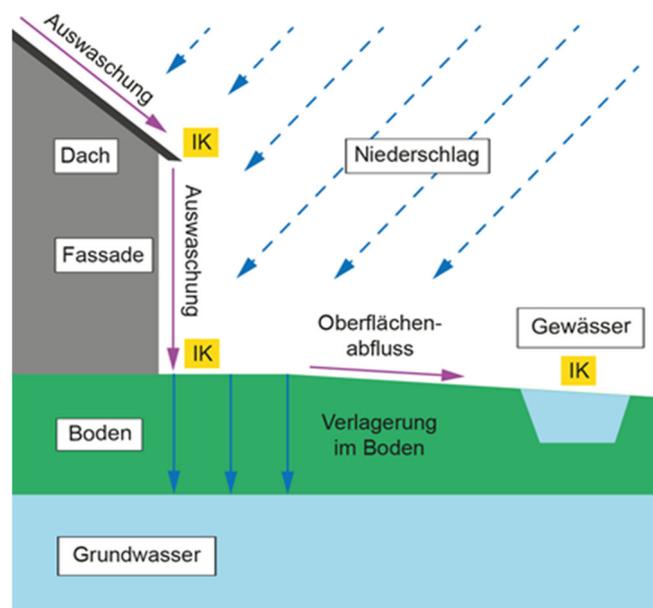


Auswaschung von Bioziden aus Bauprodukten und Exposition in der Umwelt

Berechnung von ESD-Szenarien und Modellierung mit der Software COMLEAM



Autoren:

Michael Burkhardt, Silvan Gehrig, Mirko Rohr, Olaf Tietje

Im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU)

Rapperswil, 1. März 2021

Impressum

Auftraggeber

Bundesamt für Umwelt (BAFU), Abteilung Luftreinhaltung und Chemikalien, 3003 Bern, Schweiz

Das BAFU ist ein Amt des Eidg. Departements für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation (UVEK).

Auftragnehmer

OST – Ostschweizer Fachhochschule, Oberseestrasse 10, 8640 Rapperswil, Schweiz

Autoren

Michael Burkhardt, Silvan Gehrig, Mirko Rohr, Olaf Tietje

Hinweis

Diese Studie/dieser Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU) verfasst. Für den Inhalt ist allein der Auftragnehmer verantwortlich.

Zitiervorschlag

Burkhardt, M., Gehrig, S., Rohr, M., Tietje, O. (2021): Auswaschung von Bioziden aus Materialien und Exposition in der Umwelt - Modellierung mit COMLEAM-Software. Bericht im Auftrag des Schweizer Bundesamts für Umwelt (BAFU), Rapperswil

Zusammenfassung

Hintergrund: Durch Regen auf der Gebäudehülle können Biozide und andere Chemikalien aus Bauprodukten ausgewaschen werden. Bekannt sind solche Stofffreisetzungen beispielsweise aus Holzschutzmitteln, Fassadenputzen sowie Dach-, Fassaden- und Holzfarben. Emittierbare Biozide und deren möglichen Umweltrisiken werden bei deren Zulassung mittels einheitlicher Emissionsszenarien (Emission Scenario Document, ESD) abgeschätzt. In ESDs sind gewisse Einflussgrössen wie Gebäudeanzahl, -flächen und Zielkompartimente festgelegt. Definiert ist auch eine zweiphasige, lineare Stoffemission über die Nutzungszeit (Time1, Time2). Bauprodukte in Laborversuchen oder unter realen Anwendungsbedingungen zeigen jedoch, dass die Emissionen über die Zeit abnehmen. Zwischen dem Ansatz der ESDs, die Emissionen linear anzusetzen, und der realen dynamischen Auswaschung besteht folglich ein Unterschied.

Software COMLEAM: Mit der Software COMLEAM (COstruction Material LEaching Model, Ostschweizer Fachhochschule) lassen sich wetter- und geometrieabhängige Stoffemissionen aus Bauteilen, Gebäuden oder Siedlungen dynamisch berechnen. Die zeitliche Auflösung der Simulation beträgt eine Stunde, sodass die Variabilität der Regen- und Trockenwetterphasen abgebildet ist. Die Software stellt eine Plattform dar, mit der sich unter Berücksichtigung individuell definierbarer Faktoren (Substanz, Material, Emissionsfunktion etc.) oder Szenarien (Gebäudegeometrien, Gewässergrösse etc.) die Auswaschung und Umweltexposition abschätzen lassen. Die modellierten zeit- und wetterabhängigen Konzentrationen und Frachten werden anhand stoffspezifischer Qualitätskriterien beurteilt.

Ziele: Mit COMLEAM soll die Auswaschung und Gewässerbelastung von drei Bioziden (Diuron frei, Terbutryn frei, Terbutryn verkapselt) mittels Szenarien simuliert und mit Resultaten aus ESD Berechnungen verglichen werden. Diese rein konzeptionelle Betrachtung zielt darauf ab, Hinweise zur Sensitivität ausgewählter Parameter in beiden Berechnungsmethoden und zum möglichen Mehrwert der COMLEAM Simulationen bei der Stoffbewertung zu geben. Die konzentrationsbasierten Resultate dienen der besseren Vergleichbarkeit von ESDs und COMLEAM-Simulationen, und sind nicht als effektiv auftretende Konzentrationen in Gewässern zu interpretieren.

Vorgehen: ESDs stellen die etablierte Methode der Beurteilung von Biozidprodukten dar. Aus diesen wurden soweit wie möglich Parameter für die COMLEAM Simulationen hergeleitet. Die dynamischen Simulationen waren somit auf die Vergleichbarkeit mit ESDs ausgerichtet. Folgende drei ESDs fanden Berücksichtigung:

- Land-Szenario Fassade (Country, PA 7, 8, 10): Fassaden von einem Haus
- Stadt-Szenario Fassade (City, PA 7, 10): Fassaden von 4000 Häusern
- Stadt-Szenario Dach (Roof, PA 9): Beschichtung auf 300 Dächern

Zusätzlich wurde in COMLEAM ein "Land-Szenario Dach" (ein Haus, nur Dach) betrachtet. Reale Auswaschdaten aus Feldversuchen wurden für die Berechnungen der ESDs sowie zur Parametrisierung der Emissionsfunktionen in COMLEAM beigezogen. Die dynamischen Simulationen wurden darüber hinaus mit Wetterdaten von drei europäischen Standorten (Hamburg, Sevilla, Zürich) sowie drei Gewässergrössen (klein, mittel, gross) durchgeführt, um die Skalierbarkeit der Faktoren abzuklären.

Resultate: Die Frachten der ESD-Berechnungen und dynamischen Simulationen zeigen, dass die mittels ESD berechneten Emissionsmengen über die betrachtete Lebensdauer in allen Szenarien deutlich höher liegen als in COMLEAM: Bei Fassaden 1.5- bis 2-fach, bei Dächern sogar 4- bis 30-fach. Die Unterschiede bei den Fassaden sind darauf zurückzuführen, dass in ESDs alle Gebäudeseiten emissionsrelevant sind (worst-case), während in COMLEAM die Emission nur an der Schlagregenseite auftritt (real-case). Dadurch wird in COMLEAM nicht nur weniger, sondern ausschliesslich expositionsorientiert emittiert (in Hauptwindrichtung ca. 50 % der Gesamtmenge). Bei den Dachflächen verbindet sich der Unterschied vor allem mit der Annahme im ESD, dass 100 % der Biozidmenge über

die Lebensdauer ausgewaschen wird. Im Gegensatz dazu wird in dynamischen Simulationen eine Freisetzung von weniger als 25 % erwartet.

Die Durchschnittskonzentrationen im Gewässer hingegen sind in den ESD-Berechnungen niedriger als über die gleiche Zeitspanne in COMLEAM, sowohl bezogen auf T1, als auch betrachtete Lebensdauer. Diese Unterschiede sind methodisch begründet: In ESDs ist eine zweiphasige, lineare Emission und bei COMLEAM eine zeitaufgelöste, logarithmisch abnehmende Emission berücksichtigt. Unter Berücksichtigung der Zeitauflösung und des Witterungsverlaufs treten Emissionsschwankungen auf. Die höheren Durchschnittskonzentrationen wiederum verbinden sich mit konstant hohen vs. geringeren, schwankenden Ablaufmengen in COMLEAM (vgl. Kap. 8.5). Weiterhin ist in ESDs die Gewässergrösse (Verdünnung) nur über einen Verdünnungsfaktor berücksichtigt, stellt somit eine statische Grösse dar, während die Wassermengen in COMLEAM vom dynamischen Abflussverhalten der Gebäude beeinflusst sind und dadurch die Gewässerkonzentrationen beeinflussen. Die in COMLEAM berechneten Emissionen und Konzentrationen im Gewässer stellen eine gute Näherung an die Realität dar und folglich eine wertvolle Ergänzung zur Beurteilungsmethodik mit ESDs (Time1- und Time 2-Ansatz).

Grosse Unterschiede traten in den abfliessenden Wassermengen auf. Da im "Stadt-Szenario Fassaden" keine Dachfläche berücksichtigt ist, erreicht die niederschlagsgetriebene COMLEAM Simulation viel kleinere Abflussmengen als in den Berechnungen gemäss ESD, welches von einer gleichbleibend hohen täglichen Einleitmenge ausgeht.

Die Anzahl und Dauer von Überschreitungen im Vergleich zu einem allgemeinen Anforderungswert (0.1 µg/L) in den COMLEAM-Simulationen ermöglichte eine gegenüber ESD-Berechnungen weitergehende Analyse potentieller Einträge in die Oberflächengewässer. So nimmt der Einfluss des Standorts mit der Grösse des Gewässers ab, während der Einfluss der Emissionsrate (=Stoffeigenschaft) zunimmt. Die hohe zeitliche Auflösung zeigte auch, dass sich mittels Szenarien die möglichen akuten und chronischen Gewässerrisiken detaillierter als in ESDs abschätzen lassen.

In der Sensitivitätsanalyse der Emissionsfunktionen stellte sich die logarithmische Emissionsfunktion als besonders geeignet für biozide Stoffemissionen heraus. In einer systembezogenen Sensitivitätsanalyse wurde untersucht, wie sich diverse Einflussfaktoren auf bestimmte Zielgrössen auswirken. Dabei wurden die Ergebnisse der Szenario-Berechnungen bestätigt und gezeigt, dass nicht alle Standorte zu grundsätzlich verschiedenen Zielwerten führen. Zum Beispiel scheinen hohe Niederschlagsmengen in Zürich nicht zu einer grundsätzlich anderen Emissionsbilanz zu führen als die geringeren Niederschläge unter Berücksichtigung von mehr Schlagregen in Hamburg.

Schlussfolgerungen und Ausblick: Die ESDs stellen eine bewährte Basisbeurteilung für Biozidprodukte bereit. ESDs sind ein gut strukturiertes und europaweit einheitliches Instrument zur Umweltbewertung von Bioziden. Damit lassen sich die wesentlichen Eckpunkte der Emissionen schnell ermitteln, wie die maximal möglichen Emissionen oder die Stofffrachten in die Umwelt. Einige Annahmen könnten dennoch nachjustiert werden, z.B. die gewählte Gebäudegrösse im Land-Szenario, Anzahl Gebäude im Stadt-Szenario oder die Verdünnungswirkung im Gewässer, um die Resultate dichter an realen Bedingungen auszurichten.

COMLEAM bietet sich an für eine komplementäre, verfeinerte Risikobetrachtung, beispielsweise wenn der zeitliche Verlauf möglicher Pulsbelastungen im Gewässer als ergänzende Information zu den Resultaten von ESDs benötigt wird. Mit der dynamischen Simulation lässt sich die regengetriebene Stofffreisetzung am Gebäude vor allem zeitlich differenziert abschätzen und damit die Anzahl und Dauer möglicher Überschreitungen mit akuten und chronischen Anforderungswerten abgleichen. Für diese Betrachtungsebene sind die Simulationsrandbedingungen gut begründet festzulegen (z.B. realitätsnah oder worst-case). Sensitive Parameter in der dynamischen COMLEAM-Simulation sind beispielsweise die Einsatzmenge eines Biozids, die Stoffeigenschaft (Emissionsfunktion), das Wetter und die Gewässergrösse. Insbesondere die Wetterdaten der Europäischen FOCUS-Standorte und verschiedene Gewässergrössen können gut in ein europaweites Konzept integriert werden.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Inhaltsverzeichnis	3
Abbildungsverzeichnis.....	6
Tabellenverzeichnis.....	8
1 Einleitung.....	1
2 Ziele und Vorgehen	1
2.1 Ziele	1
2.2 Vorgehen	2
3 Software COMLEAM.....	2
3.1 Modellstruktur	2
3.2 Dynamische Simulationen	3
3.2.1 Wasser- und Stoffbilanzen	3
3.2.2 Schlagregenberechnung	4
3.3 ESD-Szenarien in COMLEAM.....	4
4 Szenarien für die Biozid-Berechnungen.....	5
4.1 Spezifische Daten für die Berechnungen	5
4.1.1 Auswaschdaten und Emissionsfunktionen	5
4.1.2 Emissionsansätze für flächenspezifische Stofffreisetzung.....	6
4.1.3 Wetterdaten und Schlagregen.....	8
4.1.4 Gebäudegeometrie.....	8
4.2 Beschreibung der ESD-Szenarien.....	8
4.2.1 Land-Szenario Fassade	9
4.2.2 Land-Szenario Dach.....	9
4.2.3 Stadt-Szenario Fassade	9
4.2.4 Stadt-Szenario Dach	10
5 Ergebnisse der ESD-Berechnungen	11
5.1 Land-Szenario Fassade	11
5.2 Stadt-Szenario Fassade	11
5.3 Stadt-Szenario Dach	12
6 Ergebnisse der dynamischen Simulation mit COMLEAM.....	12
6.1 Land-Szenario Fassade	13
6.2 Land-Szenario Dach.....	15
6.3 Stadt-Szenario Fassade	16
6.4 Stadt-Szenario Dach	17
7 Einflussfaktoren in dynamischen COMLEAM-Simulationen	18
7.1 Standortbezogene Witterung.....	18
7.2 Gewässergrösse.....	19
7.3 Eigenschaften der Biozide.....	20

8	Vergleich von ESDs und dynamischen Simulationen	20
8.1	Land-Szenario Fassade	21
8.2	Land-Szenario Dach	22
8.3	Stadt-Szenario Fassade	22
8.4	Stadt-Szenario Dach	23
8.5	Stadt-Szenario Fassade mit angepassten Parametern.....	24
8.5.1	Ergebnis Gesamtabfluss	25
8.5.2	Ergebnis Gesamtemission über fünf Jahre	26
8.5.3	Ergebnis Konzentration im Regenwasserabfluss.....	26
8.5.4	Ergebnis Gewässerkonzentration.....	27
8.5.5	Schlussfolgerung zu Parameteranpassung.....	28
8.6	Fazit des Modellvergleichs	29
9	Sensitivitätsanalyse der Emissionsfunktionen	30
9.1	Logarithmische Emissionsfunktion	31
9.2	Langmuir-Desorptionsfunktion.....	32
9.3	Begrenzte Wachstumsfunktion.....	33
9.4	Diffusionsansatz	34
9.5	Analyse der Emissionsfunktionen.....	35
10	Systembezogene Sensitivität	37
10.1	Relevante Grössen und Ausprägungen	37
10.2	Zusammenhänge zwischen Eingabefaktoren und Zielgrössen.....	38
10.2.1	Einfluss der Substanz.....	40
10.2.2	Gewässergrösse.....	41
10.2.3	Geometrie	42
10.2.4	Standorteigenschaften.....	43
10.2.5	Schlagregen.....	44
11	Expositionsklassierung	45
12	Schlussfolgerungen und Ausblick.....	47
13	Literaturverzeichnis	50
Anhang A.	Grundlage	52
Anhang B.	Simulationsresultate	53
Anhang B.1	Parameter der Emissionsfunktionen.....	53
Anhang B.2	Expositionsanalyse	53
Anhang B.3	Nichtlinearität Gewässergrösse.....	58
Anhang B.4	Einfluss der Renovationsrate auf die Gewässerkonzentration.....	60
Anhang B.5	Einfluss Einsatzkonzentration.....	61
Anhang C.	Sensitivitätsanalyse	62
Anhang D.	Expositionsklassierung	68
Anhang E.	COMLEAM-Bericht – Beispiel	70
Anhang F.	Daten zu Abbildung 17	74

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Logischer Aufbau der Software COMLEAM.....	3
Abbildung 2: Vorgehen zur Berechnung von Schlagregen an Fassaden.	4
Abbildung 3: Übersicht zu den neun ESD- und 72 COMLEAM-Szenarien für die Biozide.	5
Abbildung 4: Felddaten mit logarithmischer Emissionsfunktion für Terbutryn frei und verkapselt (links) und Diuron frei (rechts). Die Marker stellen die Messwerte dar.....	6
Abbildung 5: Aus Felddaten ermittelte logarithmische Emissionsfunktion. Eingezeichnet sind die kumulierten spezifischen Emissionen (Q_{leach}) für den Abfluss nach 30 Tagen ($r_{30} = \text{Time1}$) und nach 5 Jahren ($r_s = \text{Time2}$ bzw. service life).	7
Abbildung 6: Dimensionen vom Modellhaus, welches in ESDs genutzt wird.	9
Abbildung 7: Expositionsabhängiger relativer Windanteil (% , oben) und kumulierter Fassadenabfluss (L/m^2 , unten) für die Standorte Zürich, Hamburg und Sevilla über fünf Jahre (2011 bis 2016)..	13
Abbildung 8 Land-Szenario Fassade mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen (oben) und mittleren Gewässer (unten).	14
Abbildung 9: Land-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen Gewässer	15
Abbildung 10: Land-Szenario Dach(links) und Land-Szenario Fassade (rechts) mit den Konzentrationen von Diuron in einem mittleren Gewässer durch die Einleitung von Dachwasser und vom Fassadenabfluss (rechts).....	16
Abbildung 11: Stadt-Szenario Fassade mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts in COMLEAM-Simulationen für ein kleines (oben) und grosses Gewässer (unten).	16
Abbildung 12: Stadt-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im mittleren Gewässer.....	17
Abbildung 13: Vergleich Konzentrationsverlauf Terbutryn frei für das Land-Szenario Fassade (links) und Land-Szenario Dach (rechts) im mittleren Gewässer.	18
Abbildung 14: Konzentrationen im Land-Szenario für Terbutryn verkapselt im kleinen (links) und mittleren Gewässer (rechts). Eintragsquelle ist das Einzelhaus.....	19
Abbildung 15 Einfluss vom charakteristischen Abfluss q_{char} (L/m^2) in der logarithmischen Funktion als relevanter Stoffparameter auf die Biozidemission.	20
Abbildung 16: Simulierte Emission von Terbutryn verkapselt vom Einzelhaus für das Land-Szenario Fassade mit den Wetterdaten von Zürich.	22
Abbildung 17: Vergleich der maximalen Steigung der logarithmischen Emissionsfunktion in COMLEAM und der linearen Steigung der Emissionsrate aus den ESD.....	27
Abbildung 18: Gegenüberstellung des ESD- und des COMLEAM-Ansatzes zur Berechnung der Stoffbilanz im Gewässer anhand der mittleren Konzentration während der Grenzwertüberschreitung.....	28
Abbildung 19: Vergleich der Sensitivitäten der beiden Parameter der logarithmischen Emissionsfunktion anhand der Testfaktoren.	31
Abbildung 20: Sensitivität der charakteristischen Emission proportional zum Parameter charakteristische Emission (links) und Sensitivität des charakteristischen Abflusses (rechts). .	32
Abbildung 21: Sensitivität des Emissionsfaktors a_{Lang} . (links) und des Formfaktors b_{Lang} (rechts) bei der Langmuir-Emissionsfunktion.	33
Abbildung 22: Sensitivität des Emissionsfaktors a_{LG} (links) und des Formfaktors b_{LG} in der Funktion für das begrenzte Wachstum.	34
Abbildung 23: Emissionsfaktors a_{diff} in Beziehung zur Abflussmenge in der Diffusionsansatz.	35
Abbildung 24: Charakteristischer Abfluss und charakteristische Emission (links) und die entsprechende Gruppeneinteilung für die logarithmische Emissionsfunktion.	36
Abbildung 25: Emissionsfunktionen der Biozide Diuron, Terbutryn frei und Terbutryn verkapselt.	39
Abbildung 26: Zielgrößen für die charakteristische Emission a_{char} (7.3, 33.9 und 147) an den drei Standorten.....	40
Abbildung 27: Einfluss der Wirkstoffe (D Diuron, Tf Terbutryn frei, Tv Terbutryn verkapselt) auf die Zielgrößen.....	41

Abbildung 28: Einfluss der Gewässergrösse (klein und mittel) auf die Zielgrössen.	42
Abbildung 29: Einfluss vom Szenario (Stadt=Stadt-Szenario Fassade, Land=Land-Szenario Fassade, Dach=Land-Szenario Dach) auf die Zielgrössen.	43
Abbildung 30: Einfluss von den Standortereigenschaften (Hamburg, Sevilla und Zürich) auf die Zielgrössen.	44
Abbildung 31: Zielgrössen bei verschiedenen Schlagregengmengen [L].	45
Abbildung 32: ESD-Bericht generiert in COMLEAM (Auszug).	52
Abbildung 33: Stadt-Szenario Fassade (oben) und Land-Szenario Dach (unten) mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus COMLEAM-Simulationen im mittleren Gewässer.	53
Abbildung 34: Stadt-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen Gewässer.	53
Abbildung 35: Konzentrationen im kleinen Gewässer (oben) und mittleren Gewässer (unten) vom Land-Szenario Dach für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).	54
Abbildung 36: Konzentration im kleinen Gewässer (oben) und mittleren Gewässer (unten) vom Land-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).	55
Abbildung 37: Konzentrationen im kleinen Gewässer (oben) und mittleren (unten) vom Stadt-Szenario Dach für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).	56
Abbildung 38: Konzentrationen im kleinen (oben) und mittleren Gewässer vom Stadt-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).	57
Abbildung 39: Konzentrationen im grossen Gewässer i vom Stadt-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapselte s Terbutryn (unten) aus den Simulationen.	58
Abbildung 40: Vergleich der Konzentrationsverläufe im Vorfluter beim Land-Szenario Fassade für Diuron im kleinen (links) und mittleren (rechts) Gewässer.	59
Abbildung 41: Vergleich der Konzentrationsverläufe im Vorfluter beim Stadt-Szenario Fassade für Diuron im kleinen (links) und mittleren (rechts) Gewässer.	59
Abbildung 42: Beispiel des Verlaufs der mittleren Abflusskonzentration von 800 Gebäuden.	60
Abbildung 43: Verläufe der mittleren Abflusskonzentrationen unterschiedlich alter Gebäude mit jährlichen Renovationszyklus.	60
Abbildung 44: Vergleich kumulierte Emission aus der Simulation vom Land-Szenario Fassaden am Standort Hamburg mit verkapseltem Terbutryn (links) und verkapseltem Terbutryn mit höherer Einsatzmenge (rechts).	61
Abbildung 45: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden für die charakteristische Emission a_{char} (oben links) und den charakteristischen Abfluss q_{char} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen bezogen auf die charakteristische Emission a_{char} (oben rechts) und den charakteristischen Abfluss q_{char} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.	62
Abbildung 46: Sensitivität der kumulierten Emissionsmenge der Fassade für den Parameter a_{Lang} (oben links) und b_{Lang} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer für den Parameter a_{Lang} (oben rechts) und b_{Lang} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.	62
Abbildung 47: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden für den Parameter a_{LG} (oben links) und b_{LG} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer bezogen auf den Parameter a_{LG} (oben rechts) und Parameter b_{LG} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.	63
Abbildung 48: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden bezogen auf den Parameter a_{Diff} (links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer bezogen auf den Parameter a_{Diff} (rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.	63
Abbildung 49: Ableitungen der Emissionsfunktionen und ihre Steigung im Ursprung für Terbutryn verkapselt.	64

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Versuchsrandbedingungen und Messdaten aus den Feldversuchen bei Zürich.	6
Tabelle 2: Funktionsparameter a_{char} und b_{log} für die logarithmische Emissionsfunktion.....	6
Tabelle 3: Kumulierte spezifische Freisetzungen $Q^{*leach,Time1}$ und $Q^{*leach,Time2}$ für die ESD-Szenarien...	8
Tabelle 4: Berechnungsparameter für das ESD "Stadt-Szenario Fassade".	10
Tabelle 5: Parameter für das Stadt-Szenario mit Dachbeschichtung.	11
Tabelle 6: Resultate Land-Szenario gemäss ESD.	11
Tabelle 7: Resultate des Stadt-Szenarios für Fassaden gemäss ESD-Berechnungen.	12
Tabelle 8: Resultate des Stadt-Szenarios mit Dachbeschichtung gemäss ESD-Berechnungen.	12
Tabelle 9: Jährliche Schlagregenmenge (WDR) je Fassadenausrichtung (L/m^2 , %) und expositionsorientierter Anteil des Fassadenabflusses am Niederschlag (Anteil Fassaden-/Niederschlagsabfluss in %) für die Standorte Zürich, Hamburg und Sevilla.	14
Tabelle 10: Frachten von Diuron und Terbutryn aus den ESD-Berechnungen und COMLEAM-Simulationen. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Substanzemissionen von ESD zum mittleren COMLEAM-Ergebnis.	21
Tabelle 11: Frachten von Diuron und Terbutryn aus dem Stadt-Szenario Fassade aus ESD und COMLEAM. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Substanzemissionen von ESD zum mittleren COMLEAM-Ergebnis.	22
Tabelle 12: Durchschnittskonzentrationen im Gewässer von Diuron und Terbutryn aus dem Stadt-Szenario und den COMLEAM-Simulationen. Die Durchschnittskonzentrationen der COMLEAM-Simulationen über 5 Jahre resultieren durch die Mittelung aller Standorte (HAM, SEV, ZUR). Die beiden unteren Zeilen zeigen das Verhältnis von ESD- zu COMLEAM-Resultaten im kleinen und mittleren Gewässer.	23
Tabelle 13: Spezifische Emission von Diuron und Terbutryn aus ESD-Szenario und COMLEAM-Simulation. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Emissionen von ESD zu COMLEAM.....	24
Tabelle 14: Parameter für das Stadt-Szenario und die optimierte dynamische Simulation mit COMLEAM.	25
Tabelle 15: Spezifische kumulierte Emissionen je Fassadenausrichtung im angepassten dynamischen Stadt-Szenario Fassaden.....	26
Tabelle 16: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse in der logarithmischen Emissionsfunktion.	31
Tabelle 17: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für die Langmuir-Emissionsfunktion.	32
Tabelle 18: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für begrenztes Wachstumsfunktion.	33
Tabelle 19: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für die Emissionsfunktion Diffusion.....	34
Tabelle 20: Ableitungen der Emissionsfunktionen, die Steigungen im Ursprung sind für Diuron (D), Terbutryn frei (Tf) und Terbutryn verkapselt (Tv) angegeben.....	35
Tabelle 21: Ergebnisse der Funktionsanpassungen zur Berechnung der Sensitivitäten und der Ableitungswerte im Ursprung (Diuron (D), Terbutryn frei (Tf), Terbutryn verkapselt (Tv)).	36
Tabelle 22: Korrelationsmatrix der Einflussgrössen und der davon abhängigen Grössen.	38
Tabelle 23: Expositionsklassierung für Terbutryn verkapselt. Die Bezeichnung "F" oder "D" in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach.	46
Tabelle 24: Jahresniederschlag und mittlere jährliche Windgeschwindigkeit von Hamburg, Zürich und Sevilla.	52
Tabelle 25: Resultierende Funktionsparameter nach nichtlinearer Regression der Felddaten.	53
Tabelle 26: Vergleich der maximalen Konzentrationen in unterschiedlichen Gewässergrössen vom Land-Szenario Fassade und dem Stadt-Szenario Fassade. Die Konzentrationen beziehen sich auf den Standort Hamburg.	59
Tabelle 27: Vergleich Anzahl und Dauer Überschreitungen im kleinen Gewässer für verkapseltes Terbutryn bei unterschiedlichen Anfangsgehalten.	61
Tabelle 28: Ausprägungen der nominal-skalierten Einflussgrössen.	64
Tabelle 29: Szenarienmatrix für Sensitivitätsanalyse. Gezeigt sind die Einflussgrössen. Die Substanznamen sind abgekürzt: Df = Diuron frei, Tf = Terbutryn frei, Tv = Terbutryn verkapselt. Die Buchstaben hinter dem Szenarionamen stehen für Fassade (F) oder Dach (D).	65
Tabelle 30: Szenarienmatrix für Sensitivitätsanalyse. Gezeigt sind die Zielgrössen.	66

Tabelle 31: Expositionsklassierung für Diuron frei. Die Bezeichnung F oder D in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach. 68

Tabelle 32: Expositionsklassierung für Terbutryn frei. Die Bezeichnung F oder D in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach. 69

1 Einleitung

Durch Regen auf der Gebäudehülle können Biozide und andere Chemikalien aus Bauprodukten ausgewaschen werden (Clara et al., 2014; Pajens et al., 2020). Bekannt sind solche Stofffreisetzungen beispielsweise aus Holzschutzmitteln, Fassadenputzen sowie Dach-, Fassaden- und Holzfarben. Massgebliche Einflussfaktoren auf die Auswaschung sind die Stoff- und Materialeigenschaften und der Wasserkontakt (Niederschlag, Wind). Untersuchungen von Bauprodukten im Labor oder im Feld zeigen, dass die Stofffreisetzung nicht linear verläuft, sondern in der Regel über die Zeit stark abnimmt (Burkhardt et al., 2012). Nur bei Metallblechen tritt eine nahezu lineare Abschwemmung auf (Burkhardt et al., 2019).

Die im Regenablaufwasser befindlichen Biozide gelangen über verschiedene Eintragswege in die Umwelt (Kahle et al., 2006). Der Eintrag über versickerndes Niederschlagswasser, Versickerungsanlagen, Mischwasserentlastungen oder Direkteinleitungen führt dazu, dass die Substanzen Boden und Gewässer belasten können (Wicke et al., 2016, Wittmer et al., 2011). Die mit dem Regenwetter verbundenen Pulsbelastungen treten bevorzugt in kleinen, urban geprägten Gewässern auf.

Solche Stofffreisetzungen und Einträge in die Umwelt sind im Rahmen der umweltrechtlichen Vorgaben zu beurteilen. Beispielsweise werden die Umweltrisiken bei der Zulassung von Biozidprodukten mittels Szenarien (Emission Scenario Documents, ESD) abgeschätzt (Biozidprodukteverordnung VBP). In den ESDs sind Gebäudeanzahl, -flächen und Zielkompartimente festgelegt. Die ESDs gehen von einer zweiphasigen, linearen Emission über die Nutzungszeit aus (Time1, Time2). Demnach unterscheidet sich der gängige Ansatz der ESDs, die Emissionen linear zu betrachten, und die im Feld zu beobachtende Auswaschdynamik. Die Europäische Bauprodukteverordnung (Bauproduktenverordnung VO (EU) Nr. 305/2011) wiederum legt fest, dass Stoffemissionen aus Bauprodukten Boden und Grundwasser nicht übermässig belasten dürfen.

Mit der Software COMLEAM (COstruction Material LEaching Model) lassen sich Stoffemissionen aus Bauteilen, Gebäuden oder Siedlungen dynamisch berechnen. Die modellierten zeit- und wetterabhängigen Konzentrationen und Frachten werden mit stoffspezifischen Qualitätskriterien (akute/chronische Qualitätskriterien, PNEC usw.) verglichen. In mehreren Projekten wurde COMLEAM zur Abschätzung organischer Stoffemissionen erfolgreich eingesetzt (Burkhardt et al. 2021; Hochstrasser et al., 2016; Tietje et al., 2018; Wicke et al., 2021).

2 Ziele und Vorgehen

2.1 Ziele

Mit COMLEAM soll die Auswaschung und Gewässerbelastung von drei Bioziden (Diuron frei, Terbutryn frei, Terbutryn verkapselt) auf Basis von Auswaschdaten aus Feldversuchen (Kap. 4.1.1) mittels Szenarien dynamisch simuliert und mit ESD-Berechnungen verglichen werden. Diese konzeptionelle Betrachtungsweise zielt darauf ab, Hinweise zur Sensitivität ausgewählter Parameter in beiden Berechnungsmethoden und zum möglichen Mehrwert von der COMLEAM-Simulationen bei der Stoffbewertung zu geben. Der Vergleich dient dazu, beispielsweise das Anwendungspotential der Software für eine vertiefte Bewertung von Bioziden zu eruieren.

Die hier präsentierten absoluten Werte – Konzentrationen und Frachten der Biozide – dienen ausschliesslich einer Methodenevaluation und dürfen nicht als reale Konzentrationen in Gewässern missverstanden werden.

2.2 Vorgehen

Der relative Vergleich von den ESD-Berechnungen und dynamischen COMLEAM-Simulationen steht im Vordergrund. Mit dem Vorgehen soll aufgezeigt werden, welchen möglichen Mehrwert eine zeitaufgelöste Simulation mittels COMLEAM für die Emissions- und Risikobetrachtung gegenüber der einfacheren ESD-Bilanzierungsrechnung erzielt. Das Vorgehen umfasste deshalb folgende Teilschritte:

- ESD-Berechnungen für Land- und Stadt-Szenarien mit den Bioziden Diuron frei, Terbutryn frei und verkapselt ("Benchmark"). ESDs stellen die etablierte Methode der Beurteilung von Biozidprodukten dar.
- Dynamische Simulationen mit COMLEAM unter Einbezug ausgewählter ESD-Randbedingungen und Berücksichtigung von europäischen Wetterdaten (Zürich, Hamburg, Sevilla) sowie drei Gewässergrößen (klein, mittel, gross). Die dynamischen Simulationen waren auf die Vergleichbarkeit mit ESDs ausgerichtet und sollten die Übertragbarkeit der Parameter abklären helfen.
- Vergleich von ESD-Berechnungen mit dynamischen Simulationen, um Unterschiede, Gemeinsamkeiten sowie mögliche Verbesserungen aufzuzeigen.
- Konzentrationen und Frachten im Abgleich mit quantitativen Anforderungen an die Wasserqualität (z.B. aus der Schweizer Gewässerschutzverordnung, GSchV), um Risiken exemplarisch zu klassieren.
- Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter, um die Modellgüte von COMLEAM als Grundlage für Standardszenarien zu klären.

3 Software COMLEAM

COMLEAM ist eine Software zur Modellierung der Auswaschung von Substanzen aus berechneten Bauprodukten und dem Eintrag ins Oberflächengewässer (www.comleam.ch). Der auf ein Bauteil auftreffende Regen wird als Schlagregen- (vertikales Bauteil) oder Niederschlagsabfluss (horizontales Bauteil), die Stoffauswaschung mittels Emissionsfunktion berechnet und die Stoffkonzentrationen beurteilt. Die zeitliche Auflösung der Simulation beträgt üblicherweise eine Stunde, sodass die Variabilität der Regen- und Trockenwetterphasen abgebildet ist. Die Software stellt eine Plattform dar, mit der die Auswaschung und Umweltexposition unter Berücksichtigung individuell definierbaren Faktoren (Substanz, Material, Emissionsfunktion Gebäudegeometrie etc.) abgeschätzt werden kann.

In einem einheitlich generierten Ergebnisbericht werden die wichtigsten Simulationsparameter, Details der Geometrie, Materialien und Ablaufkoeffizienten, Parameter der Emissionsfunktion und Anfangsgehalte zusammengefasst sowie die Abfluss- und Stoffbilanzen für jede Komponente und die Emissionen ins Oberflächengewässer dargestellt (Beispielbericht in Anhang E, S. 70).

In der gegenwärtigen Software-Version sind weder der Einfluss der Umgebungstemperaturen auf den Wasserfluss im Material noch der der UV-Einstrahlung auf die Stofftransformation eingebunden. Mögliche Produkte des Photoabbaus sind folglich nicht berücksichtigt.

3.1 Modellstruktur

COMLEAM ist in benutzergeführte Module gegliedert, deren Daten im Rechenkern (Calculator) zusammengeführt und Resultate automatisiert aus der Datenbank ausgelesen werden (Abbildung 1):

- **Wetter:** Für horizontale Bauteile wird der Abfluss, für vertikale der Schlagregen berechnet (Kap. 3.2.2). Für die Schlagregenerberechnung werden Niederschlags- und Winddaten (Richtung, Geschwindigkeit) in stündlicher Auflösung genutzt.
- **Geometrie:** Jedes Bauteil (Komponente) ist durch die Grösse, die Ausrichtung (in Grad von Nord), den Bodenwinkel (zwischen 0° für horizontale und 90° für vertikale Bauteile) und den Anteil des Materialtyps (in Prozent) gekennzeichnet. Mehrere Bauteile ergeben ein Gebäude.
- **Material und Substanz:** Ein Material beschreibt ein Bauprodukt und wird Material- sowie Subtypen zugeordnet. Jedem Materialtyp (z.B. Metall, Holz, Glas, Kunststoff) sind Subtypen (z.B. Putz, Farbe, Sichtbeton) und eine Substanz (z.B. Diuron, DCOIT) mit den Anfangsgehalten zugewiesen. Zu den Subtypen gehören spezifische Abflussbeiwerte, die den abflusswirksamen Anteil des Niederschlags als summarischer Verlust der Wasseraufnahme des Materials, Evaporation und Abprall des Wassers beschreibt.
- **Emissionsfunktion:** Eine Emissionsfunktion beschreibt die von einem Bauteil kumuliert emittierte Stoffmenge (mg/m^2) als Funktion der kumulierten Ablaufwassermenge (L/m^2). In COMLEAM sind die logarithmische und diffusionsgetriebene Emissions-, begrenzte Wachstums-, und Langmuir-Desorptionsfunktion bzw. Michaelis-Menten-Kinetik implementiert (Tietje et al., 2018).

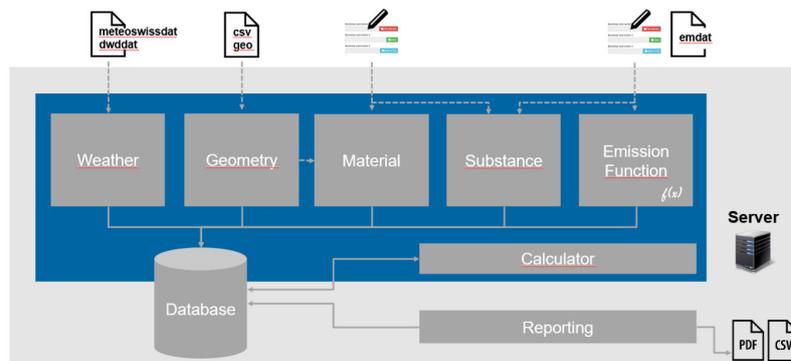


Abbildung 1: Logischer Aufbau der Software COMLEAM.

3.2 Dynamische Simulationen

In der dynamischen Simulation werden Wasser- und Stoffbilanzen erstellt und beurteilt. Mit Wetterdaten werden die Regenabflussmenge von den Oberflächen, bei vertikalen Komponenten der Schlagregen, berechnet und aus Labor- oder Feldauswaschdaten eine Emissionsfunktion mittels nichtlinearer Regression (nls Methode) parametrisiert.

3.2.1 Wasser- und Stoffbilanzen

Der Wasserfluss und die mögliche Emission werden für jede Komponente auf Grundlage der Eingabedaten (Wetter, Material etc.) berechnet. Wenn eine Komponente keine Stoffe emittiert, wird nur der Wasserfluss berücksichtigt. Schnittstellenkompartimente (SK) führen die Flüsse je SK-Komponente, Gebäude (SK-Gebäude) und Einzugsgebiet (SK-Einzugsgebiet) zusammen.

In jedem COMLEAM-Szenario sind die Einleitmenge und eine Abflussmenge im Gewässer (m^3/s) als Linearspeicher definiert. Für Gewässer können individuelle Festlegungen innerhalb von drei Grössenklassen vorgenommen werden:

- Klein: $< 0.01 \text{ m}^3/\text{s}$ (10 L/s)
- Mittel: $< 0.1 \text{ m}^3/\text{s}$ (100 L/s)
- Gross: $< 1 \text{ m}^3/\text{s}$ (1000 L/s)

Für jeden Zeitschritt wird die Konzentration im Gewässer mit einem Beurteilungswert abgeglichen und Anzahl und Dauer der Überschreitungen sowie die zeitlich gemittelte Konzentration ausgewertet. Im vorliegenden Projekt wurden die Konzentrationen der betrachteten Biozide anhand des allgemeinen numerischen Anforderungswerts der GSchV von 0.1 µg/L pro Biozidprodukt beurteilt, um die Ergebnisse vereinfacht zu einzuschätzen. Die seit April 2020 in der GSchV geltenden differenzierten akuten und chronischen Qualitätskriterien (Diuron 0.25 und 0.07 µg/L, Terbutryn 0.34 und 0.065 µg/L) blieben unberücksichtigt.

