

**Anwendung von  
Pedotransferfunktionen  
für Sorptionsparameter zur  
Sickerwasserprognose von aus  
berechneten Bauteilen emittierten  
Substanzen  
Projekt Sorption-PTF**

**T 3350**

T 3350

Dieser Forschungsbericht wurde mit modernsten Hochleistungskopierern auf Einzelanfrage hergestellt.

Die in dieser Forschungsarbeit enthaltenen Darstellungen und Empfehlungen geben die fachlichen Auffassungen der Verfasser wieder. Diese werden hier unverändert wiedergegeben, sie geben nicht unbedingt die Meinung des Zuwendungsgebers oder des Herausgebers wieder.

Die Originalmanuskripte wurden reprotechnisch, jedoch nicht inhaltlich überarbeitet. Die Druckqualität hängt von der reprotechnischen Eignung des Originalmanuskriptes ab, das uns vom Autor bzw. von der Forschungsstelle zur Verfügung gestellt wurde.

© by Fraunhofer IRB Verlag

2017

ISBN 978-3-7388-0065-4

Vervielfältigung, auch auszugsweise,  
nur mit ausdrücklicher Zustimmung des Verlages.

**Fraunhofer IRB Verlag**

Fraunhofer-Informationszentrum Raum und Bau

Postfach 80 04 69

70504 Stuttgart

Nobelstraße 12

70569 Stuttgart

Telefon (07 11) 9 70 - 25 00

Telefax (07 11) 9 70 - 25 08

E-Mail [irb@irb.fraunhofer.de](mailto:irb@irb.fraunhofer.de)

[www.baufachinformation.de](http://www.baufachinformation.de)

# Anwendung von Pedotransferfunktionen für Sorptionsparameter zur Sickerwasser- prognose von aus berechneten Bauteilen emittierten Substanzen

## Projekt Sorption-PTF

Vorhaben DIBt 20.90

Bearbeitet durch: Olaf Tietje

Hochschule für Technik, Rapperswil, Schweiz

Auftraggeber:

Deutsches Institut für Bautechnik

Kolonnenstraße 30 B

D 10829 Berlin

Bearbeitung 2015/2016

## Zusammenfassung

Die Modellierung der Stoffflüsse aus berechneten Bauteilen in die Umweltkompartimente Oberflächenwasser, Boden und Grundwasser erfordert eine grosse Menge von experimentellen Daten, die nicht zur Verfügung stehen bzw. mit aufwändigen Messungen ermittelt werden müssen. Speziell die Abschätzung des Risikos einer Boden- bzw. Grundwasserverschmutzung durch Substanzen, die aus berechneten Bauteilen ausgewaschen werden können, erfordert die Modellierung der Stoffverlagerung im Boden. Im Bereich Boden haben sich sogenannte Pedotransferfunktionen (PTF) etabliert, die aus häufig vorhandenen Daten (Korngrössenverteilung, pH, organischer Kohlenstoffgehalt u.a.) Modellparameter für den Wasser- und Stofftransport ableiten. Utermann et al. (2005) haben PTFs („substratübergreifende Sorptionsisothermen“) für 9 Schwermetalle abgeleitet, die die Parameter der Freundlich-Adsorptionsisotherme berechnen können. In dieser Arbeit wurde versucht abzuschätzen, inwieweit sich mit Hilfe dieser PTFs und anderer Schätzverfahren Rückschlüsse auf die Verlagerung von organischen Bioziden und Schwermetallen im Boden ziehen lassen, die aus berechneten Bauteilen ausgewaschen werden. Dazu wurde für die Testsubstanzen Terbutryn, Mecoprop, PAK und Kupfer der langfristige Eintrag aus berechneten Bauteilen in den Boden abgeschätzt. Für ausgewählte Teststandorte wurde die Verlagerung im Boden simuliert und die Sensitivität auf die Transportparameter untersucht. Es hat sich gezeigt, dass Pedotransferfunktionen und andere Schätzverfahren für die Modellparameter eine grosse Hilfe darstellen, mit einem Modell das Verhalten von Substanzen im Zusammenspiel von Emissionen aus berechneten Bauteilen und ihrer Verlagerung im Boden einzuschätzen. Mit den hier verfolgten Ansätzen wären weitere Berechnungen möglich und hilfreich: Berechnungen zur Verlagerung von weiteren Substanzen, die aus berechneten Bauteilen emittiert werden (z.B. Diuron), Berechnungen für spezielle Häuser und zugehörige Böden, und Berechnungen, in denen die erforderlichen Sanierungskosten für einzelne Häuser oder Siedlungen abgeschätzt werden. Darüber hinaus könnten die hier verfolgten Ansätze zusätzlich abgesichert und weiter entwickelt werden, u.a. durch den Vergleich der hier angewendeten Vereinfachungen mit detaillierteren Modellen (z.B. Pelmo oder LeachXS).

English Title:

Application of pedotransfer functions to determine sorption parameters for contaminant transport of substances in soil that are emitted from rain exposed construction components

## Summary

Modelling material fluxes from rain exposed construction components to the environmental compartments surface water, soil, or ground water requires a large amount of experimental data that are not available and have to be determined with extensive measurements. The estimation of risks of soil and groundwater contamination requires the modelling and simulation of water and contaminant transport in soil. Many kinds of pedotransfer functions (PTFs) have been established that derive model parameters from mostly easily available data such as particle size distribution, pH, organic carbon content and others. For 9 heavy metals, Utermann et al. (2005) developed PTFs („substratübergreifende Sorptionsisothermen“) that calculate the parameters of the Freundlich adsorption isotherm. The current project tries to explore whether these PTFs and further estimation methods help to assess the transport of heavy metals and other, organic compounds from rain exposed construction components through the soil. Terbutryne, Mecoprop, PAHs and Copper were chosen as test substances at specially selected sites to determine the long term input into the soil. The sensitivity of the contamination to their transport parameters was investigated by several characteristic simulations. The results show that PTFs and other estimation methods are very helpful to evaluate the combination of emissions from rain exposed construction components and their subsequent transport in soil. The approaches that were developed in this project could also be helpfully applied to solve further problems: contamination due to other substances, such as Diuron; other contamination scenarios at specific houses and their surrounding soil; costs for remediation of soil contamination due to specific houses or residential areas. To additionally validate or further develop the approaches they could be compared to more detailed simulation models, such as Pelmo or LeachXS.

## Inhalt

Zusammenfassung.....	2
1. Einleitung .....	5
2. Arbeitsprogramm.....	6
3. Daten und Modellierung .....	7
3.1. Datenübersicht.....	7
3.2. Standorte .....	8
3.3. Transport.....	10
3.4. Berechnete Bauteile .....	13
3.5. Terbutryn-Emission durch Schlagregen.....	14
3.6. Mecoprop und PAK's im Dachabfluss.....	16
3.7. Lineare Sorptionsparameter .....	17
3.8. Abbau von Terbutryn, Mecoprop und PAK's.....	18
3.9. Kupfer Emission.....	19
3.10. Kupfer Pedotransferfunktion für die Freundlich Isotherme.....	20
4. Ergebnisse .....	23
4.1. Terbutryn.....	23
4.2. Mecoprop und PAK's .....	33
4.3. Kupfer .....	36
5. Diskussion und Ausblick .....	39
5.1. Terbutryn.....	40
5.2. Mecoprop und PAK's .....	40
5.3. Kupfer .....	41
5.4. Ausblick.....	41
Literatur .....	42

## 1. Einleitung

In dieser Arbeit wird die Versickerung von mehreren Substanzen simuliert, die aus berechneten Bauteilen ausgewaschen werden und dadurch an die Bodenoberfläche gelangen und im Boden versickern können. Dabei kommt es darauf an, bei welchen Substanzen und an welchen Standorten im Oberboden und am Ort der Beurteilung in 1 m Tiefe mit einer Grenzwertüberschreitung und somit mit einem Risiko zur Boden- oder Grundwasserverschmutzung zu rechnen ist. Weil die dazu notwendigen Messungen aufwändig und teuer sind, soll auf Schätzverfahren (Pedotransferfunktionen oder substratunabhängige Sorptionsisothermen, Utermann et al. 2005, bzw. andere Schätzverfahren, Susset & Leuchs 2008) zurückgegriffen werden, um die Eingabedaten für die Simulation zu erhalten. Das Ziel dieses Projektes ist es, prototypische Simulationen durchzuführen, um die Anwendbarkeit und den Nutzen der Schätzverfahren einschätzen zu können.

Die Modellierung der Stoffflüsse aus berechneten Bauteilen in die Umweltkompartimente Boden und Grundwasser erfordert zwei Teile. Zum einen müssen die an berechneten Bauteilen ausgelösten Emissionen bestimmt werden. Hierbei werden vereinfachende Annahmen getroffen, die auf Erfahrungen mit dem COMLEAM Modell basieren, das den Schlagregen nach der ISO-Norm und daraus die Emission von Bioziden berechnet.

Zum anderen muss die Verlagerung der Substanzen im Boden bestimmt werden. Die Emissionen aus den berechneten Bauteilen bilden die obere Randbedingung für den Stofftransport, der mit Hilfe der Konvektions-Dispensionsgleichung und vereinfachenden Annahmen berechnet wird. Die wichtigste und auch in umfangreicheren Modellierungen übliche Vereinfachung ist die Stationarität des eindimensionalen Wasserflusses (vgl. Bear 1979, Richter 1986, Streck 1993, Selim 2015, Utermann et al. 2005).

Kapitel 2 gibt eine Übersicht über das vereinbarte Arbeitsprogramm. In Kapitel 3 werden die verwendeten Eingabedaten und ihre Modellierung dargestellt. Nach der generellen Übersicht über die erforderlichen Daten (Kapitel 3.1) werden die bodenhydrologischen Eigenschaften der Standorte charakterisiert (Kapitel 3.2). Das Transportmodell und seine Parameter werden in Kapitel 3.3 beschrieben. Kapitel 3.4 gibt Aufschluss über die berechneten Bauteile.

Die Terbutryn-Emission wird durch Schlagregen gesteuert (Kapitel 3.5), während Mecoprop und PAK's sich im Dachabfluss befinden (Kapitel 3.6). Für die organischen Substanzen wird von einer linearen Sorptionsisotherme (Kapitel 3.7) und von einem Abbau 1. Ordnung (Kapitel 3.8) ausgegangen. Kapitel 3.9 beschreibt die Kupfer-Emission und im Kapitel 3.10 wird die Pedotransferfunktion für die Freundlich Isotherme erläutert.

Kapitel 4 enthält die Ergebnisse der Simulationen, getrennt für Terbutryn, Mecoprop und PAK's, sowie für Kupfer. In Kapitel 5 werden mögliche Schlussfolgerungen und die weiterhin offenen Fragen diskutiert.

## 2. Arbeitsprogramm

Die durchzuführenden Schritte waren:

### 1. Datenübersicht

Übersicht und Vergleich von Messungen zur Verlagerung von PAK's, Micropollutants und Schwermetallen im Boden, insbesondere Parameter der Freundlich-Isotherme.

### 2. Teststandorte

Auswahl von Teststandorten (Hamburg und Kremsmünster analog Pflanzenschutzmittelbeurteilung, ggf. noch 1-2 weitere Standorte) für Beispielrechnungen.

### 3. Freundlich-Parameter

Vorhersage der Freundlich-Parameter  $K_f$  und  $b$  mit der Pedotransferfunktion nach (Utermann et al. 2005) für die vorgesehenen Teststandorte. Dokumentation in einem Tabellenkalkulationsprogramm.

### 4. Hydrologische Daten

Abschätzen der für die Modellierung erforderlichen hydrologischen Daten (insbesondere der Feldkapazität).

### 5. Verlagerungstiefe

Berechnung der Tiefenprofile, Abschätzen der Verlagerungstiefe und dessen Unsicherheiten für die Testsubstanzen nach 10 und 50 Jahren an den ausgewählten Teststandorten durch vereinfachte und analytische Transport-Modellierung.

### 6. Auswertung, Diskussion, Interpretation

Auswertung, Diskussion und Interpretation der Übertragbarkeit der Ergebnisse auf Fälle, die bei der Gefährdungsabschätzung für die Auswaschung ausgewählter Substanzen aus berechneten Bauteile relevant sind.



### 3. Daten und Modellierung

#### 3.1. Datenübersicht

Um die Menge und die Konzentration der Substanzen am Ort der Beurteilung abschätzen zu können, müssen Daten über die Standorte, Substanzen, berechnete Bauteile und die Zeit vorgegeben werden. Die anderen Daten und die simulierten Prozesse sind abhängig von dieser Auswahl und ergeben sich daraus (vgl. Abbildung 1). Die Simulation erfolgt generell über 50 Jahre mit einer gesonderten Ausgabe am Ende der ersten 10-Jahresperiode.

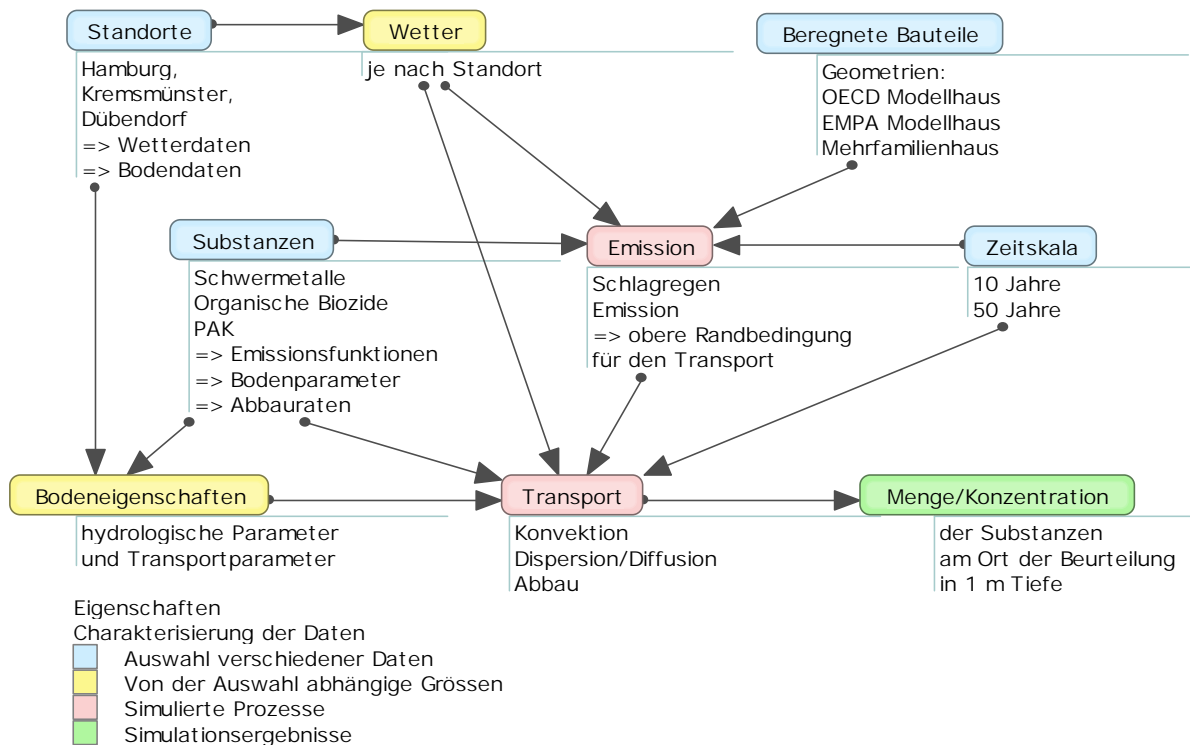


Abbildung 1 Abhängigkeit der Simulationsergebnisse von den Eingabedaten: Für jede Simulation muss ein Standort, eine Hausgeometrie, eine Substanz und die Zeitskala festgelegt werden.

Die Abschätzung des Risikos einer Boden- bzw. Grundwasserbelastung durch aus berechneten Bauteilen ausgewaschene Substanzen erfordert die **Simulation von zwei Prozessen**:

- **Emission** von Substanzen aus berechneten Bauteilen (Leaching Model). Aus den Erfahrungen mit dem Modell COMLEAM der Hochschule für Technik Rapperswil werden vereinfachende Annahmen abgeleitet.
- **Transport** von Substanzen im Boden (Transport Model). Zur Berechnung des Transports einer Substanz im Boden wird die Konvektions-Dispersionsgleichung verwendet.

Die Emission aus den berechneten Bauteilen und der Transport durch den Boden soll für 3 Gruppen von **Substanzen** berechnet werden: a) organische Biozide, b) Schwermetalle und c) PAK. In jeder Gruppe werden exemplarisch spezielle Substanzen ausgewählt, die praktisch relevant sind und ein spezielles Verhalten in ihrer Gruppe repräsentieren.

Für die Gruppe der organischen Biozide werden **Terbutryn** und **Mecoprop** ausgewählt. Bei den Schwermetallen wird die Berechnung für **Kupfer** durchgeführt. In der dritten Gruppe wird versucht summarisch das Verhalten von 15 der 16 **PAKs** zu charakterisieren, die von der US-EPA als die wichtigsten angesehen werden (vgl. Susset & Leuchs 2008, Susset & Maier 2011).

Die gewählten Substanzen lassen sich durch 4 Eigenschaften charakterisieren, die ihr Verhalten im Boden bestimmen (Tabelle 1): den Ort der Emission (Fassade/Dach), die Emissionsdynamik (abnehmende Funktion/konstant), die Höhe der Sorption (linear/Freundlich) und die Geschwindigkeit des Abbaus.

Tabelle 1: Simulationsrelevante Charakteristika der gewählten Substanzen

	Terbutryn	Mecoprop	PAK	Kupfer
Ort der Emission	Fassade	Dach	Dach	Fassade/ Dach
Emissionsdynamik	Funktional	Konstant	Konstant	Konstant
Sorption	Linear, mittel	Linear, tief	Linear, sehr hoch	Freundlich, hoch
Abbau	Mittel	Schnell	Langsam	Kein

### 3.2. Standorte

Die verschiedenen Standorte repräsentieren verschiedene Wetter-Situationen und verschiedene Bodeneigenschaften. Der Focus-Studie (Boesten et al., 2014) wurden die Daten zu den Standorten Hamburg (D) und Kremsmünster (AT) entnommen. Als zusätzlicher Vergleichsstandort wurde der Standort des Modellhauses Dübendorf herangezogen.

Die Standortdaten bestimmen die nachfolgenden Simulationen in drei Bereichen:

- Wetterdaten (vgl. Tabelle 2):
  - o Niederschlag, Windgeschwindigkeit und Windrichtung bestimmen den Schlagregen und damit die Emissionsmenge der Substanzen
  - o Der Gesamtabfluss (Niederschlag minus Evapotranspiration) bestimmt über den Darcy-Fluss und die Porenwassergeschwindigkeit die für die Transportsimulationen angenommene Sickerwasserrate
- Bodeneigenschaften (vgl. Tabelle 3), die die substanzunabhängigen Parameter der Transportsimulationen beeinflussen:
  - o Durch die Angabe von van Genuchten / Mualem – Parametern der Retentionsfunktion kann die Feldkapazität berechnet werden.
  - o Der als über die Tiefe als konstant angenommene Wassergehalt bestimmt gemeinsam mit dem Darcy-Fluss die Porenwassergeschwindigkeit.
  - o Die Dispersivität bestimmt gemeinsam mit der Porenwassergeschwindigkeit die Dispersion.
- Bodeneigenschaften (vgl. Tabelle 4 und Tabelle 5), die als Eingabedaten für die Pedotransferfunktionen die substanzabhängigen Parameter der Transportsimulationen beeinflussen:
  - o Hauptsächlich der pH-Wert, der Tongehalt und der Gehalt an organischem Kohlenstoff.

Tabelle 2: Mittlerer jährlicher Niederschlag und Gesamtabfluss (Sickerwasserrate) der berücksichtigten Standorte

Standort	Mittlerer jährlicher Niederschlag [L/m <sup>2</sup> ]	Mittlerer jährlicher Gesamtabfluss <sup>a)</sup> [L/m <sup>2</sup> ]
Focus-Standort Hamburg	789	317
Focus-Standort Kremsmünster	885	329
Vergleichsstandort Dübendorf	995	402

<sup>a)</sup> Berechnet nach Hennings (1994). Zum Vergleich: Der Range der Sickerwasserraten bei Susset und Leuchs (2008a) beträgt 300-800 [L/m<sup>2</sup>] und bei Susset und Maier (2011) beträgt er 100 bis 600 [L/m<sup>2</sup>] (zit nach Susset et al. (2011), Seite 130).

