



4. VDI-Fachtagung

Anlagenbezogenes Monitoring

Neue Anforderungen – neue Konzepte

Würzburg, 23. und 24. Oktober 2019

Bildquelle: © Torsten Kellermann/unsplash

VDI-BERICHTE

Herausgeber:

VDI Wissensforum GmbH

Bibliographische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliographie; detaillierte bibliographische Daten sind im Internet unter www.dnb.de abrufbar.

Bibliographic information published by the Deutsche Nationalbibliothek (German National Library)

The Deutsche Nationalbibliothek lists this publication in the Deutsche Nationalbibliographie (German National Bibliography); detailed bibliographic data is available via Internet at www.dnb.de.

© VDI Verlag GmbH · Düsseldorf 2019

Alle Rechte vorbehalten, auch das des Nachdruckes, der Wiedergabe (Photokopie, Mikrokopie), der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, auszugsweise oder vollständig.

Der VDI-Bericht, der die Vorträge der Tagung enthält, erscheint als nichtredigierter Manuskriptdruck.

Die einzelnen Beiträge geben die auf persönlichen Erkenntnissen beruhenden Ansichten und Erfahrungen der jeweiligen Vortragenden bzw. Autoren wieder. Printed in Germany.

ISSN 0083-5560

ISBN 978-3-18-092359-8

Inhalt

► Anlagenüberwachung

Lösungsmöglichkeiten bei der Überwachung von stationären Verbrennungsmotoranlagen1

M. Url, F. Hillen, INNIO Jenbacher GmbH & Co. OG, Jenbach, Österreich

Sind die Bandbreiten aus den BVT-Schlussfolgerungen noch kontinuierlich überwachbar?13

M. Kein, Sick Vertriebs-GmbH, Düsseldorf

Stand der europäischen Normung zur Formaldehyd-Messung an Abgasen23

G. Baumbach, Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik, Abt. Reinhaltung der Luft, Universität Stuttgart, Obmann der CEN TC 264 WG 40 „Messen von Formaldehyd-Emissionen“

► Quecksilberemissionen

**Rechtssichere Bestimmung von niedrigen Quecksilberkonzentrationen in Rauchgasen –
Aktueller Stand der Messtechnik29**

T. Noll, TÜV Rheinland Energy GmbH, Köln

**Messen von Quecksilberemissionen mit Sorbent Traps im Vergleich zum Standardreferenz-
verfahren nach DIN EN 1321141**

U. Zunzer, Umweltmessstelle FIT GmbH, Düsseldorf;

J. Pfungsten, VDZ GmbH, Düsseldorf

Regelung und Optimierung der Rauchgasreinigung durch anlagenbezogene Messungen45

D. Walter, M. Sindram, Lhoist Germany/Rheinkalk GmbH, Wülfrath

► Neue Normungsaktivitäten

Eignungsprüfung und Zertifizierung von Messeinrichtungen83

P. Wilbring, TÜV Rheinland Energy GmbH, Köln

Auswirkungen der zukünftigen DIN EN 17255 1-3 auf die Emissionsauswertung 111

M. Nestler, DURAG DATA SYSTEMS GmbH, Hamburg

► **Charakterisierung von Emissionsquellen**

Validierung eines Messverfahrens zur Bestimmung diffuser Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen (VOC) aus industriellen Quellen 111

C. Ehrlich, Hochschule Merseburg, Merseburg;
N. Höfert, VDI, Düsseldorf

Messwertgestützte Lagrange-Rückrechnung zur Lokalisierung und Charakterisierung von Emissionsquellen. 129

R. Petrich, A. Delan, IFU GmbH, Frankenberg/Sa.

42. BImSchV – Anforderungen an die Untersuchungen und Inspektionen 139

D. Wagner, Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW, Recklinghausen

Herausforderung der Bioaerosolmessung in der Praxis Sammlung und Nachweis an Rückkühlanlagen. 153

L. Welp, A. Hugo, Institut für Energie- und Umwelttechnik (IUTA) e. V., Duisburg;
A. Nocker, IWW Rheinisch-Westfälisches Institut für Wasserforschung gGmbH, Mülheim an der Ruhr

► **Treibhausgasmonitoring**

Kalibrierung von automatischen Messsystemen zur Ermittlung von Treibhausgasemissionen – ein Problem? Beispiele aus der Praxis 167

M. Robert, ANECO Institut für Umweltschutz GmbH & Co. KG, Mönchengladbach

Kontinuierliche Überwachung der biogenen CO₂ Emissionen – Ein Werkzeug zur Bestimmung des Anteils von grüner Energie 175

J. Reinmann, ENVEA Deutschland, Bad Homburg

Fortschritte bei der Überwachung im Treibhausgas-Emissionshandel – Aktuelle Erfahrungen und Ausblick auf die vierte Handelsperiode. 189

B. Lenzen, Deutsche Emissionshandelsstelle (DEHSt) im Umweltbundesamt, Berlin

Lösungsmöglichkeiten bei der Überwachung von stationären Verbrennungsmotoranlagen

Dr. techn. **Michael Url**, Dipl.-Ing. **Friedhelm Hillen**,
INNIO Jenbacher GmbH & Co. OG, Jenbach, Österreich

Kurzfassung

Bisher galten für Verbrennungsmotoranlagen je nach Feuerungswärmeleistung der Anlage die TA-Luft-2002 und bei größeren Anlagen zusätzlich die 13. BImSchV.

Mit der in Juni 2019 eingeführten neuen Verbrennungsanlagenverordnung (44. BImSchV) werden neben den EU-MCP-Richtlinie weitere Emissionsgrößen und Überwachungsanforderungen reguliert. Bei Großanlagen steht die Implementierung der EU-BVT-Merkblätter in der 13. BImSchV bevor, die ebenfalls Verschärfungen und die Regulierung zusätzlicher Emissionsgrößen erwarten lässt.

In diesem Beitrag werden typische Verbrennungsmotoranlagen (BHKW und Spitzenlastkraftwerke) mit dem Stand der Technik der Emissionsreduktion, primär innermotorisch und sekundär durch verschiedene Abgasnachbehandlungstechnologien, vorgestellt.

Anhand des unlängst veröffentlichten VDMA-Einheitsblattes-6299 werden einfache und kosteneffiziente Überwachungskonzepte erläutert.

Die bei Großanlagen öfters geforderte kontinuierliche Überwachung inkl. der Start-/Stopp-Emissionen führt in der Praxis, aufgrund der physikalischen Besonderheiten des Anfahrvorgangs von aufgeladenen Verbrennungsmotoren, zu Fehleinschätzung bei der Geräteauswahl und der Klassierung der Messdaten. Es werden typische Szenarien dargestellt, Optimierungskonzepte auf Seiten des Motors und der Abgasnachbehandlung beleuchtet und Vorschläge zur risikoarmen Überwachung von mehreren Motoren mit einem System unterbreitet.

Eine konsequente Überwachung kann aus den bereits am Motor und in der Abgasreinigung verbauten Technologien und Sensoren in Kombination mit den Überprüfungs-messungen der Servicebefugten und den in Zukunft jährlichen Messungen durch nach §29 BImSchG benannten Stellen dargestellt werden.

1. Motivation

Mit Einführung der 44. BImSchV [1] wurde die europäische MCP Richtlinie [2] in ein nationales Gesetz überführt, die seit 2002 geltenden Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft (kurz TA Luft) [3] regelt nur noch Prüfstände.

Durch die 44. BImSchV ändern sich gerade für Verbrennungsmotoranlagen nicht nur die Grenzwerte für die wesentlichen Luftschadstoffe selbst, sondern auch die Anforderung an die Überwachung der Grenzwerte. Die Neuregelung der Überwachung betrifft nicht nur Neuanlagen sondern auch Bestandsmotoren, die entsprechend nachgerüstet werden müssen. In nachfolgender Grafik (Bild 1) sind die wesentlichen Unterschiede der Emissionsgrenzwerte für NO_x und Gesamtkohlenstoff für Verbrennungsmotoranlagen (gasbetriebene Neuanlagen) dargestellt, die je nach Gasart (Biogas/Erdgas) ein unterschiedliches Einführungsdatum haben.

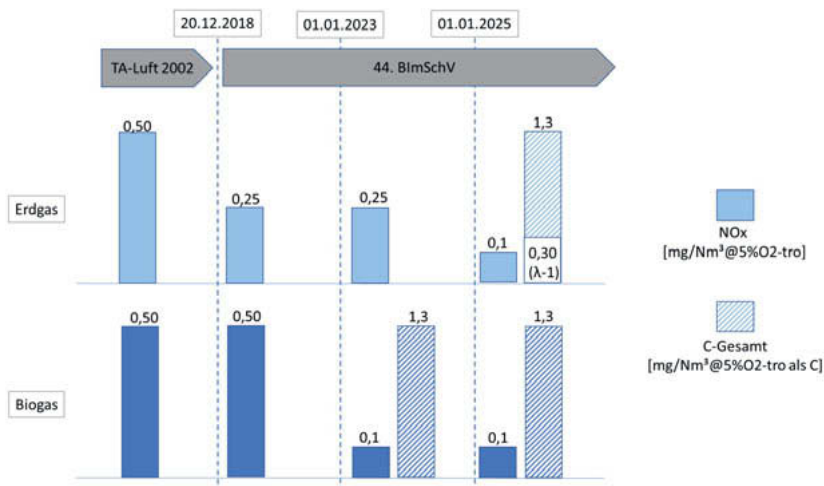


Bild 1: Auszug der Änderungen, Emissionsgrenzwerte für fremdgezündete Motoren

Großanlagen (>50MWth) werden durch die 13. BImSchV [5] geregelt, die innerhalb der nächsten 1-2 Jahre novelliert wird, um der in der europäischen IED Richtlinie [6] enthaltenden „Beste-Verfügbare-Technologie-Regelung“ [7], in nationales Recht zu überführen. Hier wird unter anderem ebenfalls eine Verschärfung der NO_x-Grenzwerte (von aktuell 75 mg/Nm³ @15%O₂ auf bis zu 20mg/Nm³ @15%O₂) erwartet, wodurch nach aktuellem Stand der Technik auf jeden Fall ein SCR Katalysator für eine NO_x-Reduktion notwendig wird.

Eine Besonderheit der derzeitigen 13. BImSchV im Vergleich zur 44. BImSchV ist, dass Motorstarts (Anfahrvorgänge) nicht explizit ausgenommen sind. Daraus folgendermaßen in den Genehmigungsphasen eine Vielzahl an Diskussionen und Unklarheiten, da schnellstartfähige Verbrennungsmotoren während des Motorstarts (Drehzahlhochlauf und Niedriglastphase) für

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

eine kurze Zeit, gegenüber dem Regelbetrieb, deutlich höhere NO_x-Konzentration generieren. Kombiniert mit einer kalten Abgasnachbehandlungseinrichtung, die bis zu einer bestimmten Katalysatortemperatur nicht oder nur geringfügig aktiv ist, liegt das Emissionskonzentrationsniveau teilweise deutlich über dem des Regelbetriebs. Die Startemissionen selbst hängen maßgeblich von der vorgegeben Startzeit bis zum Solllastpunkt sowie der Länge der Stillstandszeiten der Anlage ab, d.h. die Zeit in der die relevanten Motorkomponenten (u.a. Abgasturbolader) und das gesamte Abgassystems bzw. Abgasnachbehandlungssystems (Katalysatoren) auskühlen kann.

Durch die Flexibilisierung des Strommarktes und Erhöhung der Anteile an erneuerbaren Energien, wird die Schnellstartfähigkeit von hocheffizienten Gasmotoren immer wichtiger und daher werden auch die Anzahl der Starts dieser flexiblen Stromerzeugungseinheiten steigen, um das Stromnetz in einem stabilen Zustand zu halten. Gasmotoren von INNIO Jenbacher mit Leistungen zwischen 0,3 bis 10,5 MW und mit elektrischen Wirkungsgraden von bis zu 49%, bei Gesamtwirkungsgraden von bis zu über 95% sind dafür sehr gut geeignet. Wie bereits eingangs erwähnt sind die Emissionspeaks nur von kurzer Dauer und fallen auch, im Vergleich zum Nennbetriebspunkt, bei einem deutlich geringerem Abgasmassenstrom an, wodurch die eigentliche Emissionsfracht für den Motorhochlauf ebenfalls vergleichsweise niedrig ausfällt. Die Kurzeitmittelwerte (in der Regel als Halbstundenmittelwerte) berücksichtigen jedoch nicht den Massenstrom, sondern nur die Konzentration, wodurch diese deutlich höher ausfallen können, als die in der 13. BImSchV festgelegten Grenzwerte für den Tagesmittelwert, sofern die Startemissionen zur Gänze mitbetrachtet werden (vgl. Kapitel 4). Daher ist es sinnvoll die Startvorgänge getrennt zu bewerten (Sonderklasse) und nicht in einen Tagesmittelwert mitaufzunehmen, wie auch in der Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen [8] zum Beispiel unter B 2.10 erwähnt wird.

2. Emissionsregelung – Innermotorisch und SCR- & Oxidationskatalysator

Die Emissionsregelung bei Jenbacher* Gasmotoren von INNIO* geschieht über innermotorische Maßnahmen gekoppelt mit einer Abgasnachbehandlungsregelung (SCR- & Oxidationskatalysator).

Jenbacher Gasmotoren von INNIO sind derart optimiert, um insbesondere im Volllastbetrieb niedrigste Abgasemissionswerte bereits im Rohabgas zu erreichen. Um dieses optimierte Abgasverhalten zu erzielen, müssen Gasmotoren neben einem optimierten Verbrennungskonzept (Brennraumgeometrie, Ladungswechsel und Entflammung / Zündung) mit der richti-

gen Luftüberschusszahl (Luftverhältnis) betrieben werden. Dabei wird der direkte Zusammenhang zwischen den NOx-Emissionen und der Luftüberschusszahl während der Verbrennung ausgenutzt, um minimale Abgasemissionswerte zu erreichen.

Basis des patentierten LEANOX*-Reglers ist die Tatsache, dass zwischen der Luftüberschusszahl und den Einflussgrößen Leistung, Ladedruck und Gemischtemperatur eine lineare Beziehung besteht. Eine Regelung auf dieser Grundlage hat den großen Vorteil, dass diese Einflussgrößen einfach und sicher zu messen sind und das Luftverhältnis exakt bestimmt werden kann.

Aufgabe des LEANOX-Reglers ist es, den für die momentan abgegebene elektrische Leistung und die momentane Gemischtemperatur den optimalen Ladedruck auszuregeln. Die lineare Funktion, mit der die Einflussgrößen in Zusammenhang stehen, wird nach dem Abspeichern zweier Betriebspunkte bei der Inbetriebnahme und wiederholt bei vorgegebenen Wartungsschritten von der Motorsteuerung automatisch berechnet. Der LEANOX-Regler schaltet sich automatisch nach Überschreiten einer definierten Ist-Leistung (ca. 30 % der Gesamtleistung) zu und ist in allen stationären Betriebszuständen über 30 % der Nennleistung aktiv.

Bei der aktuellsten Motorgeneration wird die LEANOX-Funktion mit einem am Motorausstritt installiertem NOx Sensor dahingehend erweitert, dass etwaige geringfügige Abweichungen (bedingt durch Gasqualitätsänderung, Luftfeuchteänderung, etc.) automatisch kompensiert werden, wodurch die NOx-Motorrohmissionen in allen Lastpunkten konstant gehalten werden können.

Dieser NOx-Sensor wird des Weiteren auch in der Motorsteuerung integrierten Nachbehandlungsregelung (SCR) verwendet, um zusammen mit dem berechneten Abgasmassenstrom unter Berücksichtigung des verwendeten Katalysatortyps (NOx-Umsatzeigenschaften) einen notwendigen Reduktionsmittelmassenstrom (in der Regel eine wässrige Harnstofflösung) zu bestimmen. Mit einem weiteren NOx-Sensor, der nach dem Katalysator platziert wird, kann eine Feinregelung bzw. ein geschlossener Regelkreis gebildet werden, um auch kleine Emissionsabweichungen zeitnah ausregeln zu können. Mit dieser Konstellation erhält man eine sehr robuste SCR-Regelung, die z.B. auch bei einem Sensorausfall weiter in Betrieb bleibt, und auch bei transienten Vorgängen (Laständerungen) eine sehr schnelle Ausregelung der NOx-Emissionen bewirkt.

Dem SCR nachgeschaltet ist ein Oxidationskatalysator, der Kohlenmonoxid, Formaldehyd und ggf. auch Ammoniak oxidiert. Ammoniak nach dem SCR Teil des Katalysators wird beispielsweise durch eine etwaige Überdosierung des Reduktionsmittels verursacht, die automatisch von der Motorsteuerung erkannt und entsprechend kompensiert wird.

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

Durch die in der Jenbacher Motorsteuerung von INNIO integrierte Emissionslösung ist es weiterhin möglich, gerade bei Großmotoren (>5MW), gezielt Einfluss auf Startemissionen zu nehmen. Unter anderem werden die Motoremissionen, solange die Mindestkatalysatortemperatur nicht erreicht ist, reduziert und mehr Abgasenthalpie zur Verfügung gestellt, um eine schnellere Katalysatoraufheizung zu erzielen. Dadurch lässt sich die Kataufheizzeit verkürzen und der Normalbetrieb schneller erreichen.

3. Umsetzung VDMA Einheitsblatt 6299 für 44. BImSchV

Für in der unter § 24 der 44. BImSchV beschriebenen Überwachungsmaßnahmen kann das VDMA Einheitsblatt 6299 [9] herangezogen werden. Darin werden Konzepte zur „Überwachung des dauerhaft emissionsseitig konformen Betrieb“ vorgegeben. Konkret wird für die Überwachung der Stickoxide (NOx) Emissionen ein NOx-Sensor eingesetzt, der bereits wie unter Kapitel 2 beschrieben für die innermotorische und abgasnachbehandlungsseitige Regelung verwendet wird. Der NOx-Sensor selbst gibt ein NOx und Sauerstoffsignals aus und ist seit vielen Jahren im PKW und LKW Anwendungen erfolgreich im Einsatz. Auch bei INNIO Jenbacher wurde er seit einigen Jahren erfolgreich erprobt. Aufgrund der geringen Abmaße des Sensors im Vergleich zum Querschnitt des Abgaskanals (~250 mm bis 1400 mm) wurde bei INNIO Jenbacher ein Adapter entwickelt, um eine einfache anlagenseitige Integration zu ermöglichen (siehe Bild 2).

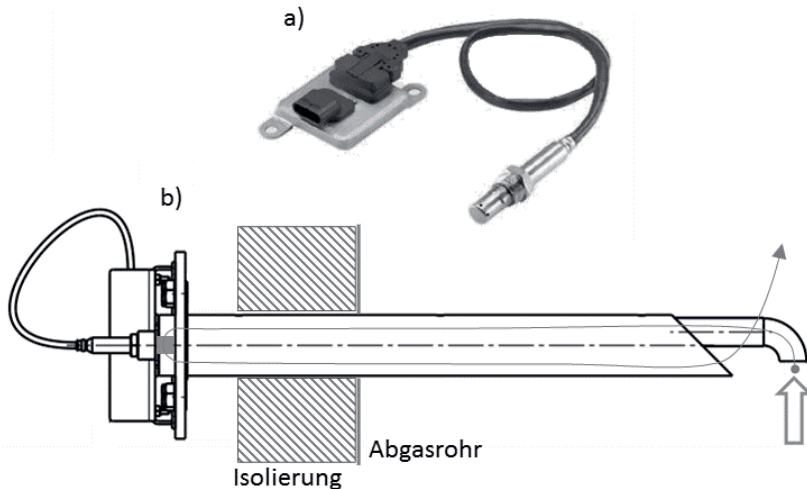


Bild 2: a) NOx Sensor (Quelle: Continental Automotive GmbH),
b) Jenbacher Strömungsadapter von INNIO

Dieser nutzt das Staudruckprinzip, um Abgas über das nur wenige Zentimeter große Sensorelement zu führen. Dadurch kann Abgas aus der „Kernströmung“ entnommen werden und gleichzeitig die thermische Belastung des Sensors „reduziert“ werden, die bei typischer anlagenseitiger Isolierung ein gängiges Problem darstellen kann. Nach derzeitigen Erkenntnissen kann der NOx-Sensor in den Hauptanwendungsfällen im Erd- und Biogasbetrieb ohne Wartungs- oder Kalibrierarbeiten für über 6000 Betriebsstunden betrieben werden.

Mit der Temperatur- und Differenzdrucküberwachung gibt es bei Jenbacher Gasmotoren von INNIO für Abgasnachbehandlungseinrichtungen (Oxidations- und/oder SCR-Katalysator) eine weitere standardmäßig verfügbare Überwachungsfunktion. Wobei erstere vor allem eine für die Katalysatoren schädliche Übertemperatur erfasst und zweitere einen unzulässig starken Druckverlustzuwachs detektiert, der wiederum ein Zeichen für einen gealterten oder teilweise blockierten Katalysator darstellt. Im Falle eines SCR Katalysators werden die Ein- und Austrittstemperaturen auch zur Bestimmung des Reduktionsmitteldosierstarts herangezogen.

Neben dem NOx- und Katalysatormonitoring sind bereits weitere Anforderungen des VDMA Einheitsblatts 6299 in die Motorsteuerung von INNIO Jenbacher integriert, die Anforderungen an ein ganzheitliches Emissionsüberwachungssystem werden somit erfüllt.

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

Vervollständigt wird das System noch durch entsprechend im Wartungsplan enthaltenen Wartungsschritte, sowie Überprüfungs- und Messungen vor allem nach Austausch von Komponenten, sowie die jährlichen Emissionsmessungen durch zugelassene Messstellen.

Durch diese engmaschige Kontrolle durch automatisierte Systeme, geschultes Service- und Bedienpersonal sowie die unabhängigen Messstellen ist ein dauerhaft emissionsseitig konformer Betrieb bereits sichergestellt.

4. Kontinuierliche Überwachung bei 13. BImSchV

Bei Großkraftwerken (Mehrmotorenanlagen mit einer Feuerungswärmeleistung > 50 MW) fordern lokale Behörden für Gasmotoren häufig kontinuierliche Emissionsüberwachungen von Stickoxiden (NO_x) und Kohlenmonoxid (CO), seit ein paar Jahren zusätzlich auch von Ammoniak (NH₃) und Formaldehyd (CH₂O). Die Überwachung von NH₃ ist bei kombinierten SCR+Oxikat-Systemen nach Gasmotoranlagen eigentlich entbehrlich, da in den dem SCR-Kat nachgeschalteten Oxi- oder Ammoniak-schlupfkat NH₃ entweder in NO_x oxidiert oder selektiv in N₂ und H₂O reduziert wird. Ebenso erscheint der Aufwand für eine kontinuierliche CH₂O-Messung vergleichsweise hoch, die wiederkehrende Messung sollte ausreichen.

Während der Auswahl der Messbereiche sollte aus Sicht von INNIO Jenbacher vorwiegend auf die stationären Zielemissionen (Tagesmittelwerte) Wert gelegt werden, um hier eine möglichst kleine Messunsicherheit zu erhalten. Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt, sind die Konzentrationsspitzen während des Motorstarts um ein Vielfaches höher als im ausgeregelten Zustand mit aktivem Abgasnachbehandlungssystem. Würden diese Spitzen während des Starts für die Bestimmung des Messbereichs verwendet werden, wäre eine deutlich höhere Messunsicherheit im Regelbetrieb zu erwarten, was gerade bei sehr niedrigen Emissionskonzentrationen problematisch werden kann. In der nachfolgenden Grafik (Bild 3) sind Emissionsverläufe von Motortests (Prüfstandsmessung) gezeigt die das Problem der hohen Konzentrationsspitzen und niedrigen Massenströmen im Vergleich der Massenfrachten aufzeigt. Der Test zeigt eine Motornahe Messung, das bedeutet, dass durch große Abgassystemvolumina und der behördlichen Messstelle Nahe des Kamins, sich entsprechend längere Totzeiten gerade bei niedrigen Massenströmen einstellen.

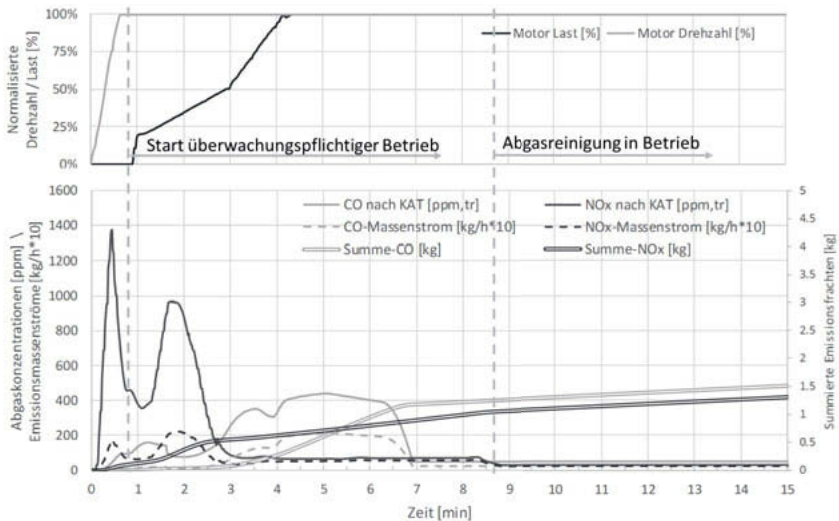


Bild 3: Beispielhafter Emissionsverlauf während eines Motorschnellstart mit kaltem Abgas-reinigungssystem (Prüfstandsmessung)

Die Anforderung an die komplette Messkette während des hoch transienten Ereignisses ist enorm, vor allem die unterschiedlichen Totzeiten der einzelnen Analysentechniken, allen voran O₂, kann bereits einen großen Messfehler durch die Referenz-Sauerstoffkorrektur verursachen. Daher wird wie in der Bundeseinheitlichen Praxis bei der Überwachung der Emissionen [8] unter 4.7.3 angeführt, ein Überwachungspflichtiger Betrieb ab einer Sauerstoffkonzentration von ≤ 16 Vol-% angesetzt. Zusätzlich dazu wurde in zuletzt unterstützen Genehmigungen auch die Bedingung ergänzt, dass der Generatorschalter des Gasmotoraggregats geschlossen sein muss. Mit diesen beiden Bedingungen werden die äußerst kurzen (in der Regel deutlich unter einer Minute), höchst instationären und emissionstechnisch schwer zu bestimmenden Bereiche ausgeklammert, um keine „fehlerhaften“ Messwerte in den überwachungspflichtigen Betrieb einfließen zu lassen. Zusätzlich ist auch die Emissionsfracht, wie bereits erwähnt (siehe auch Bild 3), durch die niedrige Drehzahl und quasi nicht vorhandenen Last, vergleichsweise gering.

Selbst mit diesen Bedingungen liegt im Allgemeinen der Halbstundenmittelmittelwert nach Motorstart für einige Emissionsspezies, allen voran NO_x, häufig über dem zweifachen der festge-

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

legten Emissionsbegrenzung. Dies gilt vor allem bei einer erwarteten Verschärfung des Grenzwertes in Richtung 20 mg/Nm^3 , bei 15% Referenzsauerstoff und bei Anwendung der 2/3-Regel zur Klassierung der Halbstundenmittelwerte (vgl. [8]). An dieser Stelle ist nochmals zu erwähnen, dass aus diesen Gründen der Halbstundenmittelwert nach Motorstart in eine Sonderklasse einzuordnen ist und nicht für die Tagesmittelwertberechnung herangezogen werden sollte. Ein typischer Emissionsverlauf für NO_x und CO nach einem Motorstart mit kaltem Abgasnachbehandlungssystem von einer Referenzanlage mit einer Gasmotoreinzelleistung von rund 10MW ist im nachfolgenden Bild 4 gezeigt.

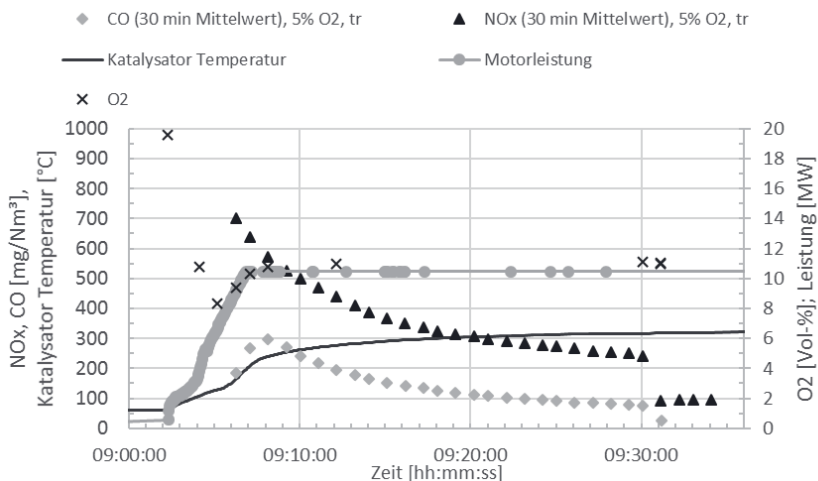


Bild 4: Beispiel für gleitende Halbstundenmittelwerte nach einem Motorstart mit kaltem Katalysator in der Motorleistungsklasse von 10MW

Auch hier ist deutlich zu erkennen, dass die Emissionswerte nach Motorstart deutlich höher sind, als im eingeschwungenen Zustand. Der gezeigte gleitende Halbstundenmittelwert wird in dem Beispiel vom Emissionsrechner jede halbe Stunde neu gestartet, was an dem Sprung der Konzentrationen nach 09:30 Uhr zu erkennen ist. Hier wird nochmals verdeutlicht, dass der NO_x Halbstundenmittelwert nach Motorstart über dem zweifachen Tagesmittelwert (in dem Bsp. 100 mg/Nm^3 , 5%O₂) liegt und auch in einer Sonderklasse für Anfahrbetrieb erfasst wird. Auch ist deutlich zu sehen, dass das Sauerstoffsignal erst nachdem der Motor Last aufnimmt unter die 16% fällt, wodurch, zusammen mit der Statusmeldung des geschlossenen Generatorschalters, der überwachungspflichtige Bereich startet.

Als Ergänzung sei noch erwähnt, dass sich die Emissionswerte von Gasmotoranlagen im Regelbetrieb sehr konstant verhalten. In vielen Ländern ist daher, unter der Berücksichtigung der beschriebenen Regel- und Überwachungsvorgänge, der Einsatz von Messstellenumschaltungen zur Erfassung mehrerer Motoren mit einem kontinuierlichen Messsystem zulässig.

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

5. Literaturnachweise

- [1] 44. BImSchV (Verordnung über mittelgroße Feuerungs-, Gasturbinen- und Verbrennungsmotoranlagen), Bundesgesetzblatt Jahrgang 2019 Teil I Nr. 22, 13.06.2019; http://www.bgbl.de/xaver/bgbl/start.xav?startbk=Bundesanzeiger_BGBL&jumpTo=bgbl119s0804.pdf
- [2] Richtlinie (EU) 2015/2193 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 25. November 2015 zur Begrenzung der Emissionen bestimmter Schadstoffe aus mittelgroßen Feuerungsanlagen in die Luft; <https://eur-lex.europa.eu/eli/dir/2015/2193/oj>
- [3] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft), 24.07.2002; https://www.bmu.de/fileadmin/Daten_BMU/Download_PDF/Luft/taluft.pdf
- [4] Emissionsgesetzgebung für Verbrennungsmotoranlagen: 44. BImSchV – Fact Sheet, VDMA, 10.07.2019
- [5] Verordnung über Großfeuerungs-, Gasturbinen- und Verbrennungsmotoranlagen - 13. BImSchV, 02.05.2013; http://www.gesetze-im-internet.de/bimsv_13_2013/13_BImSchV.pdf
- [6] Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates vom 24. November 2010 über Industrieemissionen (integrierte Vermeidung und Verminderung der Umweltverschmutzung) <http://data.europa.eu/eli/dir/2010/75/oj>
- [7] Durchführungsbeschluss (EU) 2017/1442 der Kommission vom 31. Juli 2017 über Schlussfolgerungen zu den besten verfügbaren Techniken (BVT) gemäß der Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates für Großfeuerungsanlagen http://data.europa.eu/eli/dec_impl/2017/1442/oj

- [8] Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen, Rundschreiben des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit als Lesefassung vom 23.1.2017; https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/370/dokumente/lesefassung_bep_2018-26-04.pdf
- [9] VDMA Einheitsblatt 6299:2019-09: Methoden zur Überwachung der Emissionen von Verbrennungsmotoranlage, Beuth, September 2019

* INNIO, Jenbacher und LEANOX sind Trademarks.

Sind die Bandbreiten aus den BVT-Schlussfolgerungen noch kontinuierlich überwachbar?

Michael Kein, Sick Vertriebs-GmbH, Düsseldorf

Inhalt

1. Einleitung
2. Exkurs kontinuierlich arbeitende Messsysteme
3. Eignungsprüfung und Zertifizierung
4. Einfluss des Berichtswesens auf die in BVT Schlussfolgerungen ermittelten Bandbreiten
 - 4.1. Das Dilemma: Jahresmittelwerte ermittelt aus Tagesmittelwerten
 - 4.2. Beispiele
5. Neue Bandbreiten im Vergleich zu den existierenden kleinsten zertifizierten Messbereichen
 - 5.1. Alternativen zu existierenden Mehrkomponentenmesssystemen
6. Fazit

1. Einleitung

Der aktuelle Stand der BAT Merkblätter zur Abfallverbrennung und für Großfeuerungsanlagen sieht bei einigen Schadstoffen erhebliche Reduzierungen der Emissionsbandbreiten vor. Während die Diskussion in Deutschland sich bisher fast ausschließlich auf die großen Themenkomplexe Quecksilber- und Stickoxydminderung beschränkt, scheint völlig übersehen zu werden, dass bei anderen Schadstoffen völlig unklar ist, wie mit vorhandener Messtechnik die unteren Grenzen der Bandbreiten überwacht werden sollen. Hier sind besonders zu nennen CO, SO₂, HCl und NH₃. Die marktüblichen zertifizierten Mehrkomponentenmesssysteme bilden dies zum jet-

zigen Stand der Technik nicht annähernd ab und werden auch kurz- und mittelfristig keine Zertifizierung für solche benötigten kleinen Messbereiche erlangen können.

Ebenso ist nicht klar, ob alle Referenzmethoden zur Kalibrierung der kontinuierlichen Messsysteme geeignet sind, diese kleinen Werte mit hinreichender Genauigkeit zu validieren. Diese Diskussion ist, wie schon seit einiger Zeit bei den Quecksilbergrenzwerten auch für andere Schadstoffe zu führen.

2. Exkurs kontinuierlich arbeitende Messsysteme

Die Anforderungen aus den Müllverbrennungsanlagen führten vor über 25 Jahren zur Entwicklung und erfolgreichen Einführung heißextraktiver Mehrkomponentenmesssysteme mit Infrarottechnologie für alle mit Grenzwerten belegten Schadstoffkomponenten. Es begann mit Filterfotometern und wurde später um die FTIR Technologie erweitert. Beide Methoden existieren seit vielen Jahren gleichwertig nebeneinander und decken in der Regel alle Schadstoffkomponenten außer Gesamtstaub und Quecksilber ab.

Für die Anlagenbetreiber bringen diese Systeme einige wesentliche Vorteile mit. War es bis dahin ein Mix aus verschiedenen Gerätetechnologien auf kaltextraktiver IR-Basis und nasschemischen Verfahren, die große Messräume beanspruchten, reduzierte sich dies auf einen kompakten Analysenschrank mit nur einer Entnahmesonde am Kamin. Ebenso konnte der Wartungsaufwand erheblich reduziert werden und die komplette Messaufgabe wurde durch nur noch einen Hersteller abgedeckt.

Mit den erweiterten Anforderungen fanden diese Systeme auch Einzug in die Kraftwerksbranche.

3. Eignungsprüfung und Zertifizierung

Kontinuierlich arbeitende Messsysteme zur Überwachung der Emissionen bedürfen in Deutschland einer Eignungsprüfung und Zertifizierung nach DIN EN 15267-1 bis 3 [1] und der Veröffentlichung im Bundesanzeiger. Die erteilten Zertifikate haben eine

Gültigkeit von 5 Jahren und können bei Erfüllung von diversen qualitätssichernden Maßnahmen jeweils um weitere 5 Jahre verlängert werden.

Bei der Neuentwicklung von Messsystemen lehnt sich der Hersteller in der Regel an die zu erwartenden gesetzlichen Anforderungen der nächsten 10 Jahre an und richtet die messtechnischen Eigenschaften auf die existierenden bzw. bevorstehenden Grenzwerte aus.

Die Eignungsprüfungen berücksichtigen die existierenden Grenzwerte sowie die Möglichkeiten der Referenzverfahren.

Der Produktlebenszyklus eines Mehrkomponentensystems liegt seitens der Hersteller bei ca. 15 Jahren, bis seitens der Hersteller eine komplette Überarbeitung oder Neuentwicklung erfolgt. Grundlegende Änderungen an zertifizierten Systemen sind nicht möglich, ohne eine neue Eignungsprüfung mit allen zeitlichen und finanziellen Risiken durchzuführen. Somit führt das restriktive Regelwerk der Zertifizierung und Qualitätssicherung von kontinuierlich arbeitenden Messsystemen dazu, dass nur wenige Möglichkeiten für die Gerätehersteller bestehen, kurzfristig auf schnelle Veränderungen der Emissionsgrenzwerte zu reagieren.

4. Einfluss des Berichtswesens auf die in BVT Schlussfolgerungen ermittelten Bandbreiten

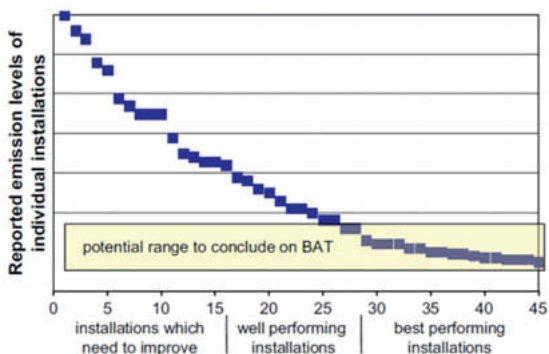
Die Realität:

- Bericht der Anlagenemissionen auf Basis von Jahresemissionen
- Nicht alle Anlagen werden erfasst
- Basis und Methoden zur Ermittlung der Daten oft unklar
- Anlagen, die weit oberhalb gültiger Grenzwerte agieren, finden sich sehr selten in den Berichten

4.1. Das Dilemma:

Die berichteten Jahresmittelwerte werden aus validierten Tagesmittelwerten ermittelt, soweit sie denn überhaupt aus kontinuierlichen Messungen stammen

Auf Basis der berichteten Werte wird das beste Drittel der gemeldeten Anlagen zur Benennung der neuen Bandbreiten herangezogen. In diesem Bereich finden sich bei genauer Überprüfung häufig Anlagen ohne kontinuierliche Erfassung der Emissionen.



Quelle: Harald Schoenberger: Integrated pollution prevention and control in large industrial installations on the basis of best available techniques – The Sevilla Process; Journal of Cleaner Production 17 (2009) 1526–1529

Bild 1 zeigt das Prinzip des berichteten besten Drittels der Emissionen

Auslegung der Messbereiche und der Messunsicherheiten zertifizierter Messeinrichtungen

- Die Zertifizierungsbereiche von Messeinrichtungen richten sich nach den Grenzwerten für die Tagesmittelwerte
- Diese sind oft bedeutend höher als die daraus abzuleitenden Jahresmittelwerte
- Der Jahresmittelwert wird aus den validierten Tagesmittelwerten gebildet

Was bedeutet das nun für die Auslegung des Analysators?

Für Anlagen, die der 17. BImSchV [2] unterliegen, beträgt der Messbereich des Analysensystems in der Regel das 1,5fache des Tagesgrenzwerts, bei Anlagen nach 13.BImSchV [3] das 2,5 fache des Tagesgrenzwerts.

4.2. Beispiel Quecksilber für bisher existierende Grenzwerte für Anlagen nach 17. BImSchV

Jahresgrenzwert: **0,01 mg/m³**

Tagesgrenzwert: **0,03 mg/m³**

Der Messbereich und damit notwendige Zertifizierungsbereich des Analysators beträgt **0.045 mg/m³**

Die zulässige Gesamtunsicherheit des Messsystems beträgt gemäß den Prüfkriterien der DIN EN 15267-3 [1] für Quecksilber 40% vom Tagesgrenzwert. Für das Zertifikat werden noch einmal 25% davon abgezogen. Dies ergibt für diesen Fall eine zulässige Gesamtunsicherheit der Messeinrichtung von 0,009 **mg/m³**

Im ungünstigsten Fall (Vergleichsmessung nutzt die volle Fehlertoleranz) werden beim validierten Tagesmittelwert diese 0,009 mg/m³ vom durch den Analysator ermittelten Wert abgezogen.

Sollte also bei einer MVA im Betrieb ein Wert von 0,008 mg/m³ angezeigt werden, so könnte der für den Jahresmittelwert erfasste Tageswert **-0,001 mg/m³** betragen.

Allerdings sind bei der Quecksilbermessung die tatsächlichen Unsicherheiten erheblich kleiner, wenn durch das Prüfinstitut eine hochwertige Vergleichsmessung durchgeführt wird. Die Grenzen des Standardreferenzverfahrens liegen bei gut arbeitenden Instituten bei +/- 0,003 **mg/m³**, die Analysatoren der neuen Generation weisen erheblich kleinere Unsicherheiten auf. Dennoch wird auch dann ein sehr viel kleinerer Wert als der angezeigte Messwert zur Ermittlung des Jahresmittelwerts herangezogen.

Daher wäre es wichtig, die Qualität der Daten zu hinterfragen, die zur Ermittlung von Emissionsbandbreiten herangezogen werden. Das Beispiel hat gezeigt, dass es möglich ist, null Emissionen als Jahresmittelwert zu berichten, ohne irgend eine Regelverletzung begangen zu haben.

Die Methodik des berichteten besten Drittels führt zu einer Spirale von immer niedrigeren berichteten Werten und somit in Folge auch zu Bandbreiten, die mit gängigen Messmethoden kaum mehr überwacht werden können.

5. Neue Bandbreiten im Vergleich zu den existierenden kleinsten zertifizierten Messbereichen

In der Diskussion um das Quecksilber wurde von vielen übersehen, dass es formal und auch technisch Schwierigkeiten bei mehreren anderen vermeintlich einfach zu überwachenden Schadstoffkomponenten gibt. Als Beispiel dienen hier einige Werte für Bereiche der Abfallverbrennung

Tabelle 1 zeigt die vorgesehenen Bandbreiten für die Tagesmittelwerte aus dem „Formal Draft“ der BVT Schlussfolgerungen für Abfallverbrennungsanlagen

Komponente	Bandbreite BVT Tagesmittelwert	Kleinster zertifizierter Messbereich aller Mehrkomponentengeräte	Sonderfall
CO	10 - 50	75	
HCl	2 – 6 (8)	15	
SO ₂	5 -30 (40)	75	
NH ₃	2 - 10	5 (10)	Ein Hersteller 5

Der Messbereich des Analysators wird normativ folgendermaßen festgelegt:

1,5 x Tagesgrenzwert

Dies bedeutet, dass die untere Grenze der Bandbreiten bei keiner der genannten Komponenten von einem heißextraktiven Mehrkomponentensystem formal erfüllt werden kann.

Für HCl und SO₂ sind auch die oberen Grenzen formal nicht mehr durch zertifizierte heißextraktive Messeinrichtungen abgedeckt.

5.1. Alternativen zu existierenden Mehrkomponentenmesssystemen

Für einen der zuvor genannten "Problemfälle" ist alternativ abhängig vom finalen Grenzwert durch ein anderes zusätzliches Messverfahren eine zertifizierte Messung umsetzbar

- SO₂ mittels kaltextraktiver Systeme mit UV basierter Messtechnik

Für NH₃ bleibt abhängig vom finalen Grenzwert nur noch ein (oder auch kein) Hersteller

Für HCl und CO finden sich in der aktuellen Zertifizierungsliste keine Messsysteme, dass auch nur annähernd in den Bereich der unteren Grenze kommt.

6. Fazit:

- Je nachdem, wie die Bandbreiten in die 13. Und 17. BImSchV [3] [2] einfließen, wird es erhebliche Probleme geben, formal einwandfrei eine kontinuierliche Überwachung der Emissionen darzustellen.
- Es wird für die Betreiber viele Diskussionen mit ihren zuständigen Behörden geben, wenn formale Anforderungen in der Realität nicht umsetzbar sind
- Alle relevanten Mehrkomponentenmesssysteme sind (bis auf eine Ausnahme) erst seit wenigen Jahren (<3) zertifiziert auf dem Markt erhältlich und stehen noch am Beginn ihrer Produktlebensdauer von 10 bis 15 Jahren
- Das Finden pragmatischer Lösungen wird für die nächsten Jahre die Überwachung der Emissionen bestimmen müssen
- Es muss über alternative Messverfahren nachgedacht werden, die bisher nicht in der gesetzlichen und normativen Welt wie der DIN EN 14181 [4] abgebildet werden können (Beispiel: Partikelzähler statt konventioneller Staubmessung)
- Eine generelle Überarbeitung vieler Standardreferenzmethoden ist notwendig, um die tatsächlichen Potenziale moderner Messeinrichtungen nutzbar zu machen

Quellen:

- [1] Luftbeschaffenheit – Zertifizierung von automatischen Messeinrichtungen –
Teil 1: Grundlagen; Deutsche Fassung EN 15267-1:2009
Teil 2: Erstmalige Beurteilung des Qualitätsmanagementsystems des Herstellers und
Überwachung des Herstellungsprozesses nach der Zertifizierung; Deutsche Fassung
EN 15267-2:2009
Teil 3: Mindestanforderungen und Prüfprozeduren für automatische
Messeinrichtungen zur Überwachung von Emissionen aus stationären
Quellen; Deutsche Fassung EN 15267-3:2007

- [2] Siebzehnte Verordnung zur Durchführung des Bundes- Immissionsschutzgesetzes.
Verordnung über die Verbrennung und die Mitverbrennung von Abfällen vom 2. Mai
2013 (BGBl. I S. 1021, 1044, 3754)

- [3] Dreizehnte Verordnung zur Durchführung des Bundes- Immissionsschutzgesetzes.
Verordnung über Großfeuerungs-, Gasturbinen- und Verbrennungsmotoranlagen vom
2. Mai 2013 (BGBl. I Seite 1021, 1023, 3754), die durch Artikel 1 der Verordnung vom
19. Dezember 2017 (BGBl. I Seite 4007) geändert worden ist.

- [4] Emissionen aus stationären Quellen – Qualitätssicherung für automatische Messein-
richtungen; Deutsche Fassung EN 14181:2014, Februar 2015

Stand der europäischen Normung zur Formaldehyd-Messung an Abgasen

Apl. Prof. Dr.-Ing. **Günter Baumbach**,
Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik,
Abt. Reinhaltung der Luft, Universität Stuttgart,
Obmann der CEN TC 264 WG 40
„Messen von Formaldehyd-Emissionen“

1. Ausgangslage

Formaldehyd ist besonders durch Innenraum-Luftverunreinigungen bekannt. In Abgasen kommt Formaldehyd bei Verbrennungsprozessen als Zwischenprodukt vor. Verläuft die Verbrennung unvollständig kann dieses Zwischenprodukt mit den Abgasen emittiert werden. Emissionsquellen für Formaldehyd sind z.B. mit Bio-, Klär- und Deponiegasen betriebene Gasmotoren, Holzfeuerungen, Räucheranlagen, Gießereien, Vulkanisieranlagen, Anlagen zur Formaldehydproduktion und Anlagen zur Spanplattenherstellung. Basierend auf der europäischen „Industrial Emissions Directive 2010/75/EU (IED)“ hat das Sevilla Joint Research Center der Europäischen Kommission ein „Best Available Techniques Reference Document – BREF“ zur Production of Wood-based Panels ausgearbeitet (BAT 14). Dementsprechend werden für verschiedene Prozessschritte z.B. mittlere Formaldehydkonzentrationen in Abgasen von $< 5 - 20$ bzw. $< 5 - 15$ mg/m³ genannt. Für Blockheizkraftwerke (BHKW) gibt es einen vom Länder-Arbeitskreis Immissionsschutz (LAI) festgelegten Emissionsminimierungsbonus. Damit diese weiterhin diesen Bonus erhalten, gelten ab dem 1. Juli 2018 die Grenzwerte des neuen LAI-Beschlusses Formaldehyd. Damit wird der Emissionswert von Formaldehyd ab 2020 für Neuanlagen von bisher 40 mg/m³ auf 20mg/m³ abgesenkt. Einmal im Jahr muss der Betreiber messen und bestätigen lassen, dass das BHKW diese Werte im Dauerbetrieb einhält. Zudem müssen Messunsicherheiten in den Grenzwert von 20mg/m³ mit eingerechnet werden. Im TA Luft- Entwurf von 2018 dürfen generell die Emissionen an Formaldehyd im Abgas den Massenstrom 12,5 g/h oder die Massenkonzentration 5 mg/m³ nicht überschreiten.

Um die Grenzwerte zu überwachen, sind einheitliche Messverfahren erforderlich. In Deutschland sind die Formaldehyd-Emissionsmessverfahren in der Richtlinienreihe VDI 3862 beschrieben. Da aber gemäß IED die Grenzwerte bei allen Anlagen in der EU einzuhalten sind, ist eine europäische Normung der Messverfahren erforderlich.

2. Existierende Messverfahren

In Deutschland existieren acht VDI-Richtlinien der Reihe VDI 3862 zur Messung von Formaldehyd bzw. Gesamt-Aldehyden. Dabei ist nicht jedes Messverfahren für jedes Abgas geeignet. In UK wird bisher nach US-amerikanischen EPA-Guidelines gemessen, in Frankreich gibt es z.B. eine eigene Messanweisung. Eine Übersicht, die keinen Anspruch auf Vollständigkeit erhebt, gibt Tabelle 1.

Tabelle 1: Übersicht über Richtlinien zur Formaldehyd-Messung

Land	Bezeichnung	Bezeichnung	Manuell/Konti.	Messprinzip
DE	VDI 3862 -1	MBTH	manuell Waschflaschen	Spektrophotometrie
DE	VDI 3862 -2	DNPH -	manuell Waschflaschen	HPLC-Analyse
DE	VDI 3862 -3	DNPH	manuell, Kartuschen	HPLC-Analyse
DE	VDI 3862 - 4	AHMT	manuell Waschflaschen	Spektrophotometrie
DE	VDI 3862 -5	2-HMP	manuell Waschflaschen	GC-Analyse
DE	VDI 3862 - 6	Acetylaceton	manuell Waschflaschen	Spektrophotometrie
DE	VDI 3862 - 7	DNPH – Tetra	manuell Waschflaschen	HPLC
DE	VDI 3861 - 8	FTIR	kontinuierlich	
USA	EPA Method 323	Acetyl Aceton	manuell Waschflaschen	Spektrophotometrie
USA	EPA Method 316	Pararosaniline	manuell Waschflaschen	Spektrophotometrie
USA	EPA Method 318	FTIR	kontinuierlich	
F	Guideline (TS)		Bestimmung von Verfahrens-kenngrößen automatischer Methoden	FTIR u.a. optische Verfahren

3. Europäische Normung

Die europäische Normung der Formaldehyd-Messverfahren findet im CEN TC 264, WG 40 statt, beginnend mit der ersten Sitzung im Dezember 2015 in Düsseldorf. Vertreter aus folgenden Ländern sind beteiligt: Belgien, Deutschland, Frankreich, Italien, Österreich und UK. Im ersten Work Item wurde sich die Beschreibung eines manuellen Verfahrens vorgenommen. Da es bei Messkampagnen bei Anwendung unterschiedlicher Messverfahren keine einheitlichen Ergebnisse gab, wird eine Validierung der Messverfahren als erforderlich angesehen, bevor das Messverfahren als Norm verabschiedet werden kann. Aus diesem Grund wird z. Zt. eine Technical Specification erarbeitet, die dann als Grundlage für Validierungsmessungen dienen soll. Der Titel lautet:

„Stationary source emissions — Determination of the mass concentration of formaldehyde —
Manual method“

Als Hauptunsicherheitspunkte werden

- die Kalibrierung der Messverfahren mit einheitlichen Standards und
- die Probenahme isokinetisch oder nicht-isokinetisch angesehen.

Die Abgasprobenahme erfolgt einheitlich mit Waschflaschen in Wasser, entweder mit nicht-isokinetischer Probenahme, s. Bild 1, oder bei Anwesenheit von Wassertröpfchen im Abgas mit isokinetischer Probenahme, s. Bild 2.

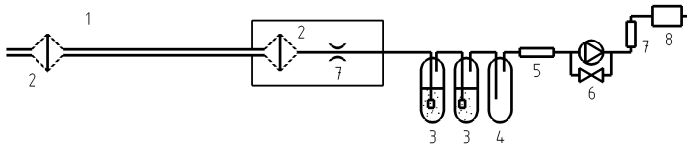


Bild 1: Beispiel für ein Sammelsystem mit nicht-isokinetischer Probenahme
(entsprechend TS-Entwurf)

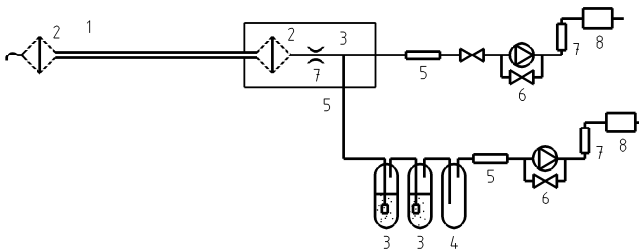


Bild 2: Beispiel für ein isokinetisches Sammelsystem mit Probenahme im Seitenstrom
(entsprechend TS-Entwurf)

Die Probenahme wird im TS-Entwurf genau beschrieben.

Für die Analyse werden vier verschiedene Laborverfahren beschrieben:

- Methode A (AHMT Methode; Photometrie)
- Methode B (Pararosaniline Methode; Photometrie)
- Methode C (Acetylaceton Methode; Photometrie)
- Methode D (DNPH Methode; HPLC, nicht Kartuschen)

Die Methoden werden beschrieben und auf entsprechende Analysen-Normen hingewiesen. Es werden Hinweise gegeben, für welche Abgase welche Methode, je nach Verfügbarkeit, bevorzugt anzuwenden ist. Jeweilige Querempfindlichkeiten werden genannt. Einzelne Verfahrenskenngrößen, wie z.B. Standzeiten, liegen zwar vor, sollen aber durch eine Validierung noch abgesichert werden.

Für die Kalibrierung wird die Herstellung einer Formaldehyd-Standardlösung genau beschrieben. Wenn Standard-Referenzmaterial vorhanden ist, kann auch dieses eingesetzt werden.

4. Vorgeschlagenes Validierungsprogramm

Bei der EU-Kommission wurde das Mandat zur Erstellung der Norm zwar beantragt, aber bis jetzt noch nicht erteilt. Zur Validierung sollen EU-Fördermittel beantragt werden; der Antrag setzt aber die Erteilung des Mandats voraus.

In der Arbeitsgruppe wurde schon ein Programm zur Validierung entworfen. Diese besteht aus folgenden drei Stufen:

1. Validierung der analytischen Methode durch Verschicken von Formaldehyd-Testproben zur Analyse bei den beteiligten Instituten. Ziel: Vergleichbarkeit der beschriebenen Analysemethoden einschließlich der verwendeten Standards und Bestimmung der Streuung zwischen verschiedenen Laboren. Ggf Ermittlung systematischer Abweichungen > Verlässlichkeit des Referenzmaterials bzw. der Herstellung und Überprüfung der Formaldehyd-Standardlösung.
2. Vergleichsmessungen mit mehreren Laboren an einer Ringgasleitung mit verschiedenen Prüfgas-Zusammensetzungen und auch realen Abgasen. Ziel: Test der gesamten Methode bei Variation verschiedener Einflüsse, u.a. Störkomponenten.

3. Mit den beteiligten Laboren Feldtests-Validierung an verschiedenen industriellen Prozessen mit isokinetischer und nicht-isokinetischer Probenahme, je nach Abgasbedingungen. Ziel: Bestimmung der Eignung der Methoden unter realen Bedingungen, Vergleichbarkeit der Methoden und Bestimmung der Streuung zwischen Laboren.

Das Validierungsprogramm steht in den Startlöchern.

4. Weitere Schritte

Zunächst soll auf Basis der Technical Specification die Validierung erfolgen, deren Finanzierung aus EU-Mitteln angestrebt wird. Die Erkenntnisse aus den Validierungsuntersuchungen werden dann in die Norm eingearbeitet. Wenn möglich soll danach entsprechend dem „Vienna Agreement“ eine gemeinsame ISO-EN-Norm entstehen. Außereuropäische ISO-Mitgliedsländer haben hieran Interesse bekundet, da in ihren Ländern die Messung von Formaldehyd-Emissionen ebenso ein Thema ist.

Ein neues Arbeitspaket (New Work Item) zur Normung kontinuierlicher Formaldehyd-Messungen wird gerade in der Arbeitsgruppe diskutiert und soll dann zur Implementierung in den Gremien vorgestellt werden.

Rechtssichere Bestimmung von niedrigen Quecksilberkonzentrationen in Rauchgasen

Aktueller Stand der Messtechnik

Dipl.-Ing. **Thorsten Noll**, TÜV Rheinland Energy GmbH, Köln



Kurzfassung

Durch das überarbeitete BVT-Merkblatt „Großfeuerungsanlagen“ und die Umsetzung in nationales Recht sind zukünftig strengere Emissionsgrenzwerte insbesondere für Quecksilber zu erwarten.

Zur Überwachung der Emissionen von Quecksilber kommen üblicherweise eignungsgeprüfte und nach der DIN EN 15267 Richtlinienreihe zertifizierte kontinuierliche Emissionsmesseinrichtungen zum Einsatz. Durch eine Verschärfung der Grenzwerte werden Hersteller von automatischen Emissionsmesseinrichtungen aufgefordert neue Messtechnik und neue Messverfahren zu entwickeln, die den geänderten Anforderungen entsprechen.

