 mg/m^3 weiter anstieg, gingen die Reingasperte auf $1,1 \text{ mg/m}^3$ zurück.

Quecksilber. In den Phasen 1 bis 3 zeigte sich im Rohgas eine gegenüber dem weiteren Anfahrprozess im Mittel etwa doppelt so hohe Quecksilberkonzentration. Die Reingasperte schwankten während des Vorheizens der RNV-Anlage in einem Bereich zwischen $0,7 \text{ µg/m}^3$ und 7 µg/m^3 . Ab der Zündung der ersten Ölbrenner entwickelten sich die Roh- und Reingaskonzentrationen nahezu parallel. Sie nahmen ab der Phase 5 von $1,6 \text{ µg/m}^3$ bzw. $0,8 \text{ µg/m}^3$ auf $5,7 \text{ µg/m}^3$ bzw. $7,7 \text{ µg/m}^3$ zu.

PAK. Die PAK-Gehalte im Rohgas erhöhten sich mit einer Ausnahme (Phase 5) durchgehend. Bei der ersten Reingasprobenahme (Phase 3) wurde der maximale PAK-Gehalt von $42,9 \text{ µg/m}^3$ festgestellt, was auf eine unzureichende PAK-Abscheidung bzw. -Zersetzung während des Vorheizens der RNV-Anlage hindeutet. Im weiteren Aufheizprozess waren die Reingasgehalte deutlich reduziert.

Indikator-PCB. Analog den PAK zeigten die Indikator-PCB im Rohgas eine kontinuierliche Zunahme bis auf 315 ng/m^3 (Phase 8) und im Reingas in der Phase 3 den über den gesamten Anfahrprozess betrachtet höchsten Wert ($8,5 \text{ ng/m}^3$). Ansonsten schwankten die Reingasgehalte zwischen $0,83 \text{ ng/m}^3$ (Phase 5) und $5,0 \text{ ng/m}^3$ (Phase 8).

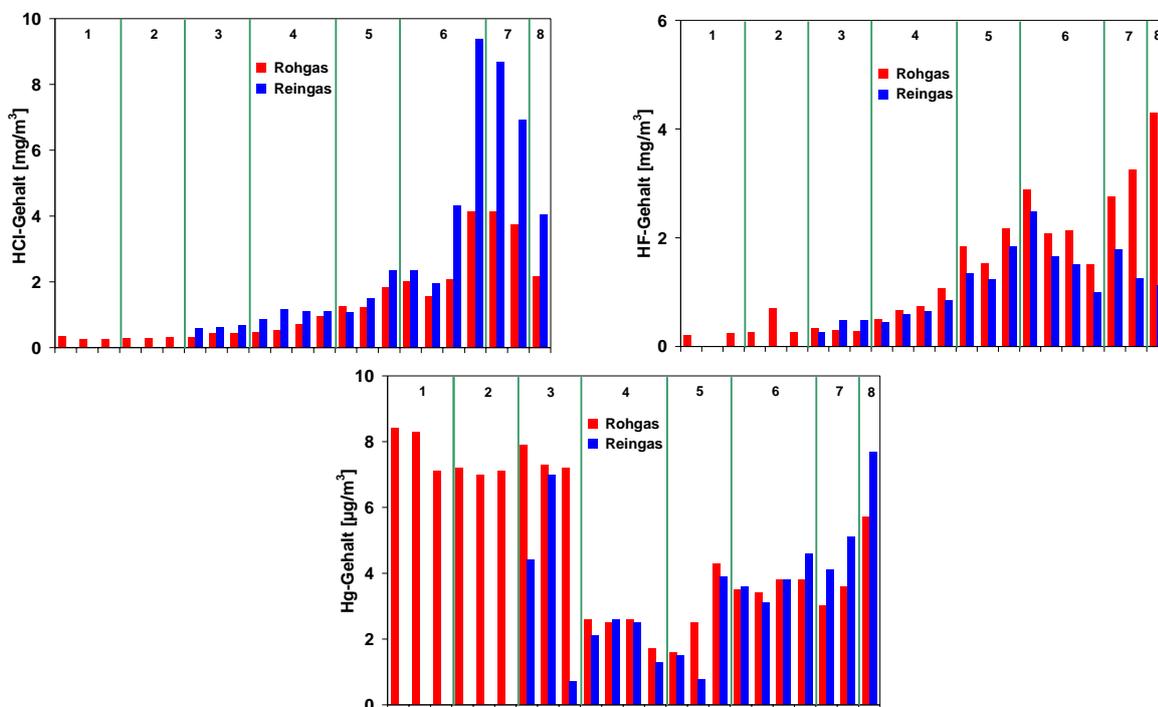


Abb. 16: Roh- und Reingasgehalte (Halbstundenmittelwerte) an Chlor-, Fluorwasserstoff und Quecksilber in den Probennahmephase 1 bis 8 während des Anfahrens des Tunnelofens

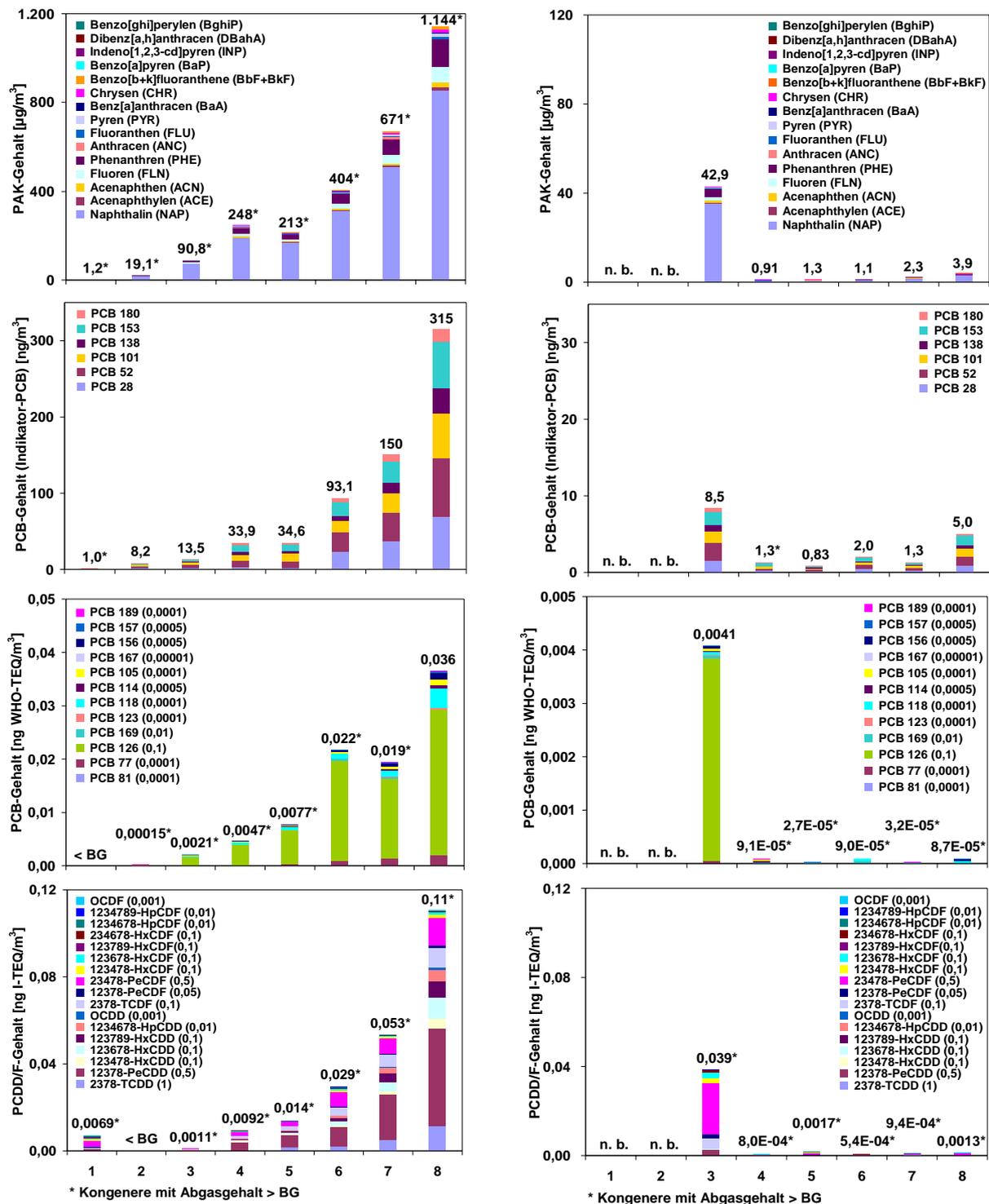


Abb. 17: Roh- (links) und Reingasgehalte (rechts) an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F in den Probenahmephasen 1 bis 8 während des Anfahrens des Tunnelofens; BG: Bestimmungsgrenze, n. b.: nicht bestimmt

Coplanare PCB. Auch der Rohgasgehalt an coplanaren PCB war zu Beginn des Anfahrens am geringsten und stieg bis in die Phase 8 auf den Maximalwert an. Die erste Reingasprobenahme (Phase 3) lieferte den höchsten Abgasgehalt ($0,0041 \text{ ng WHO-TEQ/m}^3$), der etwa das Doppelte der entsprechenden Rohgaskonzentration betrug. Dies lässt auf die Freisetzung von aus dem vorhergehenden Anlagenbetrieb in der RNV-Anlage verbliebenen coplanaren PCB während des Aufheizens schließen. In den Phasen 4 bis 8 waren die Reingasgehalte um bis zu 97,9 % geringer.

PCDD/F. Die PCDD/F-Konzentrationen im Rohgas zeigten mit Ausnahme der Phase 1 ein den PAK und PCB nahezu entsprechendes Bild und erreichten in der Phase 8 (Einsatz von Heizöl S) einen Maximalwert von $0,11 \text{ ng I-TEQ/m}^3$. Die Reingasgehalte korrelierten ebenfalls mit den PAK- und PCB-Ergebnissen: der gegenüber dem folgenden Aufheizprozess sowie dem entsprechenden Rohgasgehalt um ein bis zwei Größenordnungen höhere Wert der Phase 3 weist auf eine PCDD/F-Freisetzung während des RNV-Vorheizens hin.

Zusammenfassung. Die Chlor- und Fluorwasserstoffgehalte erreichten im Anfahrbetrieb zeitweise das maximal 1,5- bis 2-Fache der durchschnittlichen Regelbetriebskonzentration. Dagegen blieb der Quecksilbergehalt durchgehend deutlich unter dem Niveau des Regelbetriebs. Mit Ausnahme des RNV-Vorheizens lagen die Abgasgehalte der persistenten organischen Schadstoffe zum Großteil geringer als im Regelbetrieb, d. h., die Rohgasgehalte wurden in der Abgasreinigung effektiv gemindert. Ein längerer Betrieb der RNV-Anlage über einen Abfahrprozess (vor Anlagenrevision) hinaus könnte die vollständige Zerstörung restlicher Kohlenwasserstoffe bewirken, was eine Freisetzung von Rückständen während des erneuten Aufheizens unterbinden würde.

7 Deponie- und Holzgasverstromungsanlage

Deponiegasverstromungsanlage

Die Deponierung unvorbehandelter Abfälle ist in Deutschland seit dem 1. Juni 2005 verboten [9]. Auch nach Beendigung der Deponierung von (organischen) Abfällen treten über viele Jahre hinweg methanhaltige Deponiegase diffus aus. Das unkontrollierte Entweichen der klimaschädigenden Deponiegase geht mit einem Verzicht auf Energiegewinnung einher; deswegen wird verstärkt auf die Verstromung von Deponiegas gesetzt.

Auf dem Gelände einer stillgelegten Hausmülldeponie steht ein Blockheizkraftwerk (BHKW) mit zwei Modulen zur Stromerzeugung aus Deponiegas. Jedes Modul besteht aus einem Gas-Otto-Verbrennungsmotor mit Generator. Die sich innerhalb des Deponiekörpers infolge anaerober biologischer Abbauvorgänge bildenden Deponiegase werden über Gasbrunnen, Gassammelleitungen und –stationen gefasst und über eine Verdichterstation dem BHKW zur Stromerzeugung bzw. der Fackel zur Verbrennung (z. B. bei längerem Motorstillstand) zugeführt. In der Verdichterstation wird das Deponierohgas in einem Kiestopffilter von Schwebstoffen befreit, in einem Kühler auf 5 °C abgekühlt und entfeuchtet, von drei Verdichtern angesaugt und verdichtet (ca. 60 hPa bis 70 hPa Überdruck nach Verdichtung). Hauptbestandteile des Deponiegases sind Methan mit ca. 50 Vol.-%, Kohlenstoffdioxid mit ca. 40 Vol.-% und Stickstoff. Nebenbestandteile sind u. a. Sauerstoff mit ca. 0,1 Vol.-%, Chlorkohlenwasserstoffe (CKW), Toluol, Benzol, Xylole und Schwefelwasserstoff. Bei beiden im BHKW installierten Motoren zur Deponiegasverbrennung handelt es sich um sog. magergemisch-aufgeladene 12-Zylinder-Gas-Otto-Motoren mit Lambdaregelung und Ladeluftkühlung, in denen das Deponiegas überstöchiometrisch (Luft-/Brennstoffverhältnis λ ca. 1,5 bis 1,6) oxidiert wird. Der Einsatz von Katalysatoren zur Abgasreinigung ist wegen der im Deponiegas enthaltenen Katalysatorgifte nicht gegeben.

