

1 Einleitung und Zielsetzung

„Alle Modelle sind falsch - manche sind nützlich.“ (Unbekannt). Ein Modell ist eine auf bestimmte Zwecke ausgerichtete, vereinfachende Beschreibung der Realität und somit das Ergebnis einer abstrahierenden und Relationen hervorhebenden Darstellung des behandelten Systems oder Problems. Modelle sind Werkzeuge, mit denen das Verhalten des betrachteten Systems abgebildet bzw. vorhergesagt werden soll und Thesen bezüglich der Verknüpfung der Prozesse überprüft werden können. Die vorliegende Arbeit befasst sich in diesem Zusammenhang mit der Entwicklung verschiedener Modelle für die Beschreibung des Abbaus und des Emissionsverhaltens von Siedlungsabfällen. Sie wurde im Rahmen des Teilprojekts B5 „Analyse der biologischen und chemischen Reaktionsprozesse in Deponien“ des Sonderforschungsbereichs 477 „Sicherstellung der Nutzungsfähigkeit von Bauwerken mit Hilfe innovativer Bauwerksüberwachung“ durchgeführt.

Hintergrund des Forschungsvorhabens ist die Notwendigkeit einer effektiven Überwachung von Bauwerken, ohne die eine Gewährleistung der Bauwerkssicherheit und eine Abschätzung von Gefährdungs- und daraus resultierenden Schadenspotentialen nicht möglich ist. Bei herkömmlichen Bauwerken wie Brücken, Häusern oder Staudämmen bezieht sich das Monitoring auf die strukturelle Integrität. Bei Siedlungsabfalldeponien muss neben diesem Aspekt auch das Gefährdungspotential aufgrund von Sickerwasser- und Gasemissionen betrachtet werden. Durch die Emission von Sickerwässern bergen Deponien das Risiko, Boden- und Grundwasserkontaminationen hervorzurufen. Gasemissionen, speziell Methanemissionen, stellen zwar keine unmittelbare Gefährdung dar, haben jedoch aufgrund der Menge der deponierten Siedlungsabfälle in ihrer Summe einen wesentlichen Anteil am anthropogen verursachten Treibhauseffekt.

Auf nationaler und internationaler Ebene wird eine umweltgerechte Behandlung und Deponierung von Siedlungsabfällen angestrebt. In der Agenda 21 wurde 1992 auf der Konferenz der Vereinten Nationen in Rio de Janeiro der Handlungsrahmen zur Verwirklichung einer sozial, wirtschaftlich und ökologisch nachhaltigen Entwick-

lung formuliert. Hier wurden u.a. Handlungsanweisungen für die Deponierung sowie energetische Nutzung von Abfällen und damit die Reduktion der Methangasemissionen festgeschrieben [1]. Auch die 1999 erteilte EU-Deponierichtlinie enthält detaillierte Anweisungen zur Behandlung und Ablagerung von Abfällen sowie für den Betrieb und die Überwachung von Deponien in der aktiven und in der Nachsorgephase [2]. Auf nationaler Ebene wurde die EU-Deponierichtlinie in der Abfallablagerungsverordnung und in der Deponieverordnung umgesetzt, die im März 2001 bzw. im Juli 2002 in Kraft traten [3, 4]. Darin wurde festgelegt, dass ab Juni 2005 kein unbehandelter Abfall mehr auf Deponien gelagert werden darf. Die Abfallbehandlung schließt dabei neben mechanisch-biologischen Verfahren auch eine Abfallverbrennung mit ein.

Trotz dieser Bestrebungen werden in weiten Teilen der Welt unbehandelte Siedlungsabfälle „deponiert“, und auch in Deutschland ist die Problematik der Altdeponien noch nicht gelöst. Zudem hat sich gezeigt, dass mechanisch-biologisch behandelte Abfälle teilweise noch ausgeprägte Gasemissionspotentiale besitzen [75]. Die Notwendigkeit geeigneter Monitoringmaßnahmen besteht somit weiterhin. Aufgrund der Heterogenität von Siedlungsabfällen, der Komplexität der stattfindenden Prozesse und deren Verknüpfungen untereinander kann jedoch vom Emissionspotential nicht direkt auf das Emissionsverhalten geschlossen werden.