Die Qualitätssicherung der ermittelten Messdaten erfolgt durch eine in festgelegten Intervallen (üblicherweise im 3-jahres Zyklus) durchzuführende Kalibrierung (QAL2), eine jährlich durchzuführende Funktionsprüfung (AST), sowie die regelmäßige Überwachung der Qualität der Messergebnisse während des laufenden Betriebes der Anlage mittels regelmäßiger Überprüfung von Null- und Referenzpunktdrift (QAL3). Im Rahmen der Funktionsprüfung und Kalibrierung sind Vergleichsmessungen mit einem Standardreferenzmessverfahren durchzuführen. Die eingesetzten Messverfahren müssen die vorgegebenen Anforderungen an die Nachweisgrenze ($< 10\%$ der zu überwachenden Emissionsbegrenzung für den Tagesmittelwert) erfüllen. Um die Anforderungen im Hinblick auf die verschärften Grenzwerte einzuhalten, wird eine Überprüfung und ggf. Änderung des Standardreferenzmessverfahrens als notwendig erachtet.

1. Gesetzliche Anforderungen an die Überwachung von Quecksilberemissionen

Die Richtlinie 2010/75/EU vom 24. November 2010 über Industrieemissionen stellt das zentrale europäische Regelwerk für die Genehmigung und den Betrieb von Industrieanlagen in Europa dar. Hauptziel der Richtlinie ist es Umweltstandards zu setzen und in den Mitgliedsstaaten in Europa anzugleichen und dadurch gerechtere Wettbewerbsbedingungen zu schaffen. Um dieses Ziel zu erreichen wurde erstmals eine verbindlichere Anwendung der in den BVT-Merkblättern und BREF Dokumenten aufgeführten besten verfügbaren Techniken gefordert.

Zentrales Element der BVT-Merkblätter sind die BVT-Schlussfolgerungen, welche bei der Festlegung von Genehmigungsanforderungen und Grenzwerten als Referenzdokumente dienen sollen. Gemäß der Richtlinie, soll die Umsetzung in nationales Recht innerhalb eines Jahres, sowie an den Anlagen innerhalb von vier Jahren nach der Veröffentlichung im EU Amtsblatt erfolgen. Eine Überarbeitung der BVT-Merkblätter hat spätestens acht Jahre nach der Veröffentlichung der Vorgängerversion im EU Amtsblatt zu erfolgen.

Am 17. August 2017 wurde das überarbeitete BVT-Merkblatt „Großfeuerungsanlagen“ im EU Amtsblatt veröffentlicht. Ein wesentlicher Inhalt sind die im BVT-Merkblatt assoziierten jährlichen Quecksilber Emissionswerte von $\leq 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die im Vergleich zu den aktuell gültigen Emissionsgrenzwerten der 13. BImSchV vom 02.05.2013 deutlich geringer sind.

Bei der nationalen Umsetzung des BVT-Merkblattes in Bezug auf die Festsetzung von Emissionsgrenzwerten sind diese so festzulegen, dass sich Betriebswerte, innerhalb oder unter dem von der Schlussfolgerung bei Anwendung von BVT festgelegten Emissionsbandbreiten einstellen.

Tabelle 1: Emissionsbandbreiten der BVT Schlussfolgerung für Jahresmittelwerte vom 31.07.2017 für Quecksilber bei der Verbrennung von Stein- und/oder Braunkohle¹

Feuerungswärmeleistung (MW _n) der Feuerungsanlage	BVT-assoziierte Emissionswerte ($\mu\text{g}/\text{Nm}^3$)			
	Jahresmittelwert oder Mittelwert der im Verlauf eines Jahres gewonnenen Proben			
	Neue Anlage		Bestehende Anlage (1)	
	Steinkohle	Braunkohle	Steinkohle	Braunkohle
< 300	< 1-3	< 1-5	< 1-9	< 1-10
≥ 300	< 1-2	< 1-4	< 1-4	< 1-7

(1) Das untere Ende dieses Wertebereichs BVT-assoziierte Emissionswerte kann mit spezifischen Techniken zur Quecksilberminderung erreicht werden.

Quelle: Durchführungsbeschluss (EU) 2017/1442 der Kommission vom 31. Juli 2017 über Schlussfolgerungen zu den besten verfügbaren Techniken (BVT) gemäß der Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates für Großfeuerungsanlagen

2. Quecksilberemissionen aus Rauchgasen

Die behördlich geforderte Überwachung der Quecksilberemissionen kann zum einen mit zertifizierten automatischen Emissionsmesseinrichtungen (kontinuierlich) oder durch manuelle Einzelmessungen (diskontinuierlich) mit einem Standardreferenzmessverfahren erfolgen. Der Nachteil von manuellen Einzelmessungen liegt jedoch darin, dass das Emissionsverhalten nur stichprobenartig ermittelt und beurteilt werden kann, wohingegen durch die kontinuierliche Emissionsüberwachung eine ständige Überwachung des Emissionsverhaltens möglich wird. Daher werden kontinuierliche Emissionsmesseinrichtungen oftmals auch zur Steuerung von Rauchgasreinigungseinrichtungen eingesetzt (z.B. Steuerung der Aktivkohle Zudosierung in den Rauchgaskanal).



Bild 1: kontinuierliche Emissionsmesseinrichtung mit extraktiver Probenahme²

Quecksilber liegt in Rauchgasen von Industrieanlagen in unterschiedlichen Bindungsformen vor:

- ionisierte Quecksilberverbindungen (Hg^{2+}), z.B. HgCl_2 , HgBr_2
- elementares Quecksilber (Hg^0)

Der überwiegende Anteil liegt üblicherweise in oxidierter Form vor, wobei das Verhältnis zwischen oxidiertem und elementarem Quecksilber nicht konstant, sondern schwankend und prozessabhängig ist.

Da handelsübliche Emissionsmesseinrichtungen Quecksilber nur in seiner elementaren Form messen können ist für die kontinuierliche Überwachung der Quecksilberemissionen eine Konvertierung von oxidiertem in elementares Quecksilber unentbehrlich.

² Quelle: Sick AG; Emissionsmesstechnik – Technologien und Lösungen aus einer Hand

Dies kann beispielweise durch:

- Thermokatalysator
- Hochtemperaturkonvertierung

erfolgen.

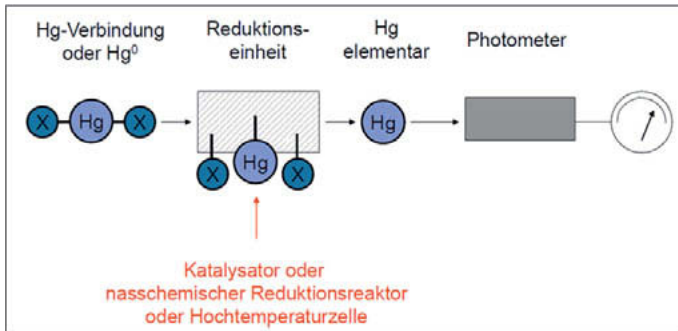


Bild 2: Schema der Konvertierung von ionisiertem zu elementarem Quecksilber³

Für eine präzise kontinuierliche Gesamtquecksilbermessung ist daher eine vollständige Umsetzung von dem im Rauchgas befindlichen Quecksilber zu Hg⁰ unentbehrlich. Die regelmäßige Überprüfung der Konvertierung ist daher ein wichtiger Bestandteil der regelmäßig durchzuführenden QAL3 Prüfungen.

³ Quelle: Verein Deutscher Zementwerke e.V.; Erste Messergebnisse mit der Sorbent Trap-Methode im Vergleich zum Standardreferenzverfahren nach DIN EN 13211 sowie MERCEM 300Z; 21.09.2017

3. Qualitätssicherung bei der kontinuierlichen Quecksilbermessung

Die Qualitätssicherung bei der kontinuierlichen Emissionsüberwachung wurde mit dem Erscheinen der DIN EN 14181 im Jahr 2004 erstmals europaweit geregelt. Diese Norm legt ein Verfahren mit verschiedenen Qualitätssicherungsstufen (QAL1, QAL2, AST, QAL3) zur Aufrechterhaltung und Sicherstellung der geforderten Qualität von kontinuierlich ermittelten Emissionen, die mittels automatischen Emissionsmeseinrichtungen erfasst werden, fest.

- Erste Qualitätssicherungsstufe (QAL1):
Prüfung hinsichtlich der Eignung einer automatischen Emissionsmeseinrichtung (Zertifizierung) für die Messaufgabe in der ersten Qualitätssicherungsstufe (QAL1) nach dem in der Richtlinie DIN EN 15267 Blatt 1 bis 4 festgelegten Verfahren.
- Einbaubescheinigung nach VDI 3950 (*in Deutschland*):
Einbaubescheinigung der Emissionsmeseinrichtung durch eine Überprüfung der Konformität der eingebauten Emissionsmeseinrichtung mit der zertifizierten Geräteversion (gesamtes Messsystem inkl. Probenahmesonde, Probenahmeleitung etc.), sowie des Aufstellungsortes mit den Anforderungen / Empfehlungen der DIN EN 15259 (Abgasführung, Zugänglichkeit der Probenahmestelle, Vorhandensein von Messöffnungen etc.)
- Zweite Qualitätssicherungsstufe (QAL2):
Kalibrierung (QAL2) und Ermittlung der Variabilität der mittels kontinuierlichen Emissionsmeseinrichtungen bestimmten Messwerte um die Eignung der Emissionsmeseinrichtung für ihre Anwendung nach dem Einbau nachzuweisen. Dies erfolgt durch die Durchführung von mindestens 15 Vergleichsmessungen mit einem Standardreferenzmessverfahren und die Ermittlung einer Kalibrierfunktion ($y = a + b \cdot x$).
- Jährliche Funktionsprüfung (AST):
Jährliche Funktionsprüfung (AST) der automatischen Messeinrichtung zur Überprüfung der richtigen Funktionsweise des AMS (d.h. die Ermittlung der Unsicherheit der AMS Werte und Abgleich mit den gesetzlichen Anforderungen), die Kalibrierfunktion weiterhin Gültigkeit besitzt und die Variabilität den zuvor ermittelten Kenngrößen entsprechen.

- Dritte Qualitätssicherungsstufe (QAL3):
Die Aufrechterhaltung und Feststellung der geforderten Qualität der Messergebnisse während des normalen Betriebs einer automatischen Messeinrichtung ist durch regelmäßige Kontrollen der Null- und Referenzpunktdrift im Wartungsintervall zu überprüfen und zu dokumentieren.

Hinweis:

Das Wartungsintervall wird in Abhängigkeit vom Driftverhalten und sonstigen Wartungsarbeiten in der QAL1 ermittelt.

Im Rahmen der Zertifizierung (QAL1) wird u.a. überprüft, ob die Emissionsmeseinrichtungen die in den jeweiligen rechtlichen Regelungen festgelegten Anforderungen an die Messunsicherheit einhalten. Für Quecksilber beträgt diese gemäß 13. BImSchV 40 % vom gültigen Tagesgrenzwert ($30 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Die Gesamtunsicherheit, die sich aus der Eignungsprüfung nach der DIN EN 15267 ergibt, sollte um mindestens 25 % unter der maximal zulässigen Unsicherheit, die in der 13. BImSchV gefordert wird, liegen. Dies entspricht bei einer aktuellen Emissionsbegrenzung für den Tagesmittelwert von $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ maximal $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Tabelle 2: Nach DIN EN 15267 zertifizierte Emissionsmeseinrichtungen

Typ	Hersteller	Reduktionseinheit	Zertifizierungsbereich	Wartungsintervall	Messunsicherheit aus der Eignungsprüfung
MERCEM 300Z	Sick AG	Hochtemperaturkonvertierung	0 - $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$	3 Monate	2,3% ^{*)}
Mercury Freedom System	Thermo Fisher Scientific	Thermokatalysator	0 - $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$	4 Wochen	7,6% ^{*)}
SM-4	Mercury Instruments GmbH	Thermokatalysator	0 - $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$	4 Wochen	8,4% ^{*)}
HM 1400 TRX	Durag GmbH	Thermokatalysator	0 - $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$	3 Monate	8,4% ^{*)}
HM 1400 TRX2	Durag GmbH	Thermokatalysator	0 - $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$	4 Wochen / <i>(Wartungsintervallverlängerung 3 Monate)</i>	17,2% ^{**)}
CMM	Gasmet Technologies Oy	Thermokatalysator	0 - $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$	3 Monate	15,6% ^{**)}
AR 602ZNIHj	Opis AB	Thermokatalysator	0 - $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$	2 Monate	10,7% ^{*)}

^{*)} bezogen auf einen Grenzwert von $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$

^{**)} bezogen auf einen Grenzwert von $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$

^{***)} bezogen auf einen Grenzwert von $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Im Rahmen der Eignungsprüfung wird der Zertifizierungsbereich einer Emissionsmeseinrichtung festgelegt. Der Zertifizierungsbereich ist der Bereich, indem das AMS geprüft und hinsichtlich der Einhaltung der relevanten Mindestanforderungen der DIN EN 15267 zertifiziert wird. An Anlagen der 13. BImSchV beträgt dieser den Bereich von Null bis maximal dem 2,5-fachen des Tagesgrenzwertes.

Bedingt durch die nationale Umsetzung des BVT-Merkblattes, sind aktuell die Gerätehersteller aufgefordert neue Messeinrichtungen zu entwickeln und zertifizieren zu lassen, die die Mindestanforderungen der DIN EN 15267 erfüllen und Quecksilberkonzentration in einem Bereich von $\leq 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Zertifizierungsbereich $\leq 25 \mu\text{g}/\text{m}^3$) quantitativ sicher messtechnisch überwachen können.

4. Bestimmung der Quecksilberemissionen nach DIN EN 13211

Die gesetzlich geforderte Ermittlung der Quecksilberemissionen mittels diskontinuierlichen Einzelmessungen oder im Rahmen der jährlichen Funktionsprüfung und Kalibrierung durchzuführenden Vergleichsmessungen erfolgt mit dem in der DIN EN 13211 vom Juni 2001 beschriebenen Standardreferenzmessverfahren. Dieses Verfahren wurde für die Bestimmung der Gesamtquecksilberkonzentration in Rauchgasen einer Müllverbrennungsanlage für einen Konzentrationsbereich von $0,0001 \text{ mg/m}^3$ bis $0,5 \text{ mg/m}^3$ validiert, ist aber auch für andere Einsatzbereiche anwendbar.

In Abhängigkeit vom Prozess und des Aufbaus von Rauchgasreinigungseinrichtungen liegt Quecksilber in Rauchgasen von Verbrennungsprozessen in der Regel gasförmig vor, kann aber auch (z.B. beim Einsatz von Nassabscheidern) an Partikel oder an Tröpfchen gebunden vorliegen. Für die Bestimmung der Gesamtquecksilberkonzentration ist daher eine isokinetische Teilstromentnahme aus dem Rauchgas und die Abscheidung des partikelförmigen Quecksilbers erforderlich. Die Absorption des filtergängigen Quecksilbers erfolgt im Anschluss in zwei hintereinander geschaltete, mit jeweils 30ml 2%tiger $\text{KMnO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$ Lösung gefüllte Absorber (z.B. Frittenwaschflaschen).

Als Absorptionslösung können wahlweise:

- Kaliumpermanganat – Schwefelsäure-Lösung
- Kaliumdichromat – Salpetersäure-Lösung

eingesetzt werden.

Wenn die Summe des Anteils an partikelförmigen Quecksilber (Staub oder Tröpfchen) kleiner als $1 \mu\text{g/m}^3$ ist, kann auf die isokinetische Probenahme und Bestimmung des partikelförmigen Anteils verzichtet werden.



Bild 3: Manuelle Quecksilbermessung nach DIN EN 13211

Standardreferenzmessverfahren müssen die vorgegebenen Anforderungen an die Nachweisgrenze (< 10 % der zu überwachenden Emissionsbegrenzung für den Tagesmittelwert) erfüllen, wobei die Nachweisgrenze den Wert angibt, bis zu dem die Messgröße qualitativ noch zuverlässig nachgewiesen werden kann.

In nachfolgender Tabelle ist die ermittelte Nachweisgrenze des derzeit anzuwendenden Standardreferenzmessverfahrens der DIN EN 13211 mit der geforderten Nachweisgrenze an das Standardreferenzmessverfahren aufgeführt.

Tabelle 3: Verfahrenskenngrößen der DIN EN 13211

	DIN EN 13211	geforderte Nachweisgrenze (10% vom TGW)
Nachweisgrenze	2,6 µg/m ³	3,0 µg/m ³

Die aufgeführten Verfahrenskenngrößen zeigen, dass das aktuelle Standardreferenzmessverfahren geeignet ist und die Anforderungen hinsichtlich der Nachweisgrenze in Bezug auf den aktuell gültigen Grenzwert erfüllt wird. Die Nachweisgrenze hängt sehr stark von der Qualität der verwendeten Absorptionslösung, dem Probengasvolumen und dem Analyseverfahren ab. Da sich der Stand der Technik und die Qualität in den letzten Jahren verbessert hat, können heutzutage deutlich bessere Nachweisgrenzen als die in der DIN EN 13211 genannte erzielt werden. Daher ist eine erneute Bestimmung der Verfahrenskenngrößen für das aktuell gültige Standardreferenzmessverfahren durchaus empfehlenswert. Aktuell kann man aber davon ausgehen, dass das Verfahren nach DIN EN 13211 im Hinblick auf verschärfte Emissionsgrenzwerte die Anforderungen an die Nachweisgrenze erfüllt und somit auch, unter Berücksichtigung einer höheren Messunsicherheit, zukünftig als Standardreferenzmessverfahren als geeignet erscheint.

5. Alternative Möglichkeiten der Quecksilbermessung

Eine alternative Möglichkeit stellt die Langzeitprobenahme (Sorbent Trap Methode) von Quecksilber dar. Dabei erfolgt eine Teilstromentnahme und Sammlung des ionisierten und elementaren Quecksilbers auf zwei unmittelbar im Rauchgaskanal, parallel angeordneten Adsorptionsröhrchen.



Bild 4: Langzeitprobenahme von Quecksilber⁴

Die Adsorptionsröhrchen sind zum Zweck der Qualitätssicherung in drei Sektionen eingeteilt:

- Sektion 1: Probenahme-Sektion
- Sektion 2: Durchbruch-Sektion
- Sektion 3: Spike-Sektion

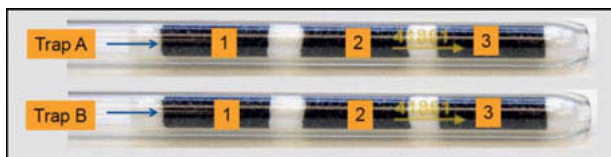


Bild 5: Aufbau der Sorbent Trap Röhrchen⁵

Durch die direkte Anordnung der Adsorptionsröhrchen im Rauchgaskanal können im Gegensatz zu Emissionsmesseinrichtungen mit Probenahmeleitungen Verluste in den Leitungen quasi ausgeschlossen werden.

Quelle: Paul Gothe GmbH; Quecksilber-MTP-Sonde nach US EPA PS 12B und 30B; <https://www.paulgothe.com/Quecksilber-MTP-Sonde>; 17.02.2018

Quelle: Verein Deutscher Zementwerke e.V.; Erste Messergebnisse mit der Sorbent Trap-Methode im Vergleich zum Standardreferenzverfahren nach DIN EN 13211 sowie MERCEM 300Z; 21.09.2017

Auch bei diesem Verfahren kommt der Qualitätssicherung der ermittelten Messdaten eine große Bedeutung zu. So ist z.B. eine Messung nur gültig, wenn die Mindestanforderungen an den Durchbruch, an die Doppelbestimmung und die Wiederfindung eingehalten werden.

Mit diesem Verfahren können Kurzzeit- und Langzeitprobenahmen von wenigen Stunden bis hin zu mehreren Tagen umgesetzt werden. Darüber hinaus besitzt dieses Verfahren im Vergleich zum Standardreferenzmessverfahren je nach Anwendungsbereich eine deutlich bessere Nachweis- und Bestimmungsgrenze. Der Grund hierfür liegt, dass bei der Sorbent Trap Methode im Gegensatz zum Verfahren nach DIN EN 13211, wo nur ein Aliquot der Gesamtprobe analysiert wird, das gesamte Adsorptionsröhrchen analysiert wird. Ein Einsatz als zukünftiges Standardreferenzmessverfahren im Hinblick auf abgesenkte Emissionsgrenzwerte ist nach Vorlage von ausreichenden, belastbaren Vergleichs- bzw. Validierungsmessungen durchaus denkbar.

Allerdings liefert dieses Verfahren kein kontinuierliches Signal und stellt somit aufgrund der aktuell gesetzlich geforderten Überwachung von Halbstunden- und Tagesmittelwerten bisher keine Alternative zur kontinuierlichen Überwachung von Emissionsgrenzwerten und zur Steuerung von Rauchgasreinigungsanlagen dar.

Entsprechend dem BVT-Merkblatt „Großfeuerungsanlagen“ muss zukünftig die Überwachung der Quecksilberemissionen an Anlagen die Stein- oder Braunkohle als Brennstoff einsetzen und eine Feuerungswärmeleistung von ≥ 300 MW haben nicht ausschließlich mit einer kontinuierlichen Emissionsmeseinrichtung erfolgen. Sondern als weitere Möglichkeit wird erstmals eine kontinuierliche Probenahme mit häufigen Analysen zeitintegrierter Proben (Langzeitprobenahme) aufgeführt. Ob und wie dies bei der nationalen Umsetzung erhalten bleibt, bleibt jedoch abzuwarten.

Literaturverzeichnis

- [1] Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates über Industrieemissionen (integrierte Vermeidung und Verminderung der Umweltverschmutzung) (Neufassung) 17.12.2010 DE, Amtsblatt der Europäischen Union ABI. L 334, S. 17.
- [2] Durchführungsbeschluss (EU) 2017/1442 der Kommission vom 31. Juli 2017 über Schlussfolgerungen zu den besten verfügbaren Techniken (BVT) gemäß Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates für Großfeuerungsanlagen, Amtsblatt der Europäischen Union ABI. L 212/1 vom 17.08.2018
- [3] Dreizehnte Verordnung 13. BImSchV Dreizehnte Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Großfeuerungs-, Gasturbinen- und Verbrennungsmotoranlagen – 13. BImSchV) vom 02. Mai 2013 (BGBl. I S. 1021, 1023)
- [4] DIN EN 14181; Emissionen aus stationären Quellen – Qualitätssicherung für automatische Messeinrichtungen; Februar 2015
- [5] VDI 3950; Emissionen aus stationären Quellen – Qualitätssicherung für automatische Mess- und elektronische Auswerteeinrichtungen; Juni 2018
- [6] DIN EN 15267-3; Zertifizierung von automatischen Messeinrichtungen – Teil 3: Mindestanforderungen und Prüfprozeduren für automatische Messeinrichtungen zur Überwachung von Emissionen aus stationären Quellen; März 2008
- [7] DIN EN 13211; Manuelles Verfahren zur Bestimmung der Gesamtquecksilberkonzentration; Juni 2001
- [8] Zertifizierte Mess- und Auswerteeinrichtungen nach DIN EN 15267; <http://www.qal1.de/de/komponenten/hg.htm>; 18.08.2019
- [9] Verein Deutscher Zementwerke e.V.; Erste Messergebnisse mit der Sorbent Trap-Methode im Vergleich zum Standardreferenzverfahren nach DIN EN 13211 sowie MERCEM 300Z; 21.09.2017
- [10] Sick AG; Emissionsmesstechnik – Technologien und Lösungen aus einer Hand; https://www.sick.com/%2Fmedia%2Fdocs%2F5%2F45%2F945%2FSpecial_informatio_n_Complete_Emission_Measurement_Technology_from_SICK_de_IM0045945.PDF; 17.02.2018
- [11] Paul Gothe GmbH; Quecksilber-MTP-Sonde nach US EPA PS 12B und 30B; <https://www.paulgothe.com/Quecksilber-MTP-Sonde>; 17.02.2018

Messen von Quecksilberemissionen mit Sorbent Traps im Vergleich zum Standardreferenzverfahren nach DIN EN 13211

Dr.-Ing. **Ute Zunzer**, Umweltmessstelle FIT GmbH, Düsseldorf;
M.Sc. **Johannes Pfungsten**, VDZ GmbH, Düsseldorf

Vor dem Hintergrund sehr niedriger Grenzwerte für Quecksilberemissionen ist eine nachweisstarke und zuverlässige Analytik notwendig, um die Einhaltung der Grenzwerte zu belegen. Im Allgemeinen sollte die Nachweisgrenze maximal 10 % des Grenzwertes betragen, damit das Ergebnis zur Konformitätsbewertung herangezogen werden kann. Unter der Nachweisgrenze versteht man die Konzentration, ab der eine Substanz qualitativ nachgewiesen werden kann. Bei einem Grenzwert von $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ darf die Nachweisgrenze demnach nicht über $3,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen.

Im europäischen Referenzverfahren nach DIN EN 13211 wird eine Nachweisgrenze von $2,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ angegeben, sodass diese Bedingung nur sehr knapp eingehalten wird. Um die Belastbarkeit der Ergebnisse zu erhöhen und die Einhaltung auch bei zukünftig ggf. sinkenden Grenzwerten nachweisen zu können, sind weitere Entwicklungen und ggf. neue Verfahren notwendig. Ein viel versprechendes Verfahren, das auf der Probenahme mit Quecksilbersorbent-Traps, sogenannten „Sorbent-Traps“, beruht, wird aktuell auf seine Anwendbarkeit untersucht.

In der Praxis werden Quecksilberemissionen in der Industrie kontinuierlich überwacht. Hierzu muss neben elementarem Quecksilber Hg(0) auch die oxidierte Form Hg(II) erfasst werden. Da die für die kontinuierliche Überwachung verfügbaren UV-Photometer Quecksilber nur in elementarer Form detektieren, ist eine gut funktionierende Reduktionseinheit notwendig, die regelmäßig und sorgfältig geprüft werden muss. Die Kalibrierung dieser Geräte nach DIN EN 14181 erfolgt unter Verwendung des europäischen Referenzverfahrens nach DIN EN 13211.

Bei diesem Verfahren wird das Quecksilber in einer oxidierenden Absorptionslösung aufgefangen und anschließend mittels Kaltdampf-AAS (Atomabsorptionsspektrometrie) analysiert.

Hierbei wird ein relativ kleines Teilvolumen der Absorptionslösung analysiert, sodass sehr geringe absolute Quecksilbergehalte detektiert werden müssen. Dadurch sind sehr niedrige Nachweis- und Bestimmungsgrenzen erforderlich, um die oben genannten Anforderungen zu erfüllen.

Bei Verwendung der Sorbent-Traps wird das Quecksilber an iodierter Aktivkohle adsorbiert. Die Probenahme kann hierbei über kurze Zeiträume wie z. B. 30 min. erfolgen, aber auch Langzeitprobenahmen sollen mit dieser Methode möglich sein. Im Anschluss wird das gesamte Quecksilber thermisch desorbiert und direkt in einer AAS-Messzelle analysiert. Da nicht nur eine Teilprobe, sondern das gesamte Sorptionsmittel in der Analyse betrachtet wird, sind deutlich niedrigere Nachweisgrenzen in einer Größenordnung von $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu erwarten.

Die Anwendbarkeit des Verfahrens wird aktuell im Vergleich zu der Referenzmethode DIN EN 13211 untersucht. Es wurde zudem auf europäischer Ebene eine Technische Spezifikation zum „Sorbent-Trap“-Verfahren erarbeitet. In den USA wird dieses Verfahren bereits als Referenzmethode für Quecksilberkalibrierungen (US EPA 30B) sowie als quasi-kontinuierliches Verfahren zur Überwachung niedriger Emissionsgrenzwerte (US EPA 12B) eingesetzt.

Die Sorbent-Traps bestehen aus mindestens zwei voneinander getrennten Schichten. Die erste Schicht dient zur Absorption des zu messenden Quecksilbers. Mit der zweiten Schicht wird nachgewiesen, dass das gesamte Quecksilber in der ersten Schicht sorbiert wurde und kein Durchbruch vorliegt. Zu Qualitätskontrollzwecken können Sorbent-Traps mit einer dritten Schicht verwendet werden, in der eine bekannte Konzentration an Quecksilber vorliegt, sodass einerseits die analytische Bestimmung geprüft und andererseits Verluste während der Probenahme ausgeschlossen werden können. Die Probenahme erfolgt parallel in zwei Sorbent-Traps, um eine Doppelbestimmung zu erreichen. Dies ist beispielhaft in Bild 1 gezeigt.

Da die Analyseneinheit für Quecksilber mobil ist, kann das Verfahren – sofern keine kontinuierlich arbeitende Quecksilbermessung betrieben wird - auch „vor Ort“ eingesetzt werden, sodass die Ergebnisse unmittelbar vorliegen. Dies ermöglicht auch Untersuchungen zu Prozessoptimierungen und deren Auswirkung auf die Emission von Quecksilber.

Erste Ergebnisse zum Vergleich des Referenzverfahrens und der Sorbent-Trap-Methode liegen bereits vor und sind in Bild 2 dargestellt. Die Ergebnisse der beiden Methoden liegen in

der gleichen Größenordnung, jedoch ist die Anzahl der Vergleichsmessungen noch sehr gering, sodass die Ergebnisse lediglich als Vorausschau zu verstehen sind. Weitere Vergleichsmessungen werden aktuell durchgeführt, um einen belastbaren Vergleich der Methoden zu erhalten.

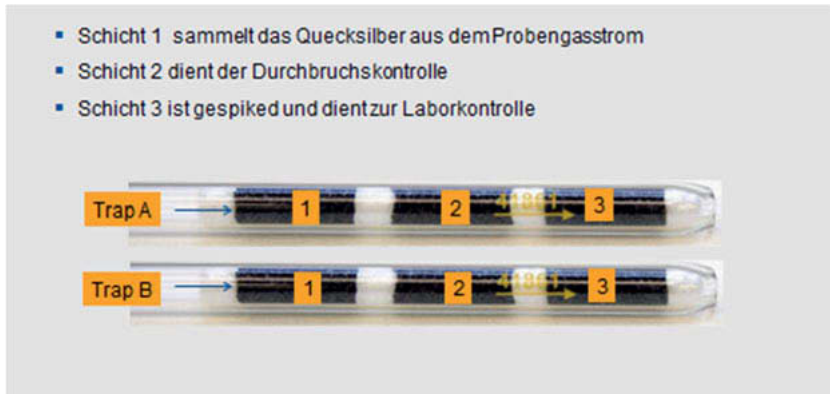


Bild 1: Aufbau der Sorbent-Trap-Röhrchen

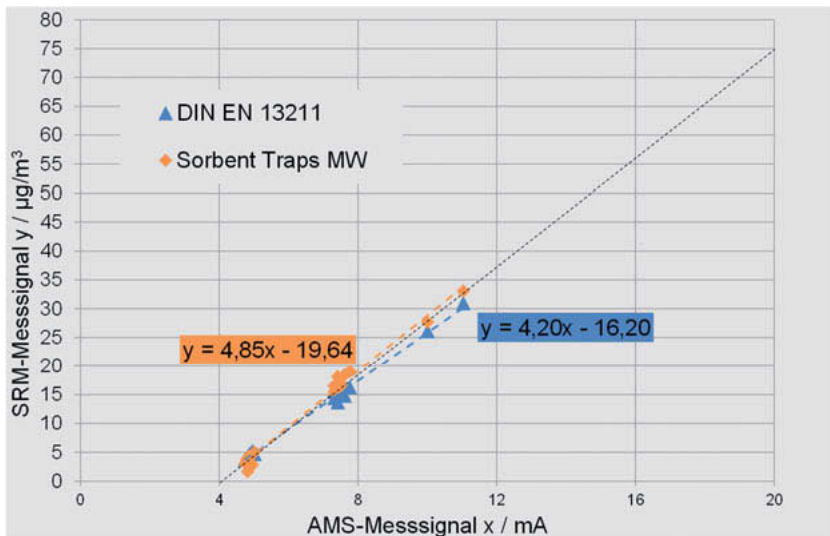


Bild 2: Vergleich der Sorbent-Trap-Methode mit Messergebnissen nach DIN EN 13211 bei einer Kalibrierung

Regelung und Optimierung der Rauchgasreinigung durch anlagenbezogene Messungen

Dr.-Ing. **Diethelm Walter**, Dipl.-Ing. **Martin Sindram**,
Lhoist Germany/Rheinkalk GmbH, Wülfrath

Kurzfassung

Die Entwicklung der Rauchgasreinigung ist gekennzeichnet durch stetig steigende Anforderungen. Dies gilt sowohl für die darzustellenden Abscheidegrade als auch für die Anzahl der relevanten Gaskomponenten. Hinzu kommt ein starker Kostendruck auch für den Betrieb der Rauchgasreinigung. Mit steigender Tendenz werden hier trockene Prozesse eingesetzt. In diesen werden pulverförmige Sorbentien zur Adsorption und Absorption verwendet. Im Einzelnen sind dies Kalkhydrat, Natriumhydrogencarbonat und Aktivkohle, Aktivkoks oder Mineralische Sorbentien. Die Verwendung dieser Sorbentien muß sowohl Kosten- als auch Mengenoptimiert erfolgen.

Im Folgenden werden Konzepte vorgestellt wie durch Nutzung von Gasmessungen die Abscheidung in einer Rauchgasreinigung erhöht, auf das Auftreten bisher nicht relevanter Gaskomponenten reagiert, aber auch der Einsatz der notwendigen Betriebsmittel optimiert werden kann.

Folgende Themen werden an Hand von Beispielen aus der Praxis behandelt:

- Regelung trockener Rauchgasreinigungsanlagen durch Rein- und Rohgasmessungen von HCl und SO₂.
- HF Peaks in MVA und deren Erkennung und Abscheidung.
- Nutzung von kontinuierlichen Hg-Gasmessungen zur gezielten Abscheidung von Hg-Spitzen.
- Abstimmung mehrstufigen Rauchgasreinigungen zur Optimierung des Betriebes.

Die Nutzung der Messung emissionsrelevanter Gaskomponenten zur Regelung im Betrieb ist in neu errichteten Anlagen aber auch zur Verbesserung existierender Anlagen sinnvoll. Die Ausnutzung der verwendeten Betriebsmittel und deren Einsatz können hierdurch gezielt verbessert werden.

1. Einleitung:

Aufgrund hoher Industrialisierung und Bevölkerungsdichte vor allem in den Ballungsgebieten wurden in Deutschland schon relativ früh Anstrengungen unternommen, den Ausstoß von Luftschadstoffen („Emissionen“) aus industriellen Produktionsanlagen zu vermindern, um den Eintrag dieser Schadstoffe in die Umgebung („Immissionen“) zu minimieren. So erschien ein erster Vorläufer der heutigen TA Luft bereits im Jahr 1964 und wurde in den darauffolgenden Jahren regelmäßig aktualisiert und ergänzt (1974, 1983, 1988, 2002, Novellierung im Gange). In den 70er und vor allem 80er Jahren kamen eigene Emissionsverordnungen für Müllverbrennungsanlagen, Kraftwerke und Industrieprozesse hinzu und wurden im Laufe der Jahre ebenfalls aktualisiert (z.B. 17. BImSchV: 1990, 2003, 2013 / Anpassung IED). Kennzeichnend für die Mehrzahl der Aktualisierungen war die Aufnahme von Grenzwerten für ‚neue‘ Schadstoffe sowie die kontinuierliche Absenkung bestehender Grenzwerte; in Tabelle 1 ist diese Entwicklung beispielhaft für Müllverbrennungsanlagen dargestellt (17. BImSchV).

Tabelle 1: Entwicklung der Grenzwerte Thermischer Abfallverbrennungsanlagen

Grenzwert (TMW) [mg/Nm ³]	TA Luft 1974	TA Luft 1986	17. BImSchV. (1990/2003)	17. BImSchV (Änderungen 2013 Anpassung IED)
Gesamtstaub	100	30	10	10
C _{gesamt}	-	20	10	10
HCl	100	50	10	10
HF	5	2	1	1
SO _x (als SO ₂)	-	100	50	50
NO _x	-	500	200	150 (100 ¹)
NH ₃	-	-	-	10
„Spurenelemente“	Hg, Cd, As, Ni, Pb, Cu, Cr, V : Σ: 20	Hg, Cd, Ti : Σ: 0,2	Cd, Ti : Σ: 0,05	Cd, Ti : Σ: 0,05
		Sb, Pb, Cr, Cu, Mn, Pt, Pd, Rh, V, Sn, CN: Σ: 0,5	Sb, As, Pb, Cr, Cu, Mn, Ni, V, Sn: Σ: 0,5	Sb, As, Pb, Cr, Cu, Mn, Ni, V, Sn: Σ: 0,5
Quecksilber Hg			0,05	0,03 (0,01 ²)
PCDD/PCDF [ng/Nm ³ TEQ]			0,1	

(1): für Neuanlagen

(2): Jahresmittelwert

Die relevanten Luftschadstoffe lassen sich dabei vereinfacht in folgende Gruppen einteilen:

- **Partikelförmige Emissionen** (Staub, Feinstaub); die Reinigung erfolgt durch Filtration, meist an Gewebefiltern oder Elektrostatischen Abscheidern (E-Filter)
- **Saure Schadgaskomponenten** (v.a. Schwefeldioxid SO_2 / Schwefeltrioxid SO_3 , Salzsäure HCl , Fluorwasserstoff HF); die Abreinigung erfolgt durch Neutralisation bzw. Chemisorption (Absorption an der Oberfläche mit anschließender Neutralisation) unter Bildung der entsprechenden Reaktionssalze. Hierfür werden meistens Calcium-basierte Sorbentien (Kalksteintmehl CaCO_3 , Branntkalk CaO , Kalkhydrat Ca(OH)_2) aber auch Natrium-basierte Verbindungen (Natronlauge NaOH , Natriumhydrogencarbonat NaHCO_3 , Natriumcarbonat/Soda Na_2CO_3) verwendet.
- **Ökotoxische Spurenelemente**; hierzu zählen organische Spurenstoffe (z.B. Dioxine/Furane) und (v.a. leichtflüchtige) Schwermetalle (z.B. Quecksilber); die Abscheidung erfolgt durch physikalische Adsorption an oberflächenreichen Materialien wie Aktivkohle, Aktivkoks oder bestimmten mineralischen Stoffen (z.B. Zeolithe oder spezielle Schichtminerale).
- **Klimarelevante Bestandteile**; z.B. NO_x ; die Stickoxid-Minderung wird durch sog. SNCR- oder SCR-Verfahren (Reduktion von NO_x zu N_2 durch Eindüsung von NH_3) realisiert. Zur Zeit wird daran gearbeitet, das ebenfalls klimarelevante CO_2 durch sog. CCS- und CCU-Verfahren (Carbon Capture and Storage, Carbon Capture and Utilization) abzuscheiden und in verflüssigter Form untertägig zu lagern bzw. ‚wiederzuverwerten‘ (z.B. Herstellung von Methan mit Hilfe von solar erzeugtem H_2 ; Produktion synthetischer Kohlenwasserstoffe als ‚Grundbaustein‘ für Kunststoffe oder als Kraftstoff in Form von ‚e-Gas‘ oder ‚e-Diesel‘).

Die Abscheidung der verschiedenen Luftschadstoffe erfolgt mit Hilfe von nassen (z.B. Gaswäscher mit Kalksteintmehl oder Natronlauge), quasitrockenen (z.B. Sprühabsorber mit Kalkmilch) oder trockene Rauchgasreinigungsverfahren (mit Kalkhydrat oder Natriumhydrogencarbonat).

In den letzten Jahren haben sich dabei die trockenen Verfahren in vielen Bereichen durchgesetzt, da sie dem Verwender entscheidende Vorteile bieten [1]. Neben der sicheren Einhaltung der vorgeschriebenen Grenzwerte und der hohen Flexibilität überzeugen sie durch

- geringe Investitions- und Betriebskosten
- geringer Personalaufwand für Betrieb und Instandhaltung
- einfache Konzeption und platzsparende Bauweise
- trockene, pulverförmige Reaktionsprodukte.

Die Emissionsgrenzwerte der verschiedenen Schadstoffe werden in Deutschland systematisch kontrolliert und hoheitlich überwacht. Emissionsmessungen bilden hierbei das zentrale

Element für die Überwachung und Kontrolle der Einhaltung der Grenzwerte. Hierzu ist es notwendig, geeignete Messgeräte zu betreiben, die nicht nur den jeweiligen Schadstoff sondern auch zusätzliche, zur genauen Konzentrationsberechnung notwendige Parameter (z.B. Volumenstrom, Sauerstoff-Gehalt, Temperatur) erfassen. Es ist daher naheliegend und zweckmäßig, diese Messgeräte und deren gemessene Parameter auch zur Regelung der Rauchgasreinigung und zur Dosierung der notwendigen Adsorbentien einzusetzen.

Nach einer kurzen Einführung in die trockene Rauchgasreinigung sowie der dabei eingesetzten Sorbentien und deren Reaktionsmechanismen werden im Folgenden Konzepte vorgestellt, wie durch Nutzung von Gasmessungen die Abscheidung in trockenen Rauchgasreinigungsanlagen erhöht, auf das Auftreten bisher nicht relevanter Gaskomponenten reagiert, aber auch der Einsatz der notwendigen Betriebsmittel optimiert werden kann.

1. Verfahren zur Trockenen Rauchgasreinigung

Trockene Rauchgasreinigungsverfahren werden vor allem zur Abscheidung saurer Schadgas-komponenten sowie ökotoxischer Spurenelemente eingesetzt. Prinzipiell handelt es sich hier immer um das gleiche Arbeitsprinzip:

- Schadstoffe werden mit Hilfe pulverförmiger Sorbentien von der Gasphase in einen feststoffgebundenen Zustand überführt.

Dabei neutralisieren alkalische Additive die gasförmigen Säurebildner (v.a. HF, HCl, SO_x) zu pulverförmigen Reaktionsprodukten; gleichzeitig lagern sich gasförmige Spurenelemente (z.B. Dioxine oder Hg) ohne stoffliche Veränderung an der Oberfläche des Adsorbens (Aktivkohle, Aktivkoks, spez. Minerale) an. In beiden Fällen dient das Filtermedium zur Gas-Feststoff-Trennung und bildet an seiner Oberfläche den Reaktionsraum; die Einbindung der Schadstoffe erfolgt sowohl in der Flugphase als auch in der Filterschicht am Filtermedium.

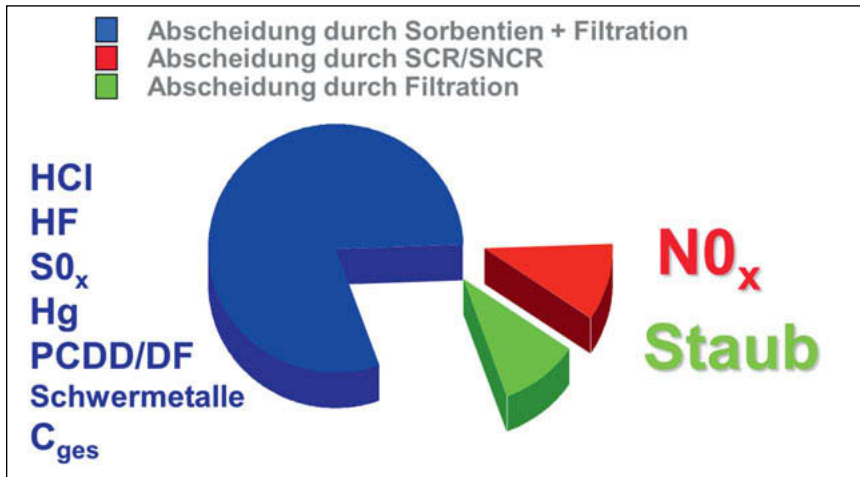


Bild 1: Abscheidung emissionsrelevanter Schadstoffe in trockenen Rauchgasreinigungsanlagen

2.1. Additive zur Abscheidung ökotoxischer Spurenelemente

Ökotoxische organische oder metallische Spurenelemente werden in der Regel mit Hilfe der Adsorption aus dem Abgas entfernt; diese Adsorptionsprozesse werden meist im Temperaturbereich von ca. 80 bis etwa 180°C durchgeführt; dabei häufig verwendete Adsorbentien sind Aktivkohle (AK), Aktivkoks / Herdofenkoks (HOK[®]) oder oberflächenreiche mineralische Substanzen.

Für Einsatzfälle, in denen sowohl Ad- als auch Absorption gefordert ist, werden speziell auf die Anforderung angepasste Mischprodukte auf Basis von hochoberflächigem Kalkhydrat (z.B. Sorbocal[®] SP), herkömmlichem Kalkhydrat und Kalksteinmehl oder Trass geliefert. Die für diesen Verwendungszweck von vielen Herstellern angebotenen Mischprodukte bieten im Vergleich zu reinem Kohlenstoff eine höhere inhärente Sicherheit. Sie lassen sich ohne zusätzlichen apparativen und personellen Aufwand bei Bedarf einsetzen. Neue Entwicklungen stellen hier nicht brennbare mineralische Sorbentien wie z.B. Minsorb[®] oder die Verwendung von Tonmineralien dar.

Aufgrund der sehr geringen Konzentration der ökotoxischen Spurenelemente ($\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ bzw. ng/Nm^3) werden die oberflächenreichen Adsorbentien volumenbezogen dosiert; es wird eine

vom zu behandelten Abgasvolumen abhängige, in der Regel konstante Dosiermenge zugegeben, um eine ausreichende statistische Trefferwahrscheinlichkeit für eine sichere Abscheidung darzustellen; je nach abzuscheidender Komponente, der Art des eingesetzten Adsorbens sowie den spezifischen Prozeßbedingungen liegen diese spezifischen Dosieraten bei Einsatz in Verbindung mit Gewebefiltern üblicherweise im Bereich von etwa 50 bis 300 mg/Nm³ Abgas [2]

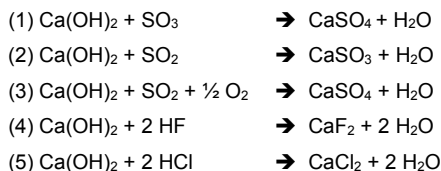
2.2. Additive zur Abscheidung saurer Gaskomponenten

Zur Abscheidung gasförmiger Säurebildner (v.a. HF, HCl, SO_x) in trockenen Rauchgasreinigungsanlagen wird vor allem Kalkhydrat Ca(OH)₂ oder auch Natriumhydrogencarbonat NaHCO₃ verwendet.

Die Effizienz der Abscheidung saurer Schadgaskomponenten (in der Regel der Verbrauch an Sorbens zur Erreichung des geforderten Abscheidegrades) ist von einer Vielzahl von Einflussfaktoren abhängig; neben einer Reihe prozeßspezifischer Parameter wie Rauchgastemperatur und – feuchte, Ausgangskonzentration des abzuscheidenden Stoffes und erforderlicher Abscheidegrad, Verweilzeit des Additivs im Rauchgas, Durchmischung Additiv/Rauchgas spielen darüber hinaus spezifische Stoffeigenschaften des eingesetzten Additives eine wichtige Rolle; hierzu zählen die Reaktionsaffinität gegenüber der abzuscheidenden Komponente, die chemische Reinheit oder auch physikalische Parameter wie Korngrößenverteilung oder spezifische Oberfläche.

2.2.1 Calcium-basierte Sorbentien

Bei Einsatz von Kalkhydrat Ca(OH)₂ werden die im Abgas enthaltenen gasförmigen Säurebildner zunächst an der Oberfläche der stark basischen Ca(OH)₂-Partikel absorbiert und anschließend unter Bildung der entsprechenden festen Calcium-Salze neutralisiert; vereinfacht laufen dabei folgende Brutto-Reaktionen ab:



Darüber hinaus ist es möglich, auch andere saure Gasbestandteile, wie z.B. HBr oder gasförmige Selenverbindungen (z.B. SeO₂) abzuscheiden.

In gewissen Umfang reagiert $\text{Ca}(\text{OH})_2$ zusätzlich mit CO_2 unter Bildung von CaCO_3 ; diese Nebenreaktion (Carbonatisierung) läuft nach folgender Gleichung ab:



Bei einer (theoretischen) Stöchiometrie von 1,0 werden zur Neutralisation von 1 kg SO_2 gemäß Gleichung (2) 1,16 kg $\text{Ca}(\text{OH})_2$ benötigt, für die Neutralisation von 1 kg HCl sind nach Gleichung (5) 1,01 kg $\text{Ca}(\text{OH})_2$ notwendig.

Durch die im allgemeinen schnell ablaufende Absorption saurer Gasbestandteile und der anschließenden Ca-Salzbildung werden die $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -Partikeloberflächen belegt; die weitere Reaktionsgeschwindigkeit wird in der Praxis durch die Diffusion der zu absorbierenden gasförmigen Komponenten durch diese Grenzschicht bestimmt; unter den in quasitrockenen und trockenen Rauchgasreinigungsverfahren vorliegenden Bedingungen verbleibt so ein noch reaktionsfähiger $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -Kern. Das eingesetzte $\text{Ca}(\text{OH})_2$ wird daher nicht vollständig umgesetzt, so dass für die Erreichung der geforderten Abscheideleistung immer ein gewisser Sorbensüberschuß notwendig ist. Je nach Konzentration und Art der abzuscheidenden sauren Gasbestandteile (Reaktivitätsreihenfolge des $\text{Ca}(\text{OH})_2$), den Reaktionsbedingungen (Einfluß von Temperatur und Feuchte des Abgases, Durchmischung Sorbens/Abgas, Verweilzeit, Rezirkulationsrate, geforderter Abscheidegrad) und Eigenschaften des eingesetzten Kalkhydrates ($\text{Ca}(\text{OH})_2$ -Gehalt, Partikelgröße, spezif. Oberfläche, Porosität) liegt dieser Überschuß in den meisten Fällen im Bereich des 1,6 bis über 3-fachen der stöchiometrisch notwendigen Menge; in thermischen Abfallverbrennungsanlagen typischerweise im Bereich 1,6 – 2,5.

Die Reaktionen (1) – (6) laufen gemäß der Reaktionsaffinität des $\text{Ca}(\text{OH})_2$ zu den verschiedenen Komponenten ($\text{SO}_3 > \text{HF} > \text{HCl} \gg \text{SO}_2 \gg \text{CO}_2$) ab; diese Reaktionsreihenfolge folgt der Stärke des jeweiligen Säurebildners und ‚harmoniert‘ mit den Grenzwerten der verschiedenen sauren Gaskomponenten (Prinzip: Je stärker die Säure, desto geringer die zulässige Emission; z.B. 17. BImSchV: HF: 1 mg/Nm³; HCl: 10 mg/Nm³; SO₂: 50 mg/Nm³, jeweils Tagesmittelwerte).

In der überwiegenden Anzahl von Anwendungsfällen müssen HCl oder HF mit dem höchsten Abscheidegrad neutralisiert werden; durch die darauf ‚abgestimmte‘ Reaktivität sind in der Praxis Rauchgasreinigungsprozesse mit Kalkhydrat einfach in der Regelung; das Sorbens wird häufig nur nach einer Komponente, z.B. nach HCl-Reingas-Sollwert geregelt zudosiert. Ein Wechsel der Leitgröße z.B. auf SO_2 ist in modernen Regelkonzepten vorgesehen. Hierdurch wird ein übermäßiger Verbrauch durch nicht notwendige Abscheidung weit unter den geltenden Grenzwert (z.B. von SO_2 bei Mitverbrennung von Ersatzbrennstoffen oder in Prozessen wie der Glasherstellung) vermieden.

In quasitrockenen und trockenen Rauchgasreinigungsverfahren, die im Temperaturbereich von 65 bis > 180 °C arbeiten, werden die Neutralisationsreaktionen (1) – (6) von hoher Rauchgasfeuchte und niedriger Rauchgastemperatur begünstigt; im Temperaturbereich von 350 – 400 °C (in Kombination mit E-Filtern, z.B. in der Glasherstellung) begünstigt die thermische Aktivierung des $\text{Ca}(\text{OH})_2$ und die dadurch beschleunigte Reaktion die Neutralisation.

Neben der Gas/Feststoff- Kontaktwahrscheinlichkeit sowie der Reaktionsaffinität ist die Feststoff-Oberfläche des eingesetzten Kalkhydrates ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) entscheidend für die Abscheidung saurer Gaskomponenten.

Durch die Weiterentwicklung von normalen Kalkhydraten hinsichtlich der physikalischen Parameter

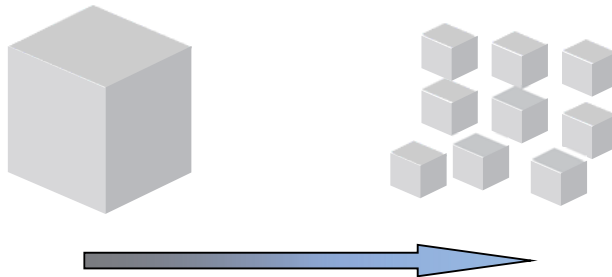
- Partikelgrößenverteilung
- Porengröße und -volumen

kann die Spezifische Oberfläche entscheidend erhöht werden; dadurch lassen sich signifikante Verbesserungen im Abscheidevermögen sowie eine Minimierung des Reststoffanfalls erreichen /1/.

Rheinkalk, ein Unternehmen der Lhoist-Gruppe, hat seit Mitte der 80er Jahre die Weiterentwicklung solcher Materialien für den Einsatz insbesondere in trockenen Verfahren vorangetrieben (WÜLFRA-sorp® A, DSP, Spongiacal®, jetzt Sorbocal® A bzw. SP, SPS).

Ergebnis dieser intensiven Forschung war das erste hochoberflächige Kalkhydrat Sorbocal® A. Während herkömmliches Weißkalkhydrat üblicherweise eine spezifische Oberfläche von ca. 18 m²/g (nach BET) besitzt, weist Sorbocal® A ca. 35 - 38 m²/g auf. Hierdurch steht für die Gas-Feststoff-Reaktionen im Trockensorptionsprozess prinzipiell eine mehr als verdoppelte Oberfläche zur Verfügung. Weiterhin ist die Partikelanzahl und Dispergierbarkeit durch die Feinteiligkeit des Produktes (d_{50} ca. 3 µm gegenüber 6 µm bei handelsüblichen Kalkhydraten) deutlich erhöht.

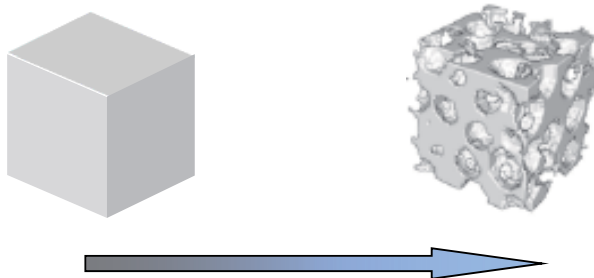
Für die Praxis bedeutet dies, daß überall dort wo schnell ablaufende Reaktionen auftreten, z. B. bei der Bindung von HF oder HCl oder im Mittel- und Hochtemperaturbereich, mit diesen Sorbentien in der Regel deutlich effektiver als mit herkömmlichem Kalkhydrat gearbeitet werden kann.



- 1. Entwicklungsstufe (Sorbacal® A):** Weißkalkhydrat mit höherer Oberfläche (~ 35 m²/g) durch feinere Partikel ohne wesentliche Änderungen der kristallinen Matrix

Bild 3a: Entwicklung von Hochoberflächigen Kalkhydraten – Feinere Partikel.

Die intensive Weiterentwicklung zur Verbesserung des herkömmlichen Weißkalkhydrates durch die Lhoist-Forschung führte zu dem Produkt Sorbacal® SP; hier gelang es neben der weiteren Erhöhung der spezifischen Oberfläche auf > 40 m² (aktuell ca. 45 m²/g) insbesondere, das für die SO₂-Abscheidung wesentliche Porenvolumen entscheidend zu vergrößern. Während herkömmliches Weißkalkhydrat ein Porenvolumen von ca. 0,08 cm³/g besitzt, weist Sorbacal® SP zwischen 0,21-0,25 cm³/g auf (BJH, N₂-Desorption).

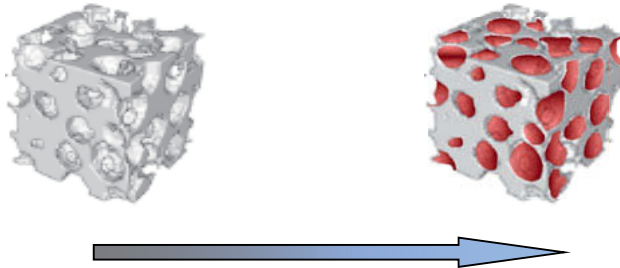


- 2. Entwicklungsstufe (Sorbacal® SP):**

Kalkhydrat mit hoher Oberfläche (> 40 m²/g) und hoher Beladekapazität durch gezielte Beeinflussung der Porosität und der Schaffung von Poren im nutzbaren Bereich

Bild 3b: Entwicklung von Hochreaktiven Kalkhydraten – Höhere Porosität.

Für den Betreiber bieten diese Sorbentien den Vorteil, eine sehr hohe Beladung mit Schadstoffen realisieren zu können, bevor die verfügbare Feststoffoberfläche durch Reaktionsprodukte verschlossen ist. Auch diese Materialien werden aktuell weiterentwickelt, wobei hier das Ziel eine Aktivierung der im offenen Porensystem verfügbaren Oberfläche ist. Diese Aktivierung bewirkt eine von den bislang notwendigen Reaktionsbedingungen wie z. B. Abgastemperatur oder –Feuchte weitgehend entkoppelte Einbindung von SO_2 , HCl , oder HF .



•3. Entwicklungsstufe (Sorbacal SPS):

Beeinflussung der Oberflächenaktivität von Kalkhydraten mit hoher Oberfläche und Porosität

Bild 3c: Derzeitige Entwicklung von Hochreaktiven Kalkhydraten – Höhere Aktivität.