3.2.2 Schlagregenberechnung

Schlagregen r_{SR} beschreibt die Regenmenge, welche auf vertikale Bauteile trifft, und wird berechnet mit dem Standortfaktor α , der Niederschlagsmenge r , der Windgeschwindigkeit w und dem Winkel γ zwischen Bauteil und Windrichtung (Abbildung 2) (ISO-15927-3). Der Standortfaktor α beinhaltet Korrekturfaktoren:

- Geländerauheit C_R : Abschwächung vom Wind durch Gebäude in Windrichtung
- Geländetopographie C_T : Beeinflussung durch Lagetopografie am Standort
- Versperrung durch Hindernisse O : abhängig von der Distanz zum Hindernis
- Wandfaktor W : Höhe des Gebäudes (Windprofile an Ecken und Dächern)

Bei Windrichtungen mit negativem Wert $\cos(\gamma)$ resultiert kein Schlagregen ($|\gamma| > 90^\circ$), weil der Wind "von hinten" kommt.

$$r_{SR} = \alpha \cdot r^{0.88} \cdot w \cdot \cos(\gamma)$$

$$\alpha = \frac{2}{9} C_R C_T O W$$

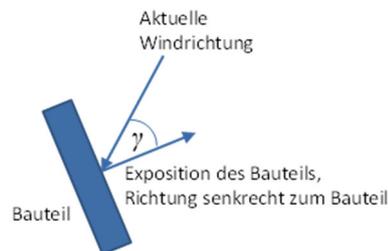


Abbildung 2: Vorgehen zur Berechnung von Schlagregen an Fassaden.

3.3 ESD-Szenarien in COMLEAM

Die ESD-Szenarien sind in COMLEAM Version 2.0 in Anlehnung an die ECHA-Dokumente¹ für die folgenden Produktarten implementiert und lassen sich dort berechnen:

- Beschichtungsschutzmittel (PA 7): Produkte zum Schutz von Beschichtungen oder Überzügen gegen mikrobielle Schädigung oder Algenwachstum zwecks Erhaltung der ursprünglichen Oberflächeneigenschaften von Stoffen oder Gegenständen wie Fassaden- und Holzfarben oder organische Putze.
- Holzschutzmittel (PA 8): Produkte zum Schutz von Holz, ab dem Einschnitt im Sägewerk, oder Holzzeugnissen gegen Befall durch holzerstörende oder die Holzqualität beeinträchtigende Organismen, Insekten einbegriffen. Diese Produktart umfasst sowohl Präventivprodukte als auch Kurativprodukte.
- Schutzmittel für Gummi und polymerisierte Materialien (PA 9): Produkte zum Schutz von polymerisierten Materialien gegen mikrobielle Schädigung wie Kunststoffdichtungsbahnen. Diese Produktart umfasst Biozidprodukte, die der Ansiedlung von Mikroorganismen auf der Oberfläche von Materialien entgegenwirken.

¹ https://echa.europa.eu/documents/10162/16908203/pt10_city_scenario_en.pdf/18d9f122-4471-446e-9912-3b184ca7d3cc

- Schutzmittel für Baumaterialien (PA 10): Produkte zum Schutz von Mauerwerk und anderen Baumaterialien außer Holz gegen Befall durch Schadmikroorganismen und Algen.

Im Anhang sind die verwendeten ESDs sowie die Berechnungsschritte dokumentiert (Abbildung 32).

4 Szenarien für die Biozid-Berechnungen

Insgesamt wurden neun ESD- und 72 COMLEAM-Szenarien berechnet (Abbildung 3). Einige ESD-Festlegungen sind für die dynamischen Simulationen übernommen oder daraus hergeleitet worden. Folgende Szenarien bildeten die Basis:

- Land-Szenario Fassade (PA 7, 8, 10): Fassaden von einem Einzelhaus (ESD, COMLEAM)
- Land-Szenario Dach (PA 7, 8, 10): Dach von einem Einzelhaus (COMLEAM)
- Stadt-Szenario Fassade (PA 7, 10): Fassaden von 4000 Häusern (ESD, COMLEAM)
- Stadt-Szenario Dach (PA 9): Beschichtung auf 300 Dächern (ESD, COMLEAM)

Um horizontal und vertikal berechnete Bauteile in COMLEAM-Simulationen vergleichen zu können, wurden das "Land-Szenario Dach", fokussierend auf den Dachabfluss von einem Einzelhaus, für zwei Gewässergrößen und drei Standorte kreiert. Das "Stadt-Szenario Dach" mit einer biozidhaltigen Beschichtung auf dem Dach entspricht einem abgewandelten ESD-Szenario und wurde ebenfalls in COMLEAM berechnet.

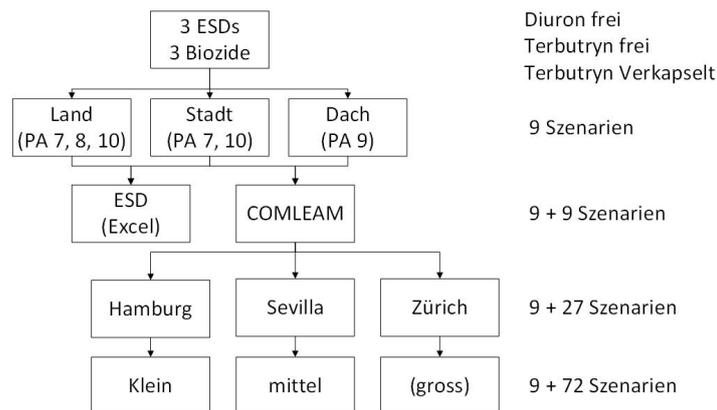


Abbildung 3: Übersicht zu den neun ESD- und 72 COMLEAM-Szenarien für die Biozide.

4.1 Spezifische Daten für die Berechnungen

4.1.1 Auswaschdaten und Emissionsfunktionen

Die verwendeten Auswaschdaten stammen aus zwei Feldversuchen bei Zürich, einerseits mit den Bioziden Diuron und Terbutryn in freier Form (in Putz und Farbe), andererseits mit Terbutryn verkapselt (halbe Menge des freien Wirkstoffs) (Tabelle 1) (Tietje et al., 2018). Die Beschichtungen aus Putz und Farbe waren auf Testflächen mit Wärmedämmverbundsystem aufgebracht. Die Anfangsgehalte sind praxistypisch und wirksam als Befallsschutz.

Über die Versuchsdauer wurden pro Abflussereignis die Wassermenge und Stoffkonzentration bestimmt und über die Zeit kumuliert. Während der erste Versuch 369 Tage dauerte, erstreckte sich der zweite über 615 Tage, sodass beim zweiten Versuch fast doppelt so viele Messdaten vorliegen.

Tabelle 1: Versuchsrandbedingungen und Messdaten aus den Feldversuchen bei Zürich.

	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
Anfangsgehalt (mg/m ² , mg/kg)	3000, 850	3000, 850	1400, 400
Versuchsdauer (Tage)	369	369	615
Niederschlagsmenge (mm)	978	978	1756
Analysierte Abflussereignisse (Anzahl)	34	34	74
Fassadenabfluss, kumuliert (L/m ²)	61	61	78
Emission, kumuliert (mg/m ²)	227	78	20

Um die Auswaschdaten extrapolieren zu können, wurden Emissionsfunktionen hergeleitet. Da die logarithmische Funktion das Verhalten von organischen Biozide am besten beschreibt, wurden die entsprechenden Funktionsparameter für die zwei Feldversuche bestimmt (Abbildung 4).

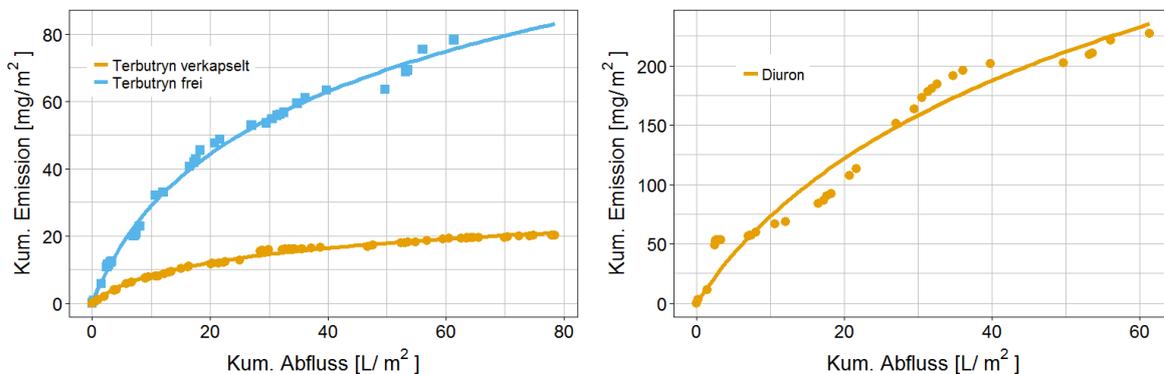


Abbildung 4: Felddaten mit logarithmischer Emissionsfunktion für Terbutryn frei und verkapselt (links) und Diuron frei (rechts). Die Marker stellen die Messwerte dar.

Die logarithmische Emissionsfunktion wird wie folgt beschrieben (vgl. Kap. 9.1, Logarithmische Emissionsfunktion), woraus für die Emissionen der Felddaten die Funktionsparameter gemäss Tabelle 2 resultieren:

$$E_{log}(q_{cum}) = a_{char} \left[\frac{mg}{m^2} \right] \times \ln \left(1 + b_{log} \left[\frac{m^2}{L} \right] \times q_{cum} \left[\frac{L}{m^2} \right] \right)$$

a_{char} = charakteristische Emission [mg/m²]

$b_{log} = 1.72 / q_{char}$ [m²/L]

q_{char} = charakteristischen Abfluss [L/m²]

q_{cum} = kumulierter Abfluss [L/m²]

Tabelle 2: Funktionsparameter a_{char} und b_{log} für die logarithmische Emissionsfunktion.

Substanz	a_{char} [mg/m ²]	b_{log} [m ² /L]
Diuron frei	147.1	0.064
Terbutryn frei	33.9	0.135
Terbutryn verkapselt	7.3	0.211

4.1.2 Emissionsansätze für flächenspezifische Stofffreisetzung

In den ESDs wird die Emission in zwei Phasen unterteilt: Eine Anfangsphase von 30 Tagen (Time1), und eine zweite Phase in der Länge der Lebensdauer vom Produkt (Time2, $T_{servicelife}$) (PT8 groundwater assessment, 2013; EUBEEs, 2002). In diesen Untersuchungen wurde die Lebensdauer auf fünf Jahre festgelegt, was der im ESD von PA10 definierten Lebensdauer von

Farben entspricht. Die Unterteilung in 30 Tage und fünf Jahre geschieht in Anlehnung an die PEC/PNEC-Bestimmung im Boden (EUBEES, 2002).

Im ESD-Ansatz einer zeitlichen Emission [kg/d] wird die Biozidemission auf zwei Zeiträume (Time1, Time2) unterteilt. Um diese Eingabedaten nach 30 Tagen ($Q_{leach, Time1}^*$) und nach 5 Jahren ($Q_{leach, Time2}^*$)² aus den Felduntersuchungen herzuleiten, wurde zuerst der gemessene Abfluss auf die zwei Zeiträume Time1 und Time2 verteilt und in die logarithmischen Emissionsfunktionen eingesetzt (Abbildung 4, Abbildung 5).

Der im Feld gemessene Fassadenabfluss von 61 L/m² über ein Jahr³ (Tabelle 1) wurde als Jahresabfluss festgelegt. Daraus ergibt ergeben sich 5 L/m² Fassadenabfluss für Time1 und 305 L/m² nach 5 Jahren (Time2). Die kumulierten Emissionen wiederum lassen sich für den Ablauf von 5 L/m² und 305 L/m² aus der logarithmischen Emissionsfunktion berechnen, wie exemplarisch in Abbildung 5 für die Terbutryn frei mit 126.8 mg/m² nach 5 Jahren gezeigt.

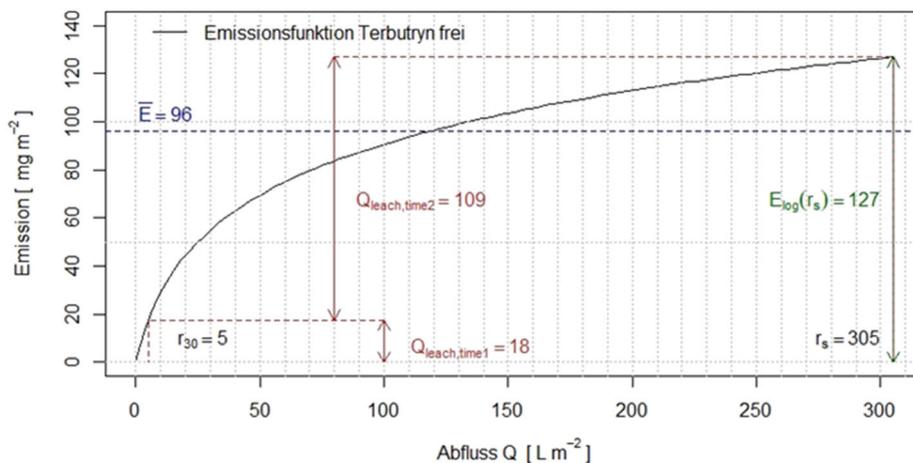


Abbildung 5: Aus Felddaten ermittelte logarithmische Emissionsfunktion. Eingezeichnet sind die kumulierten spezifischen Emissionen (Q_{leach}) für den Abfluss nach 30 Tagen (r_{30} = Time1) und nach 5 Jahren (r_s = Time2 bzw. service life).

Aufgrund der in den ESDs angenommenen linearen Emission ergibt sich je eine Emissionsrate für die erste (Time1) und die zweite Phase (Differenz aus $Q_{leach, Time2}^*$ und $Q_{leach, Time1}^*$) sowie eine mittlere tägliche Emissionsrate Q_d für das ganze Gebäude:

$$Q_d = AREA \cdot \frac{E(r_s)}{T_{servicelife}} \quad [kg \cdot d^{-1}]$$

Die kumulierte Emission am Ende der Lebensdauer ($T_{servicelife} = 5$ Jahre) ist $E(r_s)$. Die auf die Zeit bezogene mittlere Emissionsrate Q_d [kg/d] darf nicht verwechselt werden mit der über den Abfluss gemittelten Emission \bar{E} [mg/m²], die sich durch Integration der Emissionsfunktion errechnet:

$$\bar{E} = \frac{1}{r_s} \cdot \int_0^{r_s} E_{log}(r) dr = E_{log}(r_s) \cdot \left(1 + \frac{1}{b \cdot r_s}\right) - a = 96 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Emissionsrate ergibt dieselbe Gesamtemission $E(r_s)$ am Ende des Betrachtungszeitraums wie die logarithmische Emissionsfunktion in COMLEAM. Dieses Vorgehen ergibt für die drei Biozide die kumulierten spezifischen Emissionen für die ESD-Berechnungen (Abbildung 3).

² Gemäss ESD-Nomenklatur aus PT8 mit Stern * in mg/m², ohne Stern * in mg.

³ Der Variationskoeffizient für den Abfluss entspricht etwa demjenigen des Jahresniederschlags. Aus den Wetterdaten von Zürich ergibt sich ein Variationskoeffizient des Jahresniederschlags von 17% (d.h. in 9 von 10 Jahren im Bereich $\pm 30\%$).

Tabelle 3: Kumulierte spezifische Freisetzungen $Q^*_{leach, Time1}$ und $Q^*_{leach, Time2}$ für die ESD-Szenarien.

Substanz	$Q^*_{leach, Time1}$ [mg/m ²]	$Q^*_{leach, Time2}$ [mg/m ²]
Diuron frei	41	445
Terbutryn frei	18	127
Terbutryn verkapselt	5	31

4.1.3 Wetterdaten und Schlagregen

Für die drei Standorte Zürich (MeteoSchweiz), Hamburg (Deutscher Wetterdienst) und Sevilla (Spanischer Wetterdienst) wurden Wetterdaten über eine Zeitspanne von 20 Jahre bis 2016 beigezogen. Hamburg und Sevilla repräsentieren zwei europäische Standorte aus den FOCUS-Szenarien⁴, welche für die Modellierung von Pflanzenschutzmitteln im Boden verwendet werden. Die Regionalität der Witterung ist wie folgt (Tabelle 24):

- Zürich: Sommerregen, hohe Niederschlagssumme
- Hamburg: Sommerregen, mittlere Niederschlagssumme, maritimer Einfluss
- Sevilla: Winterregen, geringe Niederschlagssumme

In COMLEAM wurde eine Zeitspanne von fünf Jahren (ab 1.1.2011), entsprechend der im ESD von PA10 definierten Lebensdauer von Farben, mit 4681 mm Niederschlag für Zürich, 3651 mm für Hamburg und 2230 mm für Sevilla simuliert.

Die Parameter für die Berechnung des Schlagregens (Wind Driven Rain, WDR) an der festgelegten Gebäudegeometrie waren wie folgt:

- Geländerauheit C_R : 0.67
- Geländetopographie C_T : 1 (urbane Region)
- Versperrung durch Hindernisse O : 0.4
- Wandfaktor W : 0.55

4.1.4 Gebäudegeometrie

In den dynamischen Simulationen wurden, je nach Szenario, entweder die Gebäudegeometrie vom Modellhaus (Abbildung 6, 4.2.1) oder die Hallendächer der ESDs (4.2.4) berücksichtigt. Zusätzlich wurde die Ausrichtung der Fassaden festgelegt: Die grösseren Flächen (44 m²) weisen nach Westen und Osten, sodass dort die grösseren Emissionsmengen zu erwarten sind. Im ESD ist die Ausrichtung nicht spezifiziert, weil alle Fassaden gleichstark an der Auswaschung teilhaben.

Im Stadt-Szenario Fassade (4.2.3) wurde die Fassadefläche als Einzelgeometrie stellvertretend für 4000 Gebäude implementiert und wiederum die grösseren Flächen nach West und Ost ausgerichtet. Eine weitere Differenzierung wie in 66 neue Gebäude (Time1) und 3934 ältere Gebäude (Time2) erfolgte nicht. Im Stadt-Szenario Dach ist die Dachfläche in einer einzelnen Geometrie implementiert und der Fassadenabfluss nicht berücksichtigt.

4.2 Beschreibung der ESD-Szenarien

Nachfolgend werden die ESD-Szenarien sowie die festgelegten Parameter vorgestellt. Dies erfolgt vor allem vor dem Hintergrund, dass für die COMLEAM-Simulationen einige Randbedingungen übernommen wurden, um die Vergleichbarkeit sicherzustellen.

⁴ <https://esdac.jrc.ec.europa.eu/projects/focus-dg-sante>

4.2.1 Land-Szenario Fassade

Das "Land-Szenario Fassade" beschreibt die Auswaschung aus einem Einzelhaus in den Boden bzw. das Grundwasser (Modellhaus, (PT8 groundwater assessment, 2013, Gl. 4.44) mit 125 m² Fassadenflächen (Abbildung 6). Die Flächen auf der Längsseite umfassen 44 m² und auf der Stirnseite 19 m². Die Gesamtfracht über fünf Jahre Lebensdauer wird anhand der Freisetzungsrates von Time2 und der Fassadenfläche berechnet:

$$Q_{leach\ Time2} [kg] = AREA_{house} [m^2] \times Q_{leach\ Time2}^* \left[\frac{kg}{m^2} \right]$$

Der Eintrag in den Boden wird mit einer durchschnittlichen Fracht für beide Zeiträume ermittelt. Es werden im Szenario nur die Fassadenabflüsse berücksichtigt, aber nicht die Dachflächen.

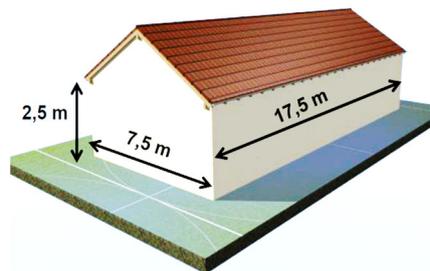


Abbildung 6: Dimensionen vom Modellhaus, welches in ESDs genutzt wird.

4.2.2 Land-Szenario Dach

Das entworfene "Land-Szenario Dach" dient dem Emissionsvergleich von horizontal und vertikal berechneten Gebäudeteilen durch COMLEAM-Simulationen und ist nicht in einem offiziellen ESD abgebildet. Die Geometrie basiert auf dem Einzelhaus mit 145 m² Dachfläche, entsprechend der Grundfläche vom Haus (17.5 × 7.5 m) zuzüglich 0.5 m Dachüberstand (Abbildung 6). Nur die Dachfläche ohne Fassaden ist berücksichtigt.

4.2.3 Stadt-Szenario Fassade

Das Szenario steht für eine Kleinstadt mit 4000 Einzelgebäuden an einem urban geprägten Oberflächengewässer, in welches die Regenwasserentlastung oder Direkteinleitung einer Trennkanalisation einleitet (Ahting et al., 2014). Nur die direkte Einleitung des Fassadenablaufs für die Einzelgebäude (Abbildung 6) mit 500'000 m² Fassadenflächen wird betrachtet. In diesem ESD bleiben Dachflächen unberücksichtigt, sodass auch in der dynamischen Simulation entsprechend vorgegangen wird. Die Emission über die Nutzungsdauer ist in zwei Phasen aufgeteilt (vgl. 4.1.2). Ferner gilt, dass für 66 neu erstellte Gebäude in Time1 eine höhere Auswaschrates ($Q_{leach, Time1}$) angenommen ist als für restlichen 3934 Gebäude in Time2 ($Q_{leach, Time2}$) (Muijs et al., 2015).

Für die beiden Phasen Time1 und Time2 werden die Auswaschrates wie folgt berechnet:

- Anfangsphase $T_{initial}$
 - $T_{initial} = Time1 = 30$ Tage
 - $Q_{leach, Time1} =$ kumulierte Freisetzung über 30 Tage [kg/m²]
- Längerer Beurteilungszeitraum (verbleibende Zeit, T_{longer})
 - $T_{longer} = T_{service\ life} - T_{initial} = Time2 - Time1 = 1825\ d - 30\ d = 1795\ d$
 - $Q_{leach, Time2} =$ kumulierte Freisetzung über Lebensdauer – 30 Tage [kg/m²]
 - $Q_{leach, Time2} = Q_{leach, Time2}^* - Q_{leach, Time1}$

Die Konzentration im Regenabfluss (C_{local,rw_eff} [kg/L]) wird aus dem Verhältnis von emittierter Stoffmenge (Gl. 3) zu einzuleitender Regenwassermenge $EFFLUENT_{Rainwater}$ (600 m³/d) unter Berücksichtigung der Parameter aus Tabelle 4 nach Gleichung 1 berechnet (Ahting et al., 2014):

$$C_{local,rw_eff} = \frac{E_{local}}{EFFLUENT_{Rainwater}} \quad (\text{Gl. 1})$$

Die Konzentration im Oberflächengewässer ($C_{local,water}$ [kg/L]) berechnet sich unter Einbezug einer 1:10 Verdünnung ($Dilution$), der Adsorption an Schwebstoffen (FOC_{susp}) mittels Adsorptionskoeffizienten für organischen Kohlenstoff (Diuron K_{OC} 250⁵, Terbutryn K_{OC} 710⁶) gemäss Gleichung 2 (Guidance on the Biocidal Products Regulation, 2003; Ahting et al., 2014):

$$C_{local,water} = \frac{C_{local,rw_eff}}{1 + FOC_{susp} \times K_{OC} \times SUSP_{Water} \times 10^{-6} \times Dilution} \quad (\text{Gl. 2})$$

Die effektiven Emissionen E_{local} folgten dem "normal case", da Auswaschdaten vorhanden sind, gemäss Gleichung 3 mit den Parametern aus Tabelle 4 (Muijs et al., 2015):

$$E_{local} = \frac{N_{house,initial} \times F_{house} \times Q_{leach,time1} \times AREA}{T_{initial}} + \frac{N_{house,longer} \times F_{house} \times Q_{leach,time2} \times AREA}{T_{longer}} \quad (\text{Gl. 3})$$

Tabelle 4: Berechnungsparameter für das ESD "Stadt-Szenario Fassade".

Parameter	Wert	Parameter	Wert
$T_{initial}$	30 d	$T_{ServiceLife}$	1825 d
$N_{house,initial}$	66	$N_{house,longer}$	3934
F_{house}	1	AREA	125 m ²
FOC_{susp}	0.1	K_{oc}	250, 710
Dilution	10	$SUSP_{Water}$	15 mg/L
$EFFLUENT_{Rainwater}$	0.6 x 10 ⁶ L/d		

Hierbei tritt eine gewisse Inkonsistenz im Berechnungsansatz und der Namensgebung der Variablen zum Vorschein. So ist für das "Land-Szenario Fassade" mit Einzelhaus $Q_{leach,Time2}^*$ als kumulierte spezifische Freisetzung [kg/m²] über die Lebensdauer definiert und $Q_{leach,Time2}$ als absolute Freisetzung [kg] über die Lebensdauer. Im Stadt-Szenario hingegen beschreibt $Q_{leach,Time2}$ die kumulierte spezifische Freisetzung (kg/m²) in der Zeitspanne zwischen Anfangsphase und Lebensdauer (im ESD als T_{longer} bezeichnet). Ausserdem beschreibt die $Q_{leach,Time1}$ im "Land-Szenario Fassade" die absolute Freisetzung [kg] über die ersten 30 Tage, im Stadt-Szenario dagegen die kumulierte spezifische Freisetzung (kg/m²) über die 30 Tage.

4.2.4 Stadt-Szenario Dach

Das "Stadt-Szenario Dach" ist auf Biozide in Dachbahnen ausgelegt (PA9)⁷. Es beschreibt den Biozideintrag von Dachbahnen auf kommerziellen Gebäuden in den Boden und die Direkteinleitung in Gewässer. Dabei werden 300 Gebäude mit je 3280 m² Dachfläche (87.5 × 37.5 m), total 984'000 m², berücksichtigt.

In vorliegender ESD-Variante ist statt einer Dachbahn ($W_{Roof\ membrane}$) eine biozidhaltige Beschichtung mit Ausgangsgehalten von 0.85 g/kg für freie Biozide und 0.4 g/kg für Terbutryn verkapselt festgelegt worden, mit einer Lebensdauer ($T_{ServiceLife}$) von fünf Jahren (1825 d, Tabelle 5).

Zu bedenken ist, dass eine solche Beschichtung in der Realität niemals auftreten wird. Der alleinige Grund für die Variante liegt darin, die Ergebnisse von Szenarien, auch untereinander, mit denen einer dynamischen Simulation vergleichbar zu machen.

⁵ <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/Diuron>

⁶ <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/13450>

⁷ https://www.echa.europa.eu/documents/10162/16908203/pt_9_use_based_approaches_estimation_environmental_exposure_roof_membranes_en.pdf

Tabelle 5: Parameter für das Stadt-Szenario mit Dachbeschichtung.

Parameter	Wert
T _{ServiceLife}	1825 d
C _{Roof membrane}	0.85, 0.4 g/kg
W _{roof membrane}	3.5 kg/m ²

5 Ergebnisse der ESD-Berechnungen

5.1 Land-Szenario Fassade

Das "Land-Szenario Fassade" betrachtet die Stoffemissionen von Gebäudefassaden nach fünf Jahren ($Q_{leach, Time2}$) in die Umwelt (Tabelle 6). Über fünf Jahre wird für Terbutryn eine rund 3.5-mal geringere Emission erwartet als für Diuron (15'853 vs. 55'655 mg). Nochmals 4-mal geringer ist die Freisetzung vom verkapselt eingesetzten Terbutryn. Bezogen auf die Anfangsgehalte (Tabelle 1) wurden 15 % Diuron, 4 % Terbutryn frei und 2 % Terbutryn verkapselt ausgewaschen.

Tabelle 6: Resultate Land-Szenario gemäss ESD.

	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
$Q_{leach, Time2}$ [mg]	55'655	15'853	3'815

Die Emissionsmengen der drei Biozide sind einzig von den Ergebnissen der Feldversuche ($Q_{leach, Time2}^* \left[\frac{kg}{m^2} \right]$, vgl. 4.2.1) abhängig. Die absolute Emissionsmenge liegt jedoch sehr hoch, weil die Auswaschung auf alle Fassaden extrapoliert ist. Diese expositionsunabhängige Betrachtung überschätzt daher die Gesamtemission deutlich. Jedoch wird der Anspruch des Szenarios, vorsorgeorientiert kritische Randbedingungen beizuziehen, durch die "worst-case" Annahme erfüllt.

Eine weitergehende Ergebnisauswertung könnte darin bestehen, eine Durchschnittskonzentration für Time1 und Time2 aus den berechneten Tagesfrachten und beizuziehenden spezifischen Abflussmenge im Gewässer (Q_{347}) herzuleiten.

5.2 Stadt-Szenario Fassade

Im vorliegenden Szenario werden Konzentrationen im Regenwasserabfluss und im Gewässer mit definierter Verdünnung (1:10) ermittelt. Die berechnete Emission aller Gebäude pro Tag (E_{local}), die mittlere Konzentration im Regenwasserabfluss ($C_{local, rw}$) sowie nach Direkteinleitung im Gewässer ($C_{local, water}$) sind für die drei Biozide in Tabelle 7 aufgeführt.

Am meisten Wirkstoff gelangt von Diuron (0.122 kg/d) in die Umwelt und mindestens 10-mal weniger vom verkapselten Terbutryn. Bereits im Regenwasserabfluss liegen die Konzentrationen von Terbutryn frei und verkapselt unterhalb des allgemeinen Anforderungswerts der GSchV von 0.1 µg/L pro Biozid. Nur für Diuron wird eine Überschreitung erwartet. Im Gewässer halten sogar alle Wirkstoffe den Anforderungswert voll ein.

Würde das für regengetriebene Stoffbelastungen geeignet erscheinende akute Qualitätskriterium (Diuron 0.25 µg/L, Terbutryn 0.34 µg/L) beigezogen, hielten alle Biozide bereits im Regenwasserabfluss das Kriterium ein. Für die Biozide Terbutryn und Diuron ist folglich im ESD-Szenario der allgemeine Anforderungswert strenger als das stoffspezifische akute Qualitätskriterium. Anders würde sich die Situation darstellen, wenn das gegenüber dem akuten Wert deutlich strengere chronische Qualitätskriterium als Beurteilungsmassstab zu Grunde gelegt würde.

Zwischen der mittleren Konzentration im Regenablauf und Gewässer liegt nahezu ein Faktor 10. Dies veranschaulicht, dass die in Gleichung (2) des ESD-Szenarios festgelegte 1:10 Verdünnung den weitaus relevanteren Faktor für Höhe der Gewässerbelastung darstellt. Die Adsorption an Schwebstoffen (K_{oc}) dagegen spielt durch die geringen Adsorptionsraten eine untergeordnete Rolle.

Tabelle 7: Resultate des Stadt-Szenarios für Fassaden gemäss ESD-Berechnungen.

Grösse	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
E_{local} [kg/d]	0.122	0.035	0.008
$C_{local_{rw}}$ [μ g /L]	0.204	0.058	0.014
$C_{local_{water}}$ [μ g /L]	0.0204	0.0058	0.0014

5.3 Stadt-Szenario Dach

Für eine Dachbeschichtung wurde die Auswaschung über die Lebensdauer ($Q_{leach, TIME2}$), die kumulierte Auswaschung vom Dach ($Q_{leach, TIME2 Roof}$) sowie die tägliche Emission ins Gewässer ($E_{localleach}$) berechnet. Aufgrund der Art der angenommenen Beschichtung und den Randbedingungen des Szenarios sind die abgeschätzten Emissionen nicht direkt mit realen vergleichbar, sondern dienen ausschliesslich dazu, vertieften Einblick in die Einflussfaktoren zu erhalten. Tabelle 8 fasst die Resultate der Biozide zusammen.

Die Emissionen für Diuron und Terbutryn sind gleich und für verkapseltes Terbutryn rund halb so gross wie für die frei vorliegenden Biozide. Dies beruht auf der im Szenario definierten Randbedingung, dass die kumulierte Auswaschung über die Lebensdauer ($Q_{leach, TIME2 Roof}$) genau dem Anfangsgehalt in der Beschichtung entspricht (100 %). Auch wenn für ein Dach mit intensivem Witterungseinfluss die Annahme "all in – all out" eher begründbar sein dürfte als für Fassaden, sollte der Wert angepasst werden. Wie Ergebnisse aus Feldversuchen aber diesbezüglich zu extrapolieren sind, liess sich aus dem ESD aber nicht konkret herleiten.

Die grossen Unterschiede zwischen spezifischer Emission (mg/m^2) und kumulierter Fracht korrelieren direkt mit der Grösse der Dachfläche. Würde die Fläche verkleinert, verringerten sich proportional die Frachten.

Wie im "Land-Szenario Fassade" könnte aus der Tagesfracht und einer Abflussmenge (Q_{347}) eine Durchschnittskonzentration abgeschätzt werden. Damit liesse sich beispielsweise ermitteln, wie gross eine beschichtete Dachfläche sein darf, um bei Einleitung ins Gewässer einen Zielwert nicht zu überschreiten.

Tabelle 8: Resultate des Stadt-Szenarios mit Dachbeschichtung gemäss ESD-Berechnungen.

Grösse	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
$Q_{leach, Time2}$ [g/m ²]	2.98	2.98	1.40
$Q_{leach, TIME2 Roof}$ [g]	9'760	9'760	4'590
$E_{localleach}$ [g/d]	1'600	1'600	755

6 Ergebnisse der dynamischen Simulation mit COMLEAM

Der Vergleich zwischen den Simulationsvarianten pro Szenario basiert auf verschiedenen festgelegten Randbedingungen und den abgeschätzten Konzentrationen. Dabei entspricht eine Überschreitung der Zeitspanne zwischen dem Über- und Unterschreiten des Anforderungswerts. Die ermittelten Konzentrationen im Gewässer wurde mit dem Anforderungswert der Gewässerschutzverordnung von 0.1 μ g/L pro Biozidprodukt verglichen.

Nachfolgend werden ausgewählte Ergebnisse vorgestellt, vor allem diejenigen für die kritischen im kleinen und mittelgrossen Gewässer. Alle weiteren Ergebnisse sind im Anhang B zu finden.

6.1 Land-Szenario Fassade

Der Schlagregen an den drei Standorten hat massgeblichen Einfluss auf das Emissionsmuster. Jeder Standort weist eine klare Hauptwindrichtung auf (Abbildung 7). In Zürich liegt diese bei SW in Hamburg bei W/SW und Sevilla SW/S. Die Verteilung des Schlagregens je Himmelsrichtung am Gebäude zeigt ein differenziertes standortspezifisches und expositionsorientiertes Bild (Tabelle 9). Die erwarteten Schlagregenmengen variieren zwischen 42.6 L/m² (Hamburg, West) und 3.4 L/m² (Sevilla, N). In Zürich und Hamburg treten jeweils an den West-, gefolgt von den Südfassaden die höchsten Abflüsse auf. Der Anteil der Westfassade am Gesamtabfluss des Gebäudes beträgt in Hamburg 50.7 % und in Zürich 44.8 %. Der maritime Einfluss in Hamburg schlägt sich darin nieder. In Sevilla herrscht hingegen der Wind aus Süden vor, sodass an der Südfassade 47 % des Gesamtabflusses auftreten, jedoch mit 23.4 L/m² nur rund die Hälfte von Hamburg. Die Fassade in Hauptwindrichtung ist folglich der grössten Schlagregenmenge ausgesetzt und generiert den wesentlichen Anteil des Fassadenabflusses.

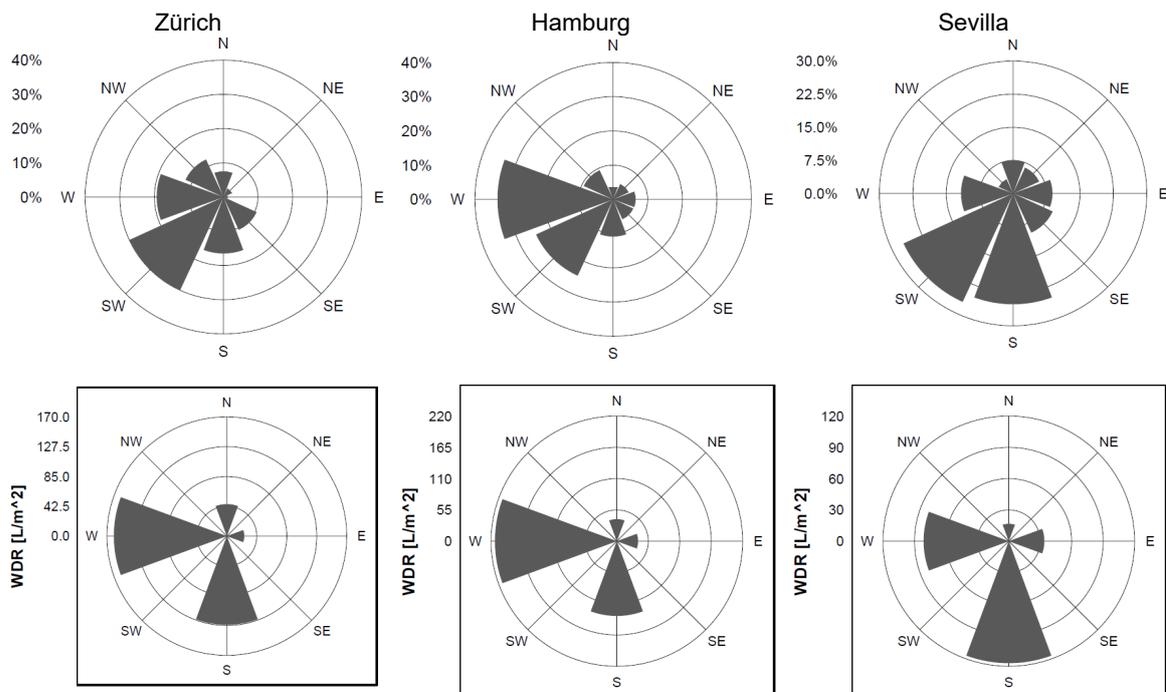


Abbildung 7: Expositionabhängiger relativer Windanteil (% , oben) und kumulierter Fassadenabfluss (L/m², unten) für die Standorte Zürich, Hamburg und Sevilla über fünf Jahre (2011 bis 2016).

Weiterhin ist bemerkenswert, dass der Fassadenabfluss nur einen Bruchteil des Niederschlags umfasst (Tabelle 9). Bezogen auf den Jahresdurchschnitt des Niederschlags über fünf Jahre gelangen an den Westfassaden von Hamburg 5.8 % zum Abfluss, in Sevilla an der Südfassade 5.2 %. An den seltener und weniger intensiv bewitterten Fassaden in Nord- oder Ostrichtung liegen die Abflussanteile sogar nur bei rund 1 % des Niederschlags.

Folglich unterscheiden sich die Abflussmengen an den Fassaden ganz erheblich von den Niederschlagsmengen und lehnen sich gut an Ergebnissen aus Feldstudien an (Wicke et al., 2021).

Tabelle 9: Jährliche Schlagregenmenge (WDR) je Fassadenausrichtung (L/m², %) und expositionsorientierter Anteil des Fassadenabflusses am Niederschlag (Anteil Fassaden-/Niederschlagsabfluss in %) für die Standorte Zürich, Hamburg und Sevilla.