Der Fokus der vorliegenden Arbeit liegt auf der Entwicklung und Validierung eines mechanistischen Modells, in dem die lokalen Reaktionsprozesse in Abhängigkeit von Milieubedingungen formuliert sind. Mit diesem Modell soll der mikrobiell gesteuerte Abbau der organischen Fraktion im Abfall und das damit verbundene Emissionsverhalten simuliert werden. Die Validierung wird an sehr unterschiedlichen Reaktionssystemen durchgeführt, wobei die Möglichkeiten und Grenzen der Anwendbarkeit des mechanistischen Modells aufgezeigt werden. Weiterhin wird das Modell mit heuristischen, stochastischen und wissensbasierten Modellansätzen verknüpft. Diese Art der hybriden Modellierung führt zu Werkzeugen, die in der Prognostizierung bezüglich des Emissions- bzw. Stabilisierungsverhaltens von Siedlungsabfällen eingesetzt werden können. Die Leistungsfähigkeit der hybriden Modelle wird dabei anhand verschiedener Simulationen verdeutlicht.

2 Theorie

2.1 Modelle zur Simulation von Deponieprozessen

Der Bedarf an mathematisch-physikalischen Modellen im Deponiebereich entstand zeitgleich mit dem Bau von geordneten Siedlungsabfalldeponien in den 1970er Jahren [113]. Anfänglich wurden Abschätzungen und empirische Überlegungen über die Zusammenhänge zwischen den verschiedenen physikalischen, chemischen und biologischen Prozessen im Abfall angestellt. Dabei erfolgte z.B. die Prognostizierung der Gasemission, ohne die Prozesse im Detail zu berücksichtigen. Derartige Modelle wurden u.a. von Tabasaran [118], Findikakis und Leckie [39] und Ham [52] entwickelt. Erste Modellansätze, die auf detaillierten Beschreibungen der Prozesse im Abfall basieren, wurden von Farquhar und Rovers [38] vorgestellt. Im Laufe der Zeit wurden diese Modelle verfeinert und ersetzt nach und nach die empirischen Modelle (u.a [16, 30, 31, 46, 117]). Die Modellentwicklung an sich ist bis zum heutigen Tag empirisch geblieben, da die in Siedlungsabfalldeponien stattfindenden Prozesse derart komplex sind, dass es schwierig ist, eine allgemeingültige Beschreibung zu formulieren. So findet sich in der Literatur eine große Bandbreite an mechanistischen und nicht-mechanistischen Ansätzen. Neuere Modellentwicklungen nehmen Bezug auf eine gemeinsame Datenbasis mit dem Ziel der besseren Vergleichbarkeit und zur Beurteilung der jeweiligen Stärken und Schwächen [12, 13, 61, 99, 111, 127].

2.2 Modelltypen

Modelle können auf unterschiedliche Weise klassifiziert werden. Nach dem Grad der beschriebenen Details und den Strukturierungen des Modellsystems etwa, bietet sich eine Einteilung in *black box*-, *grey box*- und *structured grey box*-Modelle an, wie sie z.B. von Haarstrick [47] vorgenommen wurde. Bezogen auf die Zielset-

zung der vorliegenden Arbeit wird an dieser Stelle nach der Art der Modellansätze unterschieden.