Die Aktivierung dieser Sorbentien ermöglicht hohe Abscheideleistungen insbesondere im Temperaturbereich von 160 bis 260°C. In der nachstehenden Abbildung ist die im Labor ermittelte Charakteristik der SO_2 -Abscheidung von Sorbacal® SPS dargestellt. Sorbacal® SPS weist über den gesamten Bereich eine konstant steigende SO_2 – Abscheideleistung auf. Dieser Effekt wird in der praktischen Anwendung bestätigt.

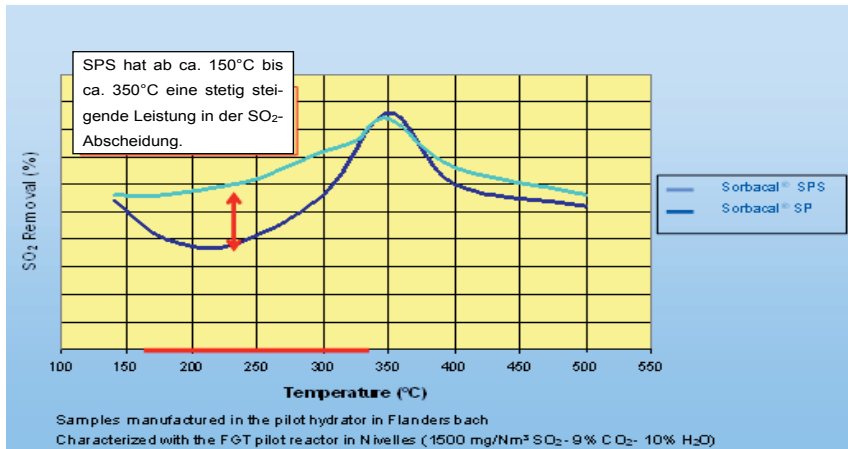


Bild 4: SO₂-Abscheidung mit Sorbical® SPS in Abhängigkeit von der Gastemperatur.

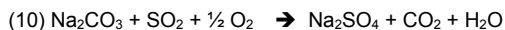
2.2.2 Natrium-basierte Sorbentien

Neben den Calciumbasierten Sorbentien werden zur Abscheidung saurer Gasbestandteile auch basische Natrium-Verbindungen eingesetzt; in trockenen Verfahren sind dies aktuell Natriumhydrogencarbonat (NaHCO₃) sowie vereinzelt Natriumcarbonat (Na₂CO₃, ‚Soda‘).

Natriumhydrogencarbonat (NaHCO₃, ‚Natriumbicarbonat‘) entsteht als Zwischenprodukt im sog. Solvay-Prozeß zur Soda-Herstellung. NaHCO₃ zersetzt sich bei Temperaturen > 60 °C unter CO₂- und H₂O-Abspaltung in Na₂CO₃ gemäß Reaktion (7)



Durch das Austreiben von CO₂ und H₂O (diese werden gasförmig über den Kamin abgeleitet) entsteht dabei ein oberflächenreiches und reaktives Na₂CO₃, welches die sauren Schadgasbestandteile (v.a. HCl, SO₂, SO₃, HF) zunächst an der Oberfläche absorbiert und unter Bildung entsprechender Natriumsalze neutralisiert; dabei laufen folgende Reaktionen ab:



Bei einer (theoretischen) Stöchiometrie von 1,0 werden zur Neutralisation von 1 kg SO₂ gemäß Gleichung (7) und (9) 2,63 kg NaHCO₃ benötigt, für die Neutralisation von 1 kg HCl sind nach Gleichung (7) und (12) 2,30 kg NaHCO₃ notwendig.

Wegen seiner hohen Reaktivität gegenüber den sauren Gasbestandteilen sind bei Verwendung von NaHCO₃ in Trockensorptionsverfahren nur relativ geringe überstöchiometrische Sorptionsmengen notwendig. Je nach Abgastemperatur, Mahlfeinheit, Durchmischung Sorbens/Abgas, Verweilzeit und geforderter Abscheidegrad liegt der erforderliche überstöchiometrische Faktor in der Praxis im Bereich von 1,1 bis etwa 1,7 [3, 4, 5].

Die Reaktionen (8) – (12) laufen aufgrund der hohen Reaktivität vor allem gegenüber SO_x und HCl mit der Reaktionsabfolge (SO_x ≥ HCl >> HF) ab. In Rauchgasreinigungsanlagen der Glasherstellung kann dies bei gleichzeitigem Vorliegen relativ hoher SO₂-Gehalte zu einer nur ungenügenden HF-Abscheidung führen [6]. Neuere Berichte aus MVA's, die mit kontinuierlichen HF-Gasmessgeräten ausgestattet sind, bestätigen eine nur schlechte HF-Abscheidung [7, 8]; siehe dazu auch Kapitel 5.

Zur Sicherstellung eines schnellen Zerfalls und guter Reaktionsbedingungen gegenüber den sauren Gaskomponenten wird NaHCO₃ in Trockensorptionsverfahren mit Abgastemperaturen oberhalb 140°C (meist bei 170 – 200°C) eingesetzt.

Um Anbackungsprobleme aufgrund seines leicht hygroskopischen Verhaltens zu vermeiden, wird Natriumhydrogencarbonat durch eine Mühle unmittelbar vor der Eindüsestelle auf die erforderliche Feinheit (Zielwert d₅₀: ca. 10 – 15 µm) vermahlen.

In einigen kleineren Trockensorptionsanlagen wird zur Abscheidung der sauren Gasbestandteile auch Na₂CO₃ (in Form von sog. ‚leichter Soda‘) verwendet; bei der Neutralisation der sauren Gasbestandteile laufen prinzipiell die gleichen Reaktionen wie bei Verwendung von NaHCO₃ ab (Gleichung 8 – 12); da bei Einsatz von Na₂CO₃ jedoch keine Aktivierung durch das heiße Abgas stattfindet, ist die Reaktivität besonders gegenüber SO₂ deutlich geringer.

3. Regelung trockener Rauchgasreinigungsanlagen durch Rein- und Rohgasmessungen von SO₂ und HCl

Trockene Rauchgasreinigungen werden modular an das Profil des Betreibers angepasst. Der einfachste Aufbau besteht aus einem als Sorptionsfilter ausgelegten Gewebefilter und einer Dosier-, Förder-, und Injektionseinrichtung. Der Rauchgaskanal wird als Reaktor genutzt. Die

Reaktion erfolgt im Gasstrom und in der Filterschicht. Mit diesem Aufbau ist schon eine effektive trockene Rauchgasreinigung möglich. Alle weiteren Module dienen hauptsächlich der Steigerung der Effektivität.

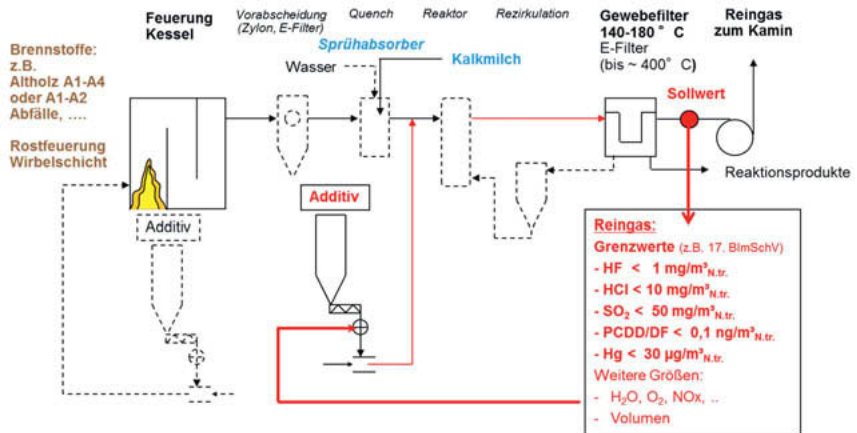


Bild 2: Module der (Quasi) Trockenen Rauchgasreinigung mit einfachem Regelkreis

Eine Vorentstaubung, z. B. über einen Zyklon oder ein E-Filter bietet eine einfache und kostengünstige Möglichkeit Flugstaub aus der Feuerung separat zu verwerten und die Staubbelastung in der Sorptionsstufe zu senken. Über die Konditionierung mit Wasser in einer Quench kann die Gastemperatur abgesenkt und der Feuchtegehalt im Abgas angehoben werden. In diesem Falle spricht man von der konditionierten Trockensorption. Beides dient der Verbesserung der Reaktionsbedingungen. Ein Reaktor bietet die Möglichkeit einer gezielten Verlängerung der für die Reaktion mit den Gaskomponenten verfügbaren Zeit. Über eine Rezirkulation kann die Beladung des Sorbens erhöht werden. In der Praxis haben sich z.B. Rezirkulationsraten von 3 – 5, – bezogen auf die Frischadditivmenge –, bewährt.

Die homogene Verteilung des Sorbens im Abgas ist grundlegende Voraussetzung für die Effektivität des Trockenen Prozesses. Bereits am Injektionspunkt muss das Ab- und/oder Adsorbens durch ein angepasstes Injektionslanzensystem oder durch turbulente Durchmischung mit dem Abgas (z.B. in einem statischen Mixer) homogen verteilt werden. Jedes Sorbens kann nur dort wirken, wo es mit dem Abgas in Kontakt ist. Eine mangelhafte Verteilung kann auch in der Filterschicht eines Gewebefilters nicht kompensiert werden.

Für die Überwachung und Kontrolle der Einhaltung der jeweiligen Emissionsgrenzwerte müssen im Reingas der Rauchgasreinigungsanlage geeignete Messgeräte betrieben werden, die nicht nur den jeweiligen Schadstoff sondern auch zusätzliche, zur genauen Konzentrationsberechnung notwendige Parameter des Abgases (z.B. Volumenstrom, Sauerstoff-Gehalt, Temperatur, Feuchte) erfassen. Es ist daher naheliegend und zweckmäßig, diese Messgeräte und deren gemessene Parameter auch zur Regelung und Dosierung der notwendigen Sorbentien einzusetzen.

3.1. Regelung der Rauchgasreinigung durch HCl- und SO₂-Reingasmessung

Im einfachsten Fall, z.B. bei Vorliegen kontinuierlicher Reingas-Messwerte für HCl und/oder SO₂, kann für diese Regelgrößen ein jeweils einzuhaltender Maximalwert als Sollwert vorgegeben werden; dieser Sollwert liegt unterhalb des individuell zulässigen Grenzwertes. Bei Regelabweichungen, d.h. bei Über- bzw. Unterschreiten eines oder beider Sollwerte, wird die Sorbens-Dosiermenge z.B. durch eine Veränderung der Drehzahl der Dosierschnecke entsprechend angepasst. Die Auswirkungen auf die HCl- und SO₂-Messwerte sind naturgemäß umso deutlicher, je reaktiver das eingesetzte Sorbens ist; der Einsatz hochreaktive Additive (hochoberflächige Kalkhydrate oder Na-Hydrogencarbonat) bietet deshalb deutliche Vorteile bei der Umsetzung von Regelkonzepten und lässt eine wesentlich genauere Einhaltung der Sollwerte (und damit auch der Grenzwerte) zu.

Hauptstörgröße dieses einfachen Regelkreises ist die über das Rohgas eingetragene (und bei fehlender Rohgasmessung unbekannt) Fracht an sauren Gaskomponenten; es ist auch bei relativ stabilen Rohgaskonzentrationen vorteilhaft, diese Rohgasfracht in etwa zu kennen um eine realistische Mindestdosiermenge für das basische Sorbens einstellen zu können. Zumindest jährlich vorgenommene, diskontinuierliche Rohgasmessungen können in Verbindung mit dem Abgasvolumen benutzt werden, um die zu neutralisierende HCl- und SO₂-Menge zu bestimmen und mit Hilfe eines realistischen Stöchiometriefaktors einen angemessenen Bereich als Mindestdosiermenge vorzuwählen.

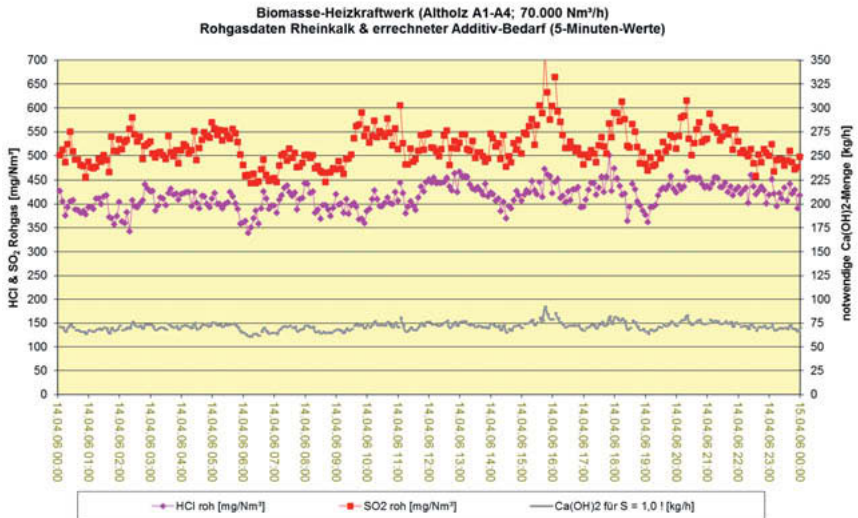


Bild 3: Beispiel für eine aus der Rohgasfracht errechneten Basiswert für die Dosiermenge

Für das in Abbildung 3 dargestellte Beispiel ergibt sich bei Rohgasgehalten im Bereich von etwa 400 – 450 mg/Nm³ HCl und gleichzeitig ca. 500 – 550 mg/Nm³ SO₂ bei einem Rauchgasvolumen von 70.000 Nm³/h schon bei einer (nur theoretisch möglichen) Stöchiometrie von 1,0 eine Ca(OH)₂-Menge von etwa 75 kg/h. Die Mindestdosiermenge sollte unter diesen Bedingungen daher nicht unter diesem Wert liegen, um das in Abbildung 4 dargestellte Schwingungsverhalten des Regelkreises zu vermeiden.

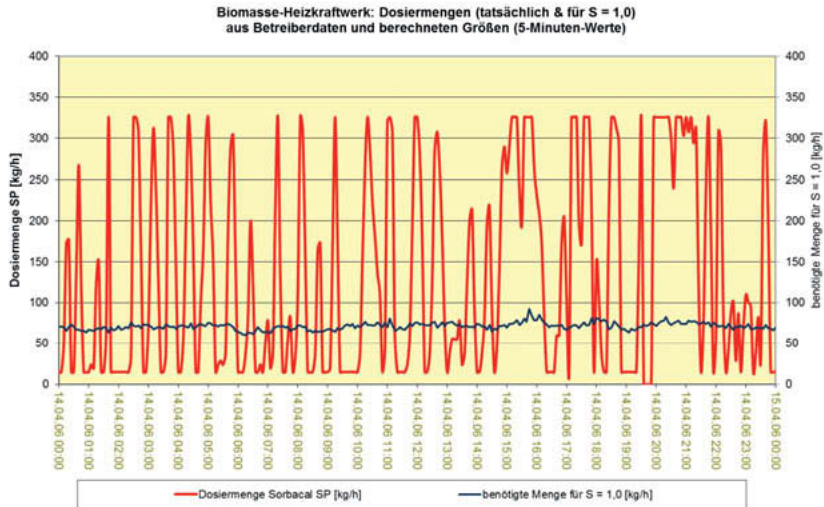


Bild 4: Mögliches Schwingungsverhalten bei zu geringer Mindest-Dosiermenge

In der Praxis wird das Sorbens häufig nur nach einer Komponente, z.B. nach HCl-Sollwert, geregelt zudosiert; in modernen Regelkonzepten ist ein bedarfsweiser Wechsel der Leitgröße z.B. auf SO_2 vorgesehen.

Bei Einsatz reaktiver Additive (im Beispiel in Bild 5: hochoberflächiges Kalkhydrat) ist auch bei schwierigen Rohgasverhältnissen mit stark wechselnden HCl- und/oder SO_2 -Konzentrationen wie z.B. in der Hausmüllverbrennung, eine nur über Reingaswerte geführte Regelung in der Lage, die Emissionsgrenzwerte genau einzuhalten.

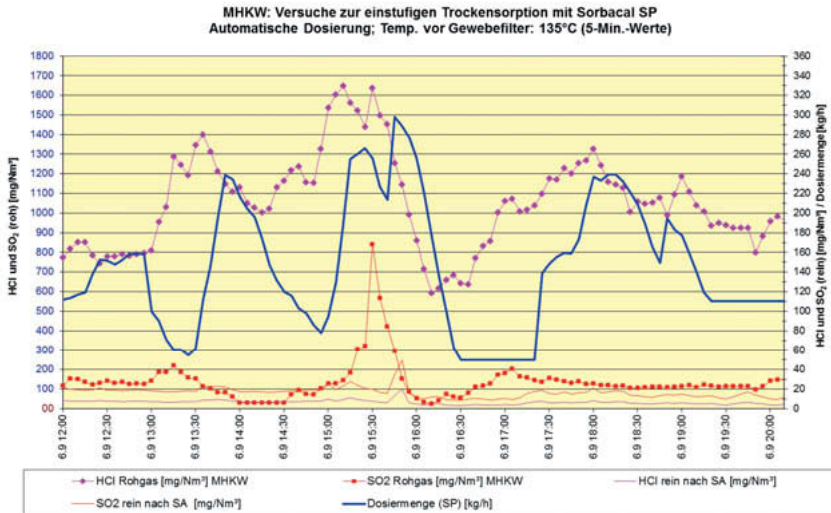


Bild 5: Dosierverlauf reingasgeregelt Trockensorption in einer Hausmüllverbrennungsanlage

Da selbst bei Einsatz reaktiver Additive die Hauptstörgröße, die über das Rohgas eingetragene HCl- und SO₂-Fracht, der reingasgeführten Regelung nicht bekannt ist, finden Anpassungen der Dosiermengen erst bei Änderungen der Reingaswerte statt. Durch die Pufferwirkung des in der Filterschicht befindlichen noch reaktiven Sorbens wirken sich die Änderungen auf die Reingaswerte erst mit einer gewissen Verzögerung aus und bewirken eine dem Rohgasprofil ‚nachlaufende‘ Änderung der Dosiermenge. Dieser ‚Nachlauf‘ ist umso kleiner je reaktiver das eingesetzte Sorbens gegenüber den abzuscheidenden Schadgaskomponenten ist.

3.2. Regelung der Rauchgasreinigung durch HCl- und SO₂-Roh- & Reingasmessung

Kontinuierliche Messung der HCl- und SO₂-Rohgaskonzentrationen zur Ermittlung der in die Rauchgasreinigung eingetragenen Fracht an sauren Bestandteilen sind in den meisten ab ca. 2005 errichteten Müllverbrennungs- bzw. Ersatzbrennstoff (EBS)-Kraftwerken Stand der Technik. In einigen Fällen wurden ältere Anlagen nachgerüstet, teilweise auch zur Kontrolle des HCl- und Schwefelanteiles des angelieferten Brennstoffes.

Aus den kontinuierlich gemessenen HCl- und SO₂-Rohgasdaten wird mit Hilfe weiterer Abgasdaten (z.B. das aktuelle Rauchgasvolumen) und eines stöchiometrischen ‚Grundfaktors‘ zunächst die theoretisch erforderliche Sorbensmenge errechnet und in die Rauchgasreinigungs-

anlage eingedüst. Weichen die gemessenen HCl- und SO₂-Reingaswerte von den einzuhaltenden Sollwerten ab, erfolgt eine Anpassung der eingesetzten Sorbensmenge; dies geschieht entweder durch eine schrittweise Veränderung der Sorbensmenge (analog zu Anlagen ohne Rohgasmessungen) oder durch eine Veränderung des stöchiometrischen Grundfaktors. Entsprechende Grundwerte lassen sich in Form von dynamischen Gleichungen im Leitsystem hinterlegen.

Rauchgasreinigungsanlagen mit einstufiger Trockensorption und hochreaktivem Additiv (z.B. Na-hydrogencarbonat) können so auf plötzliche Veränderungen im Rohgas gezielter reagieren; Überschreitungen der vorgegebenen Reingas-Sollwerte und der ‚Nachlauf‘ der Dosiermenge werden minimiert.

In sogenannten ‚Dichtstrom‘-Anlagen (kalkbasiertes Trockensorptionsverfahren mit hoher Rezirkulationsrate (50 bis zu > 100 fach) und interner Befeuchtung des Rezirkulates) können durch die Befeuchtung sowie die relative lange Verweilzeit im Umlauf sehr hohe Ausnutzungsgrade des eingesetzten Kalkhydrates realisiert werden. In der Regel fängt das große verfügbare Ca(OH)₂-Inventar auch hohe Schadstoff-Spitzen sicher ab ohne dass es zunächst zu merklichen Veränderungen der Reingaswerte kommt. Ist der umlaufende Ca(OH)₂-Puffer dagegen verbraucht, kann auf steigende Reingaswerte durch eine Anpassung der ‚Frisch-Sorbensmenge‘ nur langsam reagiert werden. Rohgasmessungen in Dichtstromanlagen dienen deshalb vornehmlich dazu, die durch die Neutralisation der ins System eingetragenen HCl- und SO₂-Fracht verbrauchte Kalkhydratmenge zu ersetzen. Im Bereich der Müll- und EBS-Verbrennung ist in diesen Rauchgasreinigungsanlagen meistens HCl die Leitgröße; SO₂ wird in der Regel auf Werte deutlich unter den Grenzwert abgeschieden; in der Praxis werden Stöchiometrie-Werte < 2,0 erreicht [9].

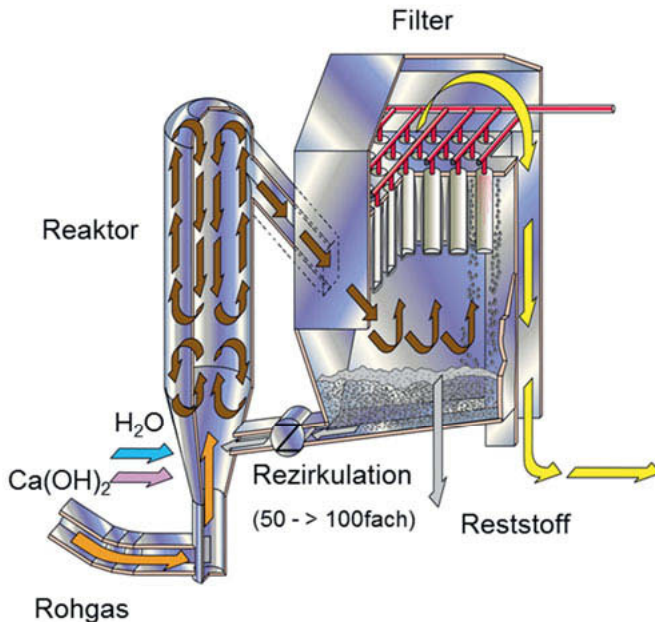


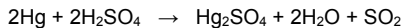
Bild 6: Schema Dichtstromverfahren (Quelle: Hitachi Zoosen Inova)

4. Beherrschung von Hg-Peaks in der Thermischen Abfallverwertung

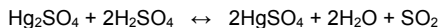
In der thermischen Abfallverwertung werden seit längerem verschiedene Verfahren zur Hg-Abscheidung (z.B. Zugabe von Fällungsmittel in den Wäscher, Einsatz kohlenstoffbasierter Sorbentien zur Hg-Adsorption) eingesetzt. Neben der Abscheidung einer relativ geringen ‚Hg-Grundlast‘ (ca. 50 - 300 µg/Nm³) spielt hier zunehmend auch die sichere Abreinigung plötzlich auftretender Hg-Peaks eine Rolle. Diese Hg-Peaks werden z.B. durch unsachgemäß entsorgte Batterien, Halbleiter oder Quecksilberhaltige elektronische Bauteile ‚in haushaltsüblichen Mengen‘ hervorgerufen (die vereinzelt vorkommenden massiven Überfrachtungen der Rauchgasreinigung einzelner Abfallverbrennungs-anlagen durch die unrechtmäßige Anlieferung Hg-haltigen Abfalls in ‚industriellen Mengen‘ sind hier nicht Thema). Die aktuelle Vorgabe und Umsetzung zum Betrieb kontinuierlicher Hg-Messgeräte im Reingas führen dabei zu einer verbesserten Detektierung dieser Hg-Peaks und können die Betreiber vor die Aufgabe stellen, die installierte Rauchgasreinigung entsprechend zu optimieren.

Eine Möglichkeit zur Optimierung besteht im Einsatz von imprägnierten Aktivkohlen; durch die Imprägnierung (z.B. mit Schwefelsäure H_2SO_4 , Salzsäure HCl , Brom, etc.) wird die Hg-Belastung der Aktivkohle gesteigert; die Hg-Abscheidung erfolgt hier nicht nur durch physikalische Adsorption sondern zusätzlich auch durch eine chemische Reaktion des Quecksilbers mit der Säure („Chemisorption“).

Bei Einsatz einer H_2SO_4 -imprägnierten Aktivkohle laufen dabei folgende Reaktionen ab (aus [14]):



bei Säureüberschuß weiter zu:



Nachfolgend wird an 2 Praxis-Beispielen die Einbindung einer zusätzlichen Trockensorptionsstufe mit imprägnierter Aktivkohle vorgestellt; in beiden Fällen erfolgt die Abscheidung der ‚Hg-Grundlast‘ über ein relativ preisgünstiges Adsorbens (hier: mahlaktivierter Herdofenkoks HOK®).

4.1. Hg-Peakabscheidung durch reingasgeregelte Eindüsung imprägnierter Aktivkohle

Die thermische Abfallverwertungsanlage verfügt über 2 Verbrennungslinien; die Abgasreinigung besteht linienweise aus einer SNCR; die Abscheidung saurer Gasbestandteile erfolgt über eine mit Kalkmilch betriebene Sprühabsorption sowie einer nachgeschalteten Trockensorptionsstufe mit hochreaktivem Kalkhydrat (sog. MKT-Verfahren, siehe Kap. 6). Flugasche, Reaktionsprodukte und unverbrauchtes Adsorbens werden an einem Gewebefilter abgeschieden. Vor Gewebefilter erfolgt die kontinuierliche Eindüsung von HOK® zur PCDD/DF- und ‚Hg-Grundlast‘-Abscheidung. Seit Anfang 2018 wird zusätzlich eine separate Dosieranlage für die Eindüsung H_2SO_4 -imprägnierter Aktivkohle betrieben. Die Hg-Reingasemissionen werden kontinuierlich gemessen (L1: Gesamt-Quecksilber-Analysator Hg CEM von Seefelder; L2: HM 1400 TR von DURAG). Das Anlagenschema dieser MVA mit der Einbindung des Booster-Silos für imprägnierte Aktivkohle befindet sich in Abbildung 7.

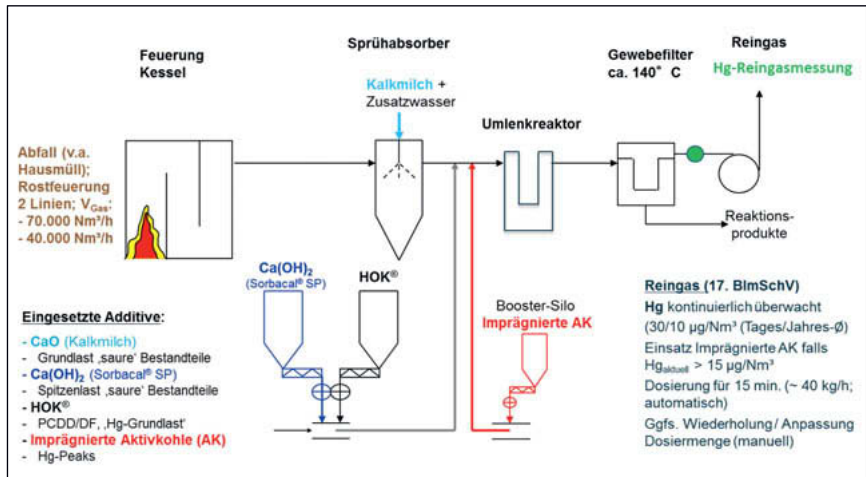


Bild 7: Anlagenschema MVA mit Einbindung ,Booster-Silo'

Der Einsatz der imprägnierten Aktivkohle erfolgt bei Überschreitung eines aktuellen (unkorrigierten) Hg-Reingasmesswertes von $15 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$; in diesem Fall wird zunächst automatisch für 15 Minuten eine Menge von etwa 40 kg/h eingedüst (aktuelle Werte; frei einstellbar). Bei Bedarf wird dann manuell für weitere 15 Minuten eingedüst, falls erforderlich mit erhöhter Dosiermenge (max. 100 kg/h). Nach Unterschreiten des Hg-Eingreifwertes von $15 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ wird der Einsatz der imprägnierten AK beendet; Abbildung 8 zeigt beispielhaft den Einsatz der imprägnierten AK zur Abscheidung eines Hg-Peaks.

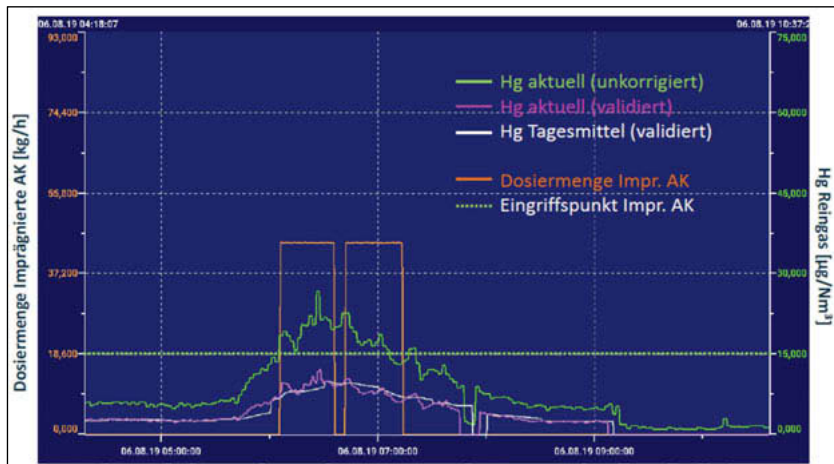


Bild 8: Hg-Abscheidung bei Einsatz imprägnierter Aktivkohle [15]

4.2. Hg-Peakabscheidung mit imprägnierter Aktivkohle durch Detektion im Rohgas

An der im folgenden beschriebenen MVA wurden in 2012 Versuche zur gezielten Abscheidung von Hg-Peaks unter Nutzung einer Hg-Rohgasmessung nach Kessel und einer ebenfalls dort installierten Zusatzdosierung von dotierter Aktivkohle gefahren [10]. Die Anlage ist mit einer mehrstufigen Rauchgasreinigung mit SNCR, Gewebefilter und 2-stufiger Nasswäsche auf Basis von Kalkmilch ausgerüstet. Vor dem Gewebefilter wird kontinuierlich HOK® (200 mg/m³Ntr.) zur Abscheidung von Hg zudosiert. Hierdurch wird Hg im Gewebefilter adsorbiert und vor den Wäschern abgeschieden. Das ist insofern wichtig, da aus den Wäschern HCl und Gips gewonnen werden. Dieses Verfahren funktioniert einwandfrei, wenn es nicht durch zu hohe Hg-Peaklasten im Rohgas überfrachtet wird. Überschreitungen des Grenzwertes im Reingas traten bis dahin vereinzelt auf.

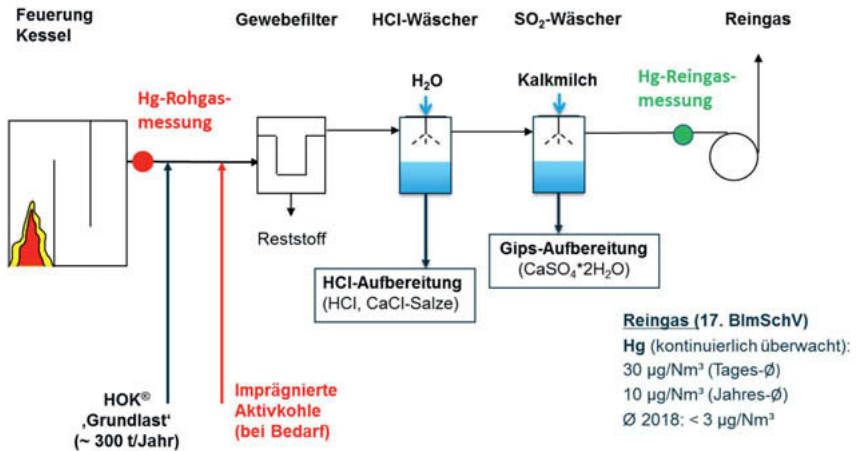


Bild 9: Anlagenschema der MVA mit Hg-Rohgasmessung und Einsatz von imprägnierter AK

Die Anlage war ursprünglich nur mit einer kontinuierlichen Hg Messung im Reingas ausgestattet (Opris, Modell AR 602 Z, feste Kompensation des Hg (ion.), mit 10 % Anteil). Eine Hg-Überfrachtung wurde im Reingas erst detektiert, wenn das im System vorhandene Adsorbens weitgehend aufgebraucht war. Dann übersteigt der Hg-Reingaswert innerhalb kurzer Zeit (Minuten) den Grenzwert. Eine Absenkung auf ein grenzwertgerechtes Niveau konnte dann häufig erst nach Stunden erreicht werden.

Für die Versuche zur Abscheidung von Hg-Peaks wurde eine kontinuierliche Rohgasmessung zwischen 3. und 4. Kesselzug installiert. Es wurde das gleiche Messgerät der Fa. Opris wie im Reingas verwendet. Der zeitliche Verlauf der Hg-Konzentrationen im Roh- und Reingas ohne zusätzlichen Einsatz von imprägnierter Aktivkohle ist beispielhaft in Abbildung 10 dargestellt.

Darin ist zu sehen, dass der Hg-Peak im Rohgas bereits um 13:30 einen Wert von 50 µg/m³Ntr. überschreitet. Dann wird das System bis ca. 22:00 über ca. 8,5 h überfrachtet. Ein neuerlicher Peak über 50 µg/m³Ntr. im Rohgas ab ca. 00:15 führt zu einem Anstieg auf > 50 µg/m³Ntr. im Reingas ab ca. 01:30, der dann über ca. 2 h > 50 µg/m³Ntr. aufweist und erst nach 4h auf < 30 µg/m³Ntr. absinkt. Es wird geschätzt, dass ein Eintrag von > 1 kg Hg zu einer Überfrachtung des Systems führt.

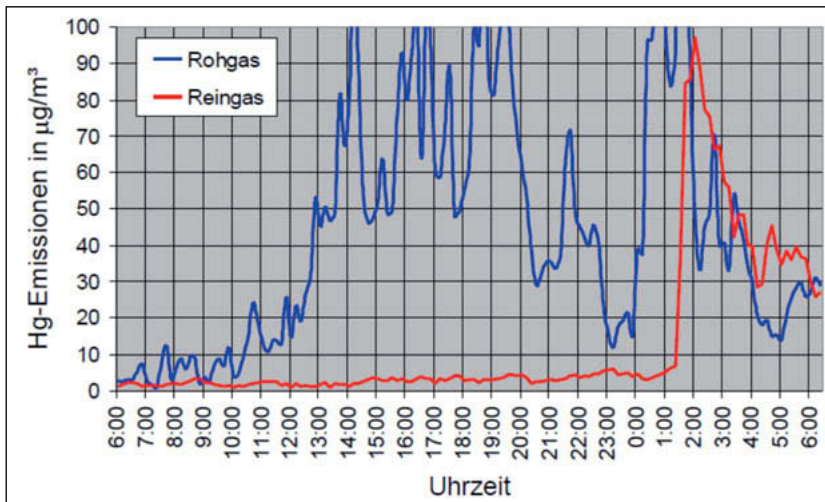


Bild 10: Zeitlicher Verlauf der Hg-Werte im Roh- und Reingas ohne Einsatz von imprägnierter Aktivkohle (Bsp.) [aus 10]

Mit einer Zusatzdosierung von imprägnierter Aktivkohle wurden daraufhin Versuche zur gezielten Abscheidung von Hg-Peaks geregelt nach Hg-Werten im Rohgas gefahren. Die Zusatzdosierung erfolgte über 1m^3 Container mit 10 bis 100 kg/h Dosierleistung je Linie. Die mit Schwefelsäure imprägnierte Aktivkohle wurde in den Rauchgaskanal vor Gewebefilter eingedüst. Ein Anstieg des Hg im Rohgas wurde durch gezielte Zuführung von bis zu 500 g Hg erreicht. Rechnerisch ergab sich ein Anstieg von ca. $100\ \mu\text{g}/\text{Nm}^3_{\text{tr}}$. Die Dosierung der imprägnierten Aktivkohle wurde zunächst vor Zugabe des Hg, dann nach Auftreten des ersten Peaks im Rohgas durchgeführt. Der zeitliche Verlauf der Hg-Werte im Roh- und Reingas ist in Abbildung 11 dargestellt.

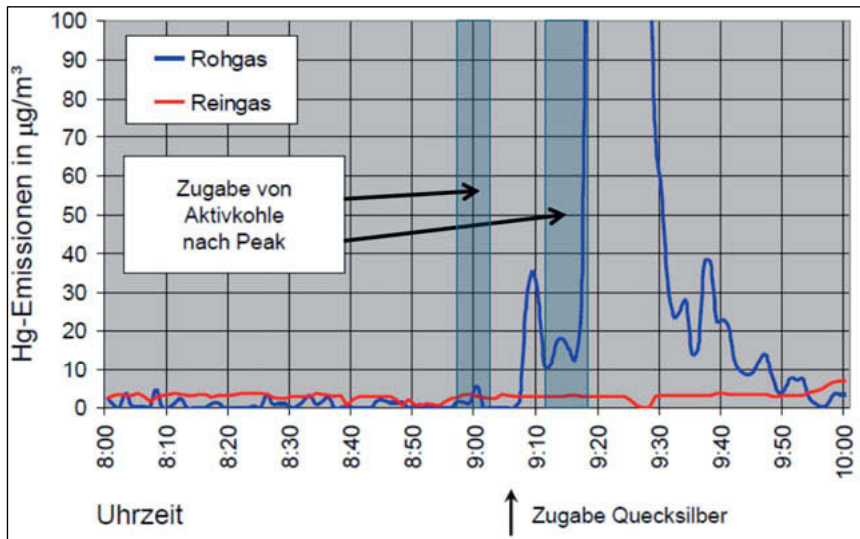
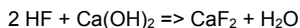


Bild 11 : Versuch mit Dosierung von imprägnierter AK nach Rohgasmessung [aus 10].

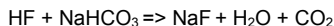
Der gemessene Anstieg von Hg im Rohgas entsprach dem erwarteten Niveau. Die Zudosierung der imprägnierten AK erfolgte nach dem ersten gemessenen Hg-Peak im Rohgas, also bevor im Reingas eine Veränderung feststellbar war. Der durch den kontrollierten Eintrag von 500 g Hg in die Feuerung provozierte Hg-Peak von $> 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wurde mit Hilfe der Rohgasmessung ohne messbare Auswirkung auf das Hg-Reingasniveau beherrscht.

5. Erkennung und Abscheidung von Fluorwasserstoff (HF) in der Thermischen Abfallverwertung

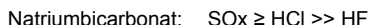
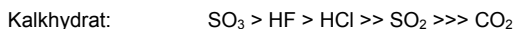
In der thermischen Abfallverwertung entstehen organische Schadstoffe, einige Schwermetalle und säurebildende Schadstoffe gasförmig in der Feuerung. Neben den allgemein bekannten und vielfach besprochenen Komponenten Chlorwasserstoff (HCl) und Schwefeldioxid (SO_2) wird auch Fluorwasserstoff (HF) gebildet. HF galt lange als nachrangig im Massenstrom und wurde als irrelevant für eine kontinuierliche Emissionsmessung betrachtet. Da HF mit Kalkprodukten oder in wässriger Lösung sehr schnell reagiert, werden die Emissionswerte für HF an MVA die mit kalkbasierten Verfahren oder Nasswäschern arbeiten sicher eingehalten, wenn die Grenzwerte für HCl und SO_2 eingehalten werden. Insbesondere Kalkhydrat ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) reagiert spontan mit HF unter Bildung von Flußspat und Wasser:



Natriumhydrogencarbonat („Natriumbicarbonat“, NB) reagiert vereinfacht in folgender Weise mit HF:



Dabei weisen beide Sorbentien die schon in Kap. 2.2 beschriebenen Reihenfolge der Reaktivität auf:



Bei trockenen Rauchgasreinigungen, die mit Natriumbicarbonat (NB) betrieben werden, ist die Abscheidung von HF auf Grund der geringen Reaktivität des NB mit HF schwierig. Ein Umstand der schon seit langem bekannt ist [6] und an den mit Natriumbicarbonat betriebenen Anlagen der Thermischen Abfallverwertung, die mit kontinuierlichen Meßgeräten für HF ausgerüstet sind, ‚bestätigt‘ wird. Möglichkeiten, die schwierige HF-Abscheidung bei alleinigen Einsatz von NB zu optimieren, wurden z.B. am MHKW Krefeld in intensiven Versuchsreihen untersucht [7].

Der im April 2011 in Betrieb genommenen Ersatzkessel K2 (25 t/h Müll; V_{Gas} : 120.000 Nm³/h) des MHKW Krefeld ist mit einer trockenen Rauchgasreinigung (RRA4) ausgestattet; die Abscheidung der sauren Gaskomponenten (HCl, SO₂ und HF; alle kontinuierlich überwacht) erfolgt durch den Einsatz von Natriumbicarbonat, zur Abscheidung von Quecksilber, Dioxinen und Furanen wird Aktivkohle in das Rauchgas eingeblasen. Die Anlage wird gemäß den Anforderungen der 17. BImSchV betrieben (Grenzwerte im Reingas (jeweils TMW): SO₂: 50 / HCl: 10 / HF: 1 mg/Nm³_{tr.}, Hg: 30 µg/Nm³_{tr.}, PCDD/DF: 0,1 ng/Nm³_{tr.} TEQ; jeweils TMWs)

Natriumbicarbonat wird direkt vor der Eindüsung (vor Gewebefilter, ca. 200°C) vermahlen; insgesamt sind 3 Mühlen installiert, die einen Dosierbereich von 130 – 3900 kg/h NB ermöglichen. Die Aktivkohle-Dosierung erfolgt konstant und wird bei Veränderungen des kontinuierlich gemessenen Hg-Reingaswertes entsprechend angepasst (AK-Dosiermenge 5 – 55 kg/h). Eine Übersicht des Kessels K2 mit der trockenen Rauchgasreinigung zeigt Abbildung 12.

Die Verweilzeit des Rauchgases im Rauchgaskanal, - d. h. zwischen Kesselaustritt und Gewebefilter-eintritt -, beträgt bei Nennlast rund 4,7 s. In diesem Betriebszustand verbleiben nach Zugabe des NB 3,7 s Sorptions- und Reaktionszeit. Im Teillastbetrieb kann der Kessel bis auf 60 % der Nennlast abgesenkt werden. Dementsprechend verringert sich der Rauchgasvolumenstrom und verlängert sich die Reaktionszeit. Mit der Abscheidung der bei der Neutralisation der sauren Rauchgasbestandteile entstehenden Reaktionsprodukte (NaCl, Na₂SO₄ und NaF sowie des überschüssigen Natriumcarbonat), der Aktivkohle incl. der adsorbierten Gas-

komponenten sowie des Flugstaubes im Gewebefilter ist die Reinigung der Rauchgase abgeschlossen. Im Reingas am Kamin werden alle drei sauren Schadstoffe (HCl, SO₂, HF) kontinuierlich gemessen. Im Rohgas am Kesselaustritt wurden zunächst nur HCl und SO₂ gemessen.

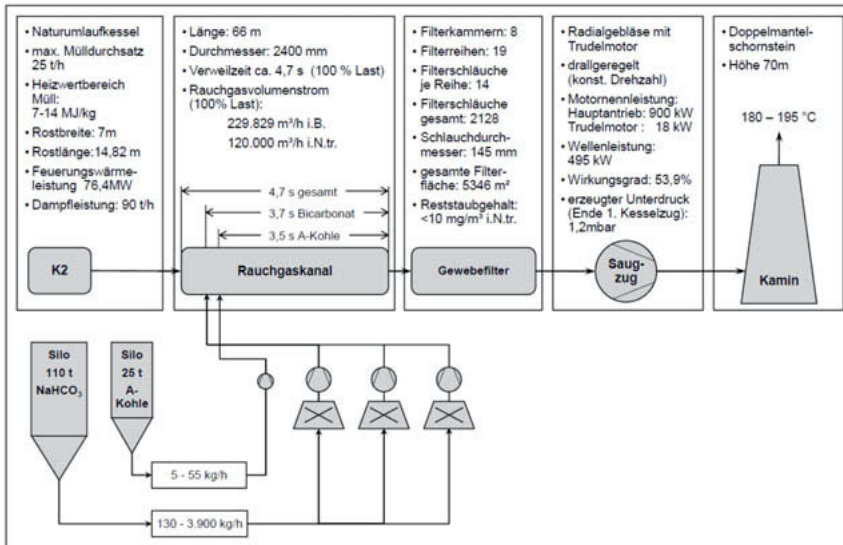


Bild 12: Übersicht Ersatzkessel 2 und RRA 4 und Betriebsdaten [7].

Die Regelung der Dosiermenge des NB erfolgt über die kontinuierlichen Messungen im Roh- und Reingas. Hierbei kommt die stark unterschiedliche Reaktivität des NB gegenüber den einzelnen sauren Gaskomponenten zum Tragen. Unter den normalen Bedingungen der thermischen Abfallverwertung wird SO₂ über das geforderte Maß hinaus abgeschieden. Als Leitgröße für die Dosierung des NB dient in der Regel HCl. Übliche Dosiermengen für NB in thermischen Abfallverbrennungsanlagen in Deutschland liegen im Mittel zwischen 25 und 35 kg/t Abfall. In einzelnen Anlagen mit EBS-Einsatz auch mit Verbräuchen von 51,7 bzw. 62,7 kg/t Abfall im Mittel weit darüber [3], [5]. In der trockenen Rauchgasreinigung ist der Verbrauch ein erheblicher Kostenfaktor.

Nach Einfahren des Kessels 2 (Phase 1) wurden im Regelbetrieb (Phase 2) der Verbrauch an NB und die erzielten Reingaswerte optimiert. In Phase 1 wurde das NB generell überdosiert, da die Regelparameter und der Mühlenbetrieb noch nicht optimiert waren. Der Mittelwert der

HCl-Reingaskonzentration betrug $3,7 \text{ mg/m}^3\text{Ntr.}$ (Tagesmittel-Grenzwert (TMGW): $10,0 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$). Die mittlere HF-Reingaskonzentration, lag infolge der stark überstöchiometrischen Zugabe von Natriumbicarbonat, im Mittel bei $0,43 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$ (Grenzwert: $1,0 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$). Mit zunehmenden Betriebsstunden traten wiederholt HF-Reingaskonzentrationen von bis zu $7 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$ im Reingas auf. Hierauf musste mit der Inbetriebnahme aller drei Natriumbicarbonatmühlen zur Dosierung der maximalen Natriumbicarbonatmenge reagiert werden, um so die Einhaltung des HF- Rastergrenzwertes von $4 \text{ mg/m}^3 \text{ i.N.tr.}$ gewährleisten zu können. Damit ging ein erheblicher Verbrauch einher (3.900 kg/h). In Phase 2, dem Regelbetrieb wurde die Ursache dieser im Reingas festgestellten HF-Werte untersucht. Dazu wurde eine kontinuierliche HF-Rohgasmessung (Laserspektrometer) nachgerüstet; dabei zeigten sich erhebliche HF-Rohgasspitzen ($> 200 \text{ mg/Nm}^3$, Messbereichsende) über mehrere Stunden.

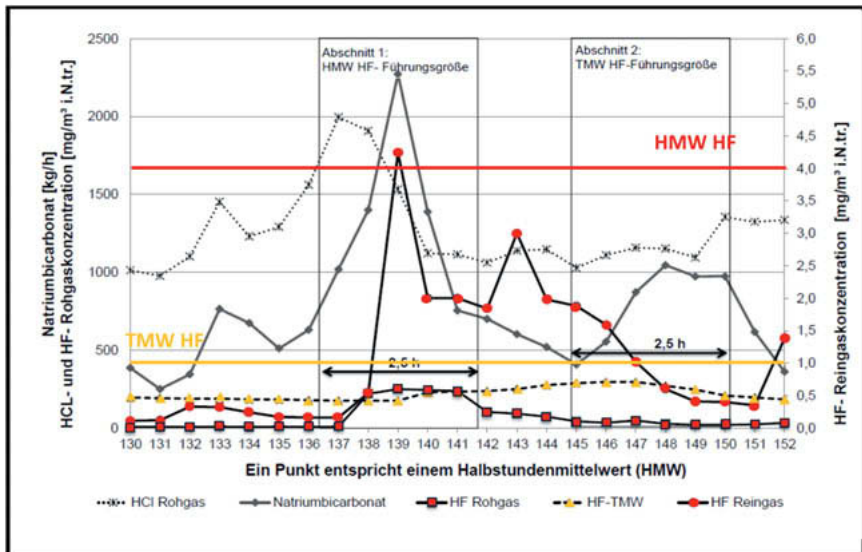


Bild13: HF Rohgasspitzen und deren Auswirkung auf den NB Verbrauch [aus 7].

Dabei wurden folgende Charakteristika für HF-Spitzen beobachtet [7]:

- HF-Spitzen traten schlagartig und sporadisch auf.
- HF-Spitzen wiesen eine Rohgaskonzentration von $>200 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$ auf (Ende Messbereich).
- HF-Rohgaspeaks $> 200 \text{ mg/Nm}^3\text{tr.}$ hielten teilweise über sechs Stunden an.

- HF-Rohgaskonzentrationen lagen im „Normalbetrieb“ ohne Spitzenlasten bei ~ 15-25 mg/Nm³_{tr}.

Die Einhaltung der geltenden HF Grenzwerte war nur mit Natriumbikarbonat nicht sicher darzustellen. Daher wurde zusätzlich Kalkhydrat über eine separate Dosieranlage in den Rauchgaskanal vor der Injektionsstelle des NB mit konstanten Mengen dosiert.

Eine Menge von 30 kg/h Kalkhydrat (ca. 1,2 kg/t Abfall) erwies sich als geeignet, um den Großteil der HF-Rohgasspitzen „selektiv“ abzuscheiden. Bei langanhaltenden HF-Spitzen (> 4 h) wurde zur „selektiven“ HF-Abscheidung mit einer Dosiermenge von bis zu 150 kg/h Kalkhydrat gefahren. Es wurden sowohl herkömmliches Kalkhydrat (spez. Oberfläche: ca. 18 m²/g BET) als auch Kalkhydrat hoher Oberfläche (Sorbacal® SPS, > 40m²/g BET) getestet. Zur alleinigen Beherrschung der HF-Peaks war das herkömmliche Kalkhydrat geeignet, jedoch wirkte das hochoberflächige Kalkhydrat deutlich besser und mit deutlich geringerem Verbrauch. Daher wurden die Versuche mit dem hochoberflächigen Kalkhydrat weitergeführt; das hochoberflächige Kalkhydrat wird seit diesen Versuchen dauerhaft an dieser Linie zusammen mit Natriumbicarbonat eingesetzt („Co-Injektion“).

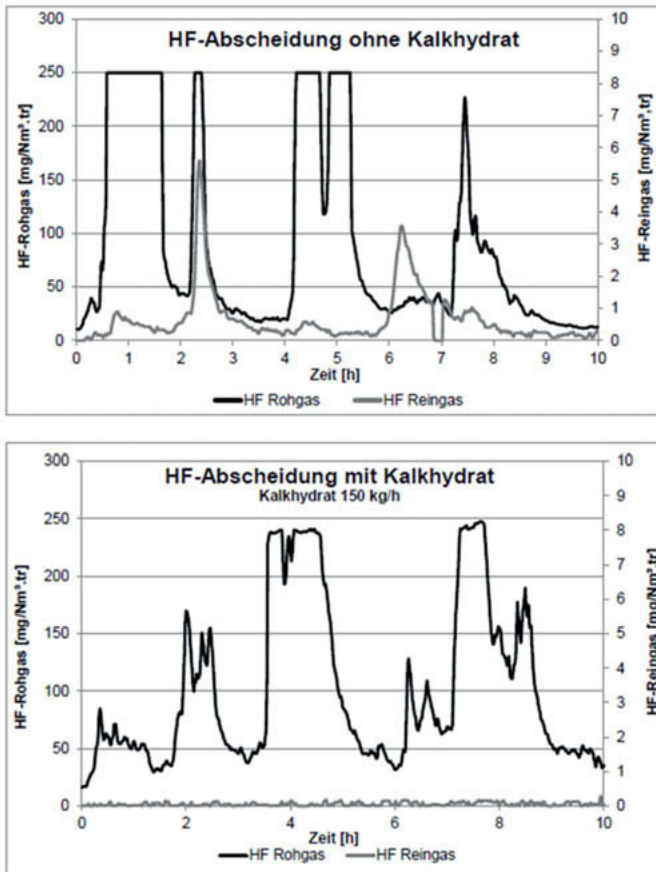


Bild 14: HF-Reingaskonzentrationen ohne/mit Kalkhydratdosierung [aus 7]

Fazit:

- Die mittlere Reingaskonzentration bei der Abscheidung von HF-Rohgasspitzen $> 100 \text{ mg/Nm}^3_{\text{tr}}$ konnte durch Co-Injektion von hochoberflächlichem Kalkhydrat von 1,3 auf $0,6 \text{ mg/Nm}^3_{\text{tr}}$ gesenkt werden.
- Die Gesamtkosten der trockenen Rauchgasreinigung können durch Co-Injektion deutlich verringert werden, da das Kalkhydrat neben HF gleichzeitig auch HCl und SO_2 einbindet und so eine deutliche Reduktion des Natriumbicarbonat-Bedarfs ermöglicht.

6. Abstimmung mehrstufiger Rauchgasreinigungen zur Optimierung des Betriebes

Viele MVA- und EBS-Anlagen in Deutschland arbeiten mit einer Kombination aus Sprüh- und Trocken-sorption, dem so genannten MKT-Verfahren (**M**odifizierte **K**onditionierte **T**rockensorption). Hier wird die Effektivität der Sprühsorption im Grundlastbereich mit der Flexibilität und Leistungsfähigkeit der Trockensorption kombiniert. Dieses Verfahren wurde auch in einigen EBS-Kraftwerken realisiert /13/.

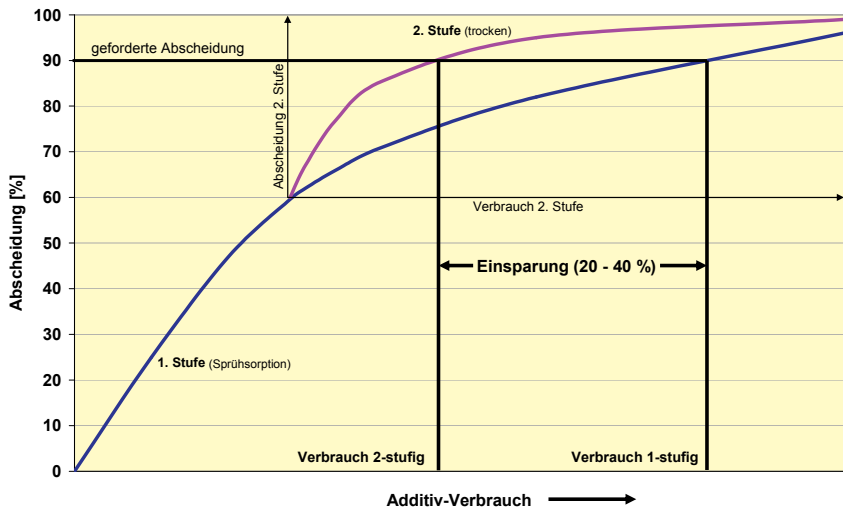


Bild 15: Prinzip des zweistufigen MKT-Verfahrens

Der Grundgedanke dieses kombinierten Verfahrens ist, eine hohe Leistung bei gleichzeitiger Einsparung von Betriebsmitteln zu erreichen. Die Trockene Stufe wird quasi auf die Leistungskurve der Sprühsorption aufgesetzt. Sie dient der Feinabreinigung im Normalbetrieb und dem Abfangen von Schadstoffspitzen. In der Regel wird hier ein hochoberflächiges Kalkhydrat (z.B. Sorbocal® SP) eingesetzt. Gegenüber dem 1-stufigen Betrieb können so Einsparungen im Bereich von 20 bis 40 % erreicht werden.

Die Abstimmung der beiden Stufen aufeinander sowie das jeweilige Optimum für den Betrieb hinsichtlich Leistung und Wirtschaftlichkeit ist für jede Anlage individuell. Insbesondere bei stark schwankenden oder wechselnden Rohgaskonzentrationen von HCl und SO_x bieten sich daher erhebliche Vorteile im Betrieb der Rauchgasreinigung. Die Sprühsorption sollte die

Grundlast der Abscheidung leisten und daher idealerweise in einem möglichst konstanten Leistungsbereich arbeiten. Die trockene Stufe dient der Feinabreinigung und dem Abfangen von Schadstoffspitzen bei Bedarf.