WDR	Zürich				Hamburg				Sevilla			
	N	O	S	W	N	O	S	W	N	O	S	W
Abfluss (L/m ² a)	9.2	5.0	25.2	32.0	7.8	7.4	26.2	42.6	3.4	6.8	23.4	16.2
Anteil (%)	12.9	7.0	35.3	44.8	9.3	8.8	31.2	50.7	6.8	13.7	47.0	32.5
Anteil F/N (%)	1.0	0.5	2.7	3.4	1.1	1.0	3.6	5.8	0.8	1.5	5.2	3.6

In nahezu allen 18 Simulationen werden durch die Direkteinleitung des Fassadenwassers vom Einzelhaus Überschreitungen des Anforderungswerts im Gewässer erwartet (Abbildung 8). Am Standort Zürich treten im kleinen Gewässer rund 250 Überschreitungen für Diuron und rund 200 für Terbutryn frei auf. Die Dauer der Überschreitungen bei Diuron frei erstreckt sich sogar auf eine mindestens doppelt so lange Zeitspanne wie für Terbutryn frei (40 % vs. 17 % über 5 Jahre). Dieser stoffspezifische Unterschied bestätigt sich für die beiden anderen Standorte Sevilla und Hamburg. Im mittleren Gewässer (Abfluss 100 L/s) resultieren sogar noch grössere Unterschiede mit einer für Diuron fünf- bis zehnmal höheren Dauer als für Terbutryn frei (Abbildung 8 unten).

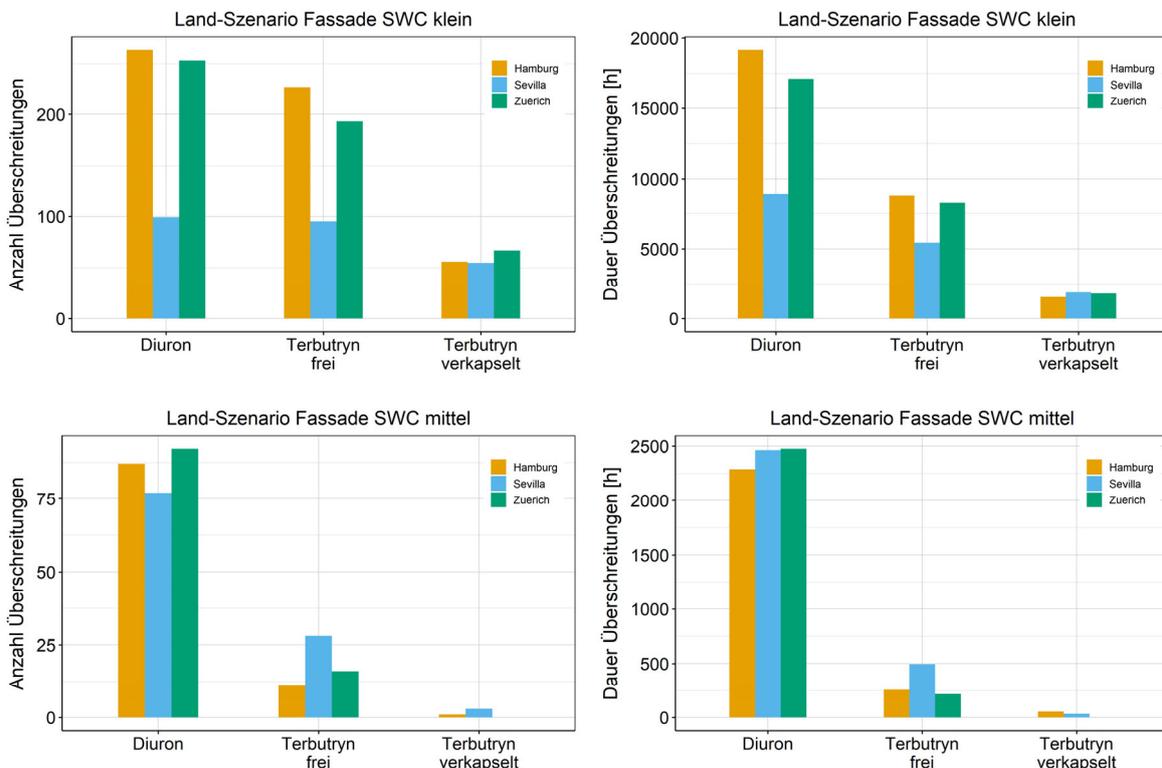


Abbildung 8 Land-Szenario Fassade mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen (oben) und mittleren Gewässer (unten).

Bemerkenswert sind die Unterschiede zwischen kleinem und mittelgroßem Gewässer. Die Anzahl der Überschreitungen nimmt bei Diuron im 10-mal größeren Gewässer gegenüber dem kleineren nur um rund das Dreifache ab. Beim freien Terbutryn mit geringerer Emission als Diuron ist die Abnahme 12-fach, bei verkapseltem Terbutryn sogar 50-fach. Dies unterstreicht, dass die meisten Abflussereignisse erhebliche Stofffrachten transportieren (Konzentrationshöhe), die selbst bei stärkeren Verdünnung zu keiner deutlichen Abnahme der Überschreitungshäufigkeit führen. Trotz der abstrakten Randbedingungen in den Simulationen wird deutlich, dass hohe Stoffemissionen bei Regenwetter selbst in einem mittelgroßen Gewässer zu einer gewissen Belastungsintensität führen.

Die Ergebnisse zur Anzahl und Dauer von Überschreitungen im kleinen Gewässer erscheinen im Grundsatz plausibel. In Berlin wurden bei zwei Überbauungen ebenfalls im Fassadenwasser die Anforderungswerte deutlich, im Regenwasserabfluss noch gelegentlich überschritten (Wicke et al., 2021). Hierbei ist zu beachten, dass im vorliegenden Szenario nur die Emissionen der Fassaden modelliert wurden. Für reale Bedingungen ist bekannt, dass das Dachwasser oder der Regenwasserabfluss der versiegelten Flächen ebenfalls in das Gewässer eingeleitet werden, wodurch die eingetragenen Stoffmengen deutlich verdünnt im Gewässer auftreten würden und somit weniger Überschreitungen zu erwarten wären.

6.2 Land-Szenario Dach

Im Szenario gelangt auf die horizontale Dachfläche der gesamte Niederschlag und der Wind hat keinen Einfluss auf den Wasserkontakt (kein Schlagregen). In der Realität wird jedoch häufig die Abflussmenge durch den Dachaufbau reduziert, z.B. Dachbegrünungen. Der Abflussbeiwert kann diese Abflussminimierung widerspiegeln.

Über den Zeitraum der COMLEAM-Simulation fielen in Zürich 4681 mm, in Hamburg 3651 mm und in Sevilla 2230 mm Niederschlag. Aufgrund der grösseren Regenmengen in Zürich sollten dort mehr und längere Überschreitungen resultieren als in Hamburg. Abbildung 9 zeigt jedoch, dass dies nicht der Fall ist. Der Grund ist, dass die Dauer der jeweiligen Niederschlagsereignisse und deren Intensitäten einen wesentlichen Einfluss haben. Dieser im Modell beobachtete Zusammenhang deckt sich ausgezeichnet mit Feldmessungen (Wicke et al., 2021).

Die grosse Anzahl und Dauer der Überschreitungen (Abbildung 9) lässt sich darüber hinaus mit der Situation vom Land-Szenario Fassade vergleichen, weil in beiden Fällen grosse Emissionsmengen erwartet werden (Kap. 6.1).

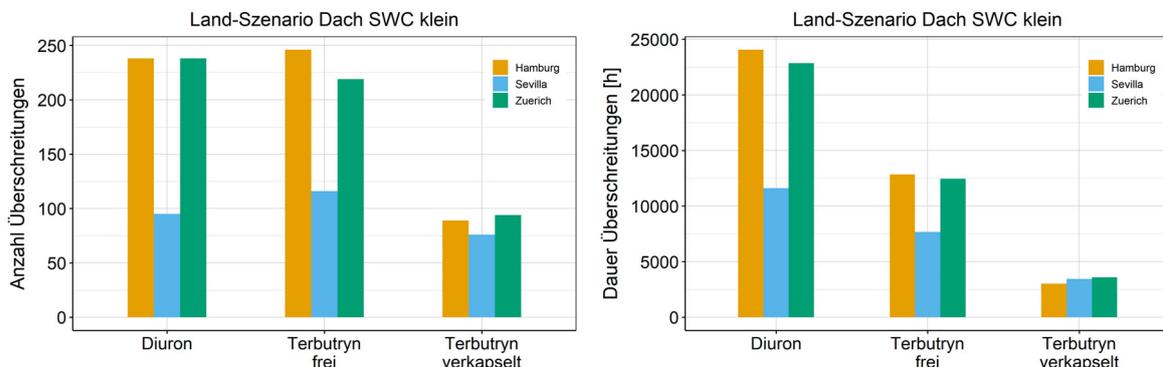


Abbildung 9: Land-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen Gewässer

Wird aber der Konzentrationsverlauf vom Land-Szenario Dach (Abbildung 10 links) mit dem Verlauf vom Land-Szenario Fassade (Abbildung 10, rechts) verglichen, wird ersichtlich, dass die Auswaschung an vertikalen Bauteilen einer anderen Dynamik folgt als aus horizontalen. In Zürich fließen im ersten Jahr rund 50-mal mehr Regenwasser ab als an den Fassaden (81'000 L Dach vs. 1'700 L Fassaden). Im ersten Jahr würde daher von einem biozidhaltigen Dach eine grosse Biozidmenge aus der Beschichtung ausgewaschen. Die emittierte Substanzmenge je Liter Abfluss würde mit der Zeit rasch kleiner, sodass nach dem ersten Jahr bereits fast keine Konzentrationspeaks im Dachwasser aufträten (Abbildung 10). Daraus lässt sich folgern, dass eine biozidhaltige Dachfarbe keine nachhaltige antimikrobielle Wirkung erzielt, weil sie schnell an Wirkstoff verlieren wird.

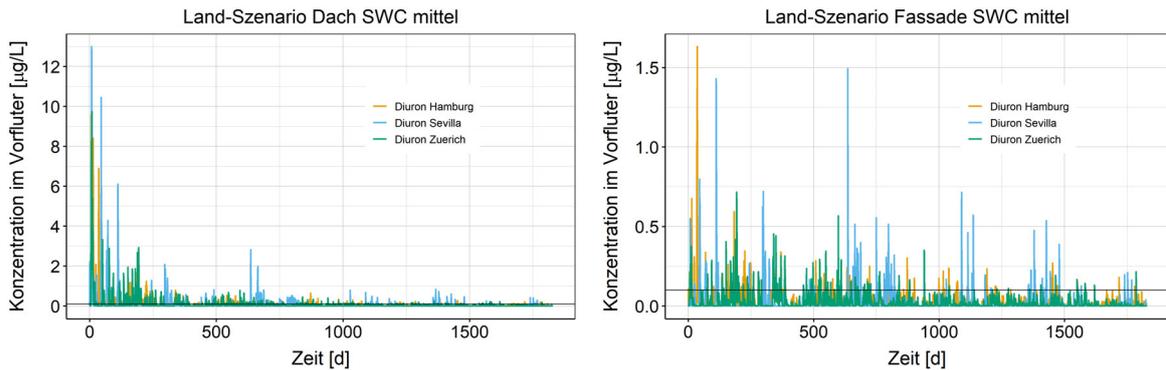


Abbildung 10: Land-Szenario Dach(links) und Land-Szenario Fassade (rechts) mit den Konzentrationen von Diuron in einem mittleren Gewässer durch die Einleitung von Dachwasser und vom Fassadenabfluss (rechts).

6.3 Stadt-Szenario Fassade

Von der im Szenario zugrunde gelegten grossen Fassadenfläche (500'000 m²) von 4000 Gebäuden wird das Fassadenwasser vollständig in ein Gewässer eingeleitet. Im kleinen Gewässer mit 10 L/s Abfluss resultieren deshalb an allen drei Standorten Konzentrationen, die den Anforderungswert um rund einen Faktor 3000 überschreiten (Anhang, Abbildung 38). Selbst im grossen Gewässer (1'000 L/s) liegen die Konzentrationen noch deutlich darüber.

Der Vergleich von Anzahl und Dauer der Überschreitungen bietet zusätzliche Informationen zur Dynamik der Auswaschung (Abbildung 11): Eine geringe Anzahl mit langer Dauer weist auf hohe Konzentrationsspitzen hin, dagegen eine hohe Anzahl mit kurzer Dauer auf scharf abgrenzbare Einträge verursacht durch kleinere Eintragsereignisse. Dies unterstreichen beispielsweise die stark expositionsbeeinflussten Fassadenabflüsse im niederschlagsarmen Sevilla, wo viele akute Belastungen und gleichzeitig nur wenige chronische erwartet werden.

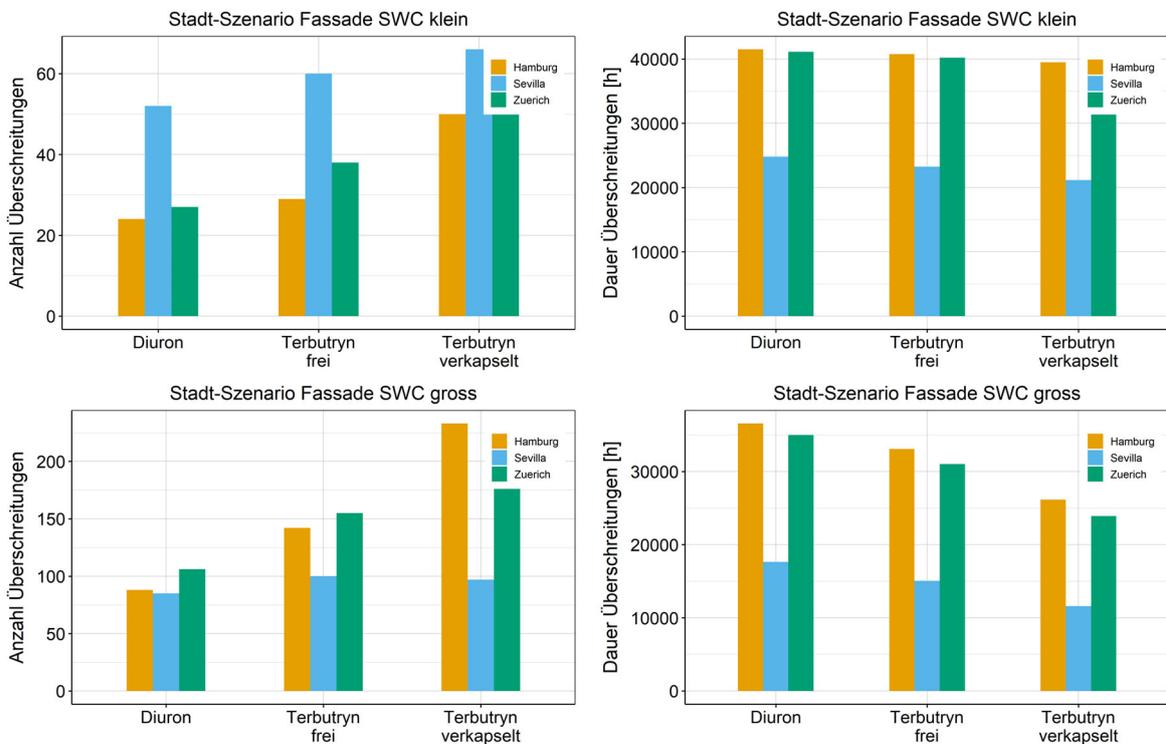


Abbildung 11: Stadt-Szenario Fassade mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts in COMLEAM-Simulationen für ein kleines (oben) und grosses Gewässer (unten).

Die Anzahl Überschreitungen für verkapseltes Terbutryn mit der geringsten Emission lässt vermuten, dass es die problematischste Rezeptur sei. Bei der näheren Analyse der Überschreitungsdauer ist jedoch verkapseltes Terbutryn am unauffälligsten (Abbildung 11, rechts). Diuron wiederum weist trotz der kleinsten Überschreitungszahl mit über 95 % des Zeitraums die längste Dauer auf. Offensichtlich nimmt mit zunehmender Anzahl Überschreitungen die Dauer der Überschreitungen klar ab. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Biozide entweder zu Anfang sehr stark ausgewaschen werden (viele Anzahl Überschreitungen) und dann die Emission deutlich sinkt, oder die Emission sich auf geringerem Niveau über einen längeren Zeitraum erstreckt.

Die Überschreitungsanzahl und Dauer (Abbildung 11) ist massgeblich durch die im ESD-Szenario festgelegte und in COMLEAM übernommene Randbedingung (100 % der Fläche leitet direkt ins Gewässer) zu erwarten gewesen. In der dynamischen Simulation weisen alle 3934 Gebäude von Time2 die gleich hohe Emission auf, wohlwissend, dass diese Situation in der Realität nicht auftritt. Unter Einbezug von differenzierteren Altern der Gebäude und einem realistischen Marktpenetrationsfaktor für das zu betrachtende Biozid ist eine plausible Abschätzung möglicher Belastungen im Gewässer möglich.

6.4 Stadt-Szenario Dach

Das Szenario geht davon aus, dass von einer sehr grossen Dachfläche (984'000 m²) das gesamte Ablaufwasser direkt in ein Oberflächengewässer eingeleitet wird. Durch den intensiven Wasserkontakt und grosse Abflussmengen gelangen entsprechend übermässig grosse Emissionen in die Umwelt. Die Emissionen lassen selbst im mittleren Gewässer (100 L/s) chronische Belastungen mit Überschreitungen für > 90 % der Zeit für alle drei Biozide erwarten (Abbildung 12). So gelangen bei einem stündlichen Niederschlag von 1 mm (1 L/m²) bereits rund 270 L/s ins Gewässer. Dies übersteigt die Gewässergrösse fast um das Dreifache.

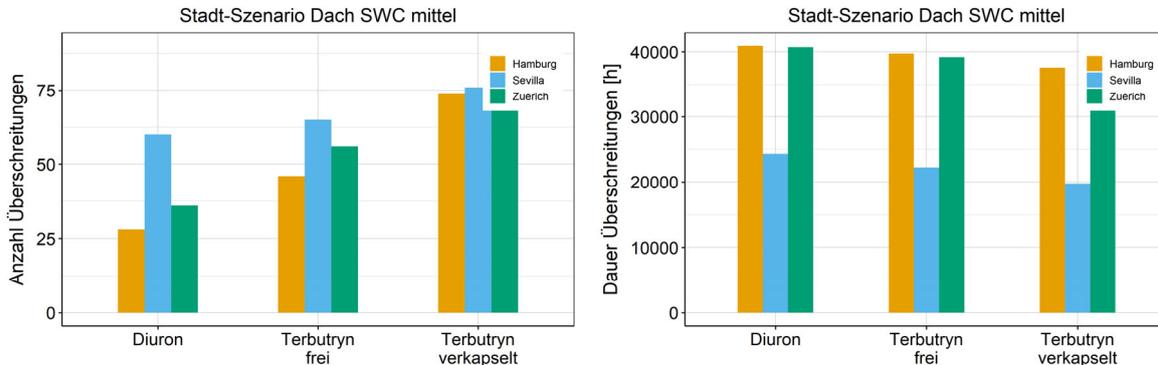


Abbildung 12: Stadt-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im mittleren Gewässer.

Die Anzahl und Dauer der Belastungen korreliert direkt mit den Festlegungen der Modellierung. Die Analyse der Simulationsrandbedingungen zeigt, wie relevant die fundierte Herleitung bestimmter Parameter ist, bzw. wie vorsichtig die Ergebnisse solcher Simulationen einzuordnen sind. So sind die gleichzeitige Beschichtung aller Dächer, die Grösse aller Dachflächen und vollständige Direkteinleitung bezogen auf die Realität nicht plausibel. Dennoch wurde das Szenario für die konzeptionelle Weiterentwicklung genutzt, um die Sensitivität der Eingabeparameter auf COMLEAM-Resultate zu erarbeiten und die Limitierung bei der unmittelbaren Nutzung von ESDs für dynamische Simulationen zu geben.

7 Einflussfaktoren in dynamischen COMLEAM-Simulationen

Die Relevanz der standortbezogenen Witterung (Hamburg, Zürich, Sevilla), der Gewässergösse (klein, mittel, gross) und der Eigenschaften der Biozide (Diuron frei, Terbutryn frei, Terbutryn verkapselt) auf die Emissionen und Risiken im Gewässer wurden systematisch untersucht (vgl. Anhang B).

7.1 Standortbezogene Witterung

Der Einfluss der standortbezogenen Witterung spiegelt sich sehr anschaulich am Schlagregenmuster sowie im Konzentrationsverlauf des Gewässers wider.

Der Witterungsverlauf an den drei Standorten weist eine starke Saisonalität und hohe jährliche Streuung auf. Der Datensatz von Hamburg ist durch Wind und eine gleichmässige Niederschlagsverteilung, der von Zürich durch grosse Niederschlagsspitzen mit geringerer Windintensität, und Sevilla durch lange Trockenperioden und kräftige Regen im Winter gekennzeichnet. In Hamburg ist die Windstärke höher als in Zürich (4.3 m/s Hamburg, 2.5 m/s Zürich), sodass Hamburg grössere Mengen Schlagregen über die gesamte Zeitspanne aufweist. Jedoch treten in Zürich aufgrund der hohen Niederschlagsintensität pro Ereignis mehr abfliessender Schlagregen, und damit länger anhaltende Substanzeinträge ins Gewässer, auf. Die Standortunterschiede von Hamburg und Zürich sind daher eher gering. Anders zeigt es sich für Sevilla mit bedeutend seltener auftretenden Schlagregenergebnisse.

Abbildung 13 zeigt den Verlauf von Terbutryn frei für das "Land-Szenario Fassade" und das "Land-Szenario Dach" im mittelgrossen Gewässer. Im "Land-Szenario Dach" mit direktem Eintrag ins Gewässer nehmen die Konzentrationen, von einem höheren Niveau als im "Land-Szenario Fassade" ausgehend, sehr schnell ab und die Konzentrationen verlaufen gleichmässiger als bei Fassadeneinträgen. Der viele Niederschlag auf dem Dach begünstigt die schnelle Abnahme der Auswaschung.

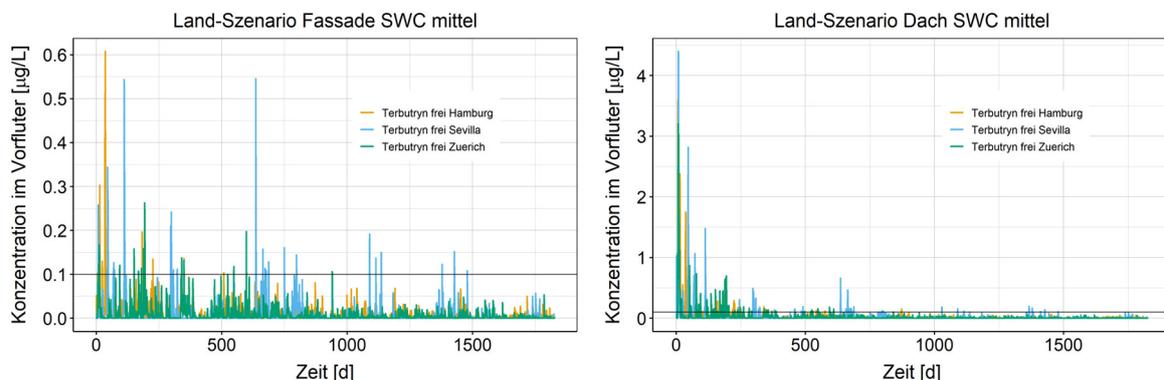


Abbildung 13: Vergleich Konzentrationsverlauf Terbutryn frei für das Land-Szenario Fassade (links) und Land-Szenario Dach (rechts) im mittleren Gewässer.

In beiden Szenarien ist ersichtlich, dass in Sevilla noch zwei Jahre nach der Erstellung vergleichsweise hohe Konzentrationsspitzen in der simulierten Zeitspanne von fünf Jahren auftreten können. Der langanhaltende Eintrag ist auf die standortspezifische Niederschlagsverteilung in Sevilla, welche mediterran geprägt ist, zurückzuführen. Dort fällt nur weniger als die Hälfte des Jahresniederschlags von Zürich, und dieser bevorzugt im Winter. Auch regnete es rund dreimal seltener als in Hamburg, die Niederschlagsintensität ist jedoch etwa doppelt so hoch. Daraus ergeben sich seltener und in Summe kleinere Schlagregenmengen in Sevilla, durch die weniger Biozidmenge ausgewaschen wird als an den beiden anderen niederschlagsreichen Standorten. Periodisch auftretende Starkregenergebnisse lassen die Emissionen immer wieder ansteigen.

Daraus entstehen Konzentrationsspitzen, die sich über eine grössere Zeitspanne mit ausgeprägten Maxima im Winter verteilen.

7.2 Gewässergrösse

Die Gewässergrösse hat erheblichen Einfluss auf die Überschreitungen, wobei zwischen der Gewässergrösse und der Konzentrationshöhe ein nahezu linearer Einfluss besteht. Ein zehnmal grösseres Gewässer enthält mehr Wasser und die Stoffmenge verdünnt sich entsprechend. Grosse Wassermengen mit geringen Stoffkonzentrationen vom Dach, oder kleine Wassermengen mit hohen Konzentrationen von den Fassaden können ab einem bestimmten Verdünnungsverhältnis immer zu kritischen Belastungen führen. Die Anzahl und Dauer solcher Belastungen nehmen bei kleineren Gewässern sogar überproportional zu. Der Zusammenhang lässt sich am Beispiel vom Einzelhaus aus dem Land-Szenario und Terbutryn verkapselt entnehmen (Abbildung 14).

In kleinen Gewässern führen bereits geringe Abflussmengen von neuen Fassade zu einem relevanten Biozideintrag und entsprechenden Belastungen. Durch solche kleinen und häufigen Ereignisse werden Gewässer vor allem chronisch belastet. Das Beispiel von Diuron zeigt, dass die starke Auswaschung auch mittelgrosse Gewässer beeinträchtigen kann, hingegen Terbutryn weniger freigesetzt wird (Abbildung 8, S. 14). Beim verkapselten Terbutryn gelangen noch geringere Frachten in die Umwelt, sodass mit einer solchen Biozidrezeptur ein Gewässer stets geringer belastet wird.

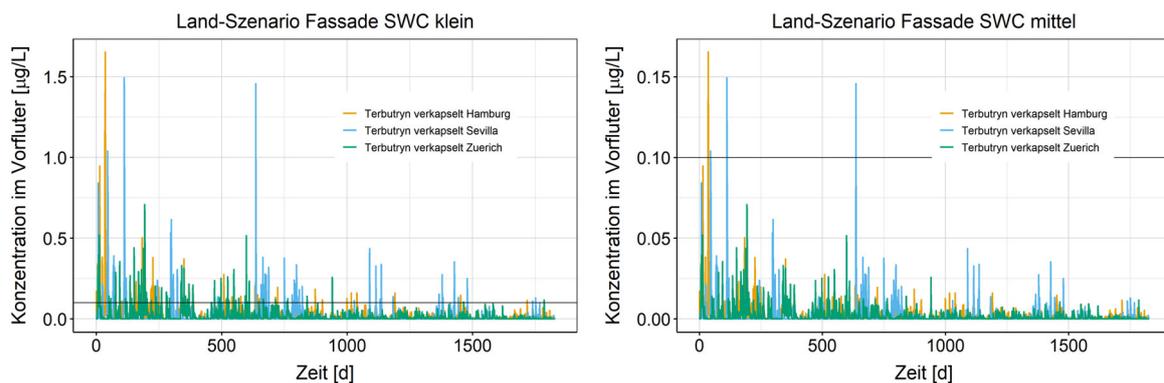


Abbildung 14: Konzentrationen im Land-Szenario für Terbutryn verkapselt im kleinen (links) und mittleren Gewässer (rechts). Eintragsquelle ist das Einzelhaus.

Beim mittleren Gewässer führten nur regenintensive Ereignisse, die genügend Schlagregenabfluss auslösen, noch zu wenigen Überschreitungen des Anforderungswerts, da der Grossteil der eingetragenen Fracht verdünnt wird. Dieser Zusammenhang lässt sich beispielsweise anhand der Abbildung 14 nachvollziehen. Von Terbutryn verkapselt verringert sich für Hamburg die Dauer der Überschreitung um Faktor 30 bei einer Vergrösserung des Gewässers um den Faktor 10, die Anzahl sogar überproportional um Faktor 60. Folglich existiert ein charakteristisches Verhältnis zwischen Gewässergrösse und Emission vom Gebäude. Wird dieses nicht eingehalten, führen bereits kleine Ereignisse zu unerwünschten Konzentrationshöhen.

Die Differenzierung in drei Gewässerklassen zeigte in den Simulationen Zusammenhänge auf, die bis anhin eher als Vermutungen geäussert wurden. Um sie bei einer verfeinerten Bewertung abbilden zu können, haben sich vor allem das kleine und mittlere Gewässer als sehr hilfreich erwiesen. Das grösste Gewässer generierte dagegen nur einen begrenzten Mehrwert. Die Verdünnung im Gewässer übt noch mehr Einfluss auf die Resultate aus als die Unterschiede im Witterungsverlauf der drei Standortunterschiede erreichen können.

7.3 Eigenschaften der Biozide

Die spezifischen Emissionen hängen wesentlich von deren Stoffeigenschaften ab. Aufgrund einer höheren Wasserlöslichkeit und geringeren Lipophilität wird Diuron (WL 40 mg/L, LogKow 2.8) im Bindemittel weniger gut zurückgehalten als Terbutryn (WL 30 mg/L, LogKow 3.7), folglich stärker ausgewaschen als Terbutryn. Die Verkapselung reduziert sogar die Terbutryn-Emission im vorliegenden Fall nochmals. Die gute Mobilisierbarkeit von Diuron führt selbst bei einem mittleren Oberflächengewässern (100 L/s) noch zu anhaltenden Belastungen (Abbildung 8, S. 14).

Die Emission der Biozide verhält sich proportional zum Anfangsgehalts C_0 (Schoknecht et al., 2009). Begründet wird dies damit, dass mit der homogenen Einarbeitung in einer Beschichtung das wassermobilisierbare Bioziddepot angelegt wird. Je höher die Flächenkonzentration, desto höher Kontaktwahrscheinlichkeit mit dem kristallin (=frei) oder verkapselt eingearbeiteten Biozidwirkstoff. In einem fiktiven Beispiel wurde getestet, wie sich eine Verdoppelung der Anfangskonzentration auf die Emission der Fassadenbeschichtung auswirkt (von 1400 mg/m² auf 3000 mg/m² Terbutryn) (Anhang B.5). Tatsächlich erhöhten sich die Emissionen um rund das Doppelte. Die Belastungen im Gewässer nehmen aber bei der Anzahl und Dauer nicht linear zu (Kap. 6.2).

Die stoffspezifische Auswaschung wird durch den Verlauf bestimmt, welcher sich in den Parametern der Emissionsfunktion abbildet (Abbildung 15). Generell lässt sich dazu folgern, dass bei Emissionsfunktionen mit kleinem charakteristischem Abfluss zu Beginn mehr Substanz emittiert wird, da der Funktionsverlauf steiler ist (Kap. 9.1., S. 31). Dafür flachen die Kurven im weiteren Verlauf stärker ab. Aus Gewässersicht bedeutet das, dass Produkte mit steilem Emissionsverlauf kurz nach der Applikation viele und hohe Konzentrationsspitzen im Gewässer verursachen. Nach einiger Zeit (funktionsabhängig) wird nur noch wenig Substanz freigesetzt. Für den Fall, dass ein kleiner charakteristischer Abfluss auftritt, gelangen zu Anfang zwar kleinere Konzentrationsspitzen ins Wasser, aber dafür über eine längere Zeitspanne. Für den zweiten Fall dürfte darüber hinaus davon ausgegangen werden, dass die Schutzwirkung der Biozide im Material länger anhält.

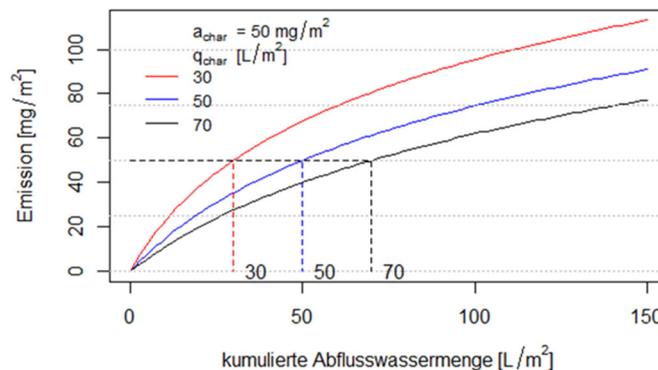


Abbildung 15 Einfluss vom charakteristischen Abfluss q_{char} (L/m²) in der logarithmischen Funktion als relevanter Stoffparameter auf die Biozidemission.

8 Vergleich von ESDs und dynamischen Simulationen

Die Witterungsbedingungen führen an jedem Standort zu Emissionen, die über mehrere Jahre nichtlinear abnehmen und stets an Regenwetterereignisse gebunden sind. Die ausgetragene Biozidmenge sowie Konzentrationen im Gewässer sind entscheidend durch die Niederschlagscharakteristik und die Stoffeigenschaften geprägt.

Hinsichtlich Stoffemissionen von Dach und Fassade gehen ESDs von einem zweiphasigen Eintrag in die Umwelt aus: TIME1, 30 Tage, mit hoher Emission und TIME2 mit geringer über fünf Jahre. Regen- und Trockenwetterperioden bleiben unbeachtet.

In der Emissionsbetrachtung vom ESD werden Einzelwerte über die zwei Zeitspannen berechnet. Ein Vergleich dieser Resultate mit einem akuten oder chronischen Qualitätsziel, welche mittlere Konzentrationen über 3 oder 14 Tage repräsentieren, ergeben sich dadurch gewisse Limitierungen. Hier liefert COMLEAM durch seinen dynamischen Ansatz eine komplementäre Bewertung von regengetriebenen Konzentrationsspitzen und liegt bei der zeitlichen Änderung mit einer stündlichen Zeitauflösung dichter an der Realität.

Für den Pfad der Direkteinleitung in ein Oberflächengewässer ist bekannt, dass nicht verschmutztes Regenwasser das Ablaufwasser von Dach und Fassade verdünnt und damit die Konzentrationshöhe (relevant für Risikoquotient) beeinflusst (Wicke et al., 2021). Beide Modellansätze berücksichtigen die Verdünnungswirkung. In Stadt-Szenario Fassade ist eine festgelegte Verdünnung integriert, während in COMLEAM die Verdünnungsfläche beliebig implementierbar ist und von der Niederschlagsverteilung abhängt.

Die ESDs sind für fast jede Produktart (PA7 bis 10) verschieden. So führen die unterschiedlichen Umgebungsbedingungen wie Geometrien, Eintragswege und Beurteilungspunkte zu untereinander wenig vergleichbaren Ergebnissen. Auch wenn dies nicht Ziel der ESDs gewesen sein dürfte, so lassen sich die dynamischen Simulationen durchweg mit vergleichbaren Randbedingungen durchführen. Alle COMLEAM-Berechnungen münden in Schnittstellenkompartimenten und nach der Direkteinleitung immer im gleichen Endpunkt, den Konzentrationen im Oberflächengewässer. Ein Quervergleich zwischen diesen Ergebnissen ist damit einfach möglich.

8.1 Land-Szenario Fassade

In den ESD-Berechnungen werden für den jährlichen Fassadenabfluss die Felddaten eingesetzt (Tabelle 1). Die dynamischen Simulationen dagegen generierten auf Grundlage der Wetterdatensätze (Hamburg, Sevilla, Zürich) für jeden stündlichen Zeitschritt den Schlagregenabfluss. Entsprechend basieren die Emissionen von Time2 ($Q_{leach, Time2}$) des ESD auf einer anderen Berechnungsmethodik als COMLEAM. Beim ESD-Einzelhaus wird ausserdem der Eintragspfad ins Grundwasser via Versickerung in den Boden bilanziert, bei COMLEAM dagegen der Direkteintrag ins Oberflächengewässer. Aufgrund der methodischen Unterschiede lassen sich bevorzugt die berechneten Emissionen der Fassaden ins Regenwasser vergleichen.

Aufgrund der verschiedenen Berechnungsweisen treten deutliche Diskrepanzen in den Emissionen auf. So liegen im ESD die Emissionen durchgehend rund 1.5 bis 2-fach höher als in den dynamischen Simulationen (Tabelle 10). Wesentlicher Grund ist, dass im ESD-Szenario die gesamte Fassadenfläche unabhängig von der Ausrichtung emittiert.

Tabelle 10: Frachten von Diuron und Terbutryn aus den ESD-Berechnungen und COMLEAM-Simulationen. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Substanzemissionen von ESD zum mittleren COMLEAM-Ergebnis.

Szenario	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
ESD-Berechnung [g]	56	16	3.8
SEV (COMLEAM) [g]	26	8.5	2.2
ZUR (COMLEAM) (g)	30	9.5	2.4
HAM (COMLEAM) (g)	33	11	2.6
Mittel COMLEAM (g)	30	10	2.4
ESD / COMLEAM	1.9	1.6	1.6

In der COMLEAM-Simulation ist die Auswaschung beeinflusst von der Windrichtung. Abbildung 16 zeigt als Beispiel die Emissionen in Abhängigkeit von der Fassadenausrichtung. So emittiert von der Westfassade in Hauptwindrichtung eine deutlich grössere Stoffmenge als an der windabgewandten Seite. Unter der Berücksichtigung der in der Realität anzutreffenden und in COMLEAM integrierten expositionsabhängigen Emission, ist im ESD-Szenario die Flächengrösse zu hoch angesetzt. Die

Emissionsüberschätzung ist zusätzlich beeinflusst von den Stoffeigenschaften (Diuron vs. Terbutryn frei, Tabelle 10) sowie der standortbedingten Witterung. Würde im ESD beispielsweise die emissionswirksame Fläche halbiert, reduziert sich entsprechend die freigesetzte Biozidmenge und die dynamische Simulation und das ESD wären vergleichbarer. Eine Reduktion der Fläche (AREA) im ESD um Faktor 1.5 auf 85 m² (gerundet) wäre als konservativer Ansatz vorstellbar.

Diese Emissionen an jeder Fassade nehmen in der Realität unterschiedliche Wege in die Umwelt, beispielsweise versickert das Wasser und gelangt über Dränagen in ein Oberflächengewässer. Diese weitere Verfeinerung wäre im ESD wiederum durch eine weitere Verkleinerung der Fassadenflächen umsetzbar. In COMLEAM dagegen bietet die Schnittstelle beim Datenexport die vorzügliche Möglichkeit, die zeitaufgelösten Emissionen inkl. Wetterdatensatz für eine Transportmodellierung im Boden zu nutzen. Bereits realisierte 1D-Simulationen mit PELMO für Terbutryn und Diuron unterstreichen die generelle Eignung und das Potential (Klein et al., 2015). Damit können zeitaufgelöste Sickerwasserkonzentrationen, ähnlich denen im Oberflächengewässer, abgeschätzt werden, wodurch eine hohe Vergleichbarkeit mit der realen Situation gegeben ist.

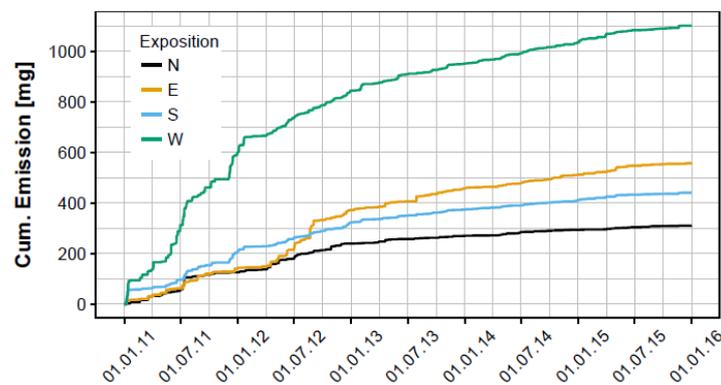


Abbildung 16: Simulierte Emission von Terbutryn verkapselt vom Einzelhaus für das Land-Szenario Fassade mit den Wetterdaten von Zürich.

8.2 Land-Szenario Dach

Das Land-Szenario Dach existiert nicht als ESD und konnte daher nicht mit der dynamischen Berechnung verglichen werden.

8.3 Stadt-Szenario Fassade

Die Gesamtemissionen über fünf Jahre sind im ESD, wie zuvor beim Land-Szenario Fassade mit dem Einzelhaus (Kap. 8.1), rund doppelt so hoch wie in den COMLEAM-Simulationen, unabhängig von den Standorten Hamburg, Sevilla und Zürich (Tabelle 11). Dies beruht darauf, dass der einzige Unterschied zwischen Land- und Stadt-Szenario die Anzahl betrachteter Gebäude (1 Haus vs. 4000 Häuser) ist. Folglich sind die Verhältnisse zwischen beiden Berechnungsansätzen gleich skaliert.

