Messung und Modellierung von Konzentrationsfluktuationen im Naturmaßstab

Freifeldversuche mit den Tracern Krypton-85 und Tetrahydrothiophen

Thomas Lung¹⁾, Hans-Joachim Müller²⁾, Manfred Gläser²⁾ und Bernd Möller²⁾

¹⁾ Ingenieurbüro Berlin

²⁾ Institut für Agrartechnik Bornim, Potsdam-Bornim

Für die Simulation von Geruchshäufigkeiten im Umfeld von Tierhaltungsbetrieben oder Industrieanlagen benötigt man ein Modell zur Häufigkeitsverteilung der Konzentration. Hier werden meist zweiparametrige Verteilungsfunktionen verwendet, die abhängig vom Mittelwert und der Varianz der Geruchsstoffkonzentration Aussagen zur Auftrittshäufigkeit liefern. Um zu überprüfen, wie gut die Simulationen mit der Wirklichkeit übereinstimmen, werden die Berechnungsergebnisse mit Meßdaten verglichen. Man nennt diesen Prüfungsschritt im Modellbau auch Validierung.

Freifeldversuche mit Tracern dienen dazu, das Ausbreitungs- und Fluktuationsverhalten von Spurenstoffen im atmosphärischen Windfeld zu untersuchen. Will man insbesondere die Konzentrationsfluktuationen von Geruchsstoffen analysieren, so müssen zeitlich hoch auflösende Meßtechniken eingesetzt werden, da Gerüche von der menschlichen Nase innerhalb einer Sekunde wahrgenommen werden können. In dieser Untersuchung dient als Tracer das künstlich hergestellte Gas Krypton-85, dessen Konzentration in verschiedenen Quellenentfernungen jeweils durch eine Gruppe von Detektoren in Isekündigen Abständen gemessen wurde. Aus den Meßdaten werden Mittelwerte, Varianz und höhere statistische Momente der Tracerkonzentration gebildet und mit den entsprechenden Ergebnisgrößen von Modellsimulationen verglichen. Beobachtete und simulierte Überschreitungshäufigkeiten werden einander gegenübergestellt und die statistischen Eigenschaften der verwendeten Modelle diskutiert.

Lassen sich nun die Ergebnisse der Tracermessung unmittelbar auf Geruchshäufigkeiten übertragen? Um diese Frage zu klären, wurde bei einigen Feldversuchen gleichzeitig zum Tracer Krypton-85 das Odoriermittel Tetrahydrothiophen freigesetzt, dessen Geruchswirkungen von Probanden an ausgewählten Detektorpositionen zu registrieren waren. Anders als bei der genauen und eindeutigen Tracermessung werden Gerüche aber gefühlsabhängig wahrgenommen und bewertet, so daß die Übertragung der meßtechnisch ermittelten Überschreitungshäufigkeit auf die sensorisch festgestellte Wahrnehmungshäufigkeit einer statistischen Absicherung bedarf.

Schlüsselwörter

Konzentrationsfluktuationen, Dichtefunktion, Geruchsimmissionen, Tracermessung, Krypton-85, turbulente Ausbreitung

Einleitung

Zuverlässige Geruchsimmissionsprognosen werden nicht nur im Genehmigungsverfahren für Anlagen gefordert; in zunehmendem Maße sind sie auch bei der Überwachung bereits genehmigter Anlagen und im zivilrechtlichen Klagefall als Instrument gefragt. In jedem Fall aber soll die Ausbreitungssimulation die festgestellten Geruchswahrnehmungen betroffener Anlieger nach Auftrittshäufigkeit und Intensität möglichst genau widerspiegeln. Der Modellierung fluktuierender Geruchsstoffkonzentrationen fällt hier eine Schlüsselrolle zu, da gewöhnlich die Standardabweichung mindestens so groß ist wie der Mittelwert der Konzentration. Zur Validierung solcher "Fluktuationsmodelle" ist ein Vergleich zwischen den Simulationsergebnissen und entsprechenden Messungen notwendig. In den vergangenen zwei Jahrzehnten war eine wachsende Forschungsaktivität im Bereich der Fluktuationsmessungen festzustellen. Diese beziehen sich jedoch mehrheitlich auf Messungen im Wind- oder Wasserkanal. Hingegen liegen Veröffentlichungen über Fluktuationsversuche im Naturmaßstab mit geeigneten Tracern nur in geringem Umfang und mit wenig systematischer Untersuchungsmethodik vor. Über zeitlich hochauflösende Fluktuationsmessungen im freien Feld in Verbindung mit olfaktorischen Immissionmessungen eines zeitgleich freigesetzten Odoriermittels ist nach dem Kenntnisstand der Verfasser bislang noch nicht berichtet worden.

Zur Simulation von Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Geruchsschwellenwerte werden vorzugsweise statistische Ansätze verwendet. Bei diesen statistischen oder stochastischen Ansätzen ist die Wahl einer geeigneten Verteilungsdichte von zentraler Bedeutung; sie muß die Häufigkeitsverteilung der beobachteten Geruchsstoffkonzentrationen hinreichend genau wiedergeben. In der vorliegenden Arbeit beschränken wir uns auf die Untersuchung von einigen zweiparametrigen Verteilungsdichten, die bei der Datenanpassung ausreichend flexibel und zugleich im Modellbau leicht zu verwenden sind. Einer der beiden Parameter ist funktionell mit dem Mittelwert der Konzentration verknüpft, der andere stellt ein Maß für die Varianz der Konzentration, d.h. für die Intensität der Fluktuationen dar. Sämtliche Verteilungsdichten, die zur Beschreibung von Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte genutzt werden, haben einen ausgeprägt empirischen Charakter; sie können nicht zwanglos theoretisch begründet werden. – Eine dritte Größe, die *Intermittenz*, muß ebenfalls bei der Messung und Simulation von Überschreitungshäufigkeiten berücksichtigt werden, um die Größenordnung der fluktuierenden Konzentration richtig einordnen und modellieren zu können.

Versuchskonzept

Zahlreiche experimentelle Untersuchungen zum Ausbreitungsverhalten von Spurenstoffen in der unteren Atmosphäre, sog. Diffusionsexperimente, wurden in den letzten Jahrzehnten mit mehr oder weniger großem Aufwand und unterschiedlichen Zielsetzungen durchgeführt. Diese Untersuchungen waren vorzugsweise auf die Messung von Langzeit-Mittelwerten der Konzentration mit Emissionshöhen über 20 m abgestellt. In jüngerer Zeit ist eine zunehmende Forschungsaktivität im Bereich der Modellierung und Messung von Konzentrationsfluktuationen zu beobachten. Dieser Forschungszweig läßt sich grob in numerische Simulation, physikalische Modellierung und Feldversuche unterteilen.

JONES [1] untersuchte die Konzentrationsfluktuationen von ionisierter Luft im Einflußbereich eines isolierten Gebäudes, wobei jedoch nur Punktmessungen bis ca. 15 m Entfernung möglich waren. LEW-ELLEN und SYKES [2] veröffentlichten eine Analyse der LIDAR Messungen von fluktuierenden Konzentrationen in Abluftfahnen. DINAR [3] benutzte einen Ölnebel als Tracer und konnte die Konzentrationen mit 30 Hz auf der Basis optischer Detektoren messen; die Anzahl der Detektoren war hierbei auf 7 bei einer maximalen Quellenentfernung von 60 m beschränkt. In einem Entfernungsbereich bis zu 1000 m konnten MYLNE und MA-SON [4] die Konzentrationsfluktuation einer Propylen-Quelle mit 10 Hz messen, wobei sie maximal 10 Detektoren verwendeten. Eine gründliche Analyse der statistischen Eigenschaften fluktuierender Konzentrationen legte YEE [5] vor. Als Tracer wurde wieder Propylen eingesetzt, dessen Konzentrationen in einem Entfernungsbereich bis maximal 100 m mit 9 modifizierten Photoionisationsdetektoren mit 100 Hz erfaßt wurden. Das Freisetzen des Tracers erfolgte bei allen diesen Versuchen bodennah (< 5 m über Grund) und bei vorwiegend neutraler bis leicht labiler atmosphärischer Schichtung.