2.2.1 Mechanistische Modelle

Ein mechanistisches Modell ist ein erklärendes Modell, das auf Theorien und Gesetzmäßigkeiten beruht, die aus beobachtbaren Phänomenen abgeleitet wurden. Auf mikroskopischer Ebene handelt es sich dabei um das Reaktionsgeschehen und somit um Detailwissen über die mikrobielle Aktivität und den Einfluss der Milieubedingungen auf den Abbau. Auf makroskopischer Ebene werden Transportprozesse und mechanische Vorgänge im Abfall beschrieben. Die Detailliertheit der vorhandenen Modelle unterscheidet sich dabei sehr stark. Die Gesamtheit der im Abfall stattfindenden Prozesse und deren zahlreiche Verknüpfungen untereinander konnten bis heute noch nicht vollständig erfasst werden. Die existierenden Modelle sind somit auf konkrete Problemstellungen ausgerichtet. Modelle, deren Schwerpunkt auf der Beschreibung von Stoff- und Wärmetransportprozessen sowie mechanischen Vorgängen im Abfall liegt, wurden u.a. von Chenu *et al.* [18], Kindlein *et al.* [69], Krase *et al.* [73] und McDougall and Silver (HBM) [90] entwickelt. Eine Kopplung von Transportvorgängen mit Reaktionsprozessen wurde u.a. von Lobo *et al.* (MODUELO) [82, 83], Vavilin *et al.* [120] und White *et al.* (LDAT) [128] vorgenommen. Batstone *et al.* (ADM1) [11], Haarstrick *et al.* (DPN6d) [49] und Pommier *et al.* [105] erstellten Modelle, denen eine detaillierte Beschreibung der im Abfall ablaufenden Reaktionsprozesse zugrunde liegt. Um ein in allen Bereichen differenziertes Gesamtmodell schaffen und validieren zu können, muss eine Vielzahl von Experimenten durchgeführt werden, um die für das Modell notwendigen Parameter eindeutig zu bestimmen.

2.2.2 Heuristische und stochastische Modelle

Die Herangehensweise an komplexe Probleme, die sich mit mechanistischen Ansätzen nicht vollständig lösen lassen, basiert aufgrund einer eingeschränkten Informationsbasis oft auf heuristischen und/oder stochastischen Methoden. Heuristische

Modelle liefern dabei meist mehrere mögliche Lösungen, unter denen sich nicht zwingend die optimale Lösung des Problems befindet. Zu den heuristischen Ansätzen zählen genetische Algorithmen, Regeln der Fuzzy-Logik sowie mathematische Eröffnungsverfahren. Zu den stochastischen Ansätzen werden vor allem Methoden der Wahrscheinlichkeitstheorie und Entscheidungstheorie sowie Schätzungen gerechnet. Im Deponiebereich werden derartige Modelle für die Prognose von Gas- bzw. Sickerwasseremissionen sowie für die Risikoanalyse genutzt. Beispiele hierfür sind die Modelle GasSim 2 und ConSim 2 [6, 7, 35, 44], RAM [36] sowie FRAMES und MEPAS [56, 57].

2.2.3 Wissensbasierte Modelle

Wissensbasierte Modelle stellen Systeme dar, in denen Informationen hinterlegt sind und mit deren Hilfe komplexe Zusammenhänge bearbeitet werden können. Diese Systeme sind Teilgebiete der künstlichen Intelligenz (KI). Im Allgemeinen befasst sich das Gebiet der KI mit der Automatisierung intelligenten Verhaltens. Wissensbasierte Modelle stellen darin eine sogenannte „schwache“ KI dar, die intelligentes Verhalten in einem konkreten Anwendungsproblem mit den Mitteln der Mathematik und Informatik simulieren soll. Vertreter dieser Kategorie sind beispielsweise Expertensysteme und künstliche neuronale Netze (KNN). Beide stellen für einen bestimmten Anwendungsbereich formalisierte Wissenssysteme dar und dienen somit der Beschreibung komplexer Prozesse. Expertensysteme basieren auf Expertenwissen, das sich aus dem Wissen um die benötigten Fakten und Wissen über ihre Zusammenhänge zusammensetzt, und nutzen spezielle Verfahren der Wissensverarbeitung. Dabei können auf der Grundlage dieses Wissens auch neue Schlussfolgerungen abgeleitet werden. KNN werden mit Hilfe bestimmter Trainingsverfahren auf eine konkrete Problemstellung „trainiert“ und speichern somit in ihrer Netzstruktur „gefundene“ Korrelationen zwischen Eingangsparametern und Zielgrößen. In der Anwendung eines derart „trainierten“ KNN können somit auf der Basis neuer Eingangsdaten Prognosen für die Zielgrößen erstellt werden. Im Deponiebereich liegt der Schwerpunkt der Anwendung von Expertensystemen im Management der Stoffströme sowie der

Auswahl von Deponiestandorten [10, 64, 84, 87, 25], von KNN in der qualitativen und quantitativen Vorhersage von Gas- und Sickerwasseremissionen [65, 102, 103].