Tabelle 11: Frachten von Diuron und Terbutryn aus dem Stadt-Szenario Fassade aus ESD und COMLEAM. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Substanzemissionen von ESD zum mittleren COMLEAM-Ergebnis.

Szenario	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
ESD (kg)	223	63	15
SEV (COMLEAM) (kg)	103	34	8.7
ZUR (COMLEAM) (kg)	121	38	9.6
HAM (COMLEAM) (kg)	133	41	10.4
Mittel COMLEAM (kg)	119	38	9.6
ESD / COMLEAM	1.9	1.7	1.6

Im ESD resultiert die Konzentration im Regenablauf durch die Annahme einer Einleitmenge von 600 m³ pro Tag. In der dynamischen Simulation ist die Menge aber für jedes Regenereignis unterschiedlich. Wird die Gesamtabflussmenge des Niederschlags aus der COMLEAM-Simulation durch die Anzahl Tage (1825) geteilt, resultieren mittlere Regeneinleitmengen von 15 m³ pro Tag (SEV) und 28 m³ pro Tag (HAM). Diese unterscheiden sich gegenüber der ESD-Menge um einen Faktor 20 bis 40.

Die verhältnismässig geringen Regenabflussmengen in der COMLEAM Simulation resultieren daher, dass nur die Fassaden (bzw. nur der abfliessende Schlagregen) berücksichtigt sind. Die Regenabflussmengen aus dem ESD Szenario hingegen leiten sich aus statistischen Daten von Deutschland ab und berücksichtigen sämtliche an die Trennkanalisation angeschlossenen Flächenabflüsse. Das ESD-Szenario berücksichtigt einen Regenablauf von 600 m³ und macht somit eine Aussage über andere Kompartimente als COMLEAM, ist somit nicht direkt vergleichbar. In COMLEAM lassen sich jedoch Anschlussflächen, wie Dächer oder versiegelter Umschwung, integrieren, um eine vollständige Abflussbilanz zu erstellen.

Gemäss ESD-Berechnungen tritt kein Biozid über dem festgelegten Anforderungswert im Gewässer auf. Werden hingegen diese Konzentrationen mit den Mittelwerten (Durchschnittskonzentration über 5 Jahre, gemittelt für alle Standorte) aus COMLEAM verglichen, unterscheiden sie sich um mehrere Grössenordnungen (Tabelle 12). So ist die berechnete Durchschnittskonzentration aus der COMLEAM-Simulation für das kleine Gewässer (10 L/s) zwischen 36'000-mal (Diuron) und 45'000-mal (Terbutryn verkapselt) höher als im ESD-Szenario. Für das mittlere Gewässer (100 L/s) bewegt sich der Unterschied noch um einen Faktor 4000. Dabei liegen die mit COMLEAM ermittelten Konzentrationen im Gewässer weit über denen, welche in urban geprägten Gewässern jemals gemessen wurden oder zu erwarten wären.

Die hohen Konzentrationen in der dynamischen Simulation verbinden sich mit der Annahme, dass alle 4000 Gebäude der Stadt gleichzeitig unverdünnt ins Gewässer einleiten. Diese worst-case Annahme ist unrealistisch. Genau hieraus resultiert eine interessante Ergänzungsmöglichkeit zu den ESDs: Ausgewählte Modellparameter können dahingehend plausibilisiert werden, bis typische Gewässerkonzentrationen erreicht werden. Dafür drängen sich die Festlegung eines realistischeren Marktpenetrationsfaktors für den jeweiligen Wirkstoff (Standard 100 %) und die abflusswirksamen Anschlussflächen, die zur Verdünnung der emittierten Frachten beitragen, auf. Dieser Sachverhalt wird in Kapitel 8.5 detailliert dargestellt.

Tabelle 12: Durchschnittskonzentrationen im Gewässer von Diuron und Terbutryn aus dem Stadt-Szenario und den COMLEAM-Simulationen. Die Durchschnittskonzentrationen der COMLEAM-Simulationen über 5 Jahre resultieren durch die Mittelung aller Standorte (HAM, SEV, ZUR). Die beiden unteren Zeilen zeigen das Verhältnis von ESD- zu COMLEAM-Resultaten im kleinen und mittleren Gewässer.

Szenario	Diuron frei	Terbutryn frei	Terbutryn verkapselt
ESD (µg/L)	0.0204	0.0058	0.0014
Klein COMLEAM (µg/L)	797	251	63.7
Mittel COMLEAM (µg/L)	87.7	27.3	6.9
ESD / Klein COMLEAM	0.00028	0.00026	0.00025
ESD / Mittel COMLEAM	0.0025	0.0024	0.0023

8.4 Stadt-Szenario Dach

Das Szenario berechnet unter anderem die spezifische kumulative Freisetzung von den Bioziden. Dieser Wert liegt auch aus den COMLEAM-Simulationen für die drei Standorte Hamburg, Sevilla und Zürich vor. Vergleichend sind die Resultate wieder zusammengefasst worden (Tabelle 13). Im ESD

wird zusätzlich eine durchschnittliche tägliche Emission ins Gewässer ($E_{local_{leach}}$ [g/d]) berechnet. In der dynamischen Simulation ist die Tagesemission beeinflusst vom Wetter und der Emissionsfunktion. Deshalb lassen sich die Ergebnisse wiederum nicht unmittelbar miteinander vergleichen.

Da im ESD nur die Einsatzkonzentration der Substanzen einen Einfluss auf das Ergebnis hat, traten bei gleichen Ausgangsgehalten keine stoffspezifischen Unterschiede zwischen Diuron und Terbutryn frei auf. Die Felduntersuchungen (4.1.1) belegen jedoch eine vierfach höhere Emission von Diuron im Vergleich zu Terbutryn frei.

Die spezifischen Emissionen des ESDs sind daher bedeutend höher als aus den COMLEAM-Simulationen, beispielsweise Terbutryn frei um einen Faktor 15 und Diuron um Faktor 4. Der Grund für die Unterschiede liegt im Emissionsverhalten. Im ESD-Szenario für Dächer ist als Standard festgelegt, dass über die Nutzungsdauer das gesamte Bioziddepot ausgewaschen wird. Die Emissionsfunktion in COMLEAM hingegen extrapoliert die Felddaten mit einem über die Zeit abnehmenden Verlauf. Im betrachteten Zeitraum von fünf Jahren werden somit von Diuron frei nur 25 % der Ausgangsmenge und Terbutryn verkapselt sogar nur 3.3 % ausgewaschen, was exakt den Verhältnissen von ESD und COMLEAM entspricht.

Tabelle 13: Spezifische Emission von Diuron und Terbutryn aus ESD-Szenario und COMLEAM-Simulation. Die letzte Zeile zeigt das Verhältnis der Emissionen von ESD zu COMLEAM.

Szenario	Diuron frei [g/m ²]	Terbutryn frei [g/m ²]	Terbutryn verkapselt [g/m ²]
ESD	2.98	2.98	1.40
COMLEAM	0.75	0.20	0.046
ESD / COMLEAM	4	15	30

Das ESD-Szenario geht im Standardmodus von einer vollständigen Auswaschung der eingesetzten Biozide über die Lebensdauer aus. Dies ist eher nicht zu erwarten, weil Transformationsverluste im Material und an der Materialoberfläche auftreten und eine Restmenge nicht emittieren dürften. Mit Felddaten lassen sich die effektiven Auswaschraten realistischer berücksichtigen und damit das ESD-Resultat schärfen. Ebenso wie im "Stadt-Szenario Fassade" könnte eine weitere Verbesserung durch einen korrigierten Marktpenetrationsfaktor (Standardwert 100 %) erzielt werden, da die Annahme abwegig erscheint, dass in einer Überbauung dieser Grössenordnung sämtliche kommerziellen Gebäude gleichartig ausgerüstet sind.

8.5 Stadt-Szenario Fassade mit angepassten Parametern

Um beim Stadt-Szenario zwischen dem ESD-Ansatz und der dynamischen Simulation höhere Übereinstimmung zu erzielen und das Verständnis über die Modellansätze weiter zu verbessern, wurde für dieses Szenario exemplarisch eine ergänzende, leicht optimierte COMLEAM-Simulation durchgeführt. Durch erste Anpassungen soll aufgezeigt werden, welche Parameteranpassungen inhaltlich sinnvoll sind und damit die Aussagekraft der Ergebnisse verbessern können. Denn wie die Resultate der dynamischen Simulation zeigen, führte die unmittelbare Nutzung von ESD-Simulationsparametern in der dynamischen Simulation nicht immer zu einem plausiblen Ergebnis (Kapitel 6.3 und 8.3).

Für das optimierte Vorgehen unter COMLEAM wurden 66 neue Gebäude exemplarisch für Terbutryn frei für den Standort Hamburg mit angepasster Gewässergrösse simuliert (Tabelle 2). Im ESD City Szenario entsprechen die 66 Gebäude den Gebäuden, die sich in der hohen Emissionsphase (Time 1 = 30 d) befinden (Muijs et al., 2015). Darüber hinaus wird davon ausgegangen, dass jeden Monat 66 Häuser neu gestrichen werden. Extrapoliert auf die Lebensdauer von 5 Jahren (=60 Monate) wird somit jedes Haus einmal neu gestrichen.

$$66 \frac{\text{Gebäude}}{\text{Monat}} \times 60 \text{ Monate} \cong 4000 \text{ Gebäude}$$

Alle anderen Parameter wurden beibehalten (Tabelle 14). Das Ergebnis wurde anschliessend auf die 4000 Gebäuden extrapoliert. Die verbleibenden 3934 Gebäude wurden nicht simuliert, da das Modell immer nur eine Emissionsfunktion pro Simulation berücksichtigen kann.

Statt mit einem generischen Gewässer mit 10 oder 100 L/s Abfluss, wurde die Gewässergrösse an das ESD-Szenario angepasst. Obwohl im ESD das Gewässer nicht genau definiert ist, konnte aus der täglichen Einleitmenge von 600 m³/d und der Verdünnung von 1:10 ein Abfluss von 70 L/s hergeleitet werden. Mit dieser Abflussmenge wurde simuliert.

$$600'000 \frac{\text{L}}{\text{d}} \times 10 (\text{Verdünnung}) / 86'400 \frac{\text{s}}{\text{d}} = \frac{6'000'000 \frac{\text{L}}{\text{d}}}{86'400 \frac{\text{s}}{\text{d}}} \cong 70 \frac{\text{L}}{\text{s}}$$

Tabelle 14: Parameter für das Stadt-Szenario und die optimierte dynamische Simulation mit COMLEAM.

Parameter	ESD	COMLEAM
Geometrie	66 Häuser (je 125 m ² Fassade) Initial (neu) = 66 Longer (älter) = 3934	66 Häuser (je 125 m ² Fassade, keine Dächer, neu)
Emission Terbutryn frei	Q _{leach, Time1} [mg/m ²] = 17.5 Q _{leach, Time2} [mg/m ²] = 126.8	a _{char} = 33.8980 b _{log} = 0.1349
Wetterdaten	Keine	Hamburg, 5 Jahre
Einleitmenge	600 m ³ /d	Regengetrieben
Verdünnung Gewässer	1:10	dynamisch mit Abfluss (70 L/s)

8.5.1 Ergebnis Gesamtabfluss

In der COMLEAM-Simulation mit 66 Gebäuden, in der nur der Fassadenabfluss berücksichtigt ist, werden nun 840 m³ eingeleitet. Von 66 auf 4000 Gebäude extrapoliert, resultieren 51'000 m³.

Das ESD-Szenario geht hingegen von einer täglichen Einleitmenge von 600 m³/d Regenwasser aus. Diese wurde hergeleitet aus täglich 60 L Regenabfluss pro Einwohner sowie durchschnittlich 2.5 Bewohner pro Gebäude bei 4000 Gebäuden (EFFLUENT_{rainwater}) (Ahting et al., 2014). Über fünf Jahre gelangen deshalb 1'095'000 m³ Regenwasser über den Abfluss ins Gewässer, eine rund 20-fach höhere Regenwassermenge als in COMLEAM.

Um in der dynamischen Simulation zukünftig eine weitere Näherung an den Gesamtabfluss des ESD zu erreichen, müsste bei kumuliert 3650 mm Niederschlag über fünf Jahre neben der Fassadenfläche eine zusätzliche horizontale Anschlussfläche von 285'000 m² mit einem Ablaufbeiwert von 1.0 definiert werden. Diese Anschlussfläche berücksichtigt beispielsweise Dachabflüsse, Abflüsse von Plätzen oder sonstige Flächen, welche in die Trennkanalisation entwässern.

$$\frac{\text{Abfluss}_{\text{ESD}} - \text{Abfluss}_{\text{CLM}}}{\text{Niederschlag}} = \text{Benötigte Verdünnungsfläche} \rightarrow \frac{1'095'000 \text{ m}^3 - 51'000 \text{ m}^3}{3'650 \frac{\text{L}}{\text{m}^2}} = 285'000 \text{ m}^2$$

Somit kommt auf jedes Haus eine zusätzliche Verdünnungsfläche von rund 72 m², entsprechend einem halben Dach, bzw. 2000 Dachflächen der Stadt. Ob diese Flächengrösse repräsentativ ist für den urbanen Raum, könnte ergänzend eruiert werden.

In COMLEAM könnte eine entsprechende Verdünnungsfläche als Hausumschwung integriert werden. Im Konzept für die Bewertung von Bauprodukten wurde eine Fläche von 400 m² umgesetzt, um den höheren Versiegelungsgrad und die damit einhergehende Verdünnung des Regenabflusses

abzubilden (Burkhardt et al., 2021). Ob 600 m³/d, welche im ESD Szenario als Grundlage dienen (Ahting et al., 2014), repräsentativ für den Regenabfluss einer Kleinstadt ist, kann an dieser Stelle nicht beantwortet werden, sondern müsste durch die Analyse von weiteren Abflussdaten erarbeitet werden.

8.5.2 Ergebnis Gesamtemission über fünf Jahre

Aus der angepassten dynamischen Simulation mit 66 neuen Gebäuden resultieren 0.68 kg Terbutryn frei über fünf Jahre gegenüber 63 kg im ESD (0.04 kg/d). Wird die Emission auf 4000 Gebäude extrapoliert, resultieren rund 41 kg Terbutryn in COMLEAM. Folglich liegt die ESD-Berechnung immer noch rund 1.5-mal höher.

Diese Diskrepanz basiert ausschliesslich auf der Expositionsorientierung in COMLEAM. Bei der COMLEAM-Simulation ist die spezifische Emission abhängig vom Windfeld (Tabelle 15) und liegt gegenüber der ESD-Berechnung mit 126 mg/m² (63 kg bezogen auf 125 m² x 4000 Gebäude) in der Hauptwindrichtung um rund 10 %, der windabgewandten Fassadenseiten (Nord, Ost) sogar um rund 50 % niedriger.

Um die beiden Modellergebnisse noch stärker anzunähern, könnte die Fassadenfläche im ESD Szenario entsprechend verkleinert werden. Ein konservativer Faktor von 1.5-2.0 entspricht etwas weniger als das Verhältnis von der spezifischen Emission vom ESD zur gemittelten spezifischen Emission aus der COMLEAM Simulation.

Tabelle 15: Spezifische kumulierte Emissionen je Fassadenausrichtung im angepassten dynamischen Stadt-Szenario Fassaden.

Ausrichtung	Spezifische kumulierte Emission [mg/m ²]
N	59
O	58
S	96
W	112

8.5.3 Ergebnis Konzentration im Regenwasserabfluss

Gemäss ESD resultiert im Regenablauf eine Konzentration von 0.066 µg/L Terbutryn. Da im ESD von einer konstanten Ablaufmenge (600 m³/d = 7 L/s) und konstanter Emission ausgegangen wird, ändert sich diese Konzentrationshöhe nicht. Im COMLEAM hingegen ist die Emission logarithmisch und die Ablaufmenge errechnet sich aus den Wetterdaten mit Regen- und Trockenphasen. Die Berechnung eines Mittelwerts wäre daher wenig aussagekräftig bezogen auf den Grundgedanken des Modellkonzepts, regenbasierte Stoffeinträge in Gewässer abzuschätzen, weil die erwartete Fracht bei Trockenwetter stets Null ist.

Soll dennoch die Konzentrationen aus dem linearen (ESD) und nichtlinearem Ansatz (COMLEAM) verglichen werden (Abbildung 17), ist dafür die Konzentration im Regenwasserabfluss des ESDs aus der Emissionsrate Q_r der Gebäude herzuleiten, wobei die Konzentration von Terbutryn frei mit der Steigung der Emissionsfunktion verknüpft ist:

$$Q_r = \frac{E_{\log}(r_s)}{r_s} = \frac{126.8}{305} = 0.416 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$$

In COMLEAM ist die Emissionsrate definiert durch den Verlauf der logarithmischen Funktion. Sie ist am Anfang (bei $r = 0$) am höchsten und nimmt konstant ab. Die Ableitung der logarithmischen Emissionsfunktion beträgt im Ursprung dieses Beispiels (Terbutryn frei):

$$E'_{\log}(r) = \frac{a \cdot b}{1 + b \cdot r} \Leftrightarrow E'_{\log}(0) = a \cdot b = 33.898 \cdot 0.1347 = 4.57 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$$

Das ESD unterschätzt also die möglichen Ablaufkonzentrationen aufgrund der Linearität, selbst wenn die Gesamtemission über die Lebensdauer im ESD und COMLEAM aufeinander abgestimmt sind. Die Unterschätzung ist variabel mit einem Maximum:

$$\frac{E'_{\log}(0)}{Q_r} = \frac{4.57}{0.416} = 11$$

Das effektive Verhältnis zwischen maximaler Steigung der Log-Funktion und der linearen Steigung aus dem ESD ist abhängig von den Emissionsdaten. Für die Daten von Diuron frei und Terbutryn verkapselt sind die Zusammenhänge im Anhang F aufgeführt.

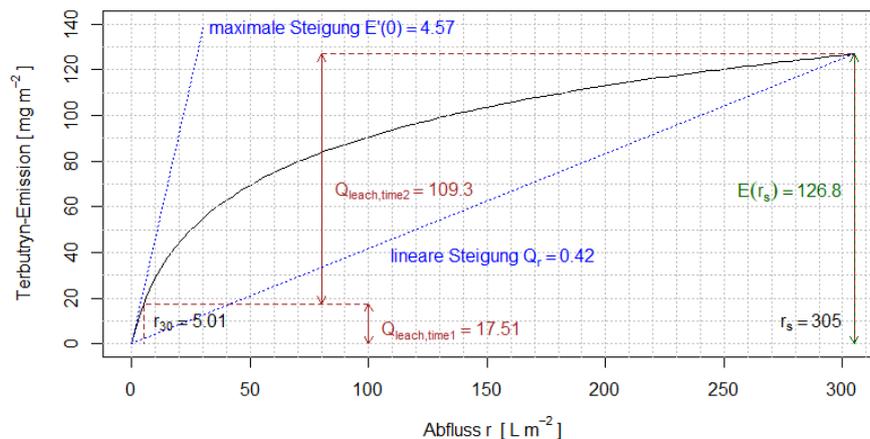


Abbildung 17: Vergleich der maximalen Steigung der logarithmischen Emissionsfunktion in COMLEAM und der linearen Steigung der Emissionsrate aus den ESD.

8.5.4 Ergebnis Gewässerkonzentration

Die Annäherung des Berechnungsmodus für Gewässerkonzentrationen von COMLEAM an das ESD-Szenario ist methodisch bedingt nahezu unmöglich. Deshalb resultierte in der angepassten COMLEAM-Simulation für 66 Gebäude noch immer eine rund 100-fach höhere mittlere Gewässerkonzentration von $0.70 \mu\text{g/L}$ gegenüber der ESD-Berechnung ($C_{\text{local,water}}$) mit $0.0058 \mu\text{g/L}$. Der Grund ist, dass die Konzentration in der dynamischen Simulation – anders als die Gesamtfracht, die linear in das Ergebnis einfließt – sowohl von der Einleitmenge ins Gewässer als auch der Durchmischung beeinflusst ist.

Eine Beispielrechnung soll die Unterschiede erläutern: Fallen in einer Stunde 2 mm Regen auf eine Fläche von $285'000 \text{ m}^2$ (8.5.1), ergeben sich $570'000 \text{ L}$ Regenabfluss. Fließt die Menge innert einer Stunde ab, werden 160 L/s ins Gewässer geleitet. Im Gewässer, welches in COMLEAM als Linearspeicher definiert ist, fließen pro Zeitschritt 70 L/s Basisabfluss und zusätzlich 160 L/s eingeleitetes Regenwasser (230 L/s) ab. Der Linearspeicher leert sich proportional zur Wassermenge, um wieder den stationären Fluss von 70 L/s zu erreichen. Entleert nun der Linearspeicher schnell, fließt auch mehr Stoffmenge ab - und die Konzentration sinkt entsprechend schnell. Eine konstante Verdünnung wie im ESD oder Konzentration direkt proportional zur Einleitmengen ist damit ausgeschlossen, zumindest fachlich nicht sinnvoll.

Wird dennoch eine aussagekräftigere Durchschnittskonzentration erwartet, liesse sich neben dem Einbezug einer Verdünnungsfläche auch die Grösse des Oberflächengewässers an die 66 Gebäude anpassen. Unter der Annahme, dass im ESD-Szenario die Gewässergrösse proportional zur Gebäudezahl ist, wobei jedes Gebäude 60 L/d Regenabfluss generiert, träten pro Gebäude geringe 1.16 L/s Abfluss oder für 66 Gebäude rund 77 L/s im Gewässer auf.

Um darüber hinaus die Emissionen von Gebäude unterschiedlichen Alters zu einem beliebigen Zeitpunkt zu simulieren, wären weitere Annahme zu treffen, die im Anhang exemplarisch erläutert werden (Anhang B.4, S. 60).

8.5.5 Schlussfolgerung zu Parameteranpassung

Zwischen dem ESD Stadt-Szenario und der leicht angepassten dynamischen Modellierung in COMLEAM bestehen weiterhin klare Unterschiede in den Resultaten. Um in der dynamischen Modellierung ähnliche Abflussmengen wie im ESD (600 m³/d) zu erreichen, sind zusätzliche Verdünnungsflächen festzulegen, beispielsweise unter Berücksichtigung der Dachflächen. Ob umgekehrt die dem ESD zugrundeliegende Direkteinleitmenge für eine Kleinstadt repräsentativ ist, lässt sich dabei nicht nachvollziehen.

Dennoch ist auch danach mit einer Unterschätzung der Konzentration durch die ESD zu rechnen aufgrund der Annahme einer linearen Emission, bzw. die Konzentrationen würden zu Beginn höher als der ESD-Wert und nach gewisser Zeit niedriger ausfallen. Die Herausforderung ist die zeitliche Abhängigkeit der Emission vom Abfluss, und damit von den Wetterdaten.

Um eine Aussage bezüglich der zu erwartenden mittleren Gewässerkonzentration über 5 Jahre zu machen, reicht es aus, 66 neue Gebäude zu simulieren und den Vorfluter in der dynamischen COMLEAM Modellierung entsprechend zu verkleinern.

Für die Konzentration im Gewässer hingegen ist dies der entscheidende Faktor. Werden nur 66 frisch sanierte Gebäude simuliert, resultiert eine Überschätzung der Konzentration zu Beginn der Simulation und eine Unterschätzung später.

Die Anpassung von COMLEAM an das ESD-Szenario hat gezeigt, dass die ESD-Berechnung bezogen auf die Konzentrationen im Vorfluter auch Fragen aufwirft. Im linearen Ansatz ist die Konzentration proportional zur Fracht (Abbildung 18). Im Linearspeicheransatz wird dagegen zusätzlich die aus dem Kompartiment abfließende Fracht bilanziert. Dadurch sinkt die Konzentration bei doppelter Fracht auch doppelt so stark. Die Dauer, während der die Konzentration den Grenzwert überschreitet, wächst unterproportional. Die mittlere Konzentration \bar{c}_2 , während der die Konzentration den Grenzwert überschreitet, ist nicht doppelt so gross wie die entsprechende mittlere Konzentration \bar{c}_1 bei einfacher Fracht, sondern etwas kleiner, nämlich $\bar{c}_2 = a \cdot \bar{c}_1$ mit $a < 2$. Wenn der Faktor a mit Hilfe der analytischen Lösung des Linearspeichers aus den Annahmen abgeschätzt werden kann, liesse sich die ESD-Berechnung entsprechend verbessern.

Vergleich ESD - COMLEAM

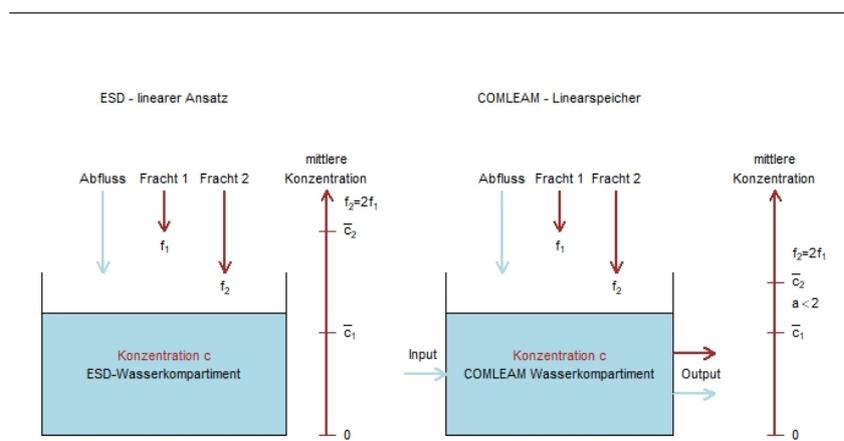


Abbildung 18: Gegenüberstellung des ESD- und des COMLEAM-Ansatzes zur Berechnung der Stoffbilanz im Gewässer anhand der mittleren Konzentration während der Grenzwertüberschreitung.

8.6 Fazit des Modellvergleichs

Der Vorteil der ESD-Berechnungen liegt in ihrer Einfachheit. Durch die einfachen Berechnungen lassen sich die Einträge mit wenig Aufwand abschätzen. Die dynamische COMLEAM-Modellierung liefert für eine Expositionsabschätzung von Bioziden ergänzende Informationen, die bei den ESDs fehlen. Wird die Simulation auf ähnlichen Randbedingungen wie die ESDs abgestützt, sind die daraus entstehenden Resultate komplementär und verfeinern die Risikobetrachtung.

Die berechneten Frachten in den Fassaden-Szenarien der beiden Ansätze sind am ehesten vergleichbar. Dadurch ist eine gemeinsame Basis für die Expositions Betrachtung sowie zur Klärung von Vor- und Nachteilen der jeweiligen Methodiken gegeben. Variantenreicher werden die COMLEAM-Simulationen durch die Gewässergrösse, Niederschlagsverteilung und Gebäudeorientierung, womit die gemeinsame Vergleichsbasis stark eingeschränkt ist.

In ESDs werden weder die Niederschlagsverteilung, noch der Wind berücksichtigt. Zudem wird davon ausgegangen, dass die gesamte Fassadenfläche gleichmässig an der Auswaschung teilnimmt. Effektiv ist aber die Dynamik des Wetters der treibende Faktor für eine Emission in die Umwelt. Solange kein Niederschlag fällt, werden keine Biozide aus der Gebäudehülle ausgewaschen. Bei hoher Niederschlagsintensität, aber ohne Winddruck an die Fassade, kann sogar eine Biozidauswaschung an vertikalen Bauteilen ausbleiben. COMLEAM bietet die Möglichkeit, bei der Betrachtung von Fassadenmaterialien den Schlagregen und die Orientierung der Fassaden als massgebliche Einflussgrössen für die ausgewaschene Substanzmenge zu berücksichtigen. Dies erscheint relevant, weil in Hauptwindrichtung bis zu 50 % der Austragsmenge eines gesamten Gebäudes bei Regenwetter emittieren (Wicke et al., 2021).

Die Stadt-Szenarien führten zu den grössten Modellunterschieden. Im Stadt-Szenario Dach ist die massgebliche Einflussgrösse der flächenbezogene Anfangsgehalt des Biozids. Jedoch würden zwei Wirkstoffe bei gleicher Einsatzkonzentration keine Unterschiede aufzeigen. Eine differenzierte Risikoanalyse von Biozidprodukten mit dem Dach-Szenario dürfte daher eher schwer möglich sein. Ebenfalls kritisch zu betrachten ist die Annahme, dass über die Lebensdauer die gesamte Substanzmenge ausgewaschen wird, weil Felddaten keine entsprechenden Ergebnisse zeigen.

Das Stadt-Szenario Fassade bedingt grosse Unterschiede in den Resultaten, vor allem wegen deutlich unterschiedlicher Abflussmengen. Im ESD ist eine tägliche Abflussmenge festgelegt, in der dynamischen Simulation ist diese von den Flächenanteilen abhängig. Unter alleiniger Berücksichtigung der Fassaden werden die im ESD definierten 600 m³/d nicht erreicht, jedoch durch eine abflusswirksame Zusatzfläche von rund 72 m² pro Gebäude.

Die höhere Fracht im ESD ist analog zum Land-Szenario auf die Expositionsorientierung in COMLEAM zurückzuführen. Um diesem Umstand im ESD gerecht zu werden, könnte in einfacher Näherung an der Realität die Fassadenfläche auf etwas weniger als die Hälfte reduziert werden (ca. 85 m²).

Die dynamische Modellierung weist besondere Stärken bei der detaillierteren Expositionsabschätzung auf. Durch Einbezug realer Wetterdaten und einer raumbezogenen Geometrie wird der Substanzaustrag aus Fassaden und Dächer realitätsnäher vorausgesagt, als dies bei ESDs möglich wäre.

Bei der Emission aus Fassaden ist zu beobachten, dass mit der Berechnung des Schlagregens die Dynamik der Fassadenauswaschung (je nach Ausrichtung) gut abgebildet wird. So dominiert an der Fassade in Hauptwindrichtung (meistens West) die Auswaschung, da der Grossteil des Schlagregens auf dieser Seite auftrifft. Dagegen werden die abgewandten Seiten in der Simulation wenig benetzt. Sie behalten also ihren Stoffpool, wodurch auch nach längerer Zeit noch relevante Austräge möglich sind. Dieser Umstand hilft ebenfalls, die zu erwartende Auswaschung über Zeiträume von mehreren Jahren realistischer abzuschätzen.

Die Konzentration im Gewässer wird vom ESD tendenziell unterschätzt aufgrund der Annahme einer linearen Emission. Für das detailliert betrachtete Biozid Terbutryn frei wurde hierbei eine rund 10-fache Differenz gegenüber COMLEAM ermittelt. In dem betrachteten Szenario könnte durch eine geringere Ablaufmenge des Regenwassers oder Verdünnung im Gewässer im ESD Szenario diesem Umstand Rechnung getragen werden, sodass sich die Resultate der beiden Szenarien angleichen würden. Diese Anpassungen sind jedoch abhängig von beispielsweise den verwendeten Auswaschdaten und bedürfen einer expliziten Herleitung.

Durch die stündliche Auflösung in der Simulation können auftretende Konzentrationsspitzen bei Regenwetter, die effektiv in Gewässern auftreten und akute Belastungen auslösen, sehr gut abgeschätzt werden. Diese Spitzen sind insbesondere bei der Risikobeurteilung unter Berücksichtigung wirkstoffspezifischer Qualitätskriterien relevant. Führt beispielsweise ein Produkt nur zu Beginn der Anwendung zu hohen Konzentrationsspitzen, ist die zu erwartende Gewässerbeeinträchtigung über die Lebensdauer des Produkts zwar gering, aber zu Beginn möglicherweise übermässig hoch. Eine solche Betrachtung ergänzt diejenige vom ESD.

9 Sensitivitätsanalyse der Emissionsfunktionen

COMLEAM ermöglicht die Berechnung von umweltrelevanten Wasser- und Stoffflüssen, die durch Wettereinflüsse auf Bauteilen entstehen. Dabei können die Einflüsse verschiedener Inputgrössen auf die interessierenden Ergebnisgrössen studiert werden. Für COMLEAM ist das möglich, weil Validierungen durchgeführt wurden und die Modellteile in plausibler Weise enthalten sind.

Die Validierung erfolgte anhand von Feldmessungen. Die kumulativen Emissionen für mehrere Biozide aus verschiedenen Feldversuchen liessen sich gut abbilden bzw. vorhersagen (Tietje et al., 2018). Wesentlich dafür sind die Emissionsfunktionen, mit deren Hilfe sich Mechanismen der Stofffreisetzung analysieren lassen.

Nachfolgend werden der Einfluss der Emissionsfunktionsparameter (Kap. 9) und die Relevanz der Einflussgrössen auf die Simulationsergebnisse mittels Versuchsplan untersucht (Kap. 10), um damit das systembezogene Modellverhalten zu verstehen und zu plausibilisieren. Das Vorgehen entspricht den Prinzipien der Sensitivitätsanalyse und Techniken der Versuchsplanung (Kleppmann, 2016).

Die anhand der Felddaten bestimmten Parameter der Emissionsfunktionen wurden als mittlere Werte betrachtet (Abbildung 25). Darauf basierende wurde jeder Parameter um 10 % und 20 % nach oben und unten verändert sowie, falls die Variationsbreite des Parameters dies zulies, zusätzlich um 50 % und 200 %. Die Variationen wurden durch Multiplikation mit diesen Testfaktoren realisiert (0.5, 0.8, 0.9, 1, 1.1, 1.2, 2). Die systematische Analyse sah vor, dass jeweils nur einer der Parameter verändert wurde, die anderen der Emissionsfunktion unverändert blieben.

Die Simulationsparameter einschliesslich der Mittelwerte der Emissionsfunktionsparameter sind auf die Felddaten Terbutryn frei mit einer Ausgangskonzentration c_0 von 3000 mg/m² abgestimmt (Tabelle 1). Alle Emissionsfunktionen basieren damit auf denselben Daten und eine direkte Vergleichbarkeit der Parameter ist gegeben. Ausserdem beziehen sich die Parametervariationen mit ihrem mittleren Wert auf Felddaten, sodass die Veränderungen der resultierenden Zielgrössen sowohl in den mittleren Simulationen, als auch gegenüber den Messdaten beurteilt werden können.

Folgende Eingangsgrössen werden nicht verändert:

- Ergebnisse der Felddaten Terbutryn frei
- Geometriedaten vom Modellhaus (Fläche, Ausrichtung, Höhe)
- WDR Parameter (Kap. 4.1.2)
- Wetterdaten von Zürich

9.1 Logarithmische Emissionsfunktion

Bei der logarithmischen Emissionsfunktion ist die Stoffemission E_{log} logarithmisch abhängig von der zeitabhängigen kumulativen Abflusswassermenge q . Diese Emissionsfunktion besitzt im gesamten Messbereich zwei Parameter, die charakteristische Emission a_{char} [-] und den charakteristischen Abfluss q_{char} [L/m²]. Der Faktor 1.72 entspricht der Rundung von e^{-1} mit 1.71828:

$$E_{log}(q) = c_0 \cdot a_{char} \cdot \ln\left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{char}}\right) = a_{char} \cdot \ln(1 + b_{log} \cdot q)$$

Der charakteristische Stoffanteil a_{char} , der zum charakteristischen Abfluss q_{char} ($=1.72 / b_{log}$) gehört, wird als Anteil der applizierten Menge c_0 emittiert. Durch die Multiplikation der Testfaktoren werden die in der Tabelle 16 angegebenen Parameterwerte gesetzt.

Die kumulative Emissionsmenge ist direkt proportional zur charakteristischen Emission a_{char} . Die in Abbildung 19 und im Anhang in Abbildung 45 sichtbare Proportionalität ist für alle Testfaktoren exakt gleich (0.39). Aufgrund der Proportionalität zur kumulativen Emissionsmenge kann daher die Genauigkeit der charakteristischen Emission beurteilt werden. Dessen Wert hängt mit den Emissionsmessungen zusammen, so dass sich die logarithmische Emissionsfunktion mit der kumulativen Emissionsmenge in natürlicher Weise verbindet.

Tabelle 16: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse in der logarithmischen Emissionsfunktion.

Testfaktoren	0.5	0.8	0.9	1.0	1.1	1.2	2.0
a_{char} [%]	0.56	0.90	1.02	1.13	1.24	1.36	2.26
$a_{char} \cdot c_0$ [mg/m ²]	16.9	27.1	30.5	33.9	37.3	40.7	67.8
b_{log} [m ² /L]	0.07	0.11	0.12	0.14	0.15	0.16	0.27
q_{char} [L/m ²]	25.5	15.9	14.2	12.7	11.6	10.6	6.4

Der Zusammenhang zwischen Emission und Dauer von Überschreitungen im Oberflächengewässer ist dagegen nichtlinear (Abbildung 45, S. 62). Auch der Einfluss des charakteristischen Abflusses ist nichtlinear bezogen auf die Emissionsmenge und die Überschreitungen, jedoch ist dieser Einfluss viel kleiner als der der charakteristischen Emission.

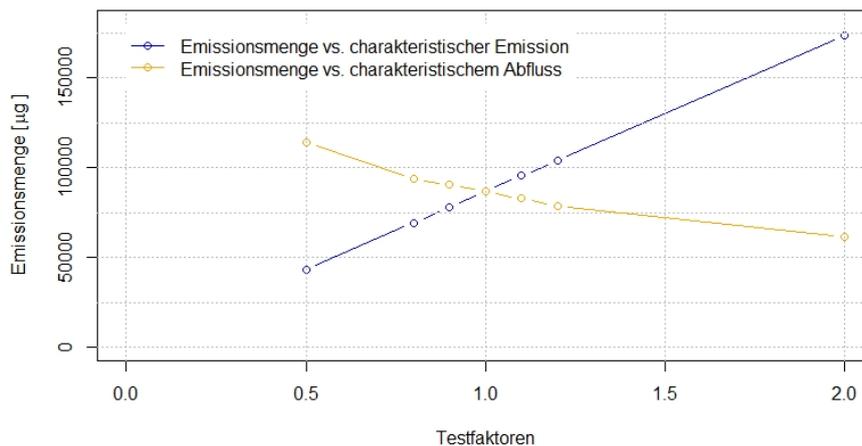


Abbildung 19: Vergleich der Sensitivitäten der beiden Parameter der logarithmischen Emissionsfunktion anhand der Testfaktoren.

Je grösser der charakteristische Abfluss, desto niedriger die Emission (Abbildung 20). Gleicht man, zum Beispiel bei der Anpassung an Daten, diesen Effekt durch eine kleinere charakteristische

Emission aus, so gilt: je kleiner der charakteristische Abfluss, desto steiler der Anstieg der Emission am Anfang. Der Einfluss des Abflusses ist kleiner als der der charakteristischen Emission.

Weil die Sensitivitäten der Emissionsmenge und der Überschreitung näherungsweise linear sind, und der charakteristische Abfluss q_{char} einen kleineren Einfluss hat, bietet die logarithmische Emissionsfunktion eine gute Möglichkeit, die ausgewaschene Biozidmenge abzuschätzen.

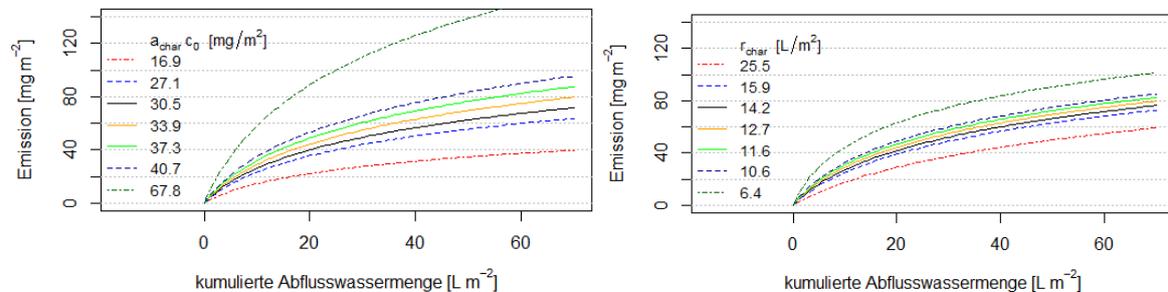


Abbildung 20: Sensitivität der charakteristischen Emission proportional zum Parameter charakteristische Emission (links) und Sensitivität des charakteristischen Abflusses (rechts).