Das Versuchskonzept, mit Hilfe der Ausbreitung von radioaktiven Isotopen auf das Fluktuationsverhalten von Spurenstoffen in der untersten Atmosphärenschicht zu schließen, wurde bereits vor mehreren Jahrzehnten entwickelt. RAMSDELL und HINDS [6] beschäftigten sich in einer Arbeit aus dem Jahr 1971 mit Konzentrationsfluktuationen und Spitzenwertverhältnissen in Abluftfahnen aus niedrigen punktförmigen Quellen. Als Tracer wurde bei ihrer Untersuchung das radioaktive Isotop Krypton-85 (⁸⁵Kr) eingesetzt. ⁸⁵Kr ist ein künstlich hergestelltes Gas mit einer Halbwertszeit von 10,76 Jahren. Es zerfällt durch β -Emission bei einer maximalen Energie von 0,67 MeV.

Abweichend von der vorgenannten Arbeit ist hier eine systematische Untersuchung der Tracerkonzentration nach Mittelwert und Fluktuationsgrößen in der untersten Prandtl-Schicht bis zu einer Quellenentfernung von 100 m geplant. Zeitgleich zum radioaktiven Tracer soll ein Geruchsstoff emittiert und durch Probanden registriert werden, um den Zusammenhang zwischen Tracer-Überschreitungshäufigkeiten und Zeitanteilen mit Geruchswahrnehmung beschreiben zu können. Durch den Einsatz moderner, hochempfindlicher Flächenzählrohre können die erforderlichen ⁸⁵Kr-Emissionsmassenströme auf einen vergleichsweise niedrigen Wert beschränkt werden. – Die ⁸⁵Kr-Meßtechnik wird am Institut für Agrartechnik Potsdam Bornim seit Jahren erfolgreich zur Bestimmung der Luftwechselraten von Stallgebäuden eingesetzt [7]. Angewandt auf immissionsseitige Messungen im freien Feld hat sie gegenüber anderen Meßverfahren einen entscheidenden Vorteil: es kann eine Vielzahl vergleichsweise kostengünstiger Detektoren zur gleichzeitigen Konzentrationsmessung eingesetzt werden.

Das zeitliche Auflösungsvermögen der Impulsraten-Messung wird durch ein ausreichend hohes Signal/Hintergrund-Verhältnis bestimmt. Dieses Verhältnis hängt von der Tracer-Konzentration am Meßort ab und ist in der Hauptsache durch die Quellstärke, die Quellenentfernung sowie das Windfeld bestimmt. "Ausreichend" hohe Signal/Hintergrund-Verhältnisse ergeben sich für Quellstärken von 10 MBq/s, Quellenentfernungen von etwa 100 m und durchschnittliche Windstärken von etwa 3 m/s bei Meßraten von 1 s. Hierdurch ist das zeitliche Auflösungsvermögen der Tracer-Konzentrationsmessung auf 1 s festgelegt; es liegt bewußt im Bereich der Reaktionszeit (nicht Atemtakt!) der menschlichen Nase. Es ist nicht beabsichtigt, mit den vorliegenden Ausbreitungsversuchen den klein-skaligen Turbulenzbereich (inertial subrange) zu untersuchen und Energie-Spektren der

Konzentrations-Fluktuationen zu analysieren.

Konzeptionell wird in der vorliegenden Arbeit nach einer vielfach in Vergessenheit geratenen, alten naturwissenschaftlichen Grundregel vorgegangen: "mit den einfachsten und am leichtesten zu durchschauenden Dingen zu beginnen, um so nach und nach, gleichsam über Stufen, bis zur Erkenntnis der zusammengesetztesten aufzusteigen"¹. Die Regel wird in der vorliegenden Untersuchung durch eine Gruppe von Bedingungen gefaßt, wonach die Versuche für

- Punktförmige Quellen
- Zeitlich konstant emittierende Quellen
- Gleiche Emissions- wie Immissionshöhen
- Quellenentfernungen von 20 m, 50 m und 100 m
- Ebenes Terrain mit einheitlicher Bodenrauhigkeit
- Definierte meteorologische Randbedingungen

durchzuführen sind.

Mit diesen Beschränkungen ist die Voraussetzung dafür gegeben, die statistischen Eigenschaften der fluktuierenden Tracer-Konzentrationen in verschiedenen Evolutionsstadien der sich ausbreitenden Tracerfahne untersuchen zu können. In der letzten Zeit hat sich im wesentlichen durch die vorstehend zitierten Untersuchungen ein schärferes Bild von der Fahnenentwicklung festigen können, das auch der vorliegenden Arbeit als Modellvorstellung dient. Danach sind die Konzentrationsfluktuationen auf einen weiten Skalenbereich turbulenter Bewegungen in der Fahne zurückzuführen, der wiederum die große Bandbreite von den kleinsten bis zu weit ausgedehnten Wirbelstrukturen widerspiegelt. In einem frühen Stadium der Fahnenentwicklung, in dem die Breite der momentanen Fahne σ_o klein gegenüber der integralen Turbulenzskala Λ der Wirbelelemente ist, liefert das Mäandern der Fahne, d.h. die großen Wirbelstrukturen, den Hauptbeitrag zur Fluktuation. Davon läßt sich ein Stadium unterscheiden, in dem die Fahnenbreite in der Größenordnung der Längenskala der turbulenten Wirbel liegt. Hier macht sich eine fortschreitende Deformation der Fahnenränder durch die Einmischung neutraler Umgebungsluft in den Fahnenkörper bemerkbar. Bei weiterer Ausdehnung der Fahne tragen schließlich Wirbelstrukturen

¹ Le troisième [règle], de conduire par ordre mes pensées, en commencant par les objets les plus simples et les plus aisés à connâitre, pour monter peu à peu, comme par degrés, jusques à la connaissance des plus composés; et supposant même de l'ordre entre ceux qui ne se précèdent point naturellement les uns les autres [8].

dominant zum Fluktuationsgeschehen bei, deren Ausdehnung klein im Vergleich mit der Fahnenbreite ist. Diese fahneninterne Vermischung von spurenstoff-befrachteten Luftpaketen mit neutraler Umgebungsluft führt zu komplexen, nichtgaußförmigen Konzentrationsverteilungen, deren Messung, Analyse und mathematische Modellierung u.a. eine Aufgabe der vorliegenden Arbeit ist.

Um den Expositions-/Wirkungszusammenhang für Geruchswahrnehmungen zu erfassen, wird bei einigen Feldversuchen zeitgleich zur 85Kr-Emission das Odoriermittel Tetrahydrothiophen (THT) freigesetzt. THT hat die Summenformel C₄H₈S und somit ein Molekulargewicht von 88,168. Der Geruchsschwellenwert (Grenze der Wahrnehmbarkeit) liegt bei 13 μ g/m³ [9]. Als Odoriermittel erfüllt THT zugleich auch die allgemeinen Anforderungen an einen Geruchstracer, der weder giftig noch anderweitig schädlich, unverwechselbar mit anderen häufig vorkommenden Gerüchen, chemisch inert, thermisch beständig sowie bei niedrigen Temperaturen verwendbar sein sollte.

Versuchsaufbau und Meßtechnik

Die grundlegende Meßanordnung und erste Ergebnisse wurden bereits in einem früheren Aufsatz übersichtsweise beschrieben [10]. In ebenem Gelände unter freier, weitgehend ungestörter Anströmung (Weideland mit ca. 0,2 m bis 0,3 m hohem Gras, mittlere Bodenrauhigkeit $z_0 \cong 0.04$ m) wird das radioaktive Isotop ⁵Kr "punktförmig" aus einem Plastikschlauch in 1,9 m über Grund freigesetzt. Die ⁸⁵Kr-Emission erfolgt hierbei nach dem Verdrängungsprinzip: aus einem Tank wird ein konstanter Wasserstrom in eine 51-Glasflasche geführt, die zuvor mit ⁸⁵Kr bekannter Menge und Aktivität gefüllt wurde. In der Flasche drückt der ansteigende Wasserpegel das 85Kr-Gas gleichförmig in den Plastikschlauch, wobei der Volumenstrom durch einen Schwebekörper-Durchflußmesser (Rotameter) kontrolliert wird. Die Emissionszeiten lagen je nach Versuch zwischen 9 min und 24 min bei vorwiegend neutraler bis labiler atmosphärischer Schichtung.

Auf einem Kreissegment mit Öffnungswinkel von ca. 60⁰ sind leeseitig in 50 m Quellenentfernung insgesamt 10 zylinderförmige Geiger-Müller-Zählrohre (Zylinderzählrohre) montiert. 10 flächenförmige Proportionalzählrohre (Flächenzählrohre) sind auf einem zweiten Kreissegment mit dem gleichen Öffnungswinkel in 100 m



Quellenentfernung aufgestellt². Die Höhe des Detektionsmittelpunktes sämtlicher Zählrohre liegt etwa auf dem Emissionsniveau zwischen 1,8 m und 1,9 m über Grund (**Bild 1**).