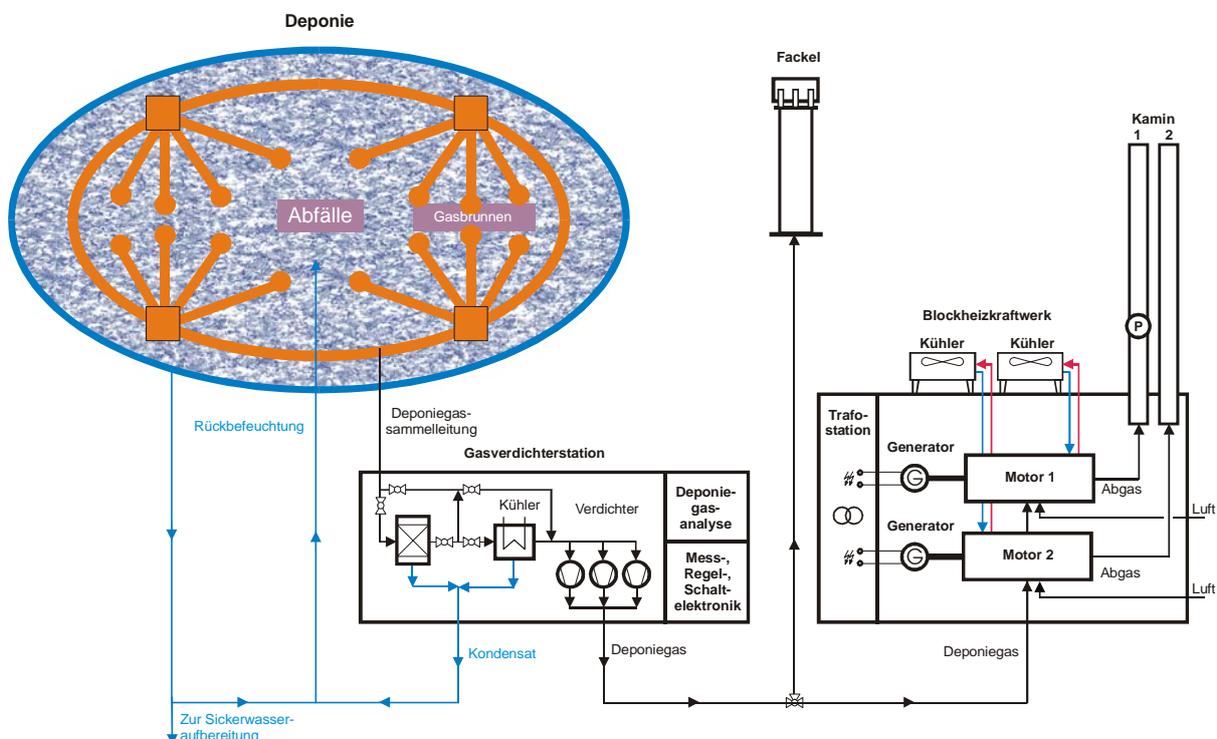


Abb. 18: Deponiegasverstromungsanlage – Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) im Reingas (am Kamin 1)

Die an die Motoren mechanisch gekoppelten Generatoren erzeugen elektrische Energie zur Einspeisung ins öffentliche Stromversorgungsnetz. Die Produktion, Aufbereitung und Verstromung des Deponiegases ist schematisch in Abb. 18 dargestellt.

Holzgasverstromungsanlage

In einer steigenden Anzahl von Holzgasverstromungsanlagen wird der nachwachsende Brennstoff Holz genutzt, um elektrische und thermische Energie zu gewinnen.

An der untersuchten Anlage wird der als Hackschnitzel vorliegende Brennstoff Holz nach dem Vortrocknen dem Holzvergaser (Reaktor mit Wanderschüttung) zugeführt. In diesem Reaktor entweicht durch die von unten aufströmende Hitze zunächst die Restfeuchte aus dem Brennstoff, bevor im Temperaturfenster von 200 °C bis 700 °C die Pyrolyse stattfindet. Hierbei entstehen vor allem Kohlenwasserstoffe. In der darunter liegenden Oxidationszone des Reaktors (> 1.100 °C) bilden sich Kohlenstoffdioxid und Wasser. Die dabei freigesetzte Enthalpie wird für die endothermen Reduktionsreaktionen benötigt, um das eigentliche Holzgas (Kohlenstoffmonoxid und Wasserstoff) zu erzeugen. Dieses wird in einer mehrstufigen Gasreinigung für den Einsatz im Motor aufbereitet und gelangt über den Ventilator ins Blockheizkraftwerk (BHKW) zur Gewinnung von Wärme- und elektrischer Energie. Dabei verbrennt ein sog. Zündstrahlmotor (12-Zylinder-Viertakt, mit angekoppeltem Generator) das Holzgas nach dem Dieselverfahren. Jeweils zum Zündzeitpunkt wird über die Einspritzanlage der Motor eine kleine Menge Zündöl eingespritzt, um die Verbrennung des angesaugten Holzgases einzuleiten. Die Abgaswärme wird von einem Wärmetauscher abgeführt und zur Vortrocknung der Hackschnitzel genutzt. Das von einem CO-Katalysator gereinigte Motorabgas verlässt die Anlage über den Kamin an die Umgebung.

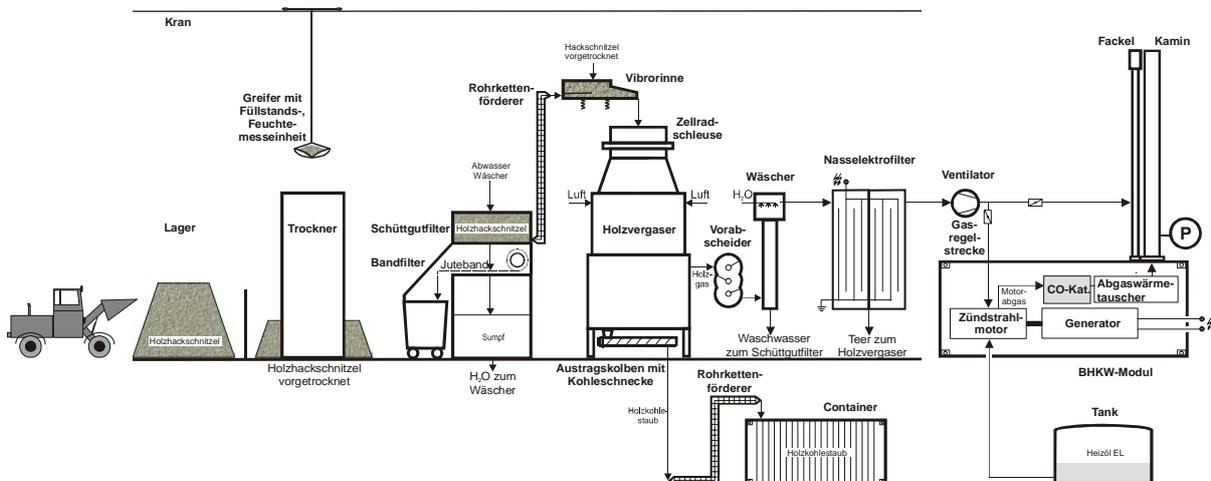


Abb. 19: Holzgasverstromungsanlage – Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) im Reingas (am Kamin)

7.1 Regulärer Anlagenbetrieb

In Tab. 9 sind die Anlagenkenndaten der untersuchten Deponie- und Holzgasverstromungsanlagen einander gegenübergestellt. Die angegebenen Werte gelten für den Vollastbetrieb.

An der Deponiegasverstromungsanlage wurde in der Woche vor dem Anfahrvorgang der Regelbetrieb am Kamin 1 messtechnisch beprobt. Die entsprechenden, über fünf Stunden beprobten Messgrößen (gemittelt) sind in Tab. 10 dargestellt. Bei den Stickstoffoxiden wurde eine deutliche Überschreitung des im Genehmigungsbescheid aufgeführten Grenzwerts festgestellt, was auf ein zu geringes Luft-/Brennstoffverhältnis hindeutet.

Einen Tag nach dem untersuchten Anfahrprozess der Holzgasverstromungsanlage fand eine fünf-stündige Vergleichsmessung im Regelbetrieb statt. Die über diesen Zeitraum gemittelten Werte zeigt Tab. 10. Die im Genehmigungsbescheid festgesetzten Grenzwerte wurden – abgesehen von Σ Benzol, 1,3-Butadien – sicher eingehalten.

Tab. 9a: Übersicht über wesentliche Kenndaten der Deponiegasverstromungsanlage

	Auslegungsdaten
Mittl. Durchsatz	130 m ³ /h Deponiegas
Feuerungswärmeleistung	1,61 MW
Motor	2 Gas-Otto-Motoren: 12-Zylinder-Viertakt, Magermischaufladung
Leistungseinstellung	1 × 200 kW _{el} , 1 × 180 kW _{el}

Tab. 9b: Übersicht über wesentliche Kenndaten der Holzgasverstromungsanlage

		Auslegungsdaten
Vergaser	Mittl. Durchsatz	ca. 189 kg/h trockene Hackschnitzel
	Feuerungswärmeleistung	925 kW
Verstromung	Mittl. Durchsatz	350 m ³ /h Holzgas
	Motor	Zündstrahlmotor: 12-Zylinder-Viertakt, Diesel/Gas-Hybrid,
	Leistungseinstellung	230 kW _{el} , 244 kW _{th}

Tab. 10: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen an Deponie- und Holzgasverstromungsanlage

	Deponiegasverstromung		Holzgasverstromung	
		Grenzwerte ^{*)}		Grenzwerte ^{*)}
Abgasrandparameter				
Volumenstrom [m ³ /h]	760	–	1.020	–
Temperatur [°C]	441	–	260	–
Abgaskonzentrationen				
O ₂ [Vol.-%]	5,0	–	7,8	–
CO ₂ [Vol.-%]	13,5	–	12,2	–
CO [g/m ³] ^{**)}	0,51	0,65	0,49	2,0
SO ₂ [g/m ³]	0,20	0,35 ^{****)}	0,032	–
Σ NO, NO ₂ [g/m ³] ^{**))}	1,68	0,50	0,41	1,0
C _{org} [g/m ³]	0,30 (CH ₄)	–	0,39	–
HCl [mg/m ³] ^{**))}	2,7	30	–	–
HF [mg/m ³] ^{**))}	1,6	3	–	–

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid

^{**))} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid bzw. TA Luft [6] auf 5 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{****)} gültig für Σ SO₂, SO₃

Tab. 10 (Forts.): Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen an Deponie- und Holzgasverstromungsanlage

	Deponiegasverstromung		Holzgasverstromung	
		Grenzwerte ^{*)}		Grenzwerte ^{*)}
Abgaskonzentrationen				
PAK [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	10,9	–	1.480	–
Indikator-PCB [ng/m^3]	0,39	–	0,27	–
PCB _{coplanar} [$\text{ng WHO-TEQ}/\text{m}^3$]	0,039	–	5,4E-06	–
PCDD/F [$\text{ng I-TEQ}/\text{m}^3$]	3,6E-05	–	3,9E-04	–
Σ Benzol, 1,3-Butadien [mg/m^3] ^{**)}	0,20 ^{****)}	1 ^{****)}	7,1	1 ^{*****)}
Gesamtstaub [mg/m^3] ^{**)}	4,5	20	7,3	20

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid

^{**)} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid bzw. TA Luft [6] auf 5 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{****)} ohne 1,3-Butadien

^{*****)} lt. TA Luft [6]

7.2 Anfahrbetrieb

Deponiegasverstromungsanlage

Alle 250 Betriebsstunden sind Wartungsarbeiten am jeweiligen Gasmotor (vgl. Abb. 18) vorgeschrieben. Um Ausfallzeiten möglichst gering zu halten, bleibt bei der Wartung eines Motors der andere in Betrieb. Unmittelbar nach Beendigung der Wartung wird der Motor wieder gestartet.

Kurz nach Betätigung des Anlassers läuft der Gasmotor und steigert sofort seine Drehzahl auf einen konstanten Wert von 1.500 min^{-1} . Sobald die Synchronisation des Generators abgeschlossen ist, wird dieser zugeschaltet. Mit dem Erreichen der Leistungseinstellung von $200 \text{ kW}_{\text{el}}$ innerhalb weniger Minuten ist der Anfahrvorgang abgeschlossen. Das Anfahrschema ist in Abb. 20a dargestellt.

Holzgasverstromungsanlage

Drei- bis viermal pro Jahr findet eine Anlagenrevision statt. Unmittelbar an die Revision schließt sich der Anfahrvorgang an. Das Anfahren der Holzgasverstromungsanlage beginnt mit dem Einfüllen von 650 kg Holzkohle in den Reaktor und dem Auffüllen nach oben hin mit Holz hackschnitzeln. Nach dem

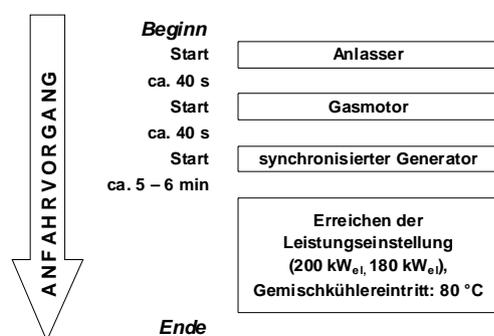


Abb. 20a: Ablaufschema des Anfahrvorgangs an der Deponiegasverstromungsanlage

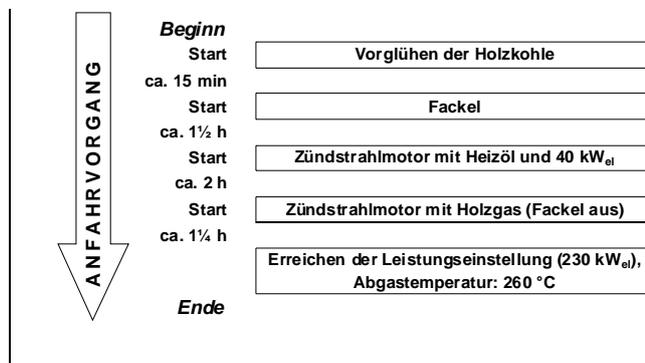


Abb. 20b: Ablaufschema des Anfahrvorgangs an der Holzgasverstromungsanlage

Luftabschluss des Reaktors erfolgt das manuelle Vorglühen der Holzkohle, wie die Abb. 20b aufzeigt. Sobald das entstehende (anfangs minderwertige) Holzgas zündfähig ist, wird es abgefackelt. Parallel zur Fackelschaltung wird der Zündstrahlmotor mit Heizöl EL gestartet. Bei Vorliegen einer qualitativ und quantitativ geeigneten Holzgasproduktion erfolgt die Umstellung des Zündstrahlmotors auf Holzgasbetrieb. Die Motorleistung wird von der Grundlast in 10 kW_{el}-Schritten langsam bis zur Leistungseinstellung von 230 kW_{el} hochgefahren. Sobald diese erreicht ist und die Abgastemperatur nicht weiter ansteigt, ist der Anfahrvorgang beendet, vgl. Abb. 20b.

7.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

Deponiegasverstromungsanlage

Nach einem ca. 24-stündigen Stillstand begann die Wiederinbetriebnahme des BHKW-Moduls 1 der Deponiegasverstromungsanlage durch Betätigung des Anlassers des Gas-Otto-Verbrennungsmotors. Wegen zu hoher Umgebungstemperaturen reichte die Ladeluftkühlung nicht aus, um die angesaugte Luft auf einen Wert von 98 °C zu begrenzen, so dass bereits 55 Minuten nach dem Start der Motor stoppte. Nach einer Abkühlphase von etwa 10 Minuten wurde Motor mit verringerter Leistung (170 kW_{el} anstelle 200 kW_{el}) gestartet. Der Zeitpunkt des Motorstopps ist in Abb. 21 in allen Messwertverläufen ersichtlich.

Abgastemperatur. Der Verlauf der Abgastemperatur verhielt sich wie ein Verzögerungsglied erster Ordnung und erreichte maximal 430 °C. Nach dem erneuten Motorstart stabilisierte sich die Abgastemperatur bei 420 °C.

Abgasvolumenstrom. Der Abgasvolumenstrom stieg synchron mit der Abgastemperatur an und blieb bis zum Ausfall auf einem schwankenden Niveau. Mit verringerter Leistung betrug der Volumenstrom durchschnittlich 710 m³/h.

Kohlenstoffmonoxid. Der Kohlenstoffmonoxidgehalt lag bis zum Motorausfall auf einem nahezu konstanten Wert von 650 mg/m³. Nach dem Neustart betrug das Niveau infolge der geringen Last 520 mg/m³. Zwei geringfügige Absenkungen ließen sich anhand der Aufzeichnungen nicht erklären.