Tabelle 3: Die vom Standort abhängigen hydrodynamischen Eigenschaften der Transportsimulationen

Standorte	Wassergehalt	Darcy-Fluss	Dispersivität	Porenwassergeschwindigkeit	Dispersionskoeffizient
	[cm <sup>3</sup> / cm <sup>3</sup> ]	[mm/Tag]	[cm]	[cm/h]	[cm <sup>2</sup> /h]
Hamburg	0.24 <sup>a)</sup>	0.87	10	0.015	0.15
Kremsmünster	0.38 <sup>a)</sup>	0.9	10	0.00987	0.0987
Dübendorf	0.31 <sup>b)</sup>	1.1	10	0.01478	0.1478

<sup>a)</sup> Da der Wassergehalt für die Simulationen nicht kritisch ist (Utermann et al. 2005) wurde hier der mit der Horizontbreite gewichtete Mittelwert der Feldkapazität eingesetzt.

<sup>b)</sup> Annahme, so dass die Feldkapazität in Dübendorf dem Mittel aus den Feldkapazitäten der anderen Standorte entspricht.

Tabelle 4: Bodenparameter des Standortes Hamburg\* (Boesten et al. 2014), aus denen die Eingabedaten für die Pedotransferfunktionen berechnet wurden (Utermann et al. 2005).

Horizont	Tiefe (cm)	pH H <sub>2</sub> O**	Textur (µm)			OM (%)	C <sub>org</sub> (%)	LD (g cm <sup>-3</sup> )
			<2	2-50	>50			
Ap	0-30	6.4	7.2	24.5	68.3	2.6	1.5	1.5
Bvl	30-60	5.6	6.7	26.3	67	1.7	1	1.6
Bvll	60-75	5.6	0.9	2.9	96.2	0.34	0.2	1.56
Bv/Cv	75-90	5.7	0	0.2	99.8	0	0	1.62
Cv	90-100	5.5	0	0	100	0	0	1.6
Cv	100-200	5.5	0	0	100	0	0	1.6

\* Grundwasserflurabstand 2 m.

\*\* Boden-Lösungsverhältnis 1:2.5. Für die Berechnungen wird angenommen, dass der pH(CaCl<sub>2</sub>) im Mittel etwa um 0.8 tiefer liegt, als der pH(H<sub>2</sub>O) (Utermann 2005, Tabelle 3.1-2).

Tabelle 5: Bodenparameter des Standortes Kremsmünster\* (Boesten et al. 2014), aus denen die Eingabedaten für die Pedotransferfunktionen berechnet wurden (Utermann et al. 2005).

Horizont	Tiefe (cm)	pH H <sub>2</sub> O**	Textur (µm)			OM (%)	C <sub>org</sub> (%)	LD (g cm <sup>-3</sup> )
			<2	2-50	>50			
Ap	0-30	7.7	14	50	36	3.6	2.1	1.41
Bwg	30-50	7	25	50	25	1	0.6	1.42
Bwg	50-60	7.1	27	44	29	0.5	0.3	1.43
Bwg	60-100	7.1	27	44	29	0.5	0.3	1.43
Bwg	100-200	7.1	27	44	29	0.5	0.3	1.43

\* Grundwasserspiegel bei etwa 1.6 m. Bei der Bepflanzung mit Äpfeln oder Wein muss ein tieferer Grundwasserspiegel angenommen werden. In etwa 3.3 m Tiefe liegt eine sehr undurchlässige Schicht. Die Bodenparameter aus der Schicht zwischen 60 und 100 cm wurden für die Schicht unterhalb von 1 m übernommen.

\*\* Boden-Lösungsverhältnis 1:2.5. Für die Berechnungen wird angenommen, dass der pH(CaCl<sub>2</sub>) im Mittel etwa um 0.8 tiefer liegt, als der pH(H<sub>2</sub>O) (Utermann 2005, Tabelle 3.1-2).

### 3.3. Transport

Zur Berechnung des Transports von Substanzen im Boden (Transport Model) wird die Konvektions-Dispersionsgleichung verwendet (s. z. B. Bear, 1979, FOCUS, 2000, Selim 2015). Hierbei werden der Wasserfluss, der Wassergehalt sowie der Dispersionskoeffizient als über die Tiefe konstant vorausgesetzt. Die Eingangs- und Ausgangsgrößen des Transportmodells sind in Tabelle 6 dargestellt.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \cdot \frac{\partial C}{\partial z}$$

Hierbei ist  $C$  die Konzentration der Substanz in der wässrigen Phase  $\left[ \frac{\mu\text{g}}{\text{L}} \right]$ ,  $t$  die Zeit  $[\text{h}]$ ,

$D$  der Dispersionskoeffizient  $\left[ \frac{\text{cm}^2}{\text{h}} \right]$ ,  $z$  die Tiefe (als nach unten positive Raumkoordinate)

$[\text{cm}]$ , und  $v$  der Porenwasserfluss  $\left[ \frac{\text{cm}}{\text{h}} \right]$ , der sich aus dem Wasserfluss  $q \left[ \frac{\text{cm}}{\text{h}} \right]$  und dem

volumetrischen Wassergehalt  $\theta \left[ \frac{\text{cm}^3}{\text{cm}^3} \right]$  berechnet:  $v = \frac{q}{\theta}$ .

Als obere Randbedingung wird eine von-Neumann-Randbedingung angenommen, bei der ein konstanter Wasserfluss mit einer vorgegebenen Konzentration in das Bodenprofil fließt. Die vorgegebenen Konzentrationen sind für Terbutryn variabel und für Mecoprop, PAK und Kupfer konstant. Als untere Randbedingung wird ein konstanter Konzentrationsgradient angenommen.

Tabelle 6: Eingangsgrößen und Ausgangsgrößen für das Transport Model

Eingangsgröße	Einheit	Name
$t_{anf}, t_{end}$	[h]	Anfangs- und Endzeitpunkt der Simulation
$L$	[cm]	Länge der Bodensäule
$\theta$	[cm <sup>3</sup> /cm <sup>3</sup> ]	Wassergehalt im Boden (konstant)
$q$	[cm/h]	Wasserfluss (Darcy-Fluss)
$v$	[cm/h]	Porenwassergeschwindigkeit $v = q / \theta$
$\rho$	[g/cm <sup>3</sup> ]	Lagerungsdichte
$c_q(t)$	[µg/L]	Konzentration im Wasserzulauf (obere Randbedingung)
$\lambda$	[cm]	Dispersivität
$D$	[cm <sup>2</sup> /h]	Dispersionskoeffizient
$K_d$	[L/kg]	Linearer Sorptionsparameter
$K_f$	[µg <sup>1-b</sup> L <sup>b</sup> kg <sup>-1</sup> ]	Freundlich Verteilungskoeffizient
$b$	[-]	Freundlich Exponent
Ausgangsgröße	Einheit	Name
$c(z, t)$	[µg/L]	Konzentration in der Bodenlösung

Weil die Sorption der Substanzen an die Bodenmatrix die Verlagerung stark verzögern kann, soll in der Konvektions-Dispersionsgleichung die Wechselwirkung mit der Bodenmatrix als lineare oder als Freundlich-Sorptionsisotherme berücksichtigt werden.

Dazu wird die Konvektions-Dispersionsgleichung erweitert um den Sorptionsterm

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho}{\theta} \frac{\partial S}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \cdot \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Gl 1}$$

mit der Lagerungsdichte  $\rho \left[ \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} \right]$ , dem volumetrischen Wassergehalt  $\theta \left[ \frac{\text{cm}^3}{\text{cm}^3} \right]$  und dem sorbierten Gewichtsanteil  $S \left[ \frac{\mu\text{g}}{\text{kg}} \right]$ .

Bei der linearen Sorptionsisotherme

$$S = K_d \cdot C \quad \text{Gl 2}$$

mit dem Sorptionsparameter  $K_d \left[ \frac{L}{kg} \right]$  ergibt sich dann die Gleichung

$$R \cdot \frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \cdot \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Gl 3}$$

mit dem dimensionslosen Retardationsfaktor

$$R = 1 + \frac{\rho}{\theta} K_d$$

Bei der Freundlich-Sorptionsisotherme

$$S = K_f \cdot C^b \quad \text{Gl 4}$$

mit dem Verteilungskoeffizient  $K_f \left[ \frac{\mu g^{1-b} L^b}{kg} \right]$  ergibt sich dann formal dieselbe Gleichung

$$R \cdot \frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \cdot \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Gl 5}$$

allerdings mit dem Retardationsfaktor

$$R = 1 + \frac{\rho}{\theta} \cdot K_f \cdot b \cdot C^{b-1}$$

Der Dispersionskoeffizient  $D \left[ \frac{cm^2}{h} \right]$  wird jeweils geschätzt durch  $D = \lambda \cdot v$ .

Inoue et al. (2013) haben die Dispersivität  $\lambda$  für ungesättigte Böden untersucht und in Feld und Laborversuchen Werte im Bereich von 1 bis 4 cm angegeben.

Susset und Maier (2011) geben für den Quotienten  $\lambda / x$  aus der Dispersivität und der Länge der Sickerstrecke  $x$  nach eine Literaturrecherche einen Bereich von 0.028 bis 0.2 an. Setzt man für die Sickerstrecke 100 cm, dann ergibt sich eine Dispersivität zwischen 2.8 cm und 20 cm.

Utermann et al. (2005) bestimmen den Dispersionskoeffizienten und die Porenwassergeschwindigkeit für das konvektiv-disperse Modell und für das parallele Bodensäulen-Modell. Zum Vergleich ergeben sich dabei Dispersivitäten  $\lambda = D / v$  im Bereich von 4 cm bis 15 cm (konvektiv-disperses Modell) bzw. 0.75 cm bis 15 cm (parallele Bodensäule-Modell).

In den FOCUS Modellen (Boesten et al., 2014) wird eine Dispersivität von 5 cm verwendet. Es wird allerdings empfohlen, ein geschichtetes Modell zu verwenden, um die Dispersivität im Oberboden besser anzunähern.

Um den Bereich der möglichen Dispersivitäten abzudecken, werden Simulationen mit einer Dispersivität von 1 cm und von 10 cm durchgeführt.

### 3.4. Berechnete Bauteile

Die Emission aus einem vertikalen Bauteil erfolgt durch Auswaschung durch *Schlagregen* (Wind Driven Rain). Die Menge des entstehenden Schlagregens hängt ab von der Höhe und der Breite bzw. von der Flächengrösse des Bauteils und von dessen Exposition. Die genaue Berechnung des Schlagregens ist eine aufwändige Aufgabe und wird durch die ISO-Norm 15927:3 vereinfacht.

In den Berechnungen dieser Studie werden folgende berechneten Flächen unterschieden:

- **OECD Modellhaus:** Definition der Geometrie und der Emissionen entsprechend dem OECD Szenario Dokument (OECD 2013). Hierbei wird eine berechnete Fassadenfläche von  $A_B=125 \text{ m}^2$  an einem eingeschossigen Haus (Höhe 2.5 m) betrachtet. Zur Berechnung wird vorgeschrieben, dass der Schlagregen unabhängig von der Windrichtung gleich dem Niederschlag gesetzt wird. Die Fläche, in der der Fassadenabfluss versickert, umfasst 0.1 m um das Haus herum. Sie beträgt  $A_V=50*0.1=5 \text{ m}^2$ . In OECD (2013) weist darauf hin, dass auf EU Ebene mit einem Abstand von 0.5 m um das Haus herum gerechnet wird und somit die Versickerungsfläche  $A_V=50*0.5=25 \text{ m}^2$  beträgt.
- **Mehrfamilienhaus:** Typisches Mehrfamilienhaus in Zürich mit 5 Etagen und zwei Eingangsbereichen. Für eine typische Fassade kann eine Höhe von 14 m (Flachdach ohne Dachüberstand) und eine Länge von 30 m angenommen werden. Die Menge des entstehenden Schlagregens hängt u.a. vom Winkel ab, den die Windrichtung mit der Ausrichtung der Fassaden bildet. So entsteht – je nach Ausrichtung einer Fassade und der vorherrschenden Windrichtung – eine andere Menge an Schlagregen pro Jahr. Typische Schlagregenmengen je Fassadenrichtung können 10%, 5% oder 2% des Jahresniederschlags ausmachen.
- **Dachflächen:** Dachflächen werden als horizontal angenommen und betragen für das OECD-Modellhaus  $A_D=7.5*17.5=131.25 \text{ m}^2$  und für das Mehrfamilienhaus  $A_D=11.2*29.2=327 \text{ m}^2$ .

Tabelle 7: Grösse des OECD Modelhauses.

OECD Modellhaus					
Fassadenfläche	$A_B$	125	$\text{m}^2$	125	$\text{m}^2$
Höhe		2.5	m	2.5	m
Fassadenlänge		50	m	50	m
Versickerungsabstand		0.1	m	0.5	m
Versickerungsfläche	$A_V$	5	$\text{m}^2$	25	$\text{m}^2$
Dachfläche	$A_D$	131.25	$\text{m}^2$	131.25	$\text{m}^2$

Die berechneten Flächen wurden aus folgenden Gründen in die Berechnungen aufgenommen:

- Das OECD-Modellhaus wird nach der Biozidrichtlinie zur Berechnung von Emissionen aus Fassaden mit einer Holz-Oberfläche verwendet. Das OECD-Modellhaus wurde als begründete Worst-Case-Annahme in die Berechnungen einbezogen.
- Die Fassaden eines typischen Mehrfamilienhauses wurden als ein Teil einer Reihe von Häusern in Zürich bestimmt. Die angenommenen Schlagregenmengen zeigen den Einfluss der Windrichtung auf die Emissionsmenge.

### 3.5. Terbutryn-Emission durch Schlagregen

Biozide, die zum Schutz vor Pilzen, Algen, u.a. an berechneten Bauteilen eingesetzt werden, wurden in den letzten Jahren experimentell im Hinblick auf ihre Auswaschung aus berechneten Bauteilen untersucht. Burkhardt et al. (2012) untersuchten an den Fassaden eines Modellhauses die Emissionen von Terbutryn, Diuron, Irgarol, Isoproturon, OIT und DCOIT. Das Ergebnis ihrer Untersuchungen sind nichtlineare Emissionsfunktionen, die die kumulative Emissionsmenge der einzelnen Substanzen in Abhängigkeit von dem kumulativen Schlagregen gegen die Fassaden beschreiben.

Diese Daten wurden jetzt mit Hilfe der Funktion

$$E(t) = a \cdot \ln(1 + b \cdot r_{SR}(t)) \quad \text{Gl. 1}$$

angepasst, die die kumulative Emission einer Fassade in Abhängigkeit von der kumulativen Schlagregenmenge an diese Fassade beschreibt (s. Abbildung 1). Die Parameter  $a$  und  $b$  sind hier empirische Anpassungsparameter. Der Parameter  $a$  bestimmt, welche Menge einer Substanz emittiert wird (Einheit:  $\text{mg}/\text{m}^2$ ), und der Parameter  $b$  quantifiziert, wie schnell die Emission – relativ zur Schlagregenmenge – stattfindet (Einheit:  $1/\text{mm}$ ).

Die Annahme einer Emissionsfunktion ist notwendig für die Extrapolation der Emissionen auf grössere Zeiträume. Häufig wird eine zweifach loglineare Emissionsfunktion in Abhängigkeit von der Schlagregendauer vorgeschlagen. Sie hat im Bereich kleiner Schlagregenmengen höhere Emissionen als im Bereich, in dem die kumulierte Schlagregenmenge (bzw. Schlagregendauer) grösser ist. Sie hat bei der Extrapolation eine höhere kumulative Emission als die logarithmische Funktion und kommt daher dem Ziel weniger nahe, einen Maximalwert nicht zu überschreiten, der durch die applizierte Menge einer Substanz gegeben ist. Auch die hier verwendete Logarithmusfunktion kann theoretisch unendlich gross werden. Weil die Logarithmusfunktion aber stark abflacht, ist dies für die in Betracht gezogenen Zeiträume (bis 200 Jahre) nicht relevant.

Die kumulierte Schlagregenmenge kann für grosse Zeiträume (10 bis 50 Jahre) als linear angenommen werden. Für die Berechnung der oberen Randbedingung eines Bodenmodells über diesen Zeitraum kann daher eine mittlere Schlagregenmenge pro Jahr  $r_{SR,m}$  bestimmt werden. Der Verlauf des Schlagregens wird daher vereinfachend berechnet mit

$$r_{SR}(t) = t \cdot r_{SR,m}$$

Es ist aber zu beachten, dass diese Annahme der Linearität in kleineren Zeiträumen nicht gerechtfertigt ist, weil zwischenzeitliche Spitzen („peaks“) herausgemittelt werden. Dennoch kann – wenn man Zeiträume von 10 Jahren und mehr betrachtet – die Emission durch eine Langzeitberechnung vereinfacht werden:

$$E(t) = a \cdot \ln(1 + b \cdot r_{SR}(t)) = a \cdot \ln(1 + b \cdot r_{SR,m} \cdot t) \quad \text{Gl 6}$$

Die mit dieser Langzeitberechnung ermittelten Werte stimmen mit den mit COMLEAMD berechneten Werten sehr gut überein, solange die mittlere Schlagregenmenge pro Jahr  $r_{SR,m}$  ausreichend genau bestimmt ist. Die Gleichung Gl. 6 kann daher bei gegebenen Parametern  $a$  und  $b$  daher direkt im Bodentransportmodell als obere Randbedingung verwendet werden, wenn das Wetter am Standort und die Hausgeometrie entsprechend berücksichtigt werden.

Der Massenfluss ergibt sich aus der Ableitung der Emissionsfunktion:

$$\frac{dE(t)}{dt} = \frac{a \cdot b \cdot r_{SR,m}}{1 + b \cdot r_{SR,m} \cdot t} \left[ \frac{\text{mg}}{\text{m}^2 \cdot \text{h}} \right]$$



Der Massenfluss (Masse pro Zeiteinheit) zu einem Zeitpunkt  $t$  von einem berechneten Bauteil (Fassade) mit der Fläche  $A_B$  ist dann

$$m_q(t) = \frac{dE(t)}{dt} \cdot A_B = \frac{a \cdot b \cdot r_{SR,m}}{1 + b \cdot r_{SR,m} \cdot t} \cdot A_B \left[ \frac{mg}{h} \right]$$

Daraus lässt sich die Konzentration der Substanz im Zufluss  $q_z$  des Bodenmodells berechnen. Es wird angenommen, dass die gesamte Substanzmasse versickert auf der Versickerungsfläche  $A_V$ , d.h. in dem Wasseranteil, der nicht versickert (z.B. durch Evapotranspiration), befindet sich kein Anteil der Substanz. Die Konzentration im Zufluss  $q_z$  des Bodenmodells ist dann

$$c_q(t) = \frac{m_q(t)}{A_V \cdot q_z} = \frac{a \cdot b \cdot r_{SR,m}}{1 + b \cdot r_{SR,m} \cdot t} \cdot \frac{A_B}{A_V \cdot q_z} \left[ \frac{mg}{m^2 \cdot mm} = \frac{mg}{l} \right]$$

Hierbei wird vernachlässigt, dass sich der Zufluss  $q_z$  des Bodenmodells um die Schlagregenmenge erhöht. Dies ist als konservative Annahme gerechtfertigt, weil die Schlagregenmenge nur einen kleinen Teil des Niederschlags ausmacht und eine Erhöhung des Zuflusses nur zu einer leichten Verdünnung in der Lösung führen würde. Beim OECD Modellhaus erfolgt die Annahme, dass der Schlagregen gleich dem Niederschlag sei, als konservative Worst-Case Annahme. Würde dieser Schlagregen hier berücksichtigt, entstünde eine für den Boden unrealistische Verdoppelung der Versickerungsrate.