Zwischen der Quelle und den Zählrohren wird der Windvektor mit 2 Ultraschallanemometern in 2,5 m und in 10 m über Grund gemessen. Bei dem Windmeßgerät in 2,5 m Höhe (etwa Emissionsniveau) handelt es sich um ein USA-1 Ultraschallanemometer der Fa. METEK, Hamburg, das die 3 Komponenten des Windvektors mit 10 Hz aufzeichnet. Zur Messung des Windes in 10 m Höhe wird ein Ultrasonic der englischen Fa. Gill Instruments Ltd. Lymington/Hampshire verwendet (Auflösungsvermögen 1 s).

Die Meßdaten sämtlicher Zählrohre werden bei allen Tracer-Freifeldversuchen mit Hilfe eines drahtlosen Telemetriesystems an einen zentralen Rechner übertragen und im Abstand von jeweils 1 s abgespeichert.

Nach [11] wird für die verwendeten Zylinderzählrohre zur Umrechnung gemessener Impulsraten in Konzentrationseinheiten (MBq / s) ein Faktor von 4500 (Impulse \cdot min⁻¹) / (MBq \cdot m⁻³) verwendet. Wie aus vergleichenden Versuchsreihen in einem abgeschlossenen ca. 100 m³ großen Raum hervorgeht, zeichnen sich die Flächenzählrohre demgegenüber durch eine ca. 17 fach höhere Empfindlichkeit aus. Bei den nachfolgenden Auswertungen der Experimente wird demzufolge ein Umrechnungsfaktor von 76500 (Impulse · min^{-1}) / (MBq · m⁻³) für die Flächenzählrohre angesetzt. Der relative Fehler läßt sich für den 85Kr-Emissionsmassenstrom zu < 10 % abschätzen.

Versuchsdurchführung

In der Zeit vom 28. Juni 2000 bis zum 18. Mai 2001 wurden insgesamt 9 Ausbreitungsversuche nach der beschriebenen Meßanordnung durchgeführt. Bei den ersten 4 Versuchsreihen standen die Zylinderzählrohre in einer leewärtigen Quellenentfernung von 20 m, während die Flächenzählrohre in einem Abstand von 50 m aufgestellt waren. Für 5 weitere Versuchsreihen wurde der Abstand auf 50 m bzw. 100 m vergrößert und zusätzlich bei den letzten 4 Versuchen zeit- und ortsgleich zu dem Tracer⁸⁵Kr das Odoriermittel THT definiert freigesetzt. Je nach Versuchstag schwankten die Lufttemperaturen zwischen ca. 0 °C und 20 °C bei unterschiedlichen Bedeckungsgraden. Die jeweils über den Versuchszeitraum gemittelten Windgeschwindigkeiten lagen zwischen 0,8 m/s und 5,2 m/s bezogen auf eine Anemometerhöhe von 2,5 m über Grund und deckten somit einen ausreichend großen Ausschnitt des Spektrums der Windstärke ab. Aus den Schubspannungsgeschwindigkeiten konnte eine mittlere Bodenrauhigkeit zu $z_0 \cong 0,04$ m abgeleitet werden, die sich bemerkenswert gut mit dem Literaturwert für Weideland deckt. Die Windrichtungsänderungen über die einzelnen Versuchszeiträume zeigen mehrheitlich eine auffallend unregelmäßige Abfolge. Zwar sind für Mittelungszeiträume von 15 - 30 min die Windrichtungen näherungsweise um den Mittelwert gaußnormal-verteilt (bei längeren Mittelungszeiten können auch Multi-Gaußverteilungen für mehrere überlagerte Hauptwindrichtungen auftreten). Im Hinblick auf den niederfrequenten Bereich, das sog. Mäandern (> 1 min) sind jedoch keine eindeutigen Perioden erkennbar. -Tabelle 1 gibt zusammenfassend eine Übersicht über die Daten der Ausbreitungsversuche.

Das Odoriermittel THT wurde nach dem Verdunstungsprinzip freigesetzt. Für einen höheren Verdunstungsluftstrom sorgte zusätzlich zur natürlichen Wind-

² Bei den ersten 4 von insgesamt 9 Versuchsreihen betrugen die Quellenentfernungen 20 m und 50 m, wobei auf einem Bogensegment jeweils 10 Zählrohre aufgestellt waren. Wegen der starken Windrichtungsschwankungen wurden während der beiden letzten Versuchsreihen (mit 50 m und 100 m Quellenentfernung) jeweils 2 weitere Zählrohre angrenzend aufgestellt; damit ergab sich ein breiteres Segment mit 12 Zvlinderzählrohren und 12 Flächenzählrohren.

Versuch	Datum	Emissionszeit	Q _{85Kr} [MBq/s]	WR [⁰]	WG [m/s]	u* [m/s]	σ _v [m/s]	σ _w [m/s]	t [⁰C]	Q _{тнт} [mg/s]	d [m]	BG
V0	28.06.00	15:07 – 15:19	7,5	280	5,13	0,462	1,05	0,487	13,8	-	20/50	7/8
V1	04.10.00	14:20 - 14:38	5,0	170	1,49	0,234	0,909	0,348	19,4	-	20/50	1/8
V2	05.10.00	14:20 – 14:36	5,6	363	0,801	0,053	0,442	0,146	18,3	-	20/50	6/8
V3	05.10.00	15:13 – 15:29	5,6	314	0,839	0,078	0,560	0,149	18,7	-	20/50	6/8
V4	05.10.00	16:52 – 17:01	9,7	282	1,37	0,125	0,167	0,111	18,5	-	50/100	5/8
V5	27.03.01	14:51 – 15:15	6,4	117	3,54	0,326	0,963	0,402	1,62	4,7	50/100	2/8
V6	27.03.01	16:16 – 16:28	12,5	134	2,66	0,268	0,688	0,361	2,13	6,1	50/100	2/8
V7	18.05.01	11:53 – 12:10	9,7	256	3,78	0,433	1,26	0,492	15,8	22	50/100	1/8
V8	18.05.01	13:14 – 13:30	10,6	275	3,63	0,418	1,21	0,499	15,4	13	50/100	1/8

Tabelle 1: Zusammenstellung der Daten aus den 9 Versuchsreihen

Emissionsmassenströme Q, mittlere Windrichtung WR und Windgeschwindigkeit WG in 2,5 m ü. G., Schubspannungsgeschwindigkeit u*, Standardabweichungen σ_v und σ_w der Windgeschwindigkeitskomponenten v und w, Lufttemperatur t, Quellenentfernung der Zählrohre d (Zylinder- / Flächenzählrohre), Bedeckungsgrad des Himmels BG

strömung ein leistungsstarker PC-Lüfter, der an einer Halterung ca. 0,2 m über der das Odoriermittel enthaltenden Petrischale angebracht war. Der Massenverlust, d.h. der THT-Emissionsmassenstrom wurde mit einer elektronischen Feinwaage bestimmt, auf der die Petrischale aufgestellt war. Da die Messung eine näherungsweise lineare Massenabnahme mit der Zeit zeigte, läßt sich der Emissionsmassenstrom unmittelbar aus dem Quotienten von Massendifferenz und entsprechender Zeitdifferenz bestimmen3. Die Quellstärke lag bei allen 4 Ausbreitungsversuchen in der Größenordnung von 10 mg/s bei einem geschätzten relativen Fehler von 5 %.

Ausnahmslos wurden bei allen Versuchsreihen jeweils an mindestens einem Zählrohr hinreichend hohe Impulsraten, d.h. ein zur Auswertung ausreichend hohes Signal/Hintergrund-Verhältnis gemessen. **Bild 2** gibt eine typische Aufzeichnung der gemessenen Impulsraten an einem Zylinderzählrohr wieder. (V6, Pos. Z2. Die durchgezogene Linie bezeichnet den Mittelwert von 2,2 Imp./s. Das Spitzen/Mittelwertverhältnis beträgt p/m = 37).

Aus dem "emissionsfreien Vorlauf", jeweils 2 bis 3 Minuten vor der Freisetzung des Tracers, ließ sich der radioaktive Strahlungshintergrund bestimmen. Für die eingesetzten Flächenzählrohre ergaben sich Mittelwerte von I_{HFI} = 11 Impulse/s, wohingegen bei den Zylinderzählrohren die mittleren Impulsraten für den Hintergrund *im statistischen Mittel* deutlich darunter lagen I_{HZy} = 0,65 Impulse/s. Die Standardabweichung für die Hintergrund-



Bild 2 : Korrelationsdiagramm der gemessenen und berechneten mittleren Tracer-Konzentrationen in kBq/m³ nach Tabelle 2.