2.2.4 Hybride Modelle

In der hybriden Modellierung werden mechanistische Ansätze mit heuristischen, stochastischen und wissensbasierten Ansätzen verknüpft (**Abbildung 2.1**). Unsicherheiten in mechanistischen Modellen, die aus hochgradig nicht-linearen Prozessen resultieren, können z.B. durch KNN kompensiert werden. Dabei ist sowohl eine parallele als auch eine serielle Verknüpfung der verschiedenen Modellbereiche möglich [78]. In einer parallelen Konfiguration, entsprechend Abbildung 2.1, gleicht die Verknüpfung einer Wichtung der kombinierten Modelle. An dieser Stelle reicht das Spektrum der Wichtungen von einer Gleichwertigkeit der Modelle bis hin zu einer Wichtung mittels Fuzzy-Logik [100]. Damit ist mit der hybriden Modellierung eine Vielzahl von Konfigurationsmöglichkeiten gegeben, deren Anwendbarkeit und Leistungsfähigkeit anhand der konkreten Problemstellung überprüft werden müssen (vgl. [8, 28, 43, 79, 126]).

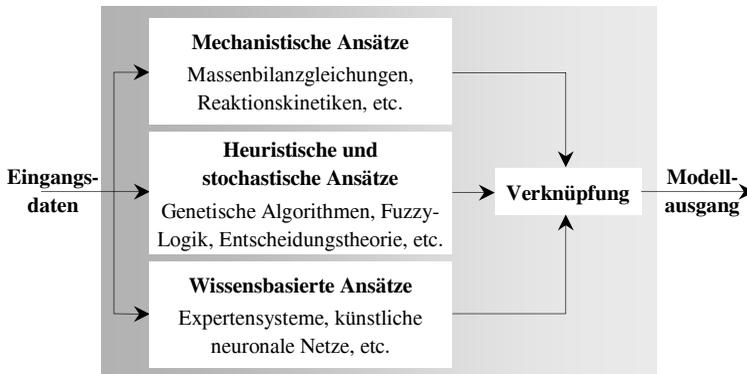


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der hybriden Modellierung

2.3 Mikrobielle Aktivität in Siedlungsabfällen

Siedlungsabfälle zeichnen sich durch eine stark heterogene Zusammensetzung von organischen und anorganischen Stoffen aus, die pro- und eukaryotischen Organismen als Energie- und Nährstoffquellen dienen können. Die im Siedlungsabfall dominierenden Abbauege für die organische Fraktion sind in **Abbildung 2.2** schematisch dargestellt. Ausgehend von den hochmolekularen organischen Verbindungen findet eine unspezifische Hydrolyse, d.h. Aufspaltung der Verbindungen durch Reaktion mit Wasser, statt. Die Hydrolyse erfolgt vorwiegend über Exoenzyme außerhalb der Mikroorganismen, da viele dieser Verbindungen aufgrund ihrer Größe nicht in die Zelle aufgenommen werden können. Vor allem Schimmelpilze, als Vertreter der Eukaryoten, sind durch ihre effektiven Enzymsekretionssysteme an diesem ersten Abbauschritt beteiligt. Energetisch betrachtet ist die Hydrolyse für die Mikroorganismen ein Verlust. Erst die daraus entstehenden oligomeren und monomeren Zwischenprodukte können energetisch genutzt werden. Unter aeroben Bedingungen kann eine vollständige Umsetzung der Zwischenprodukte in Kohlendioxid und Wasser stattfinden. Dieser Abbaueweg ist jedoch in der Regel nur am Anfang einer Deponierung von organischen Abfällen bzw. in äußeren Schichten von De-