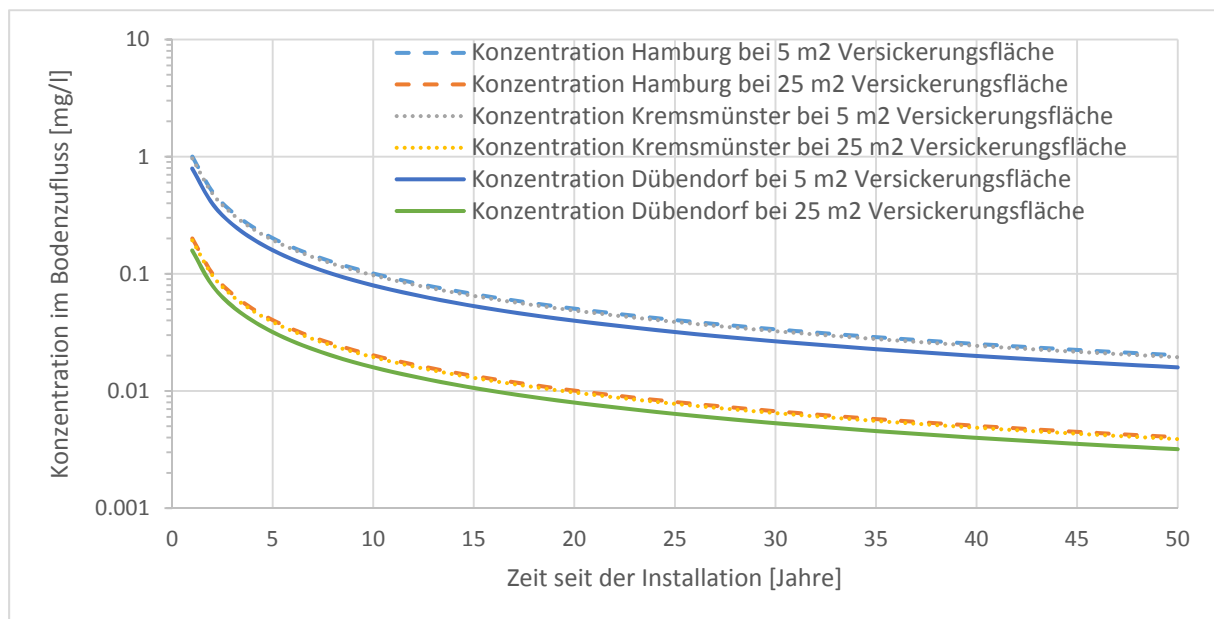


Abbildung 2: Konzentration von Terbutryn im Wasserzufluss zum Boden an den Standorten Hamburg, Kremsmünster und Dübendorf mit 2 Versickerungsflächen um das OECD-Modellhaus.

Für Terbutryn wurden in Dübendorf an einem Putz (ohne Farbe)  $a = 12.8 \text{ mg m}^{-2}$  und  $b = 0.165 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1}$  ermittelt. Nach 2 Jahren ergibt sich am Standort Hamburg (vgl. Tabelle 2) mit einer berechneten Fläche von  $125 \text{ m}^2$  bei  $5 \text{ m}^2$  Versickerungsfläche am OECD Modellhaus:

$$c_q(2) = \frac{12.8 \cdot 0.165 \cdot 789}{1 + 0.165 \cdot 789 \cdot 2} \cdot \frac{125}{5 \cdot 317} = 0.5 \frac{mg}{L}$$

### 3.6. Mecoprop und PAK's im Dachabfluss

Das Verhalten von Mecoprop und von den PAK's unterscheidet sich von der Terbutryn-Dynamik, weil Mecoprop und die PAK's auf Dächern angewendet werden und daher dem Niederschlag und nicht nur dem Schlagregen ausgesetzt sind. Die genaue Auswaschungsdynamik ist Gegenstand gegenwärtiger Untersuchungen. Bis die Ergebnisse vorliegen gehen wir für Mecoprop von einer Konzentration von  $c_{Mecoprop} = 4 \mu\text{g/L}$  im Dachabfluss aus (Bucheli et al. 1998).

Um eine einfache Abschätzung für die Versickerung des Dachabflusses zu erhalten, werden folgende Annahmen getroffen:

- Die Dachfläche ist begrünt: Dies lässt die Folgerung, dass die Versickerungsrate im Boden (Niederschlag minus Evapotranspiration bei Vernachlässigung lateraler Flüsse) gleich der Versickerungsrate auf dem Gründach ist, nicht ganz unrealistisch erscheinen. Nicht begründete Dächer werden durch die fehlende Transpiration einen höheren Dachabfluss besitzen.
- Der Dachabfluss  $Q_D$  ist die Wassermenge, die vom Dach über ein oder mehrere Fallrohre auf die Versickerungsfläche abgeleitet wird:  $Q_D = A_D \cdot q_z$
- Auf der Versickerungsfläche wird also die Wassermenge  $q_V$  versickert, die sich aus der Summe vom Dachabfluss und dem sonst auftretenden Abfluss ergibt:

$$Q_V = A_D \cdot q_z + A_V \cdot q_z = (A_D + A_V) \cdot q_z$$

- Wenn die Dachfläche viel grösser ist als die Versickerungsfläche (OECD Modellhaus:  $A_D = 131.25 \text{ m}^2$ ,  $A_V = 25 \text{ m}^2$ ), dann besteht die Gefahr, dass die Infiltrationskapazität des Bodens überschritten wird. Daher wird hier davon ausgegangen, dass die Versickerungsfläche vergrössert wird (z.B. durch Drainage), und zwar so, dass die Versickerungsfläche (mindestens) so gross ausgelegt wird wie die Dachfläche  $A_V = x \cdot A_D$  mit  $x = 1$ . So wird im Bereich der Versickerungsfläche die Sickerate verdoppelt

$$q_V = Q_V / A_V = 2 \cdot q_z \text{ und die Konzentration aus dem Dachabfluss } c_q = c_{Mecoprop} \cdot \frac{1}{x + 1}$$

halbiert. Es wird davon ausgegangen, dass die drainierte Versickerungsfläche eher grösser ausgelegt wird, so dass der Faktor 2 eine Obergrenze für die Sickerate darstellt und  $c_q = 0.5 \cdot c_{Mecoprop}$  eine konservative Schätzung ist.

Zusammengefasst wird bei den Mecoprop Simulationen davon ausgegangen, dass die Sickerate  $q_V = 2 \cdot q_z$  ist und die Konzentration im Bodenzufluss  $c_q = 0.5 \cdot c_{Mecoprop}$  ist.

Die obere Randbedingung für die PAK's wird aufgrund ihrer Löslichkeit abgeschätzt. Vereinfachend wird angenommen, dass das Verhältnis der Konzentrationen im Zufluss zum Boden von Mecoprop und den PAK's proportional ist zum Verhältnis ihrer Löslichkeiten. Aus der Löslichkeit von Mecoprop (620 mg/l) und den Löslichkeiten von Naphtalin (30 mg/l) und Acenaphthylen (3.9 mg/l) ergibt sich eine geschätzte PAK Konzentration im Dachabfluss von 0.19  $\mu\text{g/l}$  (Naphtalin) bzw. 0.025  $\mu\text{g/l}$  (Acenaphthylen).

Mit denselben Annahmen wie bei Mecoprop ergibt sich auch hier eine Sickerate  $q_V = 2 \cdot q_z$  und die Konzentration im Bodenzufluss  $c_q = 0.5 \cdot c_{Naphtalin}$  bzw.  $c_q = 0.5 \cdot c_{Acenaphthylen}$ .

### 3.7. Lineare Sorptionsparameter

Bei der Entwicklung und Überprüfung von Modellen für den Transport und die Sorption von Terbutryn, Mecoprop und den PAK's im Boden wurde jeweils eine lineare Sorptionsisotherme (Gl 2) gefunden (vgl. z.B. Karickhoff et al. (1979), Kasser (2014), Wittmer et al. (2011)). Eine pragmatische Möglichkeit, die Sorptionskonstante zu schätzen, besteht durch die Abhängigkeit vom Anteil des organischen Kohlenstoffs:

$$K_d = C_{org} \cdot K_{oc}$$

Zur Berechnung der Sorptionsparameter wurde auf Karickhoff et al. (1979) zurückgegriffen:

$$\log K_{oc} = \log K_{ow} - 0.21$$

Der dimensionslose Octanol-Wasser-Verteilungskoeffizient  $\log(K_{ow})$  wird für Terbutryn bei Kasser (2014) wie in der Gestis Stoffdatenbank<sup>1</sup> als 3.74 und bei Wittmer et al. (2011) als 3.65 angegeben. Nach Kasser (2014) bzw. Karickhoff et al. (1979) ergibt sich dann für Terbutryn  $\log K_{oc} = 3.53$  [log(L/kg)]. Strawn et al. (2015) setzen (ohne Quellenangabe)  $K_{oc} = 0.35 \cdot K_{ow}$ . Dadurch würde der Wert von  $K_{oc}$  um den Faktor 0.57 kleiner.

Die Schätzung des Verteilungskoeffizienten  $K_d$  erfolgt abhängig vom Boden durch

$$K_d = K_{oc} \cdot f_{oc}$$

Wobei der Faktor  $f_{oc}$  den Masseanteil des organischen Kohlenstoffs bedeutet ( $f_{oc} = TOC / 100$ ), im Unterboden am Standort Hamburg ist  $f_{oc} = 0.001$  und daher  $K_d = 10^{3.53} \cdot 0.001 \approx 3.4$ , im Unterboden am Standort Kremsmünster ist  $f_{oc} = 0.004$  und somit  $K_d = 10^{3.53} \cdot 0.004 \approx 13.6$ .

Tettenborn und Hillenbrand (2014) geben für  $K_{oc}$  den auch vom USDA ARS genannten Range von 800 bis 11660 L/kg wieder. Aus dem geometrischen Mittel davon ergibt sich für Hamburg  $K_d \approx 3.05$  und für Kremsmünster  $K_d \approx 12.2$  in guter Übereinstimmung mit den oben berechneten Werten.

Für Mecoprop wird von der UK Environment Agency ein Wert  $K_{oc} = 68$  L/kg angegeben (Thrasher et al., 2004). Das Pesticide Handbook gibt den Range von 12 bis 25 L/kg an (geometrisches Mittel  $K_{oc} = 17$  L/kg). Folgt man Wittmer et al. mit  $K_{ow} = 0.1$  und dem Ansatz von Karickhoff (1979), dann ergibt sich  $K_{oc} = 0.78$  L/kg, wobei der Ansatz von Karickhoff (1979) als ungeeignet für polare Substanzen gilt. Weil die Sorptionswerte sehr tief sind, wird für Mecoprop der von der UK Environment Agency angegebene Wert  $K_{oc} = 68$  L/kg verwendet und durch eine Simulation mit dem Mecoprop-Verteilungskoeffizient  $K_d = 0$  ergänzt.

Für PAK15 wird  $\log(K_{oc}) = 5.12$  log(L/kg) verwendet (Susset, 2011), hergeleitet nach Karickhoff (1979) aus  $\log(K_{ow}) = 5.33$ .

Für die Substanzen Terbutryn, Mecoprop und PAK15 bilden die Verteilungskoeffizienten  $K_d$  für den Oberboden (Hamburg: TOC=1.25%, Kremsmünster TOC=2.4%) und den Unterboden (Hamburg: TOC=0.1%, Kremsmünster TOC=0.4%) zusammen mit ihrem geometrischen Mittel den Range der Werte, die für die Simulationen verwendet werden.

---

<sup>1</sup> gestis.itrust.de

Tabelle 8: Bereiche der Transportparameter für Sorption und Abbau

Substanz	Standort	Sorption $K_d$ [L kg <sup>-1</sup> ]			Halbwertszeit $t_{1/2}$ [d]		
		Tief	Mittel	Hoch	Tief	Mittel	Hoch
Terbutryn	Hamburg	3.4	12	42	14	20	28
	Kremsmünster	14	31	71			
Mecoprop	Hamburg	0.068	0.24	0.85	7	10	13
	Kremsmünster	0.27	0.62	1.43			
PAK <sub>15</sub>	Hamburg	132	467	1650	1.95	70	164
	Kremsmünster	527	1208	2770			

### 3.8. Abbau von Terbutryn, Mecoprop und PAK's

Für die Halbwertszeiten  $t_{1/2}$  von Terbutryn im Boden wird ein Bereich von 14 bis 28 Tagen angegeben (Del Giudice, 2011; Avidov et al. 1985), der hier zusammen mit seinem geometrischen Mittel von 20 Tagen verwendet wird.

Abbauraten bzw. Halbwertszeiten werden für Mecoprop im Pesticide Manual (Tomlin, 2006) im Bereich von 7-13 Tagen angegeben. Die UK Environment Agency (Thrasher et al., 2004) weist darauf hin, dass Mecoprop chemisch stabil ist und hauptsächlich durch Biodegradation abgebaut wird. Als zusätzliche, konservative Variante wird daher hier im Untergrund kein Abbau angenommen.

Für die PAK15 wird in Susset und Maier (2011) ein grosser Bereich von Halbwertszeiten angegeben. Der „konservativen“ Schätzung von 70 Tagen nach Rügner et al. (2005, zit. n. Susset und Maier, 2011) werden Halbwertszeiten von 2-3 Tagen (berechnet mit Biowin3 bzw. Biowin4, zit. n. Susset und Maier, 2011) und Halbwertszeiten von 164 Tagen (Fraunhofer-Institut Schmallenberg, zit. n. Susset und Maier, 2011) gegenübergestellt. Dieser grosse Bereich wird auch in den verschiedenen Simulationen abgebildet.

Die im Modell verwendeten Abbauraten  $r_a$  [h<sup>-1</sup>] ergeben sich aus  $r_a = \ln(2) / t_{1/2}$ .

### 3.9. Kupfer Emission

Kupfer kommt in verschiedenen Substanzen bzw. Materialien vor, die an Bauteilen angewendet werden. Die Kupfer-Dächer und Kupfer-Fassaden – auf die hier fokussiert wird – erzeugen nur einen Teil der Kupfer-Emissionen von Bauteilen, die den Boden belasten können.

Das Umweltbundesamt (Hillenbrand et al. 2005) hat die bekannten Kupfer-Abschwemmraten von Dachflächen aus der Literatur zusammengefasst. Es ergaben sich Abschwemmraten zwischen  $1.1$  und  $1.8 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  und es wurde empfohlen von einer mittleren Abschwemmrate von  $1.3 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  auszugehen.

Es wird die Annahme getroffen, dass die Abschwemmrate, die sich für das Dach im Laufe der Zeit ergibt, anteilmässig aus dem jeweiligen Standortniederschlag abgeleitet werden kann. Mit anderen Worten: nachdem die Hälfte (das Doppelte) des Jahresniederschlags gefallen ist, wurde dadurch die Hälfte (das Doppelte) der im Jahr zu erwartenden Kupfer-Emission erreicht. Wenn diese Annahme für Kupfer-Dächer zutreffend ist, dann ist für die Betrachtung von Kupfer-Fassaden die Annahme naheliegend, dass die Kupfer-Emissionen an den Fassaden im gleichen Maße vom Schlagregen ausgelöst werden. Mit anderen Worten: Wenn der Schlagregen nur 10% des Niederschlags ausmacht, dann werden die Emissionen an einer Kupfer-Fassade auch nur 10% der Emissionen eines Kupfer-Daches ausmachen.

#### OECD Modellhaus

Zu den Annahmen eines OECD Modellhauses nach der Biozid-Richtlinie gehört, dass der gesamte Niederschlag auch als Schlagregen angesehen werden soll. Bei Annahme der empfohlenen Abschwemmrate von  $1.3 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  erfolgt an der Fassadenfläche des OECD Modellhauses von  $125 \text{ m}^2$  eine Abschwemmung von  $Q_{Cu} = 162.5 \text{ g}$  Kupfer in dem Jahr. Der Bereich der Kupfer-Emissionen bei Annahme von Abschwemmraten zwischen  $1.1$  und  $1.8 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (s.o.) umfasst  $137 \text{ g}$  bis  $225 \text{ g}$  für die Fassade insgesamt.

Bei einem Versickerungsabstand von  $0.1 \text{ m}$  beträgt die Versickerungsfläche, in der die Kupfer-Emissionen versickern,  $A_v = 5 \text{ m}^2$ . Weil die OECD (2013) auf EU Level einen Versickerungsabstand von  $0.5 \text{ m}$  angibt, wird für die Simulationen eine Versickerungsfläche  $A_v = 25 \text{ m}^2$  verwendet.

Die Versickerungsrate von Kupfer am OECD Modellhaus beträgt damit etwa  $32.5 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (bei  $A_v = 5 \text{ m}^2$ ) bzw.  $6.5 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (bei  $A_v = 25 \text{ m}^2$ ).

Die Konzentration im Wasserzufluss zum Boden am OECD Modellhaus hängt von dem Jahresniederschlag bzw. der Sickerwasserrate ab. Zusätzlich zu dem Jahresniederschlag, der direkt auf die Versickerungsfläche auftrifft, kommt noch der Abfluss durch den Schlagregen, der die Emissionen an den Fassaden auslöst. Diese Schlagregenmenge macht im Allgemeinen nur einen kleinen Teil des Jahresniederschlags aus, wirkt als geringe Verdünnung und wird vernachlässigt. Die Menge an Kupfer, die im Boden versickert, verteilt sich auf die Versickerungsfläche  $A_v$ . Die Konzentration im Wasserzufluss zum Boden am OECD Modellhaus mit den Wetterdaten von Hamburg berechnet sich dann beispielsweise als

$$c_q = \frac{Q_{Cu}}{A_v \cdot q_z} = \frac{162.5}{25 \cdot 317} \cdot 1000 = 20.5 \left[ \frac{\text{mg}}{\text{l}} \right]$$

Diese Konzentration geht als obere Randbedingung (Konzentration im Bodenwasserzufluss  $q_z$ ) in die Berechnung der Versickerung im Boden ein. Die entsprechenden Konzentrationen für die Standorte Hamburg, Kremsmünster und Dübendorf werden in Tabelle 9 angegeben.

Tabelle 9: Schätzung der Kupfer-Konzentrationen im Wasserzufluss zum Boden am OECD Modellhaus (berechnete Fläche 125 m<sup>2</sup>) mit verschiedenen Sickerwasserraten und zwei Annahmen über die Grösse der Versickerungsfläche  $A_v$ .

		Annahme: $A_v = 5 \text{ m}^2$			Annahme: $A_v = 25 \text{ m}^2$		
		Bereich <sup>1)</sup> von .. bis		Empfehlung <sup>2)</sup>	Bereich <sup>1)</sup> von .. bis		Empfehlung <sup>2)</sup>
Abschwemmraten	$\text{g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	1.1	1.8	1.3	1.1	1.8	1.3
Emissionen	$\text{g a}^{-1}$	137.5	225	162.5	137.5	225	162.5
Versickerungsraten	$\text{g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	27.5	45.0	32.5	5.50	9.00	6.5
$c_q$ Hamburg	mg/L	86.8	142.0	102.5	17.4	28.4	20.5
$c_q$ Kremsmünster	mg/L	83.6	136.8	98.8	16.7	27.4	19.8
$c_q$ Dübendorf	mg/L	68.4	111.9	80.8	13.7	22.4	16.2

<sup>1)</sup> Bei Annahme von Abschwemmraten zwischen 1.1 und 1.8  $\text{g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$

<sup>2)</sup> Bei Annahme der empfohlenen Abschwemmraten von 1.3  $\text{g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$

### 3.10. Kupfer Pedotransferfunktion für die Freundlich Isotherme

Die Verlagerung von Schwermetallen im Boden wird verlangsamt durch die meist hohe Sorption, die bei Schwermetallen meist durch eine Freundlich-Isotherme quantifiziert wird (vgl. z.B. Utermann et al. (2005), Streck (1993), Richter (1986)):

$$S = K_f \cdot c^b$$

mit dem Freundlich-Sorptionskoeffizienten  $K_f \left[ \frac{\mu\text{g}^{1-b} \text{ l}^b}{\text{kg}} \right]$  und dem Freundlich-Exponenten  $b$

(dimensionslos). Utermann et al. (2005) haben substratübergreifende Sorptionsisothermen (Pedotransferfunktionen) für die Parameter der Freundlich-Isotherme hergeleitet.

Je nach vorliegendem Datenmaterial werden mehrere Pedotransferfunktionen speziell für den Oberboden, den Unterboden oder generell für alle Böden (*Gesamtprobenkollektiv*) angeboten Utermann et al. (2005). Dabei kann der Sorptionskoeffizient aus den jeweils vorliegenden Bodendaten berechnet werden, der Exponent ist von den Bodendaten unabhängig. Die in Utermann et al. (2005) angegebenen Pedotransferfunktionen für Kupfer sind in Tabelle 10 angegeben, Beispielrechnungen für den Standort Hamburg in Tabelle 11.

Bei der Anwendung der Pedotransferfunktionen ist auf den Bereich der Eingabedaten zu achten, die für die Erstellung der Pedotransferfunktionen verwendet wurden (vgl. Utermann et al. 2005, Tab. 3.1-2, Seite 67). Wenn die Werte, mit denen die Sorptionsparameter berechnet werden sollen, nicht in dem Bereich liegen, für den die Pedotransferfunktionen bestimmt wurden, kann das Ergebnis sehr ungenau sein. Ein Beispiel dafür ist in Tabelle 11 angegeben: Die Tongehalte, für die die Pedotransferfunktionen bestimmt sind, liegen zwischen 0.4% und 40.5%. Der Tongehalt von 0.1% im Unterboden am Standort Hamburg liegt ausserhalb davon und der mit diesem Tongehalt berechnete Sorptionskoeffizient von 75 L/kg weicht deutlich von dem ohne diesen Tongehalt berechneten Sorptionskoeffizient von 476 L/kg ab.