9.2 Langmuir-Desorptionsfunktion

Die Langmuir Sorptions-Desorptionsfunktion wird zum Beispiel bei der Modellierung des Stofftransports im Boden verwendet. Die Funktion beschreibt die Annäherung an einen Maximalwert, der als bekannt vorausgesetzt wird, der sich aber nicht aus der am Anfang im Bauteil vorhandenen Menge ergibt, sondern viel niedriger liegt. Der Maximalwert repräsentiert daher nicht einen physikalisch festgelegten Parameter, vielmehr ist er ein statistischer Parameter, der durch die Kurvenanpassung bestimmt wird. Die Funktion berechnet die Emission durch folgenden Ausdruck:

$$E_{Lang}(q) = c_0 \cdot a_{Lang} \cdot \frac{b_{Lang} \cdot q}{1 + b_{Lang} \cdot q}$$

Auch diese Funktion verwendet wie die logarithmische zwei Parameter. Der Parameter a_{Lang} (dimensionslos) gibt den Anteil der Emission an der anfangs vorhandenen Menge an, Parameter b_{Lang} [m^2/L] beschreibt den Verlauf der Emission bis zum Maximum und bestimmt, wie schnell die maximale Emissionsmenge erreicht wird (Tabelle 17).

Wenn der Abfluss q sehr gross wird, strebt die Langmuir-Funktion gegen den Maximalwert $a_{Lang} \cdot c_0$. Je grösser b_{Lang} ist, umso schneller wird das Maximum erreicht. Die Emissionsmenge ist direkt proportional zum Parameter a_{Lang} , dagegen nimmt die Dauer der Überschreitungen nicht proportional zum Parameter a_{Lang} zu (Abbildung 46, S. 62).

Die Dauer der Überschreitungen im Gewässer nimmt zunächst stark mit dem Parameter b_{Lang} zu, weil mit diesem Parameter die Geschwindigkeit zunimmt, mit der der Maximalwert der Emission erreicht wird. Deshalb resultieren anfangs Überschreitungen bei hohem b_{Lang} . Ist der Maximalwert der Emission erreicht, wird die Emission klein und die Dauer der Grenzwertüberschreitung nimmt ab.

Tabelle 17: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für die Langmuir-Emissionsfunktion.

Testfaktoren	0.5	0.8	0.9	1	1.1	1.2	2
a_{Lang} []	1.77%	2.84%	3.19%	3.55%	3.90%	4.26%	7.10%
$a_{Lang} \cdot c_0$ [mg/m^2]	53.2	85.2	95.8	106.4	117.1	127.7	212.9
b_{Lang} [m^2/L]	0.018	0.029	0.033	0.037	0.040	0.044	0.073

Durch den Emissionsfaktor a_{Lang} wird die maximale Emission festgelegt. Mit zunehmendem Formfaktor b_{Lang} wird der Maximalwert durch anfangs sehr hohe Emissionen schnell angenähert (Abbildung 21). Die Dauer der Überschreitungen nimmt ab einem hohen Level des Formfaktors wieder ab, weil die Funktion dadurch flach wird.

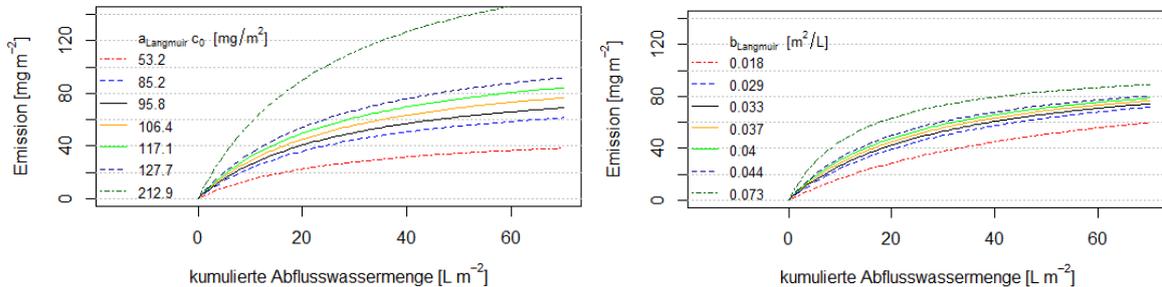


Abbildung 21: Sensitivität des Emissionsfaktors a_{Lang} (links) und des Formfaktors b_{Lang} (rechts) bei der Langmuir-Emissionsfunktion.

9.3 Begrenzte Wachstumsfunktion

Bei der begrenzten Wachstumsfunktion (Limited Growth) geht man davon aus, dass die Emission kontinuierlich abnimmt:

$$E_{LG}(q) = a_{LG} (1 - e^{-b_{LG} \cdot q}) = a_{LG} \cdot (1 - \exp(-b_{LG} \cdot q))$$

Die beiden Parameter sind der Proportionalitätsfaktor a_{LG} (dimensionslos, $0 < a_{LG} < 1$), welcher den möglichen Anteil an der applizierten Menge angibt, und b_{LG} (m^2/L), der den Verlauf der Emission bis zum Maximum beschreibt. Je grösser b_{LG} ist, desto schneller wird das Maximum erreicht. Der Parameter b_{LG} beschreibt die „Abbaurrate“ der Emission. Er kann aus der Abflussmenge $q_{1/2}$, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist, bestimmt werden:

$$b_{LG} = \frac{\ln(2)}{q_{1/2}} \approx \frac{0.69}{q_{1/2}}$$

Tabelle 18: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für begrenztes Wachstumsfunktion.

Testfaktoren	0.5	0.8	0.9	1.0	1.1	1.2	2.0
a_{LG} [%]	1.28	2.05	2.31	2.56	2.82	3.07	5.12
$a_{LG} \cdot c_0$ [mg/m ²]	38.4	61.5	69.2	76.9	84.6	92.3	153.8
b_{LG} [m ² /L]	0.02	0.04	0.04	0.05	0.05	0.05	0.09

Der Parameter a_{LG} gibt die maximal mögliche Emissionsmenge an. Die aktuelle Emissionsmenge ist direkt proportional zu a_{LG} (Abbildung 47, S. 63). Die Dauer der Überschreitung ist nichtlinear mit dem Parameter a_{LG} verbunden und auch der Parameter b_{LG} beeinflusst die Emissionsmenge nichtlinear. Die Dauer der Überschreitungen besitzt – wie bei der Langmuir-Desorptionsfunktion – ein Maximum. Steigt der Parameter b_{LG} , nimmt die Dauer der Überschreitungen ab. Weil am Anfang sehr hohe Überschreitungen auftreten, wird der Maximalwert der Emissionen früh erreicht und emittierte Menge je Zeiteinheit nimmt stark ab.

Wichtig ist, dass der Maximalwert der Emission wie bei der Langmuir-Funktion keine feste physikalische Grösse ist. Der Maximalwert liegt im Allgemeinen unter 10 % der Ausgangsmenge und wird, als statistischer Parameter, durch die Anpassung an die vorhandenen Daten ermittelt.

Der Emissionsfaktor a_{LG} gibt den Maximalwert der Emission an, bis zu dem die Emission ansteigt (Abbildung 22). Bei gleichbleibendem Parameter a_{LG} wird immer derselbe Maximalwert der Emissionen erreicht. Der Parameter b_{LG} bestimmt, wie schnell das Maximum erreicht wird.

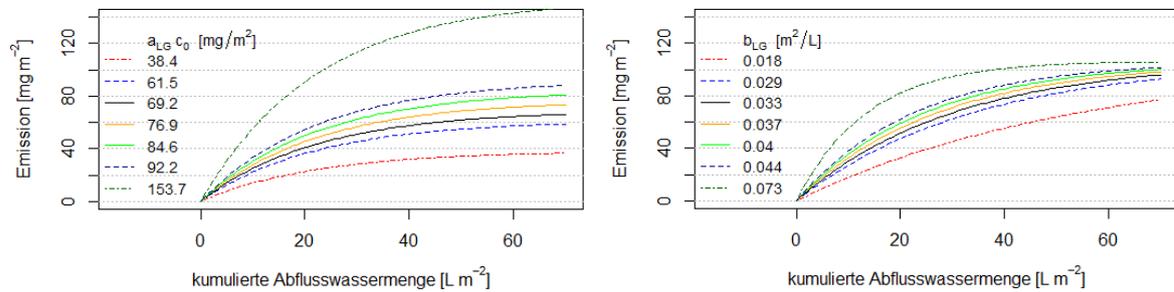


Abbildung 22: Sensitivität des Emissionsfaktors a_{LG} (links) und des Formfaktors b_{LG} in der Funktion für das begrenzte Wachstum.

9.4 Diffusionsansatz

Modelliert man die Emission im Bauteil als Kombination von Diffusion und Sorption, so erhält man als analytische Lösung der partiellen Differentialgleichung.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_{\text{eff}}}{K_{pw} + 1} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$

$$E_{\text{Diff}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{Diff}} \cdot \sqrt{q}$$

$$a_{\text{Diff}} = \frac{1}{2 \cdot \sqrt{q_{1/2}}} \left[\frac{m}{\sqrt{L}} \right]$$

Im Diffusionsansatz wird nur ein Parameter verwendet (a_{Diff}), um den Verlauf der Emission zu beschreiben. Für diesen Parameter ist $q_{1/2}$ die Abflussmenge, die nach der Hälfte der eingesetzten Menge (c_0) erfolgt ist. Diese Funktion liegt zwischen einer Sorption-Desorption nullter Ordnung und erster Ordnung. Mit der Annahme, dass die mittlere Regenintensität konstant ist, lässt sich dieser Ansatz übertragen, um ihn hier als Emissionsfunktion einzusetzen (Tabelle 19).

Tabelle 19: Parameterwerte der Sensitivitätsanalyse für die Emissionsfunktion Diffusion.

Testfaktoren	0.5	0.8	0.9	1.0	1.1	1.2	2.0
a_{Diff} [%]	0.16	0.26	0.29	0.32	0.36	0.39	0.65
$a_{\text{Diff}} \cdot c_0$ [mg/m^2]	4.9	7.8	8.7	9.7	10.7	11.7	19.4

Der Parameter a_{Diff} ist der einzige Parameter beim Diffusionsansatz und proportional zur Emissionsmenge (Anhang Abbildung 48, S. 63). Die Dauer der Überschreitungen erhöht sich nichtlinear mit dem Parameter, weil die Steigung der Funktion die aktuelle Emissionsrate bestimmt. Die Sensitivität des Emissionsfaktors a_{Diff} entspricht der proportionalen Beziehung zu der Emissionsmenge (Abbildung 23). Die Steigung der Wurzelfunktion nimmt aber kontinuierlich ab.

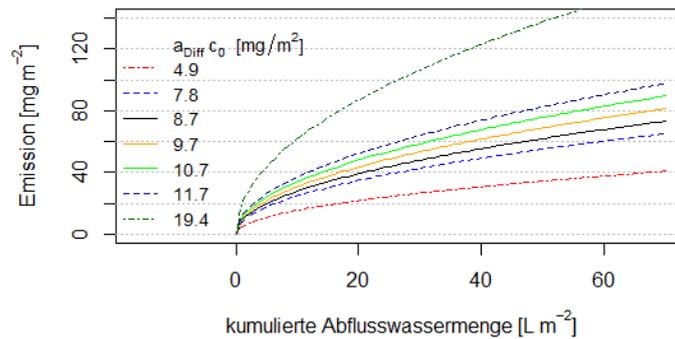


Abbildung 23: Emissionsfaktors a_{Diff} in Beziehung zur Abflussmenge in der Diffusionsansatz.

9.5 Analyse der Emissionsfunktionen

Eine Analyse der Emissionsfunktionen beschäftigt sich mit der Ableitung der Funktionen, weil diese gerade die aktuelle Emission ergibt. Um also eine sinnvolle Emissionsfunktion vorschlagen zu können, muss neben den besprochenen Emissionsfunktionen $E(q)$ auch die Ableitung erstellt werden (Abbildung 49, S. 64).

Die Steigungen der aktuellen Emissionen liegen für die logarithmische Funktion etwas oberhalb der Steigungen der Langmuir-Funktion und des begrenzten Wachstums, jedoch sind die Unterschiede so gering, dass alle Funktionen für die drei Biozide relativ gut übereinstimmen (Tabelle 20, Abbildung 49, S. 64). Die Steigung bei der diffusionsorientierten Emissionsfunktion ist hingegen unendlich.

Tabelle 20: Ableitungen der Emissionsfunktionen, die Steigungen im Ursprung sind für Diuron (D), Terbutryn frei (Tf) und Terbutryn verkapselt (Tv) angegeben.

Funktion	Ableitung [mg/L]	Ableitung im Ursprung [mg/L]	Steigung im Ursprung [mg/L]
Logarithmisch	$E'_{log}(q) = \frac{c_0 \cdot a_{char}}{q_{char} + q}$	$E'_{log}(0) = 1.72 \cdot c_0 \cdot \frac{a_{char}}{q_{char}}$	D 9.74, Tf 4.57, TV 1.55
Langmuir	$E'_{Lang}(q) = \frac{c_0 \cdot a_{Lang} \cdot b_{Lang}}{1 + b_{Lang} \cdot q}$	$E'_{Lang}(0) = c_0 \cdot a_{Lang} \cdot b_{Lang}$	D 8.61, Tf 3.90, TV 1.15
Begrenztes Wachstum	$E'_{LG}(q) = c_0 \cdot a_{LG} \cdot b_{LG} \cdot e^{-b_{LG} \cdot q}$	$E'_{LG}(0) = c_0 \cdot a_{LG} \cdot b_{LG}$	D 8.02, Tf 3.43, TV 0.94
Diffusion	$E'_{Diff}(q) = \frac{c_0 \cdot a_{Diff}}{2 \cdot \sqrt{q}}$	$E'_{Diff}(0) = \infty$	D ∞ , Tf ∞ , TV ∞

Bei allen Emissionsfunktionstypen (logarithmisch, Langmuir, begrenztes Wachstum, Diffusion) erhöht der Parameter a (a_{char} , a_{LM} , a_{Lang} , a_{Diff}) bei den einzelnen Emissionsfunktionstypen) auf dieselbe Weise proportional die Zielgrösse Emissionsmenge. Aufgrund der Testfaktoren von 0.5 bis 2 variiert die Emissionsmenge um einen Faktor 4.

Der Parameter a beeinflusst proportional die kumulative Emissionsmenge, und damit entsprechend proportional die Emissionsrate (= Ableitung der kumulativen Emissionsmenge) über den gesamten Zeitraum. Die Steigung der Funktion am Anfang, wenn die kumulierte Abflusswassermenge noch Null oder sehr klein ist, wird hauptsächlich vom Parameter a festgelegt. Die b -Parameter (q_{char} bei logarithmischer Emissionsfunktion, b_{Lang} bei Langmuir, b_{LG} bei begrenztes Wachstum) wirken als Formfaktor und modifizieren die Emissionsfunktion, ihre Steigung - und daher die Emissionsrate - auch am Anfang (Tabelle 20, Tabelle 21).

Die Parameterwerte der Emissionsfunktionen, die sich aus den Funktionsanpassungen mit der Methode der kleinsten Quadrate ergeben, sind in Tabelle 21 angegeben. Der Parameter q_{char} der logarithmischen Emissionsfunktion ist das Inverse des entsprechenden b -Parameters multipliziert mit dem Faktor 1.72. Seine Einheit ist daher invers zu den Einheiten von b_{Lang} und b_{LG} .

Dementsprechend fallen die Werte von q_{char} in der Reihenfolge von Diuron – Terbutryn frei – Terbutryn verkapselt, während die Werte von b_{Lang} und b_{LG} ansteigen. Der Emissionsparameter a nimmt jeweils in der Reihenfolge Diuron – Terbutryn frei – Terbutryn verkapselt für alle Funktionstypen ab. An den Parameterwerten lässt sich erkennen, dass Diuron die grösste Emissionsmenge verursacht, gefolgt von Terbutryn frei und Terbutryn verkapselt.

Tabelle 21: Ergebnisse der Funktionsanpassungen zur Berechnung der Sensitivitäten und der Ableitungswerte im Ursprung (Diuron (D), Terbutryn frei (Tf), Terbutryn verkapselt (Tv)).

Funktion	Emissionsparameter	Formparameter
Logarithmisch	D: $a_{char} \cdot c_0 = 147.08 \text{ mg/m}^2$	D: $q_{char} \cdot c_0 = 26.69 \text{ L/m}^2$
	Tf: $a_{char} \cdot c_0 = 33.00 \text{ mg/m}^2$	Tf: $q_{char} \cdot c_0 = 12.74 \text{ L/m}^2$
	Tv: $a_{char} \cdot c_0 = 7.29 \text{ mg/m}^2$	Tv: $q_{char} \cdot c_0 = 8.12 \text{ L/m}^2$
Langmuir	D: $a_{Lang} \cdot c_0 = 417.95 \text{ mg/m}^2$	D: $b_{Lang} \cdot c_0 = 0.021 \text{ m}^2/\text{L}$
	Tf: $a_{Lang} \cdot c_0 = 106.45 \text{ mg/m}^2$	Tf: $b_{Lang} \cdot c_0 = 0.037 \text{ m}^2/\text{L}$
	Tv: $a_{Lang} \cdot c_0 = 26.23 \text{ mg/m}^2$	Tv: $b_{Lang} \cdot c_0 = 0.044 \text{ m}^2/\text{L}$
Begrenztes Wachstum	D: $a_{LG} \cdot c_0 = 277.54 \text{ mg/m}^2$	D: $b_{LG} \cdot c_0 = 0.029 \text{ m}^2/\text{L}$
	Tf: $a_{LG} \cdot c_0 = 76.87 \text{ mg/m}^2$	Tf: $b_{LG} \cdot c_0 = 0.045 \text{ m}^2/\text{L}$
	Tv: $a_{LG} \cdot c_0 = 20.26 \text{ mg/m}^2$	Tv: $b_{LG} \cdot c_0 = 0.046 \text{ m}^2/\text{L}$
Diffusion	D: $a_{Diff} \cdot c_0 = 28.33 \text{ mg m}^{-1} \text{ L}^{-1/2}$	-
	Tf: $a_{Diff} \cdot c_0 = 9.72 \text{ mg m}^{-1} \text{ L}^{-1/2}$	-
	Tv: $a_{Diff} \cdot c_0 = 2.51 \text{ mg m}^{-1} \text{ L}^{-1/2}$	-

Die Materialeigenschaften, die zu den Emissionsmesswerten geführt haben, können grob in vier Gruppen eingeteilt werden (Abbildung 24). Das funktioniert für die Funktionstypen mit Emissions- und Formparametern in gleicher Weise. Weil die verschiedenen Typen zu anderen Klassengrenzen führen, wird die Einteilung exemplarisch nur für die logarithmische Emissionsfunktion vorgenommen. Eine hohe charakteristische Emission bewirkt eine hohe Emission, und zwar sowohl bezüglich der kumulativen Emission insgesamt als auch bezüglich der Emissionsrate. Ein hoher charakteristischer Abfluss bedeutet, dass die Emission langsamer, also mit kleinerer Emissionsrate erfolgt. Wie man an der Ableitung der logarithmischen Emissionsfunktion im Ursprung erkennt, kann eine Verdoppelung der charakteristischen Emission durch eine Verdoppelung des charakteristischen Abflusses kompensiert werden. Dies gilt aber nur am Anfang, also, wenn noch sehr wenig Abfluss erfolgt ist. Mit zunehmendem Abfluss zeigt sich, dass die Emissionsmenge stärker durch die charakteristische Emission als durch den charakteristischen Abfluss bestimmt wird (Abbildung 24).

Weil aber die Konzentration in einem Gewässer von der Emissionsrate abhängt, kann ein Material mit einer kleinen charakteristischen Emission auch zu einer hohen Konzentration führen, wenn gleichzeitig der charakteristische Abfluss klein ist.

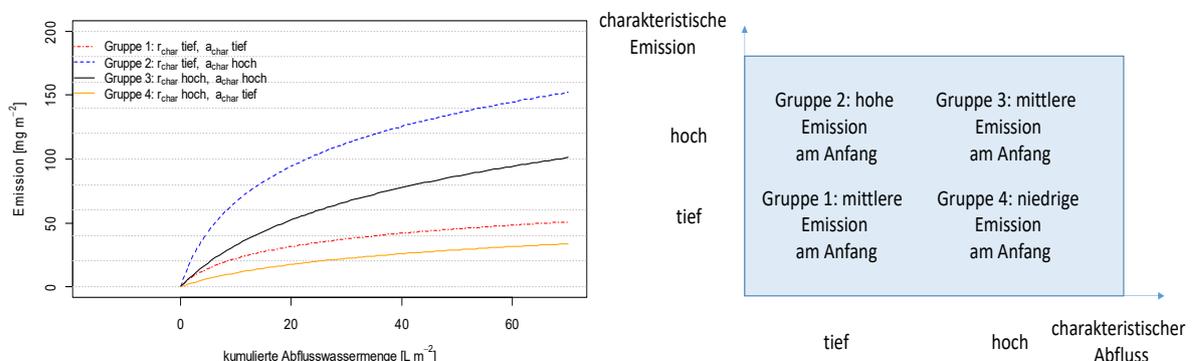


Abbildung 24: Charakteristischer Abfluss und charakteristische Emission (links) und die entsprechende Gruppeneinteilung für die logarithmische Emissionsfunktion.

10 Systembezogene Sensitivität

Bei der systembezogenen Sensitivitätsanalyse werden nicht einzelne Einflussfaktoren variiert, sondern mehrere Einflussfaktoren gemeinsam. Für die Einflussfaktoren werden zunächst die möglichen Ausprägungen (Levels) festgelegt. Dann werden alle Kombinationsmöglichkeiten der Ausprägungen in einem vollständigen Versuchsplan zusammengefasst (Kleppmann, 2016). In jeder Zeile des Versuchsplans stehen alle Angaben, um die Zielgrössen im Modell COMLEAM zu berechnen. Speziell für diese Untersuchung ist, dass keine Wiederholungen berechnet werden, weil die Modellierung mit COMLEAM deterministisch ist und bei vorgegebenen Eingangsgrössen immer dasselbe Resultat liefert. Weil alle Kombinationsmöglichkeiten ausgeschöpft werden, ist die Anzahl der Zeilen des Versuchsplans das Produkt der Anzahl Ausprägungen der Einflussfaktoren. Wenn die Zielgrössen für alle Zeilen des Versuchsplans bestimmt wurden, können sie mit einer Mittelwertanalyse (ANOM, analysis of means) oder einer Varianzanalyse (ANOVA, analysis of variance) ausgewertet werden. Um die Variationsbreite zu veranschaulichen, wurden alle Ergebnisse für die verschiedenen Ausprägungen eines Einflussfaktors dargestellt.

Die systembezogene Sensitivität untersucht also nicht eine Ursache-Wirkungsbeziehung – wie im vorangegangenen Kapitel im Sinne von: wenn ein Parameter einer Emissionsfunktion geändert wird (Ursache), dann ändert sich eine Zielgrösse auf diese oder jene Weise (Wirkung) – sondern den Zusammenhang der Verteilung der Zielgrössen mit den Ausprägungen der Einflussfaktoren in einer durch den Versuchsplan vorgegebenen Menge von Szenarien. Wenn die Wirkungen zwischen den Einflussfaktoren und den Zielgrössen linear wären, könnte man von Korrelationen dazwischen sprechen. Weil hier die Wirkungen jedoch nichtlinear sind oder zumindest nicht ausgeschlossen werden kann, dass sie es sind, spricht man von einem Zusammenhang.

10.1 Relevante Grössen und Ausprägungen

Die Einflussgrössen und ihre Ausprägungen sind:

- Substanz und Rezeptur (Diuron frei, Terbutryn frei, Terbutryn verkapselt)
- Standort (Hamburg, Sevilla, Zürich)
- Gewässergrösse (klein, mittel)
- Szenario (Stadt-Szenario Fassade, Land-Szenario Fassade, Land-Szenario Dach)

Aus den je drei Ausprägungen von Substanz und Rezeptur bzw. Standort, zwei Ausprägungen der Gewässerklasse und drei Szenarien ergeben sich aus der Versuchsplanung 54 Szenarien. Von den Einflussgrössen hängen einige Grössen ab, die bei der Simulation verwendet und bei der Beurteilung von Anwendungssituationen herangezogen werden.

Die folgenden Grössen ergeben sich in COMLEAM aus den vorgegebenen Einflussgrössen:

- Niederschlag [mm] und dessen Varianz (Standort)
- Windstärke [m/s] und dessen Varianz (Standort)
- Windrichtung [°] (Standort)
- Niederschlags- oder Schlagregenmenge (WDR) [L] (Standort)
- Fläche [m²] (Szenario)
- Parameter der Emissionsfunktion a_{char} [-] und q_{char} [L/m²] (Substanz)

Die berechneten Zielgrössen zur Beurteilung der Änderungen im System sind:

- Kumulative Abflussmenge [L] nach 30 Tagen, nach einem und fünf Jahren
- Kumulative Emissionsmengen [mg] nach 30 Tagen, einem und fünf Jahren

- Dauer [h] und Anzahl der Überschreitungen
- Durchschnittliche Konzentration [$\mu\text{g/L}$].

Die Beziehungen zwischen den Einflussgrössen und den davon abhängigen Grössen sind in einer Korrelationsmatrix dargestellt (Tabelle 22). Die vier Einflussgrössen ergeben eine 4 x 4 Einheitsmatrix. Die negativen Korrelationen ergeben sich aus der Parametrisierung der nominalskalierten Einflussgrössen von -1 bis +1 (Tabelle 28, S. 53).

Die Korrelationen zeigen die Systemzusammenhänge in den berechneten Szenarien. Die nominal skalierten Variablen wurden dazu mit Zahlenwerten kodiert. Weil Diuron mit -1, Terbutryn frei mit 0 und Terbutryn verkapselt mit 1 kodiert wurden, und weil die Emissionsmenge bei Diuron höher ist als bei Terbutryn frei, und erst recht bei Terbutryn verkapselt, ist die Korrelation mit der charakteristischen Emission und mit dem charakteristischen Abfluss negativ. Die Kodierung ergibt, wie in einer Versuchsplanung üblich, dass die Einflussfaktoren Substanz, Standort, Gewässerklasse und Szenario unkorreliert sind. Die von den Einflussfaktoren abhängigen Grössen sind auch aufgeführt, um zu zeigen, wie sie miteinander zusammenhängen. Die zahlenmässige Kodierung von Substanz, Standort, Gewässerklasse und Szenario sind im Anhang, Tabelle 28, angegeben.

Tabelle 22: Korrelationsmatrix der Einflussgrössen und der davon abhängigen Grössen.

	Substanz	Standort	Gewässer	Szenario	Niederschlag	Niederschlag Varianz	Windstärke	Windstärke Varianz	Hauptwindrichtung	Fassadenfläche	charakteristische Emission	charakteristischer Abfluss
Substanz	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-1	-1
Standort	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Gewässerklassen	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Szenario	0	0	0	1	0	0	0	0	0	1	0	0
Niederschlag [mm]	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Niederschlag Varianz [mm^2]	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Windstärke [m/s]	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Windstärke Varianz [m^2/s^2]	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Windrichtung [°]	0	1	0	0	1	1	1	1	1	0	0	0
Fassadenfläche [m^2]	0	0	0	1	0	0	0	0	0	1	0	0
charakteristische Emission [-]	-1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	1
charakteristischer Abfluss [L/m^2]	-1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	1

10.2 Zusammenhänge zwischen Eingabefaktoren und Zielgrössen

In den nachfolgenden Plots sind die Eingabefaktoren auf der Abszisse und die Zielgrössen auf der Ordinate abgetragen. Die neun Zielgrössen sind allesamt metrisch skaliert. Die Eingabefaktoren sind nominalskaliert. Die Zusammenhänge zwischen den Eingabefaktoren Substanz, Gewässergrosse, Szenario und Standort und den Zielgrössen werden am deutlichsten, wenn die Zielgrössen als Boxplot zu den einzelnen Ausprägungen der Einflussvariablen dargestellt werden.

In dem Boxplot wird der Median in der Mitte der Box abgetragen, die durch das erste Quartil Q_1 und das dritte Quartil Q_3 begrenzt wird. Mit dem Interquartilsabstand $IQR = Q_3 - Q_1$ werden noch die Whisker eingezeichnet, nach oben der Wert $Q_3 + 1.5 \cdot IQR$ und nach unten der Wert $Q_1 - 1.5 \cdot IQR$. Die Ausreisser, die noch ausserhalb der Whisker liegen, sind weitere eingetragene Punkte. Weil der Einfluss der Biozide auf die Zielgrössen über die Parameter ihrer logarithmischen Emissionsfunktionen wirken, wird zunächst der Zusammenhang zwischen diesen Parametern und den Zielgrössen dargestellt.

In Abbildung 26 wird der Zusammenhang zwischen der charakteristische Emission a_{char} und den Zielvariablen dargestellt. Die charakteristische Emission beeinflusst keine der Zielvariablen, die sich auf den Abfluss beziehen. Sie beeinflusst linear die Emissionsmengen, welche proportional zum Wert der charakteristischen Emission ansteigen. Die Emissionsmengen über 30 Tage, über ein Jahr und über fünf Jahre werden in gleicher Weise beeinflusst. Ebenfalls linear und proportional beeinflusst wird die Konzentration der Substanz im Gewässer. Die Anzahl der Grenzwertüberschreitungen ist für das verkapselte Terbutryn in einigen Fällen etwas kleiner als für das freie Terbutryn und freie Diuron. Die Dauer der Überschreitungen steigt mit den Parametern der logarithmischen Emissionsfunktion nicht weiter linear an.

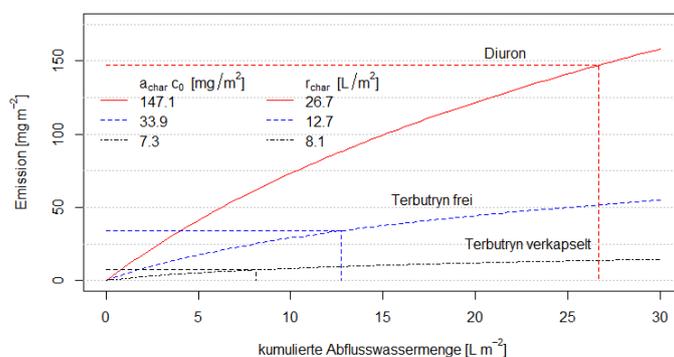


Abbildung 25: Emissionsfunktionen der Biozide Diuron, Terbutryn frei und Terbutryn verkapselt.

Die Wirkungen des charakteristischen Abflusses der logarithmischen Emissionsfunktion (Abbildung 25) werden nicht dargestellt, weil dieselben Werte der Zielgrössen herauskommen, denn charakteristische Emission und charakteristischer Abfluss sind mit 1 korreliert (Tabelle 22). Die beiden Parameter gehören jeweils zu demselben Wert der Zielgrösse. Die Werte der charakteristischen Emission, für Diuron 7.3 mg/m^2 , Terbutryn frei 33.9 mg/m^2 und Terbutryn verkapselt 147.1 mg/m^2 , liegen in derselben Reihenfolge vor wie die Werte des charakteristischen Abflusses mit 26.7 L/m^2 bei Diuron, 12.7 L/m^2 bei Terbutryn frei und 8.1 L/m^2 bei Terbutryn verkapselt (Abbildung 26). Daher gelten die Werte der Ordinate auch, wenn die Abszissen auf die Werte des charakteristischen Abflusses transformiert werden. Dieser Abfluss ist also gemeinsam mit der charakteristischen Emission je Biozid variiert (s.o.).

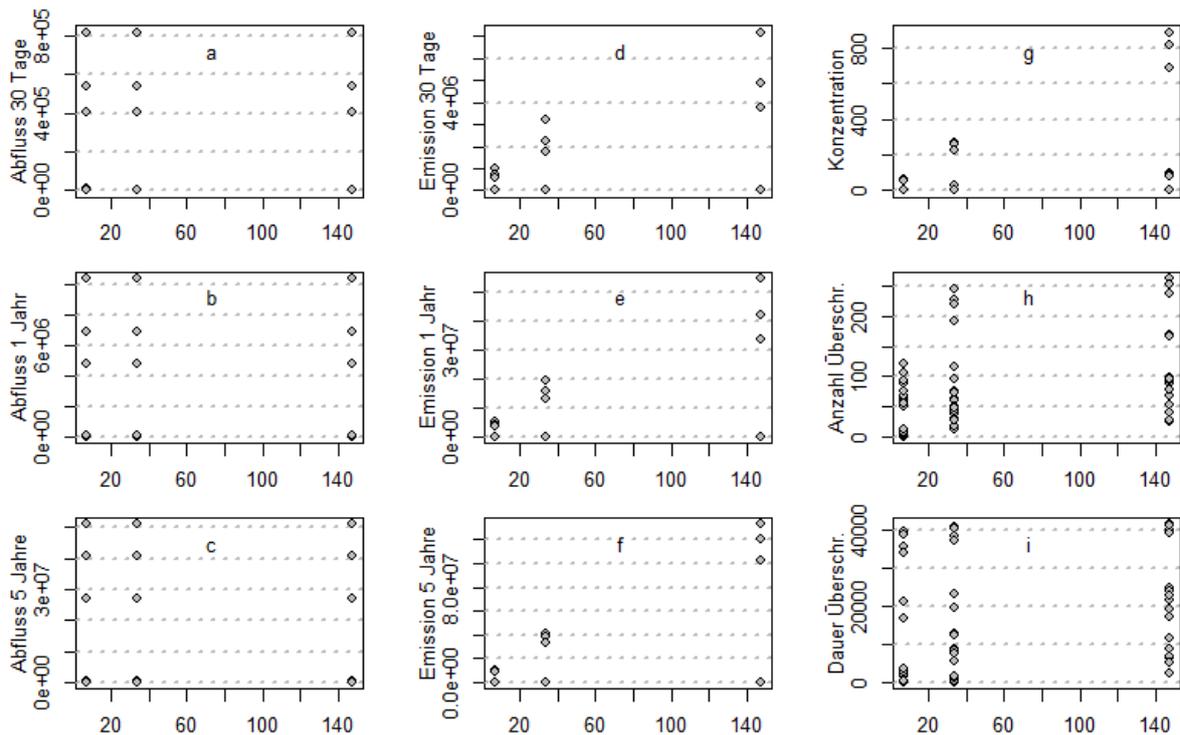


Abbildung 26: Zielgrößen für die charakteristische Emission a_{char} (7.3, 33.9 und 147) an den drei Standorten.

10.2.1 Einfluss der Substanz

Die Substanz hat erwartungsgemäss keinen Einfluss auf den Abfluss (Abbildung 27, a-c), aber auf die Emission (Abbildung 27, d-f) und auch auf die mittlere Konzentration (Abbildung 27, g) sowie die Anzahl und Dauer der Überschreitungen (Abbildung 27, h-i).

Der Einfluss der Substanz erfolgt in COMLEAM über die Parameter der Emissionsfunktionen (Abbildung 25), wie für die logarithmische Emissionsfunktion und die Zielgrößen im vorangegangenen Kapitel dargestellt. Aus der Analyse ist herauszulesen, dass mit zunehmender charakteristischen Emission auch die erwarteten Emissionsmengen und die Konzentration Gewässer zunehmen.

Der Median der Zielgrößen Emission (30 Tage, ein Jahr und fünf Jahre) und Konzentration ist nahe Null. Das heisst, für die meisten der hier berechneten Szenarien ist die Emission gering. Trotzdem ist der Median bei der Anzahl und der Dauer der Überschreitungen deutlich über Null. Das wiederum bedeutet, dass sowohl die Anzahl als auch die Dauer der Überschreitungen nicht linear mit der Emissionsmenge zusammenhängt. Ein Grund ist die eher lognormal verteilte Emissionsmenge. Ausserdem treten je nach Wetterlage bei eigentlich geringen Emissionen Überschreitungen auf. Offensichtlich ist nicht die hohe Niederschlagsmenge relevant, sondern starker oder unregelmässiger Wind aus der Hauptwindrichtung.

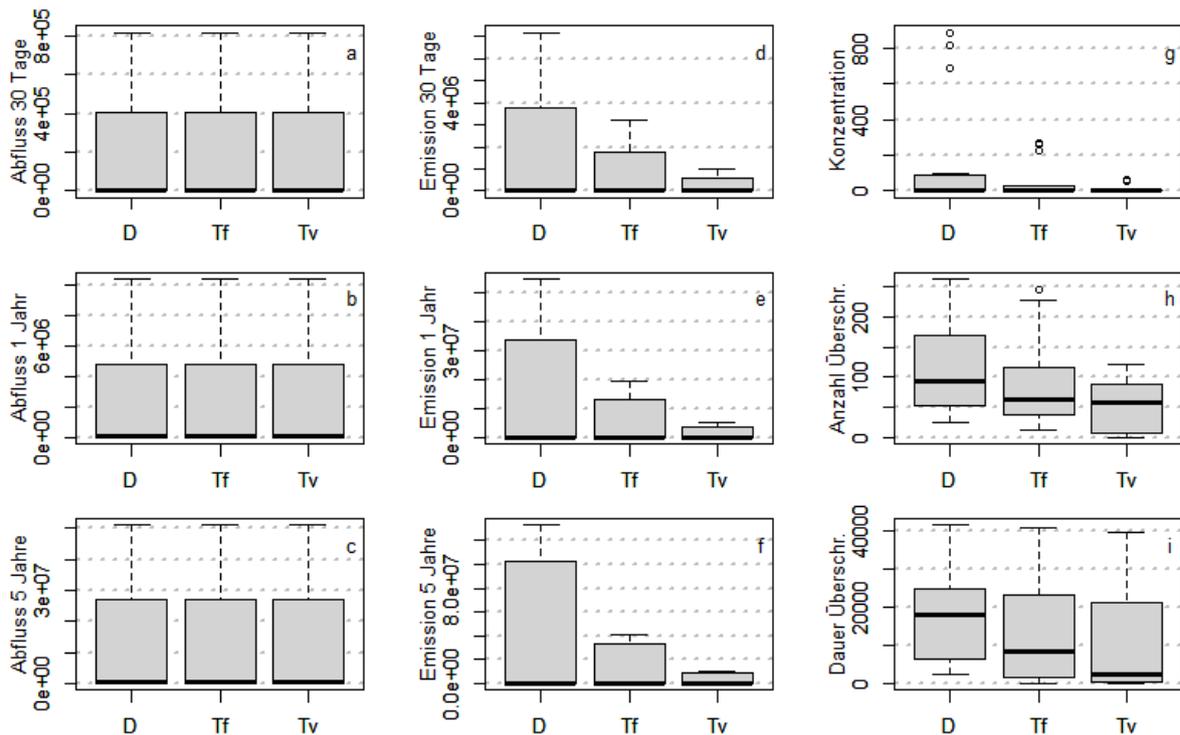


Abbildung 27: Einfluss der Wirkstoffe (D Diuron, Tf Terbutryn frei, Tv Terbutryn verkapselt) auf die Zielgrößen.

10.2.2 Gewässergrösse

Die Grösse des Oberflächengewässers beeinflusst die mittlere Konzentration und die Anzahl und Dauer der Überschreitungen, aber nicht den Abfluss oder die Emissionen. Je kleiner das Gewässer, desto grösser die Wirkung.

Für die Beurteilung der Emissionen anhand der Anforderungswerte ist jedoch die Grösse des Gewässers relevant. In kleinen Gewässern können die Konzentration stark steigen und zu einer hohen Anzahl und Dauer von Überschreitungen führen (vgl. Kapitel 7.2). Der Höchstwert und Mittelwert bei der Anzahl Überschreitungen (vornehmlich Diuron) sind in kleinen Gewässern fast doppelt so gross wie bei einem mittleren. Bei der Dauer liegen die Höchstwerte fast gleichauf, der mittlere Wert jedoch im kleinen Gewässer um ein Vielfaches höher als beim mittleren. Das bedeutet, dass bei der systembezogenen Betrachtung eines kleinen Gewässers mit langen Überschreitungen zu rechnen ist und bei einem mittleren Gewässer nur teilweise. Dies bestätigen die Ergebnisse der dynamischen Simulationen.

Vergleicht man die Emissionen über 30 Tage, ein Jahr und fünf Jahre – die bei den beiden betrachteten Gewässern gleich sind – zeigt sich, dass die Verteilung der berechneten Emissionen stark mit der Verteilung der Emissionsfunktionen zusammenhängt (Abbildung 25). In gleichem Masse, wie die Unterschiede zwischen den Emissionsfunktionen der drei Substanzen mit zunehmender Abflusswassermenge immer weiter ansteigen, wachsen hier (Abbildung 28, d-f) die hohen Emissionen viel stärker als die mittleren Werte: Nach 30 Tagen liegt die höchste Emission etwa dreimal höher als der Whisker, nach fünf Jahren sogar 13-mal höher. Auch hier liegt der Median der Emissionsgrößen nahe Null und gleichzeitig zeigen die Boxplots für die Überschreitungen, dass in den wenigsten Fällen keine oder kurze Überschreitungen auftreten.

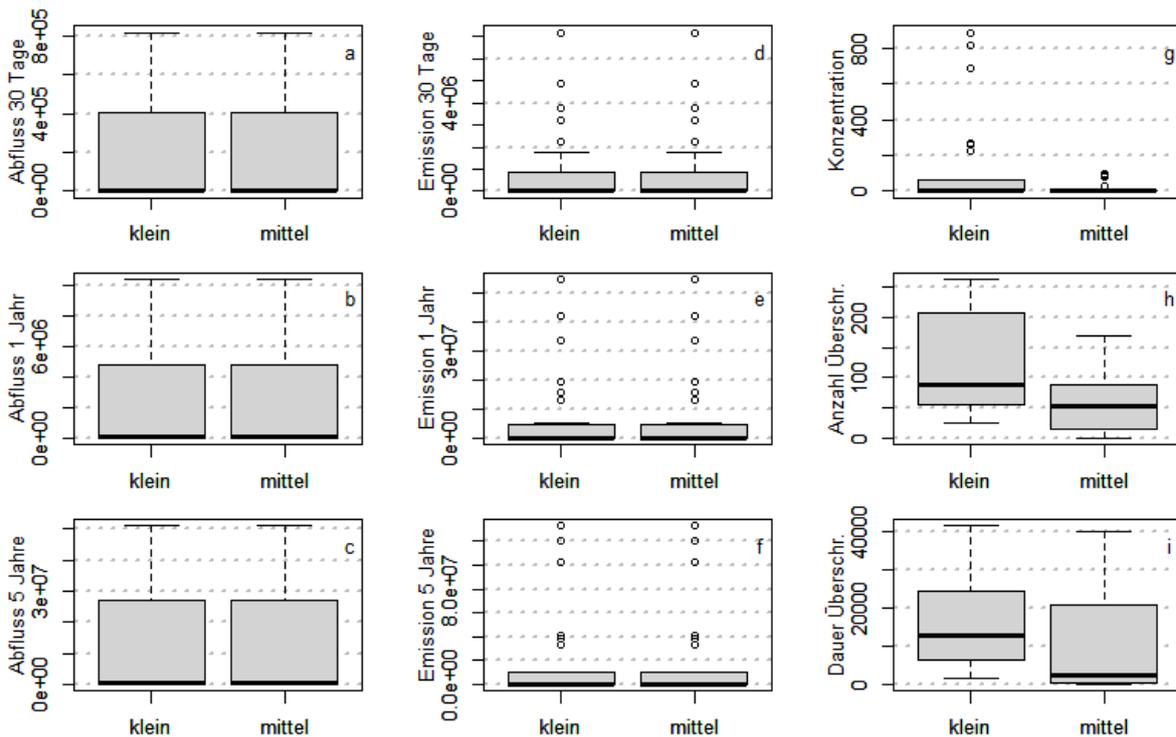


Abbildung 28: Einfluss der Gewässergrösse (klein und mittel) auf die Zielgrössen.

10.2.3 Geometrie

Die Geometrie des Szenarios beeinflusst die Emissionen stark, weil im Stadt-Szenario Fassade der Abfluss am grössten ist. Die Anzahl der Überschreitungen ist beim Land-Szenario Fassade und Land-Szenario Dach relativ hoch, aber nur relativ, denn die Anzahl Überschreitungen im Stadt-Szenario ist gering, jedoch die Überschreitungen lange.

Das Land-Szenario Dach wie das Land-Szenario Fassade ergibt, verglichen mit dem Stadt-Szenario Fassade, einen sehr geringen Abfluss und sehr geringe Emission. Das könnte die Vermutung nahelegen, dass die Emissionen durch ein Modellhaus eine geringere Bedeutung haben. Die Anzahl und Dauer der Überschreitungen zeigt aber, dass auch im Land-Szenario die Emissionen erheblich sind, auch wenn sie deutlich geringer ausfallen als in der Stadt. Die weitaus meisten entsprechenden Szenarien sind nahe der maximalen Überschreitungsdauer und unterstreichen die Notwendigkeit, realistische Randbedingungen im Szenario einzusetzen.

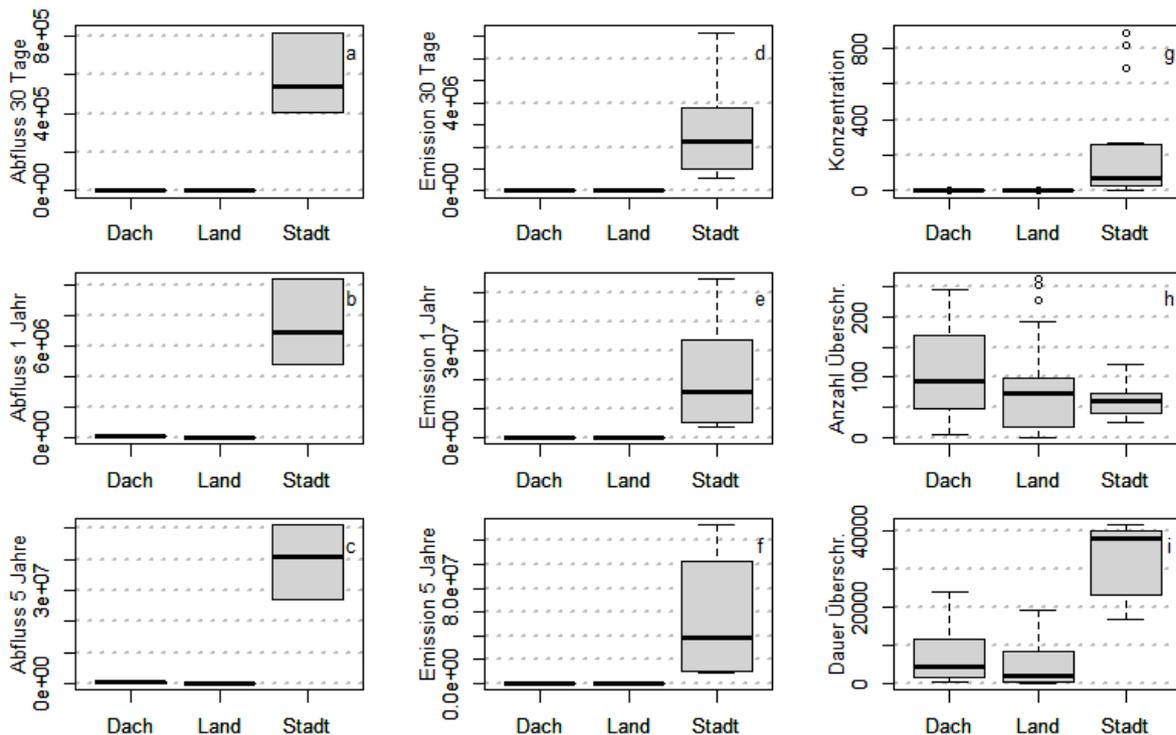


Abbildung 29: Einfluss vom Szenario (Stadt=Stadt-Szenario Fassade, Land=Land-Szenario Fassade, Dach=Land-Szenario Dach) auf die Zielgrößen.

10.2.4 Standorteigenschaften

Der Standort beeinflusst den Abfluss über die Niederschlagsmenge, jedoch übt das vordefinierte Szenario in den vorliegenden Beispielen einen stärkeren Einfluss aus. Daher sind die Boxplots sehr gespreizt, denn an jedem Standort wurde das Stadt-Szenario Fassade mit grossem Abfluss und das Land-Szenario Fassade mit kleinem Abfluss berechnet (Abbildung 30).

Die Abflüsse sind in Hamburg am höchsten und in Sevilla am niedrigsten. Dies gilt auch für die entsprechenden Emissionen. Der maximale Unterschied zwischen den Standorten ist aber kleiner als erwartet und liegt innerhalb eines Ranges von unter Faktor 2. Bezüglich der maximalen Konzentration ist der Unterschied zwischen allen Standorten relativ klein. Besonders herauszuheben ist die Übereinstimmung der Anzahl und der Dauer der Überschreitungen zwischen Hamburg und Zürich. Hier liegen der Median (dicke Linie im Boxplot) und die Whisker auf gleicher Höhe.

Die Schlussfolgerung daraus ist, dass nicht automatisch alle Standorte bei einer Evaluation herangezogen werden müssen. Am Standort Hamburg ist zwar mit einem geringeren Niederschlag zu rechnen als in Zürich, aber weil die durchschnittliche Windgeschwindigkeit in Hamburg grösser ist als in Zürich, liegen die Auswirkungen auf die Zielgrößen Konzentration, Anzahl Überschreitungen und Dauer der Überschreitungen in gleichem Umfang.

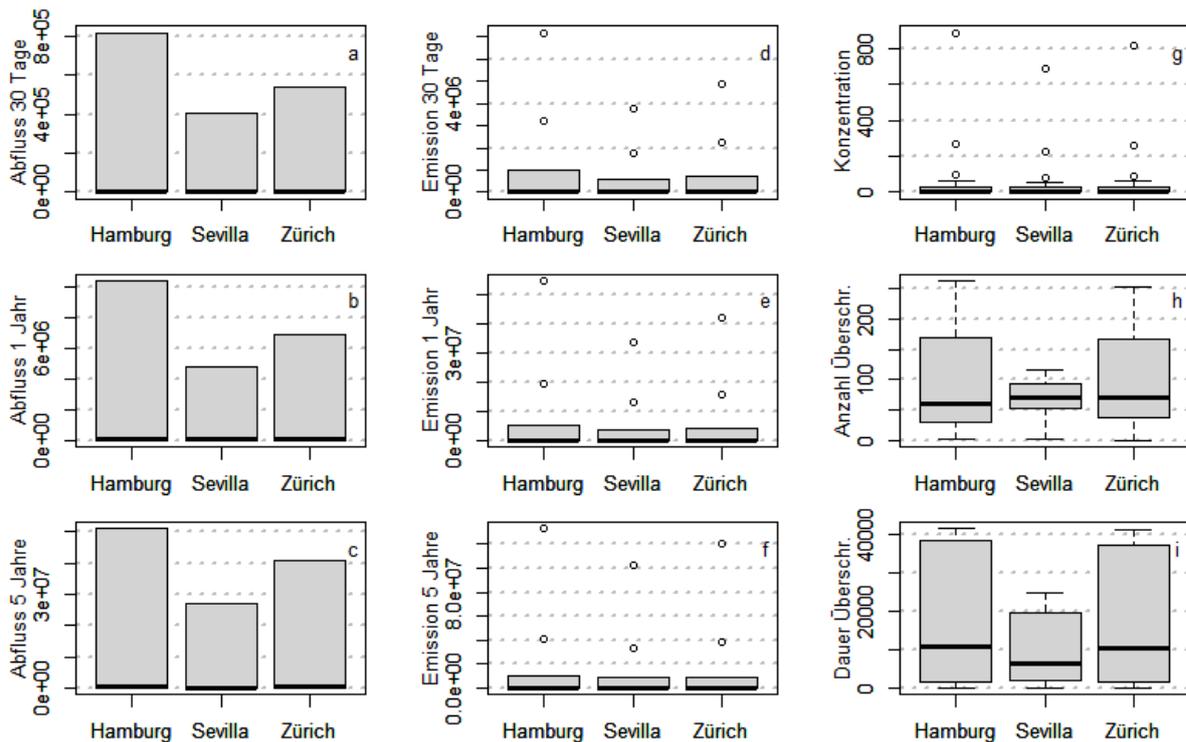


Abbildung 30: Einfluss von den Standortorteigenschaften (Hamburg, Sevilla und Zürich) auf die Zielgrößen.

10.2.5 Schlagregen

Schlagregen wird bei dem Dach-Szenario nicht berücksichtigt. Daher können hier nicht alle berechneten Szenarien ausgewertet werden, sondern nur das Land-Szenario Fassade und das Stadt-Szenario Fassade. Der Schlagregen beeinflusst direkt den Abfluss. Daher sind die Abflussmengen fast proportional zu den Schlagregenmengen. Die Emissionen, die sehr stark mit dem Schlagregen zusammenhängen, werden aber auch durch andere Faktoren – z. B. Substanz und Standort – beeinflusst.

Die minimalen Schlagregen-Werte in der Abbildung 31, die auch zu minimalem Abfluss führen, sind nicht gleich Null. Sie ergeben sich an allen drei Standorten Sevilla (7553 L), Hamburg (14154 L) und Zürich (11319 L) im Land-Szenario. Im Stadt-Szenario sind die Schlagregenmengen aber wesentlich grösser, weil es viele Gebäude umfasst (kumuliert mehrere Millionen Liter).

Im Land-Szenario ist der Schlagregen gering und folglich auch die durchschnittliche Konzentration im Oberflächengewässer. Demgegenüber können die hohen Schlagregenmengen in der Stadt mit einer hohen Konzentration einhergehen. Unter günstigen Umständen, zum Beispiel bei einem mittleren Gewässer und bei Terbutryn verkapselt mit einer geringen charakteristischen Emission, kann die Konzentration auch in der Stadt relativ klein bleiben.

Die Dauer der Überschreitungen in der Stadt ist auch bei einer gegenüber dem Maximalwert relativ geringen Konzentration in Hamburg und Zürich nahe der maximal möglichen Zeit, in Sevilla etwa bei der Hälfte der maximalen möglichen Zeit.

Auch auf dem Land sind trotz relativ geringer Konzentrationen die Überschreitungen häufig. Die Dauer der Überschreitungen verteilt sich auf Werte zwischen 0 und der Hälfte der maximal möglichen Zeit. Damit ist das Land-Szenario trotz der geringen Schlagregenmenge auch einigen Überschreitungen ausgesetzt.

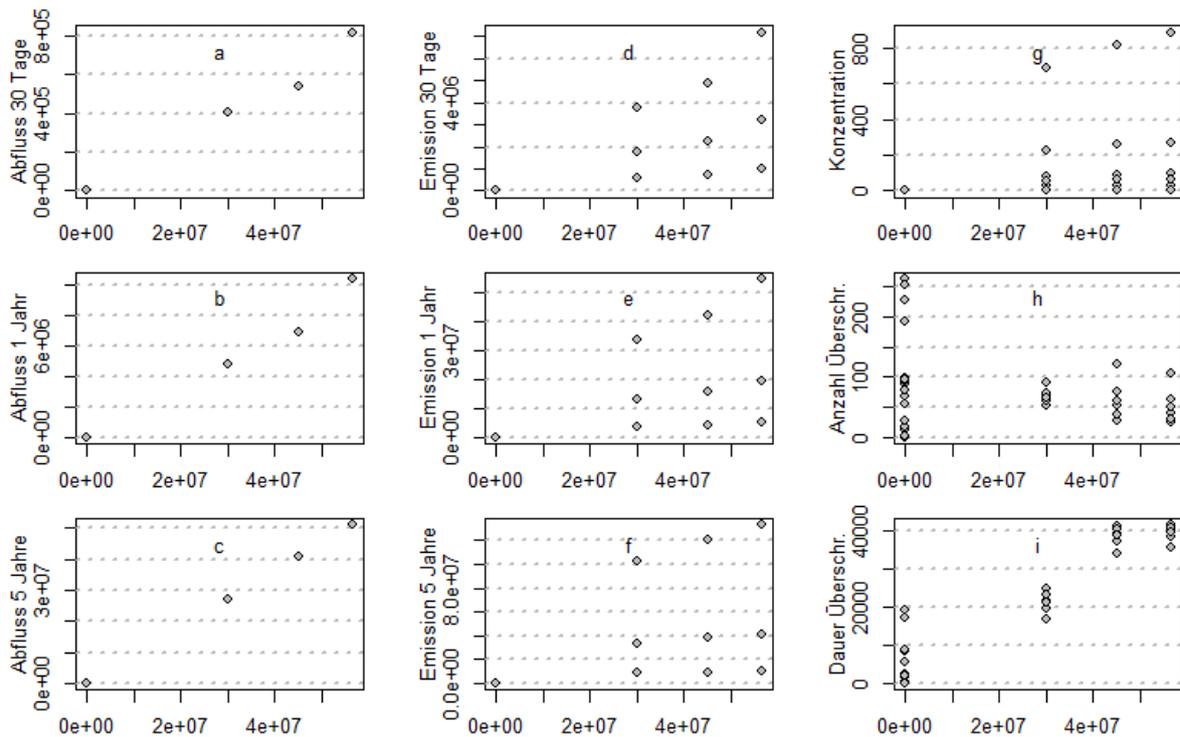


Abbildung 31: Zielgrößen bei verschiedenen Schlagregelmengen [L].

11 Expositionsklassierung

Eine Expositionsklassierung zielt darauf ab, den Biozideintrag in ein Oberflächengewässer anhand der möglichen Konzentrationen zu beurteilen. Dabei ist das übergeordnete Ziel, detaillierte Ergebnisse zu aggregieren, um sie in eine kommunikationsfähige Form für Hersteller oder Produktlabels zu bringen, Belastungsklassen für Produkte herzuleiten und damit Belastungen zu vermeiden. Aufgrund der hohen Auswaschdynamik lassen sich in COMLEAM dafür die kumulierte Anzahl und Dauer von Überschreitungen von numerischen Anforderungswerten oder akuten/chronischen Qualitätszielen direkt nutzen. Für die vorliegende Potentialklärung wurde der generische Anforderungswert von $0.1 \mu\text{g/L}$ für organische Pestizide verwendet.

Die vorliegenden Daten wurden exemplarisch für Diuron frei, Terbutryn frei und Terbutryn verkapselt klassiert. Diese Vorgehensweise soll das Potential aufzeigen, bzw. Anregungen zu einem möglichen Konzept liefern.

Für die effektive Klassierung wurden die COMLEAM-Resultate als Quotient mit einem oder mehreren Zielwerten abgeglichen. Dieser Abgleich resultierte in einer Klassenzuteilung, z.B. gering und mittel belastet, es können aber auch beliebig mehr sein.

Von einem Abgleich mit der kumulierten Emissionsmenge der dynamischen Simulation wird abgeraten. Eine reine Frachtbetrachtung reicht nicht, um den Eintrag in Boden und Gewässer differenziert zu beurteilen. Ausserdem sind die Frachten ein wenig sensitiver Parameter und Veränderungen über die Zeit bleiben unberücksichtigt.

Die Durchschnittskonzentration im Gewässer bezieht sich auf eine bestimmte Zeitdauer und bietet mehr Potential, um z.B. einen PEC/PNEC-Quotient zu ermitteln und damit eine Risikobetrachtung durchzuführen. Jedoch ist der Durchschnitt stets eine Mittelung aus Trocken- und Regenwetterabfluss und führt zur Nivellierung der Dynamik wie im ESD. Bei längeren Trockenperioden ohne Eintrag ins

Gewässer wird somit der Durchschnitt gesenkt und eine Beurteilung der regengetriebenen Konzentrationsspitzen eingeschränkt.

Um dennoch die Konzeptidee zu testen, wurden die Ergebnisse vom kleinen und mittelgrossen Gewässer ausgewählt. Dabei zeigt sich, dass bei hohen Emissionen der Mittelwert zwar sensitiv auf die Gewässergrösse reagiert, bei kleinen aber das Differenzierungspotential verloren geht, bzw. Unterschiede erst im Bereich der Nachkommastellen sichtbar sind.

Sehr viel geeigneter sind Auswertungen zu Anzahl und Dauer von Überschreitungen eines Anforderungswerts aufgrund der vielfältigen, auch gemeinsamen Auswertmöglichkeiten. So deutet eine lange Überschreitungsdauer mit geringer Anzahl auf eine chronische Belastung hin, hingegen scharfe Peaks auf akute. Festzulegen ist nur die Integrationsbreite (Breite des Zeitintervalls) und eine Klassengrenze. In der besten Klasse sind über die Simulationsperiode von fünf Jahren immer noch einzelne Peaks zulässig, jedoch entspricht diese vom Charakter her einer Null Belastung (Tabelle 23). Um eine weitere logische Abstufung sicherzustellen, wurden Abgrenzungen von 0 bis $\leq 1\%$ und $> 1\%$ bis $\leq 10\%$ der Zeit angedacht und mit Belastungsklassen verknüpft⁸:

- Dauer Überschreitungen $\leq 1\%$ (438 h): geringe Belastung
- Dauer Überschreitungen $\leq 10\%$ (4380 h): mittlere Belastung
- Dauer der Überschreitungen $> 10\%$: hohe Belastung

Tabelle 23: Expositionsklassierung für Terbutryn verkapselt. Die Bezeichnung "F" oder "D" in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach.

Simulationskennwerte				Resultate Simulation				Abgleich Kriterien		
Nr.	Szenario	Standort	Gewässer	Emission (g)	Dauer (h)	Anzahl (-)	Mittl. Konz. ($\mu\text{g/L}$)	≤ 0 (-)	$\leq 1\%$ (438 h)	$\leq 10\%$ (4380 h)
49	Land D	Hamburg	Klein	6.7	3031	89	0.03	Nein	Nein	Ja
50	Land D	Hamburg	Mittel	6.6	304	5	0.00	Nein	Ja	Ja
51	Land D	Sevilla	Klein	6.4	3443	76	0.05	Nein	Nein	Ja
52	Land D	Sevilla	Mittel	6.4	377	13	0.00	Nein	Ja	Ja
53	Land D	Zürich	Klein	6.9	3593	94	0.04	Nein	Nein	Ja
54	Land D	Zürich	Mittel	6.9	306	7	0.00	Nein	Ja	Ja
55	Land F	Hamburg	Klein	2.6	1552	56	0.02	Nein	Nein	Ja
56	Land F	Hamburg	mittel	2.6	54	1	0.00	Nein	Ja	Ja
57	Land F	Sevilla	klein	2.2	1869	55	0.02	Nein	Nein	Ja
58	Land F	Sevilla	mittel	2.2	34	3	0.00	Nein	Ja	Ja
59	Land F	Zürich	klein	2.4	1789	67	0.02	Nein	Nein	Ja
60	Land F	Zürich	mittel	2.4	0	0	0.00	Ja	Ja	Ja
61	Stadt D	Hamburg	klein	44968	40440	34	109.	Nein	Nein	Nein
62	Stadt D	Hamburg	mittel	44968	37567	74	17	Nein	Nein	Nein
63	Stadt D	Sevilla	klein	43476	23371	63	158	Nein	Nein	Nein
64	Stadt D	Sevilla	mittel	43476	19730	76	23	Nein	Nein	Nein
65	Stadt D	Zürich	klein	46645	40053	45	123	Nein	Nein	Nein
66	Stadt D	Zürich	mittel	46645	36663	90	19	Nein	Nein	Nein
67	Stadt F	Hamburg	klein	10379	39500	50	67	Nein	Nein	Nein
68	Stadt F	Hamburg	mittel	10377	35581	106	7	Nein	Nein	Nein
69	Stadt F	Sevilla	klein	8651	21161	66	58	Nein	Nein	Nein
70	Stadt F	Sevilla	mittel	8651	17012	90	6	Nein	Nein	Nein
71	Stadt F	Zürich	klein	9637	38676	61	66	Nein	Nein	Nein
72	Stadt F	Zürich	mittel	9637	33979	122	7	Nein	Nein	Nein

⁸ VSA (2019): Abwasserbewirtschaftung bei Regenwetter. Verband Schweizer Abwasser- und Gewässerschutzfachleute.

Wenn Anzahl und Dauer jeweils so beurteilt werden, ist eine kombinatorische Bewertung losgelöst von einer strikten Null-Überschreitungsphilosophie der Expositionsklassierung gegeben. Die gleiche Art der Klassenbildung ist auch für andere Abgrenzungsgrenzen möglich.

Die Beispieldaten von Terbutryn verkapselt mit dem Abgleich der genannten Kriterien sind in Tabelle 23 dargestellt (Diuron und Terbutryn frei, Anhang D). In den Stadt-Szenarien waren die Kriterien nicht eingehalten (Tabelle 23, 61-72). Für Terbutryn frei und Diuron, welche beide noch höhere Emissionen aufweisen, ist der Sachverhalt analog. Das zweite Kriterium für eine mittlere Belastung wird nur bei Terbutryn verkapselt in allen Land-Szenarien (Fassade und Dach) eingehalten. Im Vergleich zu Diuron und Terbutryn frei schneidet das verkapselte Terbutryn erwartungsgemäss am besten ab. Für Diuron und Terbutryn frei wird das Kriterium $\leq 10\%$ einzig beim den Land-Szenarien Fassaden an mittleren Gewässern eingehalten.

Die Klassierung einer möglichen Gewässerbelastung könnten genutzt werden, um Massnahmen zu folgern, beispielsweise Biozide nicht auf Dächern zu applizieren oder Regenwasserabfluss vor der Einleitung ins Gewässer zu behandeln. Die Produktklassierung ist auch geeignet, um eine verbraucherfreundliche Kennzeichnung der möglichen Gewässerbelastung durch spezifische Bauprodukte zu erreichen.

12 Schlussfolgerungen und Ausblick

Die vergleichenden Untersuchungen von etablierten ESDs für Biozid-Anwendungen auf Dach und Fassaden mit den dynamischen Simulationen unter COMLEAM zeigen die Möglichkeiten auf, die die Software bei einer Risikobewertung komplementär zu bestehenden ESD-Methodik einnehmen kann. Weiterhin wird sichtbar, in welchen Punkten sich die ESDs verbessern lassen und worin die Limitierungen von COMLEAM in der Anwendung liegen.

ESD: Mit den ESDs existiert ein handhabbares, gut strukturiertes und europaweit einheitliches Instrument zur Umweltbewertung von Bioziden. Damit lassen sich vergleichsweise schnell die grossen Eckpunkte der Emissionen ermitteln. Die abgeschätzten Frachten sind zwar gegenüber der Realität eher zu hoch (Prinzip in=out), aber damit eine vorsorgeorientierte Risikoabschätzung sichergestellt (worst-case). Sollten die berechneten Risiken damit nicht akzeptabel sein, wäre eine Parameterverfeinerung denkbar, z.B. bei der Grösse der emittierenden Fassadenfläche oder durch Einbezug von Verdünnungsflächen.

Mittlere Tagesfrachten ins Gewässer unterschätzen mögliche Pulsbelastungen bei Regenwetter. So kann im Stadt-Szenario die mittlere Konzentration im Oberflächengewässer diese Streuung nicht abbilden.

COMLEAM: Die dynamische Simulation weist deutlich geringere Emissionen aus als in den beigezogenen ESDs, wobei die Unterschiede an den Fassaden wegen der berücksichtigten Fassadenausrichtung besonders markant sind (nur bewitterte Fassaden emittieren). Die resultierenden Konzentrationen im Gewässer fallen hingegen deutlich höher aus. Weiter können dank der zeitlichen Auflösung der Simulation die Anzahl und Dauer möglicher Überschreitungen aus der dynamische Simulation mit akuten und chronischen Anforderungswerten abgeglichen werden.

Die Emissionsmengen hängen stark von der Substanz und der Emissionsfunktion ab. Die logarithmische Emissionsfunktion beinhaltet einen Intensitäts- und einen Formfaktor, die den Umfang und den Verlauf der Emission bestimmen. Die Emissionsmenge ist linear abhängig vom Intensitäts- und fast linear zum Formfaktor. Durch diesen Zusammenhang ist die logarithmische Emissionsfunktion für die Belastungsabschätzung von Bioziden besonders geeignet.

Der Unterschied zwischen den zwei Standorten Hamburg und Zürich ist kleiner als angenommen. Die Abflussmengen nach 30 Tagen, nach einem Jahr und nach fünf Jahren sind sehr ähnlich, wobei der Einfluss bei der Betrachtung von Emissionen aus Dächern höher ist als von Fassaden. Sevilla

hingegen unterscheidet sich im Klima deutlich und damit auch in Verlauf und Höhe der Emissionen. Alle drei Standorte sind bezogen auf das Muster des Stoffvorkommens im Gewässer standortspezifisch sehr differenziert.

Die Wetterdaten von Europäischen Standorten und die Variation der Gewässergrösse bilden gemeinsam die wesentliche Grundlage für eine aussagekräftigere, standortdifferenzierende Stoffbewertung. Die Verdünnung und die Gewässerklasse haben massgeblichen Einfluss auf die Simulationsresultate. Der Einfluss des Standortes nimmt mit grösserer Gewässerklasse ab, während der Einfluss der Emissionsfunktion bzw. der Emissionsrate (abhängig von Substanz und Formulierung) zunimmt. Neben der Stoffeigenschaft, die aus den Emissionsdaten indirekt hergeleitet wird, und der Anwendungsmenge, sind diese vier Eingangsparameter entscheidend (am sensitivsten) für die Umweltexposition von Bioziden.

Sensitivitätsanalyse: Die Sensitivitätsanalyse der Emissionsfunktionen hat gezeigt, dass die logarithmische Emissionsfunktion empfehlenswert ist. Die Parameter charakteristische Emission und charakteristischer Abfluss haben eine klare Bedeutung. Die logarithmische Emissionsfunktion liegt zwischen der diffusionsbasierten Funktion, deren Voraussage viel zu hoch ist, und der Langmuir-Funktion sowie der begrenztes-Wachstum-Funktion, deren Voraussagen sich auf null Emission reduzieren. Die charakteristische Emission bestimmt proportional die Emissionsmengen, sowohl die kumulative Emissionsmenge als auch die aktuelle Emissionsrate. Der charakteristische Abfluss beeinflusst die Geschwindigkeit, mit der die Emission erfolgt.

Die systembezogene Sensitivität zeigt die Einflüsse auf Abfluss, Emission, Konzentration im Gewässer und Anzahl und Dauer von Überschreitungen. Die Standorte Hamburg und Zürich haben zwar verschiedene Wetterbedingungen, aber Zürich mit mehr Niederschlag und weniger starkem Wind weist vergleichbar starke Auswirkungen wie Hamburg auf. Deutlich ist aber der Unterschied zu Sevilla mit weniger Niederschlag. Eine hohe Niederschlagsmenge ist nicht allein Ursache von Belastungen durch Fassadenauswaschungen. Windrichtung- und -stärke können relevanter sein.

Ausblick

Die Ergebnisse zeigen, dass COMLEAM für die Expositionsanalyse von Biozidprodukten geeignet ist. Für die systematische Untersuchung oder Klassierung ist die Herleitung von repräsentativen urbanen Einzugsgebieten, in der Schweiz und/oder europaweit, hilfreich. Dadurch liessen sich Ergebnisse direkt vergleichen. Festzulegen sind die sensitivsten Parameter wie Gewässergrösse, Verdünnungsfläche, Wetterdaten (Zeitraum) und Standorte.

Für die individuelle dynamische Modellierung mit vollständiger Nutzerfreiheit (Expertenmodus) werden Wetterdaten, detailliertere Geometrieinformationen (Ausrichtung, Höhe, etc.), Auswaschdaten, Gewässergrösse etc. benötigt, um ein Umgebungsszenario abbilden zu können. Für ein einheitliches spezifisches Szenario können diese Anforderungen vordefiniert werden und sind damit gut handhabbar, insbesondere via Batch-Simulation mit eingeschränkter Benutzerfreiheit (geführte Simulation).

Die Schnittstellen zu etablierten Bodentransport-Modellen im Bereich der Zulassung von Pflanzenschutzmitteln (PEARL, MACRO, PELMO) oder zu Kanalnetz-Modellen (SWMM) können weiter ausgearbeitet werden. Das Potential wurde exemplarisch bereits aufgezeigt. Dadurch kann die Software breiter positioniert und weitere Eintragspfade verbessert beurteilt werden.

Die Verwendung von COMLEAM als Tool zur Klassierung von Bauprodukten bezogen auf die mögliche Gewässerbelastung wurde als Konzept mit Labordaten von Bauprodukten ausgearbeitet und ermöglicht eine neue Art der Produktklassierung (Burkhardt et al., 2021). Grundlage dafür ist eine Aggregation von Simulationsdaten und deren Bezug zur Nutzungsphase. Zusammen mit der Betrachtung von Herstellung und Entsorgung der Bauprodukte wird damit erstmals eine ganzheitliche ökologische Bauproduktebewertung möglich.

Die Integration von einer Abbaurrate für den Stoffverlust im Material bis zum Zeitpunkt der Auswaschung lässt sich über die bereits in der Software hinterlegte Abbaurrate als stoffspezifisches Merkmal in das Frontend von COMLEAM integrieren. Hierbei könnte die Transformation in einem ersten Schritt durch eine Wert abgebildet werden, der den für Biozide relevanten Photoabbau widerspiegelt. Damit wird die zeitliche Änderung des Anfangsgehalts reflektiert.

Es gibt bereits weitergehende Überlegungen und Berechnungen der charakteristischen Emission und des charakteristischen Abflusses aus Labordaten. Der Aufbau einer Datenbank mit Labordaten und charakteristischen Parametern zur Überprüfung und Veröffentlichung der Berechnungen wäre sehr hilfreich.

In der systembezogenen Sensitivität führt Sevilla zu grundsätzlich anderen Werten der Zielgrößen als Hamburg und Zürich. Das wirft die Frage auf, welche Standorte – zum Beispiel aus den FOCUS Daten – für eine Bewertung von Bioziden essenziell verschiedene Ergebnisse liefern und welche – wie etwa Hamburg und Zürich – auf vergleichbare Werte der Zielgrößen führen. Unter der Annahme einer grossräumigen Gliederung von Europa dürften weitere Standorte geeignet sein für verallgemeinernde Simulationsszenarien wie typische Schlagregenregionen (Westküste Frankreich, Irland etc.) und Standorte mit kontinentalen Klima (Polen, Ungarn etc.).

13 Literaturverzeichnis

- Ahting, M. & S. Mueller-Knoche (2014) The assessment of direct emissions to surface water in urban areas. Umweltbundesamt.
- Burkhardt, M. & P. Hodel (2019) Abschwemmung von Metallflächen und Eintrag ins Grundwasser. Bern: Bundesamt für Umwelt BAFU, Abteilung Wasser.
- Burkhardt, M., M. Klingler, D. Savi, M. Rohr, O. Tietje & M. Junghans (2021) Entwicklung einer emissionsbasierten Bauproduktebewertung – Anwendung des Konzepts für Dachbahnen und Fassadenputze. Zürich: Schweizer Bundesamt für Umwelt BAFU, Sektion Konsum und Produkte; Amt für Hochbauten der Stadt Zürich AHB, Fachstelle Nachhaltiges Bauen.
- Burkhardt, M., S. Zuleeg, R. Vonbank, K. Bester, J. Carmelit, M. Boller & T. Wangler (2012) Leaching of Biocides from Façades under Natural Weather Conditions. *Environmental Science & Technology*, 46(10), 5497–5503.
- Clara, M., G. Gruber, F. Humer, T. Hofer, F. Kretschmer, T. Ertl, ... G. Windhofer (2014) Spurenstoffemissionen aus Siedlungsgebieten und von Verkehrsflächen (UW-Nr. 907). Wien: Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft.
- EUBES (2002) Emission scenarios for biocides used as masonry preservatives. ECHA. https://echa.europa.eu/documents/10162/16908203/pt10_masonry_preservatives_en.pdf/5bab4221-3156-4d4e-a57c-ab0cdc42ea18
- Guidance on the Biocidal Products Regulation (2003). European Chemicals Bureau. <https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/bitstream/JRC23785/EUR%2020418%20EN-2.pdf>
- Hochstrasser, F., M. Burkhardt & O. Tietje (2016) Schlagregenberechnung für Gebäudefassaden Exemplarische Anwendung der Simulationssoftware COMLEAM (20160146). Rapperswil: Fraunhofer IRB Verlag.
- Kahle, M. & I. Nöh (2006) Biozide in Gewässern: Eintragungspfade und Informationen zur Belastungssituation und deren Auswirkungen (09/09 ISSN 1862-4804). Dessau-Roßlau: Umweltbundesamt.
- Klein, M., O. Tietje, M. Burkhardt, N. Borho (2015) Use of pesticide leaching models for assessing groundwater concentrations of biocides from construction materials. 4th International Fresenius Conference Environmental Risk Assessment of Biocides, Köln.
- Kleppmann, W. (2016) Versuchsplanung Produkte und Prozesse optimieren (Bd. 9., überarbeitete Auflage). Wien: Carl Hanser Verlag München.
- Muijs, B. & P. Okkerman (2015) Leaching from paints, plasters, and fillers applied in urban areas. oard for the Authorisation of Plant Protection Products and Biocides – CTGB (The Netherlands).
- Paijens, C., A. Bressy, B. Frère, D. Tedoldi, R. Mailler, V. Rocher, ... R. Moillon (2020) Urban pathways of biocides towards surface waters during dry and wet weathers: Assessment at the Paris conurbation scale. *Journal of Hazardous Materials*, 402.
- Revised emission scenario document for wood preservatives (2013). Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung.
- Schoknecht, U., J. Gruycheva, H. Mathies, H. Bergmann & M. Burkhardt (2009) Leaching of Biocides Used in Facade Coatings under Laboratory Test Conditions. *Environmental Science & Technology*, 43(24), 9321–9328.

- Tietje, O., M. Burkhardt, M. Rohr, N. Borho & U. Schoknecht (2018) Emissions- und Übertragungsfunktionen für die Modellierung der Auslagerung von Bauprodukten. Dessau-Roßlau, Umweltbundesamt.
- Wicke, D., M. Burkhardt, M. Rohr, R. Pascale, R. Tatis-Muvdi, P. Zerball-van Baar & U. Dünnbier (2021) Bauen und Sanieren als Schadstoffquelle in der urbanen Umwelt (UBA Texte). Dessau-Roßlau, Umweltbundesamt.
- Wicke, D., A. Matzinger & P. Rouault, (2016) Relevanz organischer Spurenstoffe im Regenwasserabfluss Berlins (11409UEPII/2). Berlin: Kompetenzzentrum Wasser Berlin.
- Wittmer, I. K., R. Scheidegger, H.-P. Bader, H. Singer & C. Stamm (2011) Loss rates of urban biocides can exceed those of agricultural pesticides. *Science of the Total Environment*, 409, 920–932.

Anhang A. Grundlage

Tabelle 24: Jahresniederschlag und mittlere jährliche Windgeschwindigkeit von Hamburg, Zürich und Sevilla.

Jahr	Jahresniederschlag [mm]			Mittlere Windgeschwindigkeit [m/s]		
	Hamburg	Zürich	Sevilla	Hamburg	Zürich	Sevilla
1996	482	901	-	3.67	2.23	-
1997	702	801	-	3.58	2.19	-
1998	973	909	-	3.96	2.31	-
1999	622	1293	-	3.91	2.26	-
2000	673	977	523	4.33	2.12	2.56
2001	886	1435	674	3.86	2.28	2.82
2002	982	1154	506	3.98	2.32	2.55
2003	569	846	682	3.75	2.16	2.55
2004	815	1014	345	3.98	2.23	2.37
2005	701	1006	227	3.90	2.06	2.62
2006	622	1158	662	3.91	2.18	2.29
2007	1077	1106	378	4.14	2.36	2.31
2008	795	1061	481	4.11	2.24	2.61
2009	753	947	602	3.83	2.18	2.68
2010	713	1089	909	3.76	2.34	2.84
2011	717	818	396	4.09	2.22	2.47
2012	731	1201	461	3.94	2.37	2.68
2013	731	1003	406	3.90	2.35	2.93
2014	679	887	636	4.19	2.22	2.82
2015	793	772	331	4.32	2.49	2.58
Maximum	1077	1435	909	4.33	2.49	2.97
Minimum	482	772	227	3.58	2.06	2.29
Mittelwert	751	1019	504	3.96	2.26	2.64

PARAMETRISATION

The parameters used in the calculation are given in table 1

Table 1: Emission Scenario Parametrisation

Calculation Step	Parameter	Value
Emission	Material	PT7 facade paints
	$F_{form} \left[\frac{kg}{kg} \right]$	0.001416
	$F_{house} [-]$	1
	Professional applier	true
	Substance	Terbutryn
	Number of buildings	4000.0
	$AREA_{House} [m^2]$	125
	Immission	Immission path
$EFFLUENT_{wastewater} \left[\frac{L}{d} \right]$		600000.0
Target Compartment	$FOC_{susp} \left[\frac{kgOC}{kgcolid} \right]$	0.1
	$DILLUTION [-]$	10.0
	$SUSP_{water} \left[\frac{mg}{L} \right]$	15.0
	$KOC \left[\frac{L}{kg} \right]$	350

REFERENCE DOCUMENTS

The calculation was conducted according to the following ESD documents:

- The assessment of direct emission to surface water in urban areas (PT6.2/6.3 and 7-10), Version 3, final version, October 2014
- Leaching from paints, plasters and fillers applied in urban areas, Version 6, November 2015
- Use-based approaches for the estimation of environmental exposure due to roof membranes (PT9), Version 3, December 2014
- Technical Guidance Document on Risk Assessment, Part II

Abbildung 32: ESD-Bericht generiert in COMLEAM (Auszug).

