

Methode zur Rekonstruktion der Geruchsstoffemission einer thermischen Abfallbeseitigungsanlage anhand einer inversen Ausbreitungsrechnung und Generierung von synthetischen Emissionen mit Hilfe eines Monte-Carlo Modells

Method to reconstruct the odour emission of a thermal treatment plant for waste by inverse dispersion modelling and generation of synthetic emission data by a Monte Carlo model

A.Univ.-Prof. Dr. **G. Schaubberger**, Institut für Medizinische Physik und Biostatistik, Veterinärmedizinische Universität Wien, Wien/A;
Dr. **M. Piringer**, Mag. **W. Knauder** und **E. Petz**, Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik, Wien/A

Kurzfassung

Aus Immissionsmessungen und den Messungen der meteorologischen Parameter an einer Immissionsmessstelle wurden mit Hilfe einer inversen Ausbreitungsrechnung die Emissionsmassenströme von sieben Einzelsubstanzen einer thermischen Abfallbeseitigungsanlage bestimmt. Aufgrund der in der Literatur angeführten Geruchsstoffschwellen wurde aus diesen sieben Einzelsubstanzen auch die Geruchstoffemission der Anlage berechnet. Die Emissionsdaten liegen jedoch nur für jene Windrichtungen vor, die die Immissionsmessstelle angeströmt haben. Anhand eines Monte-Carlo Modells wurde der Datensatz auch für jene Windrichtungen ergänzt, für die keine Immissionsmessungen vorlagen. Die Parameter des Monte-Carlo Modells wurden aus einer statistischen Analyse abgeleitet. Folgende Parameter wurden zur Festlegung der Emissionsmassenströme verwendet: Intermittenzfaktor, Lufttemperatur und Windgeschwindigkeit sowie Tageszeit und Wochentag als Parameter, die den Arbeitsprozess beschreiben. Zur Modellvalidierung wurden die aus den synthetischen Emissionen berechneten Immissionskonzentrationen mit den gemessenen Immissionskonzentrationen verglichen. Nach der Kalibrierung der synthetischen Emissionsdaten zeigt das Modell eine gute Übereinstimmung der Erwartungswerte (Mittelwerte) und der Varianz.

Abstract

Based on the measurements of ambient concentrations of seven substances and meteorological parameters, the emission mass flow of a thermal treatment plant for waste was calculated by inverse dispersion modelling. The odour emission was calculated from the odour concentration thresholds of these substances. The emission data are available however only for the wind directions for which the measuring station is leeward of the plant. Using a Monte-Carlo model, the dataset was completed also for wind directions for which no ambient concentration measurements were available. The parameters for the Monte-Carlo model were derived by the statistical analysis of the dataset. The main input variables which determine the emission of the plant are the intermittence factor, air temperature, wind velocity, time of the day and day of the week, which describe the working process of the plant. For the model evaluation the ambient concentrations calculated by the synthetic emission data were compared to the measured ambient concentrations. After calibrating the Monte-Carlo model, the expected values and the variances are in good agreement with the empirical data.

Einleitung

Immissionsmessungen von Luftschadstoffen werden von Behörden in großem Umfang durchgeführt. Diese Messungen sind zumeist nur für die Messstelle selbst repräsentativ. Beurteilungen des Emittenten sind daraus oft nicht möglich, da neben der Eigenschaft des Emittenten selbst auch die Ausbreitungsbedingungen die Immissionsmesswerte bedingen.

Wenn neben den Immissionsmessungen auch meteorologische Messungen zur Beschreibung der Ausbreitungsbedingungen vorliegen, dann kann durch die Anwendung eines inversen Ausbreitungsmodells die Emission einer Anlage für jene Zeitpunkte berechnet werden, für die die Immissionsmessstelle von der Anlage angeströmt wurde. Damit sind jedoch Ausbreitungsrechnungen und damit ganzjährige Beurteilungen der Immissionssituation nicht möglich. Um einen vollständigen Datensatz der Emissionsmassenströme zu erhalten, wird ein Monte-Carlo basiertes Modell vorgestellt und anhand der empirischen Immissionsmesswerte validiert.