6.1 Einbindung einer nachgerüsteten Trockensorptionsstufe in das Regelkonzept einer MVA mit ursprünglich einstufiger Sprühsorption

In der MVA werden jährlich ca. 120 000 t Müll in einer Verbrennungslinie verbrannt. Die Rauchgasreinigungsanlage bestand ursprünglich aus einer Sprühsorption mit aus Weißfeinkalk gelöschter Kalkmilch; zur Abscheidung ökotoxischer Bestandteile (Dioxine/Furane, Hg) wird separat Herdofenkoks vor dem Gewebefilter eingedüst. Zusätzlich zu den Grenzwerten der 17. BImSchV muss in dieser MVA ein SO₂-Jahresmittelwert von 30 mg/Nm³ eingehalten werden. Die MVA verfügt über eine kontinuierliche HCl- und SO₂-Rohgasmessung; aus den Rohgasdaten wird mit Hilfe eines stöchiometrischen ‚Grundfaktors‘ zunächst die theoretisch erforderliche Kalkmenge zur HCl- und SO₂-Abscheidung errechnet und als entsprechende Kalkmilchmenge im Sprühabsorber eingedüst. Weichen die gemessenen HCl- und SO₂-Reingaswerte von den einzuhaltenden Sollwerten ab, erfolgt eine Anpassung der eingesetzten Kalkmilchmenge durch eine Veränderung dieses stöchiometrischen Grundfaktors.

Die Rohgaskonzentrationen lagen in den Jahren 2005 und 2006 bei durchschnittlich 1.600 mg/Nm³ HCl und etwa 300 mg/Nm³ SO₂ (TMW); der spezifische Verbrauch der zu dieser Zeit als reine Sprühsorption arbeitende Rauchgasreinigung lag im Jahresmittel bei etwa 20 kg CaO je Tonne Müll, die durchschnittliche Gesamtstöchiometrie bei 2,1. Seit 2007 kam es bei annähernd konstanten SO₂-Werten zu einem allmählichen Anstieg der HCl-Rohgaskonzentrationen auf nunmehr Werte um 2000 mg/Nm³ (Monatsmittelwerte); vereinzelt HCl-Tagesmittelwerte lagen bei bis zu 2.500 mg/Nm³. Zur Beherrschung dieser Schadgasspitzen wurde Ende 2007 eine zusätzliche Trockensorptionsstufe mit hochoberflächigem Kalkhydrat (Sorbacal® SP) nachgerüstet und bei Bedarf manuell zugeschaltet; ‚Überdosierungen‘ nach Abklingen einzelner Spitzenlastfälle entstanden dabei nicht, da die Regelung bei Unterschreiten des Reingas-Sollwertes die Kalkmilchmenge automatisch zurücknimmt.

Durch das veränderte Rohgasniveau ergaben sich Sorbensverbräuche von etwa 21 kg CaO sowie zusätzlich 1 kg Sorbacal® SP je Tonne Müll. Die Gesamtstöchiometrie der Anlage lag im Mittel bei 1,9.

Ab 2010 wurde das Rohgasniveau zunehmend ‚unruhiger‘; Zeiträume mit hohen HCl- (~ 2000 mg/Nm³ TMW) und relativ niedrigen SO₂-Werten (250 – 300 mg/Nm³ TMW) wechselten mit Zeiträumen höherer SO₂- (400 – 600 mg/Nm³ TMW) und geringerer HCl- (1200 – 1500 mg/Nm³ TMW) Rohgasfrachten.

Da die Trockensorptionsstufe nach wie vor ‚manuell‘ zugeschaltet wurde (d.h. erst bei Erreichen bzw. Überschreiten der HCl- & SO₂-Reingas-Sollwerte), kam es speziell im letztgenannten Fall zu deutlich höheren Kalkmilch- und Sorbocal® SP- Verbräuchen (im Jahresmittel: 22 kg CaO und 2,2 kg Sorbocal® SP je Tonne Müll). Dies führte ab Mitte 2011 zur Einbindung der Trockenstufe in die bestehende Regelung. Die Kalkmilchzugabe wurde auf einen durch die Sprühsorption gut beherrschbaren Grundlastbereich (in dieser MVA erfahrungsgemäß Rohgaswerte bis ca. 3000 mg/Nm³ HCl und/oder 350 mg/Nm³ SO₂ als 5-min-MW) beschränkt; darüber hinausgehende Rohgasfrachten werden durch die Trockensorptionsstufe abgereinigt. Dazu erfolgt zunächst die Zugabe der rechnerisch ermittelten Sorbocal® SP-Menge; zusätzlich wird diese Zugabemenge je nach Unter- bzw. Überschreitung der Reingas-Sollwerte korrigiert. Die Einbindung der Trockenstufe in das Regelkonzept führte zu deutlichen Veränderungen der spezifischen Additiv-Verbräuche; der Sorbocal® SP Bedarf stieg auf 4,9 kg/t Müll, der CaO-Bedarf ging auf 17,6 kg/t Müll zurück; gleichzeitig verringerte sich der Reststoffanfall (inkl. Flugstaub) von etwa 77 auf 71 kg/t Müll (jeweils JMW).

Die augenscheinlich nur geringe Veränderung des Reststoffanfalles entspricht bei Entsorgungskosten von 120 €/t und einer jährlichen Müllmenge von 120.000 t etwa 87 k€/a. Der hauptsächliche Betrieb im Grundlastbereich führte zusätzlich zu einem deutlichen Rückgang der Wartungs- und Reparaturkosten des Sprühsorbers.

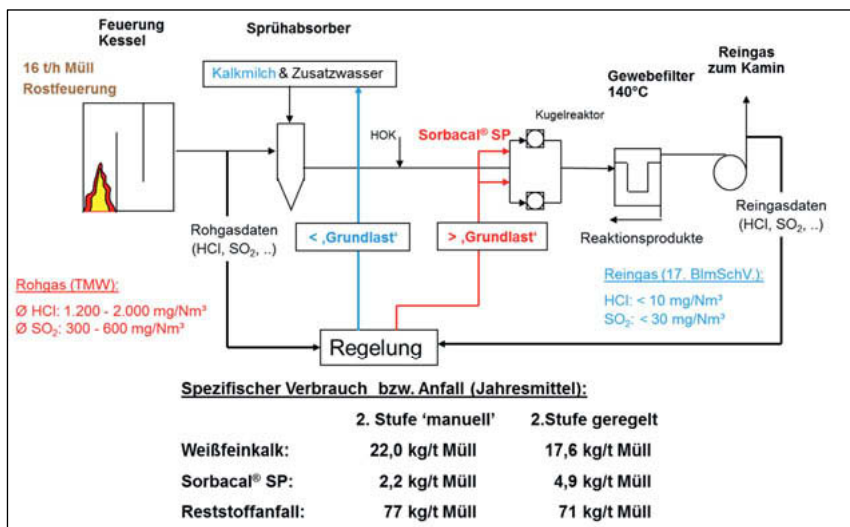


Bild 16: Einbindung der nachgerüsteten Trockenstufe in das Regelkonzept einer MVA

6.2 Neuronales Netzwerk zur Steuerung einer 2-stufigen Rauchgasreinigungsanlage an einer MVA

Die MVA verfügt über vier Verbrennungslinien (je 10 t/h Müll); die aktuelle jährliche Verbrennungsmenge liegt bei 295.000 t Müll. Die Rauchgasreinigung besteht je Linie aus einer Sprühsorption mit aus Weißfeinkalk gelöschter Kalkmilch sowie einer nachgeschalteten Trockensorptionsstufe (MKT-Verfahren). An der Trockensorptionsstufe wurde zum Zeitpunkt des Betriebsversuches ein Mischprodukt aus 95% hochoberflächigem Kalkhydrat und 5% Aktivkohle (Handelsname: Sorbocal® AC SP 5) eingesetzt. Die MVA verfügt nicht über eine Rohgasmessung für HCl und SO₂. Die Grenzwerte der 17. BImSchV werden sicher eingehalten. In einem Pilotversuch wurde an einer der vier Verbrennungslinien eine neuartige Regelung auf Basis eines selbstlernenden, neuronalen Netzwerkes (damalige interne Bezeichnung: ‚Smart-Box‘) getestet. Hauptziel war die wirtschaftliche Optimierung der Abgasreinigung unter gleichzeitig sicherer Einhaltung der geforderten Grenzwerte.

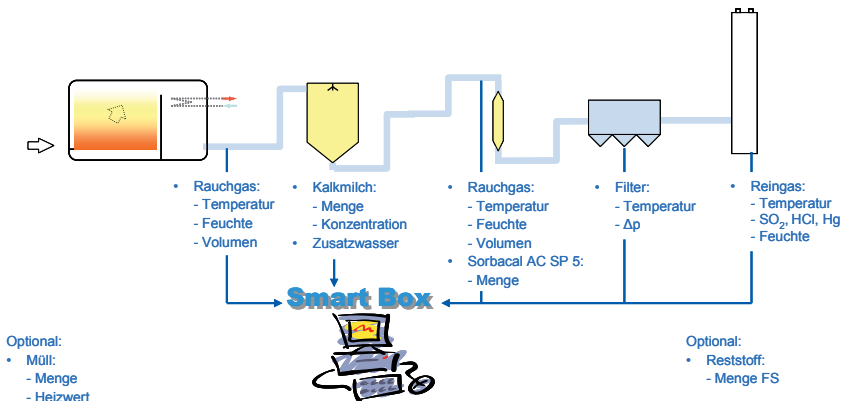


Bild 17: Neuronales Netzwerk zur Regelung einer 2-stufigen Rauchgasreinigung

Die ‚SmartBox‘ überwacht und wertet ständig die für den Betrieb der Rauchgasreinigung relevanten Anlagenparameter aus und erstellt daraus das vorgegebene Optimierungsziel. Im Gegensatz zu anderen Regelkonzepten ist bei der ‚SmartBox‘ keine feste Regelcharakteristik oder Formel hinterlegt; es existiert jedoch eine Art ‚Rahmen‘ (z.B. Reingas-Sollwerte, Grenztemperatur am Gewebefilter, etc), in dem die ‚SmartBox‘ sich frei bewegen kann. Diese Art der Regelung berücksichtigt also kontinuierlich und selbständig den aktuellen Betriebszustand der Anlage und kann so den jeweils optimalen Betriebspunkt erreichen.

Die Ergebnisse eines 9-monatigen Betriebszeitraumes wurden auf Basis von Tagesmittelwerten ausgewertet und sind als Mittelwerte über den mehrmonatigen Versuchszeitraum in Tabelle 2 zusammengefasst:

Tabelle 2: Durchschnittswerte (April – Dezember) der Linien 1 & 2:

Linie / Betriebsart	Spezif. Verbrauch [kg/t Müll]		Reingaswerte [mg/Nm ³]	
	Weißfeinkalk	Sorbacal® AC SP 5	HCl	SO ₂
Linie 1 / ohne ‚SmartBox‘	18,6	6,4	5,3	38,2
Linie 2 / ohne ‚SmartBox‘	16,1	6,9	5,3	35,9
Linie 2 / mit ‚SmartBox‘	17,7	5,0	3,7	29,2

Ein Vergleich der Linie 1 (ohne ‚SmartBox‘) mit der Linie 2 im ‚SmartBox‘-Betrieb zeigte im betrachteten Zeitraum deutliche Einsparungen an Sorbacal® AC SP 5 (- 22% !) bei gleichzeitig geringfügig niedrigerem Weißfeinkalkverbrauch (- 5%).

Werden die Zeiträume der Linie 2 ohne ‚SmartBox‘-Betrieb (insgesamt ca. 6 Wochen) mit denen des ‚SmartBox‘-Betriebes verglichen, ergeben sich Einsparungen an Sorbacal® AC SP 5 in Höhe von etwa 28% bei einem gleichzeitigem Mehrverbrauch an Weißfeinkalk von etwa 10%. In allen untersuchten Zeiträumen wurden neben den erzielten Einsparungen zusätzlich deutlich niedrigere Reingaswerte erreicht.

Die erzielten Einsparungen beruhen im Wesentlichen auf das konsequente Anfahren und Einhalten ‚optimaler‘ Betriebspunkte im ‚SmartBox‘ – Betrieb; für den Einsatz kalkstämmiger Sorbentien in der RGR sind dies z.B. eine möglichst niedrige Temperatur sowie eine möglichst hohe Feuchte des Rauchgases oder auch eine ‚schonendere‘ Abreinigung des Gewebefilters zur Gewährleistung einer minimalen Restschichtdicke auf dem Filtergewebe; der Einsatz einer ‚SmartBox‘ ermöglichte so eine Betriebsweise näher am Optimum.

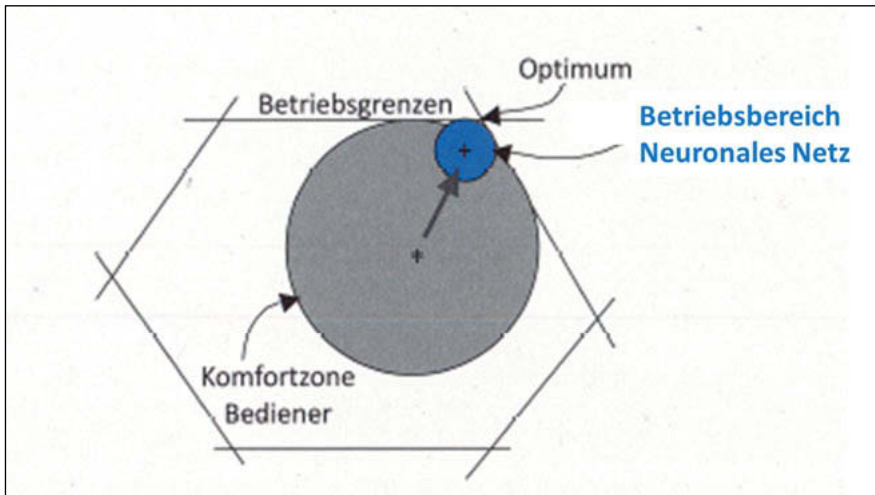


Bild 18: Vergleich der Betriebsbereiche bei manuellem und ‚Smart-Box‘ – Betrieb [nach 16]

Quellenangaben:




- [1]: B. Naffin, M. Sindram: Einsatzbedingungen für hochreaktive Kalkhydrate bei der Trockensorption; Vortrag VDI Wissensforum, München Sept. 2001
- [2]: M. Sindram, D. Walter: „Sorbentien zur Hg-Abscheidung in der Trockensorption“ VDI Konferenz Quecksilberabscheidung, Düsseldorf, März 2014.
- [3]: N. Tanner, Ch. Fuchs: „Rauchgasreinigung energetisch optimiert – Erste Betriebserfahrungen des MHKW Kassel „ ; 3. HdT-Fachtagung ‚Trockene Abgasreinigung für Feststoff-Feuerungen und die thermische Prozesstechnik‘ ; Essen, Nov. 2007
- [4]: V. Pawliska: „ Betriebserfahrungen mit der trockenen Rauchgasreinigung in der MVA Zistersdorf „ ; 23. VDI-Fachkonferenz ‚Thermische Abfallbehandlung‘ ; Würzburg, Okt. 2011
- [5]: Th. Bauer: „ Natriumbikarbonat zur Verbesserung der Rauchgasreinigung an bestehenden und zukünftigen Verbrennungsanlagen „ ; 2. Fachtagung ‚ Stand und Zukunft zeitgemäßer thermischer Abfallbehandlung‘ ; Hohenkammer, März 2009
- [6]: U. Kircher „Zum Einsatz verschiedener Sorbentien für die Abscheidung von Schadgasen in Abgasreinigungsanlagen der Glasindustrie.“; HVG Kolloquium „Emissionen von Glasmelzöfen“; 4.11.1999, Frankfurt/Main.
- [7]: H.-J. Roos, T. Brangers: "Trockene Rauchgasreinigung mittels Natriumbicarbonat – Erste Betriebserfahrungen mit der neuen Verbrennungslinie der Müll und Klärschlammverbrennungsanlage Krefeld“; VDI Wissensforum Konferenz Abfallverbrennung, Würzburg, Okt. 2012
- [8]: P. Buhlmann, E.-J. Pot: "Erfahrungen mit dem Anlagenbetrieb der trockenen RGR der EVI Emlichheim“; VDI Wissensforum Konferenz Abfallverbrennung, Würzburg, Okt. 2012
- [9]: R. Keune, H.J. Herden: "Betriebserfahrungen mit der konditionierten trockenen Rauchgasreinigung am Beispiel des MHKW Frankfurt“; 10. Potsdamer Fachtagung ‚Optimierung in der thermischen Abfall- und Reststoffbehandlung‘, Potsdam, Feb. 2013
- [10]: Dr.-Ing. Martin Mineur, Dipl.-Ing. Wolfgang Schmidt: „Betriebliche Erfahrungen zur Minderung von Quecksilberemissionen bei der Hausmüllverbrennung“ VDI Konferenz Abfallbehandlung, Würzburg, 12.11.2012.
- [11]: Reinhard Paul "TREA Gießen Heizwerk mit Sekundärbrennstoff mit trockener Rauchgasreinigung"; 6. HdT-Fachtagung ‚Trockene Abgasreinigung für Feuerungsanlagen und thermische Prozesse‘; Essen, Nov. 2010.


- [12] Dietmar Röttsch: "Betriebserfahrungen nach über 30.000 Stunden der Thermischen Restabfallbehandlungsanlage Bitterfeld."; Karl J. Thomé-Kozmiensky, Michael Beckmann; Energie aus Abfall; Band 11; TK Verlag 2014.
- [13] Holste, R.: „Aktueller Stand der Abgasreinigungstechnik“, VDI Wissensforum, München-Unterhaching, Okt. 2008.
- [14] Dr.-Ing. W. Esser-Schmidtmann, Dipl.-Ing. S. Schmitz: „Abscheidung von Quecksilberspitzen in der Abgasreinigung: Chemisorption mit imprägnierten Aktivkohlen“; 6. HdT-Fachtagung ‚Trockene Abgasreinigung für Feuerungsanlagen und thermische Prozesse‘; Essen, Nov. 2010
- [15] Informationen Technische Betriebe Solingen, Aug. 2019
- [16] Dr.-Ing. Peter Schmittl: „Automatisierung der Klärschlammverbrennungsanlage BASF SE durch 4.0 Ansätze“, DWA-Klärschlammstage, Würzburg, Mai 2019

Eignungsprüfung und Zertifizierung von Messeinrichtungen

Dr. Peter Wilbring, TÜV Rheinland Energy GmbH, Köln

Anwendungsbereiche der Eignungsprüfung nach EN 15267

▪ Kontinuierliche Emissionsmessung	
▪ Kontinuierliche Immissionsmessgeräte	
▪ Systeme zur Erfassung und Verarbeitung von Messdaten (DAHS)	In Bearbeitung (Europa) 
▪ Mobile Messgeräte für kontinuierliche Emissionsmessung	
▪ Systeme für Emissionsprognosen (PEMS)	Offen 


TÜVRheinland[®]
 Genau. Richtig.

QAL1, EN 15267

Kontext und rechtliche Grundlagen

- Anforderungen an die Genauigkeit von kontinuierlichen Messeinrichtungen zur Überwachung gesetzlich vorgegebener Grenzwerte aktuell formuliert in

- Richtlinie 2010/75/EU (IED-Richtlinie) z.B. für Großfeuerungsanlagen, Müllverbrennungsanlagen, Lösungsmittelanlagen

Vorläufer:

- IPPC- Richtlinie 2008/1/EG,
- Richtlinie 2000/76/EG für die Verbrennung von Abfällen,
- Richtlinie 2001/80/EG für Großfeuerungsanlagen,
- Richtlinie 1999/13/EG für organische Lösungsmittel,
- Richtlinie 78/176/EEG, 82/883/EEG, 92/112/EEG über Titandioxidproduktion.

QAL1, EN 15267

Kontext und rechtliche Grundlagen

- Fachliche Untersetzung

- EN 14181: 2015 Qualitätssicherung für AMS

→ Gültig für alle Anlagen die durch EU-Recht geregelt sind!

→ VDI 3950 für Anlagen der TA Luft

und für

- Richtlinie 2003/87/EG „Treibhausgasemissionszertifikate“
- Monitoring Richtlinie Nr. 601/2012 EU für Treibhausgase

QAL1, EN 15267 Inhalt

- EN 15267-1 Juli 2009
Grundlagen
- EN 15267-2 Juli 2009
Erstmalige Beurteilung des Qualitätsmanagementsystems des Herstellers und Überwachung des Herstellungsprozesses nach der Zertifizierung
- EN 15267-3 März 2008
Mindestanforderungen und Prüfprozeduren für automatische Messeinrichtungen zur Überwachung von Emissionen aus stationären Quellen
- 15267-4 → Mindestanforderungen für mobile Messeinrichtungen

Neu
in 2017!



EN 15267 Teil 1 Grundlagen, Anwendungsbereich

DIN EN 15267 Teil 1 legt die Grundlagen zur Zertifizierung von automatischen Messeinrichtungen (AMS) zur Überwachung von Emissionen aus stationären Quellen und von Immissionen fest.

Sie besteht aus folgenden sequentiellen Stufen

- Eignungsprüfung einer AMS
- Erstmalige Beurteilung des Qualitätsmanagementsystems des Herstellers der AMS
- Zertifizierung
- Produktüberwachung nach der Zertifizierung



EN 15267 Teil 1 Grundlagen Zertifizierung einer AMS

Eine automatische Messeinrichtung wird zertifiziert, wenn:

Die Zertifizierung gemäß Norm
EN 15267-1 durchgeführt wurde,

der Hersteller die Anforderungen der Norm
EN 15267-2 einhält und

die Messeinrichtung den Anforderung der Norm
EN 15267-3 genügt.

- Das Zertifikat bildet dann die Grundlage für die **gegenseitige Anerkennung** zwischen den zuständigen Stellen in den EU-Mitgliedsstaaten.
- Gegenseitige Anerkennung soll **einfach und kostengünstig** sein.
- Es sollen **nationale** und/oder **europäische Zentralregister** aufgebracht werden in denen alle zertifizierten automatischen Messeinrichtungen enthalten sind.



EN 15267 Teil 2, QM System und Audit Anwendungsbereich

EN 15267 Teil 2 legt die Anforderungen fest für:

- das Qualitätsmanagementsystems des Herstellers,
- die erstmalige Beurteilung der Produktionsüberwachung des Herstellers
- die Überwachung von Einflüssen auf die Leistungsfähigkeit der zertifizierten automatischen Messeinrichtung, die durch spätere bauliche Änderungen an Hard- oder Software hervorgerufen werden.

QM

✓ Sie ergänzt die EN ISO 9001:2000



EN 15267 Teil 2, QM System und Audit Geräteänderungen

Wenn der Hersteller bauliche Änderungen vornimmt, muss er das Prüfinstitut und die zuständige Stelle informieren

Es gibt drei Typen von Änderungen:

Typ 0: Änderungen, ohne messbaren Einfluss auf die Leistungsfähigkeit der AMS

Typ 1: Änderungen, die einen Einfluss haben können; durch interne Prüfungen wird belegt, dass der Einfluss nicht signifikant ist

Typ 2: Änderungen mit signifikanten Einfluss auf die AMS

➔ Nachprüfungen / Ergänzungsprüfungen werden zwingend erforderlich

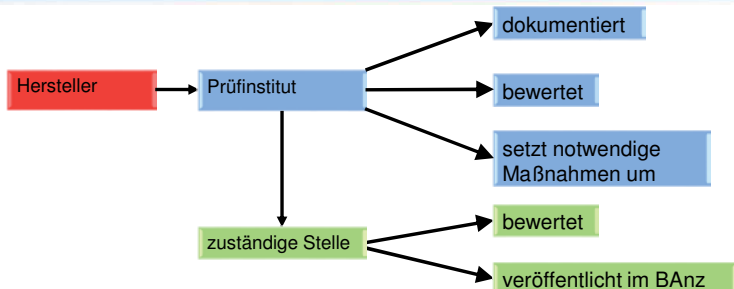
Allgemein gilt:

➔ Beim jährlichen Audit sind die Bewertungen nachvollziehbar zu belegen

➔ Stimmt der Auditor der Bewertung nicht zu, sind weitere Maßnahmen erforderlich



EN 15267 Teil 2, QM System und Audit Geräteänderungen



Mögliche **Konsequenzen** für Geräte mit nicht gemeldeten Änderungen:

- ➔ Einbaubescheinigung bei Neuinstallation wird nicht erteilt
- ➔ Eingebaute Systeme fallen bei AST und QAL2 auf
- ➔ Zertifikat und Bekanntgabe wird entzogen



EN 15267 Teil 3 Mindestanforderungen und Prüfprozeduren

EN 15267 Teil 3 legt Mindestanforderungen und Prüfprozeduren für Messeinrichtungen zur kontinuierlichen Messung fest, von



- Gasförmigen Stoffen im Abgas
- Bezugsgrößen, wie Sauerstoff, Abgasfeuchte und Volumenstrom stationärer Quellen
- Partikelförmigen Stoffen

- Sie untersetzt die Anforderungen von bestimmten EG Richtlinien
- Sie stellt detaillierte Verfahren zur Umsetzung der ersten Qualitätssicherungsstufe (**QAL1**) der **EN 14181** bereit
- Sie liefert die Eingangsdaten für die dritte Qualitätssicherungsstufe (**QAL3**) der **EN 14181**

 **TÜVRheinland**[®]
Genau. Richtig.

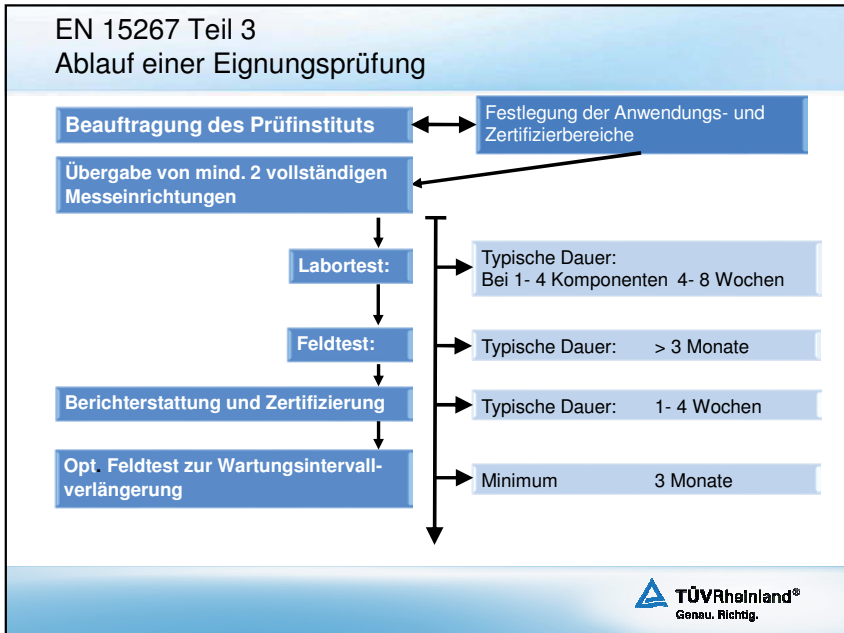
EN 15267 Teil 3 Wichtige Begriffe

Zu einer **vollständigen Messeinrichtung** gehören mindestens:

- Beheizte / unbeheizte **Probenahmesonde** einschließlich Filtern
- **Heizleitung** von der Sonde zur Gasaufbereitung
- **Pumpe**
- Gasaufbereitung, z.B. **Kühler**
- **Analysator**
- **Messwert- und Statussignal- Ausgänge**
- **Handbücher**
- **Spezielles Prüfequipment für AST und QAL3**
- **Referenzstandards** (Ausnahme zertifizierte Prüfgase)
- **Eignungsprüfungsbericht**
- Briefe / **Bescheinigungen** über akzeptierte Geräteänderungen



 **TÜVRheinland**[®]
Genau. Richtig.




- ### EN 15267 Teil 3 Mindestanforderungen Labortest
- | | |
|--|---|
| 1. Vollständige Messeinrichtung | 12. Lack-of-Fit (Linearität) |
| 2. CE-Kennzeichnung | 13. Nullpunkt- und Referenzpunkt drift |
| 3. Unbefugtes Verstellen | 14. Einfluss der Umgebungstemperatur |
| 4. Anzeigebereiche und Nullpunktslage | 15. Einfluss des Probengasdrucks |
| 5. Zusätzliche Messwertausgänge | 16. Einfluss des Probengasvolumenstroms für extraktive AMS |
| 6. Anzeige von Statussignalen | 17. Einfluss der Netzspannung |
| 7. Vermeidung oder Kompensation der Verschmutzung optischer Grenzflächen | 18. Einfluss von Schwingungen |
| 8. Schutzarten durch Gehäuse | 19. Querempfindlichkeit |
| 9. Einstellzeit | 20. Auswandern des Messstrahls bei In-situ AMS |
| 10. Wiederholstandardabweichung am Nullpunkt | 21. Konverterwirkungsgrad für AMS zur Messung von NO ₂ |
| 11. Wiederholstandardabweichung am Referenzpunkt | 22. Responsefaktoren für FID |
- TÜVRheinland®**
Genau. Richtig.

EN 15267 Teil 3 Mindestanforderungen Feldtest

- 1 Kalibrierfunktion
- 2 Einstellzeit
- 3 Lack-of-fit (Linearität)
- 4 Wartungsintervall
- 5 Nullpunkt- und Referenzpunktdrift
- 6 Verfügbarkeit
- 7 Vergleichspräzision
- 8 Verschmutzungskontrolle bei in-situ-AMS


Ermittlung der Gesamtunsicherheit aus Labor- und Feldtest



TÜVRheinland®
Genau. Richtig.

EN 15267 Teil 3 Ablauf eines Feldtests

Einbau der beiden Messeinrichtungen durch den Hersteller	→	Typische Dauer: 1 Woche
Voruntersuchungen durch den Hersteller	→	Typische Dauer: 2 Wochen
Übergabe an das Prüfinstitut:	→	Typische Dauer: 1 Tag
Einbauprüfung 1. Funktionsprüfung 1. Kalibrierung	↕	Typische Dauer: 1 Woche
Wöchentliche Driftuntersuchungen sonstige Feldtestuntersuchungen	↕	Zeitraum für die Berechnung des Wartungsintervalls Typische Dauer: 10 Wochen je 1 Tag
2. Funktionsprüfung 2. Kalibrierung	↕	Typische Dauer: 1 Woche
Wartungsintervallverlängerung Monatlicher Driftuntersuchung	↕	Mindestens: 3 Monate Maximal: 24 Monate



TÜVRheinland®
Genau. Richtig.

EN 15267 Teil 3 Gesamtmessunsicherheit

- Vorgabe der Gesamtmessunsicherheit in den jeweiligen EU Richtlinien
- Für nicht genannte Komponenten werden Gesamtmessunsicherheiten festgelegt
- In der Eignungsprüfung darf nur **75 %** des Budgets genutzt werden
- **EN 15267** präzisiert das alte Berechnungsverfahren der **EN 14956**
- Berücksichtigt werden Labor- und Feldtest
- Im Einzelfall kann trotz Bestehen aller Mindestanforderungen die Gesamtmessunsicherheit nicht eingehalten werden
- Besondere Problemkomponenten:- Kohlenmonoxid
 - Gesamtkohlenstoff
 - Sauerstoff (Verfügbarkeit)

EN 15267 Teil 4 Mindestanforderungen an P-AMS (P = portabel)

Der Einsatz einer portablen automatischen Messeinrichtung basiert auf:

- Festlegung des Standardreferenzverfahrens (SRM) und Validierung des SRM
- Festlegung des Alternativverfahrens (AM), falls die P-AMS auf einem AM basiert
- Zertifizierung der P-AMS nach EN 15267-1, EN 15267-2 und 15267-4 einschließlich des Nachweises der Gleichwertigkeit mit dem SRM im Feld, falls die P-AMS auf einem AM basiert
- Fortlaufendes Qualitätsmanagement durch den Anwender der P-AMS in Übereinstimmung mit der EN ISO/IEC 17025 und Validierung des SRM

Erwerb und Aufrechterhaltung des Zertifikats

- **Eignungsprüfung der Messeinrichtung**
 - Labortest
 - Feldtest
 - Erstellung des Eignungsprüfungsberichtes
- **Erstmalige Beurteilung des Qualitätsmanagementsystems des Herstellers**
 - Auditierung des Herstellers
 - Erstellung des Erstauditberichtes
- **Zertifizierung der AMS**
 - Eignungsprüfungsbericht → Fachgespräch Prüfberichte
 - Erstauditbericht → Fachgespräch Prüfberichte
 - Erstellung eines Vorschlages zur Bekanntgabe und Übergabe an den LWV
 - Entscheidung des LWV
 - **Veröffentlichung im Bundesanzeiger durch das UBA**
 - Ausstellung des QAL1 Zertifikates durch das Prüfinstitut und das UBA
 - **Veröffentlichung des QAL1 Zertifikats auf QAL1.de**
- **Überwachung des Herstellprozesses nach der Zertifizierung**
 - Jährliches Audit
 - Prüfung der Auditberichte durch das Fachgespräch Prüfberichte
 - **Zertifikat wird aufrechterhalten oder entzogen**



QAL1, EN 15267 und EN 14181:2015 Welche Messeinrichtungen erfüllen die Anforderungen

Mit Veröffentlichung der EN 14181:2015 haben sich die Randbedingungen zur Nutzung von eignungsgeprüften Messeinrichtungen zur Überwachung von behördlich geforderten Grenzwerten in Europa präzisiert.

Betroffen sind alle Anlagen die europäischen Regelungen unterliegen.

Für den Geltungsbereich der Richtlinien EN 14181 und EN 15267 mit Ausnahme von Deutschland nicht wirklich etwas geändert.

Es gilt weiter hin:

Neue Messeinrichtungen dürfen für Anlagen die der IED unterliegen nur eingebaut werden wenn:

- → **für Europa, ohne Großbritannien und Deutschland**
Ein gültiges Zertifikat nach EN 15267 von **UBA/TÜV** oder **SIRA/Mcerts** vorliegt
- → **für Großbritannien**
Ein gültiges Zertifikat nach EN 15267 von **SIRA/Mcerts** vorliegt



QAL1, EN 15267 und EN 14181:2015 Welche Messeinrichtungen erfüllen die Anforderungen

Seit Februar 2015, (deutsche Fassung der DIN EN 14181:2015-2) gilt

- → **für Deutschland**
Ein gültiges Zertifikat nach EN 15267 von **UBA/TÜV** vorliegt **und** die **Messeinrichtung im Bundesanzeiger** bekannt gegeben ist.
- Für Anlagen, bei denen aus Gründen der Verhältnismäßigkeit die DIN EN 14181 nicht vollständig angewandt werden soll, sind die Anforderungen der VDI 3950 zu beachten.

Betroffen sind hiervon Anlagen der 1., 27. und 31. BImSchV, sowie sonstige genehmigungsbedürftige Anlagen nach 4. BImSchV die nicht europäischen Regelungen unterliegen.



QAL1, EN 15267 und EN 14181:2015 Welche Messeinrichtungen erfüllen die Anforderungen

Sonstige wichtige Sachverhalte für Messeinrichtungen
die im **Bundeanzeiger bekannt gegeben sind**,
aber nicht nach EN 15267 zertifiziert sind:

- Diese Messeinrichtungen **dürfen ab sofort nicht mehr neu eingebaut** werden.
- Diese Messeinrichtungen **dürfen weiter benutzt werden, so lange sie** die Anforderungen zum Messbereich, zur jährlichen AST und zur Kalibrierung erfüllen (Verfahren nach H.2).
- Diese Messeinrichtungen dürfen ohne Absprache mit der zuständigen Behörde nach einer umfangreichen Reparatur **nicht weiter genutzt** werden, wenn beim Wiedereinbau eine Neukalibrierung erforderlich wird, da es sich hier um eine Neuinstallation handeln kann. Insoweit ist auch kein 1:1 Austausch zulässig.
- Bei installierten Messeinrichtungen, die die Anforderungen an den Emissionsgrenzwert oder die Gesamtmessunsicherheit nicht einhalten **muss einzeln geprüft werden**, ob die weitere Verwendung möglich ist (Verfahren nach H.2).



EN 15267 QAL1 Zertifikat - Veröffentlichung



- Erteilung des QAL1 Zertifikats nach erfolgreichem Abschluss des Prüfverfahrens nach EN 15267.
- Nur Messgeräte mit gültigem QAL1 Zertifikat werden auf der Internetseite

www.qal1.de

veröffentlicht!

 **TÜVRheinland®**
Genau. Richtig.

EN 15267 Zusammenfassung

Mit der EN 15267 sollte erstmals ein einheitliches Zertifizier- und Prüfschema für kontinuierliche Emissionsmesseinrichtungen für „ganz“ Europa verbindlich werden!

Zukünftig reicht eine Prüfung und ein Zertifikat!
Stimmt leider nicht ganz!

Handlungsbedarf:

- Überarbeitung der Richtlinienreihe EN 15267
- Blatt 1; Zertifizierstellen
- Blatt 2; Umsetzung der aktuellen ISO 9001
- Blatt 3; Fehler beheben und Anforderungen anpassen / vereinfachen
- Blatt 4; Wenn möglich mit Blatt 3 zusammenfassen

 **TÜVRheinland®**
Genau. Richtig.

Auswirkungen der zukünftigen DIN EN 17255 1-3 auf die Emissionsauswertung

Maik Nestler, DURAG DATA SYSTEMS GmbH, Hamburg

1 Einführung

Zur behördlichen Emissionsdatenerfassung und Auswertung für genehmigungsbedürftige Anlagen gibt es in der Europäischen Union sehr unterschiedliche Ansätze, spezielle nationale Anforderungen und demzufolge unterschiedliche Umsetzungen der Qualitätsrichtlinien durch dedizierte Lösungen. Diese Normierungen und Gesetzlichkeiten richten sich nach den jeweiligen Anforderungen des entsprechenden europäischen Landes oder der betroffenen Region. Für den Anspruch der behördlichen Emissionsdatenerfassung und Auswertung haben sich beispielsweise in Deutschland unterschiedliche Regulierungen etabliert, welche in diesem Artikel mit den zugehörigen Schwerpunkten näher benannt werden. Die nationalen Regularien sind jedoch in Bezug auf die unterschiedlichen europäischen Anforderungen begrenzt anwendbar, daher wird die Etablierung einer übergreifenden Regulierung zur einheitlichen Qualitätssicherung und Mindestanforderung an behördliche Emissionserfassungs- und Auswerteeinrichtung innerhalb der Europäischen Union absolut notwendig.

Die Norm DIN EN 17255, regelt den einheitlichen Qualitätssicherungsprozess von Daten, die durch eine Datenerfassungs- und Auswerteeinrichtung (DAHS, Data Acquisition and Handling Systems) von automatischen Messeinrichtungen (AMS) bereitgestellt werden [5]. Diese Daten werden zur Überwachung von Emissionen aus überwachungspflichtigen Anlagen verwendet. Die Norm EN 17255 stellt die europäischen Mindestanforderungen an ein DAHS hinsichtlich der Datenerfassung, Datenverarbeitung, Datenspeicherung, Datenausgabe, Berichterstellung, Systemfunktionen, Datensicherheit, Dokumentation und Zertifizierung einheitlich dar. Nach aktueller Planung der CEN/TC 264/WG 9 wird diese Norm drei Teile umfassen, zwei Teile liegen bereits in der Entwurfsfassung vor.

2 Überblick der aktuellen nationalen Normierung

Die aktuellen Grundlagen zur kontinuierlichen behördlichen Emissionserfassung und -auswertung sind in Deutschland in der Bundeseinheitlichen Praxis bei der Überwachung der Emissionen geregelt [1]. Ergänzend zu dieser Ausführung sind im Dokument „Kontinuierliche Emissionsüberwachung Statuskennung und Klassierung“ [2] enthaltene Präzisierungen und Ergänzungen zusammengefasst und in den Komplex der behördlichen Emissionsauswertung eingeflossen. Beide grundlegende Ansätze werden durch die EFÜ-Schnittstellendefinition [3] ergänzt. Die EFÜ-Schnittstellendefinition ist die Basis für Auswertesysteme zur Anbindung an die Behörden zur Überwachung der Emissionen. Die Entwurfsfassung der VDI 4204 Blatt 1 (s.u.) ergänzt die Darstellung von Daten entsprechend der Bundeseinheitlichen Praxis hinsichtlich der Ermittlung von Kenngrößen und dem Grenzwertvergleich oder anderen Bewertungsmaßstäben [4].

2.1 Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen

Die Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen ist in der aktuellen Fassung vom 23.1.2017 (i.F.: BEP-2017) gültig. Die Veröffentlichung erfolgte über das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit im gemeinsamen Ministerialblatt RdSchr. d. BMUB v. 23.1.2017 – IG I 2 –45053/5. Durch diese Veröffentlichung wird die Richtlinie vom 13.6.2005 mit der Ergänzung vom 4.8.2010 aufgehoben. [1] Die aktuelle Richtlinie umfasst folgende Anwendungsbereiche:

- die Eignungsprüfung von Mess- und Auswerteeinrichtungen für kontinuierliche Emissionsmessungen und die kontinuierliche Erfassung von Bezugs- bzw. Betriebsgrößen und zur fortlaufenden Überwachung der Emissionen besonderer Stoffe
- die besonderen Anforderungen an Langzeitprobenahmesysteme
- die für die Eignungsprüfung in Betracht kommenden Prüfinstitute
- das Verfahren der Bekanntgabe geeigneter Messeinrichtungen
- Hinweise für den Einbau, die Kalibrierung, die Funktionsprüfung, den Einsatz und die Wartung von Messeinrichtungen für kontinuierliche Emissionsmessungen, von Auswerteeinrichtungen und von Systemen zur Emissionsdatenfernübertragung sowie die Überprüfung von Verbrennungsbedingungen

Die gesetzlichen Grundlagen zur Anwendung dieser Richtlinie werden in den einzelnen BImSchV (Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes) bei der Anwen-

derung von genehmigungsbedürftigen Anlagen reguliert. Dabei wird vorgeschrieben, dass Anlagen mit Einrichtungen zur kontinuierlichen Ermittlung, Auswertung und Beurteilung der Emissionen sowie mit Einrichtungen zur Beurteilung der für den ordnungsgemäßen Betrieb erforderlichen Betriebsgrößen auszurüsten sind. Weiterhin wird festgelegt, dass die Messergebnisse fortlaufend registriert, automatisch ausgewertet und ggf. telemetrisch übertragen werden müssen. [1]

Im Abschnitt 2.3 der Bundeseinheitlichen Praxis werden die allgemeinen Anforderungen an Auswerteeinrichtungen beschrieben. Dies betrifft unter anderem folgende Schwerpunkte:

- Die Auswerteeinrichtung muss die Erfassung und Registrierung, die Mittelwertbildung, Normierung, Validierung, Rundung und Klassierung sowie die Speicherung und Datenausgabe nach den Anhängen vollständig ausführen.
- Soll die Auswerteeinrichtung die Emissionsdatenauswertung für Treibhausgas-Emissionen vornehmen, so sind zusätzlich die Anforderungen nach Anhang J zu berücksichtigen.
- Die Parametrierung der Auswerteeinrichtung ist in einem übersichtlichen und nachvollziehbaren Parameterprotokoll zu dokumentieren.
- Die Speicherung aller Werte, Daten und Dokumente ist über einen Zeitraum von 5-Jahren durchzuführen.
- Die Auswerteeinrichtung muss die Daten auf einem redundanten Datenträger abspeichern.
- Die Verfügbarkeit der Auswerteeinrichtung muss mindestens 99 % betragen
- Die Auswerteeinrichtung muss über geeignete Mess- und Statussignaleingänge verfügen. Dies beschreibt insbesondere 0-20mA Eingänge oder geeignete digitale Schnittstelle entsprechend VDI-4201.
- Eine Ausstattung der Einrichtung mittels DCF-77 Funkuhr inkl. Quarzuhr ist sicherzustellen.
- Festlegung des Betriebszustandes sowie der Betriebsarten mittels Statussignalen und eines bestimmten Sauerstoffgehaltes im Abgas
- Einhaltung der EFÜ-Schnittstellendefinition in der jeweils gültigen Fassung

Die genannten Anforderungen für Auswertesysteme werden im Verlauf der Bundeseinheitlichen Praxis im Abschnitt 4.7 mit dem „Einsatz der Auswerteeinrichtung“ weiter konkretisiert. Die darauf folgenden Abschnitte beschreiben z.B. den ausschließlichen Nutzen der Auswerteeinrichtung für die Belange der Emissionsüberwachung und Datenfernübertragung. Darüber

hinaus ist in Abstimmung mit der Behörde die Festlegung über einen überwachungspflichtigen und beurteilungspflichtigen Betrieb mit unterschiedlichen Betriebsarten zu treffen. Die jeweiligen Kriterien sind mittels eindeutiger, vom Auswertesystem zu erfassender Parameter festzulegen. Diese Forderung wird im Dokument Statuskennung und Klassierung (Abk.: SKK) detailliert behandelt. Die SKK spiegelt sehr genau die Anforderungen an Betriebsphasen sowie -arten und deren Dokumentation in Form von Anlagenstatus- und Messwertstatus-Informationen wider. Dabei sind insbesondere die An- und ggf. Abfahrvorgänge zu berücksichtigen. Weitere Betriebszustände sind durch eindeutige Parameter zu charakterisieren.

Im Anhang A der Bundeseinheitlichen Praxis werden Definitionen, Abkürzungen und Statussignale im Kontext mit dieser Regulierung detailliert beschrieben. Besondere Definitionen und deren Merkmale sind in Tabelle 1 auszugsweise aufgestellt. [1]

Tabelle 1: Auszug der BEP-2017, Begriffe und Definitionen

Begriff	Definition
anlagenbezogene Statusdaten	Statussignale der zu überwachenden Anlage im Zeitraster der Rohwerte
Betriebsart der Anlage	Durch eindeutige Signale und/oder Kenngrößen gekennzeichnete Betriebszustand der Anlage, der bei der Auswertung der kontinuierlichen Emissionsmessungen von Bedeutung ist.
beurteilungspflichtiger Betrieb der Anlage	Der beurteilungspflichtige Betrieb entspricht dem Zeitraum, in dem festgelegte Emissionsbegrenzungen oder sonstige Anforderungen zur Vorsorge gegen schädliche Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen auf Einhaltung zu überwachen sind.
überwachungspflichtiger Betrieb	Der überwachungspflichtige Betrieb entspricht dem Zeitraum, in dem die Anlage in Betrieb, insbesondere in einem emissionsrelevanten Betrieb, ist. Das betrifft auch die Emission von Treibhausgasen bei Anlagen im Anwendungsbereich des TEHG.

Rohwert	Wert einer Messgröße, der von der AMS stammend durch die Auswerteeinrichtung erfasst wird. Der Rohwert kann ein Mittelwert der Messsignale im Zeitraster ≤ 5 s sein. Zum Rohwert gehören ein Zeitbezug und die messgrößenbezogene Statuskennung.
Kurzzeitmittelwert	arithmetisches Mittel der über die Mittelungszeit gemittelten gültigen Rohwerte. Übliche Mittelungszeiten für Kurzzeitmittelwerte sind 3 min, 10 min, 30 min und 1 h.
validierter Kurzzeitmittelwert	Kurzzeitmittelwert, der durch Abziehen der bei der Kalibrierung nach DIN EN 14181 (Ausgabe Februar 2015) ermittelten Standardabweichung (Standardunsicherheit) vom normierten Kurzzeitmittelwert berechnet wird
gerundeter Kurzzeit- oder Langzeitmittelwert	entsprechend TA Luft Nummer 2.9 gerundeter Kurzzeit- oder Langzeitmittelwert. Der gerundete Kurzzeit- oder Langzeitmittelwert ist i. d. R. validiert. Zum gerundeten Kurzzeit- oder Langzeitmittelwert gehören ein Zeitbezug und die Statuskennung.
Langzeitmittelwert	In der Regel arithmetisches Mittel der über die Mittelungszeit gemittelten gültigen Kurzzeitmittelwerte, ausgenommen nicht beurteilungspflichtige Kurzzeitmittelwerte. Übliche Mittelungszeiten für Langzeitmittelwerte sind ein Tag, ein Monat und ein Jahr.
redundantes Datenspeicherungssystem	Zweites unabhängiges und räumlich getrenntes Datenspeicherungssystem.

Weitere Definitionen der Anlage A sind die Statuskennungen der Roh-, Kurzzeit-, und Langzeitmittelwerte. Diese Darstellung ist abhängig von unterschiedlichen Parametern des jeweiligen Zeitintervalls. Die folgenden Tabellen 2 bis 6 beschreiben dies auszugsweise.

Die Statuskennung der Rohwerte wird aus Messsignalen und den messgrößenbezogenen Statussignalen abgeleitet. Die Dokumentation des Rohwertestatus erfolgt im Auswertesystem jeweils durch einen Buchstaben. Die Auswahl des zutreffenden Status erfolgt im Rahmen des zugehörigen Intervalls und fallweise in Abhängigkeit der festgelegten Priorität.

Tabelle 2: Entsprechend A 3.1 der BEP-2017, Statuskennung der Rohwerte

Zeichen	Bedeutung	Priorität ≥ 1/2
W	ungültig wegen Wartung	1
S	ungültig wegen Störung	2
X	keine Messsignale	3
G	gültig	4

Die Zuordnung der Statuskennung für die jeweiligen Kurzzeitmittelwerte erfolgt durch den Anlagenstatus (AS), den Messwertstatus 1 (MWS1) und den Messwertstatus 2 (MWS2). Die Statuskennung der Kurzzeitmittelwerte wird aus insgesamt drei Buchstaben ausgegeben, z.B. XNN. Ergänzt wird die Statuskennung des Kurzzeitmittelwertes durch eine Ziffer, welche die Betriebsart der Anlage in der zugehörigen Betriebsphase dokumentiert. Für die Betriebsart kommt die 2/3-Regel nicht zur Anwendung. Es wird diejenige Betriebsart ausgewiesen, die am längsten im Mittelungszeitraum vorliegt.

Tabelle 3: Entsprechend A 3.2 der BEP-2017, Statuskennung der Kurzzeitmittelwerte, Anlagenstatus (AS)

Zeichen	Bedeutung	Priorität
G	Anlage im überwachungspflichtigen Betrieb	1
X	Anlage außer Betrieb	2
U	unklarer Betriebszustand	3

Tabelle 4: Entsprechend A 3.2 der BEP-2017, Statuskennung der Kurzzeitmittelwerte, Messwertstatus 1 (MWS1)

Zeichen	Bedeutung	Priorität	
		≥ 2/3	<2/3
N	nicht beurteilungspflichtig	1	
K	gültig, außerhalb des gültigen Kalibrierbereichs	2	
E	gültig, mit Ersatzwert für Bezugsgröße berechnet	3	
G	gültig	4	
S	ungültig wegen Störung der Messeinrichtung	5	1*
W	ungültig wegen Wartung der Messeinrichtung	6	2*
U	ungültig wegen unklarem Zustand	7	--
I	ungültig aus sonstigen Gründen	8	3

* Die Statusinformationen für Wartung oder Störung werden nur vergeben, wenn ≥ 2/3 „Anlage im beurteilungs-pflichtigen Betrieb sind.“

Tabelle 5: Entsprechend A 3.2 der BEP-2017, Statuskennung der Kurzzeitmittelwerte, Messwertstatus 2 (MWS2)

Zeichen	Bedeutung	Priorität	
		≥ 2/3	<2/3
A	An- / Abfahren	1	1
N	nicht beurteilungspflichtig	2	
R	ARE-Ausfall	3	
B	Normaler Betrieb	4	2
X	Keine Angabe / unklar	5	

Aufgrund der o.g. Messwertstatusinformationen können begründete Kombinationen im Auswertesystem dokumentiert werden. Diese Kombinationen sind im Anhang A der Bundeseinheitlichen Praxis detailliert ausgeführt.

Tabelle 6: Entsprechend A 3.2 der BEP-2017, Statuskennung der Langzeitmittelwerte

Zeichen	Bedeutung
G	gültig, Verfügbarkeit eingehalten
V	gültig, Verfügbarkeit nicht eingehalten
U	ungültig, Verfügbarkeit nicht eingehalten
F	ungültig, Verfügbarkeit eingehalten

Im Anhang B werden die Erfassung, die Registrierung, die Mittelwertbildung, die Klassierung und die geforderte Datenausgabe behandelt. Die nachstehenden Schwerpunkte sind dabei von besonderer Bedeutung:

- Die Rohwerte sind mit Zeitbezug und Statuskennung abzuspeichern.
- Bei Messgrößen, die auf Grenzwerteinhalten zu überwachen sind, sind aus den normierten Kurzzeitmittelwerten durch Abziehen der bei der Kalibrierung nach DIN EN 14181 ermittelten Standardabweichung die validierten Kurzzeitmittelwerte zu ermitteln. Negative validierte Mittelwerte sind auf Null zu setzen.
- Zur Bestimmung von Emissionsfrachten (z. B. Emission in kg/a) kommen immer die nicht validierten Mittelwerte zur Berechnung.
- Alle Kurzzeitmittelwerte entsprechend Grenzwerteinhalten (B 1.7 bzw. B 1.9) sind nach TA-Luft Nummer 2.9 zu runden.
- Die daraus gebildeten Kurzzeitmittelwerte sind zu klassieren mit dem zugehörigen Zeitpunkt (Datum, Uhrzeit), dem jeweiligen Status (AS, MWS1, MWS2) sowie der Kenngröße für die Betriebsart der Anlage abzuspeichern.
- Bei gültigen Kurzzeitmittelwerten ist fortlaufend eine Auswertung der nicht validierten Kurzzeitmittelwerte bezüglich der Einhaltung des gültigen Kalibrierbereiches entsprechend Kapitel 6.5 der DIN EN 14181 (Ausgabe Februar 2015) vorzunehmen.
- Die Langzeitmittelwerte sind als arithmetische Mittelwerte i. d. R. aus den nicht gerundeten, gültig validierten Kurzzeitmittelwerten zu berechnen. Bei bestimmten Langzeitmittelwerten bzw. Anlagen (TA Luft, 13. BImSchV, 17. BImSchV, 30. BImSchV) gibt es spezielle Festlegungen.
- Alle Langzeitmittelwerte, welche auf Grenzwerteinhalten zu überwachen sind, sind entsprechend TA Luft Nummer 2.9 zu runden.

Im weiteren Verlauf regelt die Bundeseinheitliche Praxis die notwendige Datenausgabe zum Auswertesystem. Dabei unterteilt sich die Datenausgabe in:

- Manuelle Datenausgabe
- Tägliche Datenausgabe
- Monatliche Datenausgabe
- Jährliche Datenausgabe

In den jeweiligen Forderungen soll die Ausgabe der Daten automatisch als digitales Textdokument in übersichtlicher Form erfolgen.

2.2 SKK Statuskennung und Klassierung

Das Dokument Statuskennung und Klassierung auch SKK genannt, existiert in der aktuellen Fassung vom 18.06.2018. Die Erstausgabe erfolgte am 14.12.2010. Es dient der Darstellung und gibt ergänzende Informationen zur Anwendung der BEP 2017 sowohl für Hersteller von elektronischen Auswertesystemen, für Prüfinstitute zur Eignungsprüfung, für Anlagenbetreiber beim praktischen Einsatz, für nach § 29b BImSchG bekanntgegebenen Mess- und Prüfinstituten zur Kontrolle des ordnungsgemäßen Einbaus und der jährlichen Funktionsprüfung sowie für Genehmigungs- und Überwachungsbehörden. Das Dokument stellt die Anforderungen der Bundeseinheitlichen Praxis dar und ist damit ergänzend zum Nachschlagen von Detailinformationen sehr gut geeignet. Das gesamte Dokument ist in 14 Anlagen gegliedert, welche den gesamten Komplex der behördlichen elektronischen Emissionsauswertung entsprechend Bundeseinheitlicher Praxis in Deutschland darstellen. Auszugsweise ist nachstehend die Gliederung des Dokumentes in Anlagen dargestellt. [2]

- Anlage 1: Definition der Statuskennung der Rohwerte
- Anlage 2: Definition der Statuskennung der Kurzzeitmittelwerte
- Anlage 3: Definition der Statuskennung der Langzeitmittelwerte
- Anlage 4: Definition der Klassen, Meldungen und Datenspeicherung
- Anlage 5: Übersicht der Klassierung der Kurzzeitmittelwerte sowie der Bildung und Klassierung der Tagesmittelwerte
- Anlage 6: Übersicht der Bildung und Klassierung spezieller Langzeitmittelwerte
- Anlage 7: Hinweise zur Charakteristik der Klassen
- Anlage 8: Kurzdarstellung von Rundung und Klassierung gültiger Mittelwerte
- Anlage 9: Beispiele für die Bildung der oberen Klassengrenzen
- Anlage 10: Übersicht der digitalen Speicherung und Ausgabe von Mittelwerten und Daten

- Anlage 11: Statuskennung und Klassierung am Beispiel eines Braunkohle-HKW (13. BImSchV)
- Anlage 12: Statuskennung und Klassierung am Beispiel einer Müllverbrennungsanlage (17. BImSchV)
- Anlage 13: Exemplarische Prüfung der SKK
- Anlage 14: Abkürzungen

2.3 Emissionsfernübertragung

Die Daten eines Emissionsauswertesystems können mittels EFÜ (Emissionsfernübertragung) vom Betreibersystem an das zuständige Gewerbeaufsichtsamt übertragen werden. Die Schnittstelle der Übertragung ist standardisiert in der aktuell gültigen Definition (April 2017) der überarbeiteten Fassung des Beschlusses des LAI vom 28.09.2005. [3] In Deutschland haben sich in den letzten Jahren drei Systeme zur Emissionsdatenübermittlung etabliert. Die Übertragung der Emissionswerte kann per EFÜ-klassisch (Modem), per EFÜ-IP und EFUE.www genutzt werden. Die Merkmale der einzelnen EFÜ-Systeme sind:

EFÜ-klassisch ist eine einfache Übertragung der aktuellen Parametrierung sowie der Halbstundenmittelwerte über Telefonmodem in einem vorgegebenen Zeitfenster. Die Verrechnung und Klassierung der Kurz- und Langzeitmittelwerte erfolgt auf einem Behördenrechner parallel zur Emissionsauswertung des Betreibers. Die Behörde verfügt über die Möglichkeit Sofortmeldungen zu empfangen und aktuelle Daten bei Bedarf aktiv abzufragen.

EFÜ-IP: Dabei erfolgt die Übertragung der Daten über eine FTPES-Verbindung mit „AUTH TLS“ und „PROT P“ Kommandos mit selbstsignierten Zertifikaten über das Internet. Die Auswertung der Daten erfolgt analog der klassischen EFÜ-Definition.