Für den Sorptionsparameter  $K_f$  wird im Allgemeinen von einer lognormalen Verteilung ausgegangen. Aufgrund der Unsicherheit bei der Bestimmung der Sorptionsparameter mit einer Pedotransferfunktion muss mit einem Range von einer Grössenordnung (Faktor 10) gerechnet werden (vgl. auch Utermann et al. 2005), wobei sich ein Teil aus der räumlichen Variabilität an

einem Standort und ein Teil aus der Unsicherheit der Pedotransferfunktion ergibt. Hier wird angenommen, dass sich die räumliche Variabilität bei einer Korrelationslänge kleiner als die Fassadenlänge herausmittelt und dass der Range für die Unsicherheit der Pedotransferfunktion bei einem Faktor 4 liegt. Der Range eines – mit einer PTF geschätzten – Sorptionskoeffizienten wird somit berechnet als  $K_{f, \text{tief}} = K_f / 2$  und  $K_{f, \text{hoch}} = K_f \cdot 2$ .

Tabelle 10: Pedotransferfunktionen für die Parameter der Freundlich-Sorptionsisotherme von Kupfer (Utermann et al. 2005)

Generell	$\log(K_f) = 0.764 + 0.332 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.41 \cdot \log(\text{Ton})$	$b = 0.758$
	$\log(K_f) = 0.41 + 0.235 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.705 \cdot \log(\text{KAK}_{\text{eff}})$	$b = 0.76$
	$\log(K_f) = -1.144 + 0.35 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.545 \cdot \log(\text{Fe}_{\text{kw}})$	$b = 0.752$
	$\log(K_f) = 0.777 + 0.407 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2)$	$b = 0.732$
Oberboden	$\log(K_f) = 1.755 + 0.174 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2)$	$b = 1.045$
	$\log(K_f) = 1.664 + 0.547 \cdot \log(\text{KAK}_{\text{eff}})$	$b = 1.048$
Unterboden	$\log(K_f) = 0.59 + 0.364 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.428 \cdot \log(\text{Ton})$	$b = 0.726$
	$\log(K_f) = 0.265 + 0.265 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.716 \cdot \log(\text{KAK}_{\text{eff}})$	$b = 0.73$
	$\log(K_f) = -1.87 + 0.374 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2) + 0.692 \cdot \log(\text{Fe}_{\text{kw}})$	$b = 0.726$
	$\log(K_f) = 0.605 + 0.441 \cdot \text{pH}(\text{CaCl}_2)$	$b = 0.694$

Tabelle 11: Beispielrechnungen für die Parameter der Freundlich-Isotherme von Kupfer mit den in Tabelle 10 angegebenen Pedotransferfunktionen nach Utermann et al. (2005) für den Standort Hamburg

	Anwendungsbereich PTF	pH(CaCl <sub>2</sub> )	Ton [Masse %]	$\log(K_f)$	$K_f$ [L/kg]	b
Bsp. 1	Generell <sup>1)</sup>	4.9	2.15	2.53	337	0.758
Bsp. 2	Generell <sup>1)</sup>	4.9	<sup>4)</sup>	2.77	591	0.732
Bsp. 3	Oberboden <sup>2)</sup>	5.2	<sup>4)</sup>	2.66	457	1.045
Bsp. 4	Unterboden <sup>3)</sup>	4.7	0.1	1.87	75	0.726
Bsp. 5	Unterboden <sup>3)</sup>	4.7	<sup>4)</sup>	2.68	476	0.694

<sup>1)</sup> Anwendbar für Oberboden und Unterboden. pH-Wert und Tongehalt werden als mit der Horizontbreite gewichtetes Mittel aus 0 bis 2 m Tiefe berechnet.

<sup>2)</sup> Anwendbar im Oberboden. pH-Wert und Tongehalt werden als mit der Horizontbreite gewichtetes Mittel aus 0 bis 60 cm Tiefe berechnet.

<sup>3)</sup> Anwendbar im Unterboden. pH-Wert und Tongehalt werden als mit der Horizontbreite gewichtetes Mittel aus 60 bis 200 cm Tiefe berechnet.

<sup>4)</sup> Wert nicht verwendet.



Tabelle 12: Ergebnisse der Pedotransferfunktionen für Kupfer.

Tabelle 1: Bodendaten für die Focus-Standorte und Vergleichsdaten aus Utermann et al. (2005) und Kayser (2000) sowie die durch die Pedotransferfunktionen (PTF) von Utermann et al. (2005) für Kupfer vorhergesagten Parameter der Freundlich-Isotherme. a) PTF für alle Proben, b) PTF für Oberbodenproben c) PTF für Unterbodenproben

Standort	Median	Hamburg	Hamburg	Hamburg	Hamburg	Kremsmünster	Kremsmünster	Kremsmünster	Rafz
Quelle	Utermann 2005, Tab. 3.1-2	FOCUS 2009	FOCUS 2009	FOCUS 2009	FOCUS 2009	FOCUS 2009	FOCUS 2009	FOCUS 2009	Achim Kayser (2000)
Daten		Gesamt	Oberboden	Oberboden	Unterboden	Gesamt	Oberboden	Unterboden	Haplic Luvisol
Ton	Einheit								
	[Masse %]	2.15	6.95	6.95	0.1	24	19.5	27	18.4
Kakeff	[mmolc/kg]								
pH	CaCl2	4.9	5.2	5.2	4.7	7.1	7.25	7	6.8
Cges	[Masse %]	0.67	2.15	2.15	0.04	1.01	2.3	0.5	
Corg	[Masse %]	0.39	1.25	1.25	0.02	0.6	1.35	0.3	1.6
Lagerungsdichte	[g cm <sup>-3</sup> ]	1.58	1.55	1.55	1.6	1.424	1.415	1.43	
log Kf a)		<b>2.5271</b>	2.835614	2.835614	1.9144	<b>3.687087</b>	3.699914	3.674859	3.540175
Kf a)	[µg <sup>1-b</sup>   <sup>b</sup> kg <sup>-1</sup> ]	<b>336.5889</b>	684.8789	684.8789	82.11075	<b>4865.042</b>	5010.882	4729.978	3468.768
n a)		<b>0.758</b>	0.758	0.758	0.758	<b>0.758</b>	0.758	0.758	0.758
log Kf b)		2.6076	<b>2.6598</b>	<b>2.6598</b>	2.5728	2.9904	<b>3.0165</b>	2.973	2.9382
Kf b)	[µg <sup>1-b</sup>   <sup>b</sup> kg <sup>-1</sup> ]	405.1352	<b>456.8777</b>	<b>456.8777</b>	373.9383	978.1377	<b>1038.724</b>	939.7233	867.3612
n b)		1.045	<b>1.045</b>	<b>1.045</b>	1.045	1.045	<b>1.045</b>	1.045	1.045
log Kf c)		2.515884	2.843169	2.843169	<b>1.8728</b>	3.76513	3.781135	<b>3.750624</b>	3.606542
Kf c)	[µg <sup>1-b</sup>   <sup>b</sup> kg <sup>-1</sup> ]	328.0074	696.8984	696.8984	<b>74.61051</b>	5822.78	6041.361	<b>5631.495</b>	4041.495
n c)		0.726	0.726	0.726	<b>0.726</b>	0.726	0.726	<b>0.726</b>	0.726



## 4. Ergebnisse

Mit den Standorten Hamburg, Kremsmünster, Dübendorf, den Substanzen Terbutryn, Kupfer, Mecoprop und PAK15, den Bauteil-Varianten OECD-Modellhaus und Mehrfamilienhaus sowie den verschiedenen Zeitskalen ergibt sich eine grosse Anzahl von möglichen Simulationsvarianten. Im Folgenden werden für die 4 Substanzen die Charaktereigenschaften zusammengefasst und die typischen Tiefenprofile, die Sensitivität auf Eingabeparameter der Standorte und Bauteil-Varianten und die Abhängigkeit von den Parameterschätzungen (z.B. durch Pedotransferfunktionen) dargestellt.

### 4.1. Terbutryn

Charakter:

- Zeitlich abnehmende Emissionen aus den berechneten Bauteilen und daher zeitlich abnehmende Konzentration im Bodenwasserzufluss
- Abbau und daher im Zeitverlauf geringer werdende Konzentration in der Bodenlösung
- Sorption und daher langsame Versickerung und verlangsamer Abbau

Typische Zeitverläufe der Terbutryn-Konzentrationen im Boden sind in Abbildung 3 für das OECD Modellhaus am Standort Hamburg mit mittleren Werten für Sorption und Abbau (vgl. Tabelle 8) dargestellt. Durch die abnehmenden Emissionen aus den berechneten Bauteilen (vgl. Abbildung 2) sinkt auch die Konzentration am oberen Ende des Tiefenprofils. Die nach 20 Tagen noch sehr hohe Konzentration von etwa 1 mg/L sinkt nach einem halben Jahr auf unter 0.65 mg/L und nach einem Jahr auf 0.5 mg/L (Abbildung 3A bei einer Dispersivität von 10 cm). Aufgrund der Sorption und der dadurch verlangsamteten Verlagerung steigt die Konzentration in tieferen Bodenschichten nur langsam an. Nach einem halben Jahr liegt die Konzentration in 10 cm Tiefe noch bei 0.02 mg/L. Durch den Abbau mit einer Halbwertszeit von 20 Tagen kommt in 1 m Tiefe nur ein kleiner Teil des Inputs an (maximal 0.25 µg/L nach 29 Jahren), der aber trotzdem noch über dem Grenzwert von 0.1 µg/L liegt.

Bei einer kleineren Dispersivität ( $\lambda=1$  cm, Abbildung 3A) ist die Dispersion so klein, dass sich ein deutlicher Peak ausbildet. Die Konzentrationen in geringen Tiefen wird grösser und in grösseren Tiefen kleiner (vgl. Abbildung 3).

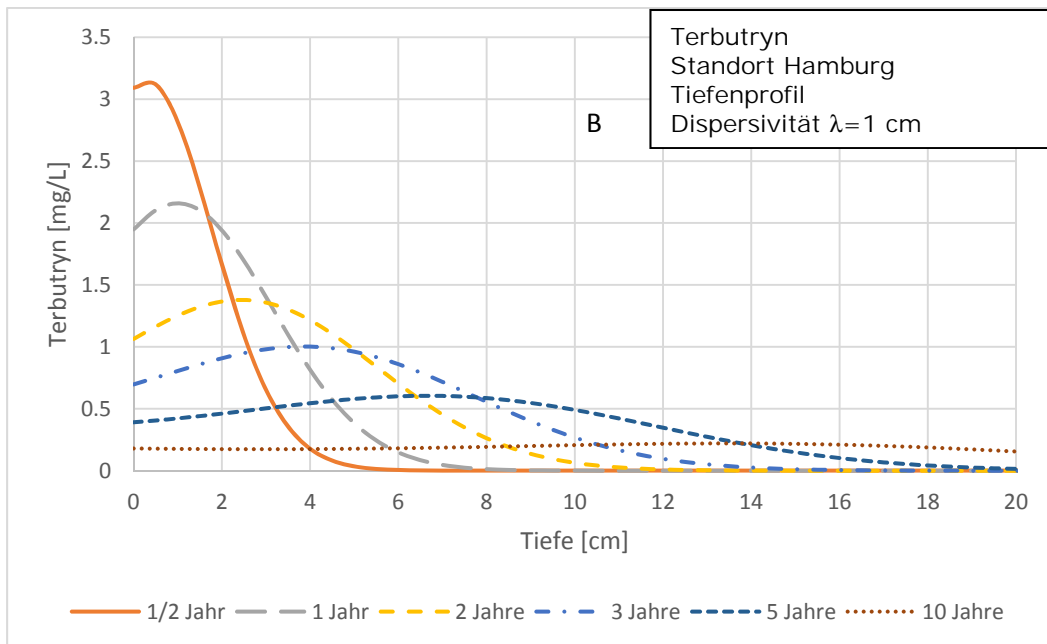
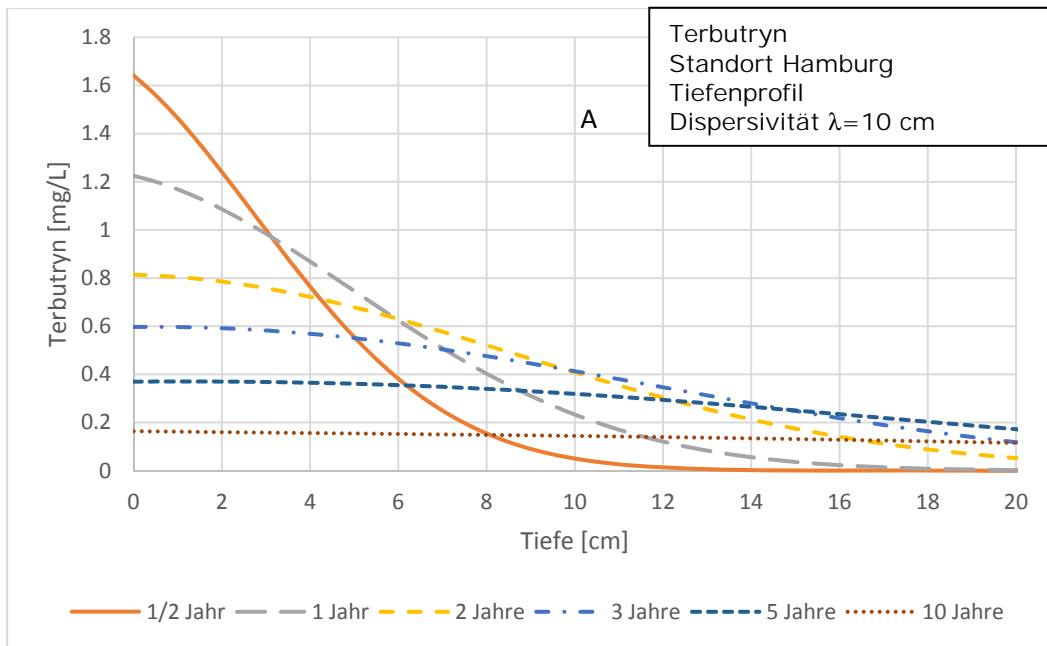


Abbildung 3: Typische Tiefenprofile der Terbutryn Konzentration in der Bodenlösung, hier am Beispiel des Standortes Hamburg, OECD Modellhaus (Versickerungsfläche  $25 \text{ m}^2$ ), mittlerer Sorptionskoeffizient  $K_d=12 \text{ L kg}^{-1}$  und mittlere Abbaurrate (Halbwertszeit 20 Tage). A: Dispersivität  $\lambda=10$  cm, B: Dispersivität  $\lambda=1$  cm.

Je grösser die Abbaurrate (also je kleiner die Halbwertszeit) desto geringer wird die Konzentration im Boden. Je höher die Sorption, desto langsamer verlagert sich das Terbutryn: die maximale Konzentration in der Bodenlösung im Tiefenprofil („räumlicher Peak“) wird grösser und wird bereits in einer geringeren Tiefe erreicht.

Für den zeitlichen Verlauf der Konzentration in der Bodenlösung in einer Tiefe (Durchbruchkurve) gilt: in der Bodenlösung wird die maximale Konzentration („zeitlicher Peak“) bei höherer Sorption kleiner, weil sich der Masse-Anteil in der Bodenlösung verringert und ein grösserer Masse-Anteil sorbiert ist (vgl. Abbildung 4). Weil der Abbau – wie hier angenommen – nur in

der Bodenlösung erfolgt, wird durch den geringeren Masse-Anteil in der Bodenlösung auch der Abbau verzögert, und zwar so stark, dass der zeitliche Peak der Summe aus der Masse in der Bodenlösung und der sorbierten Masse bei erhöhter Sorption ansteigt (vgl. Abbildung 5).

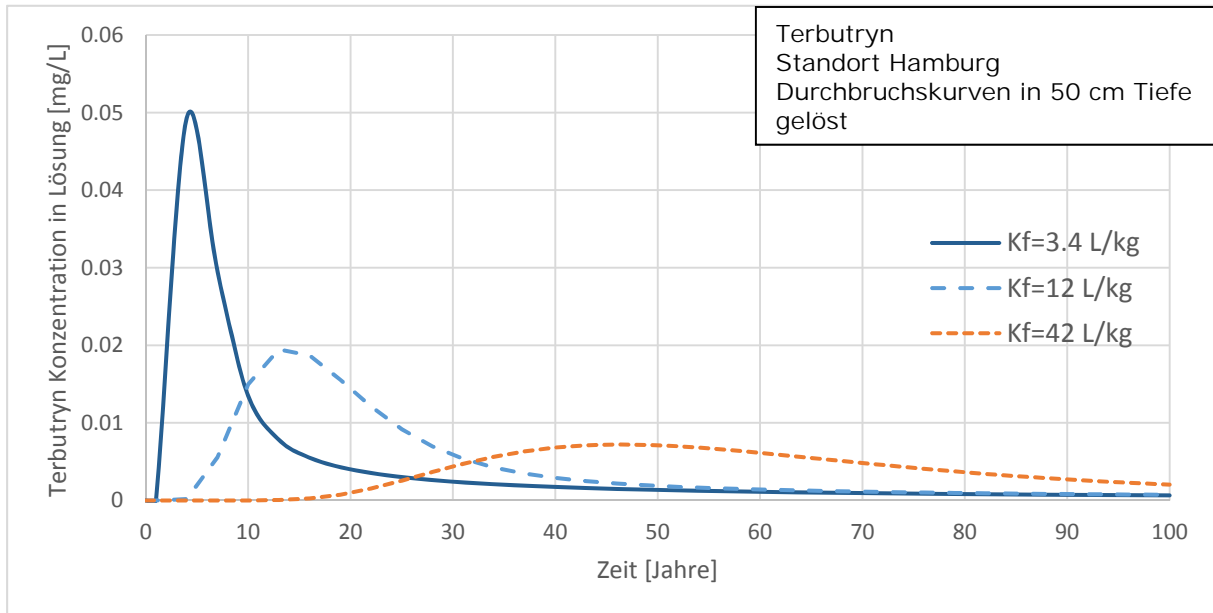


Abbildung 4: Durchbruchkurven der Terbutryn-Konzentration in der Bodenlösung in 50 cm Tiefe.

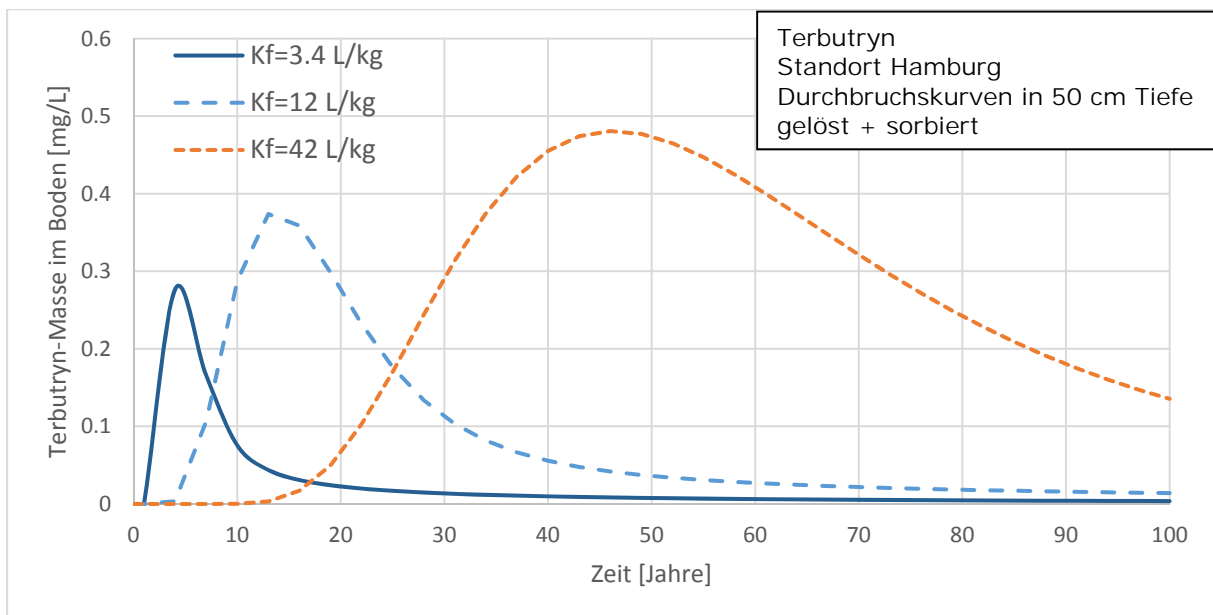


Abbildung 5: Durchbruchkurven der Terbutryn-Masse (gelöst plus sorbiert) in 50 cm Tiefe. Bei höherer Sorption tritt der Peak später auf, ist aber wegen des reduzierten Abbaus noch grösser.