Material und Methode

Inverse Ausbreitungsmodellierung

An einer Immissionsmessstelle im Nahbereich einer Abfallverbrennungsanlage wurden für den Zeitraum 1.1.2005 bis 22.8.2006 Immissionsmessungen von folgenden Komponenten durchgeführt: Butylacetat, Benzol, Ethylacetat, Toluol, m/p-Xylol, o-Xylol und α -Pinen. Die Rekonstruktion der Emission der Anlage basiert auf der Technik der inversen Ausbreitungsmodellierung [1, 2]. Anhand dieser Methode wurden aus den Immissionskonzentrationen die korrespondierenden Emissionsmassenströme für die sieben Komponenten berechnet. Die inverse Ausbreitungsrechnung wurde mit dem österreichischen normativen Gaußmodell Ö-Norm M9440 [3] durchgeführt. Mittels des Modells wird für eine Einheitsemission die Konzentration am Aufpunkt der Messstelle berechnet. Die tatsächliche Emission (Massenstrom) E ergibt sich dann aus der gemessenen Immissionskonzentration am Standort der Messstelle sowie der Einheitsemission E_0 und der dazu berechneten Immissionskonzentration dieser Einheitsemission am Standort der Messung I_0 gemäß folgender Gleichung [1]

$$E = I \frac{E_0}{I_0}$$

Beschreibung des Monte-Carlo-Modells

Aufgrund der statistischen Analyse der Emission im Hinblick auf die meteorologischen und die prozessbedingten Faktoren wurde ein Monte-Carlo-Modell [4, 5] entwickelt, das zwei stochastische Prozesse kombiniert. Im ersten Prozess wird der Intermittenzfaktor auf Basis einer gleichverteilten Zufallszahl bestimmt. Der zweite Prozess liefert auf Basis einer logarithmisch-normalverteilten Zufallszahl die Emissionsmassenströme. Die Struktur des Modells ist in Abb. 1 dargestellt. Die Eingangsparameter stammen von den Messungen der meteorologischen Parameter an der Immissionsmessstelle.

Die Modellparameter wurden getrennt für alle sieben Substanzen berechnet. Durch diese Parameter wird die Ausprägung der jeweiligen Zufallszahlen gesteuert. Als Ausgangsparameter liegt für jeden Messzeitpunkt ein Emissionsmassenstrom vor. Dieser Emissionswert darf jedoch nicht als Zeitreihe der Emission interpretiert werden. Die berechneten Emissionswerte zeigen jedoch eine weitgehende Verteilungstreue in Bezug auf Mittelwert und Standardabweichung der empirischen Emissionsdaten sowie der zugrundegelegten Struktur des Modells.

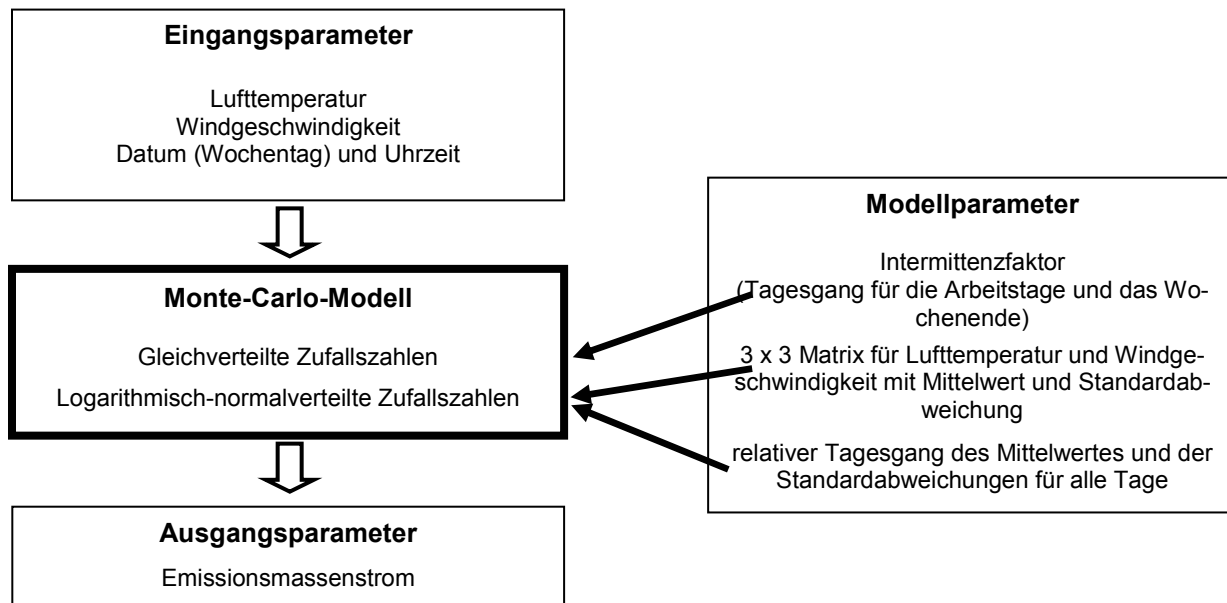


Abb. 1: Struktur des Monte-Carlo-Modells zur Generierung der synthetischen Emissionsmassenströme der sieben Einzelsubstanzen sowie der Geruchsstoffe

Ergebnisse und Diskussion

Ein wichtiger Parameter zur Charakterisierung von Zeitreihen ist der Intermittenzfaktor. Dieser Faktor beschreibt den Anteil an Werten oberhalb eines vorgegebenen Schwellenwertes. In vielen Fällen wird dieser Schwellenwert C_s mit 0 angenommen, tatsächlich handelt es sich dabei zumeist um die Nachweisgrenze des Messverfahrens.