EFUE.www. Auf passwortgeschützten HTML-Seiten im Internet sind die Kurz- und Langzeitmittelwerte in Liniendiagrammen aktuell und historisch verfügbar und werden, wie auch die originalen Klassierungsprotokolle aus dem Emissionsrechner des Betreibers, als Tabellen im pdf-Format bereitgestellt. Die Aktualisierung der Werte erfolgt nach Bildung der jeweiligen Kurzzeitmittelwerte. Über die Funktion Sofortmeldung können aktuelle Ereignisse automatisiert auf der Internetplattform dargestellt werden. Die Datenübertragung vom Betreiber zum Portalserver erfolgt mittels sFTP. Der Zugriff auf die Daten ist über Benutzername und Passwort gesichert.

2.4 VDI 4204 Blatt 1 Entwurf

Die Norm VDI 4204 Blatt 1 im Entwurf ergänzt die Anforderungen BEP hinsichtlich der Ermittlung von Kenngrößen bei der kontinuierlichen Emissionsüberwachung und dem Vergleich von berechneten Werten mit Grenzwerten oder anderen Beurteilungsmaßstäben. Sie ist damit die Basis für die Prüfung von Auswertesystemen entsprechend der Qualitätssicherungsstufe (QUAL1). [4] Diese Richtlinie behandelt die Ermittlung der folgenden Kenngrößen:

- normierte Kurzzeitmittelwerte (SSTA)
- auf Sauerstoff normierte Kurzzeitmittelwerte (OSSTA)
- validierte Kurzzeitmittelwerte (VSTA)
- gerundete validierte Kurzzeitmittelwerte (RVSTA)
- Langzeitmittelwerte (LTA)
- gerundete Langzeitmittelwerte (RLTA)

Diese Norm behandelt den Umgang mit Basisdaten, mit der Rundung von berechneten Werten, den Grenzwertvergleich von Kurz- und Langzeitmittelwerten, die Berechnung des Massenstroms, die Berechnung von Sonderkomponenten sowie die Nutzung und Berechnung von Prognosebetrachtungen. Durch die Behandlung der o.g. Kenngrößen in Verbindung mit den genannten englischen Begriffen ist der eindeutige Bezug zur EN 17255 auf Basis der Kenngrößendefinition hergestellt. Ergänzend dazu bedarf es einer weiteren Adaption der Vorgaben aus der europäischen Richtlinie EN 17255.

3 Überblick zur EN 17255

Die Norm EN 17255 „Emissionen aus stationären Quellen - Datenerfassungs- und Auswerteeinrichtungen“ teilt sich aktuell in drei Teile auf, welche vom Europäischen Komitee für Normung (CEN) in der Arbeitsgruppe WG 9 erarbeitet werden. Zuständiges europäisches Arbeitsgremium für diese Norm ist CEN/TC 264 „Air Quality“/WG 9, „Emissionen - Qualitätssicherung für automatische Messeinrichtungen“. Das zuständige nationale Spiegelgremium ist der Unterausschuss NA 134-04-03-10 UA „Emissionsermittlung mit automatischen Einrichtungen“ der VDI/DIN-Kommission Reinhaltung der Luft (KRdL). Die Norm beschreibt die europäischen Mindestanforderungen für Emissionsauswertesysteme (DAHS, Data Acquisition and Handling Systems). Im Entwurf sind die Teile 1 und 2 bereits veröffentlicht. Inhalt dieser Normenreihe ist „Emissionen aus stationären Quellen –Datenerfassungs- und Auswerteeinrichtungen,„ [5]

Die derzeit benannten drei Teile sind:

Teil 1: Festlegung von Anforderungen an die Handhabung und den Bericht von Daten

Teil 2: Festlegung von Anforderungen an Datenerfassungs- und Auswerteeinrichtungen

Teil 3: Festlegung von Anforderungen an die Eignungsprüfung und Zertifizierung von Datenerfassungs- und Auswerteeinrichtungen

In der Norm werden standardisierte Begriffe und Abkürzungen für Daten verwendet. Die Tabelle 7 beschreibt die Begriffe, Abkürzungen und ergänzende Erläuterungen auszugsweise.

Tabelle 7: Begriffe, Abkürzungen und Erläuterungen

Bezeichnung	Abkürzung	Erläuterung
Basisdaten	FLD (first level data)	Rohdaten oder aus Rohdaten berechnete Mittelwerte, beide einschließlich Statussignale
normierte Basisdaten	SFLD (standardised first level data)	Basisdaten, die kalibriert und mithilfe von Basisdaten der Bezugsgrößen auf Normbedingungen umgerechnet werden
Kurzzeitmittelwert	STA (short-term average)	Mittelwert in Bezug auf den kürzesten Zeitraum, der für die Berichterstattung verwendet wird. Aufgrund von Varianten in unterschiedlichen EU-Richtlinien kann der kürzeste Zeitraum abhängig von der Art und Verwendung der Anlage 10 min, 30 min oder 1 h betragen.
normierter Kurzzeitmittelwert	SSTA (standardised short-term average)	Kurzzeitmittelwert, der mithilfe von Kurzzeitmittelwerten von Bezugsgrößen in Normbedingungen umgerechnet wird
validierter Kurzzeitmittelwert	VSTA (validated short-term average)	normierter Kurzzeitmittelwert, von dem der relevante Vertrauensbereich abgezogen wird, damit er den Berichtsanforderungen der EU-Richtlinie entspricht
kumulierter normierter Kurzzeitmittelwert	CSSTA (cumulative standardised short-term average)	Wert, der auf Basis der Berechnung für einen normierten Kurzzeitmittelwert bestimmt wird, wobei die Berechnung aber als akkumulierender Mittelwert über einen kürzeren Zeitraum erfolgt
Langzeitmittelwert	LTA (long-term average)	Mittelwert, der auf Basis von Kurzzeitmittelwerten über einen bestimmten Zeitraum berechnet wird
Zeitstempel	UTC (universal time coordinated)	UTC oder UTC plus einer festen Abweichung über das gesamte Jahr hinweg

Die primäre Funktion einer DAHS ist die Erfassung, Speicherung und Bearbeitung von AMS-Daten, um daraus Emissionsmessergebnisse zur Beurteilung in Übereinstimmung mit der geltenden Gesetzgebung zu erzeugen. In dieser Europäischen Norm werden drei Arten an Daten definiert:

- Basisdaten (FLD, First Level Data)
- Emissionsberichtsdaten
- beschreibende Berichtsdaten

Für die Berechnung von Daten stellt nachstehende Zeichnung beispielhaft die Methoden der Norm dar.

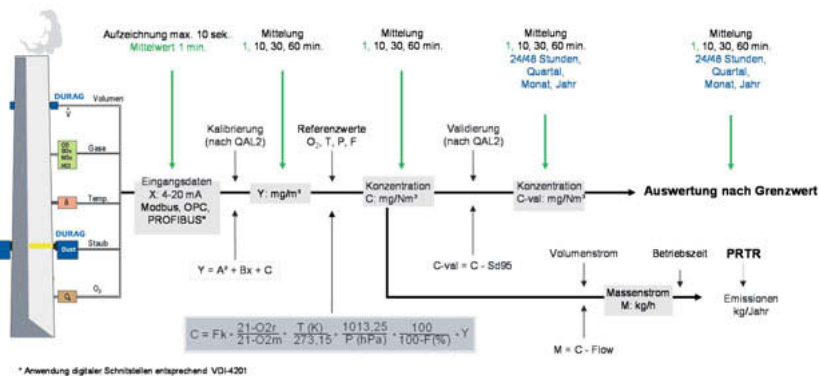


Bild 1: Beispielhafte Wertermittlung

Die Anpassung an die Anforderung der Qualitätsstufe 3 (QAL3) für automatische Messeinrichtungen ist ebenfalls in der Norm festgelegt und stellt eine besondere Herausforderung dar. Die Anforderung beschreibt, dass die AMS über fortlaufende Qualitätskontrollen nachweisen muss, dass sich die ermittelten Werte der Drift und Präzision innerhalb der festgelegten Grenzen befinden. Falls sich die AMS außerhalb der definierten Grenzen befindet, müssen die FLD (Basisdaten) entsprechend gekennzeichnet werden, bis die AMS repariert oder justiert wurde. Dies führt zu drei Arten der Implementierung der QAL3-Verfahren durch die DAHS, welche in der Norm detailliert beschrieben sind.

Im Teil 2 der Norm sind die Umsetzung der festgelegten Berechnungen sowie die Anforderungen an die Funktionalitäten der DAHS festgelegt. Der Teil beinhaltet die Schwerpunkte der Datenerfassung, Datenverarbeitung, Datenspeicherung, Datenausgabe, Berichterstellung, Systemfunktionen, Datensicherheit, Dokumentation. Die DAHS muss über analoge und digitale Baugruppen verfügen, welche festgelegte Anforderungen hinsichtlich Genauigkeit und Auflösung erfüllen muss. Gleichfalls werden Anforderungen an digitale Kommunikationsprotokolle wie z.B. Modbus oder Profibus genannt. Die Abtastrate für Rohwerte ist mit maximal 10 Sekunden gegeben. Es soll darauf geachtet werden, dass eine ausreichend hohe Abtastrate zur Anwendung gelangt, so dass kein Informationsverlust entstehen kann. Darüber hinaus soll die DAHS in der Lage sein, manuelle Eingaben für Bezugsgrößenwerten bereitzustellen. Es ist möglich, entfernte Datenlogger als Teil des DAHS einzusetzen. Im Teil der Datenspeicherung ist geregelt, dass alle Daten einer DAHS für mindestens fünf Jahre abgespeichert werden müssen. Die Art und Weise der Speicherung wird in der Norm unter Punkt 6.6 detailliert dargestellt. Zur Datensicherung muss ein entferntes Datenbackup als separates Laufwerk zur Verfügung stehen. Die Daten müssen mindestens einmal täglich aktualisiert werden. Für die Dokumentation dem Endanwender gegenüber sind festgelegte Punkte einzuhalten, dies betrifft insbesondere:

- Zertifizierung der DAHS
- Hardwarekonfiguration einschließlich einer Beschreibung der geeigneten Schnittstellen
- Betriebshandbuch und Schulungsanforderungen
- Liste von Ein- und Ausgängen
- Datenflussdiagramm
- Liste aller Berechnungen, Korrekturen und anderer relevanter Algorithmen
- Liste aller implementierter Warnungen, Alarmer und Überschreitungen einschließlich Klassifizierung, Kriterien, relevanter zeitlicher Mittelwerte und Zeiträume
- Softwareaktualisierungsverfahren
- Verfahren zur Wiederherstellung nach Hardwarestörung oder Systemstillstand
- Backupverfahren, einschließlich Validierung und Wiederherstellung
- Verfahren zur Überprüfung der Integrität des permanenten Datenspeichers und möglicher Reparatur

4 Quellenangaben

- [1] RdSchr. v. 23.1.17, Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen
- [2] Kontinuierliche Emissionsüberwachung Statuskennung und Klassierung komplett überarbeitete Fassung + Korrekturen 20.11.2017 Entwurfsfassung vom 18.06.18
- [3] Emissionsfernübertragung Schnittstellendefinition Überarbeitete Fassung des Beschlusses des LAI vom 28.09.2005 Stand April 2017
- [4] VDI 4204 Blatt 1 Entwurf Auswertung von Emissionsmessungen Ermittlung von Kenngrößen bei der kontinuierlichen Emissionsüberwachung
- [5] Deutsche und Englische Fassung prEN 17255-1 und prEN 17255-2:2018

Validierung eines Messverfahrens zur Bestimmung diffuser Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen (VOC) aus industriellen Quellen

Prof. Dr. **Christian Ehrlich**, Hochschule Merseburg, Merseburg;
Dr. **Norbert Höfert**, VDI, Düsseldorf

Kurzfassung

Die Validierung von Messverfahren im Rahmen der europäischen Standardisierung wird im CEN-Guide 13 beschrieben. Die Ergebnisse der Validierungsexperimente aus den Jahren 2016/2017 dienen als Grundlage für die Standardisierung der Messmethoden zur Ermittlung diffuser VOC-Emissionen. In einer ersten Messkampagne im September 2016 in Südfrankreich wurden die Messmethoden an einer künstlichen Quellkonfiguration in einer stillgelegten Raffinerie validiert. Die diffusen Emissionen wurden mit definierten VOC-Freisetzungen in unterschiedlichen Höhen über ein Gerüst simuliert. Der zweite Teil des Untersuchungsprogramms wurde im Juni 2017 an einer industriellen Großanlage (Raffinerie) in den Niederlanden durchgeführt. Die Validierungsuntersuchungen umfassten folgende Bestimmungsmethoden: DIAL (Differential Absorption Lidar), SOF (Solar Occultation Flux), OGI (Optical Gas Imaging), TCT (Tracer Correlation Technique), RDM (Reverse Dispersion Modelling) – Kombination von Modellierung und Messung. Diese Methoden sollen in einer Europäischen Norm (EN) als verbindliche Standardmethoden festgelegt werden.

Der erste Feldtest bestand darin, die kontrollierte Freisetzung von Propan in verschiedenen Quellenordnungen innerhalb einer Prozesseinheit einer stillgelegten Raffinerie messtechnisch zu erfassen. Die Freisetzungen erfolgten „blind“, d. h., die teilnehmenden Messteams mussten ihre Ergebnisse übermitteln, bevor die Emissionsraten veröffentlicht wurden. Die Fernmesstechniken (DIAL und SOF) wurden genutzt, um die diffusen Quellen zu identifizieren und die Quellstärken abzuschätzen. Die Freisetzungsraten bewegten sich zwischen 0,8 und 18 kg/h. Diese Werte sind repräsentativ für kleinere Lecks, die mit der zu entwickelnden Standardmethode nachgewiesen werden sollten. Unter den gegebenen meteorologischen Bedingungen und mit den Zugangsbegrenzungen einer realen Industrieanlage konnte gezeigt

werden, dass die Messtechniken DIAL, SOF und TCT in der Lage sind, für den vollen Bereich der typischen Emissionsquellen die Quellstärken zu bestimmen, die den freigesetzten Massenströmen entsprechen. Mit der OGI-Methode konnte jeder Emissionstest nachgewiesen und qualitativ bewertet werden. Mit der RDM-Technik konnten unter den gegebenen Randbedingungen Emissionen unter 5 kg/h nicht nachgewiesen werden. Hintergrundkonzentrationen können die jeweiligen Ergebnisse beeinflussen und müssen ermittelt und berücksichtigt werden (Hintergrundkorrektur).

Die zweite Feldmesskampagne fand in einer in Betrieb befindlichen Raffinerie statt. Hier sollte die Leistungsfähigkeit der o.g. Methoden unter industriellen Bedingungen nachgewiesen werden. Jedes Messteam arbeitete nach dem Entwurf der jeweiligen Messmethodenbeschreibung ("protocols"). Danach wurden die Ergebnisse diskutiert. Dabei wurde auch auf die Bedeutung der Einzelstoffbestimmung (Speziation) hingewiesen, da z.B. bei Cyclohexan andere Messsignale entstehen, als bei aliphatischen Kohlenwasserstoffen. Wichtig für die Erarbeitung der Europäischen Norm sind auch Fragen der Anzahl und Zeitdauer der Einzelprobenahmen und Einzelmessungen sowie die Frage der Bestimmung der Messunsicherheit für den Emissionsmassenstrom.

1. Validierung eines Messverfahrens nach CEN Guide 13

Die EU-Kommission erwartet vom Europäischen Komitee für Normung (CEN), dass validierte Messmethoden entwickelt werden, die in Europäischen Normen (EN) beschrieben werden, um die europäische Gesetzgebung zu unterstützen. Unter Validierung versteht man die Überprüfung einer Methode auf Brauchbarkeit. Validierung ist der Nachweis und die Dokumentation der Zuverlässigkeit einer Methode [1]. Der CEN GUIDE 13 "Validation of environmental test methods" [2] fordert, dass eine Messmethode als EN-Standard publiziert werden kann, wenn sie vollständig validiert worden ist (z.B. mit EU-Finanzmitteln). Validierung bedeutet Leistungsfähigkeitstests (robustness tests) und Ringversuchsfeldtests (Wiederholbarkeit und Reproduzierbarkeit) sowie Evaluierung der Messunsicherheit. Wenn keine Validierungsergebnisse vorliegen soll ein vorliegender Normentwurf als CEN/TS oder CEN/TR veröffentlicht werden. Dieser kann später, wenn ausreichend Daten zur Validierung vorliegen, in eine Europäische Norm (EN) überführt werden.

Der CEN Guide 13 aus dem Jahr 2008 beschreibt die Grundsätze der Entwicklung und Validierung europäischer Normen, wie sie im Technischen Komitee CEN/TC 264 „Air Quality“ schon seit den 1990er Jahren durchgeführt werden, auch als Anforderung für andere

messtechnische Normen im Umweltbereich. Die Validierung von Umweltmessmethoden ist wichtig, weil diese Methoden häufig zur Überwachung von gesetzlichen Grenzwerten herangezogen werden. Dabei spielt die Unsicherheit der Messergebnisse eine wichtige Rolle bei der Beurteilung der Einhaltung oder Überschreitung der Grenzwerte. Die Validierung der Messverfahren soll eine solide Grundlage für die Ermittlung der jeweiligen Messunsicherheiten liefern. Die Validierung erfolgt in zwei Stufen als Labortest und Feldtest und umfasst den gesamten messtechnischen Prozess: Messplanung, Probenahme, Probenlagerung und Transport, Probenvorbehandlung, Analyse, Datenauswertung und Messbericht.

2. Ausgangspunkt

Ausgangspunkt für das aktuell im CEN/TC 264 "Air quality" laufende Normungsprojekt "Stationary source emissions – Standard method to determine fugitive and other diffuse emissions of volatile organic compounds into the atmosphere" der Arbeitsgruppe WG 38 ist das Best Available Techniques (BAT) Reference Document for the Refining of Mineral Oil and Gas (754 Seiten, endgültige Version 2015 [3]). Darin befindet sich auch die folgende Tabelle, in der Verfahren zusammenstellt sind, mit denen diffuse VOC-Emissionen aus derartigen Anlagen nachgewiesen und/oder quantifiziert werden können. Aufgrund der Größe der Anlagen und der verschiedenartigsten Emissionsquellen gibt es nicht die einzige Methode der Wahl, sondern es muss – je nach Aufgabenstellung – ein Sortiment unterschiedlicher Verfahren und Techniken angewendet werden, um ein Gesamtbild der diffusen Emissionen für einen ausgedehnten Industriekomplex, wie etwa eine Raffinerie, zu ermitteln.

Tabelle 1: Übersicht über Methoden zur Detektion und Quantifikation von VOC-Quellen [3]

Type of diffuse VOC source	Calculations		Measurements				
	Emission factors and/or algorithms	Specific modelling (e.g. US TANKS, WATERS 9 codes, ToxChem+)	*Sniffing* and correlation curves (EN 15446:2:008)	Optical gas imaging (OGI)	Solar Occultation Flux (SOF)	Differential absorption (LIDAR – DIAL)	Flux chamber
Small individual equipment (pumps, valves, flanges, etc.)	Q		D/Q	D ⁽¹⁾			
Storage tanks	Q ⁽²⁾	Q		D ⁽¹⁾	D/Q ⁽²⁾	D/Q ⁽²⁾	
Loading/unloading facilities	Q			D ⁽¹⁾	D/Q	D/Q	
Water treatment plants	Q	Q			D/Q ⁽²⁾	D/Q ⁽²⁾	Q
Full scale unit/Whole site	Q ⁽⁴⁾				D/Q	D/Q	
NB: D = detection Q = quantification (1) The detection exhaustiveness regarding mass flow rate has to be confirmed. (2) Active area sources can be detected if they generate individual plumes that can be distinguished from the rest of the site, and if emissions occur during the measurement. (3) Algorithms designed for annual emission quantification. (4) Emission factors and algorithms cannot estimate the complete set of possible emissions sources and operating conditions (e.g. heat exchangers, defective floating roof seals, inaccessible leaking equipment).							

In den verbindlichen BVT-Schlussfolgerungen (214/738/EU) [4] werden folgende Anforderungen bezüglich der VOC-Emissionen genannt:

„BVT 6. Die BVT besteht in der Überwachung diffuser VOC-Emissionen in die Luft am gesamten Standort durch Anwendung aller folgenden Techniken:

- i. Schnüffelverfahren assoziiert mit Korrelationskurven für wichtige Anlagenteile;
- ii. Gasdetektion mittels optischer Bildgebung (Optical Gas Imaging);
- iii. Berechnungen der kontinuierlichen Emissionen auf der Basis von Emissionsfaktoren, die regelmäßig (z. B. alle zwei Jahre) durch Messungen validiert werden.

Eine sinnvolle ergänzende Technik ist das Screening und die Quantifizierung von Anlagenemissionen durch absorptionsbasierte optische Verfahren, wie z. B. das differentielle Absorptions-LIDAR (DIAL) oder „Solar Occultation Flux“ (SOF).“

3. EU-Mandat

Im Dezember 2012 hat die Europäische Kommission ein Mandat zur Erarbeitung einer Europäischen Norm an CEN erteilt, in der die Ermittlung der fugitiven und anderen diffusen

Emissionen aus industriellen Anlagen standardisiert beschrieben werden soll. Nach Aufstellung des hierfür erforderlichen umfangreichen Arbeitsprogramms durch die WG 38 wurde dann im Juni 2015 der entsprechende Vertrag ("Specific Agreement") zwischen EU und CEN über dieses mit ca. 500.000 € ausgestattete Normungsprojekt unterzeichnet, gefolgt von einer europaweiten Ausschreibung der folgenden 9 Arbeitspakete dieses Projekts durch das Sekretariat des CEN/TC 264, die KRdL:

- Zusammenstellung erforderlicher Informationen
- Koordination des Messprogramms
- Meteorologische Messungen
- Einsatz der OGI-Kamera (Optical Gas Imaging) zum Aufspüren von Leckagen
- Einsatz der Fernmessverfahren DIAL (Differential Absorption Lidar) und SOF (Solar Occultation Flux) sowie Tracer-Korrelation und RDM (Reverse Dispersion Modelling) im Feld unter kontrollierten Bedingungen
- Einsatz derselben Methodik auf einem Raffineriegelände unter realen Bedingungen
- Auswertung der Ergebnisse
- Definition von Leistungsanforderungen für die Verfahren
- Berichterstattung (Zwischen- und Abschlussbericht)

Folgende Institutionen waren an dem Projekt beteiligt:

- Bureau Veritas, Frankreich (Koordination, OGI)
- NPL, Vereinigtes Königreich, (DIAL, Berichterstattung)
- FluxSense, Schweden (SOF, Tracer-Korrelation)
- INERIS, Frankreich (Meteorologische Messungen, Auswertung)

Normungstechnisch wird das Projekt durch die Arbeitsgruppe CEN/TC 264/WG 38 "Emissions – Diffuse VOC" begleitet.

4. Projektdurchführung

Das Projekt musste vertragsgemäß zwischen Juni 2016 und Juni 2018 durchgeführt und abgeschlossen werden. Im Mittelpunkt standen die beiden Messprogramme, die an zwei Standorten durchgeführt wurden: einem stillgelegten Raffineriegelände in Südfrankreich unter

kontrollierten Emissionsbedingungen (September 2016) sowie einer aktiven Raffinerie unter realen Betriebsbedingungen (Juni 2017). Die Messungen sind abgeschlossen, derzeit laufen die abschließenden Auswertungen der Messprogramme. Der Zwischenbericht [5] wurde im Januar 2017 publiziert, der Abschlussbericht im Juni 2018 fertiggestellt und an die Europäische Kommission übermittelt.

4.1. Erster Feldtest mit künstlicher Quellkonfiguration (kontrollierte VOC-Freisetzung)

Im ersten Feldtest wurden kontrollierte Freisetzungen von VOC in unterschiedlicher Höhe in einer komplexen geometrischen Konfiguration im Gelände einer stillgelegten Raffinerie realisiert. Damit sollte eine möglichst realistische Emissionssituation mit diffusen Quellen nachgebildet werden. Die VOC-Emissionsraten waren den Teilnehmern des Feldtestes nicht bekannt. Jedes der beteiligten Messteams sollte mit seiner Methode (DIAL, SOF, TC, OGI, RDM) die Emissionsquellen identifizieren und die Emissionsraten bestimmen. Als Testgas wurde Propan (91%) verwendet. Insgesamt wurden fünf Emissionsquellen in unterschiedlicher Kombination verwendet. Dafür diente eine spezielle und erprobte Vorrichtung des NPL.

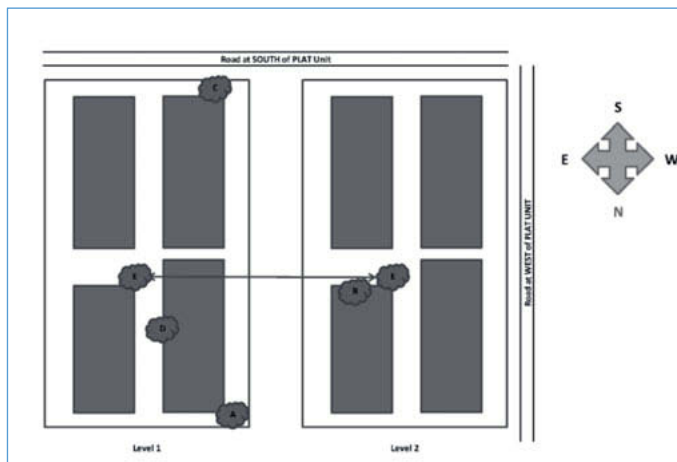


Bild 1: Experimenteller Aufbau für die kontrollierte VOC-Freisetzung in einer Industrieanlage.

Es gab insgesamt 20 Freisetzungsexperimente mit Emissionsraten von Propan (0,78 bis 18,9 kg/h, jeweils über 90 Minuten). Diese Randbedingungen entsprechen den aktuellen Ergebnissen von LDAR (leak detection and repair) Programmen in Raffinerien.

Tabelle 2: VOC (Propan)-Freisetzungen in kg/h

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Test 6	Test 7	Test 8	Test 9	Test 10
A			8.87		7.39	1.80	1.65			4.63
B		14.85					1.65			4.63
C						7.21	1.65	8.87		4.63
D	5.07				1.85		1.65			4.63
E				9.75					11.62	
Total:	5.07	14.85	8.87	9.75	9.24	9.01	6.59	8.87	11.62	18.51
	Test 11	Test 12	Test 13	Test 14	Test 15	Test 16	Test 17	Test 18	Test 19	Test 20
A	1.93						7.39	18.86	1.65	3.14
B	7.71	9.75							1.65	3.14
C									1.65	3.14
D							1.85		1.65	3.14
E			14.74	16.61	4.77	0.78				
Total:	9.64	9.75	14.74	16.61	4.77	0.78	9.24	18.86	6.59	12.55

4.1.1 Ergebnisse der DIAL-Methode

Differenzielles Absorptions-LIDAR (DIAL): DIAL ist eine laserbasierte Technik und verwendet den differentiellen Adsorptions-LIDAR (Light Detection And Ranging), der das optische Pendant zum (radiowellenbasierten) RADAR ist. Diese Technik arbeitet mit Laserstrahl-Impulsen, die von atmosphärischen Aerosolen zurückgestreut werden, worauf das von einem Teleskop erfasste, reflektierte Licht auf seine Spektraleigenschaften analysiert wird [4].

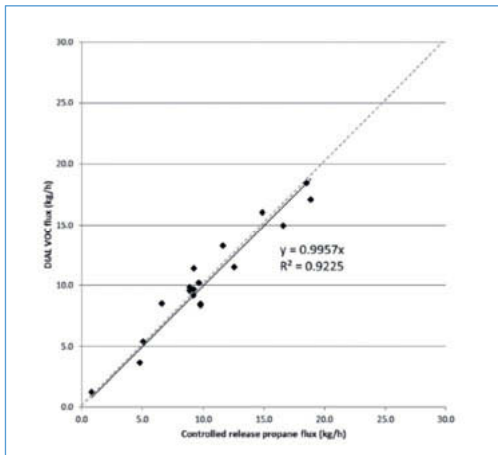


Bild 2: Korrelation der DIAL-Ergebnisse (in kg/h) mit den kontrollierten Freisetzungsraten

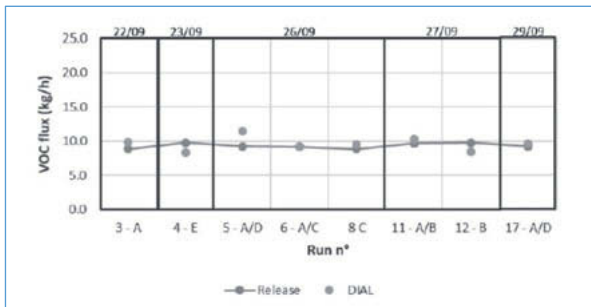


Bild 3: Ergebnisse bei Freisetzung von 10 kg/h VOC bei verschiedenen Quellkonfigurationen

4.1.2 Ergebnisse der OGI-Methode

Optische Gasdetektion: Bei der Gasdetektion durch optische Bildgebung (Optical Gas Imaging) wird eine kleine Infrarot-Handkamera verwendet, die eine Echtzeit-Visualisierung von Gaslecks gestattet, die auf Videoaufnahmen als „Rauch“ erscheinen, während gleichzeitig das normale Bild des betreffenden Bauteils zu sehen ist, so dass sich erhebliche VOC-Leckagen schnell und leicht lokalisieren lassen. Aktive Systeme erzeugen ein Bild mit einem vom Bauteil

und dessen Umgebung zurückgestreuten Laserlicht. Passive Systeme basieren auf der natürlichen Infrarotstrahlung der Anlagentechnik und ihrer Umgebung [4]. Mit der OGI-Methode konnten alle Quellen identifiziert werden. Ein trainierter Messtechniker arbeitete mit der Kamera im high sensitivity mode (HSM) in 2 m bis zu 20 m Entfernung. Für alle untersuchten Quellen wurde ein Video aufgezeichnet. Eine Massenstrombestimmung ist mit der Methode nicht möglich, jedoch kann ein erfahrener Messtechniker Aussagen über die Art und Größe der Freisetzung machen. Geringe Windgeschwindigkeiten erlaubten auch die Identifikation kleinerer Lecks.

Zusammenfassend zur OGI-Methode:

- Alle Emissionsquellen wurden gefunden.
- Die Massenströme aus einer Quelle konnten in ihrer Größe relativ zueinander richtig eingeordnet werden.
- Die relative Einordnung der Massenströme aus verschiedenen Quellen war schwieriger.
- Ein erfahrener Messtechniker kann Aussagen über die Art und Größe der Freisetzung machen.

4.1.3 Ergebnisse der RDM-Methode

Reverse Dispersion Modelling (RDM) besteht darin, dass das Abwindkonzentrationsprofil einer diffusen Quellkonfiguration vorausberechnet wird. Dafür wird ein geometrisches Modell der Anlage benötigt. Die Ergebnisse werden mit den VOC-Konzentrationen verglichen und angepasst, die durch räumlich verteilte Probenahme (z.B. mit einem tragbaren Analysator) im Umfeld der Quelle gemessen werden (Abwind). Das Windfeld um die untersuchte Anlage wird mit CFD-Methoden (Computational Fluid Dynamics) berechnet. Ein Lagrange-Ausbreitungsmodell wird für die Berechnung der Konzentrationen verwendet. Dafür wird ein quasi-stabiler Fluss angenommen. Für sehr niedrige Windgeschwindigkeiten und instabile Windverhältnisse ist die Methode nicht geeignet (das trifft aber auch auf die anderen Methoden zu).

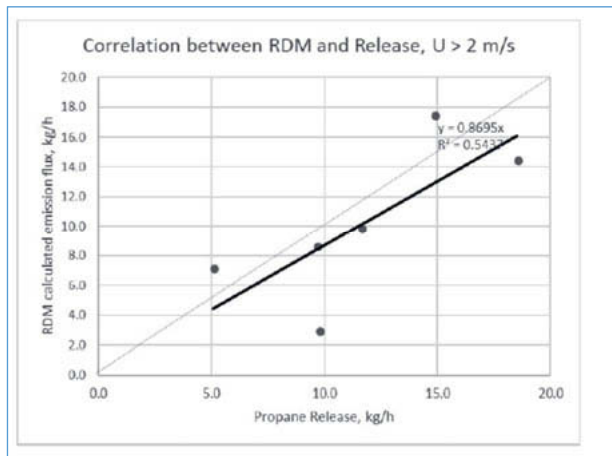


Bild 4: Ergebnisse der RDM-Methode

Mit der RDM-Methode konnten unter den gegebenen Randbedingungen nur Lecks größer 5 kg/h nachgewiesen werden.

4.1.4 Ergebnisse der SOF-Methode

Solar Occultation Flux (SOF): Bei dieser Methode wird ein Breitbandspektrum des Sonnenlichts im Infrarot- oder ultravioletten/sichtbaren Bereich entlang einer gegebenen geografischen Wegstrecke unter Kreuzen der Windrichtung und Durchschneiden von VOC-Emissionsfahnen aufgezeichnet und mittels Fourier-Transformation analysiert [4]. Die SOF-Methode bestimmt vertikal säulenintegrierte Konzentrationen von VOC unter Verwendung von Spektralabsorptionsdaten mit der Sonne als Lichtquelle. Auf einem Fahrzeug montiert wird das Spektrometer kontinuierlich betrieben und ermittelt Daten etwa alle 10 m bei einer Fahrzeuggeschwindigkeit von ~30 km/h. Der Massenstrom wird aus der Windkomponente senkrecht zur Fahrbahn berechnet. Die SOF-Spektralanalyse liefert Daten zu den einzelnen Kohlenwasserstoffen (Speziation).

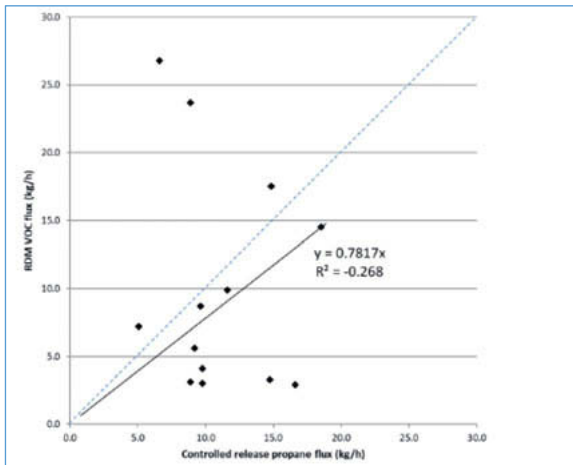


Bild 5: Korrelation der SOF-Ergebnisse (in kg/h) mit den kontrollierten Freisetzungsraten

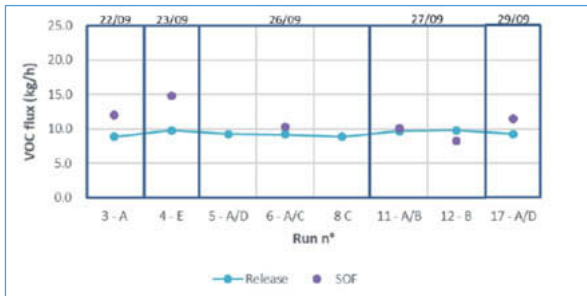


Bild 6: SOF-Ergebnisse bei Freisetzung von 10 kg/h VOC bei verschiedenen Quellkonfigurationen

4.1.5 Ergebnisse der TCT-Methode

Die Tracergas-Korrelations-Methode (TCT) besteht darin, eine mobile Tracergasquelle (z.B. N₂O) neben einer zu bestimmenden VOC-Quelle zu platzieren. Dabei wird angenommen, dass sich das Tracergas in der turbulenten atmosphärischen Dispersion genauso verhält wie die zu

bestimmenden VOC. Die gesuchte VOC-Emissionsrate erhält man über das Konzentrationsverhältnis zwischen VOC und dem Tracergas an einem Punkt im Abwind der untersuchten Anlage und dem bekannten Tracergasmassenstrom. Diese Methode ist unabhängig von den Windbedingungen. Windmessungen werden benötigt, um einen geeigneten Probenahmepunkt im Abwind der Anlage zu finden.

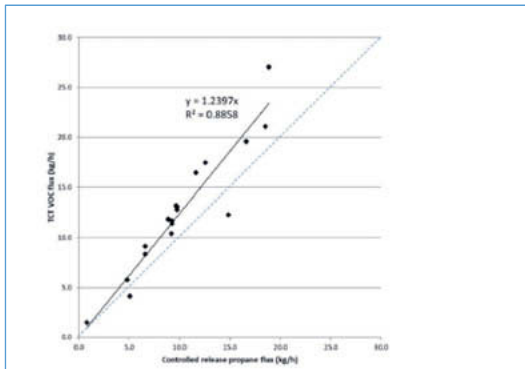


Bild 7: Korrelation der TCT-Ergebnisse (in kg/h) mit den kontrollierten Freisetzungsraten

4.1.6 Gesamtauswertung

Die Korrelation aller vier untersuchten Methoden zeigt ein gutes Ergebnis.

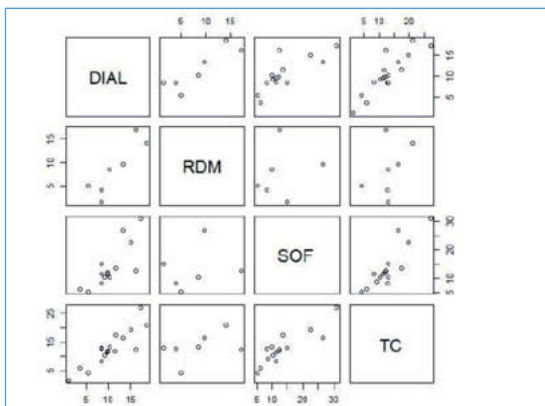


Bild 7: Korrelation zwischen den vier verschiedenen Methoden

4.2 Zweiter Feldtest an industrieller Großanlage (reale Industriebedingungen)

Das Ziel des zweiten Feldtests war die Anwendung der getesteten Messmethoden unter Industriebedingungen. Die Raffinerie wurde in neun Sektionen aufgeteilt, die über Werksstraßen zugänglich waren. Dort konnten die DIAL- und SOF-Techniken mit Messfahrzeugen angewendet werden. Die OGI-Technik wurde dort angewendet, wo mit den Fernmesstechniken Leckagen identifiziert worden waren. Die Tracer-Korrelations-Methode wurde nur für vier Quellen angewendet. Die RDM-Technik wurde nur an der Abwasserbehandlungsanlage eingesetzt.

Für die Massenstrombestimmungen sind die Windfeldermittlungen wichtig. Dafür wurden drei mobile meteorologische Stationen (10-m-Mast für Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperatur und Feuchte) in der Raffinerie aufgebaut (Nord-West, Süd-West und Süd-Ost). Zusätzlich wurde ein Wind-Lidar verwendet (Süd-Ost).

Tabelle 3: Ergebnisse der DIAL-Messungen

Source		Time period	Validated scans	VOC mass flux (average)		95% level of confidence		
		(days)	(number)	kg (VOC)/h		kg (VOC)/h		
1. East Tank Park	T1	1	4	3.5	41.7	0.8		
	T2 & T3	1	4	9.3		1.9		
	T4 & T5	1	4	9.4		3.3		
	T6	1	4	8.2		2.3		
	T7	1	5	6.9		1.6		
	T8	1	4	4.4		3.1		
	5. PetroChemical Tank Park	T9 West	1	4		2.8	7.1	0.8
		T10	1	3		3.3	1.6	
3. Middle Tank Park	T11	1	4	1.0	150.0	0.6		
	T12	1	4	1.4		0.4		
	T13	1	6	11.2		1.6		
	T14 - Temp Source	1	4	130.0		59.9		
	T15	1	4	7.5		2.5		
2. West Tank Park	T16	1	4	0.0	10.2	1.8		
	T17	1	4	10.3		2.0		
6. Main Process	P1	1	4	20.2	54.5	9.8		
	P2	1	4	16.2		4.8		
	P3	1	1	18.0		2.2		
7. PetroChemical Process	P4	1	4	25.7	48.0	7.7		
	P5	1	4	9.8		7.1		
	P6	1	4	12.4		5.3		
8. WWT	WT	2	19	25.9	25.9	5.9		
10. Vent Pipe	Stack SE Site Area - Temp Source	1	6	6.7	6.7	1.9		
11. Truck Loading Area	Truck Loading - Temp Source	1	5	11.2	11.2	2.4		
	T9 Est - T603 & T614 Cyclohexane *	1	4	101.1	101.1	79.7		
	Flare - Temp Source	1	4	10.7	10.7	1.4		
	Coker - Temp Source	1	4	29.1	29.1	7.3		
				Total, no temp sources :	207.4	15.2		
			Total, including temp sources :	395.1	64.0			
			Total, including cyclohexane estimate :	496.2	88.5			

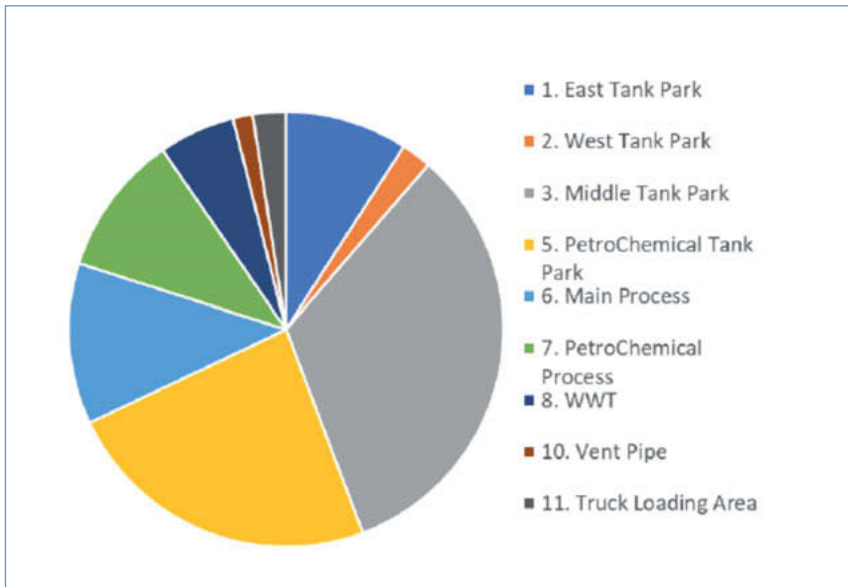


Bild 8: Quellzuordnung der VOC-Emissionen mit der DIAL-Technik

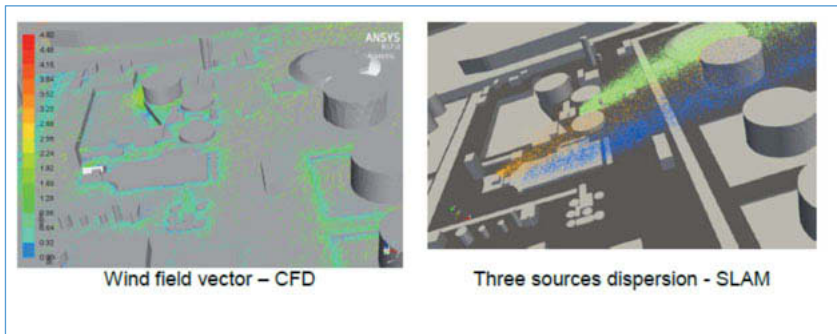


Bild 9: RDM-Technik – Modellierung der Abwasseranlage

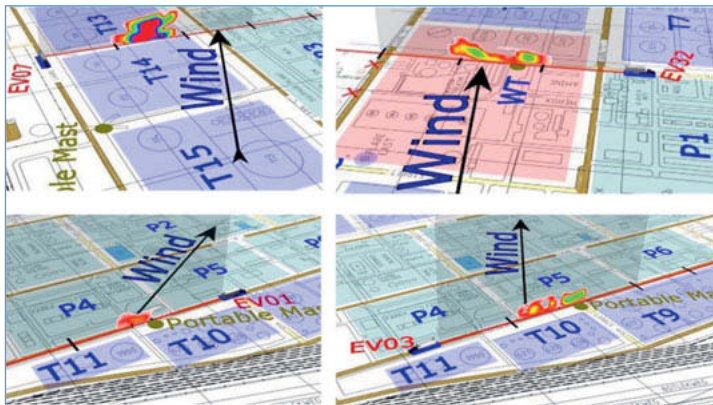


Bild 10: DIAL-Technik – Beispiel aus der Messkampagne

Tabelle 4: Übersicht über die Ergebnisse mit den verschiedenen Methoden

Refinery Area	SOF		DIAL		TC (MeFTIR)		RDM	
	median	stdev	mean	stdev	mean	stdev	mean	stdev
	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h
1. East Tank Park	76	51	42					
2. West Tank park	30	11	10					
3. Middle Tank Park	316	296	150	60				
5. Petrochemical Tank park	61	30	108	80	43	23		
6. Main Process Area	40	24	55					
7. Petrochemical Process Area	37	25	48					
8. Waste Water Treatment	13	3	7		9	3	12	4
10. Vent Pipe	21	8	7	2	30	31		
11. Truck Loading Area	11	12	11					
Total (bottom up)	605		437					
Total (top down)	694							

Der vertrauliche Abschlussbericht wurde im Juni 2018 der Europäischen Kommission vorgelegt. Eine Publikation ist in Vorbereitung. Alle betrachteten Messtechniken wurden erfolgreich unter industriellen Bedingungen angewandt.

Die ermittelten Gesamt-Emissionsraten (Summation der Einzelquellen) unterscheiden sich für DIAL und SOF (um 38 %); allerdings müssen dabei die ausgewiesenen Unsicherheiten berücksichtigt werden. Ein VOC-Emissions-Einfluss der benachbarten Raffineriebereiche ist außerdem nicht ausgeschlossen.

Die OGI-Kampagne war sehr erfolgreich. Wo die anderen Techniken die Wahrscheinlichkeit des Auftretens einer Emissionsquelle anzeigten, wurde die Quelle fast immer gefunden. Der Nachweis der Quellen aus einer Entfernung von ≥ 50 m war typisch für die größten Emissionen. Tankemissionen konnten sowohl entlang des Tankdaches, als auch von unten identifiziert werden. Die Kombination der mobilen Fernmessmethoden, die mittels Messfahrzeugen relativ schnell höhere Konzentrationen feststellen können (SOF oder DIAL) und nachfolgend die genaue Quellidentifizierung mit OGI, wurden als sehr effizient beurteilt.

5. Leistungsanforderungen

In der folgenden Tabelle sind erste Ansätze für Leistungsanforderungen formuliert, die sich aus der praktischen Anwendung der Methoden ergeben haben. Die Diskussionen hierzu sind noch nicht abgeschlossen, die abschließend in der Norm publizierte Tabelle wird ein anderes Aussehen haben.

Tabelle 5: Leistungsanforderungen (Beispiel)

Method	DIAL	OGI	RDM	SOF	TC
Main equipment (1 – 30m) emission source identification and quantification					
Time period to achieve required uncertainty	1 hour but measurements has to be repeated on different days / or different operating conditions	1 hour. Identification only	A few days, with winds > 2 m/s. Quantification only but identification during measurement path. Needs a perfect assessment of source	1 hour but measurements has to be repeated on different days / or different operating conditions	A few hours, with winds > 0.5 m/s. Quantification only.
Uncertainty	10 – 20 %	Not applicable	30 - 40 % with winds > 2.0 m/s	30 – 40 % depending on obstruction and with winds > 1.5 m/s	30 %, need to well know the source
Limit of quantification	1 kg/h	Not applicable	5 kg/h	1 kg/h	1 kg/h

6. Die Europäische Norm

Die zugehörige Europäische Norm wird einen ganz eigenen Charakter haben, da nicht ein definiertes, validiertes Messverfahren zugrunde gelegt ist, sondern ein Messkonzept, bestehend aus unterschiedlichen Mess- und Auswerteverfahren, deren Ergebnisse sich zu einem Gesamtbild ergänzen. Für diese Verfahren werden Leistungsanforderungen definiert und Qualitätssicherungsmaßnahmen beschrieben, die dafür sorgen sollen, Ergebnisse mit einer definierten Messunsicherheit zu erzielen. Mit dem Normentwurf ist im Jahr 2020 zu rechnen.

In der weiteren Bearbeitung der Europäischen Norm geht es um die Beurteilung der Datenqualität der Ergebnisse für jede Messmethode, die Auswirkungen von VOC-Hintergrundkonzentrationen und den Einfluss von Windrichtung und Windgeschwindigkeit auf die Datenqualität. Die Speziation (Einzelstoffbestimmung) der VOC ist jeweils zu beachten. Die methodenspezifischen Ergebnisse der Feldtests sollen in die Methodenbeschreibungen Eingang finden.

Die Ergebnisse der Validierungsexperimente werden in einem informativen Anhang [6] auf Grundlage des öffentlich zugänglichen Validierungsberichtes (VDI – Webseite) zusammenfassend dargestellt.

7. Schlussfolgerungen zur Überwachung diffuser VOC-Emissionen

Ein umfassendes Screening und die Quantifizierung der Emissionen eines Standorts lassen sich mit einer geeigneten Kombination einander ergänzender Verfahren erreichen, z.B. durch Messkampagnen mit SOF oder DIAL. Diese Ergebnisse lassen sich für eine zeitliche Trendanalyse, Gegenprüfung und Aktualisierung/Validierung des laufenden LDAR-Programms verwenden. (LDAR = Leak Detection And Repair)

8. Literatur

- [1] Validierung in der Analytik, Stavros Kromidas, Weinheim : Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2011, Kapitel 1.2.1
- [2] CEN Guide 13, Validation of environmental test methods Version dated 2008-10-29, https://boss.cen.eu/ref/CEN_13.pdf
- [3] Best Available Techniques (BAT) Reference Document for the Refining of Mineral Oil and Gas: http://eippcb.jrc.ec.europa.eu/reference/BREF/REF_BREF_2015.pdf
- [4] DURCHFÜHRUNGSBESCHLUSS DER KOMMISSION vom 9. Oktober 2014 über Schlussfolgerungen zu den besten verfügbaren Techniken (BVT) gemäß der Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates über Industrieemissionen in Bezug auf das Raffinieren von Mineralöl und Gas (2014/738/EU) <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/DE/TXT/PDF/?uri=CELEX:32014D0738&from=EN>
- [5] 1st Interim Report under Mandate CEN/2014-07 SA/CEN/EFTA/514/2014-07 dealing with "Stationary source emissions - Standard method to determine fugitive and diffuse emissions of volatile organic compounds into the atmosphere" elaborated by CEN/TC 264/WG 38: <https://www.vdi.de/technik/fachthemen/reinhaltung-der-luft/europaeische-und-internationale-normung/results-of-european-lab-and-field-validation-tests/>
- [6] Stationary source emissions — Guideline for the elaboration of standardized measurement methods — Recommendations for the structure and content, 6.16, CEN/TC 264 Task Force Emissions, 2019, Draft

Messwertgestützte Lagrange-Rückrechnung zur Lokalisierung und Charakterisierung von Emissionsquellen

Ralf Petrich, Axel Delan, IFU GmbH, Frankenberg/Sa.

Kurzfassung

Die in den vergangenen Jahren rasch fortgeschrittene Entwicklung von Rechentechnik und Rechenmodellen zur Anwendung in der Umweltmeteorologie hat dazu geführt, dass bei uns im Unternehmen unter anderem eine neuartige Lösung zur Rückrechnung von Immissionskenngrößen hin zu Emissionsstärken und zum Auffinden des Quellortes entstanden ist. Dieses Verfahren vereint modernste Modellansätze in der Ausbreitungsrechnung (die dann revers betrieben wird) auf Basis von Lagrange-Modellen nach VDI-Richtlinie 3945 Blatt 3 und prognostischen Windfeldmodellen nach VDI-Richtlinie 3783 Blatt 7. Aufgrund dieser Modellansätze ist es möglich, Phänomene wie komplexes Gelände und Kaltluftabflüsse in die Untersuchungen einzubeziehen. Als Ergebnis erhält man den Ort und die Emissionsfracht einer oder mehrerer Quellen, die vorher nicht bekannt sein müssen.

Bislang wurden Rückrechnungen auf Emissionsstärken häufig so vorgenommen, dass für einen vorgegebenen Quellort die Quellstärke in einem iterativen Verfahren so lange modifiziert wird, bis sich eine möglichst gute Übereinstimmung zu den (häufig gemessenen) Immissionskenngrößen erreicht wird. Der zu erwartende Informationsgewinn bei diesem Verfahren ist meist nicht besonders groß, da man bei bekannter Quellgeometrie nur versucht, wenigstens die Quellstärke zu ermitteln. Da bei Betrachtung von Gerüchen während der Ausbreitungsrechnung noch eine Perzentilbildung stattfindet, erschwert sich das Verfahren weiterhin. Inzwischen wird auch versucht, mit ganzen Netzen von sogenannten „Low-Cost-Sensoren“ rückwärts zu modellieren, um Quellterme zu bestimmen. Auch bei diesen Verfahren sind die Ergebnisse oft nicht belastbar, da die Messwerte nicht qualitätsgesichert sind.

Deshalb wurde nach neuen Ansätzen gesucht, um die Rückrechnung effektiver im Hinblick auf die Informationsausbeute zu gestalten. Dazu gehört, dass mehr Informationen in die Berechnung einfließen. Grundidee war deshalb, zeitaufgelöste Messwerte für die Immissionskonzentration in Kombination mit zeitaufgelösten meteorologischen Parametern für die Rückrechnung zu verwenden.

Dazu wurde mit dem Programmsystem LASAT ein Verfahren der Lagrange-Rückwärtstrajektorien entwickelt. Dieses basiert darauf, dass die einzelnen Lagrange-

Partikel während ihrer Ausbreitung durch das Rechengebiet in jedem Zeittakt verfolgt werden können. Das stellt hinsichtlich der zu verarbeitenden Datenmenge enorme Anforderungen an die Rechentechnik, was aber durchaus zu bewältigen ist. Da im Vorfeld keine Annahmen über die Lage der Quelle gemacht werden müssen, kann mit diesem Verfahren auch ein a-priori nicht bekannter Quellort ermittelt werden, nicht nur eine Emissionsstärke. Voraussetzung dafür ist eine hinreichend lange Beobachtung der Immissionskenngroße und eine ausreichend große Varianz in der Windrichtung. Dann kann die neuentwickelte Rückrechnung nicht mehr nur eine Windrichtungsabhängigkeit ermitteln, sondern ist auch in der Lage, die Entfernung zur Quelle mit einer gewissen Unschärfe zu bestimmen und kann zwischen einer weit entfernten starken Quelle und einer naheliegenden schwachen Quelle zu unterscheiden. Somit ist die Auswertung der Rückwärts-Trajektorien bei der Lagrange-Ausbreitung ein gut geeignetes Werkzeug, um Rückrechnungen dieser Art durchzuführen.

1. Ausgangssituation

Herkömmliche Methoden zur Rückrechnung ermitteln meist mit Messtechnik oder bei Gerüchen durch Begehung einen zeitlichen Mittelwert der betrachteten Kenngröße an einem oder mehreren Aufpunkten im Rechengebiet.

Dann wird versucht, über Variationen der Quellstärke und iterativ wiederholten Ausbreitungsrechnungen solche Parameter zu finden, die bei durchgeführter Ausbreitungsrechnung die an den Aufpunkten ermittelten Kenngrößen möglichst gut reproduzieren. Der zu erwartende Informationsgewinn ist bei diesem Verfahren meist nicht besonders groß, da man bei bekannter Lage und Quellgeometrie nur versucht, wenigstens die Quellstärke zu ermitteln. Dass insbesondere bei Betrachtung von Gerüchen während der Ausbreitungsrechnung noch eine Perzentilbildung stattfindet, erschwert dieses Verfahren weiterhin.

Deshalb wurde nach neuen Ansätzen gesucht, um die Rückrechnung effektiver im Hinblick auf die Informationsausbeute zu gestalten. Dazu gehört, dass man eine größere Menge an Informationen in die Berechnung einfließen lässt. Grundidee war deshalb, möglichst hoch zeitaufgelöste Messwerte für die Konzentration am Aufpunkt oder an mehreren Aufpunkten und für die Windparameter zu erheben und für die Berechnung zu verwenden.

2. Lösungsansatz

Als ein möglicher Ansatz zur Verbesserung der Effizienz bei Rückrechnungen wurde die Rückverfolgung von Trajektorien bei der Lagrange-Ausbreitungsmodellierung untersucht. Lagrange-Ausbreitungsmodelle (beispielsweise Austal 2000 [1], LASAT [2], GRAL [3]) beru-

hen auf beweglichen Lagrange-Partikeln, die an den Quellpunkten starten und sich geführt von Windfeld und Turbulenzfeld durch das Rechengebiet bewegen. Dabei wird angenommen, dass jedes Lagrange-Partikel eine definierte Masse an Luftbeimengung trägt, deren Ausbreitung modelliert werden soll. Die Anzahl der pro Zeiteinheit emittierten Lagrange-Partikel hat die Dimension Masse pro Sekunde, was dem Emissionsmassenstrom entspricht. Zu jedem Zeitpunkt der modellierten Ausbreitung ist es dann möglich, die Anzahl von Lagrange-Partikeln in einer Gitterzelle zu zählen. Diese Anzahl pro Volumeneinheit hat die Dimension einer Konzentration, woraus über die den Partikeln zugeordnete Masse auf die Konzentration der Luftbeimengung in dieser Zelle zu schließen ist.

Damit ergibt sich eine räumliche (über die Gitterzellen) und zeitliche (über die Zeitschritte der Ausbreitungsmodellierung) Verteilung der Konzentration der Luftbeimengung im ganzen Rechengebiet. Die Partikel können rechentechnisch mit einer Markierung versehen werden, um zwischen verschiedenen Quellen oder verschiedenen Luftbeimengungen zu unterscheiden. In Auswertung der Ausbreitungsrechnung werden für bestimmte Aufpunkte (Immissionsorte) bzw. flächendeckend zeitliche Mittelwerte der Konzentration oder Perzentile ausgerechnet, die den zu ermittelnden Kenngrößen entsprechen.