Um den Einfluss der Unsicherheit der Sorptions- und Abbauparameter einzuschätzen wird die Verlagerung von Terbutryn im Boden für die in Tabelle 8 angegebenen Wertebereiche simuliert und durch die Angabe des zeitlichen Konzentrations-Peaks (Maximalkonzentration innerhalb von 100 Jahren bei einer Versickerungsfläche von 25 m<sup>2</sup>) in 1 m Tiefe bewertet (Tabelle 13 und Abbildung 6). Bei einer Versickerungsfläche von 5 m<sup>2</sup> erhöhen sich diese Konzentrations-Peaks entsprechend. Tabelle 14 und Abbildung 7 zeigen, dass eine höhere Sorption die Grundwasserkontamination erhöht, wenn auch zu einem späteren Zeitpunkt (vgl. auch Abbildung 5).

Tabelle 13: Höhe der Terbutryn-Konzentrations-Peaks (Maximalkonzentration innerhalb von 100 Jahren) in der Bodenlösung in 1 m Tiefe bei verschiedenen Parameterkonstellationen (OECD Modellhaus am Standort Hamburg, Dispersivität  $\lambda=10$  cm, Versickerungsfläche 25 m<sup>2</sup>). Bei  $K_d=42$  L/kg ist der Peak noch nicht in 1 m Tiefe angekommen (ausser bei der Halbwertszeit von 14 Tagen).

Abbau	Sorption		
Halbwertszeit	$K_d = 3.4 \text{ L kg}^{-1}$	$K_d = 12 \text{ L kg}^{-1}$	$K_d = 42 \text{ L kg}^{-1}$
28 Tage	$6.12 \mu\text{g L}^{-1}$	$2.33 \mu\text{g L}^{-1}$	$0.79 \mu\text{g L}^{-1}$
20 Tage	$1.64 \mu\text{g L}^{-1}$	$0.63 \mu\text{g L}^{-1}$	$0.23 \mu\text{g L}^{-1}$
14 Tage	$0.29 \mu\text{g L}^{-1}$	$0.11 \mu\text{g L}^{-1}$	$0.04 \mu\text{g L}^{-1}$

Tabelle 14: Höhe des Terbutryn-Massendichte-Peaks (Maximum Masse gelöst und sorbiert je Bodenvolumen innerhalb von 100 Jahren) in der Bodenlösung in 1 m Tiefe bei verschiedenen Parameterkonstellationen (OECD Modellhaus am Standort Hamburg, Dispersivität  $\lambda=10$  cm, Versickerungsfläche 25 m<sup>2</sup>). Bei  $K_d=42$  L/kg ist der Peak noch nicht in 1 m Tiefe angekommen (ausser bei der Halbwertszeit von 14 Tagen).

Abbau	Sorption		
Halbwertszeit	$K_d = 3.4 \text{ L kg}^{-1}$	$K_d = 12 \text{ L kg}^{-1}$	$K_d = 42 \text{ L kg}^{-1}$
28 Tage	$34.336 \mu\text{g L}^{-1}$	$44.682 \mu\text{g L}^{-1}$	$52.840 \mu\text{g L}^{-1}$
20 Tage	$9.204 \mu\text{g L}^{-1}$	$12.083 \mu\text{g L}^{-1}$	$15.167 \mu\text{g L}^{-1}$
14 Tage	$1.617 \mu\text{g L}^{-1}$	$2.168 \mu\text{g L}^{-1}$	$2.743 \mu\text{g L}^{-1}$

Gegenüber dem Standort Hamburg gelten für den Standort Kremsmünster folgende Eingabedaten: Wassergehalt  $\theta = 0.38 \text{ cm}^3/\text{cm}^3$ , Darcy-Fluss  $q = 0.00375 \text{ cm/h}$ , Lagerungsdichte  $\rho = 1.424 \text{ kg/L}$ , mittlerer Sorptionskoeffizient  $K_d = 13.6 \text{ L/kg}$ , monatliche Schlagregenmenge  $S_{R,m} = 0.01 \text{ cm/h}$ . Für die sonst gleichen Bedingungen (OECD Modellhaus, Dispersivität  $\lambda=10$  cm) ergeben sich die typischen Tiefenprofile der Terbutryn-Konzentration am Standort Kremsmünster (Abbildung 8). Die typischen Tiefenprofile verlaufen in Hamburg und Kremsmünster ähnlich, der Hauptunterschied liegt in der höheren Sorption in Kremsmünster. Dadurch ist die Verlagerung langsamer und die Konzentration in der Bodenlösung tiefer, weil ein grösserer Teil Terbutryn sorbiert vorliegt.

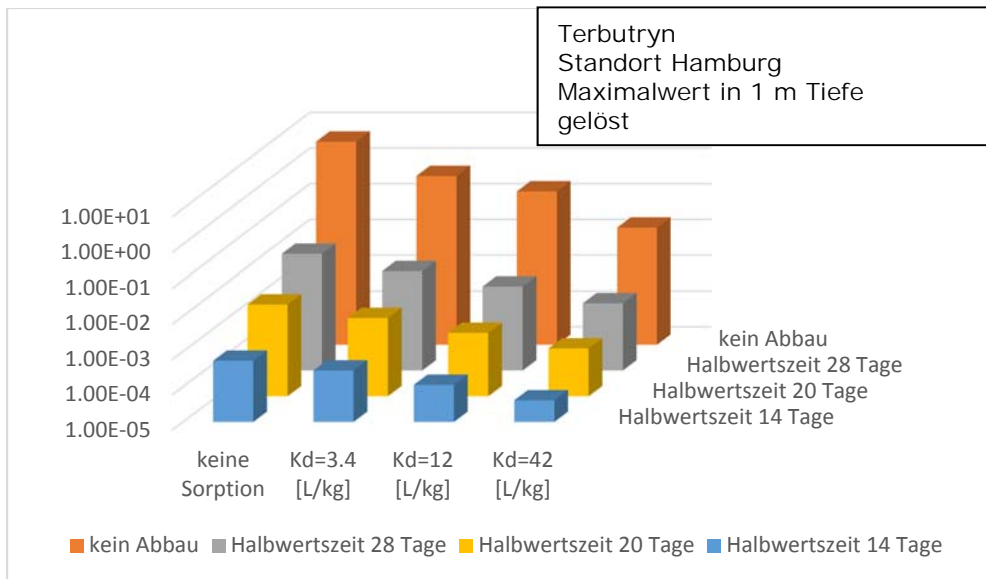


Abbildung 6: Höhe des Konzentrations-Peaks (Maximalkonzentration innerhalb von 100 Jahren) in der Bodenlösung in 1 m Tiefe bei verschiedenen Parameterkonstellationen (OECD Modellhaus am Standort Hamburg, Dispersivität  $\lambda=10$  cm, Versickerungsfläche  $25$  m<sup>2</sup>).

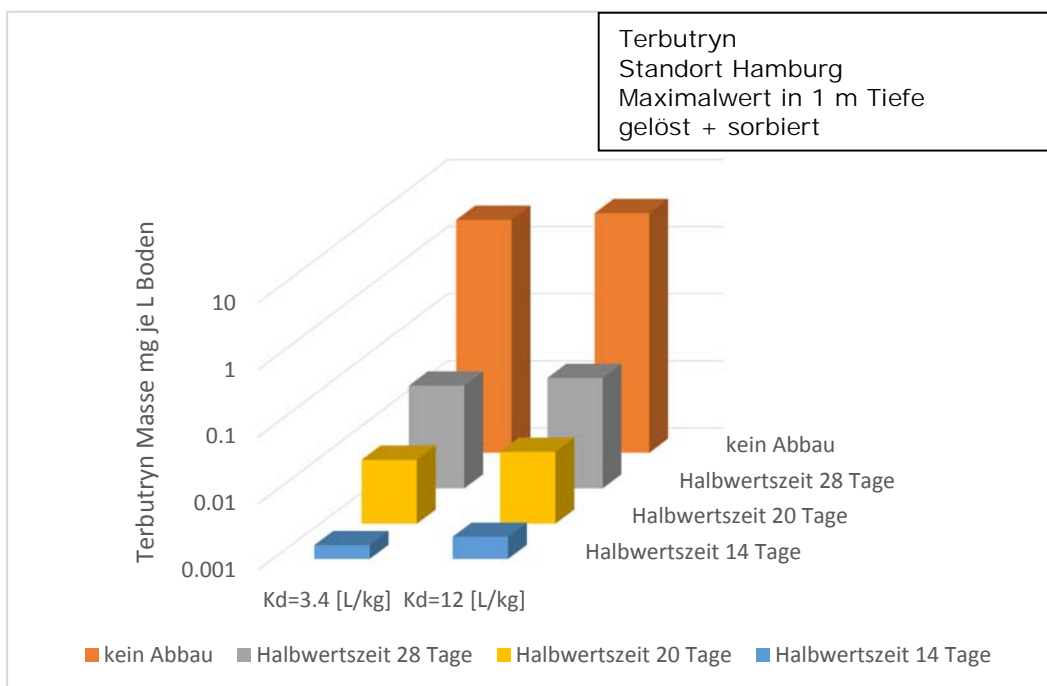


Abbildung 7: Peak-Konzentrationen der Masse (gelöst und sorbiert) je Bodenvolumen. Eine Erhöhung der Sorption verzögert den Peak und erhöht die Peak-Konzentration (OECD Modellhaus am Standort Hamburg, Dispersivität  $\lambda=10$  cm, Versickerungsfläche  $25$  m<sup>2</sup>).

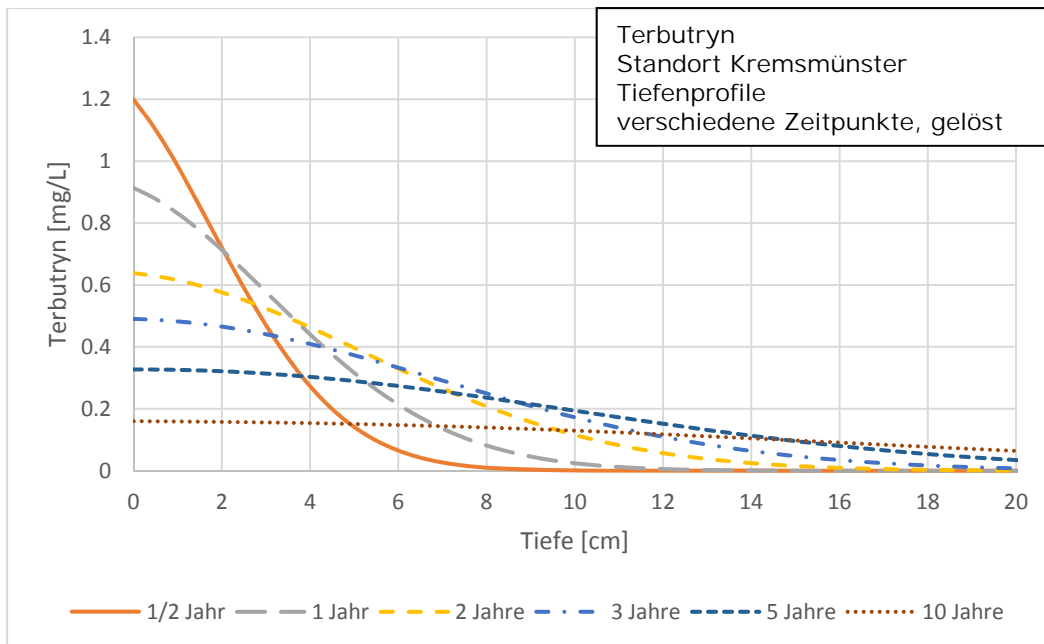


Abbildung 8: Typische Tiefenprofile der Terbutryn Konzentration in der Bodenlösung, hier am Beispiel des Standortes Kremsmünster, mittlerer Sorptionskoeffizient  $K_d=31 \text{ L kg}^{-1}$ , OECD Modellhaus (Versickerungsfläche  $25 \text{ m}^2$ ), und mittlere Abbaurrate (Halbwertszeit 20 Tage), Dispersivität  $\lambda=10 \text{ cm}$ .

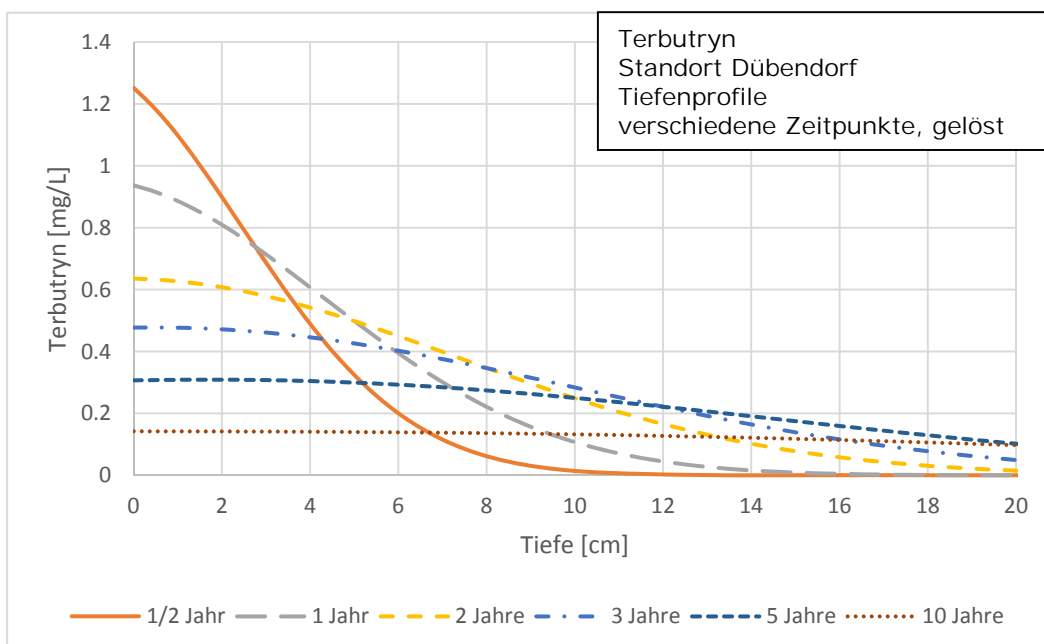


Abbildung 9: Typische Tiefenprofile der Terbutryn Konzentration in der Bodenlösung, hier am Beispiel des „Standortes Dübendorf“ mit einer höheren Versickerungsrate und mit Bodeneigenschaften, die in der Mitte zwischen denen von Hamburg und Kremsmünster angenommen wurden. OECD Modellhaus (Versickerungsfläche  $25 \text{ m}^2$ ), und mittlere Abbaurrate (Halbwertszeit 20 Tage), Dispersivität  $\lambda=10 \text{ cm}$ .

Die Bodeneigenschaften (Lagerungsdichte, Wassergehalt, Sorptionskoeffizient) am Standort Dübendorf wurden als Mittel der Standorte Hamburg und Kremsmünster angenommen. Das Besondere am Standort Dübendorf ist daher die höhere Versickerungsrate und der erhöhte Schlagregen (vgl. Tabelle 2 und Tabelle 15).

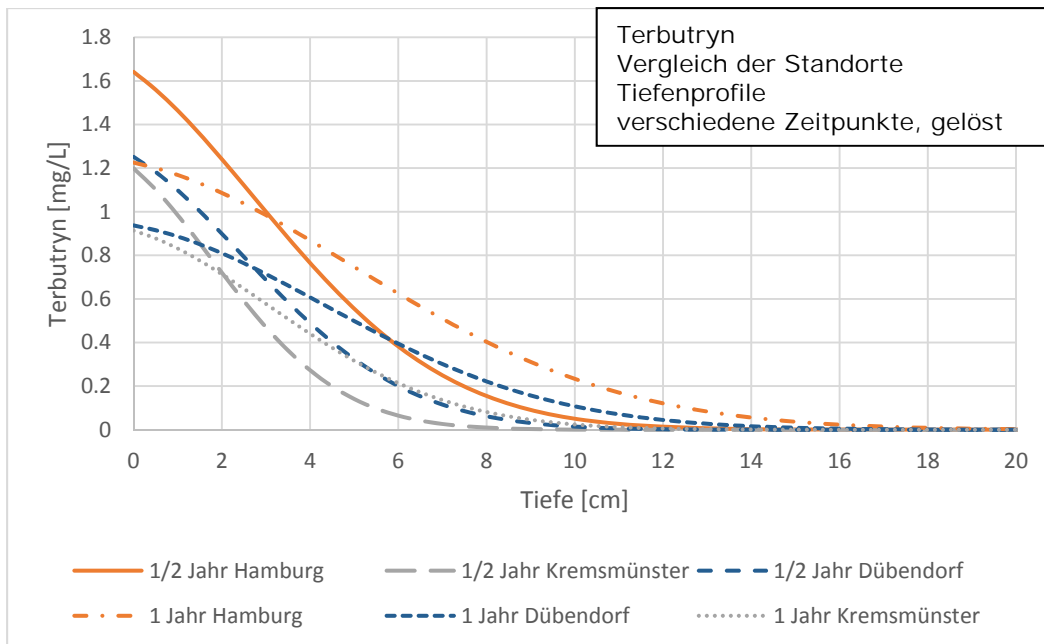


Abbildung 10: Tiefenprofile nach ½ Jahr und nach 1 Jahr, Vergleich der Standorte Hamburg, Kremsmünster und Dübendorf (OECD Modellhaus, Halbwertszeit 20 Tage, Versickerungsfläche 25 m<sup>2</sup>, Putz ohne Farbe).

Tabelle 15: Beim Standortvergleich unterschiedliche Modellparameter

Parameter	Einheit	Hamburg	Kremsmünster	Dübendorf
Sickerrate	cm/h	0.0036	0.0037	0.0045
Wassergehalt	cm <sup>3</sup> /cm <sup>3</sup>	0.24	0.38	0.31
Lagerungsdichte	g/cm <sup>3</sup>	1.58	1.424	1.5
Sorptionskoeffizient	L/kg	12	31	21.5
Schlagregenmenge	cm/h	0.009	0.01	0.011

Der Vergleich der Standorte (Abbildung 3, Abbildung 8 und Abbildung 9, zusammengefasst in Abbildung 10) zeigt den großen Einfluss der Sorption: Je grösser die Sorption, desto langsamer die Verlagerung.

Die Durchbruchkurven in Abbildung 11 und Abbildung 12 verdeutlichen dies. Sie zeigen aber auch den Einfluss der Sickerwasserrate: Die am „Standort Dübendorf“ angenommenen Bodeneigenschaften entsprechen dem Mittel aus den Standorten Hamburg und Kremsmünster. Der Hauptunterschied zu den anderen Standorten ist die Sickerwasserrate, die um ca. ein Viertel höher ist.

Darauf, dass bei höherer Sorption (Dübendorf  $K_f=21.5$  L/kg, Hamburg  $K_f=12$  L/kg), die Peak-Konzentration noch ansteigen kann (Dübendorf 12.3 µg/Liter, Hamburg 11.9 µg/Liter, Abbildung 12), wurde bereits hingewiesen. Aber warum ist dann die Peak-Konzentration von Kremsmünster (1.8 µg/Liter, Abbildung 12) trotz noch höherer Sorption so niedrig? Dafür gibt es zwei Gründe: Erstens begünstigen die Bodeneigenschaften (hoher Wassergehalt, niedrige Lagerungsdichte) den Abbau und zweitens ist die Sickerrate und daher der Bodenzufluss in Kremsmünster niedriger als in Dübendorf.

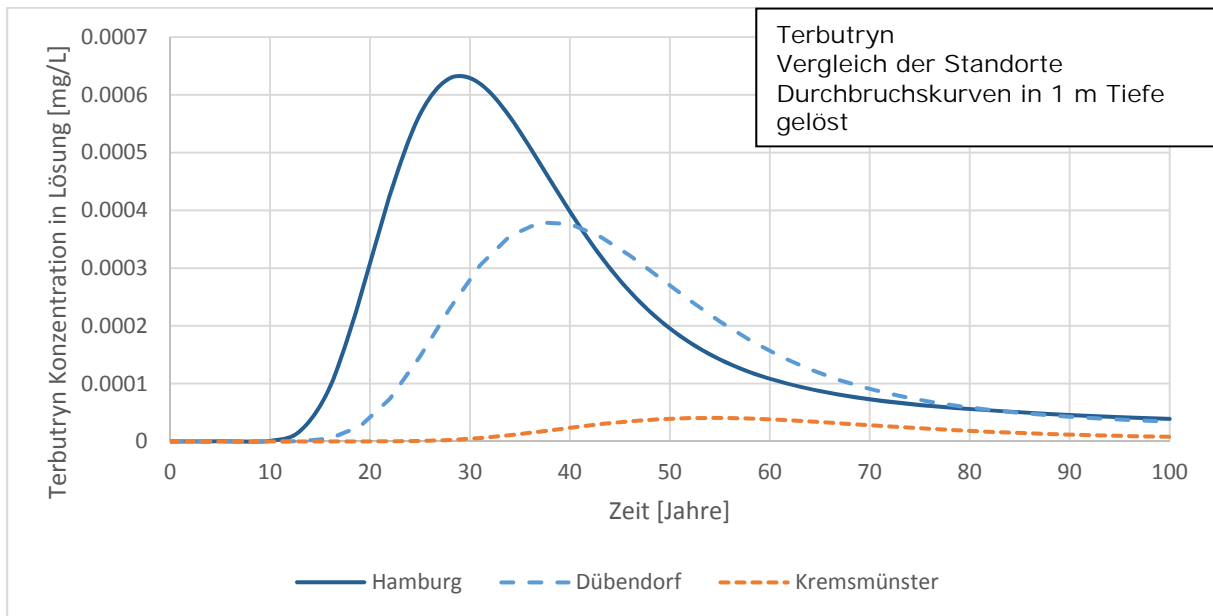


Abbildung 11: Terbutryn-Durchbruchskurven in 1 m Tiefe an den Standorten Hamburg, Dübendorf und Kremsmünster. OECD Modellhaus, Halbwertszeit 20 Tage, Versickerungsfläche 25 m<sup>2</sup>, Putz ohne Farbe. Standortspezifische Eingabeparameter wie in Tabelle 15.