Da die Emissionen aus den Immissionsmessungen abgeleitet wurden, wird der Begriff der Intermittenz nicht nur auf die Immissionszeitreihe, sondern auch zur Beschreibung der Emissionszeitreihe angewendet.

Aus der Immissionszeitreihe wurden die Intermittenzfaktoren für die sieben Substanzen bestimmt und in Abhängigkeit von der Windrichtung dargestellt (Abb. 2).

In den drei Windrichtungsklassen 240, 250 und 260° liegen für alle Substanzen die drei höchsten Werte des Intermittenzfaktors. Aus diesem Grund wurden für die weitere Analyse nur jene Emissionen herangezogen, deren Windrichtung zwischen 235° und 265° lag.

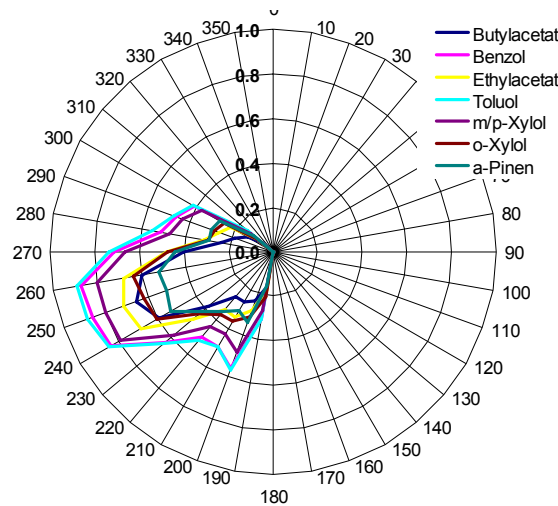


Abb. 2: Intermittenzfaktoren der Emissionen in Abhängigkeit von der Windrichtung

Neben der deskriptiven Statistik wurden auch die empirischen Häufigkeitsverteilungen der Emissionen der sieben Substanzen untersucht. Die statistische Analyse der empirischen Verteilung ergab eine gute Übereinstimmung mit der logarithmischen Normalverteilung. Das heißt, dass der Emissionsmassenstrom E als logarithmisch normalverteilt angesehen werden kann.

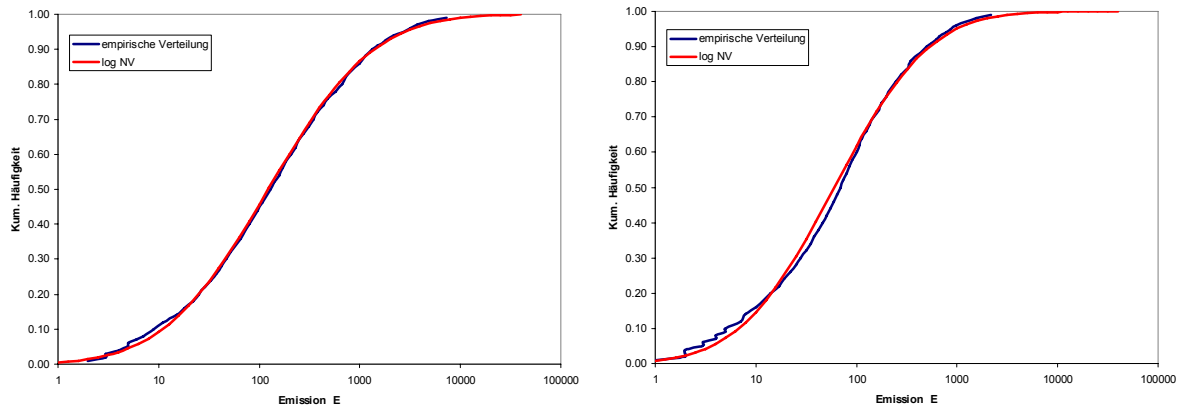


Abb. 3: Vergleich der empirischen Verteilung des Emissionsmassenstroms (mg/s) von Butylacetat (links) und Benzol (rechts) mit der logarithmischen Normalverteilung

Als Schätzer für diese beiden Parameter der Verteilung werden der Mittelwert MW und die Standardabweichung SD der logarithmierten Emissionsmassenströme herangezogen. In der Abb. 3 sind beispielhaft für Butylacetat und Benzol die empirischen Verteilungsfunktionen den jeweiligen logarithmischen Normalverteilungen gegenübergestellt. Die Gegenüberstellung zeigt die gute Übereinstimmung der gewählten Verteilungsfunktion.