Grundidee der hier vorgestellten Rückrechnung ist, dass die an einem Aufpunkt eintreffenden Lagrange-Partikel auf ihrer simulierten Flugbahn (Trajektorie) zurückverfolgt werden können. Eine am Aufpunkt vorgefundene Konzentration (beispielsweise durch Messung bestimmt) muss sich im Kontext der Lagrange-Modellierung über Lagrange-Partikel abbilden lassen, die zuvor am Ort einer Quelle emittiert wurden und sich hin zum Aufpunkt ausgebreitet haben. Für den vereinfachten Fall einer einzigen Punktquelle bedeutet diese Überlegung, dass alle am Aufpunkt ankommenden Lagrange-Partikel am Ort dieser Punktquelle emittiert worden sein müssen. Damit ist es durch Rückverfolgung der Lagrange-Trajektorien möglich, ein Gebiet zu finden, in dem die Punktquelle liegt. Da für die Auswertung möglichst viele Lagrange-Partikel statistisch betrachtet werden, ergibt sich für den gesuchten Quellort natürlich nicht ein einziger Punkt, sondern eine Wahrscheinlichkeitswolke. Diese gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit der gesuchte Quellort an diesem Punkt im Rechengebiet liegt. Für eine stationär modellierte Ausbreitung, also bei als zeitlich konstant angenommenen Parametern für Windrichtung, Windgeschwindigkeit und Schichtung, entspricht diese Wahrscheinlichkeitswolke dem Luv-Bereich vor dem Aufpunkt. Sie lässt sich als eine Art rückwärts gerichtete Fahne verstehen. Bild 1 verdeutlicht dies in einer vereinfachten Grafik.

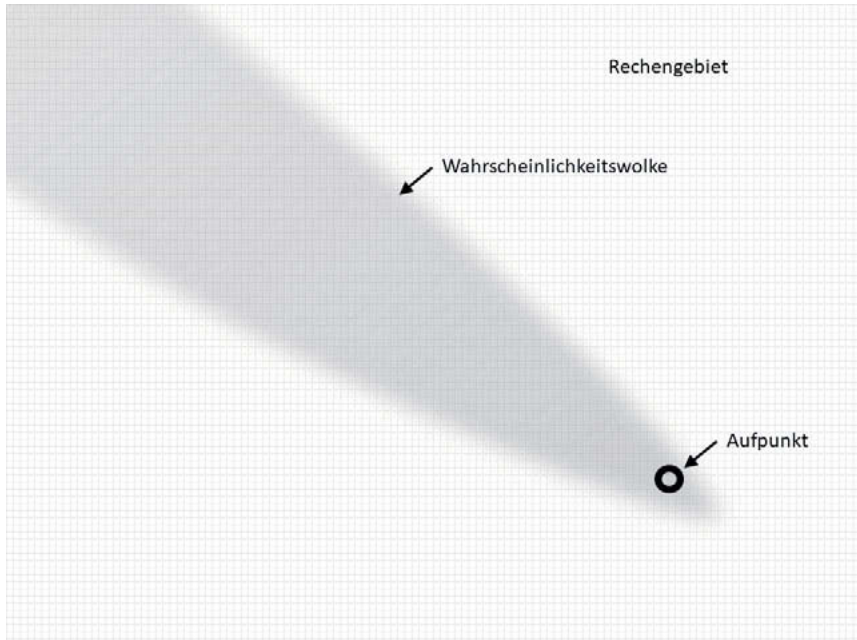


Bild 1: Wahrscheinlichkeitswolke im Luv des Aufpunktes dafür, dass die Quelle an diesem Ort liegt

Allein durch diese Auswertung lässt sich zwar die ungefähre Richtung ermitteln, in der die Quelle liegt, nicht jedoch die Entfernung. Dies ist verständlich, da aus dieser Richtung über die gesamte Entfernung Lagrange-Partikel am Aufpunkt eintreffen.

Eine Bestimmung der Entfernung wird darüber hinaus möglich, wenn man anstelle der stationär modellierten Ausbreitung eine instationäre Modellierung durchführt. Dies sei anhand von zwei meteorologischen Situationen und Bild 2 erklärt. Dabei werden die Wahrscheinlichkeitswolken überlagert, die sich für jede der instationär modellierten Situationen ergeben. Für die erste Situation dreht der Wind im Laufe der Modellierung von West nach Nordwest, für die zweite Situation von Nord nach Nordwest. Das sich im Überlappungsbereich der Wahrscheinlichkeitswolken ergebende lokale Maximum kann als Hinweis auf eine Quelle in diesem Bereich gewertet werden.

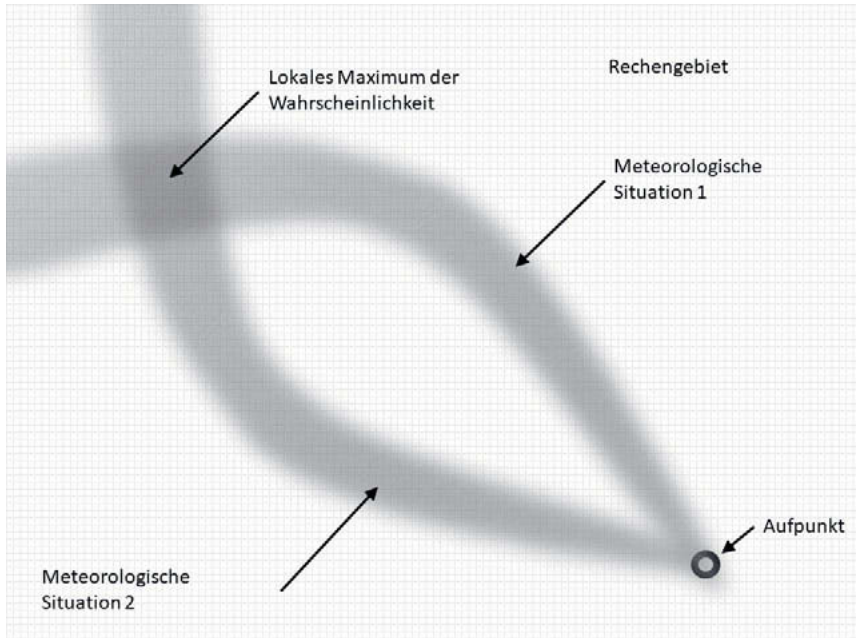


Bild 2: Schematische Darstellung von überlagerten Wahrscheinlichkeiten bei zwei instationär modellierten meteorologischen Stationen

Je mehr instationäre Situationen in die Auswertung eingehen, umso bessere Ergebnisse liefert die Statistik hinter diesem Verfahren. Dies setzt natürlich voraus, dass auch die instationäre Modellierung dieser Situationen möglichst realitätsnah erfolgt. Dies gelingt nur unter Anwendung moderner prognostischer Windfeldmodelle, die eine instationäre Modellierung erlauben und dabei numerisch stabil sind. Weiterhin ist es notwendig, Lagrange-Partikel im gesamten Rechengebiet und sogar in allen Modellebenen zu emittieren, in denen Quellen vermutet werden. Dies führt in der Praxis zu einem um Mehrfaches größeren Rechenaufwand als eine Ausbreitungsrechnung mit fixierten Quellorten. Die Leistungsfähigkeit des Verfahrens steigt, wenn an mehreren Orten gleichzeitig Konzentrationsmessungen durchgeführt werden (mehrere Aufpunkte), wodurch sich die einzelnen Wahrscheinlichkeitswolken zu einem schärferen Maximum überlagern.

Die für die hier vorgestellte Methodik notwendigen Voraussetzungen lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- instationäre prognostische Windfeldmodellierung und daran gekoppelte Lagrange-Ausbreitungsrechnung mit Protokollierung der Partikel-Trajektorien und genügend feinem Zeitschritt (beispielsweise eine Minute), Emission von Lagrange-Partikeln im gesamten Rechengebiet, oder dem Gebiet, in dem Quellen vermutet werden
- zeitlich aufgelöste Erfassung der Winddaten (Messung im Rechengebiet, Zeitauflösung beispielsweise zehn Minuten, vektorielle Interpolation der Zwischenwerte)
- zeitlich aufgelöste Erfassung der Konzentration der betrachteten Luftbeimengung an einem oder mehreren Aufpunkten (passend zum Zeitschritt der Lagrange-Ausbreitungsrechnung)
- genügend häufiges Auftreten von drehenden Winden und wechselnden meteorologischen Situationen, im Zusammenhang mit einer ausreichend langen Messzeit (beispielsweise über mehrere Wochen)

3. Praktische Umsetzung

Bisher wurden mehrere Projekte mit dem vorgestellten Verfahren bearbeitet, die dem Charakter nach sowohl Forschungsprojekte als auch konkrete Anwendungsfälle waren.

Die instationäre Windfeldmodellierung wurde mit dem prognostischen Windfeldmodell GRAMM (Versionen 17.01 und 19.01) [3] durchgeführt, das sich dabei als ausreichend präzise und numerisch stabil erwiesen hat. Darüber hinaus gab es Versuche, ebenfalls das Windfeldmodell METRAS-PCL (Version 5.0) [4] zu verwenden, die aber nach einer Entscheidung zur Verwendung von GRAMM nicht weiterverfolgt wurden.

Die Lagrange-Ausbreitungsmodellierung erfolgte mit LASAT (Version 3.4) [2]. Dabei wurde auf eine Funktionalität in LASAT zurückgegriffen, die es erlaubt, dass die einzelnen Lagrange-Partikel während ihrer Ausbreitung durch das Rechengebiet in jedem Zeittakt verfolgt werden können. Dies stellt hinsichtlich der zu verarbeitenden Datenmenge enorme Anforderungen an die Rechentechnik, was aber durchaus zu bewältigen ist. Da im Vorfeld keine Annahmen über die Lage der Quelle gemacht werden sollten, musste eine bodennahe Flächenquelle über das gesamte Rechengebiet aufgespannt werden, um zu gewährleisten, dass Lagrange-Partikel von allen Gitterzellen im Rechengebiet starten. Durch diese Maßgabe musste die Partikelanzahl im Rechenlauf entsprechend hoch gewählt werden, was den notwendigen Rechenaufwand weiter erhöhte.

Bild 3 zeigt beispielhaft ein Ergebnis für eine Rückrechnung mit Lagrange-Trajektorien. Die zeitaufgelösten Windmessungen wurden mit einem Ultraschallanemometer durchgeführt, wobei ein Mittelungszeitraum von zehn Minuten angesetzt wurde. Die zeitaufgelösten Konzentrationsmessungen am Aufpunkt wurden mit einem Smellmaster-Gerät durchgeführt, das

für jede einzelne Minute einen Konzentrationswert lieferte. Die Messungen wurden über drei Monate durchgeführt.

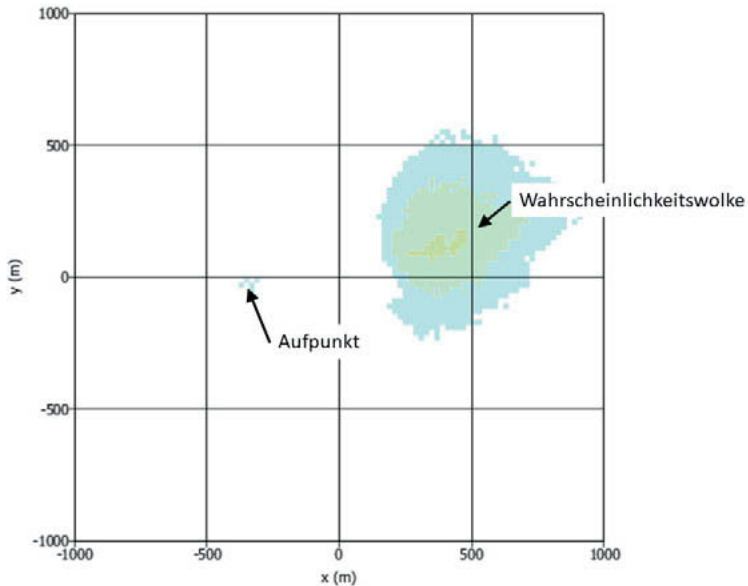


Bild 3: Beispiel für eine Rückrechnung mit Lagrange-Trajektorien

Zur prognostischen Windfeldmodellierung und für die Lagrange-Ausbreitungsrechnung mit Partikelverfolgung wurden mehrere Hochleistungsrechner (DELL Poweredge 930) mit insgesamt 160 Intel-Rechenkernen eingesetzt. Als schnelle Speichermedien zur Zwischenspeicherung der Partikelpositionen und deren Auswertung dienten Disk-Stationen von Synology mit zehn Gigabit-Netzwerk-Anbindung an die Hochleistungsrechner und einem gesamten installierten Speicher von 120 Terabyte.

4. Vorteile bei der Anwendung und Modellgrenzen

Es ist ersichtlich, dass die neuentwickelte Rückrechnung nicht mehr nur eine Windrichtung ermittelt, in der die Quelle liegen könnte, sondern auch in der Lage ist, die Entfernung zur Quelle mit einer gewissen Unschärfe zu bestimmen. In gewissen Grenzen ist es damit möglich, zwischen einer weit entfernten starken Quelle und einer naheliegenden schwachen Quelle zu unterscheiden. Dieser Zugewinn an Information in der Rückrechnung ist offenbar

erzielt worden, indem über die zeitaufgelösten Messungen von Meteorologie und der Konzentration am Aufpunkt zusätzliche Informationen ausgewertet werden konnten. Somit ist die Auswertung der Rückwärts-Trajektorien bei der Lagrange-Ausbreitung offenbar ein gut geeignetes Werkzeug, um Rückrechnungen dieser Art durchzuführen.

Weiterhin ist zur Rückrechnung kein iterativer Ansatz notwendig, um Ergebnisse einer Ausbreitungsrechnung nach und nach an gemessene Werte anzufitten. Vielmehr wird die Lösung, der vermutete Ort der Quelle und deren Quellstärke, in einem einzigen Rechengang gefunden.

Da weder Kenntnis über Ort und Geometrie einer Quelle im Vorfeld notwendig sind, lassen sich auch ausgedehnte und diffuse Quellen charakterisieren, wie beispielsweise ganze Kanalnetze. Durch Netzschachtelung am Aufpunkt und in der Nähe der vermuteten Quelle, was in LASAT möglich ist, lässt sich Genauigkeit und die Schärfe der Lösungsfindung verbessern.

Als nachteilig hat sich der enorme Rechenaufwand und die zur Speicherung der Zwischenergebnisse (Lagrange-Trajektorien) notwendige Infrastruktur erwiesen. Dies sollte jedoch im Zuge der sich derzeit rasant weiterentwickelnden Technik kein Hindernis für die Anwendung des Verfahrens darstellen. Letztlich wurden alle bisherigen Projekte mit handelsüblicher PC-Technik bearbeitet.

Als numerisches Problem beim vorgestellten Verfahren hat sich gezeigt, dass unvermeidlich auch in unmittelbarer Nähe des Aufpunktes eine Überlappung der Wahrscheinlichkeitswolken stattfindet, ähnlich der Überlappung an Orten, an denen tatsächlich eine Quelle ist. Wenn sich aber um den Aufpunkt eine Quelle ausschließen lässt, kann dieser Bereich aus den Betrachtungen ausgeklammert werden.

Schließlich muss eingeräumt werden, dass eine möglichst realistische instationäre prognostische Windfeldmodellierung außerordentlich wichtig für eine Brauchbarkeit der Ergebnisse ist. Werden bei der Windfeldmodellierung systematische Fehler gemacht, beispielsweise bei der Modellierung lokaler thermischer Effekte, so summieren sich diese in der statistischen Auswertung der Trajektorien und führen zu falschen Ergebnissen wie „Geister-Quellen“ an Orten, wo in der Realität keine Quellen sein können. Eine Plausibilitätsprüfung der Ergebnisse ist also sehr wichtig.

5. Ausblick

Das vorgestellte Verfahren hat aufgrund seiner numerischen Eleganz verschiedene Möglichkeiten einer Weiterentwicklung. Beispielsweise können mehrere Aufpunkte festgelegt werden, an denen die Konzentration gemessen wird. Damit erhöht sich die Güte und Schärfe der Ergebnisse deutlich.

Weiterhin hat die zur Konzentrationsmessung verwendete Smellmaster-Technologie die Möglichkeit, an einem Aufpunkt nicht nur eine einzige, sondern mehrere Luftbeimengungen unabhängig voneinander zu vermessen. So können beispielsweise in einer Gemengelage mehrere Gerüche voneinander getrennt werden und es kann für jedes einzelne Geruchsmuster eine zugehörige Quelle lokalisiert werden.

Das zur Auswertung verwendete statistische Verfahren lässt es zu, bei bekannten zeitlich variablen Emissionen auch diese Effekte einzubeziehen.

Die Arbeiten zu dieser Thematik in Kooperation mit dem Umweltforschungszentrum Leipzig wurden im Rahmen der BMBF-Fördermaßnahme "Validierung des technologischen und gesellschaftlichen Innovationspotenzials wissenschaftlicher Forschung - VIP+" bundesweit mit einem dritten Preis ausgezeichnet.

6. Literatur

- [1] Ingenieurbüro Janicke GbR Gesellschaft für Umweltphysik, „AUSTAL2000,“ [Online]. Available: <http://austal2000.de/de/home.html>. [Zugriff am 30. November 2011].
- [2] Ingenieurbüro Janicke GbR Gesellschaft für Umweltphysik, „LASAT,“ [Online]. Available: <http://janicke.de/de/lasat.html>. [Zugriff am 30. November 2011].
- [3] D. Öttl, „Documentation of the prognostic mesoscale model GRAMM (Graz Mesoscale Model) Vs. 17.1,“ Amt der Steiermärkischen Landesregierung, Graz, 2017.
- [4] „METRAS-PCL,“ Universität Hamburg, 28 September 2018. [Online]. Available: <https://www.mi.uni-hamburg.de/en/arbeitsgruppen/memi/modelle/metras-pcl.html>. [Zugriff am 10. Mai 2019].

42. BImSchV – Anforderungen an die Untersuchungen und Inspektionen

Dr. **Detlef Wagner**, Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW, Recklinghausen

Inhalt

1. Allgemeines
2. Mikrobiologische Untersuchungen (incl. PN)
3. Inspektionen mit Bewertungen
4. Fachliche Anforderungen in der VO
5. Kompetenznachweis durch Akkreditierung
6. Die UBA-Empfehlung
7. Prüfbereiche
8. Anforderungen an Personal und Ausstattung
9. Zuverlässigkeit und Unabhängigkeit
10. Nachweise
11. Qualifikation von Fachgutachtern



Allgemeines

- Untersuchungen und Inspektionen nach 42. BImSchV
- Immissionsschutzrechtliche Regelungen
- Gesundheitsgefahren!
- Bedeutung der Kompetenz
- Akkreditierung als Kompetenznachweis
- Scope muss zur Untersuchungsaufgabe passen
- Weitere Unterlagen für Behörden über Akkreditierung (Abweichungen, Begutachtungstiefe,....)



Mikrobiologische Untersuchungen

Was ist das?

- Aufgabe entsprechend 42. BImSchV
 - Fachlich qualifizierte Probenahme
 - Erfassung der Betriebsbedingungen
 - Transfer ins mikrobiologische Labor
 - Quantifizierung und Identifizierung
 - Berichterstattung als Grundlage für Maßnahmen durch den Betreiber!
- => behördliches Handeln: Überwachung (§52 BImSchG)
- => Untersuchungen nach §26, 28 BImSchG



Inspektionen mit Bewertungen

Vereidigte Sachverständige oder akkreditierte Stelle

- EN 17020 (Typ A) ⇔ EN 17024
- Unabhängigkeit/Unparteilichkeit?
- keine Anforderung an das Personal in der VO
- VO regelt was inspiziert wird
- Anforderungen an den Bericht?
- Schnittstelle Untersuchung : Inspektion



Fachliche Anforderungen in der VO (I)

- Laboruntersuchungen §3 Abs. 5 (Zusatzwasser)
- Laboruntersuchungen §3 Abs. 7 (Kühl- und Waschwasser)
 - erste nach §4 Abs. 2: chemische, physikalische **oder** mikrobiologische Untersuchung
 - erste nach §4 Abs. 3: Parameter Legionellen (s. §2)
 - Unverzögliche Unterrichtung (Zuverlässigkeit!)
- Laboruntersuchung und dafür erforderliche PN (§3 Abs.8)
 - Jeweils durch akkreditiertes Prüflaboratorium (§2)
 - Nach genormten Verfahren
 - Berücksichtigung ggf. vorliegender UBA-Empfehlungen



Exkurs: Akkreditierung als Kompetenznachweis

Akkreditierung nach DIN EN ISO/IEC 17025 (RL 765/2008 EG)
bzw. DIN EN ISO/IEC 17020

- Genormte Verfahren
- Empfehlungen des UBA (2.6.2017)
 - Akkreditierung für Nachweis von Legionellen in Wässern nach ISO 11731:1998 und DIN EN ISO 11731-2:2008
 - Erfahrung mit Wässern mit hoher Begleitflora
 - Probenehmerschulung für Trinkwasser
 - Qualifikation gemäß Schulung nach VDI 2047-2
 - Probenahme: DIN 19458 (Abschnitt C)
 - Nachweis Legionellen: ISO 11731:2017

Exkurs: UBA-Empfehlung (2.6.2017)

In Überarbeitung!

- Anforderungen an die Probenahme (DIN EN ISO 19458)
=> Betriebsbedingungen, Planung, PN-Protokoll
- Probentransport und Lagerung
=> Zeitvorgaben, Transport- und Lagerbedingungen, Dokumentation
- Legionellennachweis und Typisierung
- Berichterstattung

Fachliche Anforderungen in der VO (II)

Untersuchungen Verdunstungskühlanlagen

- Laboruntersuchungen
 - §4 Abs. 1: **Referenzwert** Allgemeine Koloniezahl
 - Eintragung in Betriebstagebuch
 - §4 Abs. 2: Allgemeine Koloniezahl alle 3 Monate
 - §4 Abs. 3: Parameter Legionellen alle 3 Monate
 - §4 Abs. 4: keine Auffälligkeit => alle 6 Monate, 1 im Sommer
- betriebsinterne Überprüfungen
 - §4 Abs. 2: chemische, physikalische **oder** mikrobiologische Untersuchung alle 2 Wochen



Fachliche Anforderungen in der VO (III)

Untersuchungen Kühltürme

- Laboruntersuchungen
 - §7 Abs. 2: Parameter Legionellen monatlich
 - §7 Abs. 3: keine Auffälligkeit => alle 2 Monate
- betriebsinterne Überprüfungen
 - §7 Abs. 1: chemische, physikalische **oder** mikrobiologische Kenngrößen alle 2 Wochen



Fachliche Anforderungen in der VO (IV)

Ergebnisse

- Unverzögliche Unterrichtung (Zuverlässigkeit!)
- Dokumentation im Betriebstagebuch
 - Veranlassung der Untersuchungen (intern und Labor)
 - Ergebnisse der Untersuchungen (intern und Labor)



Fachliche Anforderungen in der VO (V)

Zusätzliche Untersuchungen (bei Überschreitungen)

- Laboruntersuchungen
 - einmalig Legionellen (§6 Abs. 1)
 - monatlich allgemeine Koloniezahl und Legionellen (§6 Abs.2)
- Untersuchung zur Differenzierung der Legionellen
 - Unverzüglich (§9 Abs. 1 Nr. 1)
- Laboruntersuchung
 - Zusätzlich Legionellen (§9 Abs. 1 Nr. 3)



Fachliche Anforderungen in der VO (VI)

Inspektionen, Überprüfung der Anlagen nach §14

- Öffentlich bestellter und vereidigter Sachverständiger **oder**
- Akkreditierte Inspektionsstelle Typ A (EN 17020)
- Überprüfung des ordnungsgemäßen Anlagenbetriebs
- Bericht über das Ergebnis innerhalb von 4 Wochen
- Ergebnisse zeitgleich an Betreiber und Behörde
- Für genehmigungsbedürftige Anlagen ggf. abweichende Anforderungen

=> Zuverlässigkeit? Unabhängigkeit? Unparteilichkeit?

Anforderungen an Personal (des Betreibers)

Hygienisch fachkundige Person

1 Schulung

- DIN 2047 Blatt 2 (Januar 2015)
- VDI 6022 Blatt 4 (August 2012)
- Oder vergleichbare Schulung (interne Schulung?)

Für Inbetriebnahme/Wiederinbetriebnahme durch
Betreiber (§3 Abs. 6)

Akkreditierung: Prüfbereiche

(s.a. Anlage 1 des Fachmoduls „42. BImSchV“)

- Tätigkeitsbereiche und Stoffbereiche
- Anforderungen aus anzuwendenden
 - Rechtlichen Vorschriften
 - Normen
 - Richtlinien
- Unterauftragsvergabe
- Spezialisierung im Hinblick auf Auftragserteilung



Exkurs: „Unterauftragsvergabe“

§ 3 Abs.8 der 42. BImSchV

Der **Betreiber hat** ...Laboruntersuchungen....und Probenahmen **jeweils** von einem akkreditierten Prüflaboratorium **durchführen zu lassen**.

d.h.:

- getrennte Vergabe PN, Analytik möglich (s. FM)
- Unterauftragsvergabe nicht möglich



Anforderungen an das Personal (I)

- Fachkundiges Personal in ausreichendem Umfang
- Hauptberuflich mit Messungen/Analysen beschäftigt
- Fachlich Verantwortlicher und Stellvertreter
- Qualifikation von FV und StV (s.a. VDI 4220)
- Kenntnisse Rechts- und Verwaltungsvorschriften
 - Grundsätze des Immissionsschutzrechtes
 - BImSchG
 - 42. BImSchV
 - Fachmodul und dessen Sinn



Anforderungen an das Personal (II)

- Kenntnisse der technischen Regeln
- Kenntnisse Untersuchungsverfahren
- Fortbildungen mit praktischen Übungen
(Inhalte der Fortbildungen, Wirksamkeitskontrolle!)
- Erfahrungsaustausche
- Fachlich Verantwortlicher oder Stellvertreter an jedem Standort

Alle Anforderungen gelten gleichermaßen für fachlich Verantwortliche und deren Stellvertreter



Exkurs: Geeignete Fortbildungsmaßnahmen

- gesetzliche Grundlagen der 42. BImSchV
- Normen und Vorschriften gemäß Fachmodul
- Technik der dort genannten Anlagen
- Probenahme (Planung, Vorbereitung, Durchführung und Dokumentation)
- vor-Ort-Messungen von chemisch-physikalischen Parametern
- Praktische Übungen zu Probenahme und vor-Ort-Messung
- mikrobiologischen Untersuchungen
- Qualitätssicherungs- und –kontrollmaßnahmen
- Teilnahmenachweis erfordert Wirksamkeitskontrolle



Anforderungen an die Ausstattung

- DIN EN ISO/IEC 17025
- Gemäß Leistungsspektrum (Scope der Akkreditierung)
- Entsprechend den Anforderungen der zitierten Normen
- Entsprechend UBA-Empfehlungen



Zuverlässigkeit (I)

- Regelung analog 41. BImSchV
- Persönliche Eignung der Geschäftsführung, der fachlich Verantwortlichen und des fachkundigen Personals
- Nur hauptberufliche Beschäftigung von FV
- Keine rechtskräftige Verurteilung (Strafrecht, Umweltrecht, Infektionsschutzrecht, Betäubungsmittelrecht)
- Keine Geldstrafe wg. Verletzung der Vorschriften
- Keine wiederholte Verletzung von Vorschriften
- Kein grob pflichtwidriger Verstoß gegen Vorschriften



Zuverlässigkeit (II)

- Kein Einsatz von Personal ohne Fachkunde
- Keine wiederholt nicht bestandenem Ringversuche
- Untersuchungsergebnisse richtig/vollständig wiedergegeben
- Anforderungen des technischen Regelwerkes eingehalten
- Keine wiederholt erheblichen Mängel bei Berichten
- Keine Fristversäumnisse zur Vorlage der Berichte



Unabhängigkeit

s.a. RL 768/2008 EG

- Regelung analog 41. BImSchV
- Fachlich Verantwortliche hauptberuflich beschäftigen
- Keine Herstellung oder Vertrieb von Einrichtungen zur Verminderung der Last von Mikroorganismen
- Keine organisatorische, wirtschaftliche, personelle kapitalmäßige Verflechtung mit Dritten, deren Einflussnahme nicht auszuschließen ist (auch Anschein ist auszuschließen)

=> **Keine Verflechtungen mit Anlagenbetrieb**



(Kompetenz)Nachweise (I)

Untersuchungsstellen

- Regelung ähnlich 41. BImSchV
- FV und StV nur bei einer Stelle beschäftigt
- Vollständige Messverfahren (Probenahme und Analytik)
- Untersuchungsberichte (praktische Erfahrungen)
- Referenzmessverfahren
- Teilnahme an anerkannten Ringversuchen (alle 2 Jahre)

Nachweise aus dem Bereich Trinkwasser/Badewasser werden nicht akzeptiert!



(Kompetenz)Nachweise (II)

Inspektionsstellen

- Kenntnisse fachspezifischer immissionsschutzrechtlicher Regelungen
- Kenntnisse der für den Betreiber vorgeschriebenen Untersuchungen
- Regelmäßige Fortbildungen und Erfahrungsaustausche
- Inspektionsberichte (praktische Erfahrungen)

Nachweise aus dem Bereich Trinkwasser/Badewasser werden nicht akzeptiert!



Anforderungen an die Fachgutachter (DAkKS)

(s. a. Anlage 2 des Fachmoduls „42. BImSchV“)

- gemäß Regeln zum Begutachterwesen der DAkKS
- 4 jährige Berufserfahrung
- Nicht länger als 4 Jahre zurückliegend
- Kenntnisse mind. wie fachlich Verantwortliche aber breiter



Weitere Regelwerke

- DIN-Normen zur Probenahme und mikrobiologischen Untersuchung
- VDI-Richtlinien zum Anlagenbetrieb
- Fachmodul 42. BImSchV (Kompetenzanforderungen und –nachweise)
- VDI 4223:20xx (Anforderungen an Stellen....)
- UBA-Empfehlung (Neufassung 20XX)



Fazit

- Viele unklare Regeln
- Wenige konkrete Normen
- Untersuchungen durch Betreiber **und** Dritte (Prüflabor und Inspektionsstelle)
- Anforderungen an Prüflaboratorien präzisiert
=> Fachmodul 42. BImSchV (gemäß Immissionsschutzrecht)
- Akkreditierung probenehmende Stelle und Labor
- Akkreditierte Inspektionsstelle oder Sachverständiger
- (Derzeit) Keine Notifizierung erforderlich
- Qualitätskontrolle durch Überwachungsbehörden

=> 42. BImSchV überarbeiten?



Herausforderung der Bioaerosolmessung in der Praxis Sammlung und Nachweis an Rückkühlanlagen

M.Sc. **Laura Welp**, Dipl.-Ing. **Achim Hugo**,
Institut für Energie- und Umwelttechnik (IUTA) e. V., Duisburg;
Dr. **Andreas Nocker**, IWW Rheinisch-Westfälisches Institut für
Wasserforschung gGmbH, Mülheim an der Ruhr

Kurzfassung

Mit dem Betrieb von Verdunstungskühlanlagen kann die Freisetzung von Mikroorganismen in Form von Bioaerosolen verbunden sein, falls diese Bakterien im Kühlwasser aufgrund günstiger Lebensbedingungen (Wärme, Feuchtigkeit und Nährstoffe) hohe Konzentrationen erreichen und die Freisetzung von Aerosolen nicht ausreichend unterbunden wird. Die im Rahmen der derzeitigen Überwachungsstrategie gemäß 42. BImSchV ermittelten KBE-Werte der Legionellenkonzentration im Umlaufwasser lassen sich nicht direkt mit Konzentrationswerten im freigesetzten Aerosol der betreffenden Anlage korrelieren. Im Rahmen eines Forschungsvorhabens wurde u. a. die Anwendungsmöglichkeit einschlägiger Richtlinien bei der Aerosolprobenahme an Rückkühlanlagen untersucht, mit dem Ziel, Grundlagen für eine geeignete Probenahmestrategie zu schaffen. Am Beispiel der lokalen Strömungsverhältnisse werden Besonderheiten des hier behandelten Anlagentyps aufgezeigt, welche eine repräsentative Probenahme maßgeblich beeinflussen. Daraus werden Empfehlungen für ein zur Erfassung des emittierten Tropfenaerosols geeignetes Messprogramm abgeleitet.

1. Einleitung

Rückkühlwerke werden seit Jahrzehnten in vielen technischen Systemen zur Abfuhr von dort anfallenden Wärmelasten eingesetzt, beispielsweise bei Produktionsanlagen der Industrie, bei Kraftwerken oder in raumlufttechnischen Anlagen. Die Kühlwirkung beruht auf der Verdunstung von versprühtem oder verrieseltem Wasser. Eine damit verbundene hygienische Konsequenz kann die Freisetzung von Mikroorganismen in Form von Bioaerosolen sein, falls diese Bakterien im Kühlwasser aufgrund günstiger Lebensbedingungen (Wärme, Feuchtigkeit und Nährstoffe) hohe Konzentrationen erreichen und die Freisetzung von Aerosolen nicht ausreichend unterbunden wird. Bei inhalativer Aufnahme legionellenhaltiger Tropfenaerosole besteht insbesondere eine Infektionsgefährdung hinsichtlich meldepflichtiger Erkrankungen wie Legionellen-Pneumonie bzw. Pontiac-Fieber. In verschiedenen Fällen wurde insbesondere für

Rückkühlanlagen ein Zusammenhang zwischen anlagenbezogenen Emissionen und Legionelloseerkrankungen hergestellt. In diesen Anlagen vorherrschende Bedingungen gelten als günstig für eine Vermehrung von Legionellen. Hohe Tropfenfrachten in Kombination mit größeren Emissionshöhen dieses Anlagentyps ermöglichen nach Freisetzung einen atmosphärischen Transport über große Reichweiten und stellen somit eine potentielle Gefährdung dar. Zur zukünftigen Vermeidung von Legionellenepidemien wie in Warstein im Jahr 2013 oder Ulm im Jahr 2010 werden seit 2017 gemäß 42. Bundesimmissionsschutzverordnung Verdunstungskühlanlagen, Kühltürme und Nassabscheider [1] in einem Kataster erfasst und ihr hygienischer Zustand überwacht. Demnach ist das Umlaufwasser der betreffenden Anlagen regelmäßig zu beproben und auch durch akkreditierte Laboratorien auf eine mikrobielle Belastung ($KBE_{allg.}$ sowie $KBE_{leg.}$) zu untersuchen. In Abhängigkeit von den Untersuchungsergebnissen sind gemäß 42. BImSchV ggf. differenzierte Überwachungsstrategien festzulegen bzw. technische Maßnahmen zu ergreifen.

Im Rahmen der derzeitigen Überwachungsstrategie ermittelte KBE -Werte der Legionellenkonzentration im Umlaufwasser lassen sich nicht direkt mit Konzentrationswerten im freigesetzten Aerosol der betreffenden Anlage korrelieren [2]. Insbesondere liegen nur sehr eingeschränkte Informationen zur (Bio-)Aerosolprobenahme an Rückkühlanlagen vor bzw. sind nur in eingeschränktem Umfang publiziert worden. Um diesbezüglich nähere Informationen zu erhalten, erfolgte im Rahmen eines öffentlich geförderten Forschungsvorhabens die Beprobung mehrerer Verdunstungskühlanlagen und eine analytische Untersuchung der gewonnenen Proben. Ziel des vom Umweltbundesamt geförderten UFO-Plan Vorhabens FZK 3716 62 209 0 war es, ein geeignetes Probenahme- und Analyseverfahren zur Detektion von Legionellenaerosolen aus Rückkühlanlagen in Anlehnung an einschlägige Richtlinien und Normen zu erarbeiten und zu erproben [3]. In diesem Manuskript zum Vortrag werden einige der Ergebnisse dargestellt.

2. Übertragbarkeit der Legionellenkonzentration im Wasser auf die Konzentration im Aerosol

Anhand technisch-konstruktiver Merkmale können unterschiedliche Typen von Rückkühlanlagen unterschieden werden. Bei den hier im Fokus stehenden Verdunstungskühlanlagen wird durch Versprühen und Verdunstung eines Teils des aufgegebenen (Nutz-)Wassers Wärme an die durch die Anlage strömende Umgebungsluft abgegeben. Nicht verdunstetes Wasser läuft größtenteils nach unten ab und sammelt sich abgekühlt in der sogenannten Kühlturmtasse. Zentrale Bauelemente innerhalb des Kühlturmbauwerks sind Verrieselungs- oder Verreg-

nungseinrichtungen für das Nutzwasser sowie ein darunter befindlicher Rieselskörper als Wärmeübertrager. Umgebungsluft tritt in der Regel im unteren Bereich in den Kühlturmkörper ein und verlässt die Anlage wasserdampfgesättigt und erwärmt als Kühlturmschwaden an der Oberseite. Konstruktive Unterscheidungsmerkmale betreffen insbesondere die treibende Kraft des Luftzuges. Bei größeren Baukörpern erfolgt dies unter Ausnutzung der geodätischen Höhe sich ausbildenden Naturzugs. Bei kleineren Anlagen reicht der Dichteunterschied zwischen Umgebungsluft und durch die Rückkühlung aufgewärmte Luft im Inneren zum Lufttransport durch „natürliche“ Konvektion nicht aus. Die erforderliche Strömungsgeschwindigkeit wird daher per drückend oder saugend angeordnetem Ventilator realisiert.

Es gibt zahlreiche Einflussfaktoren auf die Konzentration bzw. Fracht emittierter Bioaerosole, die bisher für die verschiedenen Anlagentypen nicht abschließend untersucht wurden. Diese Faktoren umfassen konstruktive Merkmale, verfahrenstechnische Kenngrößen des Prozesses sowie den grundsätzlichen Hygienezustand der Anlage. Hier sind insbesondere Tropfendynamik, Gasgeschwindigkeit und Strömungsrichtung, Effizienz und Zustand des Tropfenabscheiders, Anordnung der Baueinheiten innerhalb des Kühlturms und Biofilmbildung zu nennen. Weitere Einflussfaktoren stellen Nährstoffgehalt, Kühlwassertemperatur und pH-Wert sowie Lufttemperatur und Sonneneinstrahlung dar.

In Rückkühlanlagen entstehen Tropfen durch die Verdüsung des zu kühlenden Wassers. Kleine Tropfen, deren Sinkgeschwindigkeit geringer ist als die Geschwindigkeit der im Gegenstrom aufströmenden Luft, werden mit der Strömung nach oben getragen. Der Großteil der Tropfen wird im Tropfenabscheider abgeschieden. Ein kleinerer Teil kann den Tropfenabscheider allerdings passieren und so die Rückkühlanlage mit dem sogenannten Schwaden verlassen. Auf dem Weg zwischen Verdüsung und Auslass kann es zu Wechselwirkungen zwischen Tropfen und Wandungen oder Einbauten (wie Tropfenabscheider selbst oder Ventilatoren) und einem sich dort gebildeten Biofilm kommen. Diese Wechselwirkungen führen zu einer Veränderung des Tropfenspektrums und der Konzentration der Legionellen. Tropfen, die vom Ort der Verdüsung bis zum Auslass der Kühlanlage (Emissionspunkt) keine Oberflächen berühren, werden als Primärtropfen bezeichnet; die Mikroorganismenkonzentration entspricht weitestgehend der Konzentration im Umlaufwasser. Über die Freisetzung von Sekundärtropfen, also Tropfen, die mit Oberflächen interagieren, ist derzeit wenig bekannt. Es wird davon ausgegangen, dass sie eine wesentliche Rolle beim Austrag von Legionellen spielen. So kann die Keimbelastung der Sekundärtropfen $10^4 - 10^6$ KBE/ml größer sein als die des Umlaufwassers [4]. Der Biofilm bildet ein ideales Nährmedium für Legionellen und andere Mikroorganismen und Amöben, durch das Ablösen oder den Mitriss kann es daher zur Konzentrationserhöhung kommen. Dieser Anteil kann bei der Beprobung des Umlaufwassers (nach 42. BImSchV) nicht

berücksichtigt werden. Untersuchungen der Universität Mainz haben gezeigt, dass bei Naturzugkühltürmen die Konzentration der Mikroorganismen nach Tropfenabscheider bis Auslass konstant bleibt [5]. Bei einer Messung im Rahmen des UBA-Vorhabens wurde ein großer Rundkühlturm mit Saugventilator beprobt (Höhe 35 m). Gemessene Mikroorganismenzahlen in einer begehbaren Ebene direkt oberhalb des Tropfenabscheiders unterschieden sich in ihrer Größenordnung nicht von den in der Auslassebene des Kühlturms gemessenen Werten [3]. Für kleinere Anlagen, beispielsweise Zellenkühltürme oder kompakte Rückkühlanlagen, ist allerdings bekannt, dass sich das Tropfenspektrum auf dem Weg vom Tropfenabscheider zum Auslass stark verändert [4, 6]. Vorliegende Erfahrungen zeigen zudem, dass insbesondere diese kleineren Anlagen bei Infektionsereignissen von Bedeutung waren [7]. Eine Untersuchung der Freisetzungsbedingungen bzw. Messung der Konzentration im Aerosol erscheint daher an kleinen Anlagen als sehr sinnvoll.

3. Entwicklung einer Probenahmestrategie in Anlehnung an die Anforderungen der einschlägigen Normen zur Bioaerosolprobenahme

Wie eingangs erwähnt, gelangen Legionellen als Tropfenaerosol in die Umgebung. Diese legionellenhaltigen Tropfen stellen ein in einer Gasströmung aufwärtsströmendes Bioaerosol dar. Die Entwicklung einer Probenahmestrategie orientierte sich daher an den einschlägigen Normen zur Staub- bzw. Aerosolprobenahme. In Richtlinie VDI 2066 Blatt 1 zur Staubprobenahme sowie den Richtlinien VDI 4257 Blatt 1 und Blatt 2 zur Bioaerosolmessung sind die allgemeine Vorgehensweise sowie die Anforderungen zur repräsentativen Probenahme beschrieben.

Als Voraussetzung für die Repräsentativität der Probe sind unter anderem ein weitgehend ungestörtes Strömungsprofil sowie die Teilstromentnahme unter isokinetischen und isoaxialen Bedingungen zur Vermeidung von Sammelverlusten genannt.

Bei der Probenahme am Auslass von Verdunstungskühlanlagen sind die Anforderungen nur bedingt umsetzbar. Insbesondere die großen Dimensionen, die Zugänglichkeit der Messebene und das häufig inhomogene Strömungsprofil sowie der große Wassergehalt des Aerosols sind zu berücksichtigen.

Die Probenahme läuft typischerweise nach dem folgenden Schema ab:

- Festlegung der Radialmesspunkte zur Strömungscharakterisierung als Netzmessung
- Erfassung der Strömungsgeschwindigkeit und der Abgasrandbedingungen
- Auswahl des Probenahmepunktes (i.d.R. Punkt der mittleren Geschwindigkeit)
- Auswahl der passenden Düse und Bestimmung des Absaugvolumenstroms, zur Gewährleistung der Isokinetik

- Probenahme
- Rückgewinnung der Ablagerungen an den Wandungen mittels Spülung
- Kulturelle oder mikrobielle Analyse der gesammelten Probe

Die Vorgehensweise ist im Rahmen des Projektes an mehreren industriellen Verdunstungskühlanlagen umgesetzt worden. Dabei auftretende anlagenbezogene Anforderungen und Besonderheiten sowie die Messergebnisse und ein Vergleich der verschiedenen Analyseverfahren sind ausführlich in [11] bzw. [3] dargestellt.

Die Legionellenkonzentration im Aerosol ist oftmals eher gering: Bei Erreichen des Maßnahmenwerts im Umlaufwasser (10.000 KBE/100ml) befinden sich rechnerisch, unter den Annahmen, dass 0,2 g/m³ Tropfen ausgetragen werden [4] und dass die Legionellenkonzentration in austretenden Tropfen der des Umlaufwassers entspricht, ca. 20 KBE/m³ *Legionella* spp. im Aerosol (vgl. [11]). Um diese Konzentration messen zu können, bedarf es daher einer hohen biologischen und physikalischen Sammeleffizienz, der Sammlung eines großen Probenahmevolumens und einer niedrigen Nachweisgrenze seitens der Analytik.

Probenahme mit einem Coriolis- μ -Zyklonabscheider

Aus diesem Grund wurde der von [12] als für die Probenahme von *Legionella* spp. geeignet eingestufte Coriolis- μ -Zyklonabscheider mit einem Sammelvolumenstrom von bis zu 300 l/min eingesetzt. Damit kann in einer Sammelzeit von zehn Minuten ein Volumen von 3 m³ beprobt werden. Das ist ein wesentlicher Vorteil gegenüber anderen gängigen Verfahren, wie zum Beispiel dem standardisierten Impingementverfahren zur Bioaerosolprobenahme, bei dem ein deutlich kleineres Volumen in gleicher Zeit erfasst wird [13]. Ausgehend von bereits vorliegenden Erkenntnissen von [12] wurde das Sammelverfahren weiter charakterisiert, in der Praxis untersucht und beurteilt, sowie darauf aufbauend Vorschläge für ein praxisingerechtes Probenahmeverfahren erarbeitet.

So wurde unter anderem die physikalische Sammeleffizienz des Geräts ermittelt und festgestellt, dass bei einem Volumenstrom ab 200 l/min Tropfen oberhalb 0,8 μ m zu 50 % und ab ca. 2 μ m nahezu vollständig im Probenahmesystem gesammelt werden [14]. Tropfen im Submikronbereich können Legionellen nicht transportieren [15]. Der kleinste Tropfendurchmesser, in dem Bakterien transportiert werden, wird zwischen ein und zwei μ m angenommen [16]. Dementsprechend wird die physikalische Sammeleffizienz des Coriolis μ Abscheiders zur Sammlung von legionellenhaltigem Aerosol als ausreichend angesehen.

Ein Coriolis- μ -Zyklonabscheider in Originalausführung saugt horizontal ab, der Gasstrom in Verdunstungskühlanlagen tritt allerdings oftmals weitgehend vertikal aus. Um die Anforderungen an eine richtungsgleiche (isoaxiale) Probenahme zu erfüllen, wurde der Zyklonabscheider

durch einen Ansaug-Krümmen ergänzt. Durch die Umlenkung im Krümmen wirkt dieser allerdings als Vorabscheider für große Tropfen bzw. Partikel. Beispielsweise werden Tropfen oberhalb ca. 15 μm zu mindestens 50 % abgeschieden [3, 11]. Da diese Fraktion des Aerosols einen maßgeblichen Anteil an den Gesamtemissionen besitzen kann, sollte diese bei einer Probenahme (durch Spülung bzw. Auffangen in einer Abtropfrinne) zurückgewonnen werden, um einen Minderbefund zu vermeiden. Um bei einem konstanten Absaugvolumenstrom und variabler Gasgeschwindigkeit eine Probe mit gleicher Geschwindigkeit wie die des Ursprungsstroms anzusaugen (isokinetisch), wurde der Zyklonabscheider zudem um einen Satz Ansaugdüsen mit unterschiedlichen Durchmessern ergänzt. Eine genaue Kenntnis der Geschwindigkeit am Probenahmepunkt ist insbesondere zur Bestimmung des idealen Probenahmepunktes und zur Berechnung der Emissionsfracht erforderlich.

Im Laufe des Projektes stellte sich die Frage, ob die Messung mit der Originalausführung des Coriolis- μ -Zyklonabscheiders hinreichend genau ist, bzw. wie sensitiv das Ergebnis von der Isokinetik und Isoaxialität beeinflusst wird. Die Verwendung der Originalausführung kann die Probenahmeprozedur deutlich verkürzen, da auf die ausführliche Geschwindigkeitsbestimmung sowie Auswahl der Düse etc. verzichtet werden könnte. Im Falle einer anisoaxialen Absaugung kommt es beispielsweise zu Sammelverlusten, da Partikel mit einer großen Trägheit ihrer Ursprungsrichtung folgen und nicht in den Einlass eingesaugt werden, vgl. Bild 1.

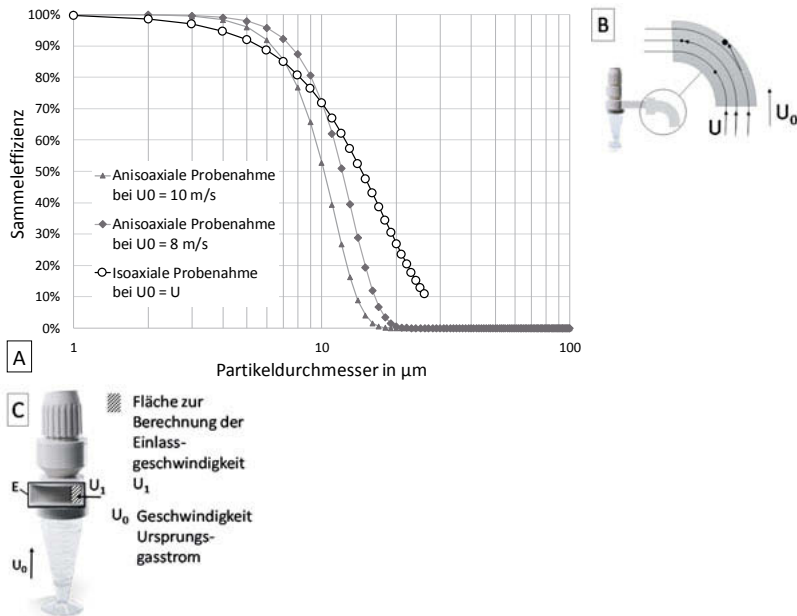


Bild 1: A: Sammeleffizienz bei Absaugung im Winkel von 90° zur Hauptströmungsrichtung für unterschiedliche Geschwindigkeiten der Hauptströmung sowie Sammeleffizienzen bei isoaxialer Absaugung unter Verwendung eines Krümmers (theoretische Berechnung nach [17]). Absaugvolumenstrom jeweils 300 l/min. Annahme einer isokinetischen Absaugung in den Krümmer; B: Impaktion von Partikeln mit hoher Trägheit im Krümmer des modifizierten Zyklonabscheiders; C: Coriolis μ mit Originaleinlass

Diese Partikel werden bei großer Trägheit gegebenenfalls auf der Einlassoberfläche (vgl. Bild 1 C, Kennzeichnung E) impaktiert oder verbleiben im Gasstrom. Diese partikelgrößenabhängige Sammeleffizienz bei einer anisoaxialen Absaugung von 90° und einer Einlassgeschwindigkeit von ca. 25 m/s (Berechnungsgrundlage für diese Geschwindigkeit ist der in Bild 1 rechts dargestellte schraffierte Querschnitt) zur Hauptströmungsrichtung sind in Bild 1 dargestellt. Es handelt sich hierbei um eine theoretische Berechnung nach [17]. Der Teil der Partikel, die sich an der Oberfläche des Einlasses gesammelt haben, können voraussichtlich durch Spülung zurückgewonnen werden. Dies wird in dieser Darstellung nicht berücksichtigt.

Bei einer Geschwindigkeit der vertikalen Hauptströmungsrichtung (Ursprungsgeschwindigkeit) von 10 m/s werden bei horizontaler Absaugung Partikel bzw. Tropfen mit Durchmessern oberhalb 10 µm nur noch zu maximal 50 % gesammelt. Bei geringeren Ursprungsgeschwindigkeiten verschiebt sich die Kurve nach rechts, so werden bei einer Geschwindigkeit von 8 m/s Tropfen mit einem Durchmesser von 10 µm beispielsweise zu maximal knapp 70 % gesammelt.

Vergleichend dazu ist die Sammeleffizienz bei Verwendung eines Krümmers zur isoaxial-iso-kinetischen Absaugung dargestellt. Im Krümmer werden Partikel ab einem Durchmesser von 15 µm zu 50 % vorabgeschieden. Diese mit Hilfe der bekannten Modelltheorie berechneten Daten werden durch experimentelle Untersuchungen bestätigt [3]. Wenn dieser Anteil nicht durch Spülung zurückgewonnen wird, lässt sich durch Verwendung der horizontalen Absaugung theoretisch eine vergleichbare Effizienz erreichen wie bei einer isoaxial-iso-kinetischen Absaugung mit Krümmer. Wird die im Krümmer abgeschiedene Fraktion erfasst und der Probe zugeschlagen, verbessert sich die Sammeleffizienz entsprechend.

Betrachtet man das typische Tropfenspektrum am Auslass des Kühlturms, wird die Bedeutung der Erfassung auch größerer Tropfen deutlich.

4. Gesammelte Erfahrungen aus bereits stattgefundenen Messkampagnen

Im Verlaufe des Projektes wurden insgesamt fünf Objekte beprobt. Dabei handelt es sich um drei industrielle Zellenkühltürme (in zwei Fällen mit einem saugenden Ventilator, einmal mit einem drückenden Ventilator), eine kompakte Rückkühlanlage und um einen größeren Rundkühlturm mit Saugventilator. Zellenkühltürme haben in Hinblick auf die Probenahme im Vergleich zu größeren Anlagen den entscheidenden Vorteil, dass es in der Regel auslassnah eine begehbare Ebene existiert, von der aus der Messquerschnitt gut erreichbar ist.

Im Hinblick auf die Erfüllung der Anforderung einer homogenen Strömung gemäß [10] (keine inverse Strömung; Verhältnis niedrigste zu höchste Geschwindigkeit <1:3; keine Drallströmung, Winkel zwischen Mittelachse und Strömung max. 15°, fehlende Ein- und Auslaufstrecke) sind solche „kleinen“ Anlagen, insbesondere mit saugendem Ventilator, allerdings problematisch.

Insbesondere die Strömungsrichtung kann bei derartigen Anlagen analagentypisch bzw. lokal an verschiedenen Radienmesspunkten sehr stark variieren, so dass eine isoaxiale Probenahme erschwert ist. Aufgrund dieser besonderen Gegebenheiten am Auslass von Verdunstungskühlanlagen wurden ergänzend zur Standardprozedur zusätzliche Messungen durchgeführt, zum einen um die Inhomogenität und die Richtung der Strömung aufzuzeigen und zum anderen um das Tropfenspektrum zu ermitteln.

Untersuchungen zum Strömungsprofil

Eine einfache Methode zur qualitativen Bestimmung der Strömungsrichtung und der Untersuchung auf Strömungs-Inhomogenitäten sowie das Vorhandensein einer Drallströmung ist der Einsatz eines einfachen Strömungsindikators in Form eines „Fähnchens“. Damit lassen sich beispielsweise auch durch Rotoren induzierte zeitliche Fluktuationen aufzeigen (Bild 2 A bis E). Bild 2 A zeigt den Einsatz eines Fähnchens am Auslass eines Rohres, das sich ca. drei Meter oberhalb eines Ventilators am Auslass einer kompakten Rückkühlanlage befindet. Die typische durch Ventilatoren induzierte Drallströmung ließ sich auch am Auslass in einiger Entfernung oberhalb des Ventilators nachweisen. Die Strömung verläuft nahezu horizontal in Drehrichtung des Ventilators. Im Randbereich ist die vertikale Strömungskomponente höher als im Zentrum. Die Anforderung nach VDI Richtlinie 2066 an den Messquerschnitt, dass der Winkel zwischen Hauptachse des Messobjekts und Hauptströmungsrichtung $<15^\circ$ sein sollte, wird dementsprechend nicht erfüllt. Eine isoaxiale Absaugung kann in einem solchen Fall nur dann erfolgen, wenn der Krümmer im gleichen Winkel gegen die Strömung ausgerichtet wird.

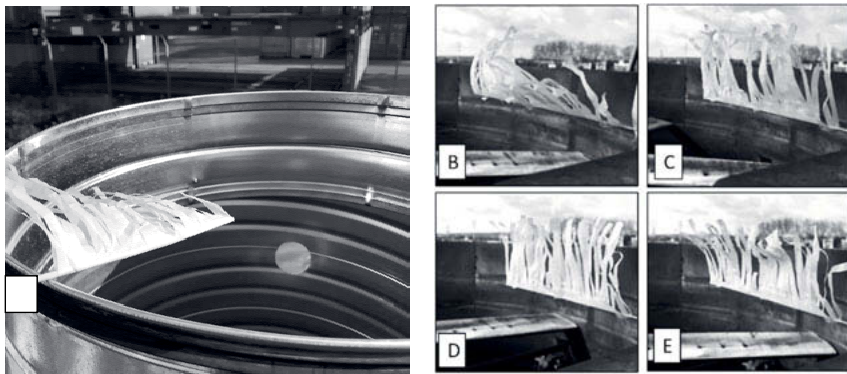


Bild 2: A: Sichtbarmachung der Strömungsrichtung mit einem einfachen Fähnchen: Nahezu horizontale Strömung; B-E: Ventilatorinduzierte Fluktuation der Strömungsrichtung

Bild 2 B bis E stellen zeitlich dicht aufeinanderfolgende Veränderungen der Strömungsrichtung während des Rotorblattdurchgangs unterhalb des Streifenfähnchens dar. Diese hochfrequente Veränderung der Geschwindigkeit und Richtung beeinflusst die Probenahmeeffizienz bei un- veränderter Position einer Probenahmesonde und muss bei der Bewertung der Probenahme-

ergebnisse berücksichtigt werden. Bei einer fluktuierenden Strömung ist eine dauerhaft isoxiale Absaugung quasi nicht möglich, ein Absaugfehler ist bei o.g. Messkonzept folglich unvermeidlich. Gegebenenfalls ist in einem solchen Fall der Originaleinlass (also die horizontale Absaugung) zu wählen (vgl. Bild 3).