Schwefeldioxid. Die Schwefeldioxidemissionen erreichten bis zum Abschalten des Motors Werte von 248 mg/m³. Im anschließenden Teillastbetrieb wurde ein tendenziell leicht ansteigendes Niveau von im Mittel 250 mg/m³ festgestellt.

Stickstoffoxide. Die Stickstoffoxide erlangten nach einem Startwert von über 4.200 mg/m³ in Korrelation mit dem Schwefeldioxid nahezu konstant hohe Abgasemissionen von 2.290 mg/m³. Nach erneutem Motorstart lag der Durchschnittswert bei 1.880 mg/m³.

Methan. Das Messprogramm beinhaltete auch den Methanschluß infolge des Ladungswechsels (Ventilüberschneidung). Mit dem Start des Motors fiel der Methanschluß von über 5 g/m³ auf einen durchschnittlichen Wert von 372 mg/m³ ab. Im Zuge des Motorstopps kam es zu einer um eine Zehnerpotenz höher liegenden Emissionsspitze.

Zusammenfassung. Nach der Inbetriebnahme des Motors erreichten die Messgrößen innerhalb kurzer Zeit stationäre Werte. Dabei verhielten sich die kontinuierlich ermittelten Schadstoffe Kohlenstoffmonoxid und Schwefeldioxid emissionsseitig unproblematisch. Die Stickstoffoxide blieben auf einem relativ hohen Niveau, das durch geeignete Maßnahmen (z. B. Änderungen des Luft-/Brennstoffverhältnisses) abzusenken ist. Der Beginn des Anfahrvorgangs und die Zeit des Motorstillstands ist von Methan-Konzentrationsspitzen in vierstelliger Höhe geprägt. Der Methangehalt auf einem Niveau von 372 mg/m³ im Abgas entsprach dabei einem Anteil von 0,1 % gegenüber der Methankonzentration im Deponiegas.

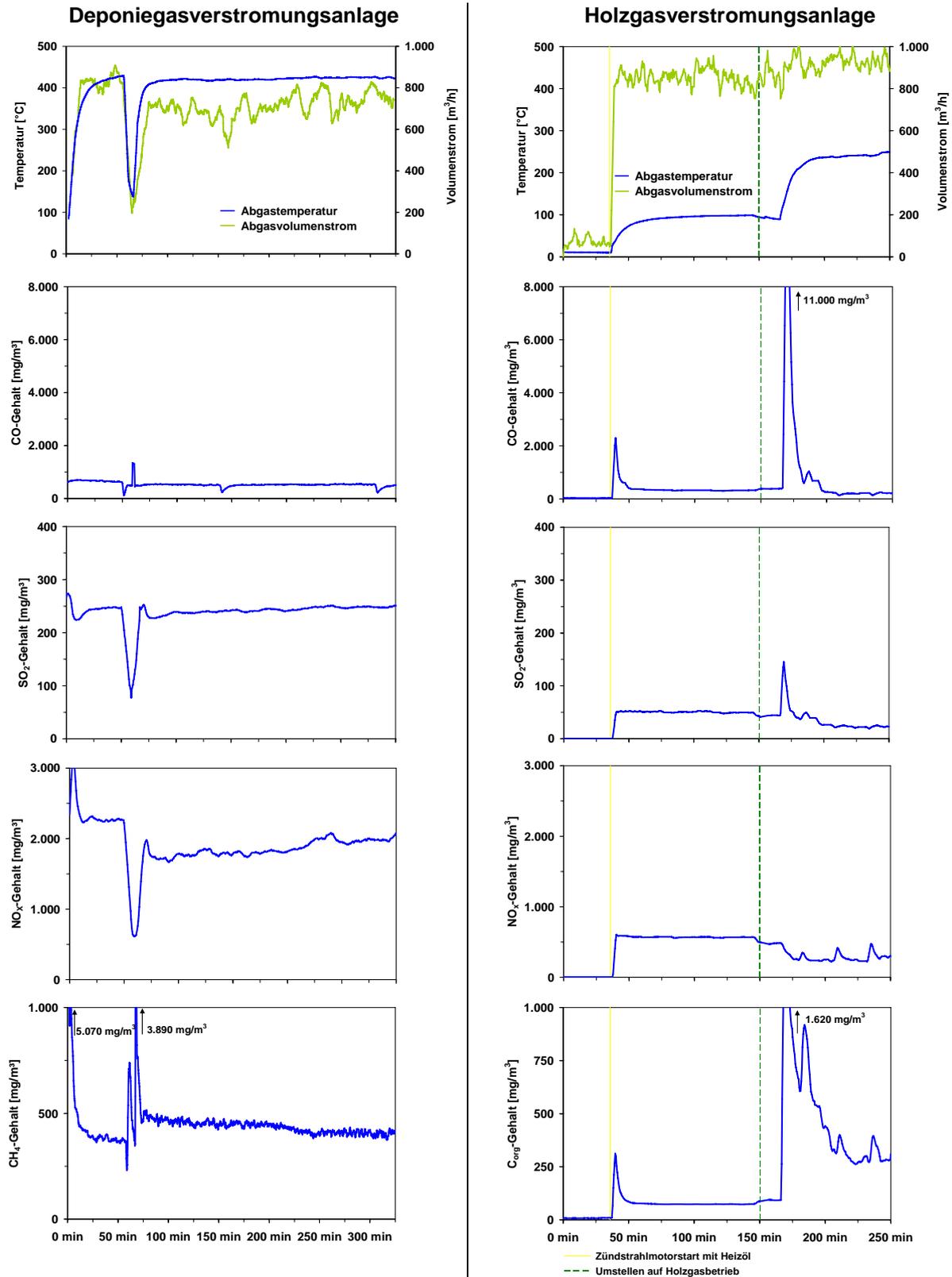


Abb. 21: Halbquantitative Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und Methan bzw. organischem Gesamtkohlenstoff im Reingas während des Anfahrens an Deponie- (links) und Holzgasverstromungsanlage (rechts)

Holzgasverstromungsanlage

Abgastemperatur. Regelungstechnisch betrachtet, verhielt sich der Verlauf der Abgastemperatur wie ein Verzögerungsglied erster Ordnung. Nach der Inbetriebnahme des Motors stieg sie auf ca. 100 °C an. Im Zuge der Laststeigerung des Motors näherte sich die Abgastemperatur bis zum Ende des Anfahrvorgangs asymptotisch einem Wert von 250 °C.

Abgasvolumenstrom. Der Abgasvolumenstrom lag nach dem Start des Zündstrahlmotors im Heizölbetrieb durchschnittlich bei rd. 850 m³/h. Nach der Umstellung auf Holzgasbetrieb schwankte der Abgasvolumenstrom um einen Mittelwert von 914 m³/h. Die sukzessiven Laststeigerungen des Motors hatten keinen erkennbaren Anstieg zur Folge.

Kohlenstoffmonoxid. Nach dem Start des Zündstrahlmotors mit Heizöl EL kam es zu einer Kohlenstoffmonoxidspitze von 2.780 mg/m³. Im anschließenden Heizölbetrieb (Teillast) lag der Wert auf einem relativ konstanten Niveau von 330 mg/m³. Bei der Umstellung auf Holzgas wurden innerhalb von 15 Minuten eine Fracht von 1.090 g Kohlenstoffmonoxid emittiert. Bis zum Ende der Anfahruntersuchung schwankte der Abgasgehalt an Kohlenstoffmonoxid um einen durchschnittlichen Wert von 216 mg/m³.

Schwefeldioxid. Der Gehalt an Schwefeldioxid stieg mit dem Startvorgang des Motors im Heizölbetrieb sprunghaft auf nahezu konstant 49 mg/m³ an. Nach der Umstellung auf Holzgasbetrieb ergab sich ein Spitzenwert von 185 mg/m³ an Schwefeldioxid. Danach fiel die Konzentration tendenziell ab und erreichte zum Ende des Anfahrprozesses durchschnittlich 23 mg/m³.

Stickstoffoxide. Die Stickstoffoxidkonzentrationen zeigten anfänglich einem zum Schwefeldioxid ähnlichen Verlauf. Nach Werten unter der Bestimmungsgrenze von 5 mg/m³ wurden nach dem Start des Zündstrahlmotors (Heizöl EL) zunächst 644 mg/m³ und später im Mittel etwa 570 mg/m³ erfasst. Die Umstellung auf Holzgas hatte im Gegensatz zu den anderen kontinuierlich erfassten Schadstoffen keine Emissionsspitzen zur Folge. Deutlich erkennbar sind die Lasterhöhungen des Motors, die mit drei Konzentrationsspitzen einhergingen. Nach Erreichen der Sollleistung von 230 kW_{el} betrug die durchschnittliche Stickstoffoxidkonzentration 284 mg/m³.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Ausgehend von einem sehr niedrigen Niveau stieg die Abgasemission nach dem Motorstart korrelierend mit dem des Kohlenstoffmonoxid peakartig an. Im anschließenden Teillastbetrieb betrug der Gehalt an organischem Gesamtkohlenstoff im Mittel 78,4 mg/m³. Nach erfolgter Umstellung auf Holzgasbetrieb kam es zu höheren organischen Gesamtkohlenstoffemissionen von maximal 1.620 mg/m³. Die Laststeigerungen des Zündstrahlmotors wirkten sich im Vergleich zu den anderen Schadstoffen weniger deutlich auf das Emissionsverhalten aus; nach Abschluss des Anfahrvorgangs lag der Wert bei durchschnittlich 287 mg/m³.

Zusammenfassung. Erhöhte Emissionen durch ungünstige Verbrennungsbedingungen traten – abgesehen von den Stickstoffoxiden – beim Motorstart sowie bei der Umstellung von Heizöl- auf Holzgasbetrieb auf. An dem Verlauf der Stickstoffoxidkurve sind die Laststeigerungen des Motors im Holzgasbetrieb deutlich ersichtlich. Die gemessenen Abgaskonzentrationen an Schwefeldioxid bestätigen, dass der Brennstoff Holz einen geringeren Schwefelanteil aufweist als Heizöl EL. Im stationären Betrieb (Holzgas) wurden generell niedrigere Emissionen als im Heizölbetrieb festgestellt.

7.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im Anfahrbetrieb

Deponiegasverstromungsanlage

Das Messprogramm in Bezug auf die persistenten organischen Verbindungen im Abgas der Deponiegasverstromungsanlage umfasste die drei Probenahmeabschnitte Anfahren (bis zum Motorstopp infolge Ladeluftüberhitzung; s. o.), Anfahren bei reduzierter Leistung (85 % der Leistungseinstellung) mit 170 kW_{el} sowie die Stabilisierungsphase in den (quasi-)stationären Zustand.

PAK. Über die drei Probenahmephasen hinweg war ein kontinuierlicher Rückgang an PAK im Abgas zu verzeichnen. Dabei lagen die Messwerte um zwei Zehnerpotenzen niedriger als bei der Holzgasverstromungsanlage.

Indikator-PCB. Die ersten beiden Messwerte lagen sehr dicht beisammen. Zwischen dem zweiten und dritten Messwert lag ein Faktor von 2,5.

Coplanare PCB. Ein ähnliches Bild wie die Indikator-PCB lieferten die coplanaren PCB. Die Abgasgehalte befanden sich dabei auf einem sehr niedrigen Niveau in der Größenordnung von 1 fg WHO-TEQ/m³ bis 10 fg WHO-TEQ/m³. Dabei umfasste die dritte Beprobung wegen eines zerbrochenen Probegefäßes lediglich die mono-ortho-substituierten PCB.

PCDD/F. Ebenso auf sehr niedrigem Niveau lagen die Konzentrationen im Abgas an PCDD/F. Im Unterschied zu den PAK und PCB konnte bei der dritten Abgasbeprobung eine gewisse Konzentrationserhöhung festgestellt werden.

Zusammenfassung. Im Abgas der Deponiegasverstromungsanlage waren die Konzentrationen an PAK gering und nahmen bis zur Stabilisierungsphase weiter ab. Die Gehalte der anderen persistenten organischen Schadstoffe (PCB, PCDD/F) lagen ebenfalls auf sehr niedrigem Niveau und sind somit nicht emissionsrelevant.

Holzgasverstromungsanlage

Der Anfahrprozess der Holzgasverstromungsanlage umfasste die beiden Probenahmeabschnitte Heizöl- und Holzgasbetrieb. In Abb. 22 sind die Abgaskonzentrationen der PAK, PCB und PCDD/F dargestellt.

PAK. Bei den PAK wurde ein anderer Maßstab als bei der Deponiegasverstromung gewählt. Die PAK-Gehalte im Reingas des Motors lagen bei beiden Probenahmen auf einem vergleichbaren Niveau.

Indikator-PCB. Im Holzgasbetrieb wurde eine etwas höhere Indikator-PCB-Konzentration als im Heizölbetrieb gemessen.

Coplanare PCB. Auf einem sehr niedrigen Niveau lagen die Emissionen an coplanaren PCB im Motorabgas. Auffällig war die unterschiedliche Zusammensetzung des summarischen Toxizitätsäquivalents nach WHO im Heizöl- und Holzgasbetrieb.

PCDD/F. In Übereinstimmung mit den coplanaren PCB lagen die Abgasemissionen an PCDD/F im Holzgas- niedriger als im Heizölbetrieb. Auch die einzelnen Beiträge der PCDD/F-Kongeneren zum Toxizitätsäquivalent waren signifikant anders. Die Größenordnung der Abgaskonzentrationen an PCDD/F blieb dabei gering.

Zusammenfassung. Während von der Anlage im Vergleich zu anderen Anlagentypen relativ hohe PAK-Emissionen ausgingen, lagen die der Indikator- und coplanaren PCB sowie der PCDD/F auf einem sehr niedrigen Niveau und sind emissionsseitig bedeutungslos.