Anhang B. Simulationsresultate

Anhang B.1 Parameter der Emissionsfunktionen

Tabelle 25: Resultierende Funktionsparameter nach nichtlinearer Regression der Felddaten.

Datensatz nls Methode	Parameter	
	a_{char} [mg/m ²]	q_{char} [m ² /L]
Terbutryn frei	33.8980	0.1349
Terbutryn verkapselt	7.30073	0.21099
Diuron frei	147.08053	0.06439

Anhang B.2 Expositionsanalyse

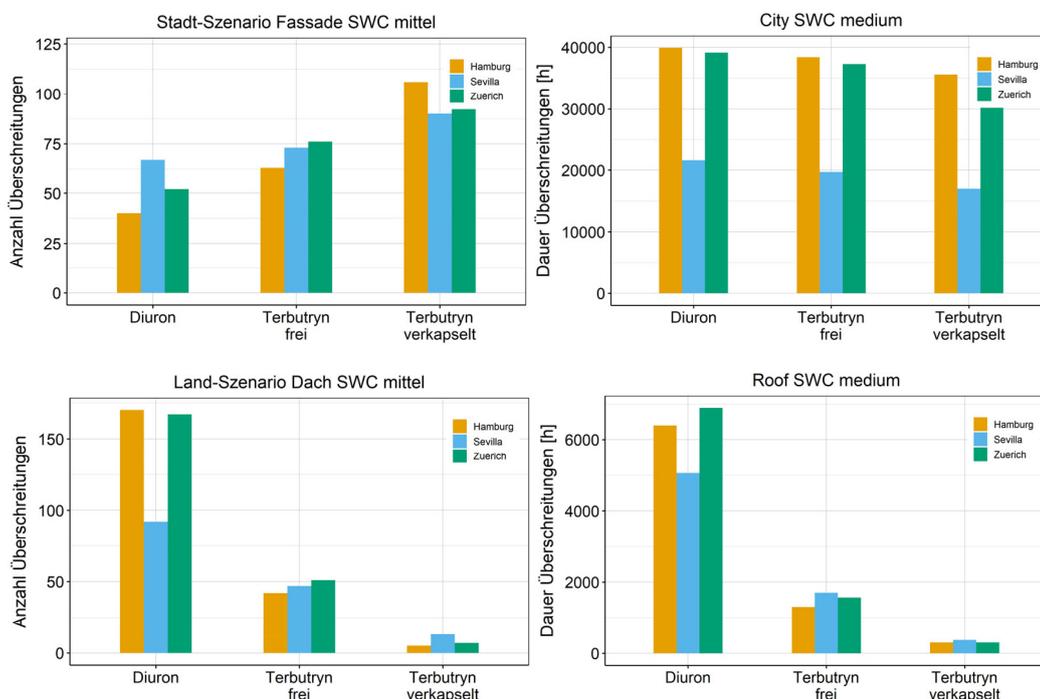


Abbildung 33: Stadt-Szenario Fassade (oben) und Land-Szenario Dach (unten) mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus COMLEAM-Simulationen im mittleren Gewässer.

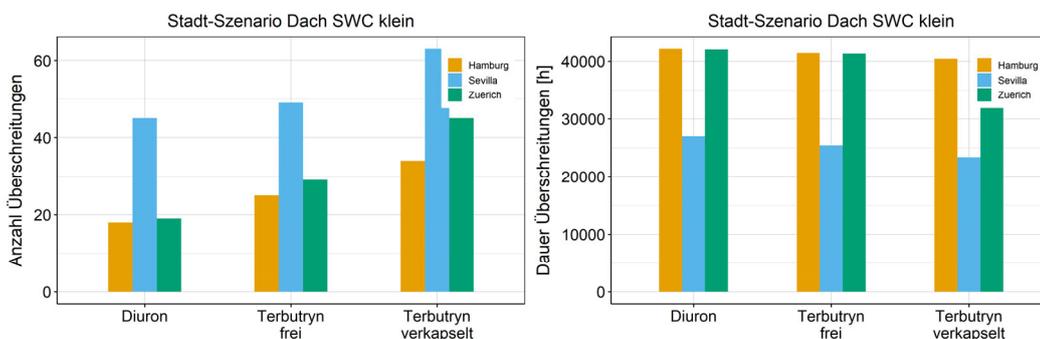


Abbildung 34: Stadt-Szenario Dach mit Anzahl (links) und Dauer (rechts) der Überschreitungen des Anforderungswerts aus den COMLEAM-Simulationen im kleinen Gewässer.

Konzentrationsverlauf Land-Szenario Dach

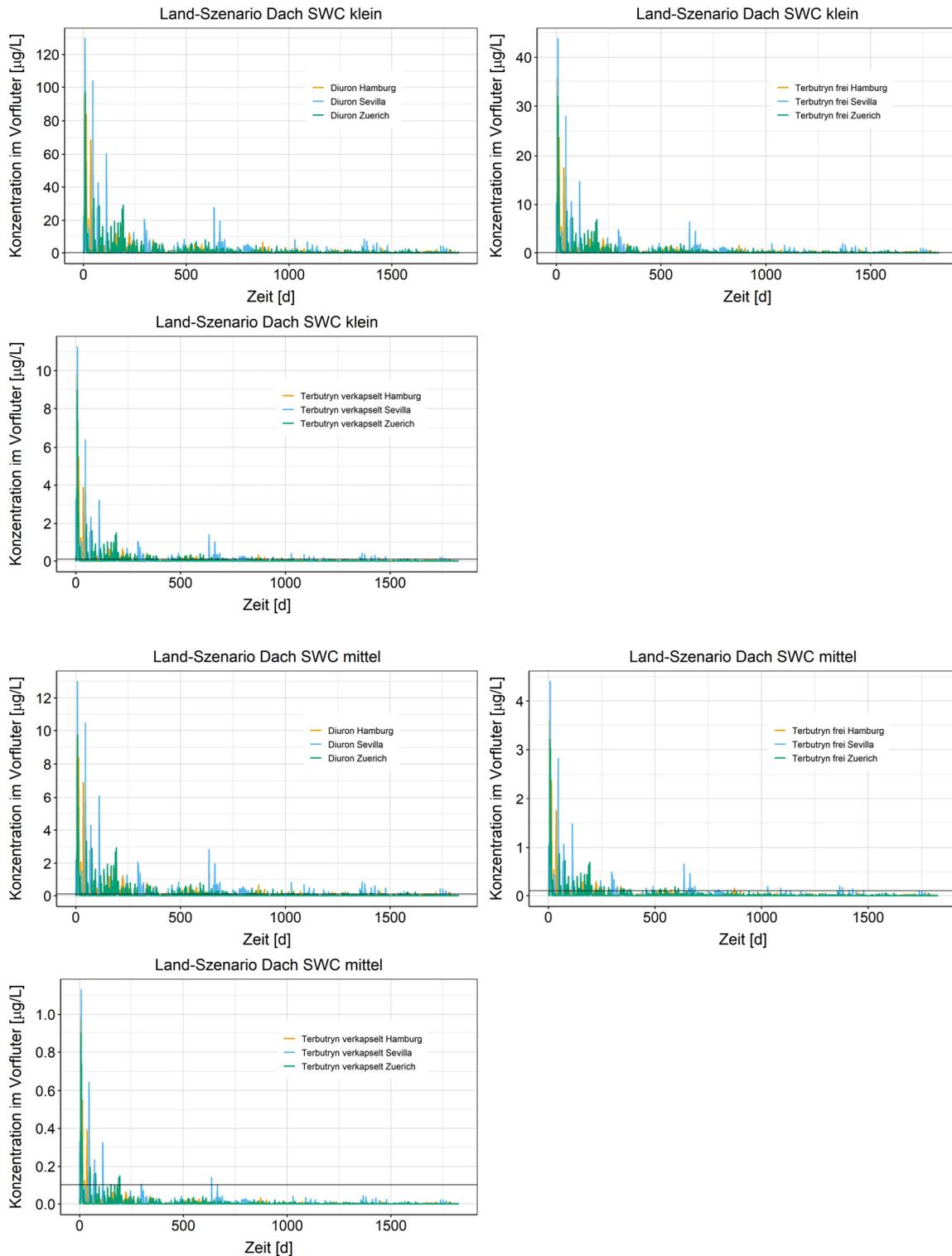


Abbildung 35: Konzentrationen im kleinen Gewässer (oben) und mittleren Gewässer (unten) vom Land-Szenario Dach für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).

Konzentrationsverlauf Land-Szenario Fassade

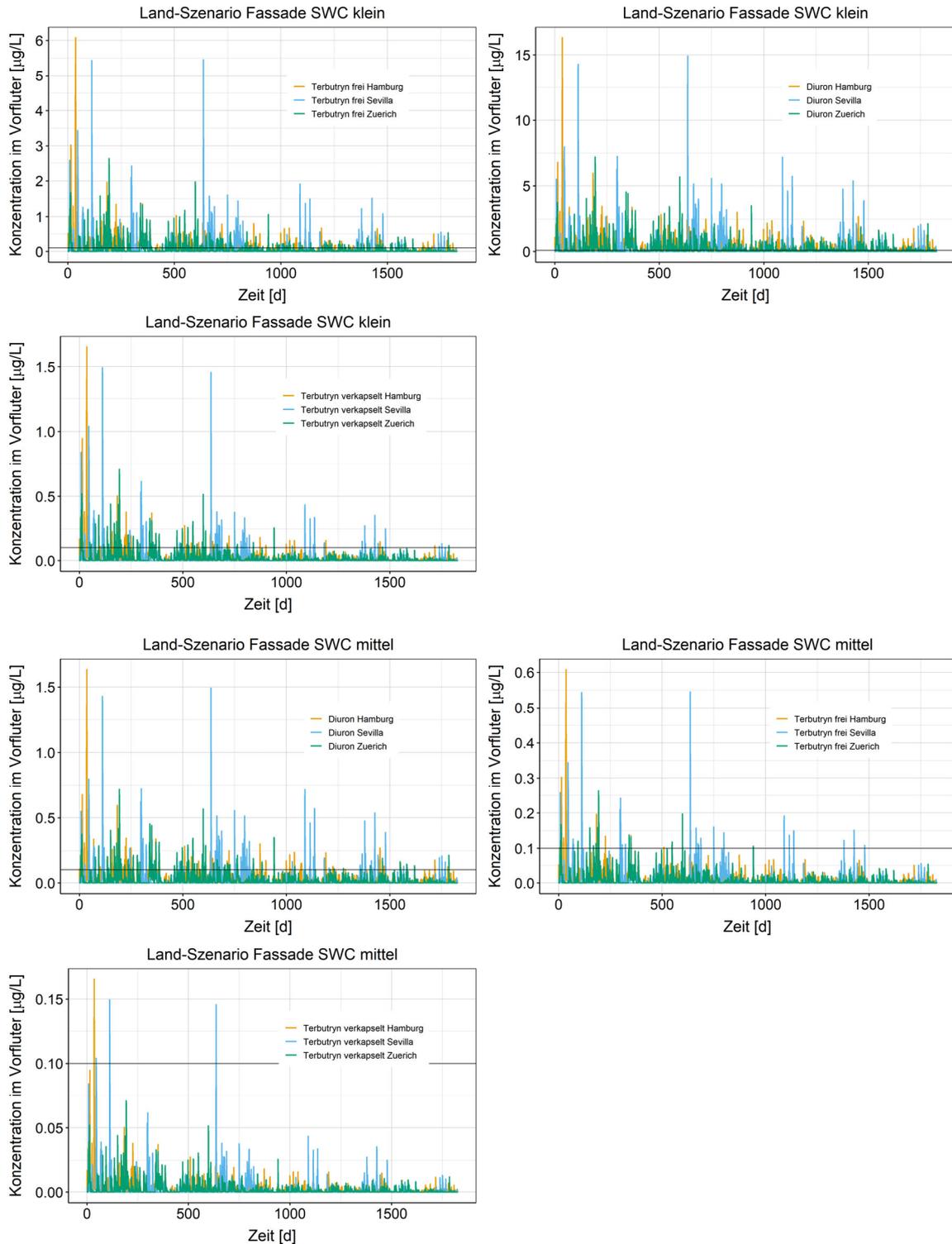


Abbildung 36:Konzentration im kleinen Gewässer (oben) und mittleren Gewässer (unten) vom Land-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).

Konzentrationsverlauf Stadt-Szenario Dach

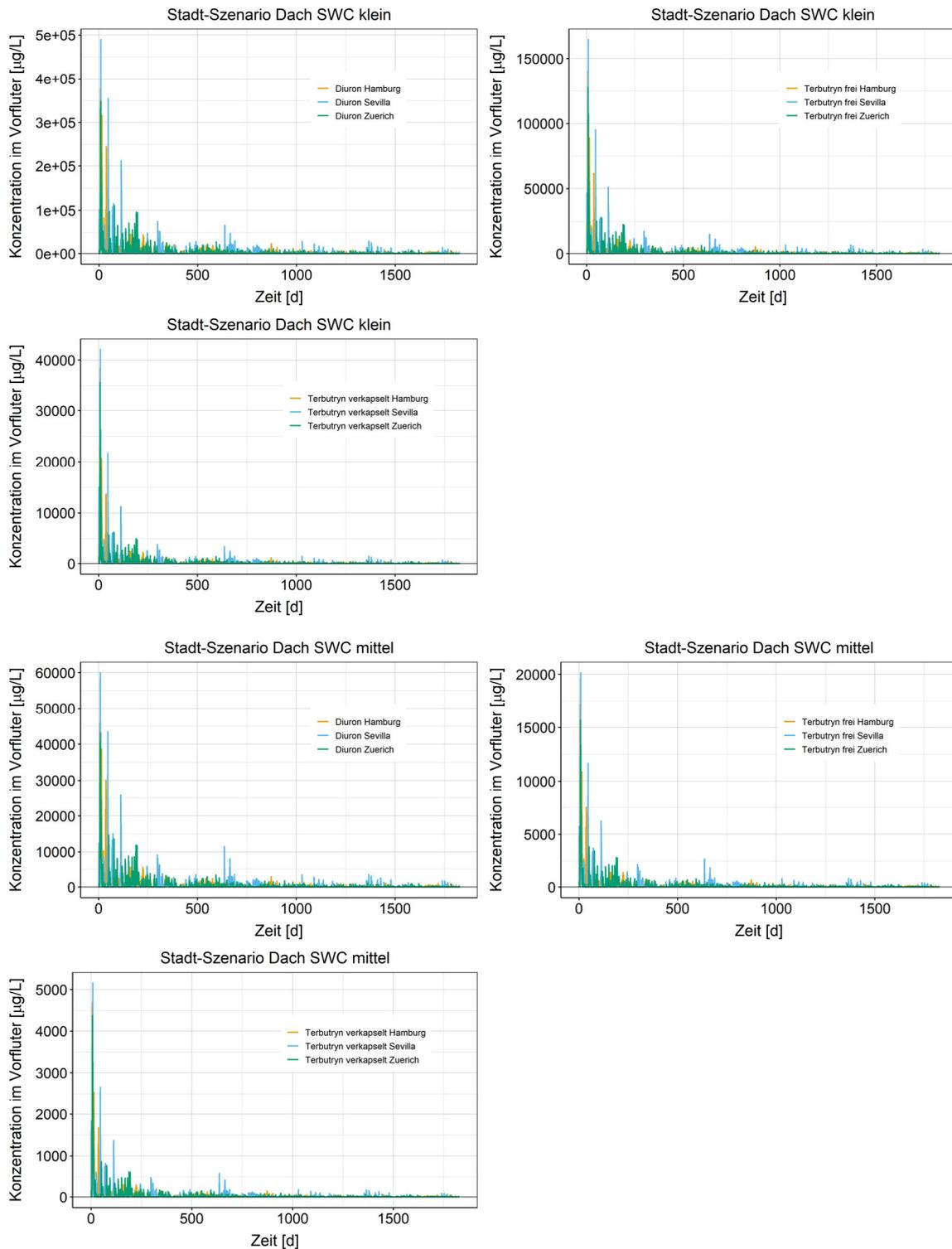


Abbildung 37: Konzentrationen im kleinen Gewässer (oben) und mittleren (unten) vom Stadt-Szenario Dach für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).

Konzentrationsverlauf Stadt-Szenario Fassade

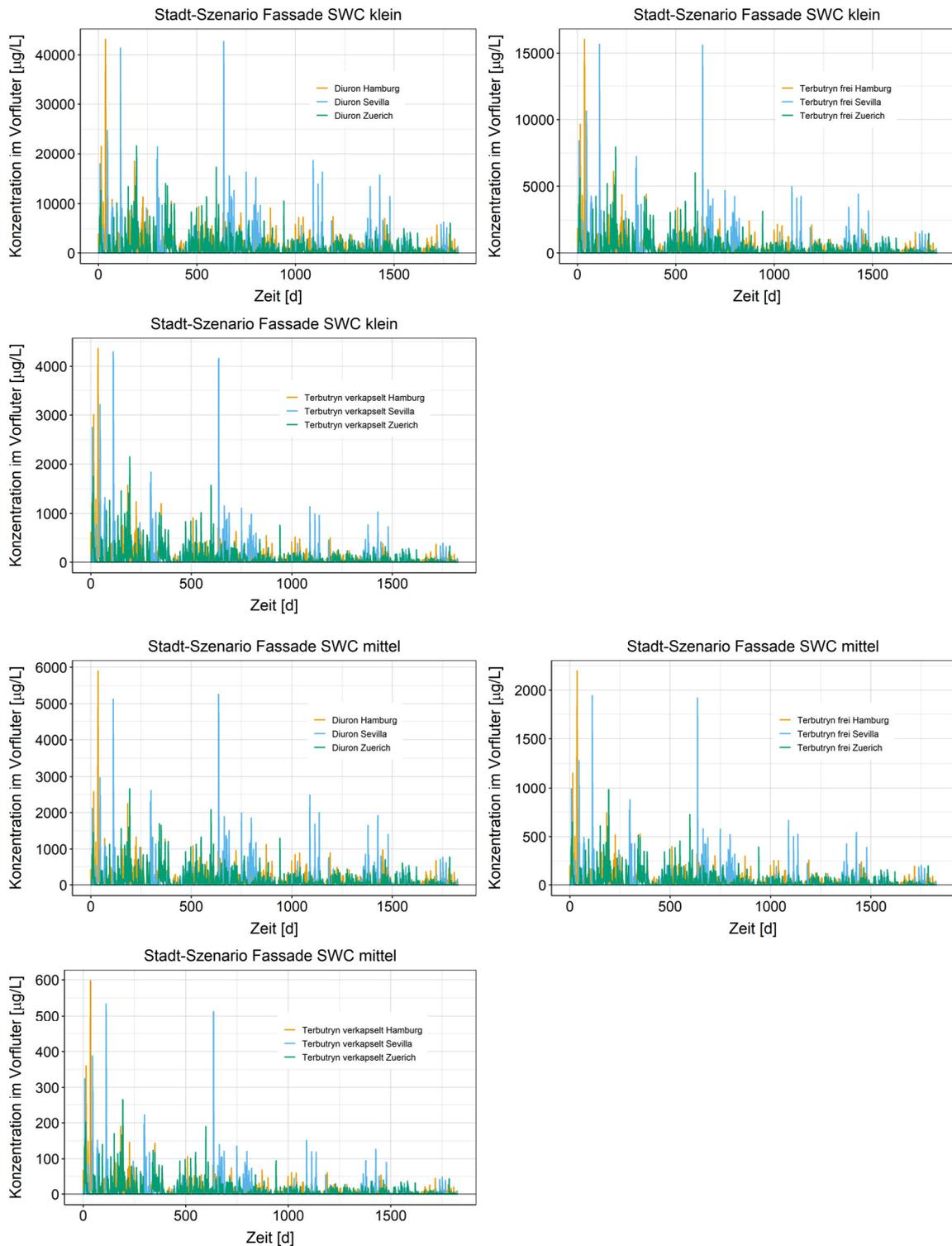


Abbildung 38: Konzentrationen im kleinen (oben) und mittleren Gewässer vom Stadt-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapseltes Terbutryn (unten).

Konzentrationsverlauf Stadt-Szenario Fassade

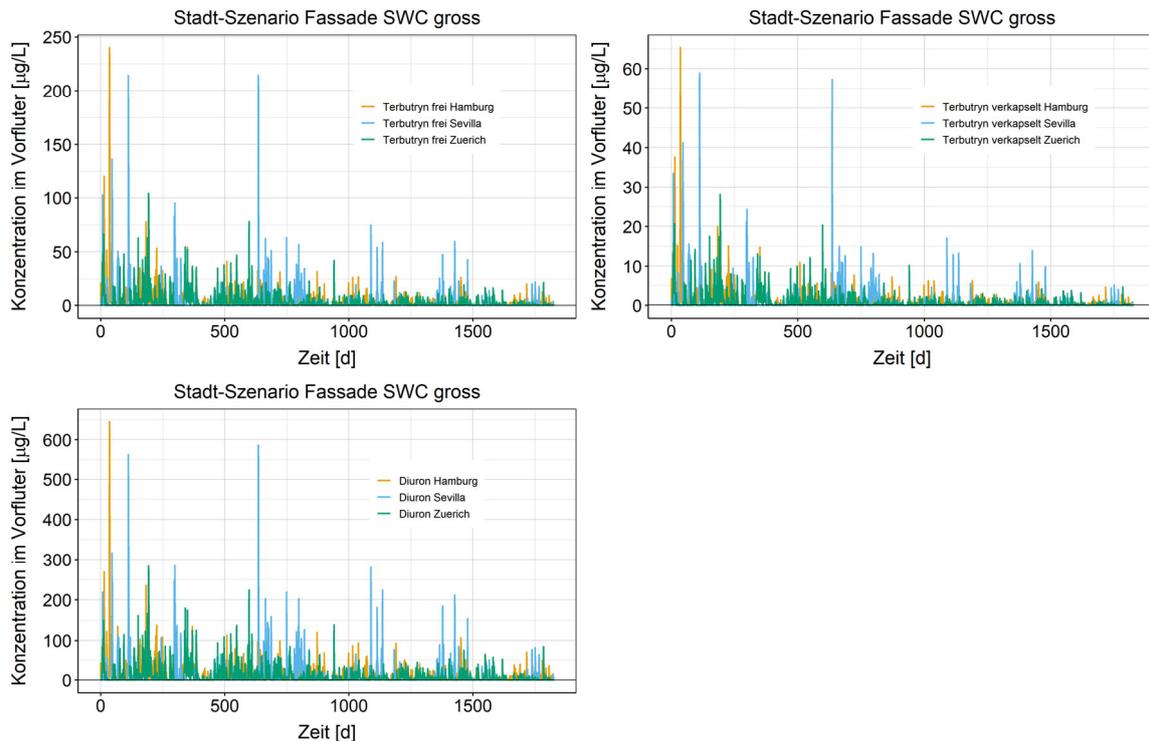


Abbildung 39: Konzentrationen im grossen Gewässer i vom Stadt-Szenario Fassade für freies Terbutryn (links), freies Diuron (rechts) und verkapselte s Terbutryn (unten) aus den Simulationen.

Anhang B.3 Nichtlinearität Gewässergrosse

Die Simulation mit unterschiedlichen Gewässergrossen resultiert in einer unterschiedlichen Verdünnung der eingeleiteten Konzentration. Die Verdünnung fliesst jedoch nicht linear in das Ergebnis ein. Die Stoffmenge, welche aus dem Schnittstellenkompartiment (also der Einleitstelle) abfliesst ist abhängig von der bereits vorhandenen Menge sowie dem Zufluss:

$$\frac{dz_i}{dt} = F \times \frac{dz_{em}}{dy_{em}} \times \frac{dy_{em}}{dt} - c_i \times k \times y_i$$

mit:

z_i [L] Stoffmenge im Schnittstellenkompartiment i

F [m^2] Fläche des Bauteils

z_{em} [mg/m^2] kumulierte Emission aus dem Bauteil

y_{em} [L/m^2] kumulierter Abfluss vom Bauteil

$\frac{dz_{em}}{dy_{em}}$ [mg/L] Ableitung der kumulierten Emissionsfunktion

$F \times \frac{dz_{em}}{dy_{em}} \times \frac{dy_{em}}{dt}$ wird angenähert durch $\frac{z_{em}(t + \Delta t) - z_{em}(t)}{\Delta t}$ [mg/L]

$c_i = \frac{z_i}{y_i}$ Stoffkonzentration im Schnittstellenkompartiment

$k \cdot y_i$ [L/d] Wasserabfluss aus dem Schnittstellenkompartiment

$c_i \cdot k \cdot y_i$ [mg/d] Stofffracht, die aus dem Schnittstellenkompartiment fliesst

Bei geringen Stoffmengen wie aus dem Land-Szenario Fassade ist der Einfluss der Nichtlinearität so klein, dass er vernachlässigt werden kann (Abbildung 40).

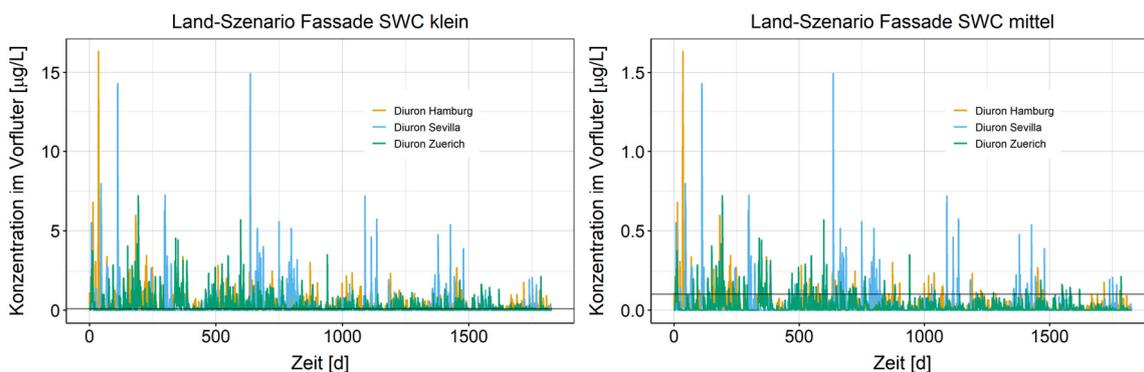


Abbildung 40: Vergleich der Konzentrationsverläufe im Vorfluter beim Land-Szenario Fassade für Diuron im kleinen (links) und mittleren (rechts) Gewässer.

Werden aber grosse Stoffmengen eingetragen wie im Stadt-Szenario Fassade zeigt sich, dass die ermittelte Vorfluter-Konzentration stärker zwischen klein und mittel variiert (Abbildung 41).

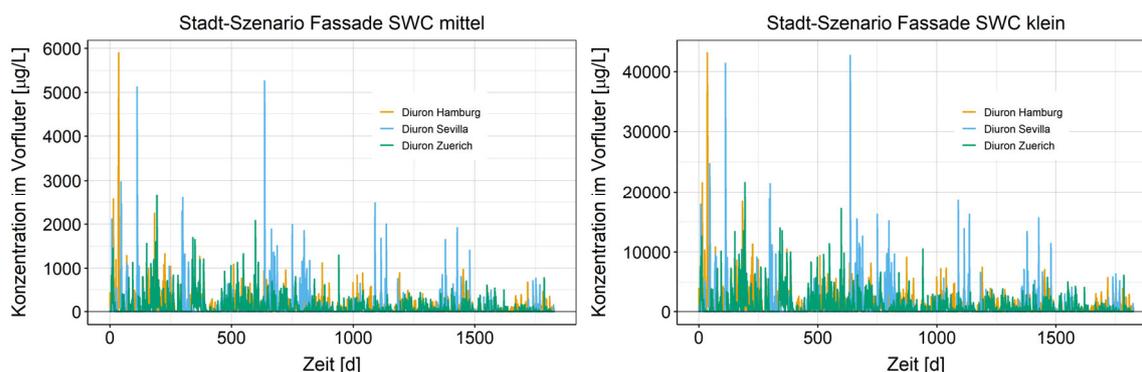


Abbildung 41: Vergleich der Konzentrationsverläufe im Vorfluter beim Stadt-Szenario Fassade für Diuron im kleinen (links) und mittleren (rechts) Gewässer.

Der Unterschied in der maximalen Konzentration von kleinem zu mittlerem Gewässer in beiden Szenarien (Standort = Hamburg) ist in Tabelle 26 ersichtlich. Ebenso der Unterschied zwischen mittel und gross, der aber nur für das Stadt-Szenario berechnet werden kann.

Tabelle 26: Vergleich der maximalen Konzentrationen in unterschiedlichen Gewässergrößen vom Land-Szenario Fassade und dem Stadt-Szenario Fassade. Die Konzentrationen beziehen sich auf den Standort Hamburg.

Verhältnis	Land-Szenario Fassade	Stadt-Szenario Fassade
$\frac{c_{max} SWC\ klein}{c_{max} SWC\ mittel}$	9.997	7.310
$\frac{c_{max} SWC\ mittel}{c_{max} SWC\ gross}$	-	9.143

Anhang B.4 Einfluss der Renovationsrate auf die Gewässerkonzentration

Im Beispiel fließen von 4000 Gebäuden à 125 m² Fassadenfläche pro Gebäude emittiert gemäss der Emissionsfunktion für Terbutryn frei 61 L/m² Regenwasser ab (Tabelle 2). Damit lässt sich eine mittlere Abflusskonzentration am Gebäude berechnen.

Anstatt einer monatlichen Renovierungsrate von 66 Gebäuden wird eine jährliche von 800 Gebäuden betrachtet. Dies ändert nichts am Zusammenhang, lediglich die Auflösung wird größer. Jeweils 800 Gebäude emittieren also über 5 Jahre, werden renoviert, emittieren wieder 5 Jahre, etc. Die Ganglinie der mittleren Abflusskonzentration von 800 Gebäuden verläuft periodisch (Abbildung 42).

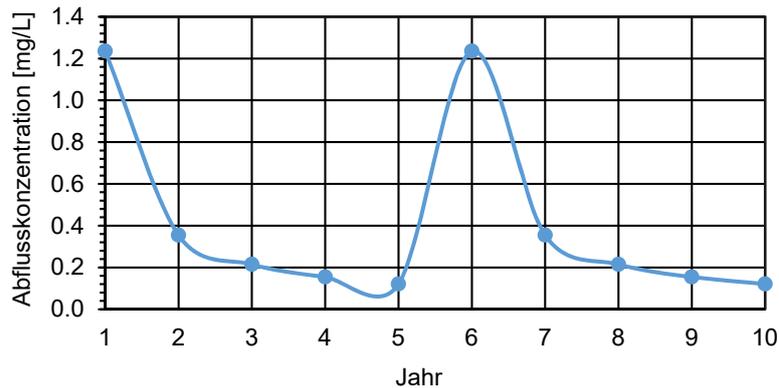


Abbildung 42: Beispiel des Verlaufs der mittleren Abflusskonzentration von 800 Gebäuden.

Im ersten Jahr, wenn die Stadt neu gebaut wird, emittieren rund 800 Gebäude. Im Jahr 2 kommen 800 weitere neue Gebäude dazu, wobei die Gebäude aus dem ersten Jahr weniger emittieren als die neuen. Ab Jahr 5 befindet sich dann die Emission der Stadt im Gleichgewicht, da die Gesamtheit von 4000 Gebäuden gebaut wurde und diese jeweils zyklisch erneuert werden. Es gibt also die Gebäude aus dem ersten Jahr (Geb.Jahr1), aus dem zweiten (Geb.Jahr2) usw. In Abbildung 43 sind die jährlichen Abflusskonzentrationen aus Jahr 1 bis 5 aufgetragen und der Mittelwert gebildet.

Es ist ersichtlich, dass sich nach fünf Jahren eine mittlere Abflusskonzentration etablieren wird. Betrachtet man jedoch nur den Gebäudebestand aus dem ersten Jahr (Geb.Jahr1), ist die Konzentration im Jahr der Renovierung deutlich über dem Durchschnittswert und die folgenden vier Jahre darunter. Dies entspricht der Situation der 66 simulierten neuen Gebäude in diesem Szenario.

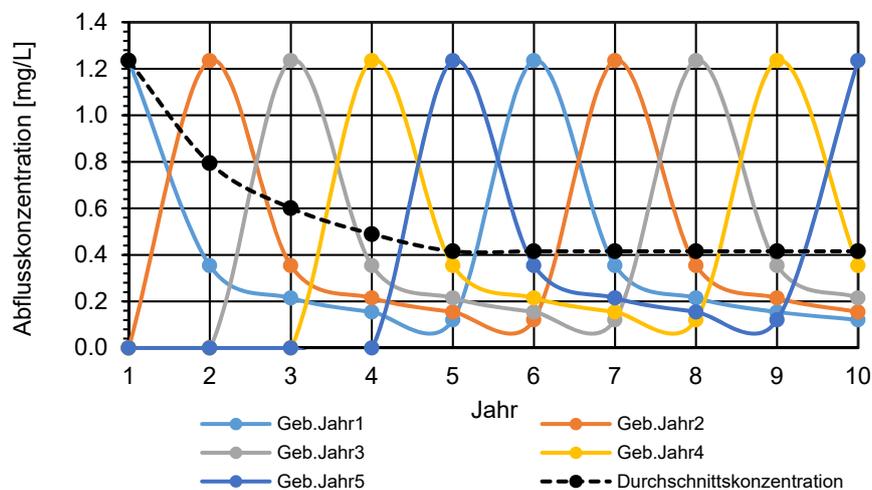


Abbildung 43: Verläufe der mittleren Abflusskonzentrationen unterschiedlich alter Gebäude mit jährlichen Renovationszyklus.

Anhang B.5 Einfluss Einsatzkonzentration

Der Einfluss der Einsatzkonzentration c_0 auf die Emission ist linear (Schoknecht et al., 2009). Dieser Zusammenhang ist auch im COMLEAM Modell entsprechend integriert. So gilt für alle Emissionsfunktionen in COMLEAM (Tietje et al., 2018).

$$E_T(t) = c_0 \cdot D_T(q(t))$$

G 1

wobei

 $E_T(t)$ Emissionsmenge je Quadratmeter Fläche [mg/m²]

 c_0 applizierte Menge je Quadratmeter Fläche [mg/m²] (anfängliche Flächendichte)

 $D_T(q(t))$ dimensionslose Emissionsfunktion ($0 \leq D_T(q(t)) \leq 1$) vom Typ T

 $q(t) = \psi \cdot r_{SR}$ Wasserabfluss [L/m²]

 r_{SR} Schlagregenmenge [L/m²]

 ψ Abflussbeiwert (dimensionslos)

Der Einfluss auf die Anzahl und Dauer der Überschreitungen ist hingegen nicht linear (Kap. 7.2). Daher wurde als fiktives Beispiel die applizierte Menge der Fassadenbeschichtung mit verkapseltem Terbutryn von 1400 mg/m² auf 3000 mg/m² Terbutryn erhöht, analog zu den freien Substanzen. Dies entspricht einem Faktor von 2.14.

Als Beispiel wurde das Land-Szenario Fassaden am Standort Hamburg mit kleinem Gewässer gewählt. Die kumulierte Emission der beiden Simulationen besitzt den gleichen Verlauf, beträgt in Summe für das verkapselte Terbutryn 2595 mg und für das verkapselte Terbutryn mit höherer Einsatzmenge 5570 mg (Abbildung 44). Dieses Verhältnis entspricht ebenfalls dem Faktor 2.14

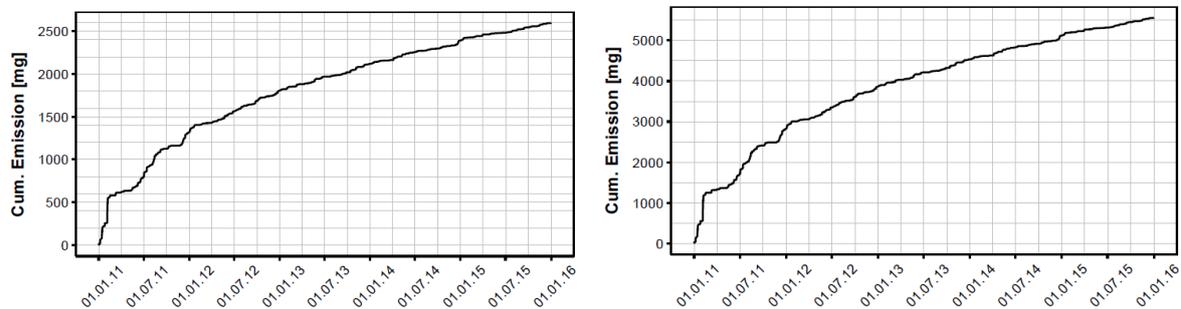


Abbildung 44: Vergleich kumulierte Emission aus der Simulation vom Land-Szenario Fassaden am Standort Hamburg mit verkapseltem Terbutryn (links) und verkapseltem Terbutryn mit höherer Einsatzmenge (rechts).

Die Expositionsanalyse der beiden Simulationen ist Tabelle 27 zu entnehmen. Es zeigt sich, dass die Zunahme von Anzahl und Dauer der Überschreitung der Simulation mit höherem c_0 grösser ist, als der Faktor 2.14, welcher zwischen den Anfangsgehalten liegt.

Tabelle 27: Vergleich Anzahl und Dauer Überschreitungen im kleinen Gewässer für verkapseltes Terbutryn bei unterschiedlichen Anfangsgehalten.

Anfangsgehalt Terbutryn (mg/m ²)	Anzahl Überschreitungen (-)	Dauer Überschreitungen (h)
1400	56	1'552
3000	140	4'345

Anhang C. Sensitivitätsanalyse

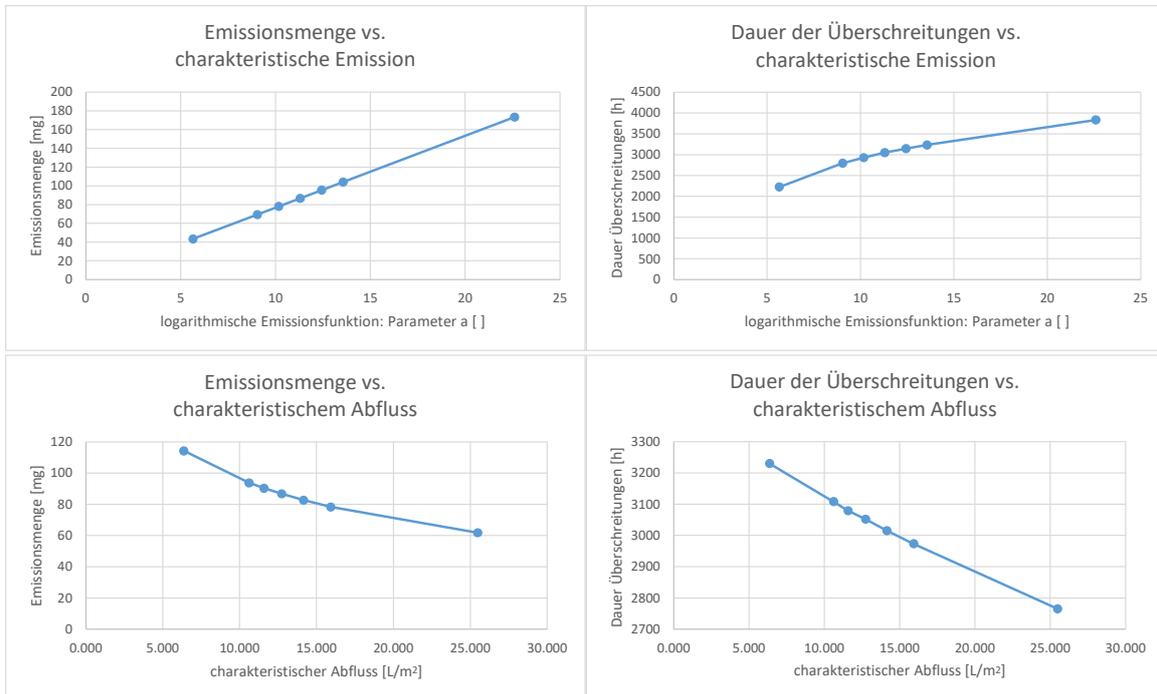


Abbildung 45: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden für die charakteristische Emission a_{char} (oben links) und den charakteristischen Abfluss q_{char} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen bezogen auf die charakteristische Emission a_{char} (oben rechts) und den charakteristischen Abfluss q_{char} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.