Zur Feststellung des Vorhandenseins und Bestimmung der Richtung einer Drallströmung können gemäß ISO 10780 Staudrucksonden genutzt werden. Diese Methode wurde an einem Zellenkühlturm eingesetzt. Dabei wurden an mehreren Messpunkten die Winkel zwischen Mittelachse der Anlage und der jeweiligen lokalen Hauptströmungsrichtung bestimmt. Die Winkel wurden ermittelt, in dem eine S-Pitot-Sonde mit den Öffnungen senkrecht zur zentralen Achse des Zellenkühlturms ausgerichtet wurde und anschließend durch Drehung der Sonde um die eigene Hauptachse die Position der Sondenöffnung zur Hauptachse verändert wurde. Der bei einem Differenzdruck von 0 Pa abzulesende Winkel steht genau senkrecht auf der Hauptströmungsrichtung. In Bild 3 sind die Richtungen sowie die Höhe der vertikalen Geschwindigkeitskomponente für dieses Beispiel dargestellt.

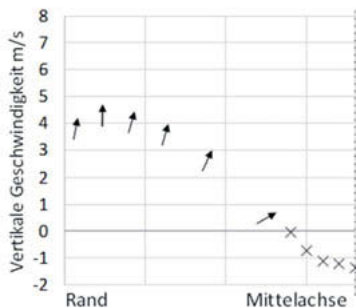


Bild 3: Strömungsprofil an einem Zellenkühlturm, die Position der Pfeilspitzen geben den Wert der Vertikalkomponente der Strömung an, die Richtung der Pfeile gibt die Resultierende aus der vertikalen und tangentialen Strömungskomponente an (Winkelmessung mit S-Pitot-Rohr)

Randnah ist die vertikale Austrittsgeschwindigkeit deutlich höher als in Richtung des Zentrums, wo die Geschwindigkeit schließlich ins Negative umschlägt. Die Pfeilrichtung zeigt die Strömungsrichtung, resultierend aus der Überlagerung der vertikalen mit einer durch den Ventilator induzierten tangentialen Strömungskomponente, deren Intensität stark positionsabhängig ist. Insgesamt nimmt der Drall zur Mitte hin zu. Bei allen beprobten Anlagen mit saugendem Ventilator konnte ein im Grundsatz vergleichbares Strömungsprofil aufgenommen werden.

Tropfenmessung

An mehreren Anlagen wurden Tropfenmessungen mittels Tropfenmesssonden nach dem Impaktorprinzip (VDI 3679 Blatt 3) durchgeführt. Dadurch konnte das Tropfengrößenspektrum am Auslass für Tropfen im Größenbereich 15 - 150 μm ermittelt werden. Zudem lässt sich aus den Ergebnissen die Tropfenbeladung in mg/m^3 der austretenden Gasströmung am jeweiligen Messpunkt berechnen. Bei der Tropfenmessung wird ein mit MgO-beschichtetes Glas für eine definierte Zeit in den Gasstrom exponiert. Tropfen, die auf diesem Impaktor auftreffen, bilden Krater auf dem Glas. Diese Krater lassen sich unter einem Mikroskop auswerten. Über den Durchmesser und die Anzahl kann man dann, bei Kenntnis der Strömungsgeschwindigkeit an dem Punkt, auf die Tropfenbeladung des Gases schließen. Bei zu hoher Tropfenbeladung einer Platte tritt Koinzidenz auf, eine Platte ist damit nicht auswertbar. In einem solchen Fall, oder wenn nur eine geringe Anzahl an Tropfen auf der Platte impaktiert sind (statistische Unsicherheit), wird die Expositionsdauer entsprechend angepasst. Wird an einem durch eine Drallströmung geprägten Anlagenauslass gemessen, muss die Richtung des Impaktors entsprechen korrigiert werden, ansonsten lässt sich die Probe nicht auswerten.

In Bild 4 A ist beispielhaft eine volumenspezifische Tropfengrößenverteilung am Auslass eines Zellenkühlturms mit saugendem Ventilator dargestellt.

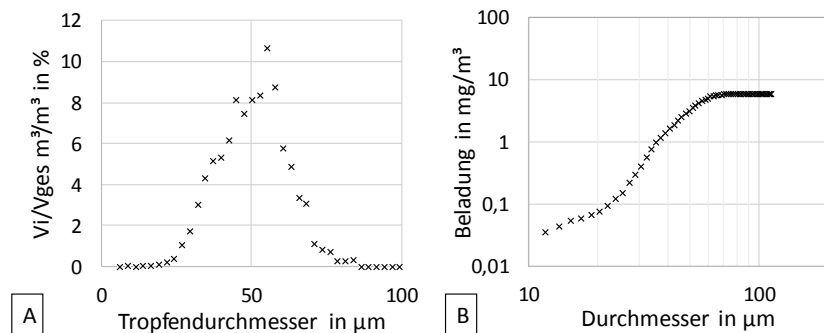


Bild 4: A: Volumenspezifische Tropfengrößenverteilung am Auslass eines Zellenkühlturms, B: kumulierte Flüssigkeitsbeladung

Bei der Beurteilung dieser Ergebnisse muss berücksichtigt werden, dass die dargestellte Verteilung sich ausschließlich auf einen Messpunkt im Austrittsquerschnitt bezieht. Um die Beladung für den ganzen Querschnitt zu bestimmen, sollte neben der Geschwindigkeitsmessung auch die Tropfenmessung als Netzmessung durchgeführt und die Ergebnisse über die Messpunkte gemittelt werden. Weiterhin wird darauf hingewiesen, dass sowohl kleinere Tropfen

(unter 15 μm), die zwar aufgrund ihres geringen Volumens einen eher geringen Einfluss auf den Flüssigkeitsaustrag haben, in Summe aber doch einen Beitrag leisten können. Man erkennt, dass bei der untersuchten Anlage Partikel zwischen 40 und 60 μm den größten Einfluss auf das austretende Tropfenvolumen haben. Die Luft im Schwaden ist mit Wasserdampf gesättigt, beim Übergang in die trockenere Atmosphäre können die Tropfen teilweise verdunsten. Daher stellen auch diese größeren Partikel eine potentielle „Bioaerosol“-Gefahr dar. Der rechte Bildteil in *Bild 4* (B) zeigt die gleichen Ergebnisse als kumulierte größenspezifische Flüssigkeitsbelastung. Insgesamt ist die Beladung in diesem Beispiel mit ca. 6 mg/m^3 eher gering. An einer anderen Anlage wurden im Vergleich dazu 40 mg/m^3 Flüssigkeitsaustrag ermittelt [3].

5. Schlussfolgerungen und Ausblick

Die Untersuchung auf Legionellen findet derzeit nur im Umlaufwasser statt. Um die Gefahr einer Legionellenfreisetzung festzustellen und gezielt Maßnahmen zur Minderung einzuleiten, ist eine Kenntnis über die Konzentration im austretenden Aerosol von großer Bedeutung. Das gilt insbesondere für Anlagen, bei denen sich das Tropfenspektrum und die Konzentration der Mikroorganismen bzw. Legionellen durch Interaktion mit Oberflächen auf dem Weg vom Tropfenabscheider zum Auslass ändert.

In [3] wurde ein Probenahmeverfahren mittels modifiziertem Coriolis- μ -Zyklonabscheider in Anlehnung an die einschlägigen Normen ausgearbeitet und erprobt. An kleinen Anlagen können die Anforderung zur Bioaerosolprobenahme nach [10] an den Messquerschnitt in der Regel nicht erfüllt werden. Dabei sind insbesondere die häufig anzutreffenden ventilatorinduzierten Drallströmungen zu nennen. Um eine isoaxiale Probenahme zu ermöglichen, ist insbesondere die Kenntnis der Hauptströmungsrichtung im räumlich mehrdimensionalen Strömungsfeld hilfreich. Insbesondere Tropfen mit einer großen Trägheit werden bei einer anisoaxialen Probenahme nicht bzw. mit geringer Effizienz erfasst. Wenn die Probenahme mit dem Originaleinlass des Zyklonabscheiders aus horizontaler Richtung erfolgt, können in der Praxis bei einer Probenahme in der Auslassebene Sammelverluste aufgrund der Anisoaxialität auftreten. Ebenfalls sollte die häufig im Zentrum am Auslass von Anlagen mit Saugventilatoren auftretende inverse Strömung bei der Bewertung der Analyseergebnisse berücksichtigt werden. Eine begleitende Tropfenmessung z. B. mittels MgO-Impaktorplatten wird als sehr sinnvoll eingeschätzt, da hiermit das Tropfenspektrum und die Tropfenbelastung des Abgasstroms ermittelt werden können. Diese Messung sollte als Netzmessung erfolgen, um den mittleren Tropfenaustrag über den Querschnitt ermitteln zu können. Vorangehen muss der Messung eine Bestimmung des Geschwindigkeitsprofils inkl. Ermittlung der Hauptströmungsrichtung.

Um ein größeres Volumen zu beproben, damit sich mehr Legionellen in der Probe befinden, die dann (in Hinblick auf die Nachweisgrenze) mit einer erhöhten Sicherheit nachgewiesen werden können, kann die Sammelzeit oder der Volumenstrom erhöht werden. Welchen Einfluss diese Möglichkeiten auf die biologische Sammeleffizienz haben, ist derzeit noch offen.

Danksagung

Das Projekt „Entwicklung eines sensitiven Verfahrens zum routinemäßigen Nachweis von Legionellen in Aerosolen von Verdunstungskühlanlagen“ wird finanziell vom Umweltbundesamt unter dem Förderkennzeichen UFOPLAN 3716 62 209 0, Az.: Z 6 – 55 411/5 gefördert. Hier geäußerte Meinungen und Schlussfolgerungen sind nicht dem Umweltbundesamt abgestimmt und sind ausschließlich die der hier aufgeführten Autoren.

Literaturverzeichnis

- [1] BUNDESREGIERUNG: *Zweiundvierzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes Verordnung über Verdunstungskühlanlagen, Kühltürme und Nassabscheider* (in Kraft getr. am 12. 6. 2017). In: *Bundesgesetzblatt 2017 (2017-06-12)*, Nr. 47. URL www.bundesgesetzblatt.de
- [2] VDI-Richtlinie 4250 Blatt 2. 2015-11. *Bioaerosole und biologische Agenzien Umweltmedizinische Bewertung von Bioaerosol-Immissionen*
- [3] NOCKER, Andreas ; SCHULTE-ILLINGHEIM, Lorenz ; STRATHMANN, Martin ; HUGO, Achim ; WELP, Laura ; SPERBER, Oliver: *Entwicklung es sensitiven Verfahrens zum routinemäßigen Nachweis von Legionellen in Aerosolen von Verdunstungskühlanlagen : FZK 3716 62 209 0*. 2019, im Druck
- [4] WURZ, Dieter ; WACHTER-WURZ, Christine ; HARTIG, Stefan: *Primär-, Sekundär- und rekondensationstropfen in Nasskühltürmen : Auswirkungen auf die Emission von Mikroorganismen*. Frankfurt am Main, 16.06.2016
- [5] PIETSCH, Michael: *Hygienische Risikobewertung aus medizinischer Sicht* (Erfahrungen aus der Umsetzung der 42. BImSchV). Dortmund, 09.05.2019 – Überprüfungsdatum 2019-07-03
- [6] WURZ, D. ; KLAR, M. ; RESKE, R. ; CONRADS, M. . INST. FUER TECHNISCHE THERMODYNAMIK): *Recirculation of entrained cooling water in cooling tower cells with induced draft fans Final report of research project 46, of the VGB-Forschungsstiftung*
- [7] HAHN, Sebastian: *Die Umsetzung der 42. BImSchV aus Sicht eines Betreibers*. In: *VGB PowerTech - International Journal for Electricity and Heat Generation 2018 (2018)*, 1/2, S. 50–57 – Überprüfungsdatum 2019-07-03

- [8] VDI-Richtlinien 4257 Blatt 2. 2011-09. *Bioaerosole und biologische Agenzien, Messen von Emissionen*
- [9] VDI-Richtlinie 2066 Blatt 1. 2006-06. *Messen von Partikeln Staubmessung in strömenden Gasen*
- [10] VDI-Richtlinien 4257 Blatt 1. 2013-05. *Bioaerosole und biologische Agenzien, Messen von Emissionen*
- [11] HUGO, Achim ; WELP, Laura ; SPERBER, Oliver ; SCHULTE-ILLINGHEIM, Lorenz ; FRÖSLER, Jan ; NOCKER, Andreas: *Erfahrungen der Aerosolbeprobung von Verdunstungsrückkühlanlagen bezüglich Probenahme und Legionellenanalytik*. In: *Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft* 79 (2019, im Druck), Nr. 9 – Überprüfungsdatum 2019-09-06
- [12] STRATHMANN, Martin ; SCHAULE, Gabriela ; OLDENBURG, Hans Joachim ; RABE, Rudolf ; WEHDE, Thorsten: *Nachweis von Legionellen in Luftproben von Verdunstungskühlanlagen* : FZK 3712 61 202. 2014
- [13] VDI-Richtlinie 4252 Blatt 3. 2008-08. *Erfassen luftgetragener Mikroorganismen und Viren in der Außenluft Aktive Probenahme von Bioaerosolen*
- [14] WELP, Laura: *Charakterisierung der Sammeleffizienz eines Zyklonabscheiders zur Probenahme von Bioaerosolen und Evaluation einer Probenahmestrategie zur Bestimmung der Legionellenemission aus Verdunstungskühlanlagen / Kühltürmen* : Masterarbeit. 2018
- [15] ALLEGRA, Séverine: *Characterization of aerosols containing Legionella generated upon nebulization*. In: *Scientific Reports* 6 (2016), S. 33998 – Überprüfungsdatum 2018-04-02
- [16] THOMAS, Richard J. ; WEBBER, Daniel ; SELLORS, William ; COLLINGE, Aaron ; FROST, Andrew ; STAGG, Anthony J. ; BAILEY, Stephen C. ; JAYASEKERA, Pramukh N. ; TAYLOR, Rosa R. ; ELEY, Steve ; TITBALL, Richard W.: *Characterization and deposition of respirable large- and small-particle bioaerosols*. In: *Applied and environmental microbiology* 74 (2008), Nr. 20, S. 6437–6443
- [17] BARON, P. A. ; WILLEKE, K.: *Aerosol Measurement : Principles Techniques, and Applications*. 3. Aufl. : John Wiley & Sons, 2011
- [18] SPRINGORUM, A. C. ; CLAUß, M.: *Das Überleben von Bakterien im luftgetragenen Zustand : Ein Literaturüberblick zur Tenazität*. In: *Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft* 76 (2016), Nr. 9, S. 351–356 – Überprüfungsdatum 2019-09-11
- [19] KIRSCHNER, Alexander K. T.: *Determination of viable legionellae in engineered water systems: Do we find what we are looking for?* In: *Water research* 93 (2016), S. 276–288

Kalibrierung von automatischen Messsystemen zur Ermittlung von Treibhausgasemissionen – ein Problem?

Beispiele aus der Praxis

Dipl.-Chem. **Michael Robert**,
ANECO Institut für Umweltschutz GmbH & Co. KG, Mönchengladbach

Kurzfassung

Im Rahmen des Treibhaushandels werden neben Berechnungsmethoden auch „klassische“ Messverfahren zur Bestimmung der Treibhausgasemissionen eingesetzt. Da für beide Anwendungen die gleichen (ambitionierten) Grenzen hinsichtlich der Messunsicherheiten gelten, ist die messtechnische Ermittlung (insbesondere des Abgasvolumenstroms) nicht unkompliziert.

Die seitens der Hersteller (Zertifizierung) angegebenen Schwankungsbreiten der AMS sind im realen Feldbetrieb oft nur schwer verifizierbar. Hieraus ergeben sich bei der Kalibrierung dieser AMS einige Probleme und Besonderheiten.

Der Vortrag zeigt diese Problematik auf und präsentiert Lösungsansätze. Anhand von Beispielen aus der Praxis (Ermittlung von CO₂ und N₂O in Verbindung mit der Volumenstrommessung) wird die Vorgehensweise erläutert.

1. Ausgangssituation, Vorgaben

Wesentlicher Bestandteil der Regularien für die Ermittlung der Treibhausgasemissionen (THG) ist das Ebenenkonzept. Neben der Berechnung der Treibhausgasemissionen auf Basis von diversen Eingangsdaten (z.B. Brennstoffmengen und –zusammensetzung) ist auch eine messtechnische Ermittlung möglich. Gemäß Amtsblatt der Europäischen Union für auf Messung beruhende Methodiken ist im Anhang VIII ausgeführt:

Bild 1:

Auf Messung beruhende Methodiken (Artikel 41)

1. Ebenen für auf Messung beruhende Methodiken

Auf Messung beruhende Methodiken werden in Einklang mit Ebenen genehmigt, für die in Bezug auf die gemäß Abschnitt 3 Gleichung 2 dieses Anhangs berechneten durchschnittlichen jährlichen Stundenemissionen die folgenden höchstzulässigen Unsicherheiten gelten.

Tabelle 1

Ebenen für Systeme zur kontinuierlichen Emissionsmessung (höchstzulässige Unsicherheit je Ebene)

	Ebene 1	Ebene 2	Ebene 3	Ebene 4
CO ₂ -Emissionsquellen	± 10 %	± 7,5 %	± 5 %	± 2,5 %
N ₂ O- Emissionsquellen	± 10 %	± 7,5 %	± 5 %	entfällt
CO ₂ -Weiterleitung	± 10 %	± 7,5 %	± 5 %	± 2,5 %

Gleichung 2: Bestimmung des Stundenmittelwertes der Konzentrationen

$$\text{THG-Emissionen}_{\text{Std. Mittelw.}} [\text{kg/h}] = \frac{\sum \text{THG-Konzentration}_{\text{Std.}} [\text{g/Nm}^3] \times \text{Abgasstrom} [\text{Nm}^3/\text{h}]}{\text{Betriebsstrunden} \times 1000}$$

Dabei sind:

$\text{THG-Emissionen}_{\text{Stundenmittelwert}}$ = der jährliche Stundenmittelwert der Emissionen (kg/h) aus der betreffenden Quelle;

$\text{THG-Konz}_{\text{stündlich}}$ = die stündlichen Emissionskonzentrationen (g/Nm³) im Abgasstrom, gemessen während des Betriebs der Anlage;

Abgasstrom = der Abgasstrom (Nm³) je Stunde.

Im Leitfaden zur Erstellung von Überwachungsplänen und Emissionsberichten für stationäre Anlagen in der 3. Handelsperiode (2013-2020) werden die Methoden zur Ermittlung der THG-Emissionen näher beschrieben:

„Für die kontinuierliche Emissionsmessung müssen die Konzentrationen von relevanten Komponenten des Gasstroms sowie das Volumen des Abgasstroms bestimmt werden. Im Gegensatz zur ersten und zweiten Handelsperiode wird die Methode der kontinuierlichen Emissionsmessung für die Bestimmung von CO₂-Emissionsquellen als gleichwertig zu den Berechnungsmethoden angesehen (vgl. Kapitel 13.3). Für die Bestimmung von N₂O-

Emissionen gemäß Anhang IV Abs. 16 MVO, von an CCS-Anlagen weitergeleitetem CO₂ gemäß Art. 49 MVO und CO₂-Emissionen bei der Regeneration katalytischer Cracker und anderer Katalysatoren sowie Flexicokern ist die Anwendung kontinuierlicher Emissionsmessungen verpflichtend. Eine flankierende Berechnung ist in diesen Fällen entbehrlich.“

Und:

„Für alle Emissionsquellen, die mehr als 5.000 t CO₂-Äq pro Jahr oder mehr als 10 % der jährlichen Gesamtemissionen einer Anlage (der jeweils höhere Wert ist maßgebend) beitragen, müssen die höchsten Ebenen gemäß Anhang VIII MVO eingehalten werden. D.h. in diesen Fällen müssen die CO₂-Emissionen mit einer maximalen Gesamtunsicherheit von 2,5 % (Ebene 4) bestimmt werden.

Die Emissionsmesssysteme zur Ermittlung der jährlichen CO₂-Emissionsfrachten müssen unter fortlaufender Anwendung der Qualitätssicherungsmaßnahmen der DIN EN 14181 (Emissionen aus stationären Quellen – Qualitätssicherung für automatische Messeinrichtungen) und der DIN EN 15259 (Luftbeschaffenheit – Messung von Emissionen aus stationären Quellen – Anforderungen an Messstrecken und an die Messaufgabe, den Messplan und den Messbericht) betrieben werden. Die Kalibrierung nach DIN EN 14181 und die Auswahl des Messpunktes (oder des Messquerschnittes) nach DIN EN 15259 sind gemäß der Anforderungen des Art. 42 Abs. 2 MVO durch Prüf- und Kalibrierlaboratorien vorzunehmen, die nach DIN EN ISO/IEC 17025 für die betreffenden Prüf- und Kalibrierverfahren akkreditiert sind, oder als gleichwertig im Sinne des Art. 32 Abs. 2 und 3 MVO anzusehen sind.“

Bezüglich der Kalibrierung der verwendeten automatischen Messsysteme (AMS, hier KEMS genannt) führt der Leitfaden weiter aus:

„Für die Kalibrierung der KEMS zur Überwachung von CO₂-Emissionen sind vorzugsweise Prüfverfahren entsprechend ISO 12039 (Emissionen aus stationären Quellen – Bestimmung von Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Sauerstoff – Verfahrenskenngrößen und Kalibrieren automatischer Messsysteme) einzusetzen. Für die Kalibrierung des Parameters Abgasvolumenstrom sind die Normen DIN EN ISO 16911-1 und 16911-2 (Emissionen aus stationären Quellen – Manuelle und automatische Bestimmung der Geschwindigkeit und des Volumenstroms in Abgaskanälen, Teil 1 „Manuelles Referenzverfahren“ und Teil 2 „Kontinuierliche Messverfahren“) anzuwenden.“

Die Ermittlung der Messunsicherheit ist ein wesentlicher Punkt bei der messtechnischen Ermittlung der THG-Emissionen. Hierzu wird ausgeführt:

„Für die Ermittlung der Gesamtunsicherheit des CO₂-Massenstroms nach der Berechnungsformel

Bild 2:

$$U_{\text{CO}_2\text{-Massenstrom}} = \sqrt{U_{\text{CO}_2\text{-Konzentration}}^2 + U_{\text{Abgasvolumen}}^2}$$

wurde sowohl für die CO₂-Konzentration als auch für den Abgasvolumenstrom

- ☐ die Variabilität sD (ermittelte Standardabweichung) nach den Vorgaben der EN 14181 ermittelt,
- ☐ der kv-Wert (Prüfwert der Variabilität) entsprechend der Anzahl der Vergleichsmessungen angegeben

und

- ☐ das 95% Konfidenzintervall eingehalten.
- ☐ Die angegebene Gesamtunsicherheit für den CO₂-Massenstrom basiert auf dem Arbeitspunkt (d.h. jahresdurchschnittliche Konzentration und Volumenstrom/Abgasgeschwindigkeit) und nicht auf dem Messbereichsendwert der betreffenden Messeinrichtung für die zu betrachtende Komponente.
- ☐ Die angegebene Gesamtunsicherheit für den CO₂-Massenstrom bezieht sich entsprechend der Vorgabe aus Nr. 6.6 der EN 14181 und gemäß Anhang VIII MVO auf normierte Werte sowohl für die CO₂-Konzentration als auch für den Abgasvolumenstrom. Wird die Konzentration auf Basis von trockenem Abgas und der Abgasvolumenstrom auf Basis von feuchtem Abgas in Normkubikmetern bestimmt, ist die Unsicherheit der Korrekturgröße Feuchte in die Unsicherheitsbetrachtung einzubeziehen. Es muss ersichtlich sein, dass der Unsicherheitsbeitrag der Korrekturgröße Feuchte bei der Gesamtunsicherheitsbetrachtung des CO₂-Massenstroms berücksichtigt wurde.

Damit ergibt sich folgende Vorgehensweise:

Bild 3:

$$U_{\text{CO}_2\text{-Massenstrom}} = \sqrt{U_{\text{CO}_2\text{-Konzentration}}^2 + U_{\text{Abgasvolumen}}^2}$$

mit

$$U_{\text{CO}_2\text{-Konzentration}} = \frac{s_D * 2}{k_v} / \text{Mittelwert}_{\text{CO}_2\text{-Konzentration}}$$

$$U_{\text{Abgasvolumen}} = \frac{s_D * 2}{k_v} / \text{Mittelwert}_{\text{Abgasvolumen}}$$

Beziehen sich die normierten Ergebnisse der Vergleichsmessungen auf feuchten und trockenen Zustand, ist die Unsicherheit der Korrekturgröße Feuchte in die Unsicherheitsbetrachtung einzubeziehen.

Bild 4:

$$U_{\text{Abgasvolumen}} = \sqrt{U_{\text{Volumen}}^2 + U_{\text{Feuchte}}^2}$$

$$U_{\text{Volumen}} = \frac{s_D * 2}{k_v} / \text{Mittelwert}_{\text{Volumen}}$$

$$U_{\text{Feuchte}} = \frac{s_D * 2}{k_v} / (100\% - \text{Mittelwert}_{\text{Feuchte}})$$

Der jeweilige Mittelwert ergibt sich aus allen gültigen Messwerten (im Arbeitspunkt) über das Berichtsjahr (ohne Ersatzwerte). Handelt es sich um eine Erstinstallation und liegen daher noch keine Messwerte über das Jahr vor, können als Anhaltspunkt Auslegungsdaten des Herstellers für die Anlage oder den Prozess oder - wenn dies nicht möglich ist - der Mittelwert aus den Vergleichsmesswerten verwendet werden. Für den Parameter Abgasvolumen können die Messwerte auch genutzt werden, wenn bisher keine Erfüllung der EN 16911 für den Parameter Volumenstrom vorlag.

Der Unsicherheitsbeitrag der Bestimmung der CO-Konzentration muss bei der Gesamtunsicherheit des CO₂-Massenstroms nicht berücksichtigt werden, wenn das Verhältnis von CO-Konzentration zur CO₂-Konzentration weniger als 1% beträgt.

2. Beispiele aus der Praxis (Auszug)

Kohlendioxid

Einfluss des Volumenstroms auf die Berechnung der Unsicherheit des Gesamtmassenstroms.

Anlage 1 (Heissdampfkessel) HDK 1

Gesamtunsicherheitsbetrachtung CO2 Massenstrom HDK 1					
	Einheit	kv	sD	Mittelwert	U
System A					
RG-A Geschw.	m/s	0,9761	0,06	4,0	0,0307
System B					
RG-B Geschw.	m/s	0,9761	0,12	4,1	0,0600
RG-A-Abgasvolumenstrom	m³/h	0,9761	221	14030	0,0323
RG-B-Abgasvolumenstrom	m³/h	0,9761	442	14030	0,0645
normierter Mittelwert RG-A/RG-B	m³/h	0,9761	331	14030	0,0484
CO2*	Vol.-%	0,977	0,03	4,9	0,0125
Mittelwert der Treibhausgas-Volumenkonzentration der Messkomponente im Normzustand				4,9 Vol.-%	
Unsicherheit der Treibhausgas-Volumenkonzentration der Messkomponente				1,25 %	
Mittelwert des Abgasvolumenstroms im Normzustand				14030 m³/h	
Unsicherheit des Abgasvolumenstroms				4,84 %	
Unsicherheit des Treibhausgas-Massenstroms				5,00 %	
Zusammenfassende Bewertung	Die gemäß Art. 41 Abs. 1 in Verbindung mit Anhang VIII der Monitoring-Verordnung (MVO) geforderte Ebene 4 mit einer maximal zulässigen Unsicherheit von 2,5 % für den Treibhausgas-Massenstrom wird nicht eingehalten.				

Anlage 2 (Heissdampfkessel) HDK 2

Gesamtunsicherheitsbetrachtung CO2 Massenstrom HDK 2					
	Einheit	kv	sD	Mittelwert	U
System A					
RG-A Geschw.	m/s	0,9791	0,20	9,5	0,0430
System B					
RG-B Geschw.	m/s	0,9791	0,09	9,4	0,0195
RG-A-Abgasvolumenstrom	Nm³/h	0,9761	650	57922	0,0230
RG-B-Abgasvolumenstrom	Nm³/h	0,9761	293	57922	0,0104
normierter Mittelwert RG-A/RG-B**	Nm³/h	0,9761	471	57922	0,0167
CO2*	Vol.-%	0,9803	0,03	6,0	0,0102

Mittelwert der Treibhausgas-Volumenkonzentration der Messkomponente im Normzustand	6,0 Vol.-%
Unsicherheit der Treibhausgas-Volumenkonzentration der Messkomponente	1,02 %
Mittelwert des Abgasvolumenstroms im Normzustand	57922 m ³ /h
Unsicherheit des Abgasvolumenstroms	1,67 %
Unsicherheit des Treibhausgas-Massenstroms	1,96 %
Zusammenfassende Bewertung	Die gemäß Art. 41 Abs. 1 in Verbindung mit Anhang VIII der Monitoring-Verordnung (MVO) geforderte Ebene 4 mit einer maximal zulässigen Unsicherheit von 2,5 % für den Treibhausgas-Massenstrom wird eingehalten.

Fazit:

Bei zwei fast baugleichen Kesselanlagen mit identischer Instrumentierung der Messgeräte und vergleichbaren Messunsicherheiten führen die unterschiedlichen Volumenströme zu einer Beurteilung Einhaltung bzw. nicht Einhaltung der max. zulässigen Unsicherheit.

Distickstoffmonoxid

Hier zeigt sich in der Praxis das die sachgerechte Anwendung des zu verwendende Messverfahren (DIN EN ISO 21258) selbst schon hinsichtlich der zugelassenen Messunsicherheit (evtl 2,5 % für den **Massenstrom**) nicht unproblematisch ist.

Die DIN EN ISO 21258 führt z.B. unter 6.3 aus:

„Für die Detektion von N₂O wird üblicherweise die Absorption um 4,5 µm benutzt. Es ist deshalb besonders auf die Störung durch CO und CO₂ zu achten, da CO bei 4,5 µm bis 4,7 µm und CO₂ bei 4,3 µm absorbiert. Die Störung durch CO kann durch Verwendung des Konverters (siehe 6.2.8) ausgeschlossen werden. Die CO₂-Empfindlichkeit muss mit CO₂-Prüfgasen ermittelt werden. Während des realen Betriebs muss CO₂ zur automatischen Korrektur der N₂O-Messwerte in Echtzeit gleichzeitig gemessen werden. Bei vielen Geräten wird diese Korrektur automatisch über einen CO₂-Kanal durchgeführt. Da Wasserdampf die Messung stören und zu Kondensationen im Messgerät führen kann, wird das im Probengas enthaltene Wasser in einem Gaskühler auskondensiert, bevor das Probengas in das Messgerät gelangt. Da die Löslichkeit von N₂O in Wasser 1,2 g/l beträgt (bei 20 °C und 101,3 kPa), kann die Anwesenheit von Wassertröpfchen die Analyse von N₂O beeinflussen.“

Im Anhang C der Norm sind Leistungskenngrößen aufgeführt:

Bild 5:

Tabelle C.2 — Leistungskenngrößen

Leistungskenngröße für das NDIR-Verfahren	Leistungskriterium	Ergebnisse der Prüfungen im Laboratorium und im Feld
Einstellzeit	200 s	90 s
Nachweisgrenze	± 2 % des Bereichs	± 1,5 % des Bereichs
Abweichung von der Linearität	± 2 % des Bereichs	± 2 % des Bereichs
Nullpunktdrift in 24 h	± 2 % des Bereichs	± 1 % des Bereichs
Spanpunktdrift in 24 h	± 2 % des Bereichs	± 1 % des Bereichs
Empfindlichkeit gegenüber dem Proben- volumenstrom	2 % des Bereichs	1 % des Bereichs
Empfindlichkeit gegenüber dem Luftdruck	2 % des Bereichs je 2 kPa	2 % des Bereichs je 2 kPa

Tabelle C.2 (fortgesetzt)

Leistungskenngröße für das NDIR-Verfahren	Leistungskriterium	Ergebnisse der Prüfungen im Laboratorium und im Feld
Empfindlichkeit gegenüber der Umgebungs- temperatur	2 % des Bereichs je 10 K	1 % des Bereichs je 10 K
Empfindlichkeit gegenüber der elek- trischen Spannung beim Spanniveaue	2 % des Bereichs je 10 V	1 % des Bereichs je 10 V
Störkomponenten	Summe ≤ ± 6 % des Bereichs	Summe ≤ ± 6 % des Bereichs
	CO ₂ 14 %	2,8 %
	CO 300 mg/m ³	2,3 %
	NO ₂ 40 mg/m ³	0,4 %
	NO 320 mg/m ³	0,1 %
SO ₂ 200 mg/m ³	0,1 %	
Verlust und Leckage in der Probenahmeleitung und in der Konditionierungseinrichtung	2 % des Messwerts	2 % des Messwerts
Standardabweichung bei der Wiederholpräzision im Laboratorium bei null	1 % des Bereichs	0,2 % des Bereichs
Standardabweichung bei der Wiederholpräzision im Laboratorium beim Spanniveaue	2 % des Bereichs	0,2 % des Bereichs

Hier zeigt sich noch einmal die Problematik hinsichtlich der Einhaltung der vorgegebenen Messunsicherheiten für die THG-Emissionen.

Kontinuierliche Überwachung der biogenen CO₂ Emissionen

Ein Werkzeug zur Bestimmung des Anteils von grüner Energie

Dipl.-Phys. **Jürgen Reinmann**, ENVEA Deutschland, Bad Homburg

Kurzfassung

Die genaue Messung von Emissionen ist von wachsendem Interesse. Spezifisch die Bestimmung der Emissionen von Treibhausgasen (THG) ist sehr wichtig. Ein öffentliches und politisches Interesse ist dabei die Reduzierung der fossilen CO₂-Emissionen und der Erhöhung des Anteils von erneuerbarer Energie der sogenannten "grünen Energie". Wenn Strom oder Wärme aus einem gemischten Brennstoff produziert wird, ist es schwer zu bestimmen: was ist "grün" und was nicht?

Siedlungsabfälle, Sondermüll und Ersatzbrennstoff (EBS), verarbeitet aus festen Siedlungsabfällen und/oder Sondermüll, sind in der Regel eine unbekannte Mischung aus fossilen und biogenen organischen Stoffen. Aufgrund von europäischen Vorschriften (z. B. die Richtlinie zur Erzeugung von Strom aus erneuerbaren Energie Quellen 2009/28/EG¹) sind Behörden, Hersteller und Betreiber von Müllverbrennungsanlagen (MVA's) und EBS-Anlagen an zuverlässige und kostengünstige Methoden zur Bestimmung des fossilen und biogenen Anteils des Abgases interessiert. Ziel ist es damit den grünen Energieanteil bzw. den CO₂-Anteil, welcher für die Treibhausgasemission zur Kalkulation verwendet wird, genauer zu bestimmen.

Es gibt gebräuchliche Methoden für die Bestimmung der biogenen Anteile des Brennstoffs durch die Untersuchung von ein paar Gramm des Brennstoffs. Diese Methoden sind jedoch zeitintensiv und aufgrund des Charakters der Stichproben (Analyse von ein paar Gramm von mehreren Tonnen Material) besitzen diese eine höhere Unsicherheit aufgrund ihrer systematischen Einschränkungen.

Mit der kontinuierlichen Probenahme eines Teils des Rauchgases auf ein CO₂ Adsorbermaterial, ist es jedoch möglich, den biogenen CO₂-Anteil der emittierten Rauchgase in eine einfache und präzise Weise zu überwachen und genau zu bestimmen.

Diese Präsentation beschreibt die technischen Anforderungen der DIN EN ISO 13833 - „Emissionen aus stationären Quellen - Bestimmung des Verhältnisses von Kohlendioxid aus Biomasse (biogen) und aus fossilen Quellen“ und die Funktionsweise des Langzeitprobe-

nahmesystems AMESA B zur CO₂-Sammlung. Es werden Ergebnisse von Anwendungen in MVA's und EBS-Anlagen vorgestellt.

1. Rechtliche Anforderungen

Bezüglich der genauen Bestimmung der CO₂-Emissionen von Verbrennungsanlagen und hierbei insbesondere des biogenen Anteils der CO₂-Emissionen, gibt es zwei unterschiedliche rechtliche Anforderungen:

1. Die Einhaltung der gesetzten Ziele der europäischen Richtlinie 2009/28/EG zur Förderung der Nutzung von Energie aus erneuerbaren Quellen.
2. Die Erfüllung der Anforderungen des Kyoto-Protokolls zur Reduzierung der Treibhausgasemissionen (THG).

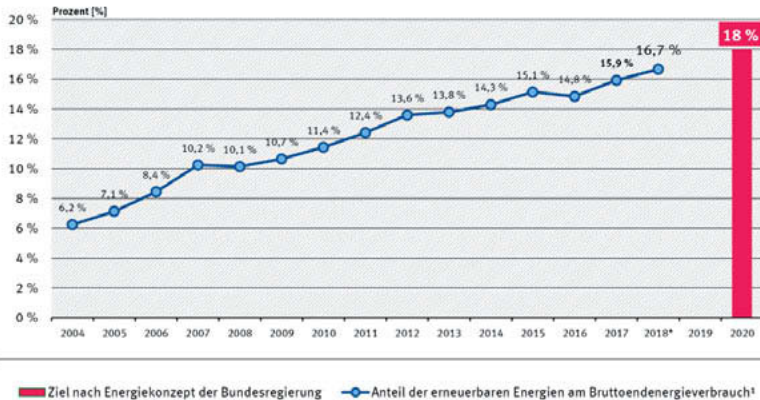
1.1 Erneuerbare Energie

In der Richtlinie 2009/28/EG ist unter (9) geschrieben, dass auf der Tagung des Europäischen Rates vom März 2007 ein verbindliches Ziel von 20 % für den Anteil von Energie aus erneuerbaren Quellen am Gesamtenergieverbrauch in der Gemeinschaft bis 2020 gebilligt wurde.

Zur Erreichung dieses Gesamtziels muss nicht jedes Mitgliedsland ein 20 %-Ziel auf nationaler Ebene umsetzen. Laut Artikel 3 (1) muss jeder Mitgliedstaat dafür sorgen, dass sein berechneter Anteil von Energie aus erneuerbaren Quellen am Bruttoendenergieverbrauch im Jahr 2020 mindestens seinem nationalen Gesamtziel, entsprechend der Tabelle in Anhang I Teil A, entspricht. Der Zielwert von Deutschland für den Anteil von Energie aus erneuerbaren Quellen am Bruttoendenergieverbrauch im Jahr 2020 ist entsprechend dieser Tabelle 18 %.

Anteil erneuerbarer Energien am Bruttoendenergieverbrauch¹

Vergleich der Entwicklung der erneuerbaren Energien (nach Energiekonzept) mit dem Ziel der Bundesregierung



¹ berechnet nach Energiekonzept der Bundesregierung
* vorläufiger Wert

Quelle: Umweltbundesamt (UBA) auf Basis AGE-E-Stat
Stand 02/2019

Bild 1: Anteil erneuerbarer Energie am Bruttoendenergieverbrauch

Im Jahr 2018 wurden in Deutschland insgesamt 428 Terawattstunden (TWh) aus erneuerbaren Energien bereitgestellt. Dies entspricht 16,7 % des Endenergieverbrauchs in Deutschland² (Bild 1).

Laut Artikel 2 a) der Richtlinie bedeutet „Energie aus erneuerbaren Quellen“ Energie aus erneuerbaren, nichtfossilen Energiequellen, wie unter anderem Biomasse. Für den in einer MVA und EBS-Anlage üblicherweise eingesetzten Hausmüll / Siedlungsabfall wird sowohl im Nationalen Inventarbericht als auch in der Nationalen Energiebilanz seit dem Jahr 2016 die Annahme getroffen, dass er bezogen auf den Energiegehalt, zu 50% aus Biomasse besteht³. In der Realität wird der biogene Anteil der in einzelnen Anlagen eingesetzten Abfallfraktionen erheblich schwanken. Insofern macht es Sinn, anlagenspezifische biogene Anteile zu ermitteln. Sollte dabei belegt werden, dass der biogene Anteil der aus MVAs und EBS-Anlagen erzeugten Energie größer ist als 50 %, wäre dies eine zusätzliche Hilfe das angestrebte Ziel von 18 % erneuerbarer Energie zu erreichen.

1.1 Treibhausgasemissionen

In Deutschland hat das Bundeskabinett am 3. Dezember 2014 das Aktionsprogramm Klimaschutz 2020⁴ beschlossen. Damit wollte die Bundesregierung sicherstellen, dass Deutschland seine Treibhausgasemissionen bis zum Jahr 2020 um 40 % gegenüber 1990 reduziert. Die aktuellsten Treibhausgasemissionen sind im nationalen Inventarbericht zum Deutschen Treibhausgasinventar veröffentlicht⁵. Im Jahr 2017 war die Reduzierung der gesamten Treibhausgase im Vergleich zum Basisjahr 1990 lediglich 27,5 %. Ein Erreichen des Ziels von einer Reduzierung von 40 % bis zum Jahr 2020 ist daher unmöglich. Die Freisetzung von Kohlendioxid ist auch 2017 mit einem Anteil von 88,0 % Hauptverursacher der Treibhausgasemissionen. MVAs und EBS-Anlagen sind zwar nach § 2 Abs. 5 TEHG⁶ vom Emissionsrechtshandel (ETS) ausgeschlossen, durch die Mitverbrennung von EBS in Kohlekraft- oder Zementwerken lassen sich jedoch Zertifikate einsparen. Eine belegte Reduzierung der CO₂-Emissionen kann aber zum Erreichen der geforderten Reduzierung der Treibhausgasemissionen helfen. Weiterhin besteht auch die Möglichkeit, dass die genannten Anlagen zukünftig am Emissionshandel teilnehmen müssen. In Schweden und Dänemark ist dies bereits seit dem 1. Januar 2013 verpflichtend⁷.

Eine genauere Bestimmung des biogenen Anteils der Energieerzeugung und der Treibhausgasemissionen von MVAs und EBS-Anlagen ist für die zwei erwähnten rechtlichen Themen auf jeden Fall von Interesse.

2. Bestimmung des biogenen CO₂-Anteils

Wie zuvor erläutert bestehen gemischte Abfälle, wie sie z.B. in MVAs und EBS-Anlagen verwendet werden, aus einer Mischung aus fossilem und biogenem Kohlenstoff.

Der biogene Kohlenstoff ist in Brennmaterial enthalten, welches erst vor kurzem gewachsen ist, wie z. B. Holz, Lebensmittel, Pflanzen, Papier usw. Das darin enthaltene CO₂ ist Teil eines natürlichen Zyklus. Der fossile Kohlenstoff ist in Brennmaterial enthalten, welches vor Millionen von Jahren entstanden ist, wie z.B. Kohle, Öl bzw. Materialien welche Komponenten davon enthalten, wie z.B. in Kunststoff.

Es gibt gebräuchliche Methoden (manuelle Sortieranalyse, selektive Ausschlussmethode, Radiokarbonmethode oder Bilanzmethode) für die Bestimmung der biogenen Anteile des Brennstoffs. Diese Methoden sind sehr aufwendig und liefern mit den Müllanlieferungen variierende Ergebnisse.

Bei der Radiokarbonmethode nutzt man den Fakt, dass die fossilen und biogenen Materialien durch einen Marker der Kohlenstoffatome identifiziert werden können. Das fossile Material besteht aus 12C und biogenes Material besteht aus 14C. Diese Eigenschaft wird auch

angewandt, bei der Untersuchung von ein paar Gramm des Brennstoffs. Diese Methode ist jedoch zeitintensiv und aufgrund des Charakters der Stichproben (Analyse von ein paar Gramm von mehreren Tonnen Material) besitzt diese Methode eine höhere Unsicherheit aufgrund ihrer systematischen Einschränkungen.

Bei der Verbrennung des Brennstoffs wird der verschiedene Kohlenstoff mit dem CO_2 in die Atmosphäre emittiert. Biogenes CO_2 wird dabei als CO_2 neutral definiert, da das CO_2 , welches durch die Verbrennung freigesetzt wird erst vor kurzer Zeit von dem verbrannten Material (sogenannte Biomasse) gebunden wurde. Nur der fossile CO_2 Anteil der Emission wird als THG-Quelle definiert. Durch eine Bestimmung des ^{14}C Anteils des Rauchgases ist es möglich, den biogenen Anteil des Brennstoffs zu bestimmen.

Ein entsprechendes Verfahren ist in der DIN EN ISO 13833⁸ beschrieben.

3. Funktionsprinzip

Das in dieser Präsentation verwendete Langzeitprobenahmesystem AMESA B arbeitet nach der in der DIN EN ISO 13833 beschriebenen Probenahmemethode (Bild 2) und erfüllt die Mindestanforderungen dieser Norm.

Zur Bestimmung des biogenen CO_2 Anteils extrahiert das AMESA B-System (Bild 3) einen Teil des Rauchgases durch eine beheizte Entnahmesonde (1) unter volumen-proportionalen

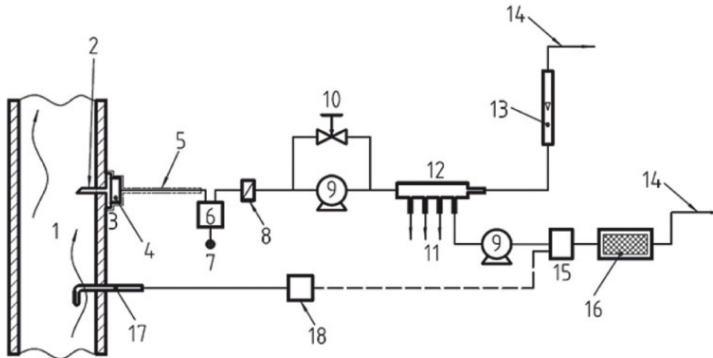


Bild 2 — Aufbau einer Probenahmeeinrichtung für die verhältnismäßige Probenahme

Legende

1 Abgas	7 Wasserableitung	13 Volumenstrommessgerät (wahlfrei)
2 Sonde	8 Sekundärfilter	14 Abluft
3 Heizvorrichtung	9 Probenahmepumpe	15 Massendurchflussregler
4 Primärfilter	10 Bypassventil	16 CO ₂ -Absorber
5 beheizte Probenleitung	11 zum (zu den) Analysegerät(en)	17 Pitot-Rohr
6 Entfeuchter	12 Verteiler	18 Volumenstrommessgerät

Bild 2: Probenahmemethode nach DIN EN ISO 13833

Bedingungen. Am Sondeneingang ist ein Staubfilter (2) montiert, um ein Verstopfen der Sonde und nachfolgender Bauteile zu verhindern. Nach der Sonde wird das Rauchgas durch eine beheizte Leitung (3) zum Steuerschrank (4) gesaugt und nach Eintritt in den Schrank, durch eine Abkühlung in einem Gaskühler auf ca. 5 °C, getrocknet. Nach dem Kühler wird das getrocknete Rauchgas einer Adsorberkartusche zugeführt, welche mit Ascarite oder Natronkalk gefüllt ist. In der Adsorberkartusche wird das im Rauchgas enthaltene CO₂ gesammelt. Zur Gewährleistung der volumen-proportionalen Absaugung ist in die Probenahmesonde ein Pitotrohr integriert. Die Absaugrate wird mit Hilfe eines Massendurchflussreglers geregelt.

Nach der Probenahmezeit von mehreren Stunden bis zu einem Monat wird die Kartusche in ein Labor gesendet. In dem Labor wird über die C14 Methode der Anteil von ¹⁴C und ¹²C Isotopen des gesammelten CO₂ bestimmt. Mit dem Analyseergebnis und der Information über

den 14C-Anteil ist es möglich, den emittierten Anteil der fossilen und biogenen CO₂ Menge zu bestimmen und den Anteil der grünen Energie zu berechnen.

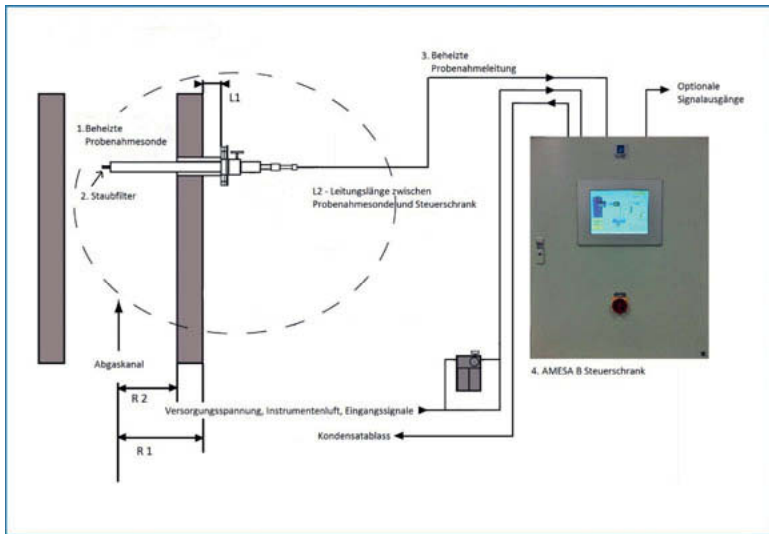


Bild 3: AMESA B Aufbau

Zur Bestimmung des Anteils an grüner Energie, muss nach der Ermittlung des biogenen CO₂-Anteils im Rauchgas, eine Umrechnung in den energetischen Anteil durchgeführt werden. Eine angewandte Methode ist in der italienischen Technischen Spezifikation UNI/TS 11461⁹ beschrieben.

Der Anteil der erzeugten erneuerbaren Energie (E_{bio}) wird durch die Anwendung der vereinfachten Gleichung 1 berechnet:

$$E_{\text{bio}} = \frac{A \times C}{B + [(A - B) \times C]} \quad (1)$$

mit

A: der Referenzwert des Heizwert/C-Verhältnisses für den Biomasseanteil des Brennstoffs, teilweise biologisch abbaubar, [MJ/kg];

B: der Referenzwert des Heizwert/C-Verhältnisses für den fossilen Anteil des Brennstoffs, teilweise biologisch abbaubar, [MJ/kg];

C: ist der erneuerbare Kohlenstoffanteil, bezogen auf den Gesamtkohlenstoffgehalt des Rauchgases, bestimmt nach dem 14C Verfahren.

Im Falle eines teilweise biologisch abbaubaren Kraftstoffs, der aus Siedlungsabfällen oder festem Sekundärbrennstoff besteht (produziert aus Siedlungsabfall) werden die folgenden Referenzwerte angenommen:

Biomassefraktion (A): $(0,371 \pm 0,018)$ MJ/kg

Fossile Fraktion (B): $(0,472 \pm 0,028)$ MJ/kg

Diese Werte sind in Anhang B der genannten Norm unter Bezugnahme von Information aus der Datenbank für Biomasse und Abfall Phyllis2¹⁰, berechnet worden. Im Fall von Siedlungsabfällen kann der Anteil der erneuerbaren Energie vereinfacht mit der Gleichung 2 berechnet werden.

$$E_{\text{bio}} = \frac{0,371 \times C}{0,472 - 0,101 \times C} \quad (2)$$

Bei Abfällen, die aus einer oder mehrerer spezifischer Fraktionen biogenen und/oder fossilen Ursprungs bestehen, ist es möglich, spezifische Heizwert/C-Referenzwerte anzuwenden.

In diesem Fall muss, entsprechend UNI/TS 11461 die verwendete Datenbank und das Verfahren zur Ableitung des Referenzwertes im Prüfbericht angegeben werden.

4. Anwendung und Ergebnisse

Es wurden mit dem AMESA B System Langzeitprobenahmen von bis zu 4 Wochen in drei verschiedenen Müllverbrennungsanlagen durchgeführt. Die Müllzusammensetzung ist in den drei Anlagen unterschiedlich. In Anlage A wird gemischter Hausmüll verbrannt, in Anlage B wird Hausmüll und teilweise Industriemüll verbrannt und in Anlage C wird Hausmüll und teilweise Klärschlamm verbrannt.

Die durchschnittlichen biogenen CO₂-Anteile im Rauchgas waren über den gesamten Probenahmezeitraum von mehreren Monaten in der Anlage A (Bild 4) 68,7 %, in der Anlage B (Bild 5) 53 % und in der Anlage C (Bild 6) 66,4 %. Alle Ergebnisse waren über den festgelegten 50 %, welche für die Bilanzierung der THG-Emissionen verwendet werden. Selbst für die Anlage, welche teilweise Industriemüll verbrennt, könnte hier bei einer Anerkennung der Messwerte eine bessere Emissionsbilanz berichtet werden.

Mit der Anwendung der Gleichung 2 ergeben sich für den durchschnittlichen Anteil der erzeugten grünen Energie für Anlage A: 63,4 %, für Anlage B: 47,0 % und für Anlage C: 60,9

% Anhand der Ergebnisse ist ersichtlich, dass außer für Anlage B, welche Industriemüll mitverbrennt, die Annahme von 50 % erneuerbarer Energie für Müllverbrennungsanlagen zu gering ist.

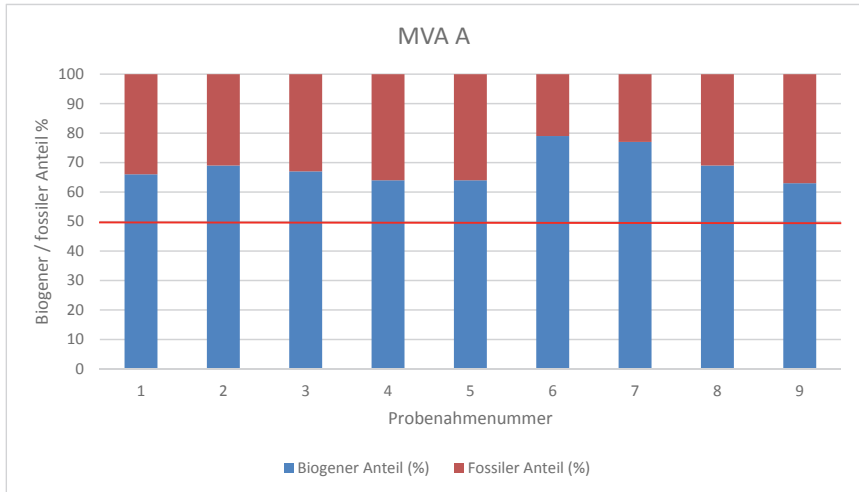


Bild 4: Biogener CO₂-Anteil im Rauchgas Anlage A – Hausmüll

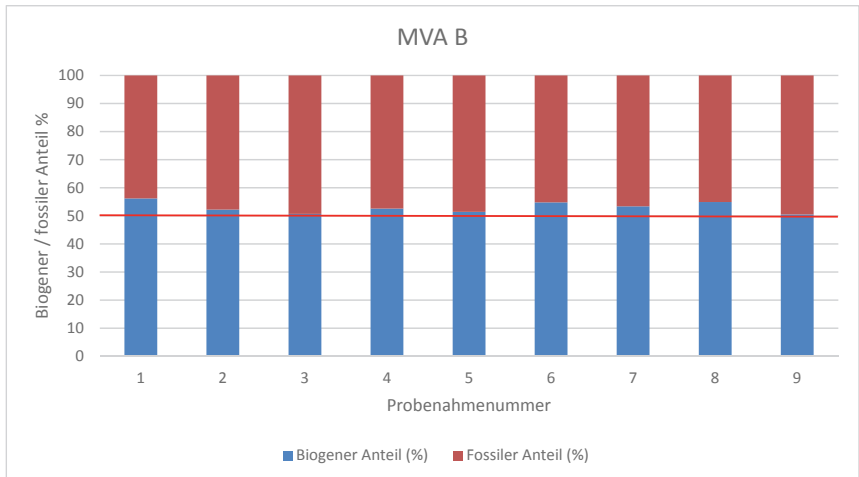


Bild 5: Biogener CO₂-Anteil im Rauchgas Anlage B – Hausmüll / Industriemüll

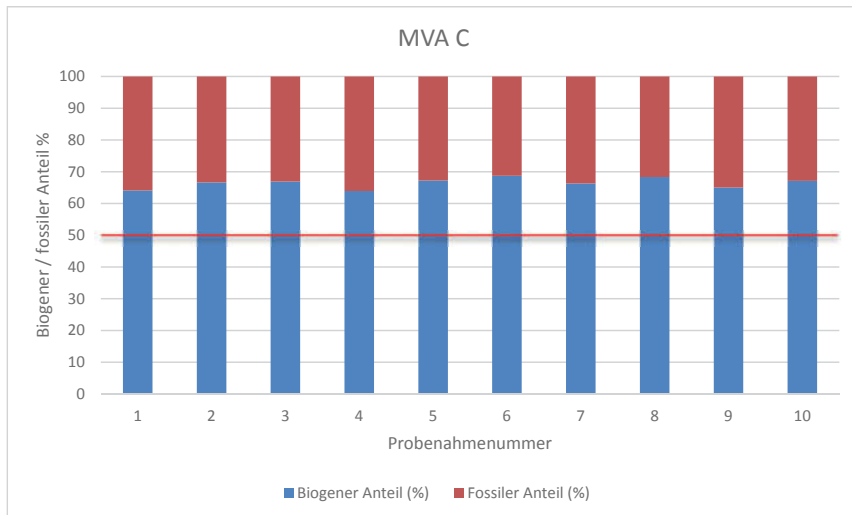


Bild 6: Biogener CO₂-Anteil im Rauchgas Anlage B – Hausmüll / Klärschlamm

5. Diskussion der Ergebnisse

Die gefundenen Ergebnisse zeigen, dass der bisherige Ansatz 50 % der CO₂-Emissionen von MVAs und EBS-Anlagen als biogen anzunehmen zu einer Unterschätzung führen kann. Der Nachweis von höheren biogenen CO₂-Emissionen kann helfen die gewünschte THG-Reduzierung einfacher zu erreichen. Des Weiteren kann ein solcher Nachweis helfen, das Ziel von 18 % erneuerbarer Energie im Jahr 2020 sicherer zu belegen.