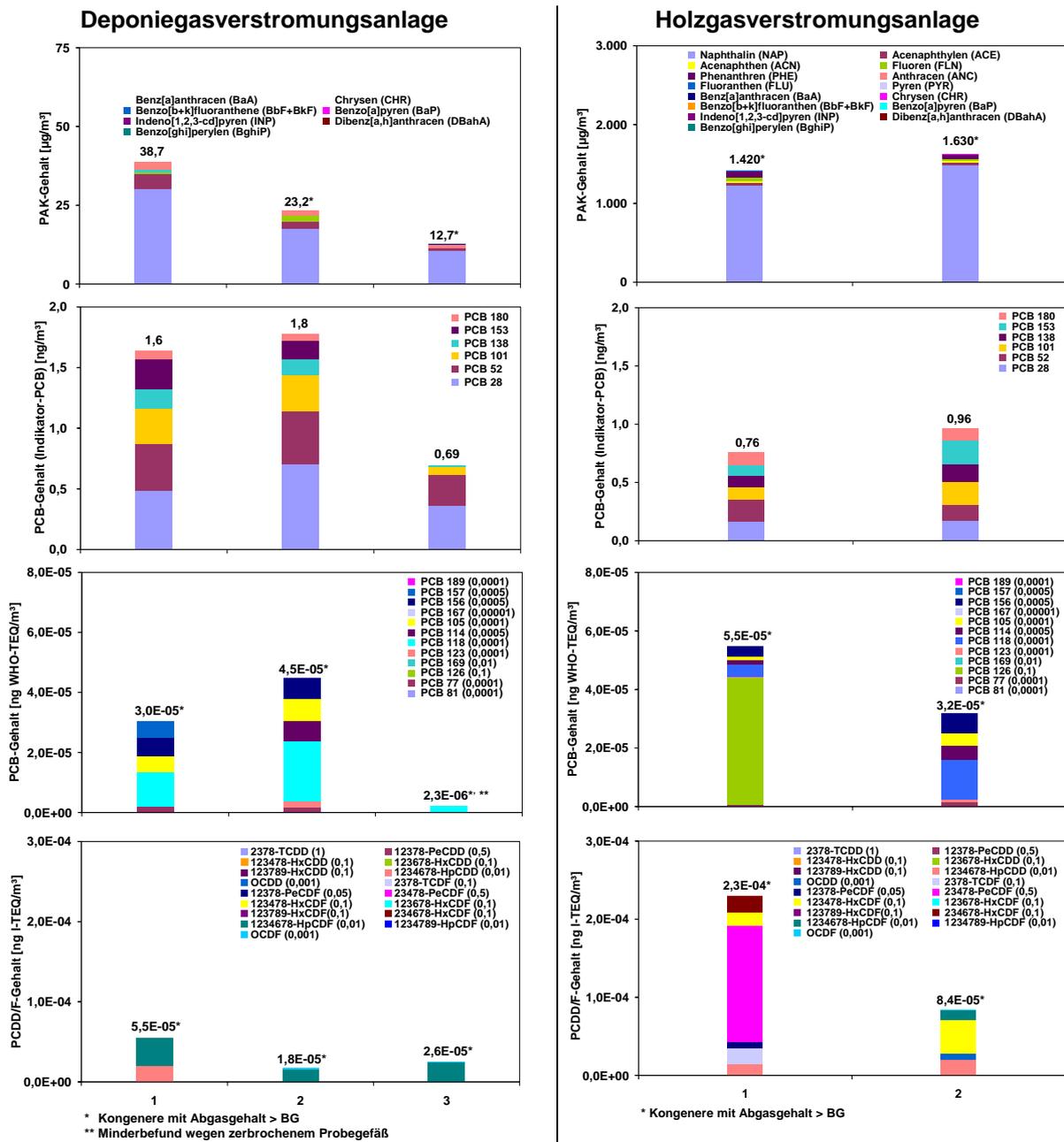


Abb. 22: Abgasgehalte an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F während des Anfahrens an Deponie- (links, Probennahmephasen 1 bis 3) und Holzgasverstromungsanlage (rechts, Probennahmephasen 1 und 2)

8 Holzheizkraftwerk

In Holzheizkraftwerken werden oftmals schadstoffhaltige Holzabfälle bzw. Altholzfraktionen behandelt und die thermisch erzeugte Energie genutzt.

Die Abb. 23 zeigt das verfahrenstechnische Schema des untersuchten Holzheizkraftwerks, das der Erzeugung von Frischdampf (Naturumlauf-Wasserrohrdampfkessel: 113 Mg/h, 6.700 kPa, 452 °C) bzw. 18 MW_{el} Strom sowie von Prozesswärme (50 MW) für die Beheizung der Spänetrockner der werksinternen Spanplattenproduktion und Wärme (5,5 MW) für den Werksbedarf dient. Als Brennstoff werden Holzabfälle aus Gewerbe- und Industriebetrieben, Altholz der Kategorien AI bis AIV nach Altholzverordnung [10], imprägnierte Bahnschwellen und Masten (Altholzategorie AIV) sowie melaminharzgetränkte Papierabfälle eingesetzt. Trogkettenförderer transportieren die in Form von Hackschnitzeln vorliegenden Brennstoffe von der Lagerhalle oder aus Silos zu Fallschächten, über die die kontinuierliche Beschickung des Wanderrostes erfolgt. Vier sog. „Spreader-Stoker“ sorgen für die gleichmäßige Verteilung der Hackschnitzel auf der Rostfläche. Durch Einblasdüsen sowie zwei Staub-/Öl-Stützbrenner kann Sieb- und Schleifstaub der Verbrennung zugeführt werden, der bereits in einem sog. „Schwebebett“ über dem Wanderrost zündet. Neben Primärluft wird zur Optimierung des Ausbrandgrads der Verbrennungsgase in den Feuerraum Sekundär- und Tertiärluft eingeblasen. Nach der letzten Luftzuführung ist entsprechend § 4 Absatz 2 der 17. BImSchV [1] eine Verweilzeit der Verbrennungsabgase von zwei Sekunden bei einer Mindesttemperatur von 850 °C einzuhalten. Bei deren Unterschreitung sowie während des An- und Abfahrens geht mindestens einer der beiden Stützbrenner mit Heizöl EL in Betrieb.

Die Abgasreinigung besteht aus einer im Feuerraum installierten SNCR-Einheit (Entstickung, Reduktionsmittel Carbamin), einem Zyklon (Grobentstaubung) sowie einem 6-Kammer-Gewebefilter mit vorgeschalteter Adsorbenszufuhr (Sorbalit[®], Abscheidung von HCl, HF, SO₂, organischen Schadstoffen, gasförmigen und leichtflüchtigen Schwermetallen/-verbindungen). Vom gereinigten Abgas werden ca. 13.000 Nm³/h kontinuierlich abgezweigt und über ein sog. Rezirkulationsgebläse erneut der Feuerung zur Nachverbrennung zugeführt. Der weitaus größere Abgasstromanteil (rund 90 %) gelangt über den Kamin, in dem eine Vermischung mit den gereinigten Abgasen der Spänetrockner der Spanplattenproduktion stattfindet, an die Umgebung.

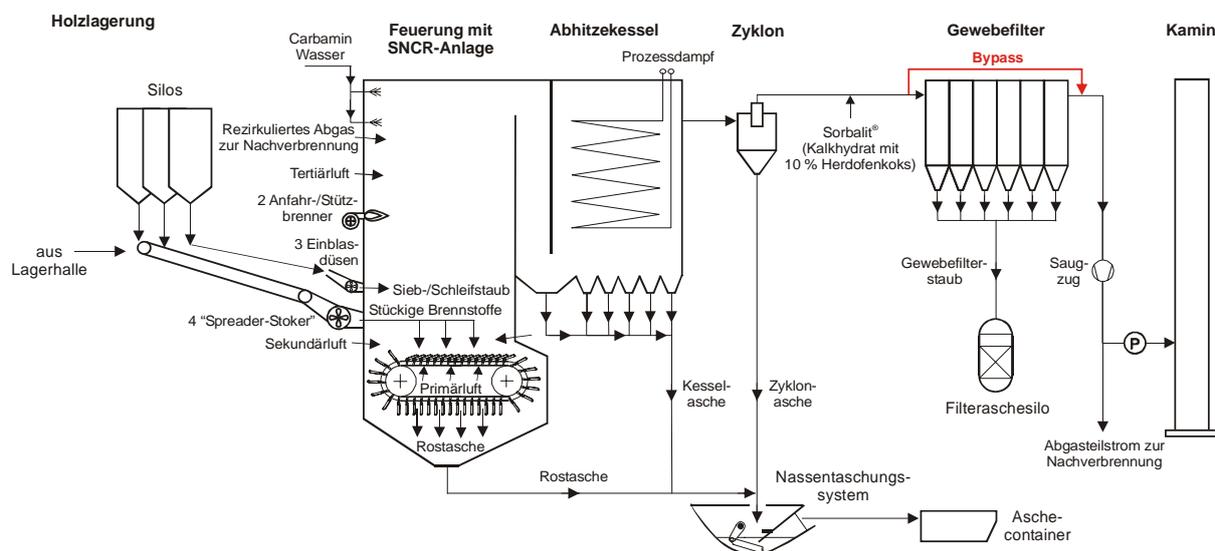


Abb. 23: Holzheizkraftwerk – Verfahrensschema mit eingerichteter Probenahmestelle (P) im Reingas (vor Kamin)

8.1 Regulärer Anlagenbetrieb

Bei den ersten beiden von insgesamt drei am Holzheizkraftwerk durchgeführten Messkampagnen (siehe auch Abschnitt 8.2) fanden jeweils etwa eine Woche nach der Anfahruntersuchung sechsstündige Abgasprobenahmen im regulären Anlagenbetrieb statt. Die Tab. 11 gibt eine Übersicht über die wichtigsten Regelbetriebsdaten. Die Mittelwerte der über diese Zeiträume erfassten Messgrößen sind in Tab. 12 dargestellt. Die im Genehmigungsbescheid und laut 17. BImSchV [1] festgesetzten Grenzwerte wurden zuverlässig unterschritten.

Tab. 11: Übersicht über wesentliche Kenndaten des untersuchten Holzheizkraftwerks

		Auslegungsdaten		
Mittl. Brennstoffdurchsatz		26 Mg/h		
Kessel-anlage	Max. Feuerungs-wärmeleistung	100 MW		
	Max. Dampflei-stung	113 Mg/h		
Feuerungs-anlage	Komponenten	Wanderrost	2 Staub-/Öl-brenner	3 Düsen-brenner
	Brennstoffe	Altholz (AI bis AIV) ^{*)} , Holzabfälle, melaminharzgetränkte Papierabfälle	Sieb-, Schleif-staub (Heizöl EL)	Sieb-, Schleifstaub

^{*)} Kategorien nach Altholzverordnung [10]

Tab. 12: Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen am Holzheizkraftwerk; MK: Messkampagne

	MK 1	MK 2	Halbstundenmittelgrenzwerte ^{*)}
Abgasrandparameter			
Volumenstrom [m ³ /h]	132.400	119.700	–
Temperatur [°C]	162	169	–
Abgaskonzentrationen			
O ₂ [Vol.-%]	5,3	5,7	–
CO ₂ [Vol.-%]	13,7	13,7	–
CO [mg/m ³] ^{**)}	71,5	46,9	100
SO ₂ [mg/m ³] ^{***)}	66,4	55,7	200 ^{****)}
Σ NO, NO ₂ [mg/m ³] ^{***)}	209	246	400
C _{org} [mg/m ³] ^{**))}	0,88	0,58	20
HCl [mg/m ³] ^{***)}	3,3	5,4	60
HF [mg/m ³] ^{***)}	< 0,13	< 0,14	4
Hg [µg/m ³] ^{***)}	0,5	< 0,1	50

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid bzw. 17. BImSchV [1]

^{**))} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid bzw. 17. BImSchV [1] auf 11 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{***)} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid auf 5 Vol.-% Sauerstoff bezogen

^{****)} gültig für Σ SO₂, SO₃

Tab. 12 (Forts.): Mittelwerte der Abgasrandparameter und -konzentrationen während der Regelbetriebsuntersuchungen am Holzheizkraftwerk; MK: Messkampagne

	MK 1	MK 2	Halbstundenmittelgrenzwerte ^{*)}
Abgaskonzentrationen			
PAK [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	0,43	< 1,6	–
PCB _{Indikator} [ng/m^3]	1,6	0,56	–
PCB _{coplanar} [$\text{ng WHO-TEQ}/\text{m}^3$]	0,00070	0,00026	–
PCDD/F [$\text{ng I-TEQ}/\text{m}^3$] ^{**)}	0,010	0,0060	0,1

^{*)} lt. Genehmigungsbescheid bzw. 17. BImSchV [1]

^{**)} Mittelwerte sind gemäß Genehmigungsbescheid auf 5 Vol.-% Sauerstoff bezogen

8.2 An- und Abfahrbetrieb

Das Holzheizkraftwerk wird zwei- bis dreimal pro Jahr zu Revisionszwecken abgeschaltet und jeweils spätestens nach ein bis zwei Wochen wieder aus dem Kaltzustand in Betrieb genommen.

Innerhalb der Projektlaufzeit fanden am Holzheizkraftwerk insgesamt drei Anfahr- und zwei Abfahruntersuchungen statt. Da bei der ersten Messkampagne der Anfahrbetrieb aufgrund von anlagenseitigen Komplikationen nicht vollständig messtechnisch erfasst werden konnte, wurde das gesamte Untersuchungsprogramm (Ab-, Anfahren, Regelbetrieb) etwa fünf Monate später wiederholt. Dabei traten – wie schon bei der Erstmessung – häufig Konzentrationsspitzen an Kohlenstoffmonoxid und organischem Gesamtkohlenstoff sowie hohe PCDD/F-Emissionen auf. Die zeitweise ungünstigen Verbrennungsbedingungen wurden verstärkt durch wiederholtes Absenken und Steigern der Kessellast wegen mangelnder Dampfabnahme durch die Spänetrockner der Spanplattenproduktion (Probleme mit deren Inbetriebnahme) sowie den Einsatz von besonders feuchtem naturbelassenem Holz. Vom Anlagenbetreiber wurden daraufhin verschiedene Maßnahmen zur Reduktion der Anfahrmissionen umgesetzt. Ein Jahr nach der ersten Untersuchungskampagne wurde in einer dritten Anfahrmission deren Effizienz überprüft. Dabei waren zwar die Emissionen während des – zuvor mit extremen Abgasgehalten einhergegangenen – Aufheizens mit naturbelassenem Holz gemindert; allerdings traten gleich zu Beginn des Anfahrvorgangs besonders hohe PCDD/F-Abgasgehalte auf, die womöglich ihre Ursache in Ablagerungen in Feuerraum und Abhitzeessel aus dem vorausgegangenen Anlagenbetrieb/Abfahrvorgang haben. Da der Anlagenbetreiber bisher während und u. U. noch ein bis zwei Tage nach Anfahrprozessen etwas höhere Gesamtstaubemissionen als im späteren Regelbetrieb beobachtet hatte, wurde bei dieser dritten Anfahruntersuchung aus fachlichem Interesse zusätzlich der Abgasgehalt an Gesamtstaub bestimmt. Die Ursache für die erhöhte Staubkonzentration im Abgas liegt in der zunächst nicht vollständig dichtenden Verschlussklappe des Gewebefilterbypasses; der verbleibende Spalt setzt sich erst während des Anlagenbetriebs mit Staub zu.

Beim An- und Abfahren des Heizkraftwerks wird ausschließlich naturbelassenes Holz, Rinde und Biomasse (Stroh, Getreide) verbrannt.