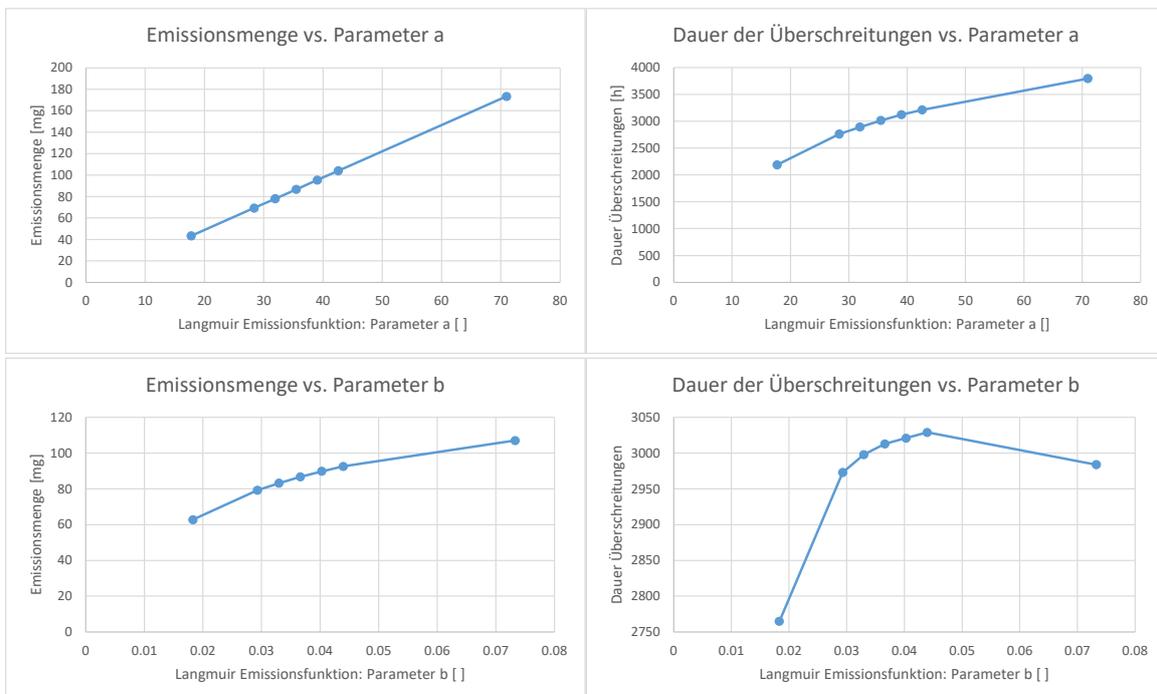


Abbildung 46: Sensitivität der kumulierten Emissionsmenge der Fassade für den Parameter a_{Lang} (oben links) und b_{Lang} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer für den Parameter a_{Lang} (oben rechts) und b_{Lang} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.

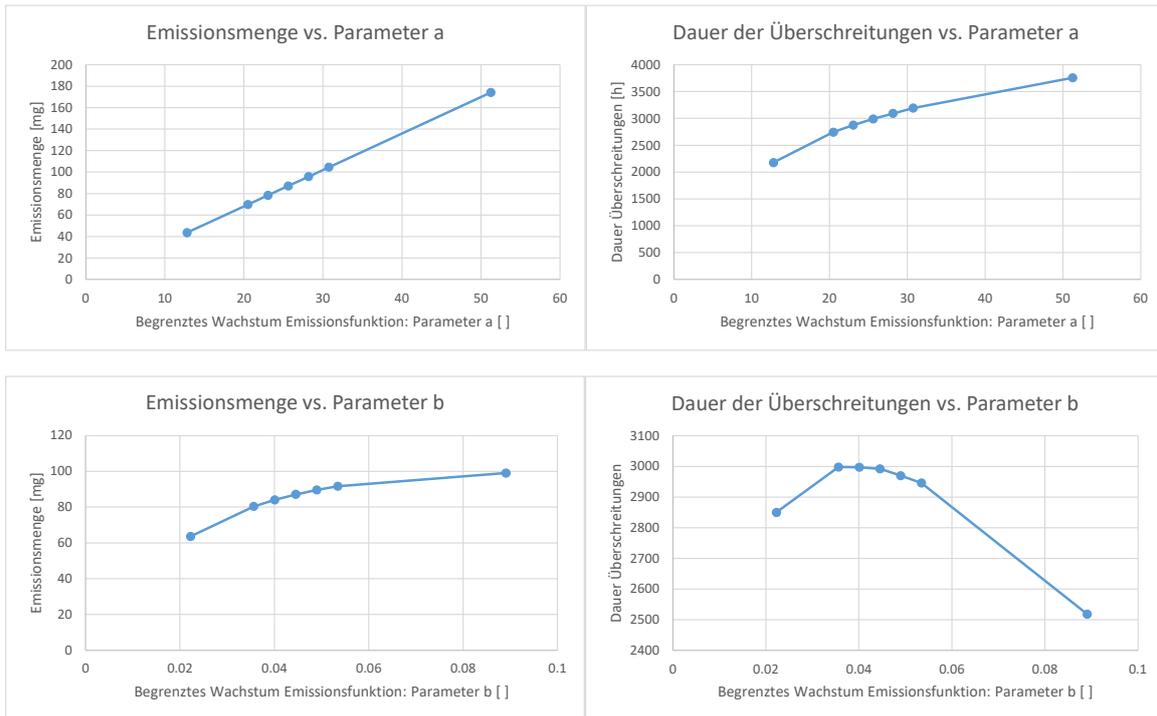


Abbildung 47: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden für den Parameter a_{LG} (oben links) und b_{LG} (unten links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer bezogen auf den Parameter a_{LG} (oben rechts) und Parameter b_{LG} (unten rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.

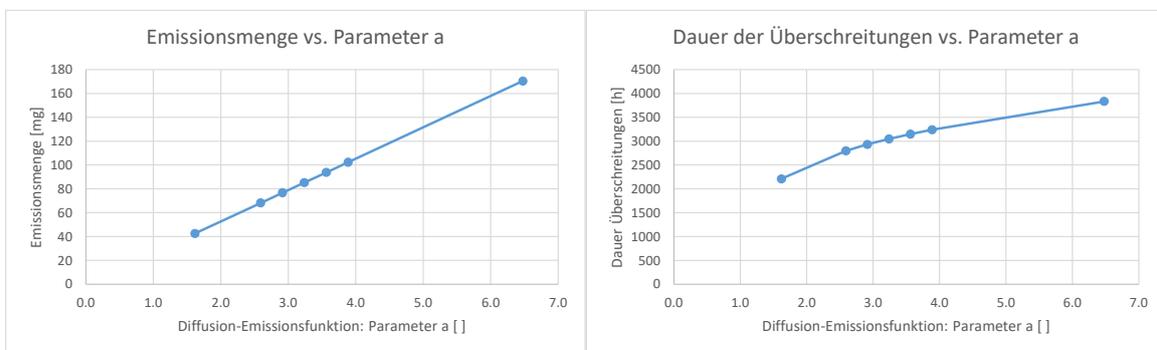


Abbildung 48: Sensitivität der kumulierten Emission von Fassaden bezogen auf den Parameter a_{Diff} (links) sowie Dauer der Überschreitungen im Gewässer bezogen auf den Parameter a_{Diff} (rechts). Der Betrachtungszeitraum umfasst 370 Tage.

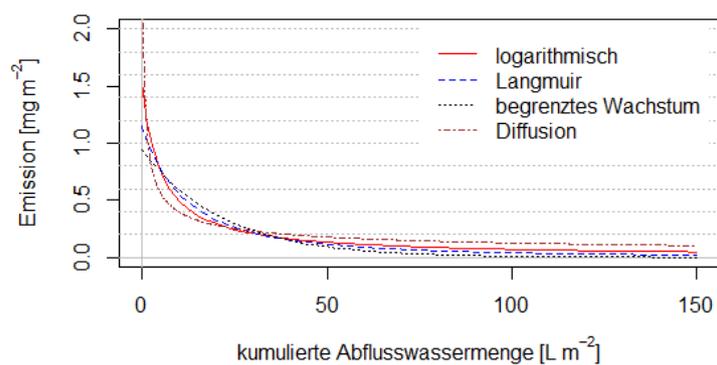


Abbildung 49: Ableitungen der Emissionsfunktionen und ihre Steigung im Ursprung für Terbutryn verkapselt.

Tabelle 28: Ausprägungen der nominal-skalierten Einflussgrößen.

Zahlenwerte	Substanz	Standort	Gewässer	Szenario
-1	Diuron frei	Hamburg	Klein	Land-Szenario Fassade
0	Terbutryn frei	Zürich		Stadt-Szenario Fassade
1	Terbutryn verkapselt	Sevilla	Mittel	Land-Szenario Dach

Tabelle 29: Szenarienmatrix für Sensitivitätsanalyse. Gezeigt sind die Einflussgrößen. Die Substanznamen sind abgekürzt: Df = Diuron frei, Tf = Terbutryn frei, Tv = Terbutryn verkapselt. Die Buchstaben hinter dem Szenarionamen stehen für Fassade (F) oder Dach (D).

Szenario Nr.	Substanz	Standort	Gewässer Klasse	Szenario	Niederschlag [mm]	Niederschlag Varianz [mm ²]	Windstärke [m/s]	Windstärke Varianz	Hauptwindrichtung	Fassadenfläche [m ²]	a char [-]	rchar [l/m ²]	WDR [L]
1	Df	Hamburg	mittel	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	147.081	26.69	56617783
2	Tf	Hamburg	mittel	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	33.898	12.74	56617783
3	Tv	Hamburg	mittel	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	7.301	8.12	56617783
4	Df	Hamburg	klein	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	147.081	26.69	56617783
5	Tf	Hamburg	klein	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	33.898	12.74	56617783
6	Tv	Hamburg	klein	Stadt F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	500000	7.301	8.12	56617783
7	Df	Zürich	mittel	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	147.081	26.69	45277557
8	Tf	Zürich	mittel	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	33.898	12.74	45277557
9	Tv	Zürich	mittel	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	7.301	8.12	45277557
10	Df	Zürich	klein	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	147.081	26.69	45277557
11	Tf	Zürich	klein	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	33.898	12.74	45277557
12	Tv	Zürich	klein	Stadt F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	500000	7.301	8.12	45277557
13	Df	Sevilla	mittel	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	147.081	26.69	30210561
14	Tf	Sevilla	mittel	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	33.898	12.74	30210561
15	Tv	Sevilla	mittel	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	7.301	8.12	30210561
16	Df	Sevilla	klein	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	147.081	26.69	30210561
17	Tf	Sevilla	klein	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	33.898	12.74	30210561
18	Tv	Sevilla	klein	Stadt F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	500000	7.301	8.12	30210561
19	Df	Hamburg	mittel	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	147.081	26.69	14154
20	Tf	Hamburg	mittel	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	33.898	12.74	14154
21	Tv	Hamburg	mittel	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	7.301	8.12	14154
22	Df	Hamburg	klein	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	147.081	26.69	14154
23	Tf	Hamburg	klein	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	33.898	12.74	14154
24	Tv	Hamburg	klein	Land F	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	125	7.301	8.12	14154
25	Df	Zürich	mittel	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	147.081	26.69	11319
26	Tf	Zürich	mittel	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	33.898	12.74	11319
27	Tv	Zürich	mittel	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	7.301	8.12	11319
28	Df	Zürich	klein	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	147.081	26.69	11319
29	Tf	Zürich	klein	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	33.898	12.74	11319
30	Tv	Zürich	klein	Land F	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	125	7.301	8.12	11319
31	Df	Sevilla	mittel	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	147.081	26.69	7553
32	Tf	Sevilla	mittel	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	33.898	12.74	7553
33	Tv	Sevilla	mittel	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	7.301	8.12	7553
34	Df	Sevilla	klein	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	147.081	26.69	7553
35	Tf	Sevilla	klein	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	33.898	12.74	7553
36	Tv	Sevilla	klein	Land F	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	125	7.301	8.12	7553
37	Df	Hamburg	mittel	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	147.081	26.69	
38	Tf	Hamburg	mittel	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	33.898	12.74	
39	Tv	Hamburg	mittel	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	7.301	8.12	

Szenario Nr.	Substanz	Standort	Gewässer Klasse	Szenario	Niederschlag [mm]	Niederschlag Varianz [mm ²]	Windstärke [m/s]	Windstärke Varianz	Hauptwindrichtung	Fassadenfläche [m ²]	a char [-]	rchar [l/m ²]	WDR [L]
40	Df	Hamburg	klein	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	147.081	26.69	
41	Tf	Hamburg	klein	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	33.898	12.74	
42	Tv	Hamburg	klein	Land D	3651	0.1921	4.09	4.6361	W	145.25	7.301	8.12	
43	Df	Zürich	mittel	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	147.081	26.69	
44	Tf	Zürich	mittel	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	33.898	12.74	
45	Tv	Zürich	mittel	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	7.301	8.12	
46	Df	Zürich	klein	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	147.081	26.69	
47	Tf	Zürich	klein	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	33.898	12.74	
48	Tv	Zürich	klein	Land D	4681	0.3091	2.33	2.4736	SW	145.25	7.301	8.12	
49	Df	Sevilla	mittel	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	147.081	26.69	
50	Tf	Sevilla	mittel	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	33.898	12.74	
51	Tv	Sevilla	mittel	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	7.301	8.12	
52	Df	Sevilla	klein	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	147.081	26.69	
53	Tf	Sevilla	klein	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	33.898	12.74	
54	Tv	Sevilla	klein	Land D	2232	0.301	2.694	4.582	SSW	145.25	7.301	8.12	

Tabelle 30: Szenarienmatrix für Sensitivitätsanalyse. Gezeigt sind die Zielgrössen.

Nr.	Dauer Überschreiten gen [h]	Anzahl Überschreiten gen [-]	Durchschn. Konzentration [µg/L]	Abfluss 30 Tage [L]	Emission 30 Tage [mg]	Abfluss 1 Jahr [L]	Emission 1 Jahr [mg]	Abfluss 5 Jahre [L]	Emission 5 Jahre [mg]
1	39916	40	97	816617	7199491	10366016	54601852	50956004	133130309
2	38378	63	29	816617	3246009	10366016	19446905	50956004	41305556
3	35581	106	7.3	816617	1025993	10366016	5272491	50956004	10377120
4	41508	24	887	816617	7199491	10366016	54601852	50956004	133130309
5	40756	29	270	816617	3246009	10366016	19446905	50956004	41305556
6	39500	50	67	816617	1024427	10366016	5270417	50956004	10378604
7	39147	52	89	541580	4863611	6864812	41907966	40749801	120576078
8	37276	76	28	541580	2228749	6864812	15562225	40749801	38025986
9	33979	122	7.1	541580	713531	6864812	4312593	40749801	9636778
10	41128	27	819	541580	4863611	6864812	41907966	40749801	120576078
11	40215	38	260	541580	2228749	6864812	15562225	40749801	38025986
12	38676	61	66	541580	713531	6864812	4312593	40749801	9636778
13	21625	67	77	407980	3763317	4783192	33356497	27189505	103010588
14	19699	73	25	407980	1767746	4783192	13054747	27189505	33601261
15	17012	90	6.4	407980	578828	4783192	3726477	27189505	8651170
16	24807	52	684	407980	3763317	4783192	33356497	27189505	103010588
17	23268	60	223	407980	1767746	4783192	13054747	27189505	33601261
18	21161	66	58	407980	578828	4783192	3726477	27189505	8651170
19	2288	87	0.022	204	1800	2592	13650	12739	33283

Nr.	Dauer Überschreitun gen [h]	Anzahl Überschreitun gen [-]	Durchschn. Konzentration [µg/L]	Abfluss 30 Tage [L]	Emission 30 Tage [mg]	Abfluss 1 Jahr [L]	Emission 1 Jahr [mg]	Abfluss 5 Jahre [L]	Emission 5 Jahre [mg]
20	257	11	0.0075	204	812	2592	4862	12739	10326
21	54	1	0.0018	204	256	2592	1318	12739	2595
22	19154	263	0.24	204	1800	2592	13650	12739	33283
23	8758	227	0.075	204	812	2592	4862	12739	10326
24	1552	56	0.018	204	256	2592	1318	12739	2595
25	2474	92	0.024	135	1216	1716	10477	10187	30144
26	217	16	0.0071	135	557	1716	3891	10187	9506
27	0	0	0.0018	135	178	1716	1078	10187	2409
28	17115	253	0.22	135	1216	1716	10477	10187	30144
29	8251	193	0.071	135	557	1716	3891	10187	9506
30	1789	67	0.018	135	178	1716	1078	10187	2409
31	2461	77	0.02	102	941	1196	8339	6797	25753
32	495	28	0.0064	102	442	1196	3264	6797	8400
33	34	3	0.0016	102	145	1196	932	6797	2163
34	8861	99	0.2	102	941	1196	8339	6797	25753
35	5439	95	0.064	102	442	1196	3264	6797	8400
36	1869	55	0.016	102	145	1196	932	6797	2163
37	6400	170	0.062	7204	30600	73898	75090	358749	108278
38	1297	42	0.015	7204	10034	73898	20865	358749	28574
39	304	5	0.0035	7204	2584	73898	4962	358749	6626
40	24058	238	0.62	7204	30600	73898	75090	358749	108278
41	12841	246	0.15	7204	10034	73898	20865	358749	28574
42	3031	89	0.034	8004	2686	82109	5072	398610	6738
43	6892	167	0.07	6799	29667	81478	77113	453208	113235
44	1560	51	0.017	6799	9788	81478	21338	453208	29720
45	306	7	0.0039	6799	2528	81478	5064	453208	6873
46	22845	238	0.69	6799	29667	81478	77113	453208	113235
47	12449	219	0.17	6799	9788	81478	21338	453208	29720
48	3593	94	0.039	6799	2528	81478	5064	453208	6873
49	5068	92	0.079	3785	21029	51704	67742	291302	103867
50	1696	47	0.021	3785	7416	51704	19139	291302	27554
51	377	13	0.0049	3785	1983	51704	4588	291302	6406
52	11604	95	0.79	3785	21029	51704	67742	291302	103867
53	7666	116	0.21	3785	7416	51704	19139	291302	27554
54	3443	76	0.049	3785	1983	51704	4588	291302	6406

Anhang D. Expositionsklassierung

Expositionsklassierung Diuron frei

Tabella 31: Expositionsklassierung für Diuron frei. Die Bezeichnung F oder D in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach.

Simulationskennwerte				Resultate Simulation				Abgleich Kriterien		
Nr.	Szenario	Standort	Gewässer	Emission (g)	Dauer (h)	Anzahl (-)	Mittl. Konz. (µg/L)	≤ 0 (-)	≤ 1 % (438 h)	≤ 10 % (4380 h)
1	Land D	Hamburg	klein	108.3	24058	238	0.62	Nein	Nein	Nein
2	Land D	Hamburg	mittel	108.3	6400	170	0.06	Nein	Nein	Nein
3	Land D	Sevilla	klein	103.9	11604	95	0.79	Nein	Nein	Nein
4	Land D	Sevilla	mittel	103.9	5068	92	0.08	Nein	Nein	Nein
5	Land D	Zürich	klein	113.2	22845	238	0.69	Nein	Nein	Nein
6	Land D	Zürich	mittel	113.2	6892	167	0.07	Nein	Nein	Nein
7	Land F	Hamburg	klein	33.3	19154	263	0.24	Nein	Nein	Nein
8	Land F	Hamburg	mittel	33.3	2288	87	0.02	Nein	Nein	Ja
9	Land F	Sevilla	klein	25.8	8861	99	0.20	Nein	Nein	Nein
10	Land F	Sevilla	mittel	25.8	2461	77	0.02	Nein	Nein	Ja
11	Land F	Zürich	klein	30.1	17115	253	0.22	Nein	Nein	Nein
12	Land F	Zürich	mittel	30.1	2474	92	0.02	Nein	Nein	Ja
13	Stadt D	Hamburg	klein	734795.2	42146	18	1962.00	Nein	Nein	Nein
14	Stadt D	Hamburg	mittel	734795.2	40907	28	313.00	Nein	Nein	Nein
15	Stadt D	Sevilla	klein	704863.1	26995	45	2489.00	Nein	Nein	Nein
16	Stadt D	Sevilla	mittel	704863.1	24312	60	371.00	Nein	Nein	Nein
17	Stadt D	Zürich	klein	768434.0	42054	19	2228.00	Nein	Nein	Nein
18	Stadt D	Zürich	mittel	768434.0	40691	36	345.00	Nein	Nein	Nein
19	Stadt F	Hamburg	klein	133130.3	41508	24	887.00	Nein	Nein	Nein
20	Stadt F	Hamburg	mittel	133130.3	39916	40	97	Nein	Nein	Nein
21	Stadt F	Sevilla	klein	103010.6	24807	52	684	Nein	Nein	Nein
22	Stadt F	Sevilla	mittel	103010.6	21625	67	77	Nein	Nein	Nein
23	Stadt F	Zürich	klein	120576.1	41128	27	819	Nein	Nein	Nein
24	Stadt F	Zürich	mittel	120576.1	39147	52	89	Nein	Nein	Nein

Expositionsklassierung Terbutryn frei

Table 32: Expositionsklassierung für Terbutryn frei. Die Bezeichnung F oder D in der Spalte Szenario steht für Fassade beziehungsweise Dach.

Simulationskennwerte				Resultate Simulation				Abgleich Kriterien		
Nr.	Szenario	Standort	Gewässer	Emission (g)	Dauer (h)	Anzahl (-)	Mittl. Konz. (µg/L)	≤ 0 (-)	≤ 1 % (438 h)	≤ 10 % (4380 h)
25	Land D	Hamburg	klein	28.6	24058	12841	246.00	Nein	Nein	Nein
26	Land D	Hamburg	mittel	28.6	6400	1297	42.00	Nein	Nein	Nein
27	Land D	Sevilla	klein	27.6	11604	7666	116.00	Nein	Nein	Nein
28	Land D	Sevilla	mittel	27.6	5068	1696	47.00	Nein	Nein	Nein
29	Land D	Zürich	klein	29.7	22845	12449	219.00	Nein	Nein	Nein
30	Land D	Zürich	mittel	29.7	6892	1560	51.00	Nein	Nein	Nein
31	Land F	Hamburg	klein	10.3	19154	8758	227.00	Nein	Nein	Nein
32	Land F	Hamburg	mittel	10.3	2288	257	11.00	Nein	Nein	Ja
33	Land F	Sevilla	klein	8.4	8861	5439	95.00	Nein	Nein	Nein
34	Land F	Sevilla	mittel	8.4	2461	495	28.00	Nein	Nein	Ja
35	Land F	Zürich	klein	9.5	17115	8251	193.00	Nein	Nein	Nein
36	Land F	Zürich	mittel	9.5	2474	217	16.00	Nein	Nein	Ja
37	Stadt D	Hamburg	klein	193910.1	42146	41424	25.00	Nein	Nein	Nein
38	Stadt D	Hamburg	mittel	193910.1	40907	39741	46.00	Nein	Nein	Nein
39	Stadt D	Sevilla	klein	186986.5	26995	25407	49.00	Nein	Nein	Nein
40	Stadt D	Sevilla	mittel	186986.5	24312	22216	65.00	Nein	Nein	Nein
41	Stadt D	Zürich	klein	201685.5	42054	41321	29.00	Nein	Nein	Nein
42	Stadt D	Zürich	mittel	201685.5	40691	39156	56.00	Nein	Nein	Nein
43	Stadt F	Hamburg	klein	41305.6	41508	40756	29.00	Nein	Nein	Nein
44	Stadt F	Hamburg	mittel	41305.6	39916	38378	63	Nein	Nein	Nein
45	Stadt F	Sevilla	klein	33601.3	24807	23268	60	Nein	Nein	Nein
46	Stadt F	Sevilla	mittel	33601.3	21625	19699	73	Nein	Nein	Nein
47	Stadt F	Zürich	klein	38026.0	41128	40215	38	Nein	Nein	Nein
48	Stadt F	Zürich	mittel	38026.0	39147	37276	76	Nein	Nein	Nein

Anhang E. COMLEAM-Bericht – Beispiel



Result Summary: Dynamic Calculation

OVERVIEW

This document contains calculation settings and an overview of the results for the calculation with title **Terbutryn** simulation with **Zuerich_Wetter** at **Country_OECD_building.csv** (Result ID: 8). Further analysis can be conducted using the raw result data, available in csv format through the COMLEAM user interface in the view 'Reports'.

Geometry: **Country_OECD_building.csv**

Weather dataset: **Zuerich_Wetter**

Simulated time period: **01. January 2011 to 31. December 2015** (exactly: 18256 22H 0M 0S)

Substance: **Terbutryn**, contained in the building material **Fassade mit verkapselten Substanzen**.

Emission function: **Log Emf Terbutryn verkapselt**

Surface water class: **Surface water class small (S)** (range: 0.01 $\left[\frac{m^3}{s}\right]$ to 0.1 $\left[\frac{m^3}{s}\right]$).

Average target compartment concentration: **0.0018** $\left[\frac{mg}{L}\right]$

Generated: 2018-03-22 15:39:55

1

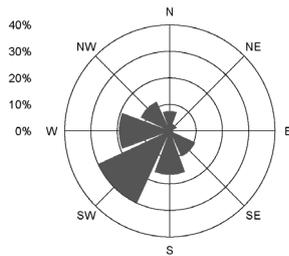


Figure 1: Relative rain amount by wind heading

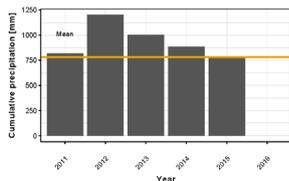


Figure 2: Grouped rain amounts in mm.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

3

INPUT DATA & SETTINGS

GEOMETRY

A total of **1** buildings are contained in the dataset.

The total area contained in the geometry dataset is **125** $[m^2]$. This area contributes to resulting runoff water and substance emissions.

The total area covered with the simulated building material **Fassade mit verkapselten Substanzen** was **125** $[m^2]$. This means there is a factor of 1 between the area containing the substance and area contributing to diluting runoff water. This factor varies however, depending on meteorological conditions (wind direction) and the surfaces exposed to precipitation under these conditions.

The combined area by exposition, both the total and the area covered with the substance in question, can be seen in table 1. Please note: The components are grouped into the cardinal and half-cardinal directions (N, NE, E, SE, S, SW, W, NW). Vertical components always receive rain and thus contribute to dilution under all meteorological circumstances. This, combined with the prevailing weather direction (see figure 1), allows for an estimate on the impact of dilution.

Table 1: Total component area by exposition

Exposition [°]	Total area $[m^2]$	Area containing substance $[m^2]$
N	19	19
E	44	44
S	19	19
W	44	44

WEATHER

Weather data supplies wind direction / speed and precipitation in a resolution of one hour. The following characterization of the weather data helps to validate the calculation results.

Total precipitation during the simulated period: **4681** mm.

The main weather direction is displayed in figure 1. This indicates the direction where most of the precipitation came from. Components facing the main weather direction can be assumed to receive the most wind driven rain (WDR) and thus produce most of the runoff.

Precipitation grouped by the interval (days, weeks, months) best matching the current simulation run is shown in figure 2. The average precipitation during the simulated period is also shown. It can be expected that WDR and runoff are higher during intervals with higher precipitation compared to intervals with lower precipitation.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

2

EMISSION FUNCTION & WDR PARAMETERS

MATERIAL PROPERTIES

The calculated building material was **Fassade mit verkapselten Substanzen**. This material belongs to the material type **Render matie**. Material types describe distinct properties like runoff coefficients that losses the amount of runoff due to losses on the surface (through evaporation, splashes and diffusion of water into the material).

Calculated substance: **Terbutryn**, initial substance content c_0 : **1'400** $\left[\frac{mg}{m^2}\right]$

While only one substance in a specific material can be simulated, the different material subtypes that are present on a component influence the resulting runoff water. Depending on how much of a component is covered with different materials, a combined runoff coefficient is calculated for the specific component. The material subtypes in the geometry with their respective runoff coefficients are given in table 2.

Table 2: Material subtypes defined in the geometry

Material subtype	Runoff coefficient
Render matie	0.9

The combined runoff coefficient by component resulting from the materials present on its surface is shown in table 3. This value is the sum of the percentage of the component covered with a material subtype multiplied by its specific runoff coefficient. For each component, runoff and thus emissions were lessened by the coefficients shown.

Table 3: Combined runoff coefficients by exposition

Exposition	Combined runoff coefficient
N	0.9
E	0.9
S	0.9
W	0.9

Generated: 2018-03-22 15:39:55

4

EMISSION FUNCTION

The emission function used was of type Log.

Name: Log EmF Terbutryn verkapsett

Description: ****

Notation: $E_{Cum} = a \cdot \ln(1 + b \cdot q_{Cum})$

The parameters of the function used are displayed in table 4

Table 4: Emission function parameters

Parameter	Value
a	7.301
b	0.211
q ₀	1400.000

The plotted function can be seen in figure 3.

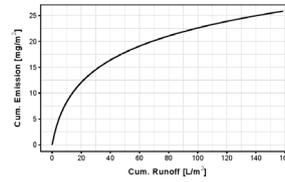


Figure 3: Emission function used in this calculation (type: Log)

WDR PARAMETERS

Wind driven rain (hourly wall spill index I_{WS}) is calculated using equation 1 as stated in ISO 15927-3.

$$I_{WS} = \frac{2}{9} \cdot v + r^{0.9} \cdot \cos(D - \beta) + c_r + c_t + O + W \quad (1)$$

where:

- v Hourly mean wind speed $\left[\frac{m}{s}\right]$
- r Hourly rainfall total [mm]
- D Hourly mean wind direction from north $[\circ]$
- β Wall orientation relative to north $[\circ]$
- c_r Terrain roughness factor
- c_t Topography factor
- O Obstruction factor
- W Wall factor (base value, individually set per component)

IMMISSIONS

Immissions were calculated for a surface water with a flow rate reached or exceeded on 347 days per year of $Q_{347} = 0.1 \left[\frac{m^3}{s}\right]$ assuming direct discharge of all buildings sequentially into the surface water.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

5

Generated: 2018-03-22 15:39:55

6

RESULTS

The following figures show a summary of the result data and are intended to serve as a general overview. Figures for WDR, runoff and emissions from the surfaces in the geometry as well as the resulting substance concentration in the receiving compartment are displayed here.

Please note: The result data has been aggregated on geometry level, individual buildings are not directly visible in the results. Complete result data, containing detailed results per component, is however available in csv format for further analysis (through COMLEAM's 'Reports' view).

WIND DRIVEN RAIN

WDR is only evaluated for vertical components, all non-vertical components receive the actual rainfall. Wind driven rain results can be seen from different perspectives. On the one hand, it is dependent on the geographical properties and meteorological data, on the other hand, it is highly dependent on the building's geometry.

The following figures cover both aspects. The WDR amounts on the components by exposition is shown in figure 4. The wind directions that generate most WDR can easily be identified like this.

Cumulative wind driven rain for each exposition is shown in figure 5.

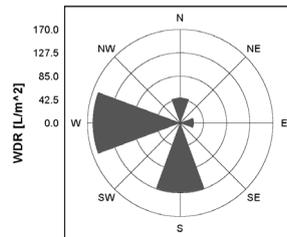


Figure 4: WDR amounts by heading.

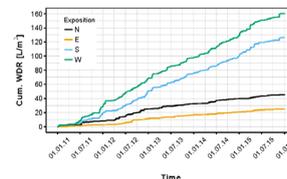


Figure 5: Cumulative WDR, individual facade expositions.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

7

Generated: 2018-03-22 15:39:55

8

RUNOFF

Runoff results from VDR on vertical components or from rain on horizontal components and is influenced by material properties (runoff coefficients). The values given here are in [L], representing the total runoff from a building or – in case of several buildings – the whole geometry. Only real buildings that also produce emissions are considered. "Virtual" buildings (i.e. open plots of land) containing only substance-free surfaces are omitted. However, these surfaces contribute runoff water as well and result in dilution in the target compartment.

Cumulative runoff for each component of a single building or all components grouped into the exposed directions for a larger geometry is shown in figure 6. This graph reflects the prevailing wind direction as well as the respective total area exposed in a certain cardinal direction.

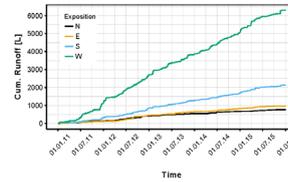


Figure 6: Cumulative facade runoff, individual facade exposures.

SUBSTANCE EMISSIONS & IMMISSIONS

The resulting total emissions from the geometry, respecting the percentage of an individual component's area covered by the material simulated and runoff coefficients for the building materials in the geometry is shown in figure 7. The emissions are given in [mg], representing the cumulative mass flow from an individual building or an aggregated geometry in the case of more than one buildings.

A detailed analysis showing the emissions by exposition is presented in figure 8. Furthermore, the substance concentration in the runoff water is given in figure 9. This plot shows the substance concentrations before any dilution at the 'dripping edge' of the components and can be used to assess the effect of dilution by comparing it with target compartment concentrations [%].

The immission into the target compartment is considered separately by building. Regarding substance concentrations in the target compartment, the results are displayed in figure 10. Taken into account are $Q_{44} = 0.1 \frac{m^3}{s}$ (the flow rate reached or exceeded on 347 days per year) of the surface water and the total runoff from buildings and horizontal surfaces in the defined geometry, including untreated surfaces contributing to dilution. The building with the highest id is last in the order of inlets, so the resulting total concentration including the water contributing to dilution can be assessed at the inlet of this last building.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

9

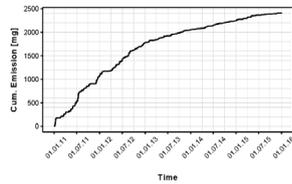


Figure 7: Cumulative emissions

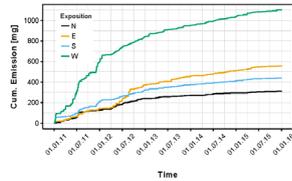


Figure 8: Cumulative emissions for individual facade exposures.

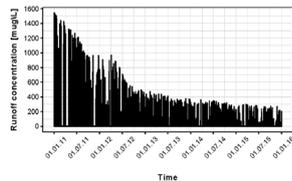


Figure 9: Concentration for Terbutryn in the runoff of the geometry.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

11

Generated: 2018-03-22 15:39:55

10

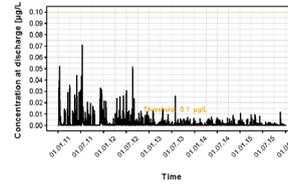


Figure 10: Concentrations for Terbutryn in the target compartment.

ENVIRONMENTAL RISK

The threshold used is from Switzerland's Water Protection Ordinance (GSchV), which states a limit of $0.1 \frac{\mu g}{L}$ per substance.

Hours above threshold: 0

Number of events: 0 (An event is an arbitrarily long period where the concentration in the target compartment exceeds the limit value.)

Average concentration: $0.0019 \frac{\mu g}{L}$

The distribution of target compartment concentrations is given in 11. Counts are shown on a logarithmic scale. If there are more than one inlets (i.e. several buildings), the last inlet is considered to evaluate the concentration.

Generated: 2018-03-22 15:39:55

12

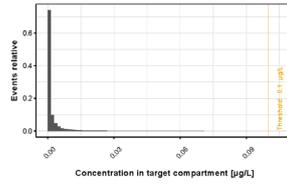
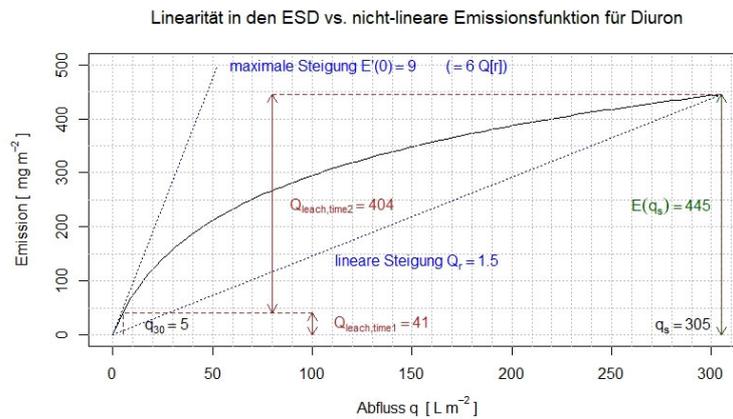


Figure 11: Distribution of substance concentrations in the target compartment.

Anhang F. Daten zu Abbildung 17



Parameter der Emissionsfunktion

$$E = a_{\text{char}} \cdot \ln\left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}}\right)$$

$$a_{\text{char}} = 147 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

$$q_{\text{char}} = 27 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximaler Abfluss

$$q_s = 305 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximale Emission

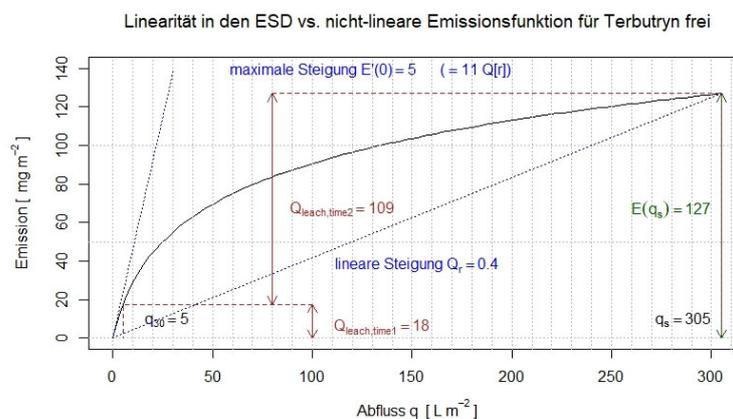
$$E(q_s) = 445 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Abfluss nach 30 Tagen

$$q_{30} = 5 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Emission nach 30 Tagen

$$E_{30} = 41 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$



Parameter der Emissionsfunktion

$$E = a_{\text{char}} \cdot \ln \left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}} \right)$$

$$a_{\text{char}} = 34 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

$$q_{\text{char}} = 13 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximaler Abfluss

$$q_s = 305 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximale Emission

$$E(q_s) = 127 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

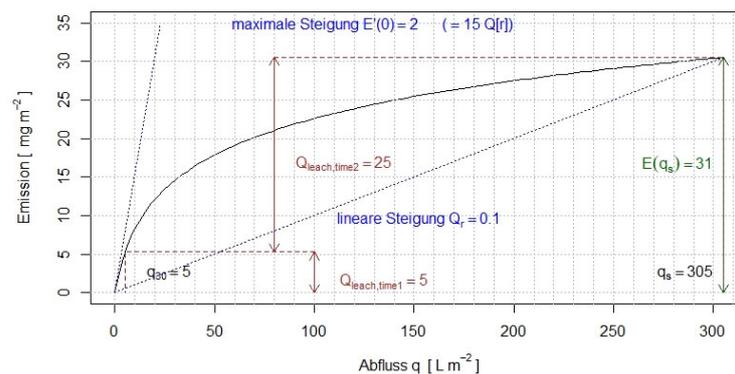
Abfluss nach 30 Tagen

$$q_{30} = 5 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Emission nach 30 Tagen

$$E_{30} = 18 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Linearität in den ESD vs. nicht-lineare Emissionsfunktion für Terbutryn verkapselt



Parameter der Emissionsfunktion

$$E = a_{\text{char}} \cdot \ln \left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}} \right)$$

$$a_{\text{char}} = 7.3 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

$$q_{\text{char}} = 8 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximaler Abfluss

$$q_s = 305 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Maximale Emission

$$E(q_s) = 31 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Abfluss nach 30 Tagen

$$q_{30} = 5 \left[\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$

Emission nach 30 Tagen

$$E_{30} = 5 \left[\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \right]$$