Im Jahr 2018 wurden insgesamt 428 TWh aus erneuerbaren Energien bereitgestellt. Dies entsprach 16,7 % des Endenergieverbrauchs in Deutschland mit insgesamt 2.562,9 TWh. Der Anteil von erneuerbarer Energie im Stromsektor betrug im Jahr 2018 mit etwa 225,7 TWh Strom 37,8 % des Bruttostromverbrauchs (Bild 7). Aus Biomasse wurden im Jahr 2018 etwa 51,3 TWh Strom bereitgestellt, wobei 6,2 TWh durch die Verbrennung des biogenen Anteils des Abfalls erzeugt wurden. Diese Zahl berechnet sich aus dem festgelegten Anteil von 50 % biogener Abfall. Welchen Einfluss ein höherer Anteil von erneuerbarer Energie aus Müllverbrennungs- und EBS-Anlagen haben kann soll die folgende Rechnung demonstrieren.

Annahme: gemessener Anteil von erneuerbarer Energie: 55 %.

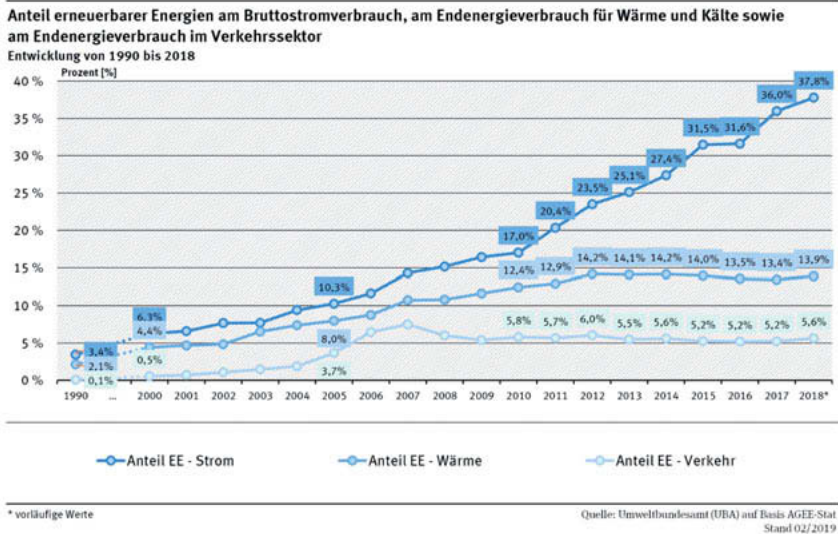


Bild 7: Anteil erneuerbarer Energien am Bruttostromverbrauch

Damit ergäbe sich für 2018 eine produzierte Leistung von 6,82 TWh ($0,55 \times 2 \times 6,2$ TWh) Strom und somit rein rechnerisch eine Erhöhung von 0,62 TWh Strom aus erneuerbarer Energie.

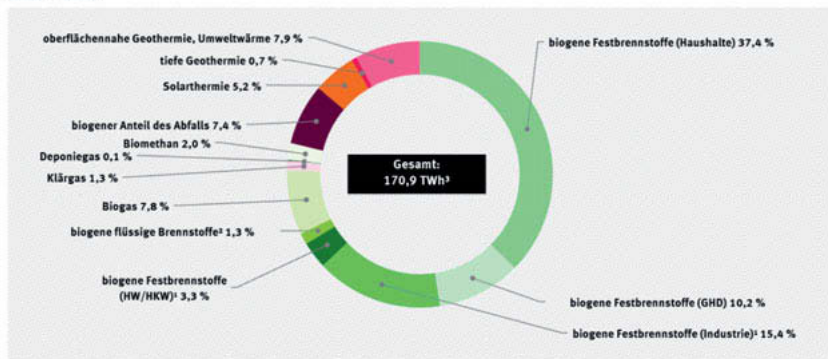
Die gleiche Rechnung kann auch für die Wärmeerzeugung durchgeführt werden. Der Anteil von erneuerbarer Energie im Bereich der Wärmeerzeugung betrug im Jahr 2018 mit etwa 171 TWh Wärme 39,9 % des Bruttowärmeverbrauchs (Bild 8). Hiervon waren 7,4 % (= 12,65 TWh) aus biogenen Abfällen. Damit ergäbe sich für 2018 eine produzierte Leistung von 13,92 TWh ($0,55 \times 2 \times 12,65$ TWh) Wärme und somit rein rechnerisch eine Erhöhung von 1,27 TWh Wärme aus erneuerbarer Energie.

Mit der gemachten Annahme von 55 % biogenen energetischen Anteil bei der Abfallverbrennung ergäbe sich somit, im Vergleich zu den im Moment angenommenen 50 %, eine gesamte Erhöhung von 1,89 TWh. Diese Leistung entspricht 0,074 % des Gesamtenergieverbrauchs und würde daher für das Jahr 2018 den Anteil an erneuerbarer Energie von 16,7 % auf fast 16,8 % erhöhen. Dieser Anteil könnte daher einen interessanten Beitrag zur Erreichung des 18 % Ziels leisten.

Ähnliche Rechnungen lassen sich auch bei der Betrachtung der THG-Emissionen durchführen.

Wärmeverbrauch aus erneuerbaren Energien im Jahr 2018*

Anteile in Prozent



* inkl. Klärschlamm

¹ inkl. Bioenergieverbrauch in der Land- und Forstwirtschaft, Baugewerbe und MÖBÖ

² 1 Tonne wätschende (TWh) = 1 MWh Klärschlamm (KMS)

³ vorläufige Werte

Quelle: Umweltbundesamt (UBA) auf Basis AGEE-Stat, Stand 02/2019

Bild 8: Wärmeverbrauch aus erneuerbarer Energie

6. Zusammenfassung

Die hier vorgestellten Messergebnisse zeigen, dass die bisherige Vorgehensweise, den biogenen Anteil der CO₂-Emissionen und der erzeugten Energie aus Müllverbrennungs- und EBS-Anlagen fest mit 50 % anzusetzen, zu einer Unterschätzung führen kann. Die damalige Begründung, dass die Bestimmung des biogenen Anteils zu kompliziert ist, kann bei der Anwendung der hier vorgestellten Langzeitprobenahme-Methode mit dem AMESA B System, nicht bestätigt werden. Eine breitere Einführung dieser Messmethode hat das Potential einen Beitrag zu leisten, die nationalen Ziele, in Bezug auf die Erhöhung des Anteils von erneuerbarer Energie als auch die Reduzierung der THG-Emissionen, zu erreichen.

Sollten zukünftig solche Anlagen, wie bereits in Dänemark und Schweden, in den THG-Zertifikatshandel mit aufgenommen werden, kann es für die Anlagenbetreiber finanziell von Vorteil sein, wenn sie einen höheren biogenen Anteil als 50 % nachweisen können.

¹ Richtlinie 2009/28/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 23. April 2009 zur Förderung der Nutzung von Energie aus erneuerbaren Quellen und zur Änderung und anschließenden Aufhebung der Richtlinien 2001/77/EG und 2003/30/EG (Text von Bedeutung für den EWR), <http://data.europa.eu/eli/dir/2009/28/oj>

² <https://www.umweltbundesamt.de/themen/klima-energie/erneuerbare-energien/erneuerbare-energien-in-zahlen#statusquo>

³ Emissionsbilanz erneuerbarer Energieträger Bestimmung der vermiedenen Emissionen im Jahr 2016, UBA, Oktober 2017, https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/378/publikationen/climate_change_23_2016_nir_2016_berichterstattung_unter_der_klimarahmenkonvention.pdf

⁴ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit, <http://www.bmub.bund.de/themen/klima-energie/klimaschutz/nationale-klimapolitik/aktionsprogramm-klimaschutz/>

⁵ Berichterstattung unter der Klimarahmenkonvention der Vereinten Nationen und dem Kyoto-Protokoll 2019, Nationaler Inventarbericht zum Deutschen Treibhausgasinventar 1990 – 2017, Umweltbundesamt – UNFCCC-Submission https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/1410/publikationen/2019-05-28_cc_23-2019_nir-2019_0.pdf

⁶ Bundesamt für Justiz und Verbraucherschutz, https://www.gesetze-im-internet.de/tehg_2011/_2.html

⁷ Fuglsang, Radiocarbon measurement of fossil CO₂ emissions from waste incineration plants, CEM conference, Lisbon, 2016

⁸ DIN EN ISO 13833, Juli 2013

⁹ UNI/TS 11461, 2012, Impianti di co-combustione, incenerimento e co-incenerimento - Determinazione della frazione di energia rinnovabile prodotta dall'impianto mediante la misura del 14C, Englischer Titel: Co-combustion, incineration and co-incineration plants - Determination of the renewable energy fraction produced by plant with 14C method

¹⁰ Phyllis2, database for biomass and waste, <https://phyllis.nl/>, ECN.TNO

Fortschritte bei der Überwachung im Treibhausgas-Emissionshandel

Aktuelle Erfahrungen und Ausblick auf die vierte Handelsperiode

Dipl.-Ing. **Burkard Lenzen**, Deutsche Emissionshandelsstelle (DEHSt) im Umweltbundesamt, Berlin

Kurzfassung

Im europäischen Treibhausgas-Emissionshandelssystem (EU-ETS) haben Anlagenbetreiber, Prüfstellen und Behörden zahlreiche Erfahrungen mit der Überwachung der Treibhausgasemissionen nach den europaweit bindenden Vorgaben der Monitoring-Verordnung (MVO) gesammelt. Dies betrifft insbesondere kontinuierliche Emissionsmesssysteme (KEMS), die mit dem erweiterten Anwendungsbereich in der dritten Handelsperiode des EU-ETS ab 2013 im Vergleich zu den vorherigen Handelsperioden 2005-2007 und 2008-2012 relativ häufig eingesetzt werden.

Sowohl bei der Berechnung als auch bei der Messung der Emissionen hat die von der MVO geforderte regelmäßige Prüfung und Umsetzung von Verbesserungspotenzialen zu methodischen und qualitativen Fortschritten bei der Überwachung geführt. Bei der Anwendung von KEMS treten jedoch noch relativ oft Mängel auf. Diese betreffen insbesondere die Ausführung, die Kalibrierung und den praktischen Betrieb von Volumenstrommessungen sowie die Parametrierung der Auswerterechner.

Nach Untersuchung der Ursachen für typische Probleme bei KEMS-Anwendungen in zahlreichen Prüfungen von Emissionsberichten und zugehörigen Unterlagen hat die DEHSt daher verschiedene Arbeitshilfen z.B. für die Unsicherheitsbewertung von KEMS entwickelt. Diese wurden in die VDI-Richtlinie 3950 aufgenommen. Präzisierte Anforderungen an Auswerteeinrichtungen wurden außerdem in die „Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen“ eingebracht. Schließlich konnten die gesammelten Erfahrungen und Lösungsansätze auch in die Weiterentwicklung der MVO für die Überwachung in der vierten Handelsperiode (ab dem Jahr 2021) einfließen.

Disclaimer: Der Autor ist Mitarbeiter der Deutschen Emissionshandelsstelle (DEHSt) im Umweltbundesamt. Der vorliegende Beitrag gibt die persönliche Auffassung des Verfassers wieder.

1 Einleitung

Grundlegende Bedeutung für ein wirksames Funktionieren des europäischen Treibhausgas-Emissionshandelssystems (EU-ETS) und auch für das notwendige Vertrauen in das System haben eine vollständige, transparente und möglichst genaue Überwachung und jährliche Berichterstattung über Treibhausgasemissionen aus stationären Anlagen als Hauptquelle der Emissionen im EU-ETS.

Alle beteiligten Akteure im EU-ETS sollen sich darauf verlassen können, dass die Emission einer Tonne CO₂-Äquivalent aus einer emissionshandelspflichtigen Anlage in die Atmosphäre auch zur Berichterstattung über eine Tonne CO₂-Äquivalent führt (Grundsatz: „A tonne must be a tonne“). Dieser Grundsatz wird durch die konsequente Anwendung der Prinzipien Vollständigkeit, Transparenz und Genauigkeit beim anlagenbezogenen Monitoring von Treibhausgasen (THG) sichergestellt. Gleichzeitig ist bei der Überwachung aber auch die wirtschaftliche Verhältnismäßigkeit zu berücksichtigen. Abhängig von der Höhe der zu überwachenden Emissionen soll der Aufwand für die anzuwendenden Erfassungsmethoden in Bezug auf die spezifische Anlagensituation vertretbar sein.

Seit der Reform der europäischen Emissionshandelsrichtlinie im März 2018 für die vierte Handelsperiode des EU-ETS (2021-2030) sind die Zertifikatspreise deutlich gestiegen. So ist die Emission einer Tonne CO₂-Äquivalent, für die nach Abschluss eines Berichtsjahres jeweils ein Emissionszertifikat abzugeben ist, bis zum Juli 2019 mit über 25 Euro im Vergleich zu weniger als 10 Euro im März 2018 mehr als doppelt so teuer geworden. Diese Entwicklung zeigt die Bedeutung einer präzisen Berichterstattung über THG-Emissionen. Sofern die Anforderungen an die Unsicherheit nicht eingehalten werden, sind konservative Aufschläge auf die Emissionen mit entsprechend hohen Zusatzkosten die Folge.

In der dritten Handelsperiode des EU-ETS, die sich auf die Jahre 2013 bis 2020 erstreckt, haben sowohl Betreiber stationärer Anlagen als auch Prüfstellen und zuständige Behörden zahlreiche Erfahrungen mit der Überwachung der Treibhausgasemissionen gesammelt. Dies gilt für die beiden grundsätzlich verschiedenen Ansätze zur Ermittlung der Emissionen, der Berechnung oder Bilanzierung der Emissionen anhand von Einsatzmengen, Heizwerten und Emissionsfaktoren sowie der Messung der Emissionen mit kontinuierlichen Emissionsmesssystemen (KEMS).

2. Grundlagen der Überwachung in der dritten Handelsperiode

Für Betreiber von stationären emissionshandelspflichtigen Anlagen gelten in der dritten Handelsperiode (2013-2020) die Vorgaben des geänderten Treibhausgas-Emissionshandelsgesetzes (TEHG) und der EU Monitoring-Verordnung (MVO) zur Berichterstattung über Treibhausgasemissionen [1, 2]. Falls flüssige Biobrennstoffe eingesetzt werden, ist zusätzlich die deutsche Emissionshandelsverordnung (EHV) zu beachten [3].

Die Ermittlung der Emissionen einer Anlage erfolgt auf Basis eines anlagenspezifischen Überwachungsplans gemäß § 6 TEHG, welcher der Deutschen Emissionshandelsstelle (DEHSt) im Umweltbundesamt vor Beginn des Berichtszeitraums zur Prüfung und Genehmigung vorzulegen ist. Im Überwachungsplan werden insbesondere die Methoden festgelegt, die zur Überwachung der Emissionen einer Anlage angewendet werden sollen. Nach Genehmigung des Überwachungsplans durch die DEHSt verfügt der Anlagenbetreiber über eine rechtssichere Basis zur Überwachung der Emissionen während eines Berichtsjahres und zur anschließenden Berichterstattung über diese Emissionen.

Vor Abgabe des Emissionsberichts gemäß § 5 TEHG bei der DEHSt ist dieser von einer TEHG-Prüfstelle nach den Vorgaben des Anhangs 3 zum TEHG und der europäischen Akkreditierungs- und Verifizierungsverordnung [4] prüfen und verifizieren zu lassen. Als unabhängige akkreditierte Stelle prüft diese die Angaben und Daten im Emissionsbericht gegen die vor Ort eingesehenen Nachweise sowie die angewandten Erfassungsmethoden auf Übereinstimmung mit den im genehmigten Überwachungsplan festgelegten Verfahren und verifiziert anschließend die so ermittelten Emissionen.

Die DEHSt nimmt die endgültige Bewertung des vom Betreiber eingereichten Emissionsberichts vor. Sofern dieser nicht bis zum 31. März des Folgejahres eingereicht wurde oder der Betreiber die Verpflichtung zur Abgabe einer den Gesamtemissionen der Anlage entsprechenden Menge von Zertifikaten nicht bis zum 30. April des Folgejahres erfüllt hat, setzt die DEHSt die genannten Betreiberpflichten gemäß §§ 29, 30 TEHG durch [5].

Im Zuge der regelmäßigen Überprüfung des Überwachungsplans nach Art. 14 MVO ergeben sich Möglichkeiten zur Verbesserung und zur Änderung der Überwachungsmethoden, die der DEHSt gemäß Art. 15 MVO mitzuteilen sind. Nach Prüfung der übermittelten Änderungen genehmigt die DEHSt die vorgenommenen Änderungen, ggf. auch unter Auflagen. Der geänderte Überwachungsplan wird so erneut zur Basis für den nächsten Emissionsbericht.

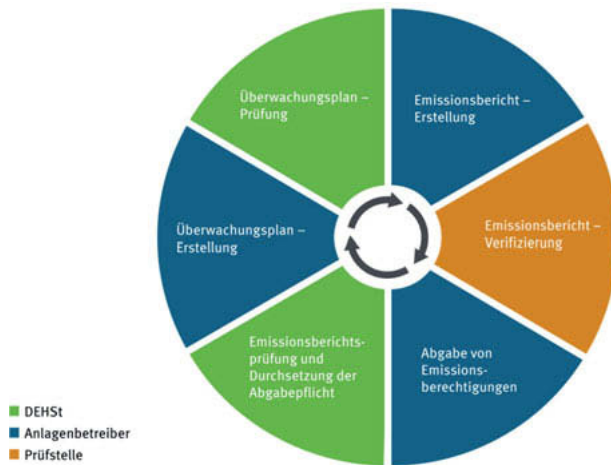


Bild 1: EU Emissionshandel – „Compliance Cycle“ (DEHSt), Aufgaben und Akteure

Wie eingangs erwähnt, muss die Überwachung der Treibhausgasemissionen für ein wirksam funktionierendes EU-ETS immer vollständig, konsistent und in der Zeitreihe vergleichbar sein. Sie muss auch transparent dokumentiert und nachvollziehbar sowohl für die verifizierende Prüfstelle als auch für die DEHSt als zuständige Behörde durchgeführt werden. Außerdem ist bei der Überwachung größtmögliche Genauigkeit anzustreben. Dies ist in Anbetracht der zuletzt deutlich gestiegenen Zertifikatspreise von besonderer Bedeutung. Eine Steigerung der Genauigkeit ist jedoch im Grundsatz nur insoweit erforderlich, als dass dies verhältnismäßig bleibt. Schließlich sind die Überwachungsmethoden auch fortlaufend zu verbessern, indem u. a. die Empfehlungen der TEHG-Prüfstellen aus der jährlichen Prüfung der Emissionsberichte berücksichtigt und in einem geänderten Überwachungsplan umgesetzt werden (Kapitel 1, Abschnitt 2 MVO).

Diese Grundsätze beziehen sich auf alle Methoden zur Ermittlung von Treibhausgasemissionen, insofern werden die beiden grundsätzlich verschiedenen Ansätze Berechnung der Emissionen (Bilanzierung anhand von Einsatzmengen, Heizwerten und Emissionsfaktoren) und Messung der Emissionen mit KEMS (Messung der THG-Konzentration und des Volumensstroms im Abgaskanal) auch weitgehend gleichgestellt. Dies zeigt auch der folgende Vergleich der Genauigkeitsanforderungen nach dem sogenannten Ebenenkonzept der MVO.

Für die Emissionsberechnung ist bei der Ermittlung der Einsatzmengen emissionsstarker Stoffströme (mit mehr als 10% der jährlichen Gesamtemissionen) von Anlagen der Kategorien B und C (dies sind Anlagen mit Jahresemissionen > 50.000 t CO₂Äq) grundsätzlich eine Unsicherheit von maximal 1,5% (Ebene 4) gefordert. Bei Anwendung von KEMS ist demgegenüber an jeder Quelle, aus der jährlich mehr als 5.000 t CO₂Äq oder mehr als 10% der jährlichen Gesamtemissionen einer Anlage emittiert werden, eine maximale Unsicherheit von 2,5% (ebenso Ebene 4) einzuhalten, vgl. Tabellen 1 und 2.

Tabelle 1: Maximale Unsicherheiten für Tätigkeitsdaten/Brennstoffinput (Auszug)

	Ebene 1	Ebene 2	Ebene 3	Ebene 4
Kommerzielle Standardbrennstoffe	7,5%	5%	2,5%	1,5%
Andere gasförmige und flüssige Brennstoffe	7,5%	5%	2,5%	1,5%
Feste Brennstoffe	7,5%	5%	2,5%	1,5%

Tabelle 2: Maximale Unsicherheiten für die kontinuierliche Emissionsmessung (KEMS)

	Ebene 1	Ebene 2	Ebene 3	Ebene 4
CO ₂ -Emissionsquellen	10%	7,5%	5%	2,5%
N ₂ O-Emissionsquellen	10%	7,5%	5%	---
CO ₂ -Weiterleitung	10%	7,5%	5%	2,5%

Im direkten Vergleich der Schwellenwerte für die Unsicherheit erscheinen die Anforderungen für KEMS auf den ersten Blick zunächst weniger anspruchsvoll. Jedoch ist darauf hinzuweisen, dass bei der Emissionsberechnung zusätzliche Unsicherheiten aus der Bestimmung der Heizwerte und Emissionsfaktoren der eingesetzten Stoffe hinzukommen. Die Unsicherheiten bei der Erfassung der Gesamtemissionen liegen folglich für die beiden Verfahren doch in vergleichbarer Höhe. In puncto Genauigkeitsanforderungen werden die Messung und die Berechnung entsprechend Erwägungsgrund 10 in der MVO somit gleichberechtigt behandelt.

3. Wahl der Überwachungsmethoden

Für die Ermittlung der CO₂-Emissionen können die Betreiber gemäß Art. 21 MVO sowohl für die gesamte Anlage als auch für einzelne Emissionsquellen und Stoffströme zwischen der Berechnungsmethode und KEMS grundsätzlich frei wählen, solange die jeweiligen Anforderungen eingehalten werden. Bei dieser Wahl sind neben der Einhaltung der dargestellten Unsicherheitsanforderungen weitere Aspekte von entscheidender Bedeutung:

Ein deutlicher Vorteil des Einsatzes von kontinuierlicher überwachender Messtechnik ist, dass nur ein KEMS pro Emissionsquelle benötigt wird. Das heißt, dass dabei für die Emissionsberichterstattung nur wenige Primärdatenquellen ausgewertet werden müssen. Durch die direkte Anbindung der Messgeräte an einen Emissionsauswerterechner können die Emissionsdaten vollständig automatisiert zum Rechner übertragen und für den jährlichen Bericht direkt ausgegeben werden. Demgegenüber ist bei der Berechnung von Emissionen davon auszugehen, dass zahlreiche Probenahmen und Laboranalysen für Einsatzstoffe oder Produkte nennenswerten Zusatzaufwand bedeuten. Außerdem sind Primärdaten aus unterschiedlichen Quellen (Mengenmessungen, Lagerbestandsbilanzen, Laboranalysen, Lieferantangaben etc.) zu verarbeiten, was inhärente Risiken der Fehlbestimmung von Emissionen (z.B. durch Übertragungsfehler) nach sich zieht.

Für KEMS gibt es daneben auch dezidierte normative Vorgaben zur Erfassung, Auswertung, Qualitätssicherung und zur Dokumentation der Emissionsdaten. Für diese muss das Anlagenpersonal zwar zunächst gesondert geschult werden, die Vorgaben sind jedoch längerfristig einfacher umsetzbar als verschiedenste individuelle Maßnahmen zur Qualitätssicherung, Datenauswertung und Datenkontrolle bei der Emissionsberechnung.

Das höhere Risiko für systematische Fehler bei KEMS, z.B. bei unsachgemäßer Bedienung oder Wartung der Messgeräte oder bei fehlerhafter Parametrierung des Auswerterechners, ist dagegen ein klarer Nachteil bei der Anwendung von KEMS. Dieses Risiko ist für die Emissionsberechnung wegen der Aggregation von Einzelmessungen aus verschiedenen voneinander unabhängigen Messgeräten zur Mengenerfassung als eher gering anzusehen.

Ein zentraler Aspekt für die Entscheidung zwischen den verschiedenen Überwachungsmethoden liegt in den Kosten für die Mess- und Analysengeräte sowie die Auswerteeinheiten. Bei KEMS sind oftmals Nachrüstungen und Optimierungen der vorhandenen Messsysteme erfor-

derlich. Für die Emissionsberechnung ergeben sich dagegen häufig Synergien, weil Abrechnungs- und Energiedaten z.B. aus geeichten Messgeräten nach MessEG und MessEV mit entsprechender Qualität ohne Zusatzkosten bereits verfügbar sind [6, 7]. Sofern solche geeichten Messgeräte zum Beispiel für Erdgas als Brennstoff eingesetzt werden, ist die Berechnung der Emissionen als deutlich kosteneffizienter und weniger risikobehaftet anzusehen.

Wenn jedoch andere, weniger homogene Brennstoffe (z.B. Ersatzbrennstoffe) eingesetzt werden und die Messgeräte zur Erfassung der Einsatzmengen nicht geeicht sind, können KEMS kostenmäßig langfristig vorteilhaft sein. Dies ist vor allem bei Anlagen der Fall, die mit kontinuierlicher Messtechnik bereits die Erfüllung emissionsbegrenzender Vorgaben wie z.B. von Stickstoffoxid-Emissionsgrenzwerten (NO_x) nachweisen müssen. In solchen Fällen ist die Nachrüstung von Messgeräten für die CO_2 -Konzentration und für den Abgasvolumenstrom häufig weit weniger aufwändig als die Installation eines komplett neuen Messsystems.

Unabhängig von den genannten Vor- und Nachteilen ist grundsätzlich darauf hinzuweisen, dass eine „gegenseitige Validierung“ der beiden Ansätze zur Bestimmung der CO_2 -Emissionen durch den Einsatz von zwei unabhängigen Erfassungssystemen immer möglich ist.

Bei der Wahl von KEMS ist diese Validierung als flankierende Emissionsberechnung ohne spezifische Genauigkeitsanforderungen gemäß Art. 46 MVO auch verpflichtend anzuwenden. Bei regelmäßiger (z.B. monatlicher) Anwendung ist sie ein wichtiges Instrument zur Plausibilisierung der Emissionsdaten und auch zur Identifizierung von Fehlfunktionen der Messgeräte. So können potenzielle Fehler im Emissionsbericht durch regelmäßigen Vergleich zwischen Messung und Berechnung frühzeitig identifiziert und oft auch beseitigt werden.

Zusammenfassend ist für die Wahl der anzuwendenden Überwachungsmethode festzuhalten, dass die Emissionsberechnung meistens kosteneffizienter ist beim Einsatz von Brennstoffen wie Erdgas oder Heizöl EL, deren Einsatzmengen und Stoffparameter mit geeichten Messgeräten bestimmt werden bzw. als Standardwerte (Heizwert, CO_2 -Emissionsfaktor) festgelegt sind. Demgegenüber kann der Einsatz von KEMS bei der Verbrennung von Kohlen oder Ersatzbrennstoffen günstiger sein, insbesondere dann, wenn die Brennstoffe zwischengelagert werden und die notwendige jährliche Lagerbestandsbilanz erhebliche Unsicherheiten bei der Bestimmung des Brennstoffeinsatzes nach sich zieht.

Auch bei einer Vielzahl von zu überwachenden, teilweise inhomogenen Stoffströmen einer Verbrennungsanlage zeigen sich Vorteile für den Einsatz von KEMS, denn die resultierenden CO₂-Emissionen können in solchen Fällen durch ein zusammenhängendes automatisches Messsystem in der Regel weniger risikobehaftet, nachvollziehbarer und langfristig auch kostengünstiger ermittelt werden, vgl. Bild 2.

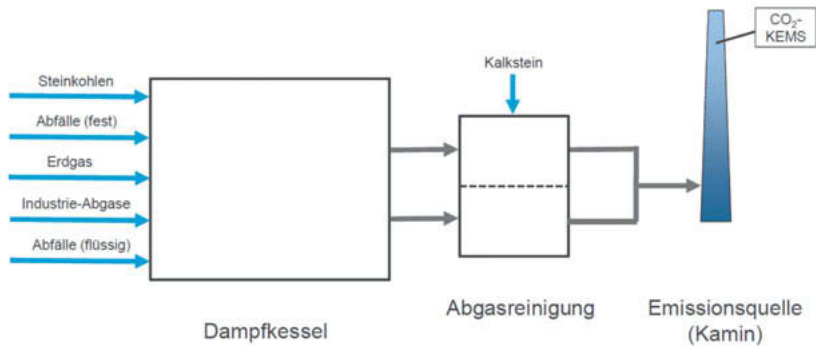


Bild 2: Anwendung von KEMS bei Verbrennung von teilweise inhomogenen Stoffen

Für die dritte Handelsperiode haben sich im europäischen Vergleich relativ viele deutsche Anlagenbetreiber für die kontinuierliche Überwachung der CO₂-Emissionen anstatt einer Emissionsberechnung entschieden. Neben den schon seit Beginn des Emissionshandels im Jahr 2004 eingesetzten Anwendungen im Abgas der Regeneration von Katalysatoren (v.a. in Raffinerien) war dabei ein deutlicher Trend zum Einsatz von KEMS bei chemischen Produktionsanlagen und deren nachgelagerten Verbrennungseinrichtungen (wie TNV oder RTO) sowie beim Einsatz von inhomogenen Ersatzbrennstoffen in konventionellen Kraftwerken und Heizkraftwerken zu verzeichnen.

Daneben sind ab dem Jahr 2013 mit der Aufnahme von Anlagen zur Herstellung von Salpetersäure oder Adipinsäure in das EU-ETS relativ viele KEMS-Anwendungen für Distickstoffoxid-Emissionen (N₂O) hinzugekommen. Für diese Anlagen ist der Einsatz von KEMS verpflichtend, denn die hier entstehenden und durch Abgasreinigung geminderten N₂O-Emissionen können nicht durch stöchiometrische Berechnungen hergeleitet werden.

Die Gesamtmenge der mit KEMS-Anwendungen an deutschen Anlagen erfassten THG-Emissionen beträgt ungefähr 13 Mio. Tonnen CO₂-Äq pro Jahr [8]. Bei einem Zertifikatspreis von

aktuell ca. 25 Euro pro Tonne CO_{2-Aq} entspricht das einem Gegenwert von jährlich mehr als 300 Millionen Euro. Diese Hochrechnung unterstreicht deutlich die notwendige möglichst genaue, vollständige und verlässliche Erfassung der Emissionen im reformierten EU-ETS.

4. Anforderungen an die kontinuierliche Treibhausgas-Emissionsmessung

Gemäß Anforderung des Art. 42 MVO müssen für alle Emissionsmessungen einheitliche Qualitätssicherungsmaßnahmen nach den Vorgaben der EN 14181 [9], der EN 16911-2 [10] und der EN 15259 [11] vorgenommen werden.

Die Qualitätssicherung nach EN 14181 bzw. EN 16911-2 fordert zunächst, dass nur automatische Messeinrichtungen (AMS) eingesetzt werden, die erfolgreich eine Eignungsprüfung für die spezifische Messaufgabe durchlaufen haben (QAL1). Die Eignungsprüfungen werden von für diese Tätigkeit zugelassenen Instituten durchgeführt und führen bei erfolgreichem Abschluss zur Vergabe eines QAL1-Zertifikates. Eine nach Messgrößen (Komponenten) und Herstellern gegliederte Übersicht der zertifizierten Messgeräte findet sich zum Beispiel unter dem Internetlink www.qal1.de der für die Eignungsprüfung akkreditierten Prüflabore und des Umweltbundesamtes.

Nach Einbau der AMS an der Anlage und später regelmäßig oder auch nach wesentlichen Änderungen an der AMS (z.B. nach vollständigem Austausch der AMS) sind weiterhin Funktionskontrollen und Kalibrierungen nach den Vorgaben aus QAL2 der EN 14181 durch bekannt gegebene Stellen nach § 29b BImSchG vorzunehmen.

Die bei der Variabilitätsprüfung innerhalb der QAL2 erhobene Standardabweichung liefert unter anderem die Basis für weitere Berechnungen zur Gesamtunsicherheit des Treibhausgas-massenstroms für den Vergleich mit den Unsicherheitsanforderungen nach Anhang VIII MVO. Das anzuwendende vereinfachte Verfahren zur Unsicherheitsbewertung nach den Vorgaben der MVO ist in Abschnitt 9 zu KEMS im DEHSt-Leitfaden zur Erstellung von Überwachungsplänen und Emissionsberichten [5] detailliert beschrieben. Nach Abstimmung mit den beteiligten Kreisen wurde es zur Dokumentation der QAL2 durch die § 29b BImSchG-Stellen auch in die maßgebliche VDI-Richtlinie 3950, Blatt 2 eingebracht [12].

Zur vollständigen Erfüllung der Anforderungen der EN 14181 gehören weiterhin die in Verantwortung des Anlagenbetreibers durchzuführende laufende Qualitätssicherung beim Betrieb (QAL3) und jährliche Funktionsprüfungen (AST) durch die bekannt gegebenen Stellen.

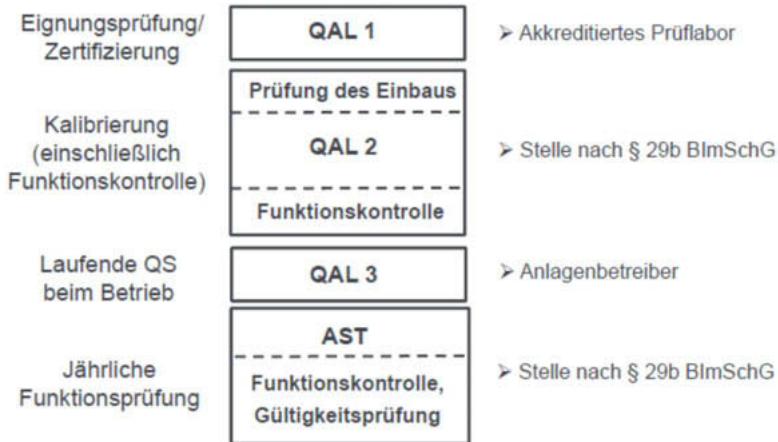


Bild 3: Qualitätssicherungssystem der EN 14181 – Prüfungen und Akteure

Um eine zuverlässige und repräsentative Erfassung der Emissionen mit KEMS zu gewährleisten, sind auch die Anforderungen der ebenso wichtigen EN 15259 an die Durchführung von Untersuchungen zur Identifikation eines geeigneten Messpunktes oder Messquerschnitts zu erfüllen.

Nicht nur die Qualität der Messungen im Abgaskanal, sondern auch die Auswertung der erhobenen Emissionsdaten ist von besonderer Bedeutung für die Güte der kontinuierlichen THG-Emissionsmessung. Die Auswertevorschriften der Art. 43 bis 45 MVO werden üblicherweise in Emissionsauswerterechnern umgesetzt. Sie unterscheiden sich aber deutlich von den immissionsschutzrechtlichen Vorgaben. Deshalb ist besondere Sorgfalt bei der Parametrierung entsprechend der nachfolgenden Regeln geboten.

Die gemäß Art. 43 MVO zu erfassenden Stundenmittelwerte sind nach Art. 44 MVO nur dann als gültige Werte ohne weitere Berechnungen für den jährlichen Emissionsbericht verwendbar, wenn mindestens 80% der maximal möglichen Einzelmessungen während der Stunde verfü-

bar waren, ohne dass das Messgerät, gestört, außerhalb des Messbereichs oder außer Betrieb war. Wurde mindestens eines der genannten Ausschlusskriterien während mehr als 20% der maximal möglichen Einzelmessungen erfüllt, sind Ersatzwerte zu bilden.

Auch für Stundenmittelwerte, die außerhalb des bei der QAL2 definierten gültigen Kalibrierbereichs einer AMS liegen, sind Ersatzwerte zu bilden, denn diese weisen eine gegenüber der Kalibrierung höhere, aber nicht näher bestimmte Unsicherheit auf. Liegt eine größere Zahl solcher Stundenmittelwerte vor, ist die Einhaltung der genehmigten Ebene für die betreffende Emissionsquelle fraglich. Insofern werden solche Stundenmittelwerte von der DEHSt ebenfalls als ungültige Daten angesehen. Eine individuelle Nachweisführung über die Einhaltung der Ebene am Ende des Berichtsjahres ist für betroffene Anlagenbetreiber in diesen Fällen sehr aufwändig. Deshalb sind Ersatzwerte auch für Stundenmittelwerte außerhalb des gültigen Kalibrierbereichs zu bilden.

Die Ersatzwertbildung nach Art. 45 i.V.m. Anhang VIII MVO zieht z.T. konservative Aufschläge auf die Messwerte in Abhängigkeit vom Betriebszustand der Anlage nach sich, damit sichergestellt wird, dass die Emissionen nicht unterschätzt werden. Die dafür festgelegten Regeln sind jedoch relativ komplex und ohne Berechnung in einem Emissionsauswerterechner nur mit hohem Aufwand umzusetzen. Da die richtige Auswertung der erhobenen Daten aber eine erhebliche Bedeutung für die ordnungsgemäße Berichterstattung haben, wurden die beschriebenen Regeln in die „Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen [13] aufgenommen, siehe unten.

5. Typische Mängel und Verbesserungspotenziale bei der Überwachung

Wie beschrieben unterliegen kontinuierliche Treibhausgas-Emissionsmesssysteme – wie auch die kontinuierliche Messtechnik für klassische Luftschadstoffe – sowohl der regelmäßigen QAL2 und AST durch die § 29b BImSchG-Stellen als auch unterjährig den in Verantwortung der Betreiber liegenden QAL3-Prüfungen. Dennoch treten bei der Überwachung mit KEMS weiterhin schwerwiegende Fehler und Mängel bei der Berichterstattung gemäß § 5 TEHG auf.

Festgestellte Mängel in der Qualitätssicherung der eingesetzten AMS für Treibhausgase betreffen vor allem die Qualitätssicherungsstufen QAL2 und QAL3. Die Kalibrierung nach QAL2 wurde teilweise nicht vor Beginn des Berichtszeitraums vorgenommen oder nach wesentlichen

Änderungen der AMS (umfangreiche Reparaturen oder vollständiger Austausch) nicht zeitnah nach Einbau wiederholt. Da bei wesentlichen Änderungen häufig davon auszugehen ist, dass die ermittelten Ergebnisse durch solche Änderungen signifikant beeinflusst werden, ist die Erstellung einer neuen Kalibrierfunktion nach den Vorgaben für die QAL2 dann zwingend erforderlich, vgl. Kapitel 6.1 der EN 14181.

Eine Anwendung der geänderten Kalibrierfunktionen auf zurückliegende Rohdaten der AMS vor diesen Änderungen scheidet in solchen Fällen grundsätzlich aus, denn diese Rohdaten wurden im vorherigen nicht mehr vorliegenden Zustand der AMS erfasst und repräsentieren nur zusammen mit der vorherigen Kalibrierfunktion die nach Vorgaben der EN 14181 ermittelten Emissionen. Die neue Kalibrierfunktion gilt also nur für den Zeitraum nach den genannten Änderungen. Um spätere Probleme bei der Prüfung von Emissionsberichten zu vermeiden, ist dieser Punkt bei einer neuen AMS-Kalibrierung unbedingt zu berücksichtigen.

Auch die fortlaufende Qualitätskontrolle beim Betrieb nach QAL3 der EN 14181 wird weiterhin nicht häufig genug durchgeführt oder nicht adäquat dokumentiert. Die besondere Bedeutung der QAL3 Prüfungen ergibt sich dadurch, dass mögliche Überschreitungen der maximal zulässigen Unsicherheit bei der Bestimmung der Emissionsmassenströme wegen stärkerer Driften einzelner AMS nur durch diese Prüfungen zeitnah erkannt und ggf. durch entsprechende Korrekturen verhindert werden können. Dies gilt insbesondere für die Abgasgeschwindigkeit bzw. für den Abgasvolumenstrom, dem als „Bezugsgröße“ in der Vergangenheit deutlich geringere Bedeutung beigemessen wurde. Im EU-ETS ist der Abgasvolumenstrom nun aber eine von der MVO gesetzlich geregelte Messgröße, die i.d.R. den Hauptanteil an der Gesamtunsicherheit des Treibhausgas-Massenstroms ausmacht.

Zur Einhaltung der geforderten geringen Unsicherheiten wird daher empfohlen, die QAL3-Prüfungen deutlich häufiger als einmal im Wartungsintervall der AMS durchzuführen. Dadurch lassen sich ohne größeren Aufwand häufig wichtige Informationen über die Langzeitstabilität der AMS erzielen. Bei der QAL3 besteht somit deutliches Verbesserungspotenzial, das vom Anlagenbetreiber und von der Messstelle kritisch geprüft und gelöst werden sollte.

Aus unterschiedlichen Gründen kam es in den vergangenen Jahren immer wieder zu längerfristigen Ausfällen der AMS zur Ermittlung der Treibhausgaskonzentration oder des Volumensstroms, teilweise sogar für mehrere Wochen. Die gemäß Art. 45 Abs. 1 MVO vorgeschriebene unverzügliche Information über Ausfälle, die mehr als fünf Tage andauern, wurde der DEHSt

jedoch häufiger nicht mitgeteilt. Folglich war in diesen Fällen unklar, ob die während des Ausfalls ermittelten Ersatzwerte als repräsentativ für den spezifischen Betrieb im Ausfallzeitraum und auch als konservativ angesehen werden konnten. Hier sollten zukünftig möglichst frühzeitig geeignete Verfahren zur Ersatzwertbildung für längere Ausfälle der CO₂-Messungen mit der DEHSt abgestimmt und wirksame Maßnahmen zur Qualitätssteigerung der KEMS ergriffen werden.

Für den Bereich der Emissionsdatenauswertung war auch festzustellen, dass die in der immissionsschutzrechtlichen Praxis etablierten Verfahren zur Überwachung und Berichterstattung für Zwecke des Emissionshandels teilweise unverändert übernommen wurden. In einigen Fällen wurde sogar eine Validierung der erhobenen Emissionsdaten, also ein Abzug der bei der QAL2 ermittelten Messunsicherheit vor Bildung der Stundenmittelwerte vorgenommen, obwohl diese nur für den Vergleich mit Emissionsbegrenzungen nach dem BImSchG vorgesehen sind. Die Validierung der Emissionsdaten ist nach den Vorgaben des TEHG und der MVO für die Ermittlung der Treibhausgasemissionen jedoch nicht zulässig.

Bei einigen Anlagen wurden außerdem Statuskennzeichnungen für „Anfahren“/„Abfahren“ ohne Erfassung der Emissionen verwendet, wenn z.B. ein Sauerstoffgehalt von 16 Vol. % im Abgas von Feuerungsanlagen überschritten wurde. Solche Statuskennzeichnungen sind für die Berichterstattung im Emissionshandel aber ohne Bedeutung, d.h. die betreffenden Stundenmittelwerte sind im Emissionsbericht ebenso zu verwenden, soweit in der Stunde dennoch Treibhausgase emittiert werden. Grund für die vorgenannten Auswerteregeln ist der eingangs beschriebene Grundsatz der vollständigen Berichterstattung über die Treibhausgasemissionen gemäß Art. 5 MVO.

In einigen Fällen wurde die bei der immissionsschutzrechtlichen Überwachung übliche 2/3-Regel für einen gültigen Kurzzeitmittelwert im Parameterprotokoll des Auswerterechners eingestellt. Dies war vermutlich dadurch bedingt, dass ein Datenmodell zur Überwachung von Luftschadstoffen auch für die Auswertung der THG-Emissionsdaten übernommen wurde, obwohl Art. 44 Abs. 2 MVO das Gültigkeitskriterium von 80% der maximal möglichen Einzelmessungen für einen gültigen Kurzzeitmittelwert (Stundenwert) vorgibt. In der Folge kam es zur fehlerhaften Ermittlung der Anzahl nicht gültiger und somit konservativ zu ersetzender Stundenwerte.

Auch die automatische Ersatzwertbildung selbst wurde häufiger nicht nach den Vorgaben des Art. 45 MVO vorgenommen. Aus begleitenden Unterlagen zu entsprechenden Emissionsberichten wurde deutlich, dass für den notwendigen konservativen Aufschlag nicht die Standardabweichung des spezifischen Parameters während des gesamten Berichtszeitraums (entsprechend Anhang VIII Nr. 5 MVO) verwendet wurde, sondern die Standardabweichung des Mittelwertes für diesen Parameter. Da letzterer Wert in der Regel deutlich niedriger ist, kann mit den so berechneten Ersatzwerten eine Unterschätzung der Emissionen einer Anlage nicht ausgeschlossen werden. Dies gilt insbesondere für häufiger ausfallende oder anderweitig nicht verfügbare Messeinrichtungen.

An den beispielhaft dargestellten Fehlern lässt sich erkennen, dass die Auswertung der Emissionsdaten nach den Vorgaben der MVO relativ komplex ist und einige signifikante Unterschiede zur Auswertung nach den immissionsschutzrechtlichen Regeln aufweist. Daher wurden die Auswerteregeln für KEMS im Anwendungsbereich des TEHG als eigener Anhang J in die geänderte „Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen“ im Jahr 2017 (BeP 2017) aufgenommen. Diese Regeln sind bei der Verwendung von KEMS im Emissionshandel zukünftig verbindlich anzuwenden [13].

Grundlegende Bedeutung für die nach Art. 5 MVO geforderte vollständige Berichterstattung über die Treibhausgasemissionen aus einer Anlage hat die Zuordnung der anfallenden Rohdaten aus den AMS zum überwachungspflichtigen Betrieb gemäß Nr. 4.7.3 der BeP 2017. Für eine entsprechend nachvollziehbare Zuordnung hat die DEHSt die „Arbeitshilfe zur KEMS-Emissionsdatenauswertung“ veröffentlicht, die das in Abbildung 4 schematisch dargestellte bevorzugte Verfahren zur Bestimmung von Beginn und Ende des überwachungspflichtigen Betriebs auf Basis von ohnehin durchgeführten Messungen für den Abgasvolumenstrom, für die Abgastemperatur und u.a. Messgrößen beschreibt [14].

Nach Anhang J der BeP 2017 sind aus den Rohwerten während des überwachungspflichtigen Betriebs in einer Auswerteinrichtung zunächst Kurzzeitmittelwerte (KMW) zu bilden, zu normieren und zu speichern. Dabei ist das Quorum von 80% nach Art. 44 Abs. 2 MVO als Gültigkeitskriterium sowohl für die Messgrößen THG-Konzentration und Abgasvolumenstrom als auch für die zur Normierung erforderlichen Bezugsgrößen Temperatur, Druck und Abgasfeuchte anzuwenden. Für ungültige KMW und für KMW außerhalb des gültigen Kalibrierbereichs sind Ersatzwerte nach den Regeln in J.2.2 und J.2.3 zu bilden. Je nach Messgröße erfolgt dies durch Addition der zweifachen Standardabweichung (2σ) oder auf Basis einer

Massen- oder Energiebilanz. Aus den gültigen KMW und den entsprechenden Ersatzwerten werden sodann die in J 3.2 beschriebenen Werte für den jährlichen Emissionsbericht gebildet. Abschließend regelt J 4 außerdem die Datenausgabe aus der Auswerteeinrichtung für einen Betriebstag bzw. für ein Betriebsjahr.

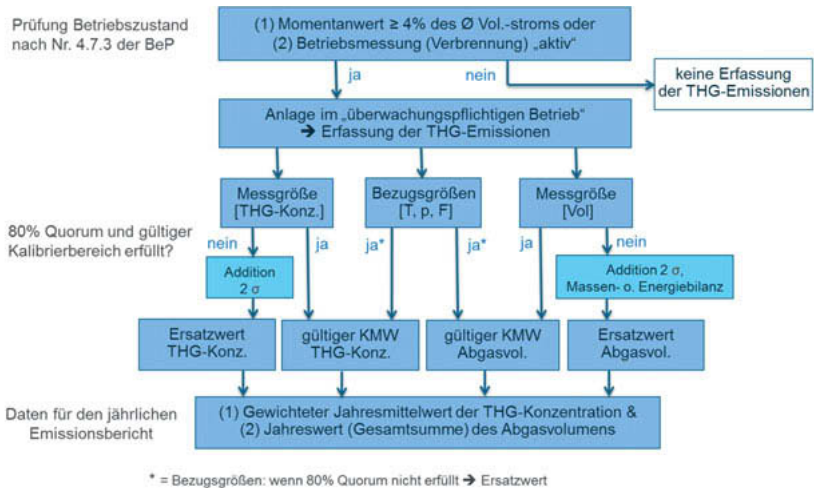


Bild 4: Auswertung von Treibhausgas-Emissionsdaten nach BeP 2017 (DEHSt)

Sofern die beschriebenen Vorgaben der BeP 2017 für die Emissionsdatenauswertung nicht beachtet werden, weil z.B. die „bewährten“ Auswerteroutinen des BImSchG für die Berichterstattung ohne Änderungen fortgeführt werden, stellt dies eine Ordnungswidrigkeit dar. Sie kann gemäß § 32 TEHG mit Geldbußen bis zu 500.000 Euro geahndet werden. Solche Geldbußen wegen falscher Emissionsdatenauswertung können aber durch zertifizierte und sorgfältig parametrisierte Emissionsauswerterechner sowie durch jährliche Prüfungen der korrekten Anwendung der Auswerteregeln aus der BeP 2017 durch die bekanntgegebenen Stellen nach § 29b BImSchG vermieden werden.

7. Zusammenfassung und Ausblick auf die vierte Handelsperiode (2021-2030)

Im Vergleich zu den immissionsschutzrechtlichen Vorgaben ist die Überwachung der Treibhausgasemissionen von stationären Anlagen gemäß Anforderungen der MVO flexibler ausge-

richtet. Ermöglicht wird dies durch das Ebenenkonzept der MVO zusammen mit der Wahlmöglichkeit für die Berechnung oder Messung der CO₂-Emissionen und die Berücksichtigung der wirtschaftlichen Verhältnismäßigkeit.

Die flexibleren Überwachungsregeln ziehen jedoch auch häufigere Anpassungen des Überwachungsplans und erneute Überprüfungen und Genehmigungen seitens der zuständigen Behörde nach sich.

Die Überwachung der CO₂-Emissionen mit KEMS kann insbesondere bei chemischen Produktionsanlagen oder Verbrennungsanlagen mit inhomogenen Einsatzstoffen eingesetzt werden. Für eine Entscheidung zur Überwachung mit KEMS sollten die in diesem Beitrag beschriebenen Kriterien, insbesondere zur Genauigkeit und Automatisierbarkeit sowie zu den Kosten für die Überwachung individuell und anlagenspezifisch bewertet werden. Für Anlagen mit N₂O-Emissionen sind KEMS verpflichtend anzuwenden.

Bei konsequenter und vollständiger Erfüllung der Anforderungen des Art. 42 MVO in Verbindung mit den europäischen Normen EN 14181, EN 15259 und EN 16911-2 kann die kontinuierliche Treibhausgas-Emissionsmessung qualitativ hochwertige Ergebnisse erzielen. Insbesondere durch die laufende Qualitätssicherung während des Betriebs (QAL3) und regelmäßige Plausibilitätsprüfungen können Veränderungen der Messgeräte mit nachteiligen Auswirkungen auf die Genauigkeit schnell erkannt und Probleme gelöst werden.

Die Beachtung der vorgenannten europäischen Normen, der Vorgaben aus der um die kontinuierliche Überwachung von THG-Emissionen ergänzten VDI Richtlinie 3950, der „DEHSt-Arbeitshilfe zur KEMS-Emissionsdatenauswertung“ sowie die Nutzung eines nach den Vorgaben des Anhangs J der BeP 2017 zertifizierten Emissionsauswerterechners führt zu Verbesserungen im anlagenbezogenen Monitoring nach Art. 69 MVO.

Diese Lösungen zur Verbesserung werden sich auch in der vierten Handelsperiode des EU-ETS im Zeitraum 2021-2030 auswirken, denn die Regeln und Verfahren zur Überwachung von Treibhausgasemissionen werden für diesen Zeitraum weitgehend übernommen. Einige für die Anwendung von KEMS bedeutsame Änderungen der MVO sind hier jedoch anzuführen:

Die Anforderungen an die Unsicherheit von CO₂- und N₂O-KEMS zur Bestimmung des Treibhausgas-Massenstroms für sogenannte „große Emissionsquellen“ (mit mehr als 5.000 t CO_{2Aq}/Jahr oder mehr als 10% der Anlagenemissionen) von Anlagen der Kategorie A, die bis

zu 50.000 t CO₂Äq/Jahr emittieren, wird auf die Mindestebene 2 nach Anhang VIII MVO mit einer Unsicherheitsschwelle von $\pm 7,5$ % herabgesetzt. Dies bedeutet für einige Anwendungen an deutschen Anlagen der Kategorie A, dass die Unsicherheitsanforderungen ab 2021 vermutlich mit den vorhandenen Messgeräten erfüllt werden können.

Für KEMS-Anwendungen in Anlagen mit Gesamtemissionen von über 50.000 t CO₂Äq/Jahr werden jedoch die bekannten Unsicherheitsanforderungen fortgelten. Da die Messgröße Abgasvolumenstrom aus Erfahrung die maßgeblich zur Gesamtunsicherheit beitragende Messgröße ist, wurde die europäische Norm EN 16911-2 explizit in Artikel 42 der MVO aufgenommen. Damit soll unter anderem für neue Anwendungen bei großen Emittenten erreicht werden, dass Voruntersuchungen des Strömungsprofils für eine sachgerechte Entscheidung über die anzuwendende AMS für die Abgasgeschwindigkeit oder für den Abgasvolumenstrom (Punktmessung, Einzelpfad- oder Doppelpfad-Linienmessung o.a.) durchgeführt werden. Durch die richtige technische Entscheidung können dann systematische Messunsicherheiten, die aus ggf. wechselnden Strömungsprofilen herrühren, möglichst weit verringert werden.

Auch bei der Bestimmung von biogenen Emissionen innerhalb von KEMS-Anwendungen am Abgaskanal oder am Kamin wurde der Art. 43 der MVO für die vierte Handelsperiode ergänzt. So verweist die geänderte MVO nun explizit auf relativ neue Normen zur Bestimmung des biogenen Anteils von CO₂ im Abgas von entsprechenden Anlagen. Damit die Methode bei der Bestimmung der biogenen CO₂-Emissionen ausreichend präzise und repräsentativ ist, findet gemäß Art. 43 Abs. 4 MVO die EN 15259 [11] Anwendung.

Aufgrund der geänderten und teilweise erleichterten Anforderungen kann eine weitere Zunahme der KEMS-Anwendungen in der vierten Handelsperiode des EU-ETS erwartet werden. Auch die dargestellten erhöhten Zertifikatspreise werden in bestimmten Fällen sicherlich dazu beitragen, dass die für die dritte Handelsperiode getroffene Wahl der Überwachungsmethodik noch einmal überdacht wird. Die in diesem Beitrag vorgestellten Entscheidungskriterien für die Messung oder Berechnung der Emissionen sollen zu dieser in die Zukunft des anlagenbezogenen Monitorings der Treibhausgasemissionen gerichteten Entscheidung beitragen.

Literatur

- [1] Gesetz über den Handel mit Berechtigungen zur Emission von Treibhausgasen (Treibhausgas-Emissionshandelsgesetz – TEHG) vom 21. Juli 2011
- [2] Verordnung (EU) Nr. 601/2012 der Kommission vom 21. Juni 2012 über die Überwachung von und die Berichterstattung über Treibhausgasemissionen gemäß der Richtlinie 2003/87/EG des Europäischen Parlaments und des Rates
- [3] Verordnung zur Durchführung des Treibhausgas-Emissionshandelsgesetzes in der Handelsperiode 2013 bis 2020 (Emissionshandelsverordnung 2020 – EHV 2020)
- [4] Verordnung (EU) Nr. 600/2012 der Kommission vom 21. Juni 2012 über die Prüfung von Treibhausgasemissionsberichten und Tonnenkilometerberichten sowie die Akkreditierung von Prüfstellen gemäß Richtlinie 2003/87/EG des Europäischen Parlaments und des Rates
- [5] Deutsche Emissionshandelsstelle: Leitfaden zur Erstellung von Überwachungsplänen und Emissionsberichten für stationäre Anlagen in der 3. Handelsperiode (2013-2020)
- [6] Gesetz über das Inverkehrbringen und die Bereitstellung von Messgeräten auf dem Markt, ihre Verwendung und Eichung sowie über Fertigpackungen (MessEG) vom 25.07.2013
- [7] Verordnung über das Inverkehrbringen und die Bereitstellung von Messgeräten auf dem Markt sowie über ihre Verwendung und Eichung (MessEV) vom 11.12.2014
- [8] Lenzen, B., Göttel, H., Schneider, C., Garvens, H.-J.: EU-Emissionshandel – Überwachung und Berichterstattung mittels kontinuierlicher Emissionsmessung, Immissionschutz 1/2018, S. 15-21
- [9] DIN EN 14181: Emissionen aus stationären Quellen – Qualitätssicherung für automatische Messeinrichtungen; Deutsche Fassung EN 14181:2014
- [10] DIN EN ISO 16911 Teil 2: Emissionen aus stationären Quellen – Manuelle und automatische Bestimmung der Geschwindigkeit und des Volumenstroms in Abgaskanälen – Teil 2: Kontinuierliche Messverfahren; Deutsche Fassung EN ISO 16911-2:2013
- [11] DIN EN 15259: Luftbeschaffenheit - Messung von Emissionen aus stationären Quellen – Anforderungen an Messstrecken und Messplätze und an die Messaufgabe, den Messplan und den Messbericht; Deutsche Fassung EN 15259:2007
- [12] VDI Richtlinie 3950 Blatt 2 E: Emissionen aus stationären Quellen - Qualitätssicherung für automatische Messeinrichtungen und Auswerteeinrichtungen - Anforderungen an die Dokumentation; Ausgabedatum 2019-01
- [13] Bundeseinheitliche Praxis bei der Überwachung der Emissionen, Rundschreiben des BMU vom 23.01.2017 – IG I 2 – 45053/5
- [14] Deutsche Emissionshandelsstelle: Arbeitshilfe zur KEMS-Emissionsdatenauswertung (Stand August 2017)