Ein Anfahrvorgang beginnt mit der Inbetriebnahme von Saugzug, Primär-/Sekundär- und Tertiärluftgebläse und einer ca. 10- bis 15-minütigen Vorbelüftung von Feuerraum und Abgaswegen. Als erste Maßnahme zur Reduktion der Anfahrmissionen wurde bei der dritten Untersuchung bereits über diesen Zeitraum das Gewebefilter mit Sorbalit[®] beaufschlagt. Nach der Vorbelüftung zünden sequenziell beide Stützbrenner. Sobald die Gastemperatur vor dem Gewebefilter 100 °C überschreitet, wird der Bypass geschlossen und naturbelassenes Holz auf den leeren Wanderrost gegeben. Bei den ersten beiden Anfahruntersuchungen erfolgte die automatische Sorbalit[®]-Dosierung nach Start des betrieblichen Emissionswerterechners bei $T_{\text{Feuerraum, korrigiert}} > 700 \text{ °C}$ in Abhängigkeit vom SO_2 - und HCl-Gehalt. Sobald sich das Feuer vollständig ausgebildet hat, werden die Stützbrenner außer Betrieb

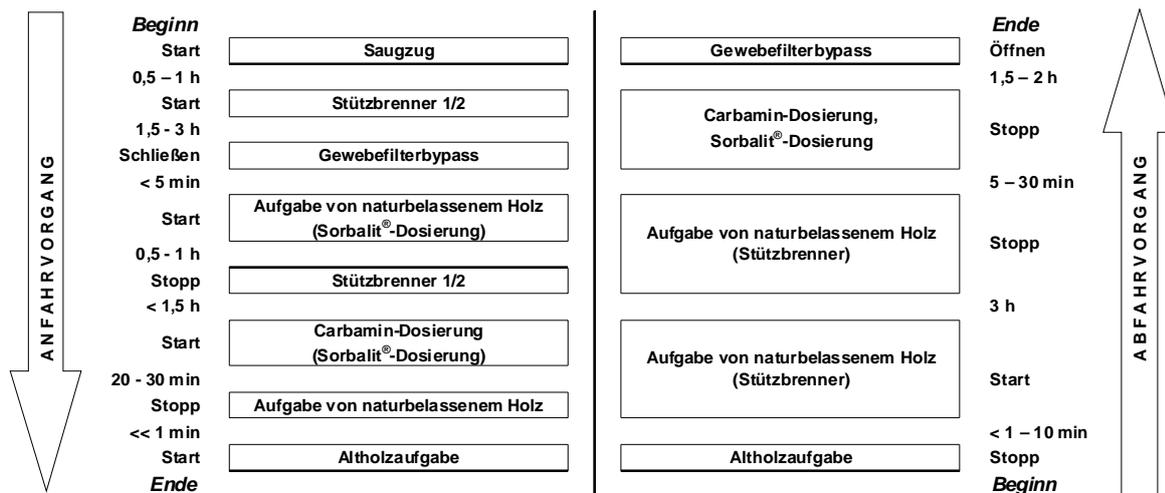


Abb. 24: Verallgemeinertes Ablaufschema von An- und Abfahrvorgängen am Holzheizkraftwerk

genommen. Nach Überschreiten einer korrigierten Feuerraumtemperatur von 800 °C beginnt die Carbamin-Dosierung in die SNCR-Stufe. Ab einer korrigierten Feuerraumtemperatur von 850 °C wird die Verbrennung von naturbelassenem Holz auf Altholz umgestellt.

Der Abfahrprozess wird mit der Brennstoffumstellung von Alt- auf Naturholz eingeleitet. Sofern die korrigierte Feuerraumtemperatur in den folgenden drei Stunden 850 °C unterschreitet, wird mindestens einer der beiden Stützbrenner gezündet, um die Temperatur aufrecht zu erhalten. Nach Beendigung der Naturholzaufgabe wird die Carbamin- und Adsorbensdosierung gestoppt. Sobald die Gastemperatur vor dem Gewebefilter 100 °C unterschreitet, wird der Bypass geöffnet.

8.2.1 Kontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

Die Verläufe der kontinuierlich erfassten Abgasrandparameter und -konzentrationen zeigten für die drei untersuchten Anfahrvorgänge sowie die beiden Abfahrprozesse gewisse Ähnlichkeiten, geprägt von den Prozessabläufen. Im Folgenden werden die Ergebnisse anhand der in Abb. 25 dargestellten, halbquantitativen Kurvenverläufe des modifizierten, dritten Anfahrvorgangs und der Abfahrvorgänge erläutert.

Anfahrbetrieb

Abgastemperatur. Nach einer geringen Temperaturzunahme während der Vorbelüftung von Feuerraum und Abgaswegen begann mit der Zündung des ersten Stützbrenners ein stetiger Anstieg um etwa 80 K bis 90 K über die folgenden rd. drei Stunden. Nach Erreichen einer Gastemperatur vor dem Gewebefilter von über 100 °C wurde der Bypass geschlossen, woraus beim Durchströmen des noch kalten Gewebefilters ein kurzzeitiger Temperaturrückgang um 30 K resultierte. Mit der Verbrennung von naturbelassenem Holz und Altholz (ab $T_{\text{Feuerraum, korrigiert}} > 850 \text{ °C}$) stieg die Abgastemperatur bis zum Ende der Anfahruntersuchung auf durchschnittlich 150 °C.

Abgasvolumenstrom. Bei der Vorbelüftung erreichte der Abgasvolumenstrom ein doppelt so hohes Niveau wie im weiteren Verlauf des Anfahrvorgangs. Während des Aufheizens mit Hilfe der Stützbrenner bewegte er sich nahezu konstant zwischen durchschnittlich 80.000 m³/h und 90.000 m³/h. Vor dem Schließen des Gewebefilterbypasses war ein steiler Anstieg um etwa 60 K zu verzeichnen. Bei den ersten beiden Anfahruntersuchungen verlief der Volumenstrom demgegenüber (bis auf einzelne Unstetigkeiten beim Abschalten eines Brenners oder wegen Kessellastschwankungen) bis zum Ende des Messzeitraums auf relativ gleichbleibendem Niveau.

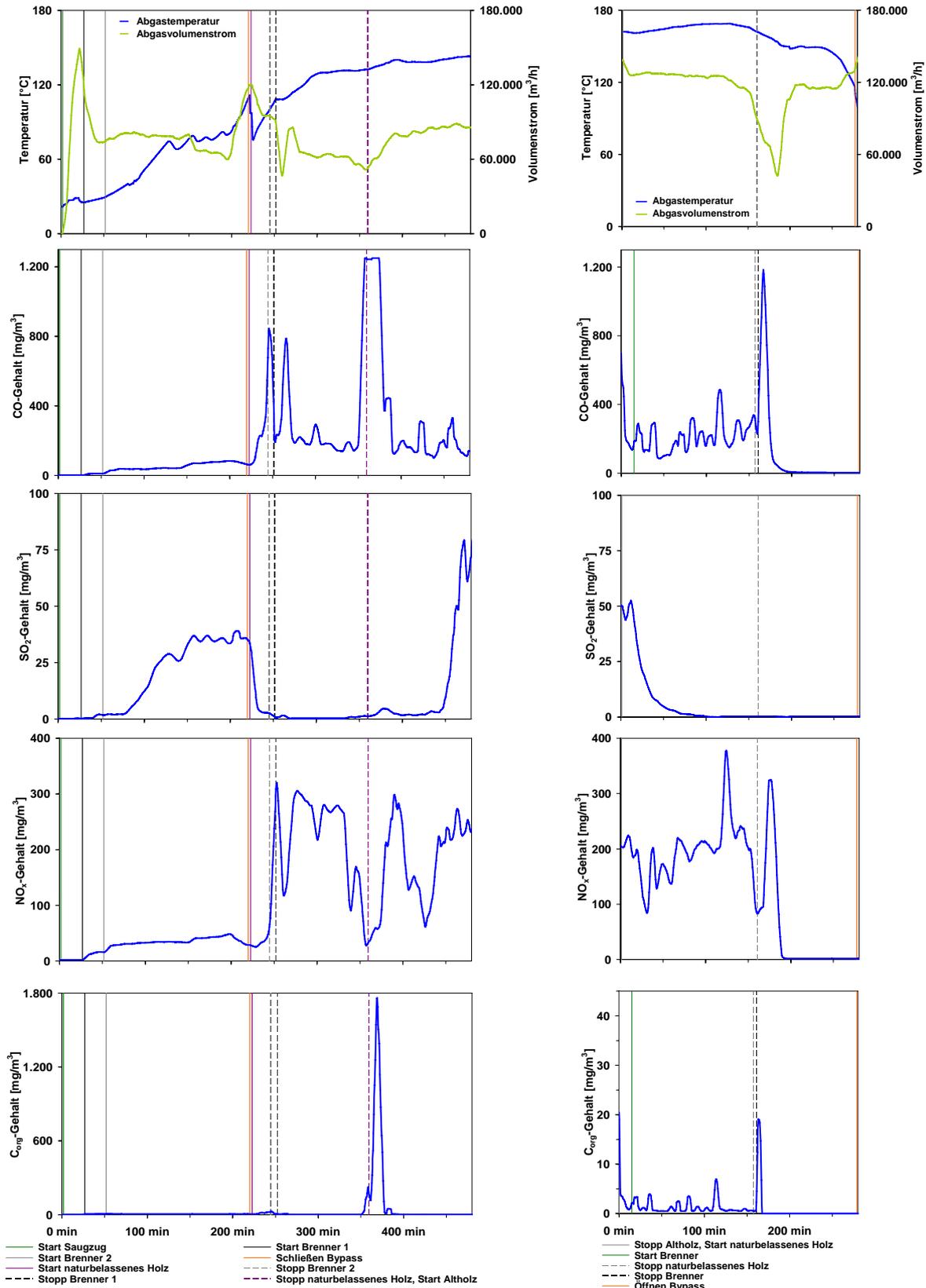


Abb. 25: Halbquantitative Verläufe von Abgastemperatur und -volumenstrom sowie der Abgasgehalte an Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff während des modifizierten Anfahrens (links) und des Abfahrens (rechts) am Holzheizkraftwerk

Kohlenstoffmonoxid. Während des reinen Stützbrennerbetriebs stieg der Kohlenstoffmonoxidgehalt von unter der Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3) auf durchschnittlich etwa 100 mg/m^3 an. Die Verbrennung von naturbelassenem Holz (inkl. Abschalten der Brenner) führte zu Peaks, die v. a. bei der zweiten Anfahruntersuchung (besonders feuchtes Holz, Kessellastschwankungen) das Messbereichsende von 1.250 mg/m^3 überschritten. Der Übergang von Natur- auf Altholzfeuerung war ebenfalls von extremen Kohlenstoffmonoxidspitzen geprägt.

Schwefeldioxid. Bedingt durch die Verbrennung von schwefelarmem Heizöl EL nahm der Schwefeldioxidgehalt auf durchschnittlich 30 mg/m^3 bis 40 mg/m^3 zu. Nach Schließen des Gewebefilterbypasses sank die Konzentration erneut bis unter die Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3) ab. Ca. $1\frac{1}{4}$ h nach dem Start der Altholzverbrennung war ein Schwefeldioxidanstieg auf über 90 mg/m^3 zu verzeichnen. Diese Zunahme trat bei der zweiten Untersuchungskampagne sofort nach dem Umstellen auf Altholz auf, da – im Unterschied zum modifizierten Anfahrprozess (Sorbalit[®]-Dosierung bereits ab Schließen des Gewebefilterbypasses) – erst kurz zuvor die Sorbalit[®]-Dosierung gestartet worden war.

Stickstoffoxide. Während des reinen Brennerbetriebs nahm der Stickstoffoxidgehalt in etwa parallel (unterschiedliche Größenordnung) zum Kohlenstoffmonoxidverlauf schrittweise zu. Nach Beginn der Aufgabe von naturbelassenem Holz war ein steiler Anstieg auf rd. 300 mg/m^3 gefolgt von einem leicht abnehmenden, starken schwankenden Verlauf zu verzeichnen. Der Start der Carbamin-Dosierung in die SNCR-Stufe bewirkte einen nur kurzzeitigen Rückgang um etwa 200 mg/m^3 . Während der ersten Anfahruntersuchung zeigte der Stickstoffoxidgehalt unter Naturholzfeuerung eine anhaltende Zunahme. Bei der zweiten Messkampagne war erst mit Beginn der Altholzzufuhr ein kurzzeitiger Anstieg auf über 300 mg/m^3 zu beobachten.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Der Abgasgehalt an organischem Gesamtkohlenstoff lag die überwiegende Zeit unter 10 mg/m^3 . Mit der Umstellung auf Altholz traten analog zum Kohlenstoffmonoxidgehalt extreme Konzentrationspeaks (maximal 2.220 mg/m^3) auf. Bei der Erstmessung wurde in der Phase der Naturholzverbrennung ein maximaler Gehalt von 64 mg/m^3 festgestellt; bei der Zweitmessung waren in diesem Zeitraum aufgrund von hoher Holzfeuchte und Kessellastschwankungen Konzentrationsspitzen von maximal 2.280 mg/m^3 zu verzeichnen.

Zusammenfassung. Die Schwefeldioxid- und Stickstoffoxidgehalte waren während der beprobten Anfahrvorgänge zeitweise mit dem Regelbetrieb vergleichbar oder stiegen erst mit dem Start der Altholzverbrennung auf ein emissionsrelevantes Niveau an. Dagegen traten bez. Kohlenstoffmonoxid und organischem Gesamtkohlenstoff – auch beim modifizierten Anfahren – Abgaskonzentrationen bis in den vierstelligen mg/m^3 -Bereich auf, was weitere Optimierungsmaßnahmen erforderlich macht.

Abfahrbetrieb

Abgastemperatur. Zu Beginn der Abfahruntersuchungen lag die Abgastemperatur bei etwa 160 °C . Während der dreistündigen Verbrennung von naturbelassenem Holz stieg sie auf (knapp über) 170 °C an, um nach Erlöschen des Holzfeuers bis zum Ende des Untersuchungszeitraums (Öffnen Gewebefilterbypass) aufgrund des Wärmespeichervermögens des Systems auf etwa 115 °C abzusinken.

Abgasvolumenstrom. Über die erste Hälfte der Abfahrprozesse blieb der Abgasvolumenstrom mit im Mittel rd. $120.000 \text{ m}^3/\text{h}$ nahezu konstant. Um das stöchiometrische Luft-/Brennstoffverhältnis aufrecht zu erhalten, wurde der Volumenstrom beim Erlöschen des Rostfeuers automatisch für kurze Zeit um $40.000 \text{ m}^3/\text{h}$ (erste Messung) bzw. $80.000 \text{ m}^3/\text{h}$ (zweite Messung) abgesenkt und anschließend wieder auf das vorhergehende Niveau angehoben.

Kohlenstoffmonoxid. Die Verbrennung von naturbelassenem Holz ging mit unterschiedlich häufigen Peaks im Kohlenstoffmonoxidverlauf einher. Während bei der zweiten Messung zu Beginn ein erhöh-

tes Niveau mit einem Maximum von 1.060 mg/m^3 vorherrschte, traten bei der Erstmessung durchgehend geringere Konzentrationsspitzen (max. $> 800 \text{ mg/m}^3$) auf. Das Beenden der Holzzufuhr bzw. Erlöschen des Rostfeuers führte zu einem weiteren peakartigen Konzentrationsanstieg bis über 1.000 mg/m^3 , dem unmittelbar ein Absinken auf das Niveau der Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3) folgte.

Schwefeldioxid. Kurz nach der Umstellung auf Naturholzfeuerung trat mit knapp über 50 mg/m^3 (erste Messung) bzw. 20 mg/m^3 (zweite Messung) die höchste Schwefeldioxidkonzentration des Abfahrzeitraums auf. Dies resultierte aus der Verbrennung letzter Altholzhackschnitzel auf dem Rost. Danach fiel der Abgasgehalt bis unter die Bestimmungsgrenze von 5 mg/m^3 ab.

Stickstoffoxide. Die Stickstoffoxidkonzentration unterlag wie der Kohlenstoffmonoxidgehalt unterschiedlich starken Schwankungen bei einem mittleren Niveau von rd. 150 mg/m^3 (erste Messung) bzw. 200 mg/m^3 (zweite Messung). Die höchsten Peakwerte betragen etwa 500 mg/m^3 bzw. 400 mg/m^3 . Erst nach dem völligen Erlöschen des Rostfeuers sank der Stickstoffoxidgehalt nahezu sprunghaft unter die Bestimmungsgrenze (5 mg/m^3) ab.

Organischer Gesamtkohlenstoff. Der Abgasgehalt an organischem Gesamtkohlenstoff (Abb. 25: Skalierung gegenüber Anfahren um Faktor 40 geringer) korrelierte ebenfalls mit der Kohlenstoffmonoxidkurve. Das über weite Bereiche unter der Bestimmungsgrenze von $1,0 \text{ mg/m}^3$ liegende Niveau wurde bei der ersten Messkampagne häufiger und bei der Zweitmessung nur anfänglich von kleineren Peaks unterbrochen. In beiden Fällen traten auch beim Erlöschen des Rostfeuers letzte Konzentrationsspitzen im zweistelligen mg/m^3 -Bereich auf.

Zusammenfassung. Mit Ausnahme des Schwefeldioxidgehalts (keine Emissionsrelevanz) sind die Konzentrationen der kontinuierlich erfassten Schadstoffe im Abfahrbetrieb stark von den vorherrschenden Verbrennungsbedingungen unter Einsatz von naturbelassenem Holz abhängig. Wie beim Anfahrprozess spielt dabei die Holzbeschaffenheit (Wassergehalt etc.) eine wichtige Rolle.

8.2.2 Diskontinuierliche Messgrößen im An- und Abfahrbetrieb

Während der An- und Abfahruntersuchungen am Holzheizkraftwerk wurden im Wechsel halbstündige Probenahmen zur Bestimmung der Abgasgehalte an Chlor-, Fluorwasserstoff und Quecksilber durchgeführt. Die ausschließlich während der dritten Anfahrmessung durchgeführten Gesamtstaubprobenahmen erfolgten simultan zur Chlor-, Fluorwasserstoffbestimmung. Für die diskontinuierliche Erfassung der PAK-, PCB-, PCDD/F-Konzentrationen wurden die Anfahrvorgänge in je drei Phasen unterteilt: die erste Probenahme erstreckte sich von der Inbetriebnahme des Saugzugs bis zur Aufgabe von naturbelassenem Holz auf den Rost über $3\frac{1}{2}$ bis $6\frac{1}{2}$ Stunden, die zweite dauerte bis zur Umstellung der Rostbeschickung auf Altholz zwei bis $3\frac{1}{2}$ Stunden, und mit der dritten Probenahme wurden die ersten zwei Stunden des regulären Anlagenbetriebs erfasst. Über die Zeiträume der untersuchten Abfahrprozesse erfolgte jeweils eine PAK-, PCB-, PCDD/F-Probenahme. Die Ergebnisse dieser organischen Parameter sind – mit Ausnahme der ersten Anfahruntersuchung (Probenahmen aufgrund anlagenseitiger Komplikationen vorzeitig abgebrochen) – grafisch in Abb. 26 zusammengestellt.

Gesamtstaub. Der bei der dritten Anfahruntersuchung festgestellte Abgasgehalt an Gesamtstaub stieg bis zum Ende des Aufheizens mit den heizölbeheizten Stützbrennern auf über 4 g/m^3 an. Nach Schließen des Gewebefilterbypasses und Start der Sorbalit[®]-Dosierung lag die Staubkonzentration während der Verbrennung von naturbelassenem Holz sowie im anschließenden Altholzbetrieb im einstelligen mg/m^3 -Bereich.

Chlor-, Fluorwasserstoff. Sowohl der Chlor- als auch der Fluorwasserstoffgehalt im Abgas waren während der untersuchten An- und Abfahrvorgänge überwiegend vernachlässigbar gering. Lediglich mit dem Start der Naturholzverbrennung beim modifizierten Anfahren und aufgrund von Kessellastschwankungen in Verbindung mit der Verbrennung von besonders feuchtem naturbelassenem Holz bei

der zweiten Anfahruntersuchung traten kurzzeitig Chlorwasserstoffkonzentrationen im zweistelligen mg/m^3 -Bereich auf. Hinsichtlich Fluorwasserstoff wurde in den meisten Fällen die Bestimmungsgrenze unterschritten.

Quecksilber. Auch die Quecksilberkonzentration wies während aller Untersuchungskampagnen relativ geringe Halbstundenmittelwerte auf. Der modifizierte Anfahrprozess ging mit geringfügig über $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liegenden Abgasgehalten einher; bei den anderen An-/Abfahruntersuchungen wurde dieser Wert unterschritten bzw. die Bestimmungsgrenze von $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht erreicht.

PAK. Die Abgasgehalte an PAK zeigten zwischen der zweiten und dritten Anfahruntersuchung ein gegensätzliches Verhalten (vgl. Abb. 26): bei der zweiten Messung führten ungünstige Verbrennungsbedingungen aufgrund von besonders feuchtem, naturbelassenem Holz und wiederholt auftretenden Kesselastschwankungen zur Maximalkonzentration ($732 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Beim modifizierten, dritten Anfahren trat der höchste Wert nach Einsetzen der Altholzverbrennung auf; der relativ hohe PAK-Gehalt unter reinem Stützbrennerbetrieb ($622 \mu\text{g}/\text{m}^3$) lässt auf die Freisetzung von im Kesselraum abgelagerten organischen Verbindungen schließen.

Die PAK-Emissionen der beprobten Abfahrprozesse waren im Vergleich zum Anfahren vernachlässigbar gering.

Indikator-PCB. Im Unterschied zu den PAK, coplanaren PCB und PCDD/F zeigten die Indikator-PCB-Gehalte bei der zweiten und dritten Anfahruntersuchung eine ähnliche Tendenz: im ersten Probenahmeabschnitt (Stützbrennerbetrieb) lag jeweils der höchste Abgasgehalt vor, wobei der modifizierte Anfahrprozess mit einem um rd. 60 % geringeren Wert einherging. Ab dem Start der Altholzverbrennung wurden die gleichen niedrigen Größenordnungen wie bei den beprobten Abfahrvorgängen ermittelt.

Coplanare PCB. Während der zweiten Anfahruntersuchung entsprach die Entwicklung des Abgasgehalts an coplanaren PCB den PAK-Konzentrationen. Als Ursache für den maximalen Summengehalt während der Verbrennung von naturbelassenem Holz ($0,89 \text{ ng WHO-TEQ}/\text{m}^3$) kommt neben den o. g. Faktoren die – im Unterschied zum modifizierten Anfahren – erst gegen Ende dieses Probenahmeabschnitts begonnene kontinuierliche Sorbalit[®]-Dosierung in Betracht. Bei der dritten Anfahruntersuchung ist der im Stützbrennerbetrieb aufgetretene Höchstwert ein Indiz für die verstärkte Freisetzung von in Feuer- und Kesselraum verbliebenen organischen Verbindungen.

Im Abfahrbetrieb zeigten die coplanaren PCB – wie die PAK – eine gegenüber dem Anfahren untergeordnete Bedeutung.

PCDD/F. Die PCDD/F-Abgasgehalte korrelierten bei beiden dargestellten Anfahruntersuchungen mit den Konzentrationen an coplanaren PCB. Der maximale PCDD/F-Gehalt trat beim zweiten Anfahrvorgang in der Phase der Naturholzverbrennung und bei der dritten Anfahrbeprobung zu Beginn bei reinem Stützbrennerbetrieb auf. Letzteres ist in Korrelation zu den bei dieser Untersuchung erfassten, besonders hohen Gesamtstaubemissionen zu sehen. Die ersten zwei Stunden ab Beginn der Altholzverbrennung gingen bei beiden Messkampagnen aufgrund der vollständig in Betrieb befindlichen Abgasreinigung mit bereits deutlich reduzierten Dioxin-/Furankonzentrationen einher. Insgesamt wurde sowohl bei der zweiten als auch bei der dritten Anfahruntersuchung eine PCDD/F-Masse von $4,8 \text{ mg}/\text{m}^3$ emittiert. Im Vergleich zur Jahresemission im regulären Anlagenbetrieb (ohne An-/Abfahrvorgänge) macht dies einen Anteil von 69 % aus.

Die erste Abfahruntersuchung ergab – entgegen dem zweiten Abfahrprozess – mit einem durchschnittlichen PCDD/F-Gehalt von $0,80 \text{ ng I-TEQ}/\text{m}^3$ einen im Vergleich zum regulären Anlagenbetrieb (vgl. Tab. 12) etwa hundertfachen Wert. Dies entsprach einem Anteil von 5,6 % der jährlich im Regelbetrieb emittierten PCDD/F-Fracht.

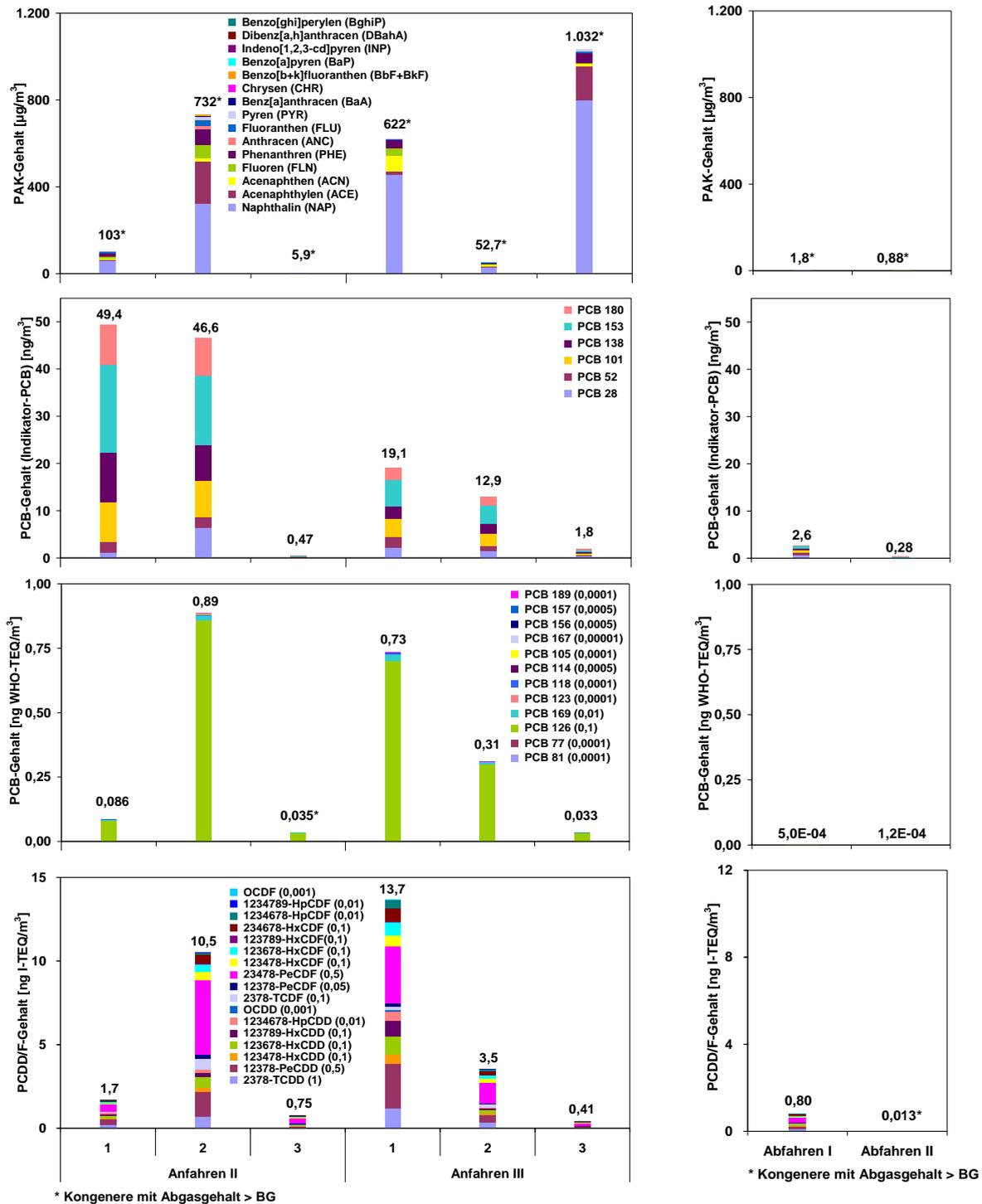


Abb. 26: Abgasgehalte an PAK, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F während je zwei An- (links, Probenahmephasen 1 bis 3) und Abfahrvorgängen (rechts) am Holzheizkraftwerk; BG: Bestimmungsgrenze

Zusammenfassung. Die Chlor-, Fluorwasserstoff- und Quecksilberkonzentrationen waren im An- und Abfahrbetrieb im Verhältnis zum regulären Anlagenbetrieb von untergeordneter Bedeutung bzw. vergleichbar. Aus den Ergebnissen des Gesamtstaubgehalts sowie der persistenten organischen Verbindungen ist ein weiterer Handlungsbedarf bez. der Anfahrmissionen abzuleiten. Wie die Diskussion der Messergebnisse mit dem Betreiber und dem zuständigen Landratsamt bestätigte, wird während des Aufheizens mittels Stützbrennern das Gewebefilter zur Vermeidung von Kondensation umfahren (Gewebefilterbypass). Die Unterschreitung des Taupunktes mit der Gefahr der Verstopfung des Gewebefilters mit nachfolgendem Ausfall der Anlage birgt ein erhebliches Risiko, das sich auf die gesamte Spanplattenproduktion (Energie aus der Altholzverbrennung wird zur Trocknung der Spanplatten genutzt) negativ auswirken kann. Es ist davon auszugehen, dass die in dieser Zeit festgestellten, mit den PCDD/F-Konzentrationen korrelierenden hohen Staubkonzentrationen durch Abplatzen von nicht abgereinigten Ablagerungen im Kessel während des Aufheizens herrühren. Maßnahmen zur Reduzierung dieses Materialabtrags (z. B. durch Optimierung des Abfahrvorgangs, noch intensivere Kesselreinigung während des Stillstandes) erscheinen für eine deutliche Verminderung der PCDD/F-Emissionen aber nicht ausreichend.

Zur Emissionsminderung kommen vielmehr folgende Maßnahmen in Betracht:

- Abgasführung über das Gewebefilter auch während des Aufheizens des Holzheizkraftwerks mittels Stützbrennerbetrieb
- Installation eines zusätzlichen Staubabscheiders in die Gewebefilter-Bypassleitung
- Optimierung des dem Gewebefilter zur Funkenabscheidung vorgeschalteten und vor dem Bypass liegenden Grob-Zyklons
- Vorheizen des Rohgasstroms (direkt mit Flächenbrenner oder indirekt) und früheres Zuschalten des Gewebefilters
- Verwendung von gegen Verklebungen aufgrund Taupunktunterschreitung unempfindlichen Sorbenzien (z. B. „Trassmehl“) und früheres Zuschalten des Gewebefilters

Auf Grundlage von erneuten Staubbmessungen sowie Untersuchungen zum Taupunkt während des Anfahrvorgangs am Holzheizkraftwerk sollen Recherchen zur Auswahl der geeigneten Emissionsminderungsmaßnahme(n) erfolgen. Ziel ist es, die auszuwählende(n) Maßnahme(n), sofern technisch machbar, umgehend umzusetzen und deren Wirksamkeit nachzuweisen. Dieselben Anforderungen sollen auch an andere vergleichbare Anlagen gestellt werden.

9 Zusammenfassung

Das EFRE-Projekt „Schadstoffemissionen während des An-/Abfahrens (groß)technischer thermischer Anlagen“ – durchgeführt in Phasing-Out-Gebieten Bayerns – hatte zum Ziel, an verschiedenen Anlagen die Emissionen während dieser instationären Betriebsphasen zu untersuchen, mit dem Regelbetrieb zu vergleichen und daraus ggf. anlagenspezifische Handlungsempfehlungen zu geben.

Die probenahmetechnisch umfangreichen und aufwändigen Emissionsmessungen fanden an neun Anlagen statt. Sie decken ein breites verfahrenstechnisches Spektrum (z. B. Brennen, Mischen, Trocknen, Verbrennen, Vergasen) ab und zeigen das lokale, transiente Emissionsverhalten beispielhaft auf.

In Abhängigkeit der Messergebnisse wurden einzelne Anlagen z. T. mehrmals beprobt:

- | | |
|---------------------------------|---------------------------------------|
| • 3 Asphaltmischanlagen: | 2 x An-/Abfahr- und Regelbetrieb |
| • Glasschäumenanlage: | 1 x An-/Abfahr- und Regelbetrieb |
| • Ziegelwerk: | 1 x Anfahr- und Regelbetrieb |
| • Zementwerk: | 1 x Anfahr- und Regelbetrieb |
| • Deponiegasverstromungsanlage: | 1 x Anfahr- und Regelbetrieb |
| • Holzgasverstromungsanlage: | 1 x Anfahr- und Regelbetrieb |
| • Holzheizkraftwerk: | 3 x An-, 2 x Abfahr- und Regelbetrieb |

Die Dauer der Anfahrvorgänge differierte erheblich: während sich beispielsweise ein Anfahrvorgang einer Deponiegasverstromungsanlage innerhalb weniger Minuten abspielt, nimmt der eines Ziegel- oder Zementwerks mehrere Tage in Anspruch.

Für eine umfassende Beurteilung der Emissionssituation war es notwendig, neben den zeit-/wertkontinuierlichen (z. B. Temperatur, O₂, CO₂, CO, SO₂, NO_x) auch die zeitkontinuierlichen/wertediskontinuierlichen Parameter (v. a. PAK, PCB, PCDD/F) über die Gesamtdauer der An- und Abfahrvorgänge mit möglichst kurzen Unterbrechungen zwischen den einzelnen Probenahmen zu erfassen.

Eine Rohgasmessung erfolgte lediglich am Ziegelwerk; bei den anderen Anlagen erlaubten die anlagentechnischen Gegebenheiten wegen unzureichender Ein- und Auslaufstrecken keine repräsentative Beprobung des (staub)beladenen Rohgases.

An den Reingasmessstellen war mehrfach die Nachrüstung zusätzlicher Messstutzen erforderlich, um eine simultane Beprobung des Abgases auf die ins Untersuchungsprogramm aufgenommenen Schadstoffe – Basis: Parameter der 17. BImSchV plus die im jeweiligen Genehmigungsbescheid geforderten Parameter – zu ermöglichen. Somit bilden die Ergebnisse die Emissionssituation in Bezug auf die Schadstoffe nach heutigem Kenntnisstand umfassend ab.

Fazit

Die schlaglichtartigen Aufnahmen der Emissionen über den Gaspfad von sieben thermischen Anlagentypen während des An-/Abfahrens im Vergleich zum mit Grenzwerten belegten Regelbetrieb (transiente vs. stationäre Bedingungen) zeigen, dass

Anfahrvorgänge

- emissionsrelevante Ereignisse (z. B. Asphaltherstellung: CO, SO₂, CO_{org}; Altholzverbrennung: CO, C_{org}, PCDD/F, Staub) sein können, wenn nicht durch bestimmungsgemäßen Anlagenbetrieb, regelmäßige Wartung und frühzeitige Inbetriebnahme der Abgasreinigung eine emissionsarme Betriebsweise sichergestellt ist
- oftmals durch zufällige Störungen (z. B. Brennerausfall) und/oder prozessbedingte Verfahrensschritte (z. B. Umschalten von einer Brennstoffart auf die andere) gekennzeichnet sind, erkennt-

lich v. a. in dem Verlauf der zeit-/wertekontinuierlichen Messgrößen Kohlenstoffmonoxid und organischer Gesamtkohlenstoff

- von Trocknungs-/nicht motorischen Verbrennungsanlagen
 - nach der Optimierung der Brennereinstellungen für verschiedene Lastzustände erfolgreich geminderte transiente Emissionen aufweisen
 - eine effiziente und frühzeitige Entstaubung des Abgases erfordern, da vielfach Schadstoffe (Metalle, PCDD/F) am abgelagerten Staub (hohe spezifische Oberfläche) adsorbiert sind. I. d. R. können selbst bei Anlagenstillstand nicht alle abgasführenden „inneren“ Oberflächen (v. a. Wärmetauscher) aufgrund konstruktionsbedingter, unzureichender Zugänglichkeit vollständig abgereinigt werden
- von motorischen Verbrennungsanlagen (Deponie-/Holzgas)
 - für die vollständige Oxidation in erster Linie als Primärmaßnahme die Optimierung von Gaswechsel und Ventilüberschneidung erfordern

Abfahrvorgänge

- im Vergleich zum Anfahr- und Regelbetrieb von untergeordneter Bedeutung sind, solange eine Anlage nicht gezielt ohne Sekundärmaßnahmen „freigeblasen“ wird

Generell ist den Genehmigungsbehörden zu empfehlen, bei Anlagengenehmigungen die Einrichtung von richtlinienkonformen Probenahmestellen auch im Rohgas zu fordern, um Defizite bei den Primär- und Sekundärmaßnahmen messtechnisch lokalisieren und daraufhin gezielt Detailoptimierungen vornehmen zu können.

Insbesondere bei Trocknungs-/Verbrennungsanlagen mit Drehrohr/Feuerraum und nachgeschalteter Abgasreinigung ließen sich Wege (Sekundärmaßnahmen) zur Emissionsreduktion aufzeigen und in Gang setzen. Für den Stand der Technik der motorischen Verbrennung zeitlich variierender, heterogener Gasgemische besteht in Bezug auf die Entstehung bzw. Reduktion von Schadstoffemissionen weiterer Entwicklungsbedarf, um sowohl die primären Verbrennungsprozesse als auch die sekundären Abgasreinigungsmaßnahmen zu optimieren.

Zu den einzelnen Anlagen liegen die folgenden spezifischen Ergebnisse vor:

Asphaltmischanlagen. Bei der Asphaltproduktion wird neben natürlichen Mineralstoffen i. d. R. als Sekundärrohstoff Altasphalt eingesetzt. Diese Produktionsweise vermeidet die Deponierung von Altasphalt und spart dadurch Primärrohstoffe und Kosten ein. Als Brennstoff wird für den Betrieb der Trockentrommel aus wirtschaftlichen Gründen verstärkt Braunkohlenstaub (halogenhaltig) an Stelle von Heizöl EL oder Erdgas eingesetzt.

Das *An- und Abfahren* von Trocken- und Paralleltrommelbrenner ging mit Konzentrationsspitzen (CO, SO₂, C_{org}) im Abgas einher. Bei einer Anlage verursachte die Laststeigerung des Paralleltrommelbrenners auf 100 % (statt üblicherweise 80 %) und die dadurch bedingte Überhitzung des Altasphalts um mindestens eine Größenordnung höhere Emissionen an persistenten organischen Verbindungen (PAK, PCB, PCDD/F) als bei den anderen Anfahruntersuchungen (PAK: 1-stelliger mg/m³-Bereich, PCB: 2-stelliger ng/m³-Bereich, PCDD/F: 3-stelliger fg I-TEQ/m³-Bereich).

Im *Regelbetrieb* war an dieser Anlage wegen Überlastbetrieb (Mischleistung bis zu 260 Mg/h; genehmigt: max. 200 Mg/h) Ähnliches zu beobachten. An einer weiteren Anlage verursachte ein gerissenes Gewebefiltertuch eine im Vergleich zum Grenzwert dreifache Gesamtstaubemission, wobei die übrigen Schadstoffkonzentrationen aufgrund des durch die Auftragslage bedingten Teillastbetriebs relativ gering ausfielen.

Generell konnten im Regelbetrieb nach Umsetzung der vorgeschlagenen Maßnahmen – Optimierung der Brennereinstellungen, Austausch von Mischwerkzeugen in den Trommeln, Austausch von Gewebefiltertüchern inkl. Vermeidung von Strömungs-Kurzschlüssen, regelmäßige Wartung der Gesamtanlage – die Abgasgrenzwerte {CO, SO₂, NO_x, C_{org}, Σ (Benzol, 1,3-Butadien), Gesamtstaub} sicher eingehalten bzw. unterschritten werden.

Mit dem Einsatz von Braunkohlenstaub waren sowohl im Regel- als auch im Anfahrbetrieb keinerlei erhöhte Emissionen an halogenorganischen Verbindungen verbunden.

Glasschäumenanlage. Die beprobte, immissionsschutzrechtlich nicht genehmigungsbedürftige Anlage verwendet gebrochenes Altglas als Rohstoff (Altglasrecycling). Produkt ist ein Blähglasgranulat für die Baustoffindustrie (Zusatz für mineralische Baustoffe).

Bei der *Anfahr*untersuchung erforderten diverse Anlagenstörungen (abgebrochenes Mischwerkzeug, defekter Trommelantrieb) die mehrmalige Inbetriebnahme des Brenners. Dies führte zu Konzentrationsspitzen an Kohlenstoffmonoxid und organischem Gesamtkohlenstoff im Abgas. Im *Abfahr*betrieb waren die kontinuierlich erfassten Schadstoffemissionen nach Beendigung der Materialaufgabe vernachlässigbar gering. Die Abgasgehalte der persistenten organischen Verbindungen (PAK, PCB, PCDD/F) lagen im *Ab-* im Vergleich zum *Anfahr*betrieb um z. T. mehrere Zehnerpotenzen höher, blieben aber insgesamt auf niedrigem Niveau (PAK: 2-stelliger µg/m³-Bereich, PCB: 1-stelliger ng/m³-Bereich, PCDD/F: 1-stelliger pg I-TEQ/m³-Bereich).

Für den *Regelbetrieb* sind keine Abgasgrenzwerte vorgegeben, da die Feuerungswärmeleistung der installierten Gasbrenner unter dem in der 4. BImSchV (Anhang Nr. 1.2 c) angeführten Wert von 20 MW liegt. Während die Schwefeldioxidkonzentration stets unterhalb der Bestimmungsgrenze (5 mg/m³) blieb, bewegten sich die Gehalte an Kohlenstoffmonoxid und organischem Gesamtkohlenstoff um 80 mg/m³ bzw. 25 mg/m³. Aufgrund des stickstoffhaltigen Blähmittels überschreitet die Stickstoffdioxidkonzentration den in der TA Luft genannten Schwellenwert (0,35 g/m³) um bis zu 11 %. Die Abgasgehalte der persistenten organischen Schadstoffe waren gegenüber dem Abfahrvorgang um maximal eine Größenordnung höher.

Zementwerk. Im *Anfahr*betrieb korrelierten Konzentrationsspitzen an Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden und organischem Gesamtkohlenstoff signifikant mit sprunghaften Durchsatzänderungen des Brennstoffs Heizöl S. Weiterhin traten Peaks bei temporär notwendiger Direktbetriebsweise (keine Mahltrocknung der Rohstoffe; Abgas direkt über Gewebefilter und Kamin abgeführt) auf. Chlor- und Fluorwasserstoff erwiesen sich als nicht emissionsrelevant. Der Abgasgehalt an Quecksilber stieg mit der Steigerung des Brennstoff- und Ofenmehldurchsatzes im einstelligen µg/m³-Bereich geringfügig an. Die Summengehalte der Metalle schwankten etwa um eine Größenordnung auf moderatem Niveau (µg/m³-Bereich). Während die Abgaskonzentration an PAK im zweistelligen µg/m³-Bereich relativ konstant blieb, sank die der PCB und PCDD/F ausgehend von 30,7 ng/m³ bzw. 0,0062 ng I-TEQ/m³ nahezu stetig ab. Die Gesamtstaubkonzentration erreichte abgesehen von einem einmaligen Ausreißer von über 1 g/m³ (mögliche Ursachen: Dichtungen zwischen Gewebefiltergehäuse und -schläuchen dichteten im Kaltzustand wegen mangelnder thermischer Ausdehnung noch nicht hinreichend zwischen Roh- und Reingasseite ab, Abplatzen von Anbackungen im Kamin, Staubablagerungen auf Reingasseite des Gewebefilters infolge der Revisionsarbeiten) ein- bis zweistellige mg/m³-Werte.

Im störungsfreien *Regelbetrieb* wurden die vorgeschriebenen Halbstunden- und Tagesmittelgrenzwerte (SO₂, NO_x, HCl, HF, Hg, Metalle, PCDD/F, Gesamtstaub) sicher unterschritten. Für den Fall, dass der bei einer Anlagenstörung nötige Direktbetrieb (Mahltrocknung aus) längere Zeit andauert, ist davon auszugehen, dass der Tagesmittelgrenzwert der Stickstoffoxide evtl. nicht eingehalten werden kann. Derartige seltene Störungen treten i. d. R. kurzzeitig auf und stellen daher kein emissionsseitiges Problem dar.

Ziegelwerk. Das untersuchte Ziegelwerk verwertet Abfälle aus der Holz- und Papierindustrie (Sägemehl, Papierfangstoffe) als Porosierungsmittel.

Im *Anfahrbetrieb* sanken die Reingasgehalte an Kohlenstoffmonoxid und organischem Gesamtkohlenstoff ab der Inbetriebnahme der regenerativen Nachverbrennung (RNV) um jeweils eine Größenordnung auf ein niedriges, konstantes Niveau von durchschnittlich 15 mg/m^3 bzw. 2 mg/m^3 ab. Der auf über 100 mg/m^3 (Roh-) bzw. 120 mg/m^3 (Reingas) sukzessiv ansteigende Stickstoffoxidgehalt war an der Reingasmessstelle in Folge der thermisch bedingten Stickstoffoxidbildung in der RNV-Anlage durchgehend höher als im Rohgas. Die Konzentrationen an Chlor- und Fluorwasserstoff stiegen zunächst im einstelligen mg/m^3 -Bereich nahezu kontinuierlich an. Durch die Oxidation chlorhaltiger Kohlenwasserstoffe in der RNV-Anlage lag der Chlorwasserstoffgehalt im Reingas in zunehmendem Maße (um max. $5,3 \text{ mg/m}^3$) höher als im Rohgas. Gegen Ende des Anfahrvorgangs reduzierten sich die Chlor- und Fluorwasserstoffkonzentrationen (mit Ausnahme des HF-Rohgasgehalts) um jeweils etwa die Hälfte. Die Quecksilberkonzentration im Rohgas lag im ersten Drittel des Anfahrprozesses maximal im oberen einstelligen $\mu\text{g/m}^3$ -Bereich und fiel danach auf ein durchschnittlich halb so hohes Niveau; die zunächst wenig abweichenden Reingaswerte lagen zum Ende des Anfahrvorgangs um bis zu $2 \mu\text{g/m}^3$ über den Rohgaswerten. Die Gehalte an PAK, PCB und PCDD/F stiegen im Rohgas nahezu kontinuierlich an (PAK: bis in 1-stelligen mg/m^3 -Bereich, PCB: bis in 3-stelligen ng/m^3 -Bereich, PCDD/F: bis in 3-stelligen pg I-TEQ/m^3 -Bereich). Bei der ersten Reingasprobenahme (während Inbetriebnahme RNV-Anlage) wurden um bis zu zwei Größenordnungen höhere Gehalte an persistenten organischen Verbindungen als im weiteren Anfahrbetrieb gemessen, was auf die Freisetzung sorbierter Substanzen beim Aufheizen der RNV-Anlage hindeutet.

Im *Regelbetrieb* wurden die Abgasgrenzwerte bez. Schwefeldioxid, Stickstoffoxiden, organischem Gesamtkohlenstoff und Fluorwasserstoff sicher unterschritten. Die Roh- und Reingaswerte an PAK, PCB und PCDD/F waren mit dem Ende des Anfahrvorgangs vergleichbar bzw. geringfügig höher.

Deponiegasverstromungsanlage. Um die in einer Reaktordeponie während des biologischen Abbauprozesses im Deponiegas enthaltene Energie zu nutzen, wird das Deponiegas gesammelt, in einem Gas-Otto-Motor verbrannt und die mechanische Energie in einem Generator verstromt. Die Oxidation des Deponiegas-Hauptbestandteils Methan zu Kohlenstoffdioxid reduziert die klimaschädigende Wirkung des ansonsten diffus austretenden Gases.

Im *Anfahrbetrieb* zeigten die Schadstoffe Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid und Methan unmittelbar nach dem Start des Gasmotors ein (quasi-)stationäres Niveau (dreistelliger mg/m^3 -Bereich). Die Stickstoffoxide lagen durchschnittlich bei $1,9 \text{ g/m}^3$. Die Abgaskonzentrationen an PAK, PCB und PCDD/F waren generell niedrig (PAK: 2-stelliger $\mu\text{g/m}^3$ -Bereich, PCB: 1-stelliger ng/m^3 -Bereich, PCDD/F: 2-stelliger fg I-TEQ/m^3 -Bereich).

Im *Regelbetrieb* hielten die Größen Kohlenstoffmonoxid, Schwefeldioxid, Chlor-, Fluorwasserstoff, Benzol sowie Gesamtstaub die Grenzwerte sicher ein. Die Stickstoffoxidwerte, die im Mittel mehr als das Dreifache des im Genehmigungsbescheid angeführten Grenzwerts von $0,50 \text{ g/m}^3$ betragen, deuten auf ein zu niedrig eingestelltes Luft-/Brennstoffverhältnis hin. Der Anlagenbetreiber und die Genehmigungsbehörde wurden aufgefordert, durch geeignete Primärmaßnahmen (z. B. optimierte Motoreinstellung, Funktionskontrolle der λ -Sonde) die Einhaltung des Stickstoffoxidgrenzwerts sicherzustellen. Die PAK, PCB und PCDD/F zeigten im Vergleich zum Anfahren Abgasgehalte von gleicher bzw. teilweise geringerer Größenordnung.

Holzgasverstromungsanlage. Holzgasverstromungsanlagen nutzen erneuerbare Energien zur Stromgewinnung. Das in einem Holzvergaser erzeugte Gas wird in einem Zündstrahlmotor (Mehrstoffmotor, Diesel-Verfahren) verbrannt, an den ein Generator zur Gewinnung von elektrischer Energie gekoppelt ist.

Während des *Anfahrens* traten infolge des Motorstarts (Brennstoff Heizöl EL) Konzentrationsspitzen an Kohlenstoffmonoxid (2.780 mg/m^3) und organischem Gesamtkohlenstoff (420 mg/m^3) auf. Die Umstellung auf Holzgasbetrieb war von weiteren Peaks in den Konzentrationsverläufen (CO : 11 g/m^3 , SO_2 : 185 mg/m^3 , C_{org} : $1,6 \text{ g/m}^3$) geprägt. Ein gleichförmigeres Emissionsverhalten zeigten die Stickstoffoxide (durchschnittlich 450 mg/m^3). Die PAK-Abgasgehalte lagen über 1 mg/m^3 und damit – ge-

genüber den PCB (3-stelliger pg/m^3 -Bereich) und PCDD/F (2- bis 3-stelliger $\text{fg I-TEQ}/\text{m}^3$ -Bereich) – auf relativ hohem Niveau.

Im *Regelbetrieb* unterschritten die Messwerte für Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxide sowie Gesamtstaub den jeweiligen Grenzwert sicher. Die Abgasgehalte der persistenten organischen Verbindungen wiesen eine dem Anfahrbetrieb entsprechende Größenordnung auf. Demgegenüber wurde der in der TA Luft genannte Grenzwert für Benzol von $1 \text{ mg}/\text{m}^3$ um ein Mehrfaches überschritten, obwohl der in der Abgasleitung installierte Oxidationskatalysator bez. Kohlenstoffmonoxid eine zufriedenstellende Minderungswirkung aufwies. Offenbar sind zur Benzolreduktion weitere sekundäre Abgasreinigungsmaßnahmen oder auf eine verminderte Benzolentstehung ausgerichtete Primärmaßnahmen im Vergaser (z. B. Erhöhung der Vergasertemperatur) erforderlich. Diesbezüglich wird weiterer Untersuchungsbedarf an der noch unzureichend ausgereiften Anlagentechnik gesehen.

Holzheizkraftwerk. Im Holzheizkraftwerk werden u. a. Holzabfälle der Altholzkategorie AI bis AIV thermisch verwertet.

Der durch anlagenseitige Komplikationen (Brennerstörungen, mehrmaliger Stromausfall) bedingte vorzeitige Abbruch der ersten Messkampagne (*Anfahrbetrieb*) sowie die dabei gewonnenen Analyseergebnisse deuteten auf hohe Emissionen hin und erforderten eine Zweituntersuchung. Deren Ergebnisse belegten hohe Anfahrmissionen an Kohlenstoffmonoxid, organischem Gesamtkohlenstoff und PCDD/F. Die Wirksamkeit der vorgeschlagenen und vom Betreiber ergriffenen Primär- und Sekundärmaßnahmen (Gewebefilter-Precoating während der Vorbelüftung, Adsorbensdosierung bereits ab Schließung des Gewebefilterbypasses, Einsatz von trockenem, naturbelassenem Holz) wurde in einer dritten Anfahrbeobachtung überprüft.

Generell charakterisierten hohe Konzentrationsspitzen an Kohlenstoffmonoxid (Überschreitung des Messbereichs von $1,3 \text{ g}/\text{m}^3$), Stickstoffoxiden ($350 \text{ mg}/\text{m}^3$) und organischen Gesamtkohlenstoff ($2,2 \text{ g}/\text{m}^3$) den Anfahrbetrieb, v. a. bei der Brennstoffumstellung von naturbelassenem Holz auf Altholz. Der Schwefeldioxidgehalt nahm im Stützbrennerbetrieb (Heizöl EL) bis zum Schließen des Gewebefilterbypasses und nach Einsetzen der Altholzverbrennung auf rd. $30 \text{ mg}/\text{m}^3$ bzw. $90 \text{ mg}/\text{m}^3$ zu. Die überwiegende Zeit der Anfordauer waren die Chlor-, Fluorwasserstoff- ($< 1 \text{ mg}/\text{m}^3$) und Quecksilberkonzentrationen ($< 2 \text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$) vernachlässigbar gering. Der Abgasgehalt der PCB lag während des Aufheizprozesses durchgehend im 2-stelligen ng/m^3 -Bereich und sank nach Start der Altholzverbrennung um ein bis zwei Größenordnungen ab.

Während der zweiten Anfahruntersuchung wirkten sich der Einsatz von feuchtem, naturbelassenem Holz und wiederholte Kessellastschwankungen auf die Emissionen an Kohlenstoffmonoxid, organischem Gesamtkohlenstoff, Chlorwasserstoff (bis $13,3 \text{ mg}/\text{m}^3$), PAK ($732 \text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$) und PCDD/F ($10,5 \text{ ng I-TEQ}/\text{m}^3$) negativ aus.

Bei der dritten Messkampagne verschoben sich durch die o. g. Maßnahmen die hohen PCDD/F-Konzentrationen ($13,7 \text{ ng I-TEQ}/\text{m}^3$) in Richtung Beginn des Anfahrvorgangs (Stützbrennerbetrieb mit Heizöl EL, Gewebefilter nicht in Betrieb); in dieser Phase wurden erstmalig Staubmessungen durchgeführt, die sehr hohe Staubkonzentrationen (max. 1-stelliger g/m^3 -Bereich) ergaben, was auf die Freisetzung von mit organischen Verbindungen behafteten Ablagerungen in den sich aufheizenden Kesselzügen zurückzuführen ist. Die durch eine intensiviertere Kesselreinigung während der Stillstandszeit erreichbare Verbesserung der Staubemissionen ist auch aufgrund Messungen Dritter (Dezember 2007) als unzureichend einzustufen. Dem Anlagenbetreiber wurde nahe gelegt, Maßnahmen zu ergreifen, die eine noch frühzeitigere Zuschaltung des Gewebefilters in den Abgasstrom erlauben. Durch eine erneute Emissionsmessung ist der Erfolg der Modifikationen zu belegen.

Die *Abfahrvorgänge* zeigten keine Emissionsrelevanz.

In den mehrmals untersuchten *Regelbetrieb* wurden die Grenzwerte der kontinuierlich und diskontinuierlich beprobten Schadstoffe stets sicher eingehalten; die Messgrößen Fluorwasserstoff und Quecksilber blieben teilweise unter der Bestimmungsgrenze.

10 Danksagung

Unser Dank gilt den Kolleginnen und Kollegen

- der Referate *Schwermetallanalytik* und *Organische Analytik* der Abteilung *Zentrale Analytik, Stoffbewertung* für die Aufarbeitung der Abgasproben und Ermittlung der Gehalte an Chlor-/Fluorwasserstoff, Metallen, kanzerogenen Stoffen, Indikator-PCB, coplanaren PCB (WHO) und PCDD/F
- des Referates *Luftreinhalung bei Anlagen* der Abteilung *Luft, Lärm, Anlagensicherheit* für die Auswahl der Anlagen, die kritische Durchsicht der Messberichte und die eingehende Fachdiskussion der Ergebnisse
- der Landratsämter und Bezirksregierungen, die für die einzelnen Anlagen in den jeweiligen Regierungsbezirken zuständig sind, für die kooperative Zusammenarbeit

und insbesondere

- den Firmen und vor Ort Verantwortlichen, die offen für unser Anliegen waren, Emissionsmessungen an ihren Anlagen durchzuführen, deren Umfang den Genehmigungsbescheid weit überschritten hat.

Ohne deren tatkräftige Mitwirkung und Unterstützung wäre das Vorhaben weder realisierbar noch eine win-win-Situation für alle Beteiligten erzielbar gewesen.

Zu guter Letzt gilt unser verbindlicher Dank für die finanzielle Unterstützung dem Bayerischen Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz, das das Vorhaben befürwortet hat und im Rahmen der EU-Strukturförderung aus Mitteln des Europäischen Fonds für regionale Entwicklung (EFRE) kofinanziert.

11 Literatur

- [1] Anonym:
Siebzehnte Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über die Verbrennung und die Mitverbrennung von Abfällen – 17. BImSchV). Vom 14.08.2003. BGBl. I, (2003) 41, S. 1634-1651
- [2] Anonym:
Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge. BImSchG – Bundes-Immissionsschutzgesetz. Fassung vom 26. September 2002 (BGBl. I Nr. 71 vom 23.10.2002, S. 2470)
- [3] Van den Berg, M.; Birnbaum, L.; Bosveld, B.T.C.; Brunström, B.; Cook, P.; Feeley, M.; Giesy, J.P.; Hanberg, A.; Hasegawa, R.; Kennedy, S.W.; Kubiak, T.; Larsen, J.C.; van Leeuwen, F.X.R.; Liem, A.K.D.; Nolt, C.; Peterson, R.E.; Poellinger, L.; Safe, S.; Schrenk, D.; Tillitt, D.; Tysklind, M.; Younes, M.; Waern, F.; Zacharewski, T.:
Toxic Equivalency Factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and wildlife. *Environmental Health Perspective* 106 (1998) 12, S. 775-792
- [4] Anonym:
VDI 4200 – Durchführung von Emissionsmessungen an geführten Quellen.
Beuth Verlag, Berlin, Dezember 2000, 68 S.
- [5] Anonym:
DIN EN 13284-1 – Emissionen aus stationären Quellen. Ermittlung der Staubmassenkonzentration bei geringen Staubkonzentrationen. Teil 1: Manuelles gravimetrisches Verfahren.
Beuth Verlag, Berlin, April 2002, 44 S.
- [6] Anonym:
Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft). Vom 24. Juli 2002.
GMBI. (2002) 25-29, S. 511-605
- [7] Anonym:
Vierte Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes – 4. BImSchV – Verordnung über genehmigungsbedürftige Anlagen. Vom 20. Juni 2005.
BGBl. I Nr. 35 (2005), S. 1687-1716
- [8] Anonym:
Umweltdaten der deutschen Zementindustrie 2006.
VDZ Verein Deutscher Zementwerke e. V.
Düsseldorf, September 2007, 51 S.
- [9] Anonym:
Dritte Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz (Technische Anleitung zur Verwertung, Behandlung und sonstigen Entsorgung von Siedlungsabfällen – TA Siedlungsabfall). Vom 14. Mai 1993.
BAnz. Nr. 99a (1993), S. 4967
zuletzt geändert durch Artikel 2 des Gesetzes vom 26. Juni 1992 (BGBl. I S. 1161)
- [10] Anonym:
Verordnung über Anforderungen an die Verwertung und Beseitigung von Altholz – Altholzverordnung – AltholzV. Vom 15. August 2002.
BGBl. I Nr. 59 (2002), S. 3302-3317