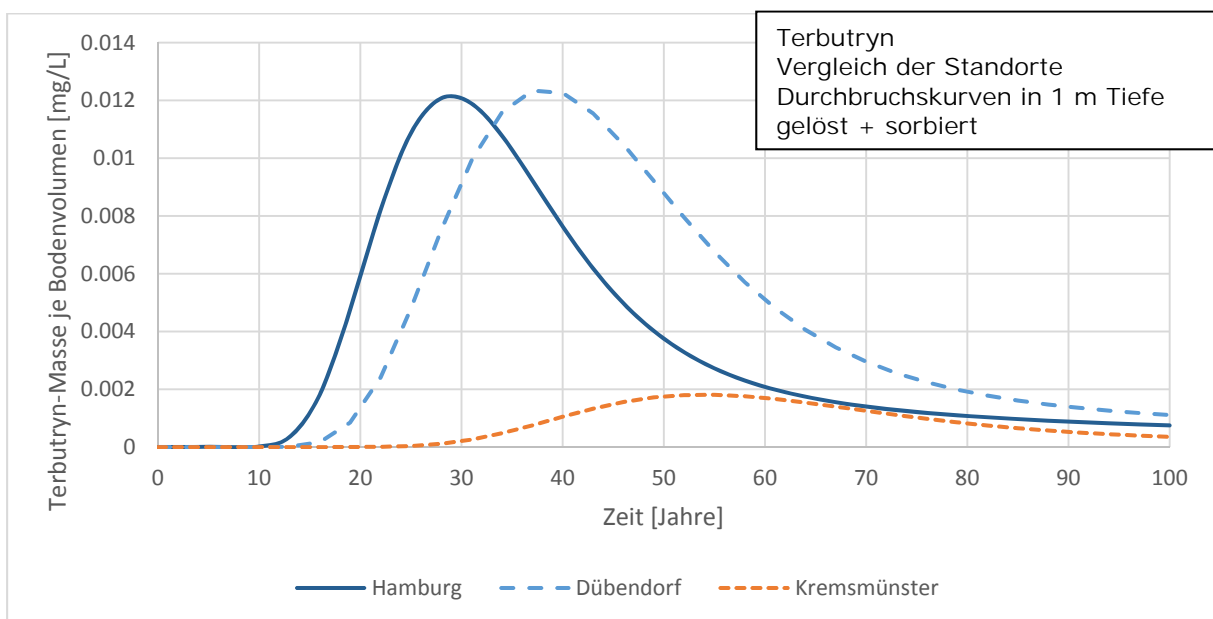


Abbildung 12: Durchbruchskurve der Terbutryn-Masse (gelöst plus sorbiert). OECD Modellhaus, Halbwertszeit 20 Tage, Versickerungsfläche 25 m<sup>2</sup>, Putz ohne Farbe. Standortspezifische Eingabeparameter wie in Tabelle 15.



Das OECD-Modellhaus repräsentiert ein Worst Case Szenario: Der Schlagregen wird als so gross wie der Niederschlag und als unabhängig von der Windrichtung angenommen. In einem praktisch ausgerichteten Szenario *Mehrfamilienhaus* wird eine Fassade von einem mehrstöckigen Haus betrachtet und die Schlagregenmenge in Abhängigkeit von der Fassadenausrichtung berechnet. Orientiert an einem realen Beispiel wird eine Mehrfamilienhausfassade mit 5 Stockwerken und einer Höhe von 14 m sowie einer Länge von 30 m angenommen. Je nach der Ausrichtung einer Fassade, nach der vorherrschenden Windrichtung und Windgeschwindigkeit bewirkt der Niederschlag im Jahresmittel eine bestimmte Schlagregenmenge, zum Beispiel einen *Schlagregenanteil* von 10%, 5% oder 2% des Niederschlags. Die Modellierung mit einem solchen Durchschnittswert ist bei einer Betrachtung über längere Zeiträume gerechtfertigt. Bei einem Versickerungsabstand von 0.5 m entsteht eine Versickerungsfläche von 15 m<sup>2</sup>.

Unter diesen Voraussetzungen wurden für die drei Standorte (Abbildung 13) und am Standort Hamburg für die drei Anteile 10%, 5% oder 2% des Niederschlags (Abbildung 14) Durchbruchkurven in 1 m Tiefe berechnet. Die Ergebnisse zeigen, dass die drei Standorte Hamburg, Kremsmünster und Dübendorf bei einem als konstant angenommenem Schlagregenanteil (zum Beispiel von 10% am Gesamtniederschlag, vgl. Abbildung 13) in demselben Verhältnis zueinander stehen, wie beim OECD Modellhaus (Abbildung 11). Modelltheoretisch scheint dieser Ansatz unproblematisch. Um jedoch die genaue Menge des Schlagregens und damit die durch ihr ausgelösten Emissionen zu quantifizieren, sind genaue Angaben über das Material, seine Inhaltsstoffe und auch sein Verhalten im Boden erforderlich.

Die Gegenüberstellung der drei Schlagregenmengen am Beispiel Hamburg zeigt, dass der durchschnittliche Anteil des Schlagregens am Gesamtniederschlag direkt die Menge des versickerten Terbutryns bestimmt (Abbildung 14). Weitere Bestimmungsfaktoren sind die Fassadenfläche und die Versickerungsfläche. Bei Mehrfamilienhäusern können die Fassadenflächen recht gross werden. So gross, dass die berechneten Schadstoffkonzentrationen in der Bodenlösung (vgl. Abbildung 13) genauso hoch oder noch höher werden können wie am OECD Modellhaus berechnet wurde (vgl. Abbildung 11).

In jedem Fall zeigen die Simulationen, dass ein erhebliches Risiko besteht a) für sehr hohe Schadstoffgehalte in den oberen Bodenschichten und b) für eine erhebliche, wenn auch verzögerte, Schadstoffbelastung und Grenzwertüberschreitung am Ort der Beurteilung in 1 m Tiefe.

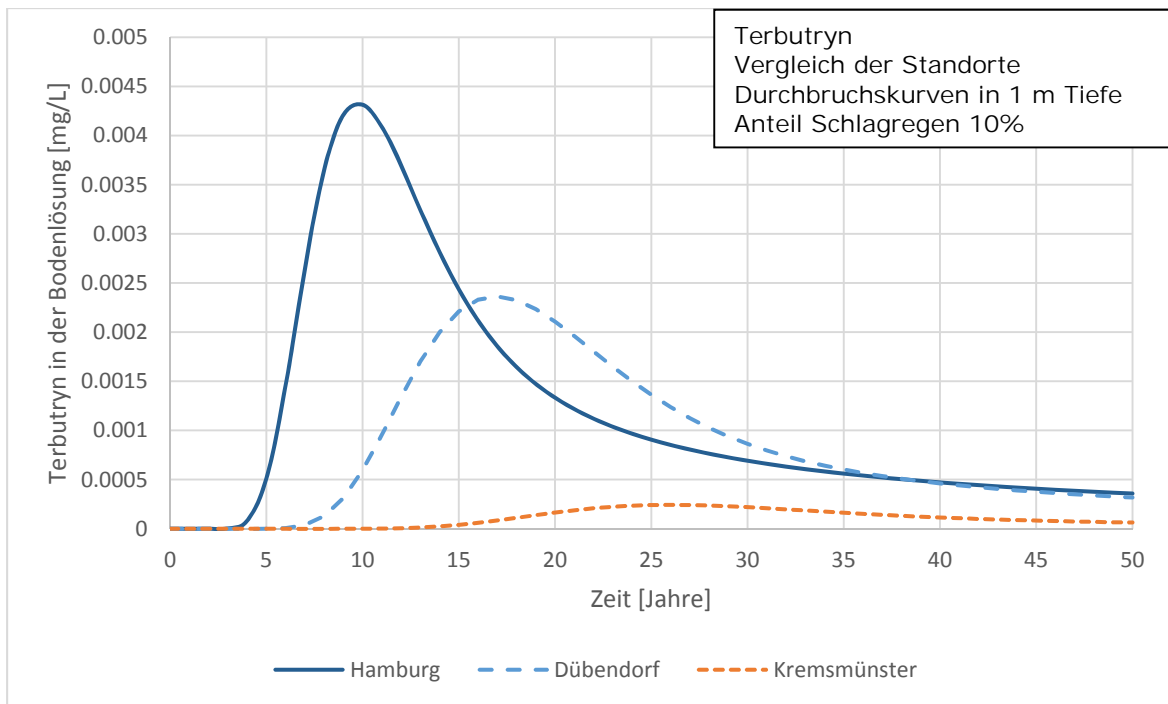


Abbildung 13: Terbutryn-Durchbruchskurven in 1 m Tiefe, wenn die Fassade so ausgerichtet ist, dass der Anteil des Schlagregens am Niederschlag 10% beträgt. Mehrfamilienhaus mit 5 Stockwerken, Fassade 14 m hoch und 30 m lang, 420 m<sup>2</sup>, Versickerungsfläche 15 m<sup>2</sup>.

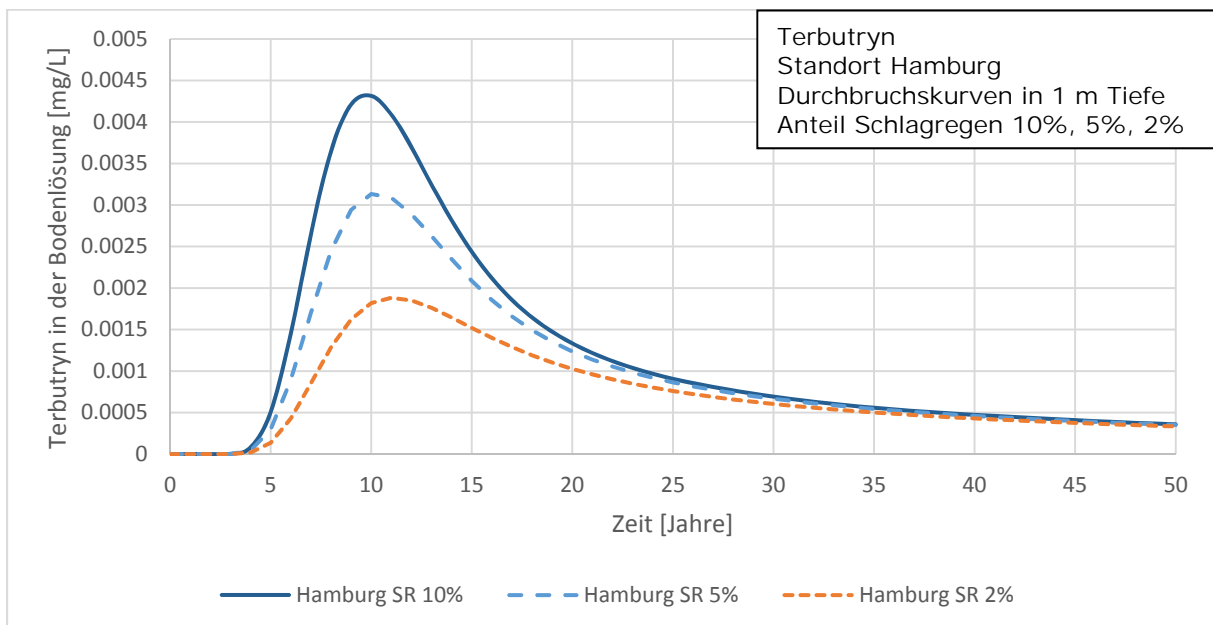


Abbildung 14: Terbutryn-Durchbruchskurven in 1 m Tiefe, wenn die Fassade so ausgerichtet ist, dass der Anteil des Schlagregens (SR) am Niederschlag 10% oder 5% oder 2% beträgt. Mehrfamilienhaus mit 5 Stockwerken, Fassade 14 m hoch und 30 m lang, 420 m<sup>2</sup>, Versickerungsfläche 15 m<sup>2</sup>.

## 4.2. Mecoprop und PAK's

Charakter:

- Zeitlich konstante Emissionen aus den berechneten Bauteilen und daher eine konstante Konzentration im Bodenwasserzufluss
- Mecoprop: Abbau mit kleinen Halbwertszeiten, geringe Sorption
- PAK's: Abbau mit kleinen bis grossen Halbwertszeiten, hohe bis sehr hohe Sorption

Aus den bisher vorliegenden Untersuchungen über das Auswaschverhalten von Mecoprop wurde abgeleitet, dass sich - über längere Zeiträume (>2 Jahre) betrachtet – eine konstante Auswaschrate  $c_{Mecoprop} = 4 \mu\text{g/L}$  ergibt. Der geringe Sorptionskoeffizient für Mecoprop, in Hamburg zum Beispiel  $0.24 \text{ L/kg}$ , setzt der Verlagerung in Richtung Grundwasser fast keine Grenze. Durch die geringe Sorption liegt ein grosser Masseanteil des Mecoprop in der Lösung vor und kann daher abgebaut werden. In Kombination mit den kleinen Halbwertszeiten von Mecoprop reicht es aus, um die Konzentration über das Tiefenprofil klein zu halten. Berücksichtigt man aber den Hinweis von Thrasher et al. (2004), dass Mecoprop hauptsächlich der Biodegradation unterliegt, so wird Mecoprop im Unterboden kaum abgebaut. Als Beispiel dafür wurde am Standort Hamburg auch eine Simulation mit der Halbwertszeit 100 Tage durchgeführt (Abbildung 15).

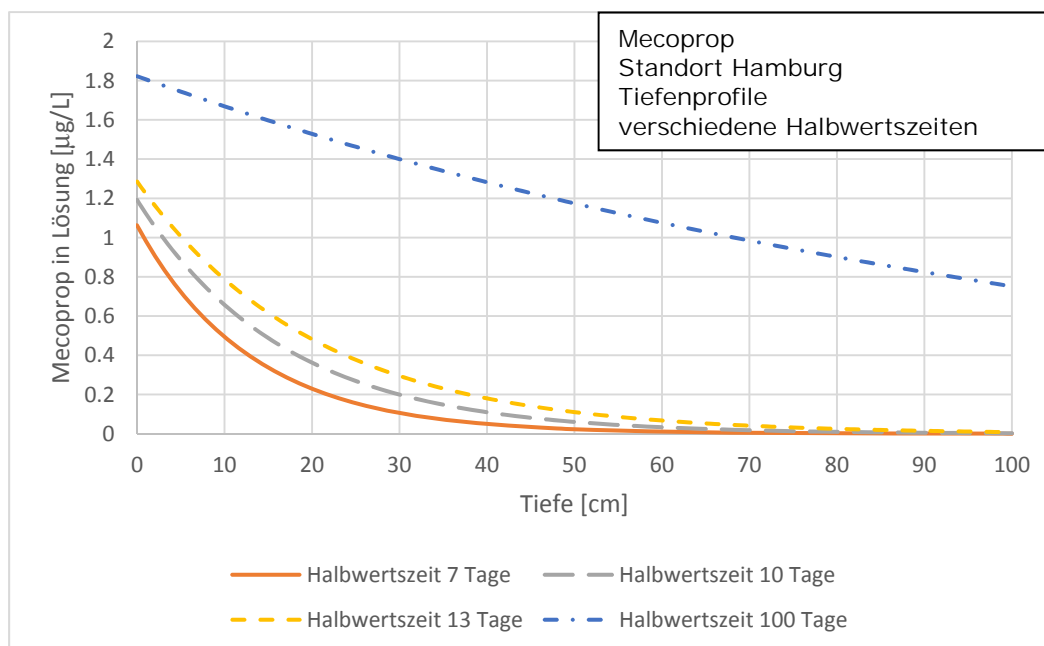


Abbildung 15: Tiefenprofile der Mecoprop-Konzentration in der Bodenlösung am Standort Hamburg mit Abbauraten bzw. Halbwertszeiten (vgl. Tabelle 8) des für Mecoprop ermittelten Bereichs ( $K_f=0.24 \text{ L/kg}$ ).

Die Emissionskonzentration und die Sickerrate haben einen direkt proportionalen Einfluss auf die Konzentration im Boden. Die Sorption spielt bei Mecoprop wegen der kleinen Sorptionskoeffizienten eine geringe Rolle. Die Unsicherheit in der Bestimmung der Halbwertszeit wirkt sich so auf die Tiefenprofile der Mecoprop-Konzentration aus, wie man es erwarten würde (Abbildung 15). Interessant: Solange der Abbau dominant ist (wenn also wie hier die Sorption klein ist), ändert sich das Tiefenprofil fast nicht mehr, denn es wird durch den Stofftransport genauso viel nachgeliefert wie abgebaut wird.

Der Vergleich der Standorte ergibt, dass in Kremsmünster der Abbau durch die Bodenbedingungen begünstigt wird. In Dübendorf, wo die mittleren Bodenbedingungen angenommen wurden, entstehen durch den höheren Niederschlag bzw. durch die höhere Sickerrate nahezu gleich hohe Konzentrationen wie am Standort Hamburg.

Bei den Mecoprop-Simulationen an den drei Standorten sind mit dem vorgegebenen Bereich der Halbwertszeiten in 1 m Tiefe keine Grenzwertüberschreitungen vorgekommen. Bei einer Simulation mit einer Halbwertszeit von 100 Tagen lag die Konzentration in 1 m Tiefe bei 0.75 µg/L. Im Oberboden treten unter den getesteten Bedingungen immer Konzentrationen in der Lösung oberhalb von 1 µg/L auf.

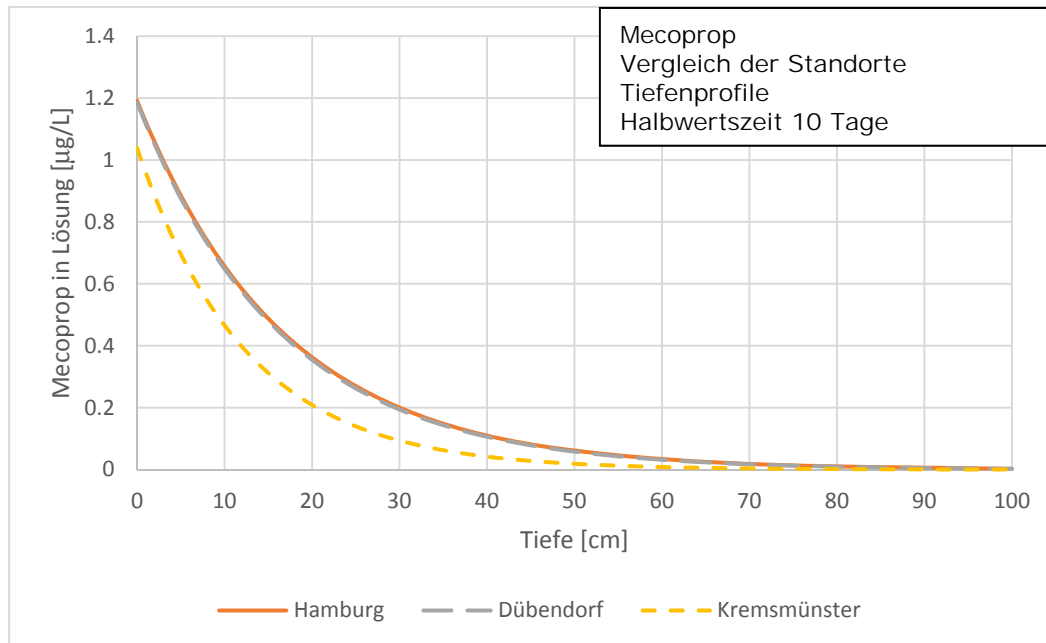


Abbildung 16: Tiefenprofile der Mecoprop-Konzentration in der Bodenlösung an verschiedenen Standorten bei gleicher Halbwertszeit von 10 Tagen.