Impulsrate der Flächenzählrohre liegt bei $\sigma I_{HFI} = 3,3$ Imp./s. Zur Berechnung der Mittelwerte und Überschreitungshäufigkeiten aus den gemessenen Zeitreihen der Impulsraten werden die Meßwerte um den jeweiligen Hintergrundwert korrigiert.

Die Spitzenwerte der Impulsraten lagen teilweise um mehr als 2 Größenordnungen über dem Mittelwert. Grundsätzlich hängt p/m vom Verhältnis der Abtastfrequenz zur Mittelungszeit (hier etwa 1 s : 1000 s), von der Quellenentfernung sowie der Position des Meßortes relativ zur Tracerfahnenachse ab. Ferner wird eine Abhängigkeit von der Ausdehnung der Quelle σ_0 , von der atmosphärischen Turbulenz und weiteren Einflußgrößen beobachtet. Im Abschnitt "Spitzenwerte der Tracer-Konzentration und Intermittenzraten" werden die gemessenen Werte für p/m zusammenhängend dargestellt und genauer untersucht.

Analyse der Meßergebnisse

Diejenigen Zählrohre, die von der Quelle aus gesehen nächst der mittleren Windrichtung liegen, zeigen erwartungsgemäß die höchsten Impulsraten; sie werden daher als Referenzpunkte für die Fahnenachse angesetzt. In **Tabelle 2** sind die Mittelwerte der gemessenen Tracer-Konzentrationen für diese Referenzpunkte (Fahnenachse) sowie die jeweils links und rechts benachbarten Meßorte (Zählrohrpositionen) zusammengestellt.⁴

Die Meßwerte werden mit den Ergebnissen entsprechender Ausbreitungssimulationen verglichen. Als Ausbreitungsmodell dient hier die (vereinfachte) Gaußschen Abgasfahnengleichung:

³ Bei den Versuchsreihen V5 und V6 hatte die Petrischale einen Durchmesser von Ø = 0,145 m, bei den Versuchsreihen V7 und V8 war Ø = 0,185 m. Schwankungen der Massenabnahme sind durch die natürlichen Windfluktuationen bedingt. Sämtliche Meßwerte wurden in 10 s Abständen abgespeichert. – Der Emissionsmassenstrom wird im wesentlichen durch die wirksame THT-Oberfläche, d.h. durch den Durchmesser der Petrischale sowie durch die Luftstromstärke, in geringerem Maße auch durch die Luftemperatur, -feuchte und andere Parameter bestimmt.

⁴ Der Abstand zwischen den Zählrohren ergibt sich aus der jeweils in Tabelle 1 genannten Quellenentfernung und dem Winkelsegment. Für die Quellenentfernung von 20 m betrug er d = 2,4 m und für die Quellenentfernungen von 50 m sowie 100 m standen die Zählrohre 5,8 m und 11,7 m weit auseinander.

Versuch	$\overline{C}_{\scriptscriptstyle M}$ [1	kBq/m³]	\overline{C}_{R2} [kBq/m³]	$\overline{C}_{ m R3}$ [kBq/m³]		
	•		•		•		
	34,7	10,8	29,6	8,02	15,2	4,16	
V0	42,6	12,6	35,7	9,79	16,2	4,55	
	28,5	12,4	29,6	8.02	15,2	4,16	
	8,6	1,6	19,7	5,06	21,9	4,66	
V1	13,4	4,8	20,2	5,23	22,5	4,83	
	11,7	1,6	19,7	5,06	21,9	4,66	
	18,9	1,2	59,5	19,1	45,6	9,71	
V2	25,1	3,4	61,8	20,2	46,8	10,1	
	22,9	2,3	59,5	19,1	45,6	9,71	
	30,1	4,0	47,5	15,3	43,5	9,27	
V3	36,9	6,7	48,8	15,9	44,7	9,61	
	23,0	3,4	47,5	15,3	43,5	9,27	
	37,9	13,8	51,2	15,0	22,2	8,08	
V4	120,3	45,1	122	55,1	23,8	8,96	
	38,7	-	51,2	15,0	22,2	8,08	
	8,7	1,2	7,64	2,58	4,02	1,18	
V5	10,5	1,5	8,64	3,02	4,31	1,29	
	6,2	1,4	7,64	2,58	4,02	1,18	
	-	4,6	19,2	6,50	6,52	1,75	
V6	28,2	5,0	22,2	7,93	6,76	1,83	
	9,5	4,3	19,2	6,50	6,52	1,75	
	12,3	3,4	8,22	2,72	3,56	0,955	
V7	12,5	4,5	8,91	3,01	3,69	1,00	
	9,4	2,5	8,22	2,72	3,56	0,955	
	6,1	1,7	9,03	2,98	4,05	1,09	
V8	7,7	2,5	9,80	3,31	4,20	1,14	
	5,2	1,7	9,03	2,98	4,05	1,09	

Tabelle 2: Gemessene $\overline{C}_{_M}$ und berechnete $\overline{C}_{_R}$ mittlere Tracer-Konzentrationen aus den 9 Versuchsreihen.

• Zylinderzählrohre / \Box Flächenzählrohre. \overline{C}_{R2} : Rechenwerte nach GI. (2), \overline{C}_{R3} : Rechenwerte nach GI. (3). Die Mittlere, fett gedruckte Zahlenreihe steht für die Zählrohrposition mit maximaler Konzentration (Fahnenachse), darüber liegende Zahlenwerte beziehen sich auf die benachbarte Zählrohr-Position links davon in Ausbreitungsrichtung, darunter stehende Werte auf die Position rechts.

$$C(x, y) = \frac{Q}{2 \cdot \pi \cdot \overline{u} \cdot \sigma_Y(x) \cdot \sigma_Z(x)} \cdot \exp\left\{-\frac{y^2}{2 \cdot \sigma_Y^2(x)}\right\} \cdot (1)$$
$$\cdot \left[1 + \exp\left\{-\frac{8}{\sigma_Z^2(x)}\right\}\right]$$

$$\sigma_Y$$
 und σ_Z - horizontaler und vertikaler Diffusions-
parameter

x und y - Koordinaten des Immissionsortes (die Koord. z wurde durch z = h = 2 m eliminiert)

wobei zwei verschiedene Ansätze für die Diffusionsparameter zu prüfen sind:

Erstens wird nach dem Taylorschen Theorem [12] der Ausdruck Gl. (2) verwendet, der bei vorausgesetzter homogener Turbulenz zumindest für die drei Grenzfälle streng gültig ist, in denen die Diffusionszeit t klein, etwa gleich und groß gegenüber der Lagrange-Skalenzeit T_L ist. Anschaulich ist die Lagrange Skalenzeit ein Maß für das "Erinnerungsvermögens eines Luftpakets" an seinen früheren Bewegungszustand. Zahlenmäßig gibt sie an, wie stark die Geschwindigkeitsfluktuationen zu zwei verschiedenen Zeitpunkten an einem Ort miteinander korreliert sind.

$$\sigma_{y,z}(x) = \frac{\sigma_{v,w} \cdot t(x)}{\sqrt{1 + t(x)/(2 \cdot T_{Ly,z})}}$$
(2)

mit

t(x) - Diffusionszeit (vereinfachend $t(x) = x/\overline{u}$)

Die Standardabweichungen der Windgeschwindigkeitskomponenten σ_v und σ_w folgen sofort aus den Windmessungen (vgl. Tabelle 1), während die Bestimmung der Lagrange Skalenzeit T_L in der Praxis erheblichen Schwierigkeiten begegnet. Für (leicht) labile atmosphärische Schichtungen und eine mittlere Transporthöhe von etwa 3 m über Grund wird hier $T_L =$ 20 s gesetzt (es wird nicht zwischen der Vertikal- und der Horizontalkomponente unterschieden, d.h. $T_{Ly} = T_{Lz}$). Die Diffusionszeiten des Tracers von der Quelle bis zu den Detektoren liegen in der Größenordnung dieses Zahlenwertes. Bei einer angenommen Unsicherheit von $T_L = 20$ s \pm 10 s bleibt der relative Fehler in den Diffusionsparametern nach Gl. (2) somit unter 14 %. Die Lagrange Skalenzeit ist daher keine kritische Einflußgröße für Diffussionszeiten $t \le T_L$; erst bei großen Diffusionszeiten ($t >> T_L$) wird ihr Einfluß auf die Berechnung der Diffusionsparameter dominant.