Bestimmung der Geruchsstoffemission

Bisher wurden die sieben Substanzen getrennt voneinander betrachtet. Um jedoch die Emission des Geruchstoffstroms bestimmen zu können, muss das Zusammenwirken der sieben geruchswirksamen Komponenten betrachtet werden. Für diesen gesamtheitlichen Geruchseindruck muss die Annahme getroffen werden, dass sich der Geruchstoffstrom additiv aus den Einzelsubstanzen ergibt. Das bedeutet, dass die wahrgenommene Gesamtintensität gleich der Summe der Intensitäten der einzelnen Komponenten ist. Diese konservative Annahme bedeutet weiters, daß es zu keiner verstärkenden oder abschwächenden Wirkung durch Wechselwirkungen bei der Geruchswahrnehmung kommt.

Der emittierte Geruchstoffstrom wird daher durch Superposition der sieben Einzelkomponenten bestimmt.

Tab. 1: Charakterisierung der sieben Substanzen im Hinblick auf ihre Geruchswirksamkeit sowie die in der Literatur angegebene kleinste Geruchsschwellenkonzentration und das geometrische Mittel der in der Literatur angegebenen Geruchsschwellenkonzentration.

	Einzelsubstanzen						
	Butyl	Benzol	Ethyl	Toluol	m/p-Xyl	o-Xyl	α -Pinen
	$C_6H_{12}O_2$	C_6H_6	$C_4H_8O_2$	C_7H_8	C_8H_{10}	C_8H_{10}	$C_{10}H_{16}$
Molare Masse (g/mol)	116.16	78.11	88.11	92.11	106.17	106.17	136.24
Chemical Abstract Number (CAS)	123-86-4	71-43-2	141-78-6	108-88-3	1330-20-7	1330-20-7	
Geruchsschwellenkonzentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)							
C_{\min}	30	507	21	80	216	216	100
C_{mean}	495	13406	8191	5684	3497	3929	3000
$C_{\min} / C_{\text{mean}}$	17	26	390	71	16	18	30

(Butyl Butylacetat; Ethyl Ethylacetat; m/p-Xyl m/p-Xylol; o-Xyl o-Xylol)

Als Geruchsschwellenkonzentration wurde einmal der kleinste bekannte Wert C_{\min} gewählt und damit eine Maximalabschätzung des Geruchstoffstroms G_{\max} bestimmt, im zweiten Fall wurde mit der mittleren Geruchsschwellenkonzentration C_{mit} ein mittlerer Geruchstoffstrom G_{mit} bestimmt. Diese beiden Zeitreihen des Geruchstoffstroms wurden in analoger Weise wie die sieben Substanzen einer statistischen Analyse unterzogen. In der Abb. 4 sind die empirischen Verteilungsfunktionen von G_{\max} und G_{mit} den jeweiligen logarithmischen Normalvertei-

lungen gegenübergestellt. Die Gegenüberstellung zeigt die gute Übereinstimmung der gewählten Verteilungsfunktion.

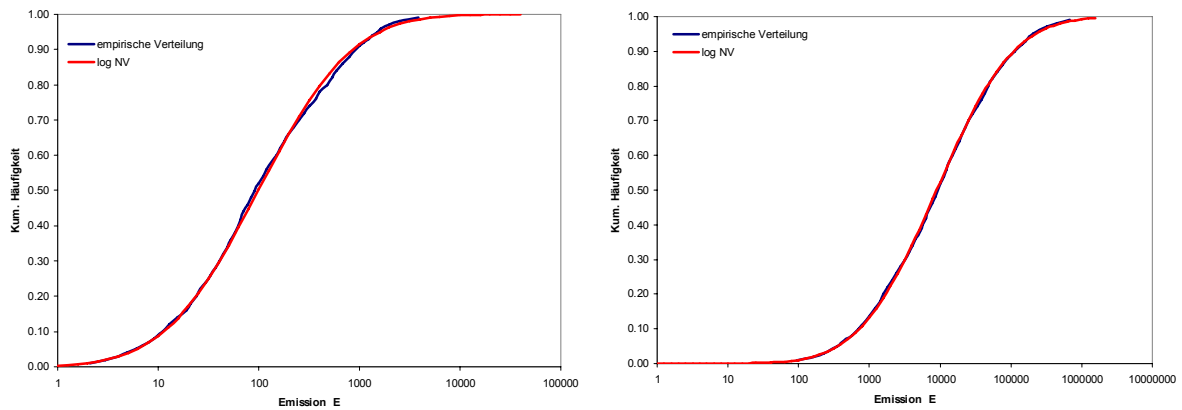


Abb. 4: Vergleich der empirischen Verteilung der maximalen Geruchsstoffemission G_{max} (links) und G_{mit} (rechts) (GE/s) mit der logarithmischen Normalverteilung

Eingangsparameter des Monte-Carlo Modells

Die Eigenschaften des Emittenten können nicht direkt erfasst werden. Diese verborgenen Zustände werden über die zur Verfügung stehenden Emissionszeitreihen durch Hilfsparameter beschrieben. Die Messung des Zustandes basiert auf den Immissionsmessungen und ist deshalb prinzipiell immer fehlerbehaftet (verrauscht), d.h. im Allgemeinen gibt die Messung den wahren Zustand nicht korrekt wieder. Aufgrund der Messung ist es aber möglich, den unbekanntem Zustand zu schätzen. Das Ziel dieser Schätzung ist eine weitgehende Beschreibung des dynamischen Systems.

In weiterer Folge wurden meteorologische Einflüsse auf den Emissionsmassenstrom untersucht. Als möglicher Prädiktor für das Ausmaß der Emission wurde die Lufttemperatur und damit die Veränderung bei der Freisetzung der sieben Substanzen untersucht, da mit steigender Temperatur auch der Dampfdruck der Substanzen ansteigt. Als weiterer Prädiktor wurde die Windgeschwindigkeit untersucht. Es wurde die Hypothese geprüft, ob durch steigende Windgeschwindigkeit die Freisetzung von Emissionen erhöht ist. Eine verstärkte Durchlüftung der Hallen führt zu einer Erhöhung der Luftwechselzahl der Gebäude und damit zu einer verstärkten Freisetzung der luftgetragenen Substanzen.

Neben den umweltbedingten Einflüssen der Lufttemperatur und Windgeschwindigkeit beeinflussen auch die Prozessabläufe die Emission. Durch die Manipulation des Materials während der Entladung, des Einbringens in die Halle, des Zerkleinerungsprozesses und der Verbrennung werden verstärkt Emissionen freigesetzt. Da diese Arbeitsabläufe im wesentli-

chen während der Arbeitstage erfolgen und zu fest vorgegebenen Tageszeiten, wurde die Emission in Abhängigkeit von Wochentag und Uhrzeit analysiert.

Basierend auf diesen statistischen Zusammenhängen (Regressionsanalyse) wurde mit Hilfe der beiden meteorologischen Prädiktoren (Lufttemperatur und Windgeschwindigkeit) sowie den beiden Prozessparametern (Wochentag und Uhrzeit) ein Monte-Carlo Modell erstellt und die Emission für die sieben Substanzen sowie für die beiden Geruchsstoffemissionen generiert. Diese Emissionsdaten wurden den empirischen Emissionsdaten gegenübergestellt. Der Vergleich zeigt eine hohe Erwartungstreue. Durch die Stratifizierung der gewählten Parameter (meteorologische Parameter und prozessbedingte Parameter) ergeben sich Teilmengen, die nicht disjunkt sind. Dadurch ergibt sich aus dem zentralen Grenzwertsatz, dass die Gesamtvarianz größer als die Summe der Einzelvarianzen ist. Daher wurden Mittelwerte und Standardabweichungen der generierten Emissionen mit Hilfe der Mittelwerte und Standardabweichung der empirischen Emissionswerte kalibriert.

Modellvalidierung

Da bereits gezeigt wurde, dass die synthetischen Emissionen verteilungstreu sind und den Einfluss der Lufttemperatur, der Windgeschwindigkeit, der Tageszeit und des Wochentages repräsentieren, wurden im folgenden die aus den synthetischen Emissionsdaten berechneten Immissionen mit den gemessenen Immissionen verglichen. Dazu wurden mit dem Gaußschen Ausbreitungsmodell aus den synthetischen Emissionsdaten (Monte-Carlo Modell) die Immissionskonzentrationen für den Standort der Immissionsmessstelle berechnet. Die beiden Datensätze (Messung und Modell) wurden statistisch analysiert und miteinander verglichen.

Die statistischen Maßzahlen der empirischen Immissionskonzentrationen sowie der Modellberechnungen sind für die sieben Einzelsubstanzen in Tab. 2 und für die Geruchstoffe in Tab. 3 zusammengefasst. Die Verhältnisse der Erwartungswerte der Messungen mit dem Modell $g_{MW} = MW_{mes} / MW_{mod}$ zeigen für die Modellrechnungen eine hohe Übereinstimmung der Erwartungstreue. Die Abweichungen liegen zwischen 0.1% für Toluol und 5.3% für α -Pinen sowie für die Geruchstoffe bei 6.6% bzw. 1.4%.

Die Verhältnisse der Standardabweichung der Messung mit dem Modell $g_{SD} = SD_{mes} / SD_{mod}$ zeigen eine deutliche Überschätzung der Varianz der Modellergebnisse. Der Kalibrierfaktor g_{SD} liegt zwischen 0.349 und 0.484, woraus sich eine mittlere Überschätzung der Standardabweichung um den Faktor 2.35 für die Einzelsubstanzen und um den Faktor 1.5 für die Geruchsstoffe ergibt.

Tab. 2: Statistische Maßzahlen der gemessenen und der modellierten logarithmierten Immissionskonzentrationen (ng/m^3) der sieben Einzelsubstanzen.

	Einzelsubstanzen (ng/m^3)						
	Butyl	Benzol	Ethyl	Toluol	m/p-Xyl	o-Xyl	α -Pinen
Messung							
MW	3.139	2.796	3.136	3.228	2.984	2.675	3.120
SD	0.411	0.323	0.409	0.399	0.385	0.331	0.279
IF	0.618	0.864	0.696	0.880	0.802	0.622	0.521
Modell (unkalibriert)							
MW	3.101	2.744	3.094	3.224	2.965	2.606	2.964
SD	0.913	0.810	0.891	0.825	0.813	0.839	0.800
IF	0.614	0.849	0.690	0.869	0.794	0.609	0.515
g_{MW}	1.012	1.019	1.014	1.001	1.006	1.027	1.053
g_{SD}	0.450	0.399	0.459	0.484	0.473	0.394	0.349
Modell (kalibriert)							
MW	3.144	2.796	3.145	3.243	2.993	2.686	3.120
SD	0.421	0.332	0.422	0.410	0.386	0.341	0.294

(Butyl Butylacetat; Ethyl Ethylacetat; m/p-Xyl m/p-Xylol; o-Xyl o-Xylol)

Tab. 3: Statistische Maßzahlen der gemessenen und der modellierten logarithmierten Immissionswerte für Geruchstoffe (GE/m^3).

	Geruchstoffe (GE/m^3)	
	G_{max}	G_{mit}
Messung		
MW	-1.037	-2.675
SD	0.568	0.606
IF	0.908	0.908
Modell (unkalibriert)		
MW	-0.973	-2.639
SD	0.866	0.923
IF	0.986	0.991
g_{MW}	1.066	1.014
g_{SD}	0.656	0.657
Modell (kalibriert)		
MW	-1.033	-2.676
SD	0.611	0.623

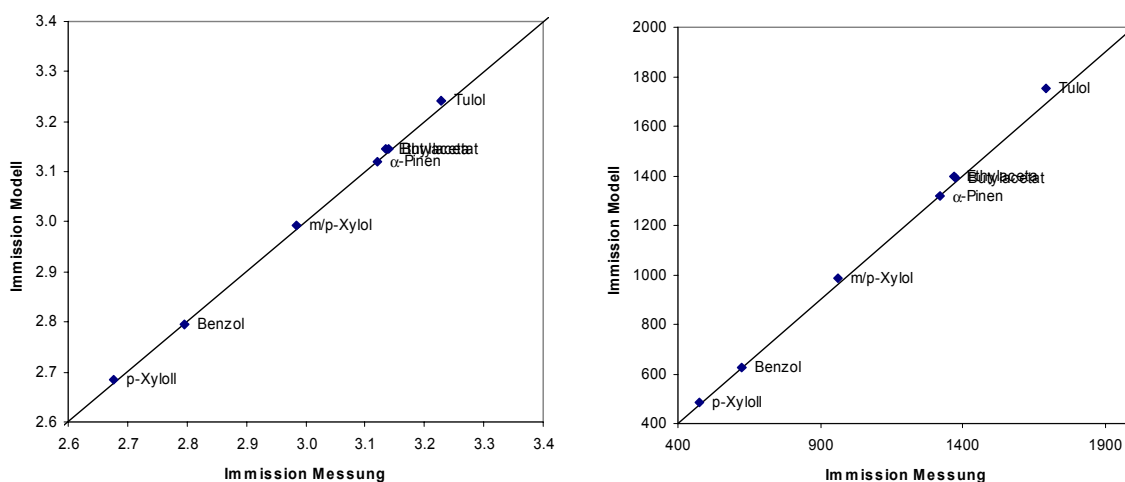


Abb. 5: Vergleich der Erwartungswerte des kalibrierten Modells mit den Meßwerten für die logarithmierten Immissionskonzentrationen $\log I$ (ng/m^3) (links) und der Immissionskonzentrationen I (ng/m^3) (rechts)

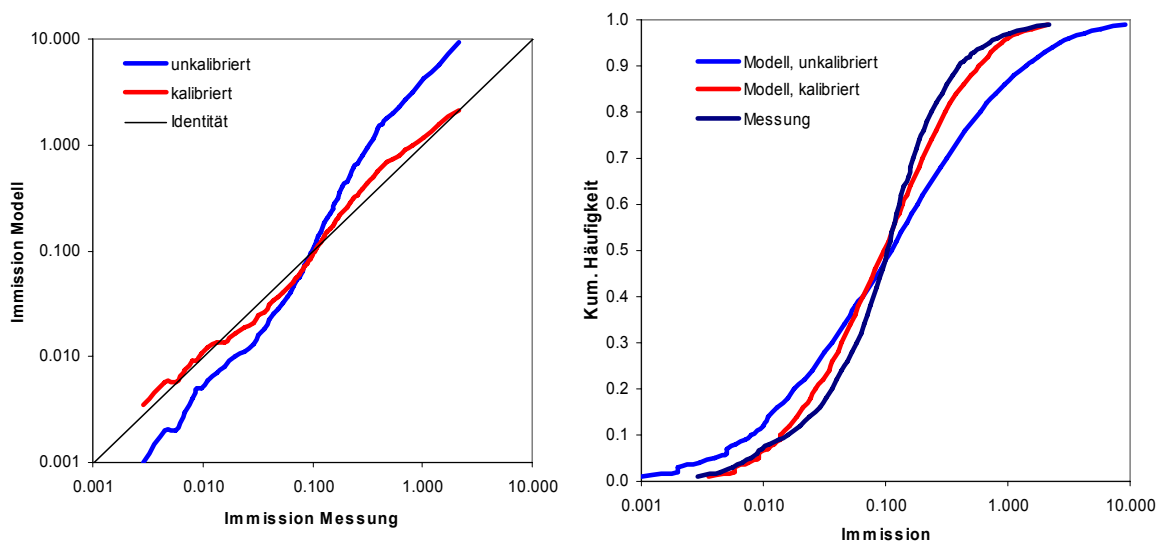


Abb. 6: Vergleich der gemessenen Immissionskonzentrationen mit den modellierten Immissionskonzentrationen für die maximalen Geruchstoffemission G_{\max} anhand des q-q Plots (links) und der kumulierten Häufigkeit (rechts)

Anhand der beiden Quotienten aus den Mittelwerten g_{MW} und den Standardabweichungen g_{SD} (Tab. 2 und Tab. 3) wurden die modellierten Immissionskonzentrationen kalibriert. In den beiden Tabellen Tab. 2 und Tab. 3 sind auch die statistischen Maßzahlen für das kalibrierte Modell dargestellt. Die Abweichung der Mittelwerte der Messdaten von den kalibrierten Modelldaten kann durch die Kalibrierung nahezu völlig eliminiert werden. In Abb. 5 sind die Erwartungswerte (Mittelwerte der Immissionskonzentrationen und der logarithmisch-transformierten Konzentrationen) des kalibrierten Monte-Carlo Modells und der Messungen gegenübergestellt.

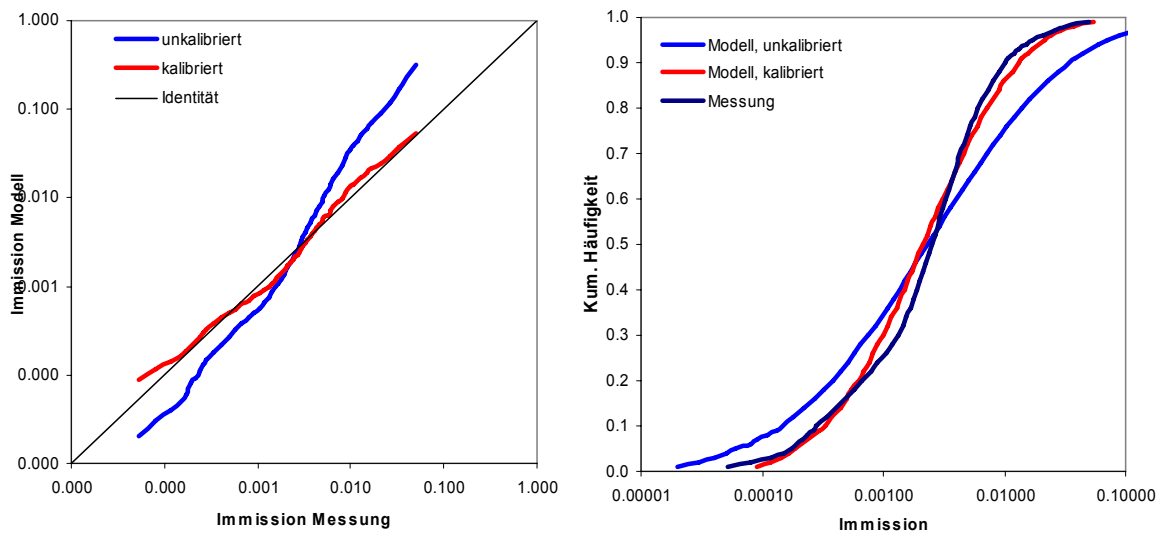


Abb. 7: Vergleich der gemessenen Immissionskonzentrationen mit den modellierten Immissionskonzentrationen für die mittleren Geruchsstoffemission an der Meßstelle. q-q Plot (links) und der kumulierten Häufigkeit (rechts)

Mit Hilfe der Quantil-Quantil (q-q) Plots wird die Verteilung der gemessenen und der modellierten Immissionskonzentrationen für die Geruchsstoffe graphisch verglichen. Bei den q-q Plots werden die unkalibrierten und die kalibrierten Modelldaten den Messdaten gegenübergestellt. Weiters wird die kumulierte Häufigkeitsverteilung der empirischen Messdaten sowie die unkalibrierten und die kalibrierten Modelldaten für die beiden Geruchsstoffemissionen in Abb. 6 und Abb. 7 dargestellt.

Schlußfolgerungen

Die präsentierte Methode kann auf vielfache Weise angewendet werden:

- Retrospektive Analyse der Emissionen zur Überwachung des genehmigungsgemäßen Betriebs einer Anlage. Für diesen Zweck ist es wichtig, die Immissionsmessstelle unter Berücksichtigung der Hauptwindrichtung im Lee des Emittenten zu betreiben.
- Durch die inverse Ausbreitungsrechnung ist eine Bestimmung der Emission von Emittenten mit komplexer Geometrie (z.B. diffuse Quellen) durch ein indirektes Verfahren möglich. Dadurch kann eine juristisch oder messtechnisch schwierige Situation vermieden werden.

- Wenn mehrere Quellen zu den gemessenen Immissionskonzentrationen beitragen, ist es möglich, durch die inverse Ausbreitungsrechnung die einzelnen Quellen zu trennen. In solchen Fällen ist jedoch mehr als eine Immissionsmessstelle erforderlich.
- Die Kombination der inversen Ausbreitungsrechnung mit einem Monte-Carlo Modell ermöglicht die Durchführung von Ausbreitungsrechnungen für ein ganzes Jahr und damit eine umwelthygienische Bewertung, die auf unvollständigen Meßdaten basiert.
- Eine Erhebung der Geruchsimmission kann aufgrund der fehlenden Messtechnik nur durch Feldbegehungen durchgeführt werden. Wenn für einen Emittenten jene wesentlichen Substanzen bekannt sind, die zur Geruchsentstehung beitragen, so kann durch Superposition der Geruchsstoffströme einer Anlage bestimmt werden. Diese indirekte Methode eignet sich zur Behandlung des Geruchs in gleicher Weise wie andere emittierte Substanzen.

Literatur

- [1] Flesch Th.,K., Wilson J.D., Lowry A.H., Crenna B.P.(2005): Estimating gas emission from a farm with an inverse-dispersion technique. Atmos Environm 39: 4863-4874.
- [2] Thomson L.C., G., Gillespie St., Jonathan Ph.C, Skeldona K. D., Padgett M. J. (2007) An improved algorithm for locating a gas source using inverse methods Atmos Environm 41: 1128-1134
- [3] ÖNORM M 9440 (1992/96): Ausbreitung von luftverunreinigenden Stoffen in der Atmosphäre; Berechnung von Immissionskonzentrationen und Ermittlung von Schornsteinhöhen.
- [4] Manly B.F.J. (1997): Randomization, Bootstrap and Monte Carlo Methods in Biology. 2nd Ed., Chapman and Hall, London
- [5] Binder K., Heernabb D.W. (2002) Monte Carlo Simulation in Statistical Physics. 4th Ed. Springer Berlin