Für die PAK's gilt wegen derselben Randbedingung qualitativ das, was auch für Mecoprop gilt. Bei den PAK's ist die Sorption jedoch wesentlich höher. Wenn die Sorption dominant ist, dann findet eine – wenn auch langsame – Verlagerung statt.

Am Beispiel von Naphtalin erkennt man, dass bei Halbwertszeiten von mehr als 30 Tagen die Sorption dominant ist. Erst eine sehr hohe Abbaurate (Halbwertszeiten kleiner als 5 Tage) kommt es zu einer deutliche Konzentrationssenkung.

Wegen der unter den getesteten Bedingungen geringen Ausgangskonzentrationen liegen die Konzentrationen der PAK unterhalb des Grenzwertes von 0.1 µg/L.

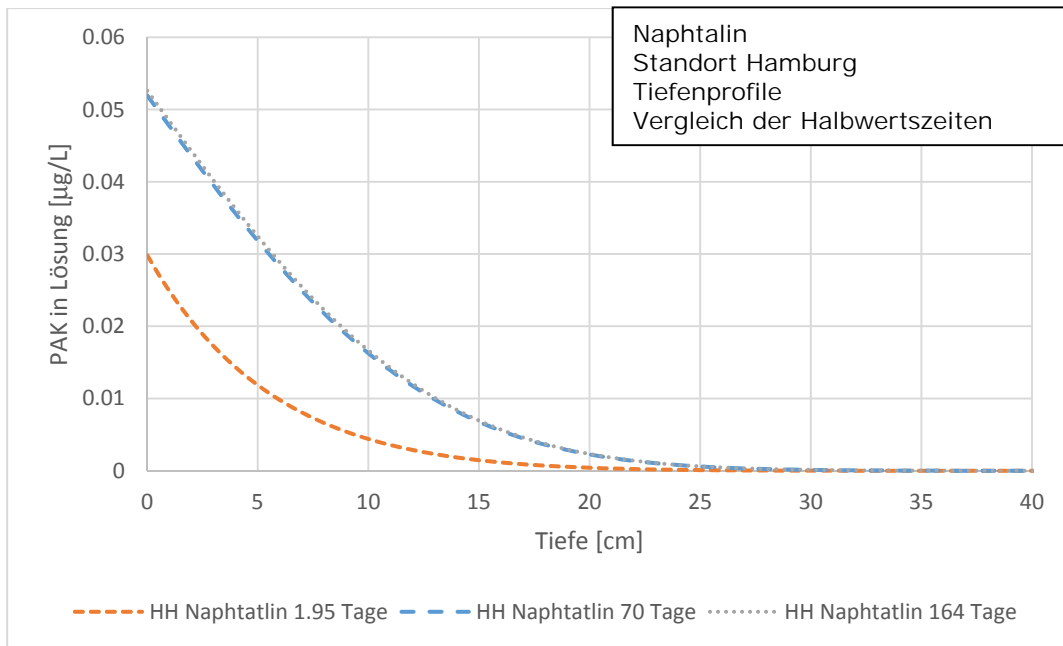


Abbildung 17: Die Tiefenprofile der PAK sind bei der sehr hohen, dominanten Sorption fast unabhängig vom Abbau. Erst eine sehr hohe Abbaurrate (ab ca. Halbwertszeiten unter 5 Tagen) führt zu einer deutlichen Verringerung der Konzentration.

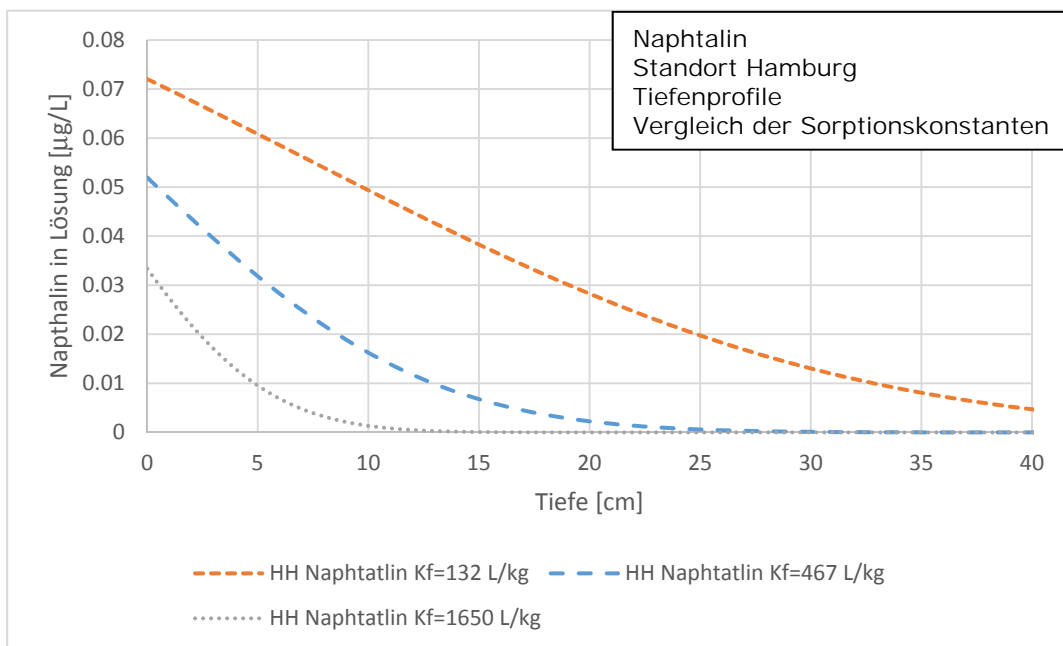


Abbildung 18: Die Tiefenprofile der PAK in der Bodenlösung am Standort Hamburg bei verschiedenen Sorptionskonstanten.

### 4.3. Kupfer

Charakter:

- Zeitlich konstante Emission aus berechneten Bauteilen und daher eine konstante Konzentration im Bodenwasserzufluss
- Mittlere bis hohe Sorption
- Kein Abbau

Aufgrund der in längeren Zeiträumen (>2 Jahre) als konstant angenommenen Emission von Kupfer aus den Bauteilen ergibt sich ein dauerhaft konstanter Massefluss in den Boden (vgl. Kapitel 3.9). Dieser Massenfluss wird durch die Versickerungsrate (Tabelle 2) und die Konzentration (Tabelle 9) gegeben.

Wegen der vom Betrag her mittleren bis hohen durch die Pedotransferfunktionen nach Utermann et al. (2005) geschätzten Sorptionskoeffizienten der Freundlich-Isotherme (z.B. am Standort Hamburg  $K_f=337$  L/kg, am Standort Kremsmünster  $K_f=4865$  L/kg) ist der größte Teil des Kupfers sorbiert. Die typischen Tiefenprofile des gelösten Masseanteils, die für Hamburg in Abbildung 19 und für Kremsmünster in Abbildung 20 dargestellt sind, machen weit weniger als 1% der Gesamtmasse (gelöst plus sorbiert) aus.

Der Vergleich der beiden Standorte in Abbildung 21 ergibt, dass bei fast gleich hoher Versickerung und Input-Konzentration aufgrund des sandigen Standortes in Hamburg ( $K_f=337$  L/kg) die Sorption viel kleiner ist als in Kremsmünster ( $K_f=4865$  L/kg).

In Abbildung 22 werden Simulationen für das OECD Modellhaus am Standort Hamburg mit 3 verschiedenen Annahmen verglichen. Der mittlere Sorptionskoeffizient  $K_f=337$  L/kg wird als geometrisches Mittel eines hohen und eines tiefen Sorptionskoeffizienten ( $K_{f\text{ hoch}}=774$  L/kg,  $K_{f\text{ tief}}=168.5$  L/kg) angesehen, die sich um den Faktor 4 unterscheiden (vgl. Kapitel 3.10).

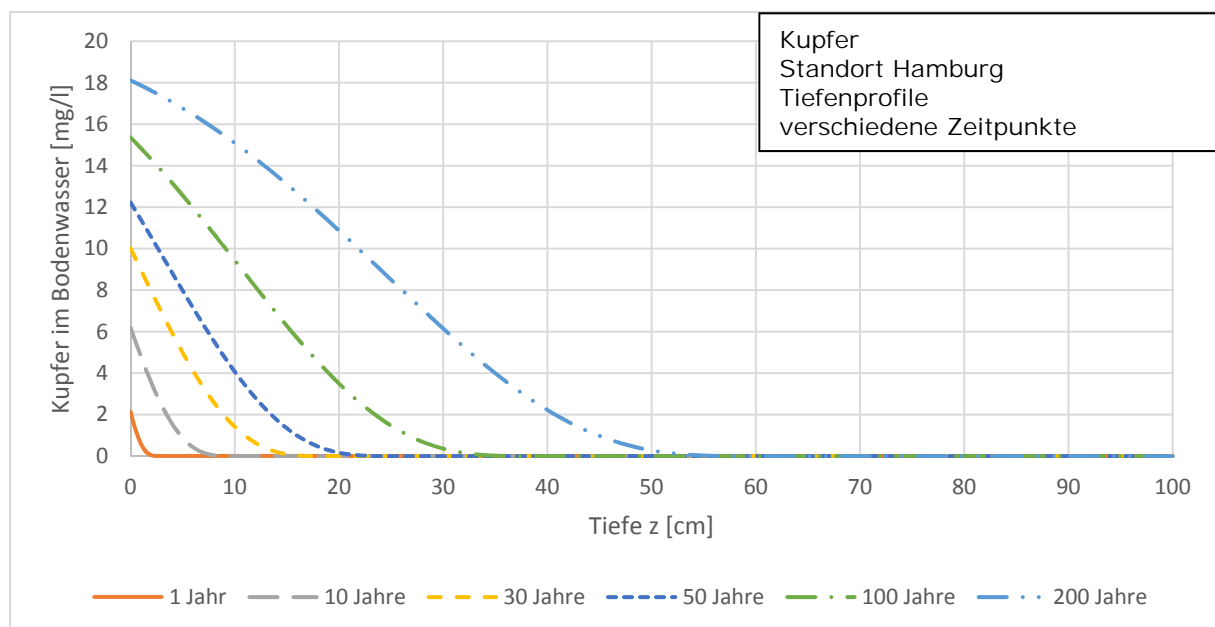


Abbildung 19: Tiefenprofile der Kupfer-Konzentration im Bodenwasser am Standort Hamburg zu verschiedenen Zeitpunkten, verursacht durch Emissionen aus den Kupferfassaden des OECD Modellhauses bei einer Versickerungsfläche von  $25\text{ m}^2$ , mit der PTF von Utermann et al. (2005) geschätzte Freundlich-Isotherme (Freundlich-Parameter  $K_f=337$  L/kg,  $n=0.758$ , vgl. Tabelle 12).

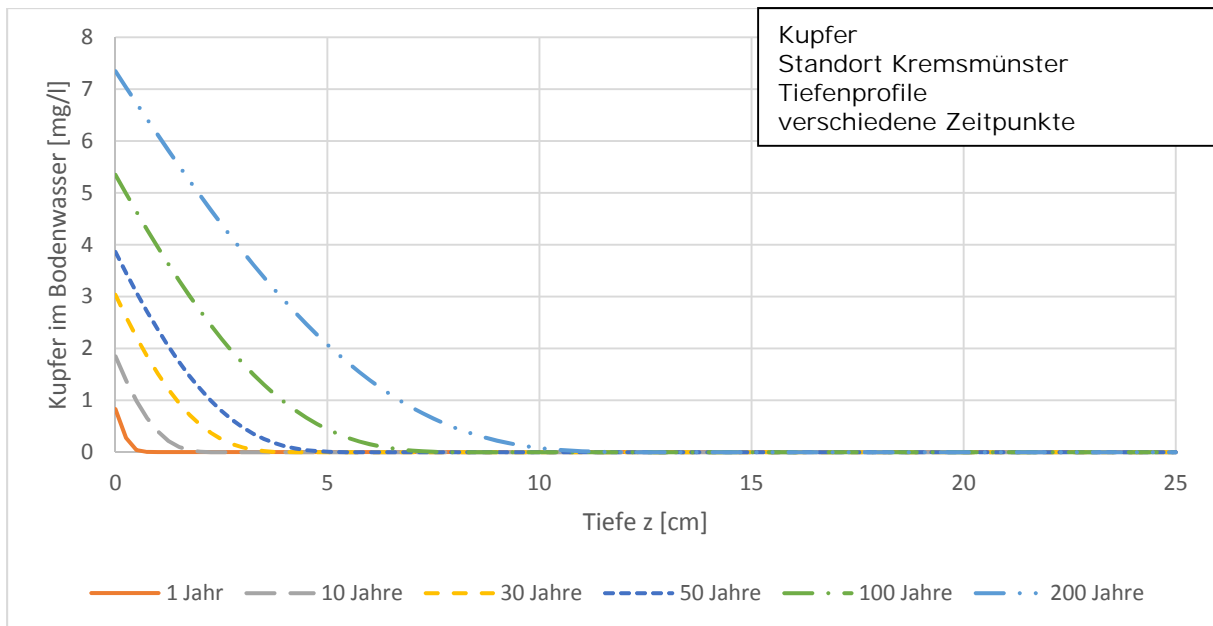


Abbildung 20: Kupfer-Tiefenprofile für den Standort Kremsmünster, zum Vergleich mit Abbildung 19. Aufgrund der hohen Sorption (Freundlich-Parameter  $K_f=4865$  L/kg,  $n=0.758$ , vgl. Tabelle 12) erfolgt die Verlagerung sehr langsam (daher sind die Tiefenprofile nur bis 25 cm Tiefe dargestellt).

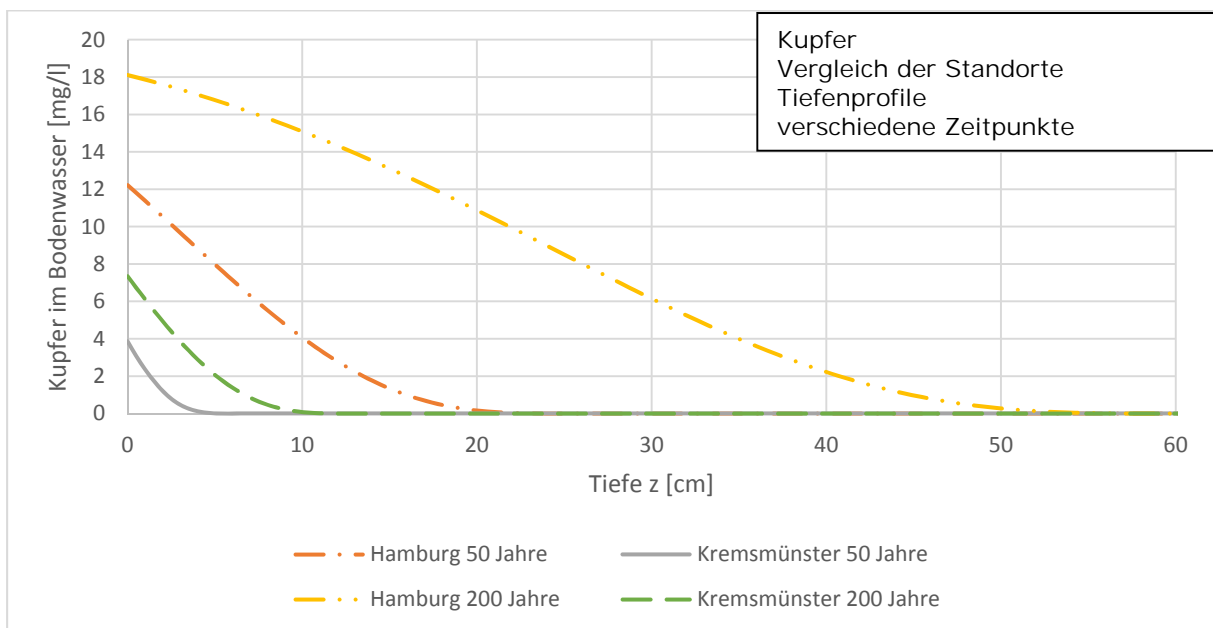


Abbildung 21: Vergleich der Standorte Hamburg und Kremsmünster: Bei fast gleich hoher Versickerung und Input-Konzentration ist aufgrund des sandigen Standortes in Hamburg ( $K_f=337$  L/kg) die Sorption viel kleiner als in Kremsmünster ( $K_f=4865$  L/kg).

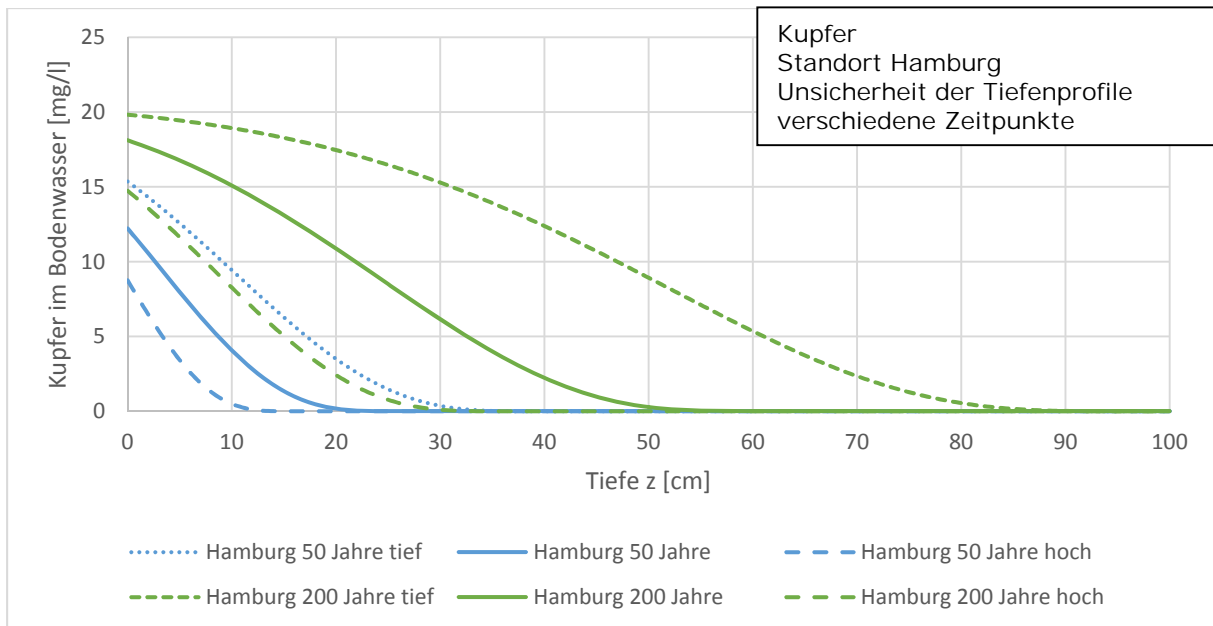


Abbildung 22: Bandbreite der Tiefenprofile aufgrund der Unsicherheit der Vorhersage der Pedotransferfunktion, die eine Grössenordnung (Utermann et al. 2005) ausmachen kann. Freundlich Sorptionskoeffizienten Hamburg  $K_{f\text{tief}}=168.5 \text{ L/kg}$ ,  $K_{f\text{mitte}}=337 \text{ L/kg}$ ,  $K_{f\text{hoch}}=674 \text{ L/kg}$ , Freundlich Exponent  $b=0.758$ .