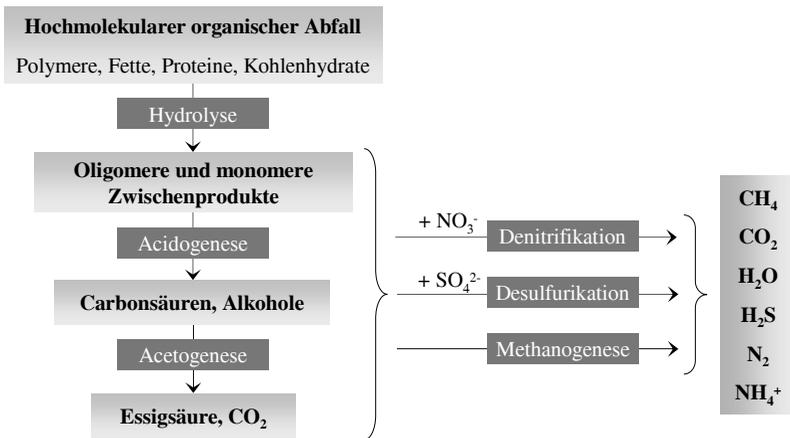


Abbildung 2.2: Dominierende anaerobe Abbauege für organische Verbindungen in Siedlungsabfällen

ponien oder bei künstlicher Belüftung relevant. Unter den meist vorherrschenden, anoxischen Bedingungen findet eine anaerobe Umsetzung über die Acidogenese statt. Hier werden die oligomeren und monomeren Zwischenprodukte in Carbonsäuren sowie in niedrigmolekulare Alkohole umgesetzt. In einer weiteren Stufe, der Acetogenese, werden diese Produkte primär in Acetat umgesetzt. Die letzte Stufe des anaeroben Abbaus unter anoxischen Bedingungen stellt die Methanogenese dar. Methan kann hierbei durch zwei verschiedene Stoffwechselwege gebildet werden. Bei der acetoklastischen Reaktion wird Acetat durch chemoorganoheterotrophe Bakterien als Kohlenstoffquelle genutzt und in Methan, Kohlendioxid und Wasser umgesetzt, durch chemolithoautotrophe Bakterien wird Kohlendioxid mit Wasserstoff als Elektronendonator (Hydrogenotrophie) zu Methan reduziert. Die acidogenen und acetogenen Mikroorganismen sowie die acetoklastischen Methanbildner konkurrieren bei Vorhandensein von Sulfat und/oder Nitrat im Reaktionssystem mit den anaeroben chemoorganoheterotrophen Desulfurikanten und Denitrifizierern um die Kohlenstoffquelle. Diese sind durch die von ihnen betriebene Sulfat- bzw. Nitratatmung energetisch im Vorteil und können daher die organische Kohlenstoffquelle effektiver nutzen. Auch die hydrogenotrophen Methanbildner konkurrieren mit einigen Spezies der Desulfurikanten um Kohlendioxid und Wasserstoff. Bis auf den Hydrolyseschritt erfolgt bei den ablaufenden Prozessen ein mehr oder weniger stark ausgeprägtes Biomassewachstum.

2.3.1 Substratverbrauch und mikrobielles Wachstum

Modellgleichungen zur Beschreibung mikrobieller Aktivität beruhen auf Gleichungen aus der Enzymkinetik. Die Standardgleichung der Enzymkinetik ist der von Michaelis und Menten im Jahre 1913 gefundene Zusammenhang [22]:

$$r = \frac{r_{max} \cdot c_S}{K_M + c_S} \quad (2.1)$$

in der r die Reaktionsgeschwindigkeit, r_{max} die maximal erreichbare Reaktionsgeschwindigkeit, c_S die Substratkonzentration und K_M die MICHAELIS-MENTEN-Konstante darstellen. r_{max} wird dabei aus der Enzymkonzentration c_{Enz} und der Geschwin-

digkeitskonstante der katalytischen Reaktion k_{kat} entsprechend einer Reaktion 1. Ordnung wie folgt berechnet:

$$r_{max} = k_{kat} \cdot c_{Enz} \quad (2.2)$$

Monod schlug 1942 einen empirisch gefundenen Zusammenhang zwischen der spezifischen Wachstumsgeschwindigkeit von Mikroorganismen μ und der Konzentration des limitierenden Substrates c_S vor, der die gleiche Form wie die Standardgleichung der Enzymkinetik (Gleichung (2.1)) und die der heterogenen Katalyse entsprechend der Langmuir-Adsorptionsisotherme besitzt [9]:

$$\mu = \mu_{max} \cdot \frac{c_S}{K_S + c_S} \quad (2.3)$$

mit μ_{max} als der maximalen spezifischen Wachstumsgeschwindigkeit und der Halbsättigungskonstante K_S . Dabei ist der Biomassezuwachs proportional zur vorhandenen Biomassekonzentration. Das Biomassewachstum entspricht somit einer autokatalytischen Reaktion:

$$r_B = \frac{d c_X}{d t} = \mu \cdot c_X \quad (2.4)$$

mit r_B als der Biomassezuwachsrate bzw. der zeitlichen Änderung der Biomassekonzentration. Aus den Gleichungen (2.3) und (2.4) folgt somit für das substratabhängige Wachstum von Mikroorganismen:

$$r_B = \mu_{max} \cdot c_X \cdot \frac{c_S}{K_S + c_S} \quad (2.5)$$

Die Abbaureaktion ist über den Ausbeutekoeffizienten $Y_{\frac{X}{S}}$, der das massebezogene Verhältnis von gebildeter Biomasse zu verbrauchtem Substrat darstellt, mit dem Biomassewachstum gekoppelt. Damit folgt für die Reaktionsgeschwindigkeit der Abbaureaktion r_A :

$$r_A = \frac{d c_S}{d t} = -\frac{1}{Y_{\frac{X}{S}}} \cdot \mu \cdot c_X \quad (2.6)$$

Das Wachstum von Mikroorganismen kann durch mehrere Substrate gleichzeitig limitiert werden. Die MONOD-Kinetik (Gleichung (2.3)) berücksichtigt jedoch nur die Abhängigkeit des Wachstums von einem Substrat. McGee *et al.* schlugen für zwei limitierende Substrate folgende Modifikation der MONOD-Kinetik vor [91]:

$$\mu = \mu_{max} \cdot \frac{c_{S_1}}{K_{S_1} + c_{S_1}} \cdot \frac{c_{S_2}}{K_{S_2} + c_{S_2}} \quad (2.7)$$

Jedoch kommt es hier bei geringen Konzentrationen aufgrund der Multiplikation der Terme zu einer übermäßigen Reduzierung der spezifischen Wachstumsgeschwindigkeit. Mankad und Bungay [88] entwickelten daher eine praxisnähere gewichtete Formulierung, die für eine beliebige Anzahl wachstumslimitierender Substrate mathematisch wie folgt formuliert werden kann [22]:

$$\mu = \mu_{max} \left(\frac{c_{S_1}}{K_{S_1} + c_{S_1}} \frac{\frac{K_{S_1}}{c_{S_1}}}{\sum \frac{K_{S_i}}{c_{S_i}}} + \frac{c_{S_2}}{K_{S_2} + c_{S_2}} \frac{\frac{K_{S_2}}{c_{S_2}}}{\sum \frac{K_{S_i}}{c_{S_i}}} + \frac{c_{S_3}}{K_{S_3} + c_{S_3}} \frac{\frac{K_{S_3}}{c_{S_3}}}{\sum \frac{K_{S_i}}{c_{S_i}}} + \dots \right) \quad (2.8)$$

2.3.2 Hemmungsmechanismen

Eine Hemmung des Mikroorganismenwachstums und damit der Abbauprozesse kann aufgrund verschiedener Mechanismen erfolgen, deren mathematische Formulierungen ebenso wie die Wachstumskinetik aus der Enzymkinetik ableitbar sind. Grundsätzlich lassen sich die Hemmungseffekte in unspezifische Hemmung eines beliebigen Stoffes, Substratüberschusshemmung und kompetitive Hemmung einteilen. Die unspezifische Hemmung eines beliebigen Stoffes entspricht der nicht-kompetitiven Hemmung aus der Enzymkinetik und kann wie folgt formuliert werden:

$$\mu = \mu_{max} \cdot \frac{K_I}{K_I + c_I} \cdot \frac{c_S}{K_S + c_S} \quad (2.9)$$

Eine erweiterte Formulierung der Gleichung (2.9) ist über den Exponenten a möglich, der die Steilheit des Abfalls der Wachstumsgeschwindigkeit bestimmt:

$$\mu = \mu_{max} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{c_I}{K_I}\right)^a} \cdot \frac{c_S}{K_S + c_S} \quad (2.10)$$