Zweitens werden die Diffusionsparameter nach der allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz, der TA Luft [13], berechnet. (Zahlenwerte für F, G, f und g sind dem Anhang C, Nr. 10 c der TA Luft zu entnehmen).

$$\boldsymbol{\sigma}_{Y} = \boldsymbol{F} \cdot \boldsymbol{x}^{f} \qquad \boldsymbol{\sigma}_{Z} = \boldsymbol{G} \cdot \boldsymbol{x}^{g} \tag{3}$$

Das Gaußmodell liefert eine statistische Aussage über die mittlere Konzentration am Immissionsort. Das bedeutet: erst eine größere Anzahl von Meßwerten sind – als Mittelwert zusammengefaßt – mit *einem* Berechnungsergebnis vergleichbar ist. Da die meteorologischen Randbedingungen bei Freifeldversuchen nicht wiederholbar eingestellt werden können, lassen sich die Ausbreitungsversuche auch nicht reproduzieren, d.h. eine größere Anzahl von Meßwerten für gleichbleibende Randbedingungen kann nicht erzeugt werden. Dennoch ist ein Vergleich zwischen Rechnung und Messung möglich, wenn eine Vielzahl von Meßergebnissen aus verschiedenen Versuchsreihen im Sinne einer statistischen Aussage betrachtet wird. Zumindest können im Korrelationsdiagramm Tendenzen erkannt werden, die es erlauben, unterschiedliche Modellansätze in ihrer Aussagegüte zu beurteilen. In Bild 3 beziehen sich Kreise auf die Zylinderzählrohre und Ouadrate auf die Flächenzählrohre. Ausgefüllte Symbole stehen für die Berechnungsergebnisse R2 nach Gl. (2), unausgefüllte Symbole stellen die Berechnungsergebnisse R3 nach Gl. (3) dar.

Sieht man einmal von der Versuchsreihe V2 ab (im Bild 3 durch eine gestrichelte Rahmung hervorgehoben), in der mit großer Wahrscheinlichkeit das Konzentrationsmaximum bei der Messung verfehlt wurde, so gibt das Modell nach Gl. (2) insgesamt die Meßwerte besser wieder als die Modellgleichung (3). Die Parametrisierung nach Gl. (3) führt im allgemeinen zur Unterschätzung der mittleren Konzentration. Der Grund dafür liegt in der Zusammenstellung des Datensatzes der TA Luft, der nur für Quellhöhen > 50 m gültig ist. Vor allem wegen der Einteilung der Diffusionskategorien in nur 6 Klassen nach TA Luft kann es im Einzelfall zu extremen Fehlberechnungen kommen. So wird beispielsweise in der Versuchsreihe V4 der Meßwert um das 5fache (!) unterschätzt (im Bild 3 aus Skalierungsgründen nicht dargestellt, vgl. aber Tabelle 2). Zur Diagnose von Immissionskonzentrationen ist das Modell Gl. (3) aus den genannten Gründen daher nicht geeignet. Für die Jahresimmissionsprognose mag es anwendbar sein, da sich hier (zufällige) Fehler teilweise gegeneinander herausmitteln, und die statistische Prognosegenauigkeit wesentlich durch die zugrunde liegende meteorologische Statistik oder Zeitreihe bestimmt wird.

Spitzenwerte der Tracer-Konzentration und Intermittenzraten

Wertet man die ungefilterten Konzentrationszeitreihen⁵ aus, so zeigt sich: die peak-to-mean-Verhältnisse p/m streuen über fast 2 Größenordnungen (4 < p/m <99, an den in Tabelle 2 genannten Zählrohrpositionen). Für konditionierte Konzentrationen, das sind Zeitreihen mit herausgefilterten Null-Konzentrationen, ergeben sich aufgrund der höheren Mittel-



werte kleinere Quotienten p/m. Das peakto-mean-Verhältnis ändert sich in diesem Fall nur noch über eine Zehnerpotenz (3 < p/m < 30). Weiterhin wird der Zusammenhang zwischen p/m und der Fluktuationsintensität i² untersucht, die als

$$i^2 = \frac{\sigma_c^2}{\overline{C}^2} \tag{4}$$

mit

- \overline{C} Mittelwert
- σ_c^2 Varianz der Konzentration

definiert ist.

Für ungefilterte – wie in **Bild 4** dargestellt - und für konditionierte Zeitreihen zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen p/m und i²

$$p/m = 1 + \alpha \cdot i^2 \tag{5}$$

Bild 4: Peak-to-mean-Verhältnis p/m über Fluktuationsintensität i² für die Position nächst der Fahnenachse und die beiden benachbarten Zählrohrpositionen. Ungefilterte (totale) Konzentrations-Zeitreihen aus allen 9 Versuchsreihen. wobei der Faktor zu $\alpha = 3,6$ ermittelt wurde. (Für $i^2 = 0$, d.h. keine Konzentrationsfluktuationen, kann der Spitzenwert nicht größer als der Mittelwert sein, also p/m = 1 für $i^2 = 0$).

Die Intermittenzrate μ ist als derjenige Anteil einer Zeitreihe definiert, in dem die Konzentrationswerte von Null verschiedenen sind, d. h. über einer Mindestkonzentration Cmin liegen. Die Festlegung von C_{min} ist etwas willkürlich und orientiert sich bei physikalischen Messungen gewöhnlich an der Nachweisgrenze des verwendeten Meßgerätes. Wegen der fluktuierenden radioaktiven Hintergrundstrahlung kann im vorliegenden Fall Cmin nicht einfach mit der Nachweisgrenze der Zählrohre gleichgesetzt werden. Cmin bzw. Imin wird so gewählt, daß für den emissionsfreien Vorlauf einer Zeitreihe μ < 0,02 bleibt (Zyl.-zählrohre $I_{min} = 1$ Imp./s und Flächenzählrohre $I_{min} = 3$ Imp./s, σI_{HFl} = 3,3 Imp./s vgl. dazu Abschnitt 4).



10

⁵ "Ungefilterte" Zeitreihen sind solche, bei denen von der gemessenen Impulsrate nur die jeweilige Hintergrundkonzentration subtrahiert wurde, d.h. die Abschnitte mit Null-Konzentrationen sind nicht herausgefiltert.

Bei allen Feldversuchen wurde nach Bild 1 gleichzeitig in 2 verschiedenen Quellenentfernungen die Tracer-Konzentrationen gemessen. Ausnahmslos ließ sich in allen 9 Versuchsreihen eine Abnahme des peak-to-mean-Verhältnisses (und damit auch der Fluktuationsintensität) mit zunehmender Entfernung von der Quelle beobachten. Die Intermittenz, wie vorstehend definiert, nimmt hingegen mit wachsender Entfernung zu. Dieser Sachverhalt (Abnahme von p/m und i² bei gleichzeitiger Erhöhung von µ mit wachsender Quellenentfernung) ist eine Folge der zunehmenden Vermischung von "Tracer/Luft-Paketen" mit neutraler Umgebungsluft. Mit größer werdendem Abstand von der Quelle trägt außerdem das Mäandern der Fahne immer weniger zu den Konzentrationsfluktuationen bei. Es bildet sich zunächst ein turbulentkonvektives Regime (t \cong T_L) aus. Größere, das Mäandern verursachende Wirbel, tragen darin etwa zu gleichen Teilen zu den Fluktuationen bei wie die kleinskaligen Wirbelstrukturen, die eine interne Vermischung und die Aufweitung der Fahne bewirken.

Ein turbulent-diffusives Regime stellt sich nach längeren Diffusionszeiten (t $>> T_{I}$) in der Fahnenentwicklung ein. Hier werden die Konzentrationsfluktuationen vorwiegend durch die klein-skaligen, fahneninternen Wirbelelemente verursacht. In diesem Stadium macht sich eine gleichförmige Vermischung der spurenstoffbeladenen Luftvolumina mit neutraler Umgebungsluft bemerkbar; die Fahne ist "gut durchmischt" und entwickelt sich selbst-ähnlich mit relativ kleinen Konzentrationsgradienten, d.h. kleinen Werten für p/m. Dies sei nur der Vollständigkeit halber erwähnt; bei unseren Messungen lagen kurze bis mittlere Diffusionszeiten vor $(t \leq T_L)$.

Gemessene Häufigkeitsverteilungen

Im folgenden werden die gemessenen Überschreitungshäufigkeiten in der Tracer-Fahne (konditionierte Zeitreihen) genauer betrachtet. Um die Zeitreihen aus Ausbreitungsversuchen verschiedenen besser miteinander vergleichen zu können, wurden die Konzentrationen mit ihrem Mittelwert normalisiert und damit dimensionslos gemacht. Sortiert man die konditioniert-normalisierten Konzentrationswerte und ermittelt die Fraktion der Datenpunkte, die vorbestimmte Werte c/\overline{C}_{P} überschreiten, so erhält man die in Bild 5 dargestellten Überschreitungshäufigkeiten. Danach werden im Fahnenzentrum Spitzenwerte größer als das 3,5fache des Mittelwertes (p/m > 3,5) nur mit einer Häufigkeit von 1 % erreicht. Auch für die

anderen Versuchsreihen ergeben sich vergleichbare Zahlenwerte und auffallend selbstähnliche (Überschreitungs-) Häufigkeitsverteilungen für verschiedene Quellenentfernungen.

Die Werte einer (Konzentrations) Verteilung mit der höchsten Wahrscheinlichkeit heißen Modalwerte. Bei ausgeprägt rechtsschiefen Verteilungen, wie im vorliegenden Fall, ist der Modalwert immer kleiner als der Mittelwert. Die Differenz zwischen beiden Werten ist ein Maß für die Ausprägung der Rechtsschiefe. Betrachtet man den Rand der Tracerfahne, so liegen die Modalwerte der gemessenen Konzentrationen bei ca. 10 % des Mittelwertes. Für den Kern oder die Achse der Fahne werden Modalwerte bei etwa 50 % des Mittelwertes beobachtet. Die starke Asymmetrie in der Häufigkeitsverteilung der gemessenen Konzentrationen mit einem langen rechtsseitigen quasi-exponentiellen Ausläufer wird durch hohe Konzentrationen in lokal unvermischten Tracer-Schlieren verursacht.

Modellierung der Überschreitungshäufigkeiten

Die totale Verteilungsfunktion für die Auftrittshäufigkeit von atmosphärischen Spurenstoffen an einem Immissionsort ist mit

$$F_t(c) = \mu \cdot F(c) + (1 - \mu) \cdot H(c) \qquad (6)$$

gegeben, wobei H(c) die Einheitstreppenfunktion an der Stelle c = 0 ist. Der Ausdruck Gl. (6) nach der Konzentration c differenziert ergibt die totale Verteilungsdichte

$$p_t(c) = \mu \cdot p(c) + (1 - \mu) \cdot \delta(c)$$
(7)

mit

 $\delta(c)$ - Diracsche Deltafunktion.

Bild 5: Überschreitungshäufigkeiten H für konditioniertnormalisierte Konzentrationen c/\overline{C}_p , gemessen in 3 verschiedenen Quellenentfernungen im Fahnenzentrum (V1: 20m, V4: 50 m / 100 m). Mit bekannter Intermittenzrate μ ist folglich die totale Verteilungsdichte durch die Dichte p(c) vollständig bestimmt. Im weiteren werden 3 häufig zur Modellierung von Konzentrationsdaten verwendete Verteilungsdichten p(c) getestet:

Gamma-Verteilung

$$p(c) = \left(\frac{c}{a}\right)^{b-1} \cdot \frac{\exp(-c/a)}{a \cdot \Gamma(b)}$$
(8)

Logarithmische Normalverteilung

$$p(c) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot c \cdot b} \cdot \exp\left\{-\frac{\ln^2(c/a)}{2 \cdot b^2}\right\} (9)$$

Weibull-Verteilung

$$p(c) = \frac{b}{a} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)^{b-1} \cdot \exp\left\{-\left(c/a\right)^{b}\right\} \quad (10)$$

mit

- a Skalierungsparameter
- *b* Formparameter.

Abgesehen vom 2. Moment, der Varianz nach Gl. (4), sind das 3. und 4. Moment für die Fluktuationseigenschaften einer Konzentrations-Zeitreihe charakteristisch:

Schiefe:

$$S = \frac{(c - \overline{C})^3}{\sigma_c^3} \tag{11}$$

Kurtosis:

mit

$$K = \frac{(c - \overline{C})^4}{\sigma_c^4} \tag{12}$$

 \overline{C} - Mittelwert σ_c^2 - Varianz der Konzentration.



Der Zusammenhang zwischen Schiefe sowie Kurtosis und den Skalierungs- und Formparametern der o.g. Verteilungsdichten ergibt sich durch Einsetzen von p(c) in die Definitionsgleichung des statistischen Moments und anschließender Integration. Es folgen S und K als Funktionen des Formparameters b, der wiederum nur von der Fluktuationsintensität i² abhängt (siehe dazu z. B. [14]). Andererseits läßt sich i² leicht nach Gl. (4) aus den Meßdaten ermitteln.

Um zu prüfen, wie gut die 3 Dichtefunktionen die fluktuations-statistischen Eigenschaften der gemessenen Konzentrationswerte wiedergeben, sind in den beiden folgenden Diagrammen (**Bild 6 und 7**) die Schiefe und die Kurtosis über der Fluktuationsintensität i² aufgetragen. Für diesen Vergleich werden die Meßdaten aus sämtlichen 9 Versuchsreihen herangezogen; sie beziehen sich auf konditionierte Zeitreihen an den in Tabelle 2 aufgeführten Zählrohrpositionen.

Nach den beiden vorstehenden Bildern spiegelt die LogNormal-Verteilung am wenigsten die Meßdaten wider. Sie bildet eine obere Schranke für das 3. und das 4. statistische Moment, d. h. die Meßwerte für S und K überschreiten die Kurven der LogNormal-Verteilung nicht. Insgesamt werden die gemessenen statistischen Momente am besten durch die Gamma-Verteilung wiedergegeben. Allerdings tendieren sie wegen der breit streuenden atmosphärischen Bedingungen und unterschiedlichen relativen Fahnenpositionen dazu, eher eine Fläche als einen Kurvenzug in der (S,i^2) - oder (K,i^2) -Ebene einzunehmen. Diese Befunde decken sich weitgehend mit den Untersuchungsergebnissen von YEE et al. [5].

Der unmittelbare Vergleich zwischen berechneten und beobachteten Überschreitungshäufigkeiten ist für die Validierung einer Verteilungsdichte der wichtigste Test. Hierbei läßt sich unmittelbar erkennen, wie gut das Modell die tatsächlichen Überschreitungshäufigkeiten simuliert. Als Darstellungsform wird daher ein Quantil-Quantil-Diagramm gewählt, das die Überschreitungshäufigkeit in Abhängigkeit des Schwellenwertes ausweist. Auf der Abszisse ist das Quantil der normalisierten Meßwerte $(c/\bar{c})_M$, auf der Ordinate dasjenige aus der Modellsimula $tion_{(c/\overline{c})_R}$ für eine Quellenentfernung von 100 m aufgetragen. (Die Q-Q-Diagramme für Quellenentfernungen von 20 m und 50 m unterscheiden sich nicht wesentlich von **Bild 8**):

Gamma- und Weibull-Verteilung liefern recht ähnliche Q-Q-Profile, die gegenüber demjenigen der LogNormal-Verteilung insgesamt besser mit den beobachteten Quantilen übereinstimmen. Allerdings bewerten Gamma- und Weibull-Verteilung die Quantile bei kleinen Konzentrationen zumindest am Rand der Tracerfahne zu niedrig und überschätzen sie geringfügig bei höheren Konzentrationen. Demgegenüber liegen die berechneten Ouantile der LogNormal-Verteilung durchgehend über den beobachteten. -Die Modalwerte der Verteilungsdichten liegen wie die der gemessenen Häufigkeitsverteilungen deutlich unterhalb des Mittelwertes der Konzentration. Von der Gamma- und der Weibull-Verteilung werden die Modalwerte bei kleinen Konzentrationen unterschätzt, während hier

die LogNormal-Verteilung den häufigsten Meßwert der Konzentration besser wiedergibt.

Gewöhnlich erhält man bei Ausbreitungssimulationen (Langzeit)mittelwerte der Konzentration. Diese enthalten nicht mehr festzustellende Zeitabschnitte mit Null-Konzentrationen und liefern keine Information zur Intermittenz. Setzt man u = 1(das entspricht; "keine Information zur Intermittenz") bei der Modellsimulation und berechnet die Modellparameter a und b wieder aus dem Mittelwert und der Fluktuationsintensität der Meßwerte, so lassen sich berechnete und gemessene Überschreitungshäufigkeiten für bestimmte Schwellenwerte im H-H-Diagramm einander anschaulich gegenüberstellen (Bild 9). Nicht nur die berechnete Hr und die gemessene Überschreitungshäufigkeit Hm hängen jeweils vom Schwellenwert der Konzentration C₀ ab; auch der Quotient H_r/H_m ist im allgemeinen von der Wahl des Wertes C₀ abhängig. Für die Berechnung und Darstellung in Bild 9 wird der Schwellenwert - mit einer gewissen Willkür - gleich dem Mittelwert der Konzentration gesetzt $C_0 = \overline{C}$, da für die meisten ausgewerteten Zeitreihen gilt: $C_{\min} << \overline{C} << C_{\max}.$ Als Maß für die Abweichung zwischen Rechnung und Messung dient im folgenden die mittlere quadratische Abweichung des Quotienten aus gerechneter und gemessener Überschreitungshäufigkeit:

$$\sigma_{Hr/m} = \sqrt{1/n \cdot \sum_{i=1}^{n} (H_{ri}/H_{mi} - 1)^2}$$
(13)



Bild 6: Schiefe S der gemessenen Tracer-Konzentrationen über der Fluktuationsintensität i² für 3 verschiedene Quellenentfernungen. Vergleich mit 3 statistischen Dichteverteilungen.



Bild 7: Kurtosis K der gemessenen Tracer-Konzentrationen über der Fluktuationsintensität i² für 3 verschiedene Quellenentfernungen. Vergleich mit 3 statistischen Dichteverteilungen.



Bild 8: Quantile der normalisierten Konzentrationen auf der Fahnenachse in 100 m Quellenentfernung im Vergleich zwischen Modellsimulation und Beobachtung. Die Modellparameter a und b wurden aus dem Mittelwert und der Fluktuationsintensität der Meßwerte berechnet.

Nach Bild 9 gibt die Gamma-Verteilung nicht nur im Vergleich mit den beiden anderen Verteilungsdichten, sondern auch absolut betrachtet die beobachteten Überschreitungshäufigkeiten bemerkenswert gut wieder. Selbst bei 3fach größerem Schwellenwert $C_0 = 3 \cdot \overline{C}$ oder 3fach höheren Konzentrationen läßt sich noch eine gute Übereinstimmung mit $\sigma H_{r/m} = 0,189$ feststellen. Für $C_0 = 1/3 \cdot \overline{C}$ beträgt die Standardabweichung $\sigma H_{r/m} = 0,246$.

Die gute Übereinstimmung im vorstehenden H-H-Diagramm ist u.a. auf folgenden Umstand zurückzuführen: mit $\mu = 1$ werden die berechneten Überschreitungshäufigkeiten zwar überschätzt, gleichzeitig aber durch den für ungefilterte Zeitreihen niedrigeren Mittelwert der Konzentration vermindert. Diese gegenläufigen Tendenzen heben sich zum Teil auf. Der Bezug zum Praxisfall ist somit gegeben, da gewöhnlich Konzentrationen von Spurenstoffen in der Atmosphäre nicht zeitlich hoch aufgelöst gemessen werden.

Anders verhält es sich mit der Fluktuationsintensität i². Sie geht als Formparameter b maßgebend in die Modellsimulation ein und bestimmt damit wesentlich neben dem Konzentrationsmittelwert die Überschreitungswahrscheinlichkeit. Der Vergleich in Bild 9 hängt also empfindlich von der Fluktuationsintensität i² der jeweiligen Versuchsreihe ab, die sich nur mit zeitlich hochauflösenden Meßtechniken erfassen läßt. Daraus kann folgender Schluß gezogen werden: die Intermittenz ist gegenüber der Fluktuationsintensität die weniger kritische Einflußgröße, da µ implizit im Mittelwert enthalten ist, während i^2 sich als weitgehend unabhängig vom Mittelwert erweist. (Das gilt natürlich nur für die Berechnung von Überschreitungshäufigkeiten mit den eingeführten Verteilungsdichten und heißt nicht, daß die Intermittenz aus dem Mittelwert abgeleitet werden kann!)

Korrelation zwischen Tracer-Konzentration und Geruchswahrnehmung

Grundsätzlich lassen sich die Gerüche des eingesetzten Odoriermittels THT auch in größeren Entfernungen von 100 m und darüber noch zweifelsfrei wahrnehmen. Die sensorischen Wahrnehmungsmuster der Probanden stimmen in einigen Fällen gut mit den Überschreitungsmustern der Tracer-Konzentration am selben Meßort überein (Bild 10). Allerdings ist die Datenbasis der verwertbaren THT-Meßreihen nicht groß genug, um mit Hilfe von Korrelationskoeffizienten die außerordentlich komplexe Beziehung zwischen Exposition (Immission) und Geruchswirkung quantitativ zu erfassen. So kann die anschließende Ergebnisdarstellung lediglich eine Orientierung geben.

Vergleicht man die beobachteten Geruchshäufigkeiten mit reinen Modellrechnungen, so liegen die Abweichungen bei etwa einem Faktor 2 für die Versuchsreihen V7 und V8 (siehe dazu **Bild 11**; eine deutlich größere Abweichung ist für die Versuchsreihe V6 festzustellen). "Reine Modellrechnungen" bedeutet hier: im Ge-



Bild 9: Überschreitungshäufigkeiten H für ungefilterte Konzentrationen (Originaldaten) im Vergleich zwischen Messung und Rechnung. Bei den Modellrechnungen mit den 3 Dichtefunktionen wurde μ = 1 gesetzt; $C_0 = \overline{C} \cdot$

gensatz zu dem Vergleich nach Bild 9 wurde der Konzentrationsmittelwert nicht der Messung entnommen, sondern nach den Gln (1) und (2) errechnet (Q_{THT} nach Tab. 1 und $C_0 = 1$ GE/m³); nur der Wert für i² wurde aus der betreffenden Meßreihe in die Modellsimulation übernommen, da bislang kein ausreichend genaues Modell zu seiner Bestimmung vorliegt. (Modellansätze sind z. B. in [15] zu finden).

Das Ziel der hier vorgestellten Parallelversuche war es, zu zeigen, daß mit dem Odoriermittel THT ein Geruchstracer gegeben ist, der bei leicht bestimmbarem Emissionsmassenstrom in mehreren hundert Metern Entfernung eindeutig von den Probanden "detektiert" werden kann. Die sensorisch gemessenen THT-Überschreitungsmuster lassen sich mit denjenigen für den Tracer 85Kr vergleichen und auswerten. Der Zusammenhang zwischen der Exposition von Geruchsstoffkonzentrationen und deren Wirkung kann freilich nicht durch wenige Feldversuche quantitativ erfaßt werden. Erst recht nicht, wenn nicht nur Zeitanteile der Geruchswahrnehmung, sondern auch Intensitäten, hedonische Wirkungen und Belästigungsgrade erkannt werden sollen. Mit Hedonik und Belästigung erhält der Expositions/Wirkungszusammenhang stark gefühlsabhängige Elemente, die nur durch das Gesetz der großen Zahlen, d. h. auf statistischem Wege nach Maß und Zahl verarbeitet werden können. Wissenschaftlich begründete Aussagen über Geruchswirkungen stoßen auf weitere Hindernisse: bei den meisten übelriechenden

20

Bild 10: Gemessene Impulsraten in 100 m Quellenentfernung (V7, 18.05.01). Die unterbrochene fette Linie gleich über der Abszisse gibt die vom Probanden registrierten Zeitanteile der Geruchswahrnehmung an.

Substanzen handelt es sich nämlich um komplexe Geruchsstoff-Agglomerate, d. h. die Untersuchung einer einzelnen Komponente ist nicht ohne weiteres auf ein Gemisch verschiedener Geruchsstoffe übertragbar; Gemische sind aber in der Praxis der Regelfall. Zudem ist die Wirkung von Geruchsstoffen unter Laborbedingungen am Olfaktometer bei gleicher mittlerer Geruchsstoffkonzentration eine andere, als bei fluktuierenden Konzentrationen im Naturmaß.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit stellt einen Meßaufbau zur immissionsseitigen Erfassung des radioaktiven Tracers ⁸⁵Kr vor. Als Detektoren kommen u. a. hochempfindliche Proportional-Zählrohre zum Einsatz, die bei vergleichsweise niedrigen Krypton-Emissionsstärken ein zeitliches Auflösungsvermögen von 1 s ermöglichen. Die durchschnittliche 85Kr-Emission liegt bei 7,22 GBq pro Versuch bezogen auf typische Quellenentfernungen von ca. 100 m. Zur Analyse der Konzentrationsflukuationen wurden insgesamt 9 Freifeldversuche in ebenem Gelände bei vorwiegend neutraler bis leicht labiler atmosphärischer Schichtung durchgeführt. Die mittleren Krypton-Konzentrationen wurden in Quellenentfernungen von 20 m, 50 m sowie 100 m gemessen und mit Berechnungsergebissen des Gaußschen Abgasfahnenmodells verglichen. Hierbei zeigt sich: die Parametrisierung der Standardabweichungen nach TA Luft, Anhang C unterschätzt im allgemeinen die beobachteten Konzentrationen. Wählt man hingegen einen Parametrisierungsansatz nach dem TAYLOR-Theorem, der die Windgeschwindigkeitsfluktuationen σ_{vw} unmittelbar verwertet, so läßt sich selbst mit Orientierungswerten für die Lagrange Skalenzeit T_L eine bessere Übereinstimmung mit der Messung feststellen. Das Verhältnis von Spitzenwert zu Mit-

telwert p/m der gemessenen ungefilterten Konzentrations-Zeitreihen variiert über 2 Größenordnungen und kann im Randbereich der Fahne sogar Werte p/m > 100 annehmen. Es läßt sich ein linearer Zusammenhang zwischen p/m und der Fluktuationsintensität i² nachweisen. Bei sämtlichen Ausbreitungsversuchen kann zudem eine Abnahme von p/m sowie eine Zunahme der Intermittenz µ mit wach-Quellenentfernung festgestellt sender werden. Die Häufigkeitsverteilung der gemessenen Tracerkonzentrationen zeigt ausgeprägte Rechtsschiefe eine mit Modalwerten bei etwa 10 % des Mittelwertes für den Rand und bei 50 % des Mittelwertes für den zentralen Bereich der Tracerfahne.

Die statistischen Eigenschaften der logarithmischen Normalverteilung, Gammasowie Weibullverteilung werden untersucht und mit den entsprechenden Größen der gemessenen Zeitreihen verglichen. Die Gamma-Verteilung, gefolgt von der Weibull-Verteilung, reproduziert Schiefe und Kurtosis der Meßwerte im Rahmen der Streubreiten ausreichend genau, während die LogNormal-Verteilung beide statistischen Momente deutlich überschätzt. Für einen Vergleich zwischen berechneten und beobachteten Überschreitungs-

häufigkeiten werden die Quantile der normalisierten Rechen- und Meßwerte gebildet und einander gegenübergestellt. Gamma- und Weibull-Verteilung liefern

keiten H aus den Versuchsreihen V6, V7 und V8. Die Datenpunkte aus V6 sind gestrichelt umringt.

> recht ähnliche Q-Q-Profile, die gegenüber demjenigen der LogNormal-Verteilung insgesamt besser mit den beobachteten Quantilen übereinstimmen. Allerdings bewerten die beiden erstgenannten Verteilungsdichten die Quantile bei kleinen Konzentrationen zu niedrig und überschätzen sie geringfügig bei höheren Konzentrationen. Im H-H-Diagramm werden schließlich die berechneten Überschreitungshäufigkeiten für $\mu = 1$ den ungefilterten Meßzeitreihen der Konzentration (die also auch Anteile mit Null-Konzentrationen enthalten) für einen Schwellenwert von $C_0 = \overline{C}$ gegenübergestellt. Auch hier läßt die Gamma-Verteilung im Vergleich mit den beiden anderen Kandidaten die beste Übereinstimmung mit den Meßwerten erkennen. Die Ergebnisse und Aussagen hierzu ändern sich nicht wesentlich, wenn der Schwellenwert innerhalb $\overline{C}/3 < C_0 < 3 \cdot \overline{C}$ geändert wird.

> Die Ausbreitungsversuche mit dem Odoriermittel Tetrahydrothiophen (THT) erbrachten folgendes Ergebnis: bei durchschnittlichen Windverhältnissen und einem Emissionsmassenstrom in der Größenordnung von 10 mg/s sind die THT-Gerüche von den Probanden in 100 m zweifelsfrei wahrzunehmen. In einigen Fällen stimmen die sensorischen Wahrnehmungsmuster gut mit den Überschreitungsmustern der Tracer-Konzentration am selben Meßort überein. Die ermittelte Datenbasis ist jedoch zu klein, um Korrelationen zwischen den beiden Überschreitungsmustern ermitteln zu können. Ausbreitungsrechnungen mit dem Gaußmodell in der o.g. TAYLOR-Parametrisierung zeigen mit den untersuchten Verteilungsdichten Abweichungen von



LogNormal



mindestens einem Faktor 2 gegenüber den sensorisch gemessenen THT-Überschreitungshäufigkeiten.

Literatur

- [1] Jones, C. D., Griffiths, R. F. (1984) Fullscale experiments on dispersion around an isolated building using an ionized air tracer technique with very short averaging time, Atmos. Envir. 18, 903-916
- [2] Lewellen, W. S. and Sykes, R. I. (1986) Analysis of concentration fluctuations from LIDAR observations of atmospheric plumes. J. Clim and Appl. Meteorol. 25, 1145-1154
- [3] Dinar, N.,Kaplan, H. and Kleiman, M (1988) Characterization of concentration fluctuations of a surface plume in a neutral boundary layer. Boundary-Layer Met. 45, 157
- Mylne, K. R. and Mason, P. J. (1991) Concentration fluctuation measurements in a dispersing plume at a range of up to 1000 m. Quart. J. Roy. Met. Soc. 117, 177
- [5] Yee, E.; Kosteniuk, P. R.; Chandler, G. M.; Biltoft, C. A. und Bowers, J. F. (1993) Statistical characteristics of concentration fluctuation in dispersing plumes in the atmospheric surface layer. Boundary-Layer Meteorology 65, 69-109
- [6] Ramsdell, J. V. und Hinds, W. T. (1971) Concentration fluctuations and peak-tomean concentration ratios in plumes from a ground-level continous point source. Atmos. Envir. 5, 483-495
- [7] Müller, H.-J., Krause, K.-H. und Eckhof, W. (1996) Untersuchungen zum Emissions- und Immissionsverhalten von Putenund Entenställen. Agrartechnische Forschung 2, H. 2, 127-137
- [8] Descartes, R. (1637) Discours de la Méthode. Zitiert nach: Felix Meiner Verlag Hamburg 1960. 30
- [9] DVGW Arbeitsblatt G 280 (1999) Technische Regel Arbeitsblatt G 280 - Gasodorierung. Wirtschafts- und Verlagsgesellschaft Gas und Wasser mbH, Bonn.
- [10] Lung, T., Müller, H.-J., Möller, B. und Gläser, M. (2000) Messung und Modellierung von Konzentrationsfluktuationen für Gerüche. KTBL Sonderveröffentlichung zum KTBL/FAL-Fachgespräch, 24./25.10.2000. Braunschweig, Nr. 031 52-59
- [11] Gläser, M.; Klich, W. und Creifelds, A. (1986) Vergleichende Untersuchungen an 85Kr und 133Xe als Tracer. Isotopenpraxis 22, 411-416
- [12] Taylor, G. I. (1921) Diffusion by continuous movements. Proc. London Math. Soc. Ser. 2, 20, 196
- [13] TA Luft (1986) Erste allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz – Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft (TA Luft), GMBI. Nr. 7 vom 28.02.1986
- [14] Yee, E.; Wilson, D. J.; Zelt, B. W. (1993) Probability distribution of concentration fluctuation of a weakly diffusive passive plume in a turbulent boundary layer. Boundary-Layer Meteorology 64, 321-354
- [15] Hanna, S. R. (1984) Concentration fluctuations in a smoke plume. Atmos. Envir. 18, No. 6, 1091-1106

Autoren

Dipl.-Phys. Thomas Lung Ingenieurbüro für Immissionsprognostik und Ausbreitungsmodellierung 10587 Berlin E-mail: <u>lung@snafu.de</u>

Dr.-Ing. Hans-Joachim Müller Institut für Agrartechnik Bornim e. V. Abteilung Technik in der Tierhaltung Max-Eyth-Allee 100 14469 Potsdam Tel.: +49/(0)331/5699-518 Fax: +49/(0)331/5699-849 E-mail: hmuller@atb-potsdam.de

Dr. Manfred Gläser Dr.-Ing. Hans-Joachim Müller Institut für Agrartechnik Bornim e. V. Abteilung Technik in der Tierhaltung Max-Eyth-Allee 100 14469 Potsdam Tel.: +49/(0)331/5699-518 Fax: +49/(0)331/5699-849 E-mail: mglaeser@atb-potsdam.de

Dipl.-Ing. Bernd Möller Institut für Agrartechnik Bornim e. V. Abteilung Technik in der Tierhaltung Max-Eyth-Allee 100 14469 Potsdam Tel.: +49/(0)331/5699-514 Fax: +49/(0)331/5699-849 E-mail: <u>bmoeller@atb-potsdam.de</u>