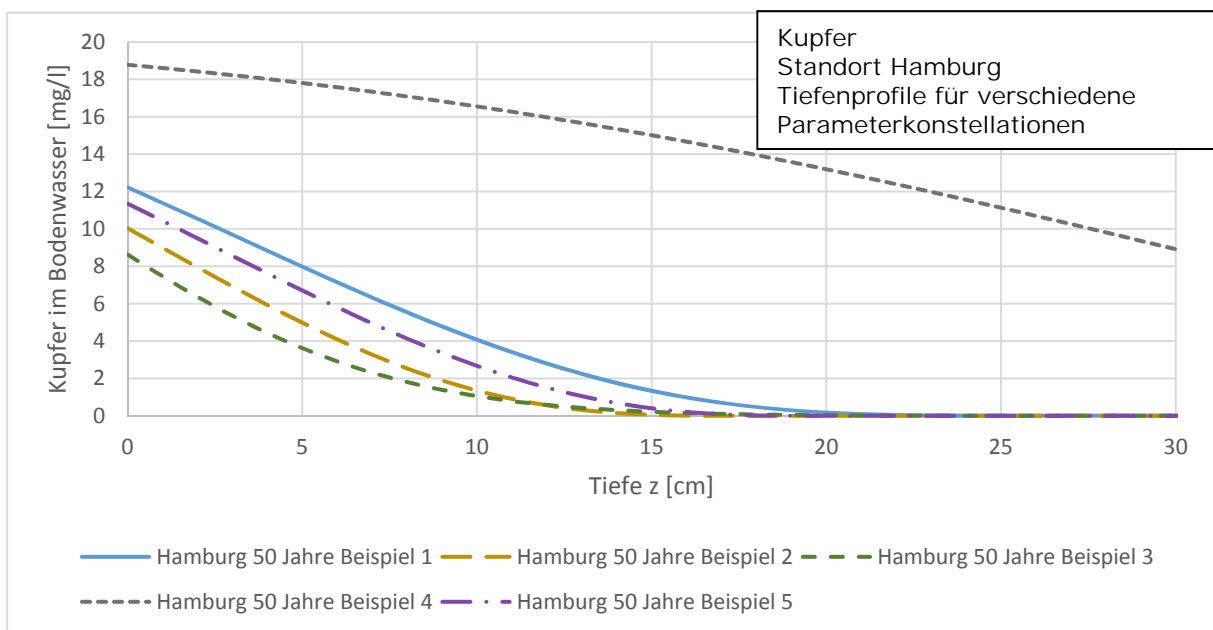


Abbildung 23: Beispielrechnungen für den Standort Hamburg mit durch Pedotransferfunktionen vorhergesagten Sorptionsparameter (gemäss Tabelle 11).

In den Beispielrechnungen (vgl. Abbildung 23 und Tabelle 11) unterscheidet sich Beispiel 2 (Berechnung ohne Tongehalt,  $K_f=591 \text{ L/kg}$ ) von Beispiel 1 (Berechnung mit Tongehalt,  $K_f=337 \text{ L/kg}$ ) durch den höheren Sorptionskoeffizienten. Im Beispiel 4 mit  $K_f=75 \text{ L/kg}$  liegt der Tongehalt 0.1% ausserhalb des Bereiches, in dem die Pedotransferfunktionen bestimmt wurden. Beispiel 3 ( $b=1.045$ ) und 5 ( $b=0.694$ ) unterscheiden sich durch den Exponenten. Ein hoher Exponent führt hier dazu dass auch in grösserer Tiefe die Konzentration leicht ansteigt.

Insgesamt zeigen die Beispielrechnungen, dass die Tiefenprofile im Normalfall relativ dicht beisammen liegen, so dass die Pedotransferfunktionen eine akzeptable Genauigkeit zeigen.



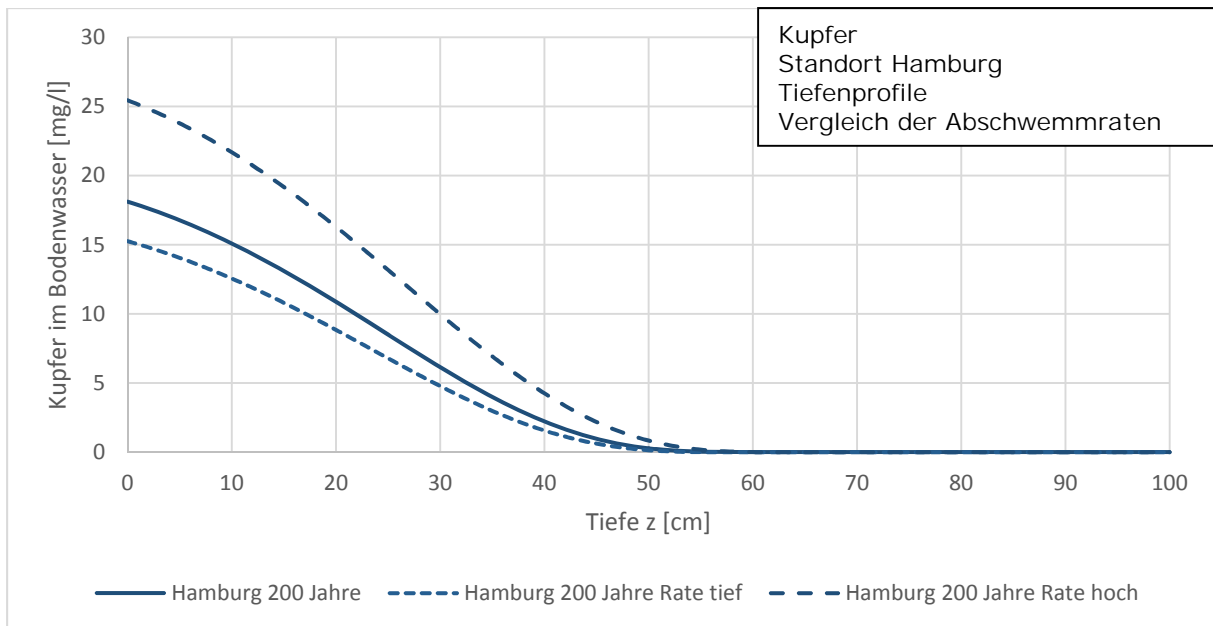


Abbildung 24: Untersuchung der verschiedenen Kupfer-Abschwemmraten (tief:  $1.1 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , Empfehlung  $1.3 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , hoch:  $1.8 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , vgl. Tabelle 9).

Die Untersuchung des Bereiches der in der Literatur angegebenen Abschwemmraten ist in Abbildung 24 dargestellt. Die Höhe der Abschwemmraten ist insbesondere für hohe Konzentrationen nahezu direkt proportional zur Höhe der Konzentrationen im Tiefenprofil. Die Verlagerungstiefe wird durch die Abschwemmraten wenig verändert.

## 5. Diskussion und Ausblick

Emissionen aus berechneten Bauteilen können auch im Boden versickern. Die Simulation des Verhaltens im Boden erfordert Eingabedaten, die nur im Einzelfall aufwändig gemessen werden können und sonst mit Schätzverfahren berechnet werden müssen.

Zunächst mussten prototypische Anwendungsfälle definiert werden. Sie bestehen aus begründeten Annahmen über die Emission der Substanzen aus den berechneten Bauteilen und darüber, wie sie in den Boden gelangen können. Für alle Substanzen wurde die obere Randbedingung als von-Neumann-Randbedingung für die prototypischen Simulationen der Verlagerung im Boden erarbeitet. Für die Standorte wurden der (konstante) Wasserzufluss und die (teilweise variable) Stoffkonzentration darin bestimmt. Dabei wurde soweit möglich das Standardvorgehen bei den Holzschutzmitteln adaptiert (OECD, 2013). Bei der Berechnung des Dachabflusses war dies nicht möglich und daher wurde dafür ein analoges Vorgehen vorgeschlagen (Kapitel 3.6). Ziel war es hier, eine möglichst einfache, durchschaubare Berechnung zu entwickeln, die auf einer langfristigen Zeitskala über mehrere Jahre eine realistische Abschätzung darstellt. Auf den an sich notwendigen Vergleich mit einer kurzfristig ereignisbasierte Modellierung wurde hier verzichtet.

Die Sorptions- und Abbauparameter der Substanzen wurden mit Schätzverfahren bzw. Pedotransferfunktionen bestimmt. Der Unsicherheit der Schätzverfahren wurde durch zusätzliche Simulationen Rechnung getragen, in denen die Randwerte der Unsicherheitsbereiche verwendet wurden. Auf diese Weise kann die Unsicherheit der Schätzverfahren durch deren Auswirkungen auf die Tiefenprofile bzw. Durchbruchkurven eingeschätzt werden.

Grundsätzlich ergibt sich, dass durch die Schätzverfahren Simulationen möglich werden, die nachvollziehbare, erklärbar plausible Resultate zeigen. Das heisst, dass die verwendeten

Schätzverfahren geeignet sind, um die prinzipielle Dynamik zu erfassen, die durch die Kombination der Emission aus berechneten Bauteilen mit der Verlagerung im Boden entsteht.

Um eine quantitativ belastbare Aussage über die Grundwasserbelastung durch Emissionen aus berechneten Bauteilen treffen zu können, müssten jedoch die Unsicherheiten in den Einzelschritten von der Emission bis zum Ort der Beurteilung in 1 m Tiefe genauer ermittelt und im Sinne einer Fehlerfortpflanzung berechnet werden.

Eine Fehlerfortpflanzungsrechnung für die Emissionen aus den berechneten Bauteilen wäre möglich. Bei der Verlagerung der Substanzen im Boden wurde in diesem Bericht der Makroporenfluss nicht berücksichtigt. Eine genauere Fehlerfortpflanzung würde nur sinnvoll sein, wenn der Fehler berücksichtigt werden könnte, der durch das Fehlen des Makroporenflusses im Simulationsmodell allein schon im Oberboden bedingt ist.

Fast in allen Fällen ergibt sich mindestens in den ersten Jahren eine sehr hohe Konzentration in den oberen Bodenschichten und in 1 m Tiefe eine sehr viel kleinere Konzentration, die jedoch häufig über dem Grenzwert von  $0.1 \mu\text{g}$  liegt.

## 5.1. Terbutryn

Bei Terbutryn ist zu beachten, dass eine höhere Sorption zwar zu einer verlangsamten Verlagerung führt, dass dieser Zeitgewinn aber nicht dazu führt, dass mehr Terbutryn abgebaut wird. Dadurch, dass der Abbau in der Bodenlösung erfolgt, bewirkt eine höhere Sorption auch einen verringerten Abbau – und zwar überproportional. Überproportional heisst in diesem Fall: eine höhere Sorption verringert den Abbau so stark, dass die Gesamtmenge von Terbutryn (gelöst und sorbiert), die in 1 m Tiefe ankommt, bei höherer Sorption zwar später ankommt, aber auch grösser ist als bei niedriger Sorption.

Für Terbutryn wurde auch gezeigt, dass die Dispersivität einen Einfluss hat. Bei hoher Dispersivität ( $\lambda=10 \text{ cm}$ ) trat eine schnellere Verlagerung auf als bei niedriger Dispersivität ( $\lambda=1 \text{ cm}$ ), so dass bei hoher Dispersivität mit höheren Konzentrationen in grösserer Tiefe zu rechnen ist.

Für Terbutryn entsteht ein Worst-Case-Szenario, wenn die Sorption gross ist, der Abbau klein und die Dispersion gross ist. Die Angaben zu Abbau und Sorptionsparametern aus verschiedenen Quellen sind recht unterschiedlich. Zur Beurteilung von Terbutryn wäre es hilfreich, wenn auch für die Dispersion ein genaueres Schätzverfahren existieren würde.

## 5.2. Mecoprop und PAK's

Mecoprop sorbiert nur wenig an die Bodenmatrix, wird dafür aber relativ schnell abgebaut. Mecoprop unterliegt aber hauptsächlich dem biologischen Abbau. Wenn im Unterboden nur eine geringe Menge organischer Substanz liegt, kann Mecoprop dort möglicherweise nur wenig abgebaut werden. Ein mögliches Risiko besteht darin, dass Mecoprop durch Makroporenfluss im Oberboden relativ schnell in den Unterboden gelangt und dort nicht mehr abgebaut wird.

Die Schätzung des Sorptionskoeffizienten für Mecoprop war schwierig, weil in mehreren Quellen verschiedene Werte angegeben werden. Eine konservative Einschätzung wurde dadurch erreicht, dass der höhere Sorptionskoeffizient für die Simulationen verwendet wurde.

Die PAK's sollten in etwa die gleiche prinzipielle Dynamik aufweisen wie Mecoprop, weil die Randbedingung auf dieselbe Art berechnet wird. Allerdings besitzen die PAK's eine sehr hohe Sorption und der Bereich der Halbwertszeiten liess sich nicht weiter eingrenzen.

Aufgrund der geringen Konzentrationen in dem Bodenwasserzufluss liegen die Lösungskonzentrationen der PAK's in den hier vorgestellten Berechnungen immer unterhalb von  $0.1 \mu\text{g/L}$ .

Für Mecoprop und die PAK's entstanden in den hier durchgeführten Simulationen zwei prinzipiell unterschiedliche Situationen: Bei hoher, dominanter Sorption bewegt sich wegen der kleineren Abbauraten und dem durch die Sorption zusätzlich verlangsamten Abbau die Schadstoff front langsam aber kontinuierlich durch den Boden. Bei starkem, dominantem Abbau bildet sich (wegen der geringen Sorption relativ schnell) ein Tiefenprofil heraus, indem genauso viel abgebaut wird wie durch die Verlagerung nachgeliefert wird, indem also ein Gleichgewicht zwischen der Verlagerung und Abbau entsteht.

### 5.3. Kupfer

Die Simulationen der Kupfer-Verlagerung im Boden ergibt das erwartete Verhalten, das durch die Sorption bestimmt ist. In sandigen Böden wie am Standort Hamburg ist die Sorption wesentlich geringer wie an lehmigen Standorten wie in Kremsmünster, wo die Verlagerung extrem verlangsamt ist. Wie auch immer: Der Boden bildet das Reservoir für die gleiche Menge Kupfer, die sich je nach Bodenart über verschiedene Tiefen verteilt.

Für Kupfer sind die vorhergesagten Sorptionskoeffizienten so gross, dass das Kupfer unter den getesteten Bedingungen auch nach 200 Jahren noch nicht in 1 m Tiefe angekommen ist. Dies bedeutet natürlich nicht, dass die Verwendung von Kupfer-Fassaden nachhaltig ist, denn die in dieser Zeit emittierte Kupfermenge hat sich vollständig im Bodenprofil akkumuliert und wird ohne Sanierungsmassnahmen auf Dauer eine langfristige Belastung des Grundwassers in der Höhe des gegenwärtigen Inputs verursachen, der für das mit 125 m<sup>2</sup> Fassadenfläche relativ kleine OECD Modellhaus auf 162.5 g/a geschätzt wird. Die Gesamtmenge wird sich auch durch möglichen Wasserfluss in Makroporen nicht verändern, denn der Makroporenfluss beeinflusst nur, wie schnell das Kupfer im Grundwasser ankommt, aber nicht wie viel.

Obwohl die Sorption auch nur den Zeitpunkt beeinflusst, wann das Kupfer im Boden ankommt und nicht wie viel, sind die Pedotransferfunktionen für die Sorptionskoeffizienten nach Utermann et al. (2005) sehr wertvoll. Denn damit können in ausreichender Genauigkeit optimale Beprobungs- und Sanierungszeitpunkte berechnet werden.

### 5.4. Ausblick

Die vorliegenden Berechnungen waren nur möglich, weil entsprechende Schätzverfahren für die Bestimmung der Modellparameter existieren. Die Berechnungen haben gezeigt, dass die Schätzverfahren für die Anwendung in Verbindung mit Emissionen aus berechneten Bauteilen gut geeignet sind. Sie können in einer Reihe von weiteren Anwendungen sinnvoll sein.

Hilfreich wären Berechnungen zur Verlagerung von weiteren Substanzen, die aus berechneten Bauteilen emittiert werden (z.B. Diuron), Berechnungen für spezielle Häuser und zugehörige Böden, und Berechnungen, in denen die erforderlichen Sanierungskosten für einzelne Häuser oder Siedlungen abgeschätzt werden.

Gleichzeitig könnte die Art der Berechnungen zusätzlich abgesichert werden, indem die vereinfachenden Annahmen zur Berechnung der Emissionen breit diskutiert werden, indem verschiedene Emissionsfunktionen und deren Einfluss auf die langfristige Verlagerung im Boden bestimmt wird, und indem die Genauigkeit der Schlagregenberechnung nach der ISO-Norm untersucht wird. Schliesslich wurde deutlich, dass die vorausgesetzte Dispersivität einen Einfluss auf die Verlagerung besitzt, der noch genauer zu untersuchen ist. Darüber hinaus wäre es sicherlich interessant, die aktuellen Berechnungen mit detaillierteren Bodenmodellen zu vergleichen (z.B. Pelmo oder LeachXS), in denen u.a. zwischen Oberboden und Unterboden besser differenziert werden könnte.

## Literatur

- Avidov, E., N. Aharonson, J. Katan, B. Rubin, und O. Yarden (1985), Persistence of terbutryn and atrazine in soil as affected by soil disinfestation and fungicides, *Weed Science*, 33, 457–461.
- Barrere, C., J. Bastide, und C. M. Coste (1988), Relations entre la vitesse de dégradation du propy-zamide et les propriétés physicochimiques des sols, *Weed Research*, 28(2), 93-99.
- Bear, J. (1979), *Hydraulics of Groundwater*, McGraw-Hill, New York.
- Boesten, J. J. T. I. (2004), Influence of dispersion length on leaching calculated with PEARL, PELMO and PRZM for FOCUS groundwater scenarios, *Pest Manag Sci*, 60, 971-980.
- Boesten, J. J. T. I., et al. (2014), Assessing Potential for Movement of Active Substances and their Me-tabolites to Ground Water in the EU, 613 pp., EFSA, EC Document Reference Sanco/13144/2010, version 3, 10 October 2014.
- Burkhardt, M., S. Zuleeg, R. Vonbank, K. Bester, J. Carmeliet, M. Boller, und T. Wangler (2012), Leach-ing of Biocides from Façades under Natural Weather Conditions, *Environmental Science & Technology*, 46(10), 5497-5503.
- Del Giudice, D. (2011), Integrated Modeling Framework for Assessing Dynamics of Facade Pollutants in the Urban Hydrologic Response, 120 pp, EPFL, Lausanne.
- FOCUS (2000), FOCUS groundwater scenarios in the EU review of active substances Rep., 202 pp, Re-  
port of the FOCUS Groundwater Scenarios Workgroup, EC Document Reference  
Sanco/321/2000 rev.2, 202 pp.
- Hennings, V., und A. Capelle (1994), Methodendokumentation Bodenkunde Auswertungsmethoden zur Beurteilung der Empfindlichkeit und Belastbarkeit von Böden, 242 S. pp., Schweizerbart, Stuttgart.
- Inoue, K., H. Shimada, und T. Tanaka (2013), Simultaneous Estimation of Transverse and Longitudinal Dispersion in Unsaturated Soils Using Spatial Moments and Image Processing, in Proceedings of the 18th International Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering, ed-  
ited, pp. 3033-3036, Paris.
- Karickhoff, S. W., D. S. Brown, und T. A. ScoTt (1979), Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments, *Water Res*(13), 241--248.
- OECD (2013), Revised Emission Scenario Document for Wood Preservatives, edited by OECD Environ-  
ment Directorate (Environment Health and Safety Division), Paris.
- Richter, J. (1986), *Der Boden als Reaktor Modelle für Prozesse im Boden*, XI, 239 S. pp., Enke, Stutt-  
gart.
- Selim, H. M. E. (2015), *Transport & fate of chemicals in soils principles & applications*, 336 S. pp., CRC  
Press, Boca Raton.
- Streck, T. (1993), *Schwermetallverlagerung in einem Sandboden im Feldmassstab Messung und Mo-  
dellierung*, Diss , Techn Univ Braunschweig, 1993 thesis, II, 113 S. pp, Braunschweig.
- Susset, B., und W. Leuchs (2008), *Ableitung von Materialwerten im Eluat und Einbaumöglichkeiten  
mineralischer Ersatzbaustoffe: Umsetzung der Ergebnisse des BMBF-Verbundes" Sickerwas-  
serprognose" in konkrete Vorschläge zur Harmonisierung von Methoden;*[Forschungsprojekt  
im Auftrag des Umweltbundesamtes, FuE-Vorhaben Förderkennzeichen (UFOPLAN)  
20574251]. Abschlussbericht, Umweltbundesamt.
- Susset, B., und U. Maier (2011), *Weiterentwicklung von Kriterien zur Beurteilung des schadlosen und  
ordnungsgemäßen Einsatzes mineralischer Ersatzbaustoffe und Prüfung alternativer Werte-  
vorschläge (Zwischenbericht 2010)*, 250 S. pp., Universität Tübingen, Tübingen.

- Tettenborn, F., und T. Hillenbrand (2014), Neue prioritäre/prioritär gefährliche Stoffe der Richtlinie 2013/39/EU des Europäischen Parlaments und des RatesRep., 109 pp, Fraunhofer-Institut für System- und Innovationsforschung (ISI).
- Thrasher, J., P. Morgan, und S. R. Buss (2004), Attenuation of mecoprop in the subsurfaceRep., 100 pp, Bristol.
- Tomlin, C. D. S., und British Crop Protection Council (2006), <<The>> pesticide manual. Ed. 14, 14th ed., 1349 S. pp., Bcpc, Alton.
- Utermann, J., G. Meyenburg, S. Altfelder, H.-E. Gäbler, W. H. M. Duijnsveld, A. Bahr, und T. Streck (2005), Entwicklung eines Verfahrens zur Quantifizierung von Stoffkonzentrationen im Sickerwasser auf der Grundlage chemischer und physikalischer Pedotransferfunktionen, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover.