



Kurzfassung des Abschlussberichtes

Zuwendungsempfänger:

Technische Hochschule Ostwestfalen-
Lippe, Fachbereich 8, Wasser- und
Abwassertechnologie

Förderbereich 6 des Programms:

Ressourceneffiziente Abwasser-
beseitigung NRW II

Vorhabensbezeichnung:

**Erfassung und weitergehende Charakterisierung der Fraktion
AFS-fein im Zu- und Ablauf von dezentralen Anlagen zur Behandlung
des Niederschlagswassers von Verkehrsflächen
– AFS-fein Charakterisierung –**

Berichtszeitraum: 01.05.2018 – 30.04.2020

**Prof. Dr. Joachim Fettig
Prof. Dr. Martin Oldenburg
Dipl.-Ing. Volker Pick**

**Technische Hochschule Ostwestfalen-Lippe
FB Umweltingenieurwesen und Angewandte Informatik
FG Wassertechnologie**

Höxter, 24. Juli 2020

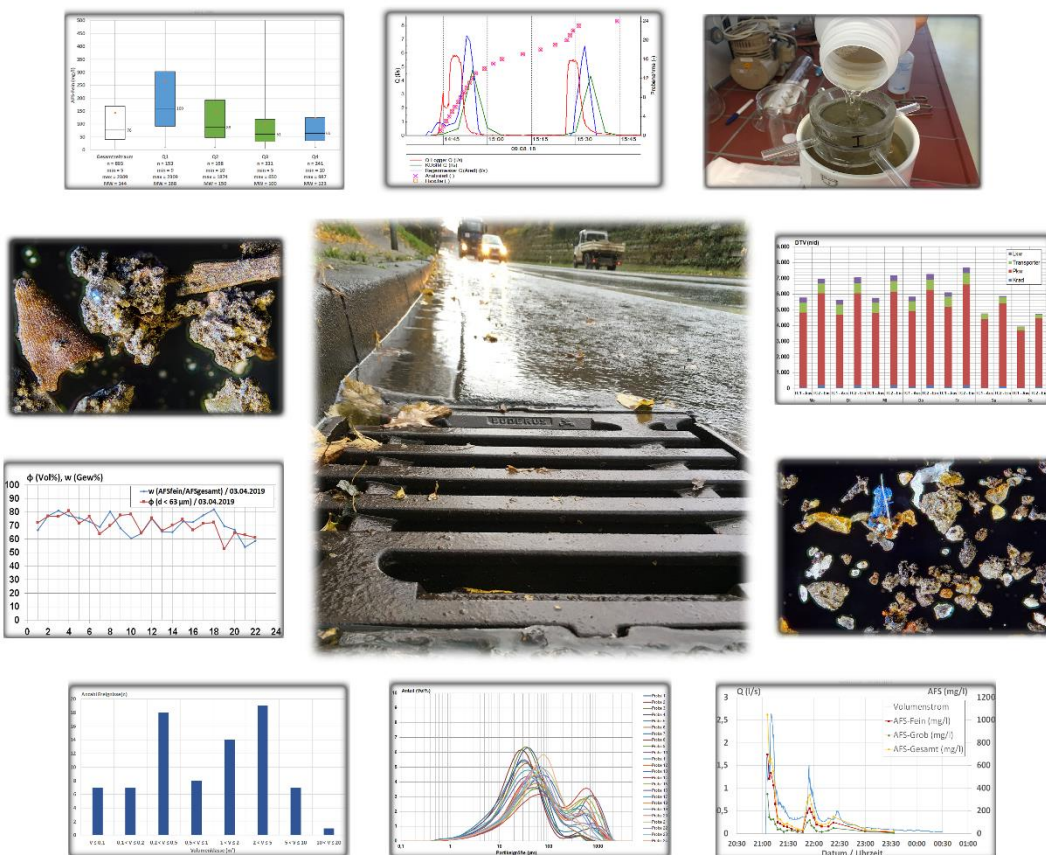
Danksagung

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Ministeriums für Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz (MULNV) des Landes Nordrhein-Westfalen im Rahmen des Programms Ressourceneffiziente Abwasserbeseitigung NRW (ResA II) gefördert. Dafür möchte sich die Technische Hochschule Ostwestfalen-Lippe (TH OWL) ausdrücklich bedanken.

Ein weiterer Dank geht an Dipl.-Ing. Patrick Wilhelm und Prof. Dr.-Ing. Ulrich Müller aus dem Fachbereich 4 Life Science Technologies der TH OWL für ihre Unterstützung bei der Messung von Partikelgrößenverteilungen sowie an M.Sc. Paul Eisentraut von der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) für die Untersuchung von Feststoffproben auf Reifenabrieb.

Darüber hinaus dankt die TH OWL der Stadt Höxter für ihre Unterstützung des praktischen Anlagenbetriebs am Versuchsstandort im Stadtgebiet.

Die Verantwortung für den Inhalt dieses Berichts liegt bei den Autoren.



Inhaltsverzeichnis

1	Problemstellung, Veranlassung, Aufgabenstellung	1
2	Stand des Wissens	2
2.1	Partikuläre Stoffe im Niederschlagswasser von Verkehrsflächen	2
2.2	Reifen- und Straßenabrieb	3
3	Beschreibung des Standortes	4
4	Methodik	5
4.1	Datenerfassung und -verarbeitung	5
4.2	Analytik	6
4.3	Probenahmestrategie	8
5	Zusammenfassung der Ergebnisse	9
5.1	Erarbeitung eines Verfahrens zur Probenaufbereitung für die Mikroplastikbestimmung durch Raman-Spektroskopie	9
5.2	Hydrologie und Hydraulik	9
5.3	Meteorologie	11
5.4	Anzahl und Dauer der beprobten Ereignisse	12
5.5	Verkehrsaufkommen DTV	12
5.6	Wasserqualitätsparameter	13
5.7	Untersuchungen zur Langzeitstabilität von Proben.....	20
5.8	Korrelation zwischen Trübungswerten und AFS-Konzentrationen	20
5.9	Abflussgewichtete Konzentrationen und spezifischer Stoffabtrag	21
5.10	Empfehlungen für die Auswahl von Prüfmedien zur Prüfung von dezentralen Abscheidern	22
5.11	Schlussfolgerungen hinsichtlich der Leistungsgrenzen von Absetzsystemen	22
5.12	Ursache-Wirkungsbeziehungen ausgewählter Randbedingungen auf die stoffliche Belastung des Straßenabflusses.....	24
6	Kernbefunde.....	26
7	Literatur	27

Abbildungsverzeichnis

- Abbildung 1: Photo des Anlagenstandortes; Blickrichtung stadteinwärts
- Abbildung 2: Quartalssummenwerte der Niederschlagshöhen am Standort Höxter im Zeitraum 2018 – 2020 im Vergleich zum langjährigen Mittel (2005 – 1017)
- Abbildung 3: Häufigkeitssummen der abflusswirksamen Volumina im Zeitraum 07/2018 – 03/2020 im Vergleich zum langjährigen Mittel, berechnet aus Regenmesser-aufzeichnungen unter Annahme eines Abflussbeiwertes $\psi = 0,7$
- Abbildung 4: Prozentuale Windrichtungsverteilung am Standort der TH OWL im Zeitraum 01.01.2018 – 31.03.2020, berechnet aus Zehnminutenmittelwerten
- Abbildung 5: Durchschnittliches tägliches Verkehrsaufkommen für beide Fahrtrichtungen in den vier Fahrzeugklassen am Beprobungsstandort für das Jahr 2019
- Abbildung 6: Statistische Auswertung des Parameters AFS63 für den gesamten Beprobungszeitraum und die einzelnen Quartale
- Abbildung 7: Verlauf der Parameter AFS63, AFS_{grob} und AFS_{gesamt} während eines Ereignisses
- Abbildung 8: Messwerte aus der Bestimmung der Partikelgrößenverteilung eines Niederschlagsereignisses vom 04.04.2019; Links: Dichteverteilungskurve; Rechts: Summenverteilungskurve
- Abbildung 9: Massenanteile AFS63/AFS_{gesamt} und Volumenanteile der Partikel mit einem Durchmesser von $d < 63 \mu\text{m}$ während zweier Niederschlagsereignisse; Links: Ereignis vom 03.04.2019; Rechts: Ereignis vom 11.07.2019
- Abbildung 10: Materialproben aus einer Straßendecke (links) und aus der Lauffläche eines PKW-Reifens (rechts); Vergrößerung 50x; erfasst mittels Fokus-Stacking
- Abbildung 11: Fraktionen aus der Nasssiebung einer Niederschlagswasserprobe; Links: Fraktion $25 \mu\text{m} < d < 63 \mu\text{m}$; Rechts: Eindampfrückstand aus Fraktion $d < 25 \mu\text{m}$; Vergrößerung 50x; erfasst mittels Fokus-Stacking
- Abbildung 12: Abflussgewichtete mittlere Konzentrationen an AFS63 und AFS_{grob} für die einzelnen Quartale und den Gesamtzeitraum
- Abbildung 13: Mittlere Partikelgrößenverteilungen, quartalsweise und im gesamten Zeitraum
- Abbildung 14: Berechnete Wirkungsgrade eines Absetzsystems für AFS, AFS63 und Millisil W4 bei 10°C

Tabellenverzeichnis

- Tabelle 1: Verkehrszählungsdaten für 2010 (Straßen NRW)
- Tabelle 2: Zusammenfassende Übersicht über die hydrologischen und hydraulischen Daten der einzelnen Betriebsphasen
- Tabelle 3: Übersicht über die Anzahl der beprobten Niederschlagsereignisse

1 Problemstellung, Veranlassung, Aufgabenstellung

Mehrere Studien zur Behandlung des Niederschlagsabflusses von Verkehrsflächen in dezentralen und semizentralen Systemen haben gezeigt, dass diese unter realen Bedingungen nur eine begrenzte Wirksamkeit für die Abtrennung partikulärer Stoffe aufweisen (Barjenbruch und Kober, 2015; Fettig et al., 2017; Grotehusmann und Kornmayer, 2018). Als Ursachen werden einerseits die Art und Größenverteilung der Partikel und andererseits die Dynamik der Abflussereignisse angesehen.

Mit diesem Projekt sollte der Kenntnisstand über die Art und Größenverteilung der in Straßenabflüssen vorkommenden Feststoffe, insbesondere der Fraktion AFS-fein, verbessert werden. In Anlehnung an die Arbeits- und Merkblattreihe DWA-A/M 102 wird diese Fraktion im Folgenden als AFS63 bezeichnet. Dazu erfolgte eine zeitproportionale, hoch aufgelöste Entnahme von Proben aus einem Straßeneinlauf, verbunden mit einer Messung des Durchflusses in Zeitschritten von 10 sec. Die Feststoffe wurden zunächst mit den Parametern AFS und AFS63 und weitergehend über ihre Größenverteilung und die Parameter Dichte und organischer Anteil charakterisiert. Dies sollte einen Vergleich mit den bei Laboruntersuchungen eingesetzten Prüfmedien ermöglichen, und es sollten Hinweise für die weitere Optimierung von Abscheidern gewonnen werden.

Darüber hinaus sollte für die Bestimmung von anthropogenen organischen Partikeln (insbesondere Reifenabrieb) in Straßenabflüssen eine Methodik erarbeitet und angewendet werden, um den Abtrag dieser Feststoffe von Verkehrsflächen besser zu verstehen.

Es wurde außerdem angestrebt, Ursache-Wirkungs-Beziehungen zwischen der stofflichen Belastung des Straßenabflusses und der Intensität und Häufigkeit des Niederschlags sowie weiteren meteorologischen Parametern zu ermitteln. Auch die Verkehrsstärke am Untersuchungsstandort wurde kontinuierlich gemessen und in die Auswertung einbezogen.

Auf die ursprünglich vorgesehene Beprobung eines dezentralen Abscheiders wurde in Absprache mit dem Auftraggeber verzichtet, um mit den vorhandenen Probenehmern eine höhere zeitliche Auflösung zu erreichen und auch längere Regenereignisse erfassen zu können. Die Ergebnisse der Untersuchungen werden in diesem Bericht zusammenfassend dargestellt.

2 Stand des Wissens

2.1 Partikuläre Stoffe im Niederschlagswasser von Verkehrsflächen

Die AFS-Konzentrationen in Straßenabflüssen können älteren Untersuchungen zufolge in einem Bereich von 30-700 mg/l variieren (Dierschke, 2014). Der AFS63-Anteil wurde dabei i.d.R. nicht getrennt bestimmt; erst in jüngeren Studien wird er mit erfasst. So geben Grotehusmann und Kornmayer (2018) auf der Basis von Messdaten aus der Literatur folgende Mittelwerte an: $C_{AFS} = 160$ mg/l und $C_{AFS,63} = 110$ mg/l entsprechend einem Anteil AFS63/AFS von 69%. Rommel und Helmreich (2018) ermittelten für eine Straße in München zwar niedrigere Medianwerte von $C_{AFS} = 82$ mg/l und $C_{AFS,63} = 73$ mg/l, dafür aber mit 89% einen höheren Feinanteil, der im Jahresverlauf variierte und im Winter am höchsten war.

Winston und Hunt (2017) bestimmten Partikelgrößenverteilungen in Straßenablaufproben und fanden Partikelgrößen im Bereich 31 – 144 μm mit einem Medianwert von $d_{50} = 65$ μm . Herr und Sansalone (2015) ermittelten den Medianwert aus mehreren Proben zu $d_{50} = 85$ μm mit einer Standardabweichung von ± 76 μm , und Charters et al. (2015) fanden d_{50} -Werte, die zwischen 12 μm und 103 μm lagen.

Der sogenannte First-Flush Effekt, d.h. das Auftreten hoher AFS-Konzentrationen zu Beginn eines Abflussereignisses, wurde in älteren Literaturstellen umstritten diskutiert (Sun et al., 2015). Dagegen beobachteten Liu et al. (2019) einen deutlichen First-Flush Effekt bei fünf Ereignissen mit einer mittleren AFS-Konzentration von 149 mg/l. Einen solchen Effekt bestätigen auch Daten von Grüning und Schmitz (2018) aus der Untersuchung von Straßenablaufwasser mit Hilfe von Online-Trübungsmessungen.

Wie Dierschke (2014) aus Literaturdaten folgerte, sollte es einen Zusammenhang zwischen der Verkehrsstärke und der stofflichen Belastung von Verkehrsflächen geben. Systematische Untersuchungen von Straßenabflüssen mit dem Ziel, Ursache-Wirkungs-Beziehungen zu ermitteln, liegen aber bisher kaum vor.

Bezüglich der Wirksamkeit der Abtrennung von Partikeln aus Straßenabflüssen sind sowohl Absetz- als auch Filtersysteme untersucht worden, wobei Absetzanlagen den überwiegenden Anteil darstellen. Dabei zeigte sich, dass die Wirkungsgrade von semi- und dezentralen Anlagen unter realen Bedingungen erheblich geringer waren, als es die Ergebnisse von Laboruntersuchungen der Anlagen mit verschiedenen Prüfmedien wie beispielsweise Millisil W 4 nach dem DIBt-Verfahren erwarten ließen. Aus der Auswertung von Daten verschiedener Regenklärbecken wurden Medianwerte des Konzentrationswirkungsgrades von 50% bzw. 37,5% für die Parameter AFS bzw. AFS63 bei maximalen Oberflächenbeschickungen von $q_A = 0,6 - 19$ m/h abgeleitet (Grotehusmann und Kornmayer, 2018). Den gleichen Medianwert von 37% ermittelten Rommel und Helmreich (2018) für den AFS63-Wirkungsgrad eines Absetzbeckens, allerdings betrug die Oberflächenbeschickung dabei lediglich $q_A = 0,4$ m/h.

Ein Grund für die begrenzten Wirkungsgrade unter realen Bedingungen könnten die Größe und Dichte der Partikel sein. Nyström et al. (2019) zeigten in Laborversuchen, dass der Wirkungsgrad für die AFS-Abtrennung von 40% auf über 90% erhöht werden kann, wenn dem Straßenablauf ein Flockungsmittel zugegeben wird.

2.2 Reifen- und Straßenabrieb

Nach der Konsortialstudie des Fraunhofer-Instituts UMSICHT stellt Reifenabrieb mit ca. 101.500 t/a den größten Anteil der Mikroplastikmenge von rund 330.000 t/a dar, die in Deutschland jedes Jahr in die Umwelt eingetragen wird (Bertling et al., 2018). Reifen bestehen aus Kunst- und Naturkautschuk und enthalten 35 – 40% Füllstoffe (vor allem Ruß), außerdem Mineralöle, Schwefel und Zinkoxid (Baumann und Ismeier, 1998). Die Dichte von Gummi wird mit $1,15 - 1,18 \text{ g/cm}^3$ angegeben (Kole et al., 2017), allerdings gibt es Hinweise, dass Reifenabrieb sehr rasch Aggregate mit Fahrbahnabrieb und anderen Partikeln auf der Fahrbahn bildet (Panko et al., 2012; Hartmann et al., 2019).

Nach Wagner et al. (2018) soll der Reifenabrieb auf deutschen Autobahnen bei ca. 48.000 t/a liegen und sich auf die Kompartimente Straßenbankette, Oberflächen-gewässer (direkter Abfluss mit), Straßenabläufe und Luft (Verfrachtung als Staub) aufteilen. Reifenpartikel sind schon in der Straßenbankette nachgewiesen worden (Panko et al., 2012). Wik und Dave (2009) erstellten einen Überblick über Konzentrationen von Reifenabrieb im Straßenablauf, die anhand verschiedener Markierungssubstanzen ermittelt worden waren. Die Daten variierten stark und lagen im Bereich $12 - 179 \text{ mg/l}$. In Siedlungen mit Mischkanalisation sollte Reifenabrieb auch im Kläranlagenzufluss zu finden sein. Dies konnten Enfrin et al. (2019) jedoch nicht bestätigen.

Auch der Abrieb von der Fahrbahnoberfläche trägt zur Feststofffracht im Straßenablauf bei, abhängig von der Art des Materials und der Beanspruchung. Ein Leitparameter ist bislang nicht identifiziert worden (Dühring et al., 2004). Bertling et al. (2018) geben den Anteil an Bitumenabrieb in Deutschland mit 18.800 t/a an. Nach Ntziachristos und Boulter (2016) besteht der Abrieb von Asphaltstraßen zu 5 – 10% aus Bitumen und zu 90 – 95% aus Gestein. Zusammen mit der atmosphärischen Deposition stellt er auch mengenmäßig einen Partner für die Heteroagglomeration von Reifenabrieb dar.

Mehrere Untersuchungen haben sich mit der Frage befasst, wie hoch die spezifischen Abriebmengen pro Fahrzeugkilometer (Fkm) sind. Sie kommen bei Reifenabrieb auf $69 - 107 \text{ mg/Fkm}$ für PKWs und 371 mg/Fkm für LKWs und bei Fahrbahnabrieb auf $4 - 150 \text{ mg/Fkm}$ für PKWs und bis zu 783 mg/Fkm für LKWs (Nielsen et al., 2003; Luhane et al., 2004; Ntziachristos und Boulter, 2016). In einer neueren Arbeit beziffern Gehrke und Bertling (2020) den spezifischen Reifenabrieb auf $53 - 200 \text{ mg/Fkm}$ für PKWs und 1500 mg/Fkm für schwere LKWs. Bezüglich der Partikelgrößen von Reifenabrieb liegen unterschiedliche Daten vor: Nach Kole et al. (2017) existiert eine Größenklasse im Bereich $1 - 25 \mu\text{m}$ und eine Klasse ultrafeiner Teilchen im Bereich $30 - 60 \text{ nm}$. Kreider et al. (2010) nennen einen Größenbereich von $5 - 120 \mu\text{m}$ mit einem Medianwert von $d_{50} = 75 \mu\text{m}$, und Ntziachristos und Boulter (2016) geben d_{50} -Werte von $65 \mu\text{m}$ für PKWs und $80 \mu\text{m}$ für LKWs an.

Zur Analytik von Mikroplastik in Straßenablaufwasser gibt es bisher kaum Erfahrungen. Neue Veröffentlichungen belegen, dass spektroskopische Methoden im Reflexions-Modus für die Erfassung von Reifenabrieb ungeeignet sind, weil die Rußteilchen im Gummi das IR-Licht weitgehend absorbieren (Borg Olesen et al., 2019). Eisentraut et al. (2018) konnten zeigen, dass Reifenabrieb mit der Thermo-Extraktion-Desorption-GC-MS bis zu einer unteren Erfassungsgrenze von $0,23 \mu\text{g}$ bestimmt werden kann. Die Erfassung anhand der Leitsubstanzen Zink oder Schwefel war bislang nicht erfolgreich.

3 Beschreibung des Standortes

Die Probenahme des von der Verkehrsfläche abfließenden Niederschlagswassers erfolgte an einem Straßeneinlauf an der B64, Ortsausfahrt Höxter Richtung Godelheim in Höhe des Kreuzungsbereiches Godelheimer Straße/Stummrige Straße. Die Koordinaten des Straßeneinlaufes im Bezugssystem ETRS89 lauten: Rechtswert = 32U 526131; Hochwert = 5735536. In Abbildung 1 ist ein Photo des Kreuzungsbereiches in Blickrichtung stadteinwärts mit Kennzeichnung des Schaltschrankes und des Straßeneinlaufes dargestellt. Der gesamte Bereich weist beidseitig Bewuchs mit Büschen und kleineren Bäumen auf, der zu einem entsprechenden Eintrag natürlicher organischer Substanz führt. Die an den Straßeneinlauf angeschlossene Fläche beginnt in Blickrichtung hinter der rechts im Ampelbereich zu erkennenden Verkehrsinsel. Dafür wurde eine Fläche von $A_{red} = 420 \text{ m}^2$ ermittelt, die auf der Basis der gemessenen Höhendaten der Neigungsgruppe 3 gemäß DWA-Arbeitsblatt A 118 zuzuordnen ist.



Abbildung 1: Photo des Anlagenstandortes; Blickrichtung stadteinwärts

In Tabelle 1 sind die Ergebnisse von Verkehrszählungen für das Jahr 2010 aufgeführt, die von Straßen NRW zur Verfügung gestellt worden sind. Demnach beträgt der durchschnittliche tägliche Verkehr (DTV) rund 12.100 Kraftfahrzeuge, und die Fläche ist gemäß DWA – A 102 der Belastungskategorie II „mäßig belastet“, Gruppe V2b zuzuordnen. Bedingt durch Verzögerungs- und Beschleunigungsvorgänge aufgrund des Ampelbetriebes ist mit erhöhtem Abrieb von Reifen zu rechnen.

Tabelle 1: Verkehrszählungsdaten für 2010 (Straßen NRW)

Straße	Fahrzweckgruppe	KFZ 2010 (KFZ/d)	Personen- verkehr	Güter- verkehr (KFZ/d)	Schwer- verkehr	(KFZ/d)						
						Rad	Krad	PKW	LfW	Bus	LoA	Lzg
B64	Mo-So	12.102	10.874	1.228	1.072	15	268	10.524	238	82	267	723
	Werktags	12.806	11.380	1.426	1.252	12	242	11.042	270	96	320	836
	Urlaubszeit	12.807	11.303	1.504	1.334	6	190	11.041	242	72	303	959
	Sonn- / Feiertage	8.592	8.449	143	72	38	463	7.943	114	43	25	4

4 Methodik

4.1 Datenerfassung und -verarbeitung

Niederschlagsdaten

Die im Rahmen des F+E-Vorhabens verwendeten Niederschlagsdaten stammen von einem Regenschirm (Stationsnummer 422220042), der vom LANUV auf dem Gelände der Hochschule in Höxter betrieben wird. Die Entfernung zum Beprobungsstandort beträgt rund 835 Meter in südwestlicher Richtung.

Durchflussmessung

Die Durchflussmessung erfolgte über eine Höhen-Abflussbeziehung (H/Q – Beziehung) mit dem System UFO-Ex (Ultrasonic Flow Observer, Typ /S) der Firma W.A.S. Wasser Abwasser Systemtechnik GmbH. Das Gerät verfügt über einen Druckmesskopf für die Wasserstandmessung. Die Messrate des Q-Loggers wurde auf 1 Messwert / 10 s eingestellt. Der Signalausgang wurde für die mengenproportionale Steuerung der Probenehmer verwendet. Für die praktische Umsetzung der Messung mittels H/Q – Beziehung wurde ein kleines dezentrales System (Volumen ca. 33 Liter) verwendet, das wie ein dauerhaft eingestauter Schlammfang konzipiert war.

Probenahme

Für die Probenahme kamen zwei automatische, programmierbare Probenehmer vom Typ MAX TP 5 zum Einsatz, von denen jeder mit 24 Probeflaschen à 1 l ausgerüstet ist. Die Steuerung erfolgte mengenproportional über den Q-Logger, welcher nach einer Durchflussmenge von jeweils 20 Litern einen Impuls auslöste. So konnte flexibel eine Anpassung an das real zu beprobende Abflussvolumen (Inkrementvolumen) erreicht werden. Die höchste erzielbare zeitliche Auflösung bei der Probenahme betrug 1 Probe pro Minute. Die Entnahme der Wasserproben erfolgte über Schläuche durch Ansaugen aus einem kleinen Zwischenbehälter mit einem Volumen von ca. 1,2 Litern, der oberhalb des Systems für die Durchflussmessung installiert worden war. Eine regelmäßige Sichtprüfung im Betrieb ergab, dass dort keine Sedimentation von Feststoffen erkennbar war.

Online-Trübungsmessung

Im Zeitraum 08/2019 – 03/2020 erfolgte der Einsatz einer Online-Trübungsmessung während der Niederschlagsereignisse, um eine höhere Auflösung (1 Messwert / 10 s) zu erzielen. Die gewonnenen Daten wurden später mit den im Labor bestimmten Messwerten aus den einzelnen Probenflaschen verglichen.

Verkehrsmessung

Das Verkehrsaufkommen am Beprobungsstandort wurde in beiden Fahrtrichtungen kontinuierlich mit zwei radartechnischen Verkehrszählgeräten vom Typ wavetec Traffic Counter (WTC) der Firma wavetec Solutions GmbH in der Version 2 (low power Variante) erfasst. Da die Messwerte für die Gegenfahrbahn nur dann genau sind, wenn auf der anliegenden Fahrbahnseite kein Fahrzeug passiert, mussten für die genaue Erfassung beider Fahrbahnen zwei Geräte eingesetzt werden. Für die automatisierte Auswertung der aufgezeichneten Messdaten wurden 4 verschiedene Fahrzeugklassen mit ihren jeweiligen Längenbereichen verwendet.

Meteorologische Daten

Die Daten zur Beschreibung der meteorologischen Situation wurden aus einer auf dem Gelände der Technischen Hochschule Ostwestfalen-Lippe in Höxter betriebenen Wetterstation in Form von 10 Minutenmittelwerten zur Verfügung gestellt: Windrichtung und –geschwindigkeit in 10 m Höhe (Ultraschallanemometer der Firma METEK) sowie Lufttemperatur in 2 m und 10 m Höhe (Messfühler auf Basis Pt 100).

Niederschlags-/Abflusssimulation

Wie bereits in dem vorangegangenen F+E-Vorhaben wurde parallel zu den realen Durchflussmessungen auch eine Niederschlags-/Abflusssimulation mittels KOSIM durchgeführt, um einerseits bei eventuell auftretenden Ausfällen des Q-Loggers die Datenlücken füllen zu können und andererseits nachträglich (Basislinien-)Korrekturen an den aufgezeichneten Abflussmessungen zu ermöglichen, welche beispielsweise infolge von übermäßigem Laubeintrag in den für die H/Q-Beziehung verwendeten Nassschlammfang gelegentlich notwendig waren.

Datenspeicherung und –verarbeitung

Für die Speicherung und Auswertung der erfassten Rohdaten wurden mehrere Datenbanken erstellt, die über eine sogenannte Steuerdatenbank adressiert werden. Zur Steigerung der Effizienz und Verarbeitungsgeschwindigkeit bei der Ausführung der Datenabfragen und -auswertungen wurden die je nach Messeinrichtung sehr umfangreichen Rohdatenbestände in geeigneter Weise ohne Auflösungsverlust verdichtet. Eine Ausnahme bilden hierbei die Verkehrsdaten, bei denen die Einzelaufzeichnungen in Form von 15-Minuten-Summenwerten aggregiert für die festgelegten vier Längensklassen der Kraftfahrzeuge abgespeichert wurden.

4.2 Analytik

Allgemeines

Alle analytischen Bestimmungen, mit Ausnahme der Mikroplastik-Untersuchungen, sind an der Technischen Hochschule Ostwestfalen-Lippe durchgeführt worden. In allen Proben wurden die Parameter pH-Wert, Leitfähigkeit, Trübung, AFS₆₃ und AFS_{grob} bestimmt. Ausgewählte Probenserien wurden darüber hinaus auf den TOC-Wert und die Partikelgrößenverteilung untersucht.

AFS-Bestimmung

Die Aufbereitung der Proben für die Bestimmung des Parameters AFS₆₃ erfolgte durch Aufgabe auf ein 63 µm-Edelstahlsieb mit einem Innendurchmesser von $d_i = 55$ mm. Dabei war auf sorgfältiges Nachspülen zu achten. Der Siebdurchgang entspricht der Fraktion AFS₆₃, der Siebrückstand stellt die Fraktion AFS_{grob} dar. Die Summe aus beiden Fraktionen ergibt den Parameter AFS_{gesamt}.

Bestimmung der Partikelgrößenverteilung

Die Partikelgrößenverteilung wurde mittels Laserbeugungsmessung mit einem Malvern Mastersizer 2000 mit Dispersionsmodul 2000 G bestimmt. Das Messergebnis wird als Partikelgrößenverteilung in Volumenprozent für die jeweils festgelegten Größenklassen ausgewiesen. Bei unregelmäßig geformten Teilchen entspricht die ermittelte Partikelgröße dem Äquivalentdurchmesser der beugungsgleichen Kugel.

Korndichtebestimmung

Für ausgewählte Proben erfolgte die Bestimmung der Korndichte nach einer Nasssiebung und anschließender Trocknung der Rückstände mittels Pyknometer unter Verwendung von iso-Propanol. Dabei wurden die vier Siebschnitte $d > 125 \mu\text{m}$, $63 \mu\text{m} < d < 125 \mu\text{m}$, $25 \mu\text{m} < d < 63 \mu\text{m}$ sowie $d < 25 \mu\text{m}$ (Siebdurchgang) betrachtet.

Mikroskopische Untersuchungen

Anhand mikroskopischer Untersuchungen erfolgte eine visuelle Beurteilung der Partikel im Niederschlagswasser im Vergleich zu Referenzproben, die vorab hergestellt worden waren. Für die Mikroskopie wurden die Geräte Leica DM 5500 B mit Aufsatz zur Bildaufnahme sowie Leica DMRB verwendet. Die Proben wurden in der Regel ohne Aufbringen eines Deckgläschens trocken bei 40-, 50- und 100facher Vergrößerung mikroskopiert.

Mikroplastik, Reifenabrieb

Die Untersuchungen auf Mikroplastik erfolgten in ausgewählten Proben unter Anwendung der Raman-Spektroskopie, der Thermo-Extraktion-Desorption (TED)-GC-MS und der Pyrolyse-GC-MS. Abhängig vom Verfahren sind unterschiedliche Schritte in der Probenvorbereitung notwendig:

- Probenaufbereitung für die Raman-Spektroskopie

Die Untersuchung auf (anthropogene) Kunststoffpartikel in ausgewählten Proben erfolgte durch das Institut für Umwelt- und Verfahrenstechnik (IUVT) an der Hochschule RheinMain in Rüsselsheim mittels Raman-Spektroskopie. Vor der eigentlichen Analyse bzw. Messung ist eine relativ aufwändige Probenaufbereitung erforderlich, für die eine Methode für die Matrix Straßenablaufwasser entwickelt wurde.

- Probenaufbereitung für die Thermo-Extraktion-Desorption (TED)-GC-MS und die Pyrolyse-GC-MS

Die Analytik auf Reifenabrieb mittels Thermo-Extraktion-Desorption (TED)-GC-MS erfolgte durch Herrn Paul Eisentraut an der Bundesanstalt für Materialprüfung (BAM) in Berlin im Arbeitskreis von Frau Dr. Ulrike Braun. Dafür wurden aus den wässrigen Proben vorab die Trockenrückstände isoliert und im Mörser homogenisiert. Untersuchungen mittels Thermodesorptions-Pyrolyse nach physikalisch-chemischer und enzymatischer Aufreinigung wurden durch die Wessling Laboratorien GmbH durchgeführt. Die entsprechenden Proben wurden ohne Vorbehandlung versandt.

4.3 Probenahmestrategie

Die Festlegung einer geeigneten Strategie für die Beprobung orientierte sich an den Randbedingungen einer möglichst vollständigen Erfassung eines Niederschlagsereignisses, verbunden mit einer möglichst hohen zeitlichen Auflösung.

Beprobungsvolumen

Da eine ereignisgesteuerte volumenproportionale Ansteuerung der Probenehmer vorgesehen war, mussten als Planungsgrundlage zunächst die zu erwartenden Ereignisvolumina ermittelt werden. Anhand einer statistischen Auswertung der für den Standort vorliegenden langjährigen Daten aus der Regenmessung des LANUV für den Zeitraum 2005–2018 erfolgte hierfür die Berechnung der Häufigkeitssummen der abflusswirksamen Volumina. Demnach beträgt das Abflussvolumen für 86% der Ereignisse maximal 2 m³, und rund 96% weisen ein Abflussvolumen von maximal 5 m³ auf. Für die Standardprobenahme wurde das zu beprobende Volumen deshalb auf einen Bereich zwischen 2–5 m³ festgelegt, da hiermit der überwiegende Anteil der Ereignisse mit hoher Sicherheit vollständig erfasst werden konnte.

Beprobungsauflösung

Die Auflösung der ereignisgesteuerten Probenahme konnte durch eine entsprechende Programmierung der Probenehmer flexibel angepasst werden. Ausgehend von der Annahme, dass in der Regel zu Beginn eines Niederschlagsereignisses sowohl die Konzentrationen als auch die Konzentrationsänderungen im abfließenden Wasser höher ausfallen als gegen Ende des Ereignisses, wurde angestrebt, für den Ereignisbeginn eine höhere Beprobungsdichte zu erzielen. Durch eine entsprechende Programmierung konnte eine Reihenschaltung der Probenehmer erreicht werden, um die Anzahl der Einzelproben je Ereignis zu verdoppeln. In der Regel wurden die beiden Geräte jedoch parallel mit identischer Programmierung betrieben, um ausreichende Probenmengen für die standardmäßige Bestimmung aller Parameter zu erhalten.

Datenaufzeichnung

Die Protokolle der Probenehmer wurden regelmäßig ausgelesen und in einer Datenbank gespeichert. Für jede einzelne Flasche war der Füllstart und das Füllende mit Zeitstempel hinterlegt, so dass die Daten den Aufzeichnungen der weiteren Messvorrichtungen zugeordnet werden konnten. Auf diese Weise ließen sich recht einfach Bilanzierungen vornehmen.

Berücksichtigung des Laubfanges

Zum Schutz der Durchflussmessung und der Probenehmer vor groben Laubbestandteilen, die zu einer Verblockung hätten führen können, wurde der Laubfang mit Sechseckdraht ausgekleidet. Er wurde vor und nach jedem Beprobungsdurchgang entleert und gereinigt, um die Filterwirkung durch abgeschiedenes organisches Material zu reduzieren und so möglichst viele der im Niederschlagsabfluss enthaltenen Partikel bei der Probenahme zu erfassen. Die Masse des entnommenen Materials wurde nach Trocknung bei 105 °C ermittelt und bei Bedarf dem beprobten Niederschlagsereignis zugeordnet.

5 Zusammenfassung der Ergebnisse

5.1 Erarbeitung eines Verfahrens zur Probenaufbereitung für die Mikroplastikbestimmung durch Raman-Spektroskopie

Ausgehend von dem am IUVT angewandten Verfahren zur Aufbereitung der Proben aus dem Ablauf von Kläranlagen wurden Untersuchungen zur Anpassung an die im Niederschlagsabfluss vorliegende Hintergrundmatrix durchgeführt, die in der Regel wesentlich höhere Konzentrationen an partikulären Inhaltsstoffen aufweist als ein Kläranlagenablauf. Durch eine geeignete Vorbehandlung sollten einerseits natürliche organische Teilchen und andererseits anorganische Partikel in den Proben reduziert oder idealerweise vollständig entfernt werden.

Zunächst wurden Versuche zur Oxidation von natürlichen organischen Stoffen mittels Wasserstoffperoxid, Natriumhypochlorit, einer Kombination aus beiden Oxidationsmitteln sowie Fentons Reagenz ($\text{H}_2\text{O}_2 / \text{Fe}^{2+}$) durchgeführt. Unter den betrachteten Varianten stellte sich der Einsatz von 50%igem Wasserstoffperoxid ohne Aktivierung mit den Bedingungen $c(\text{H}_2\text{O}_2) = 50\%$, $V(\text{H}_2\text{O}_2)_{\text{spez}} = 50 \text{ ml / g TS}$, $T = 50 \text{ °C}$ und $t = 24 \text{ h}$ als am besten geeignet dar.

Zur Abtrennung der anorganischen Partikel wurde als Trennmedium eine konzentrierte Zinkchlorid-Lösung mit einer Dichte von $\rho = 2,05 \text{ g/cm}^3$ verwendet. Als Verfahren wurden eine einfache Schwimm-/Sinktrennung und die Trennung im Schwerfeld einer Zentrifuge untersucht, wobei sich letztere als geeigneter erwies.

Zum Zeitpunkt des Untersuchungsbeginns lagen noch keine gesicherten Erkenntnisse über eine generelle Eignung der Raman-Spektroskopie zur Bestimmung von Mikroplastik im Niederschlagsabfluss von Verkehrsflächen vor. Diese wurden von Borg Olesen et al. erst in 2019 nach Beginn der hier beschriebenen Untersuchungen veröffentlicht. Sie werden durch die eigenen Ergebnisse weitgehend bestätigt (vgl. Abschnitt 5.6). Deshalb wird das entwickelte Verfahren hier nur in knapper Form dargestellt und bezüglich weiterer Details auf die Langfassung des Berichts verwiesen.

5.2 Hydrologie und Hydraulik

Summenwerte Niederschlag und Abfluss

Ein Vergleich der Niederschlagshöhen als Quartalssummenwerte im Zeitraum 2018 – 2020 mit den langjährigen Mittelwerten von 2005 – 2017 ist in Abbildung 2 dargestellt. Deutlich erkennbar sind die trockenen Quartale zwei und drei im Kalenderjahr 2018. Im Vergleich zum langjährigen Mittel von 795 mm betrug die Jahresniederschlagshöhe am Beprobungsstandort 564 mm und fiel damit um rund 30% geringer aus. In 2019 wurde für das zweite und dritte Quartal ebenfalls zu wenig Niederschlag registriert. Dieses Defizit wurde jedoch durch erhöhte Niederschläge im ersten und vierten Quartal ausgeglichen, so dass in Summe die Jahresniederschlagshöhe mit 770 mm nur knapp unter dem langjährigen Mittel von 795 mm lag. Im Untersuchungszeitraum wurden insgesamt 251 abflusswirksame Niederschlagsereignisse mit einer Niederschlagshöhe von $h_N \geq 0,5 \text{ mm}$ registriert.

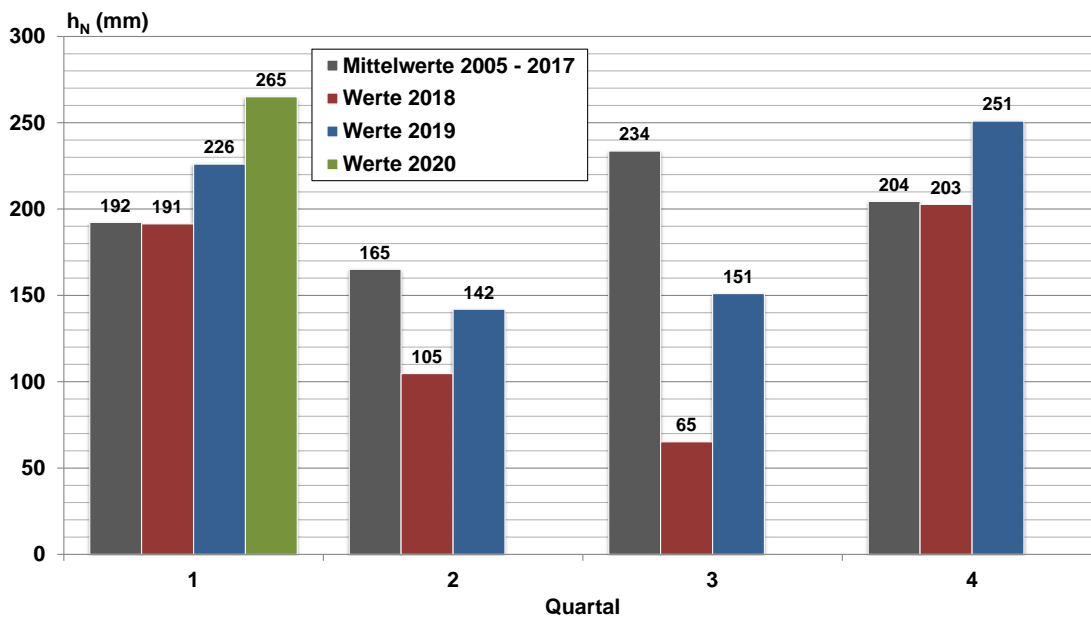


Abbildung 2: Quartalssummenwerte der Niederschlagshöhen am Standort Höxter im Zeitraum 2018 – 2020 im Vergleich zum langjährigen Mittel (2005 – 2017)

Die aus den gespeicherten Loggerdaten ermittelten Gesamtvolumina ($V_{Q-Logger}$) sind mit den aus dem KOSIM-Modell erhaltenen Abflussmengen (V_{KOSIM}) für die vier Betriebsphasen des Untersuchungszeitraumes in Tabelle 2 aufgeführt. Mit Ausnahme eines Zeitraumes von 10 Tagen im Januar 2019 weisen die Ergebnisse der Modellierung mittels KOSIM und die realen Messwerte des Q-Loggers nur geringe Abweichungen im einstelligen Prozentbereich auf.

Tabelle 2: Zusammenfassende Übersicht über die hydrologischen und hydraulischen Daten der einzelnen Betriebsphasen

Zeitraum Start - Ende	h_N	V_N A = 420m ²	$V_{Q-Logger}$	$\Psi_{Q-Logger}$	V_{KOSIM}	Ψ_{KOSIM}	Bemerkungen
	(mm)	(m ³)	(m ³)	(-)	(m ³)	(-)	
16.07.2018 - 04.09.2018	26,8	11,3	6,1	0,54	5,6	0,50	Phase I
04.09.2018 - 21.01.2019	300,6	126,3	94,0	0,74	97,2	0,77	Phase II
21.01.2019 - 31.01.2019	33,8	14,2	0,3	0,02	11,9	0,84	Zeitw. vereiste Anlage
01.02.2019 - 31.03.2020	927,9	389,7	272,9	0,70	281,0	0,72	Phase III
Summen	1.289,1	541,4	373,2		395,8		

Repräsentativität des Untersuchungszeitraumes

Für eine Beurteilung der Repräsentativität der Niederschlagsereignisse während des Untersuchungszeitraumes wurden die Häufigkeitssummen der abflusswirksamen Volumina innerhalb unterschiedlicher Volumenklassen für den Zeitraum 07/2018 – 03/2020 ermittelt und den langjährigen Aufzeichnungen aus dem Zeitraum 2005 – 2018 gegenübergestellt. Das in Abbildung 3 dargestellte Ergebnis weist in den einzelnen Klassen nur geringe Abweichungen auf, d.h. die beprobten Ereignisse können trotz der in 2018 verzeichneten regenarmen Perioden als repräsentativ für die vergangenen 15 Jahre angesehen werden.

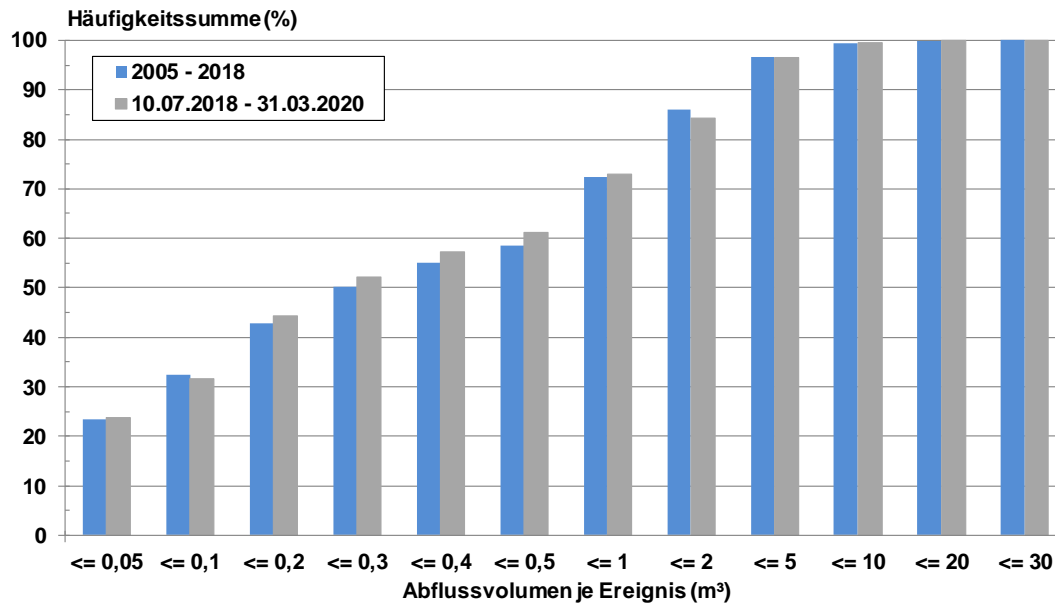


Abbildung 3: Häufigkeitssummen der abflusswirksamen Volumina im Zeitraum 07/2018 – 03/2020 im Vergleich zum langjährigen Mittel, berechnet aus Regenmesseraufzeichnungen unter Annahme eines Abflussbeiwertes $\psi = 0,7$

5.3 Meteorologie

Die prozentuale Verteilung der Windrichtungen ist für sechs Windklassen, berechnet aus Zehnminutenmittelwerten, in Abbildung 4 dargestellt. Vorwiegend waren demnach Strömungsrichtungen im Bereich Süd bis Nordwest mit Windgeschwindigkeiten kleiner 3 m/s zu verzeichnen, mit einem Schwerpunkt im Bereich Westsüdwest bis West. Bei den Windgeschwindigkeiten lagen in rund 91% aller Messungen die Zehnminutenmittelwerte in einem Bereich von 0 – 3 m/s, und nur 9% wiesen höhere Werte auf.

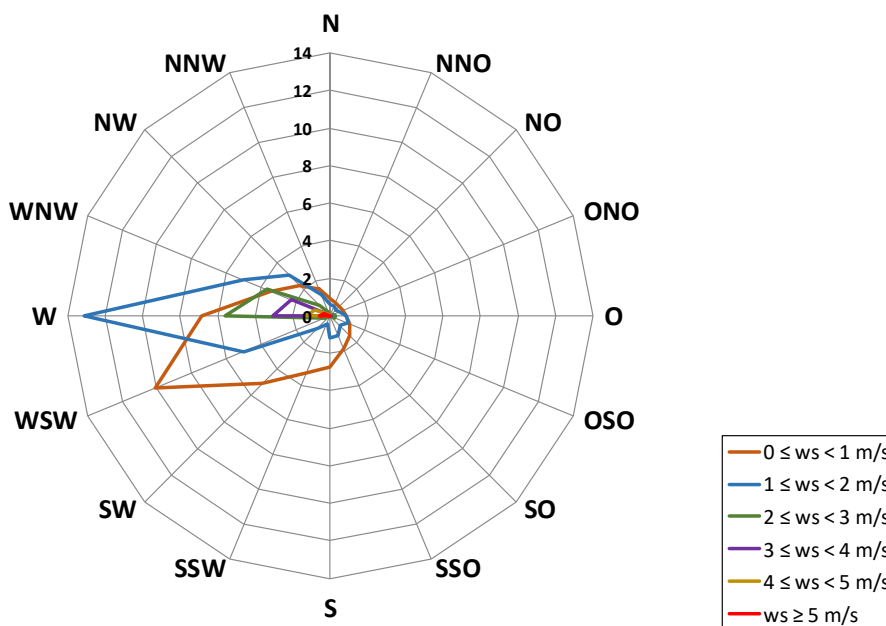


Abbildung 4: Prozentuale Windrichtungsverteilung am Standort der TH OWL im Zeitraum 01.01.2018 – 31.03.2020, berechnet aus Zehnminutenmittelwerten

5.4 Anzahl und Dauer der beprobten Ereignisse

Insgesamt wurden 81 der 251 abflusswirksamen Niederschlagsereignisse mit mehr als 900 Einzelproben erfasst. Der überwiegende Anteil der Probenahmen erfolgte bei einem Abflussvolumen von 0,5 – 5,0 m³, und die Mehrzahl der beprobten Niederschläge wies eine Dauer zwischen 2 und 8 Stunden auf.

In Tabelle 3 sind die Niederschlagsereignisse mit den hydrologischen und hydraulischen Kennzahlen zusammenfassend dargestellt. Von den 81 Ereignissen wurden 69 Ereignisse vollständig erfasst. Die Abweichungen zu den in Tabelle 2 aufgeführten Werten resultieren aus dem hier verwendeten Filter für die Mindestniederschlagshöhe ($h_N \geq 0,5$ mm). Das effektiv beprobte Volumen des Niederschlagsabflusses betrug mit 124 m³ rund 31% des gesamten abflusswirksamen Niederschlags von 404 m³.

Tabelle 3: Übersicht über die Anzahl der beprobten Niederschlagsereignisse

Auswertung der Ereignisbeobachtungen für den Untersuchungszeitraum 07/2018 - 03/2020		
Gesamtanzahl Niederschlagsereignisse mit $h_N \geq 0,5$ mm	251	
Summe Niederschlagshöhe h_N	1.267	mm
Summe Niederschlagsvolumen, bez. auf $A_{red.} = 420$ m ²	532	m ³
Summe abflusswirksames Volumen für $\psi = 0,76$	404	m ³
Anzahl beprobte Ereignisse	81	
davon vollständig beprobte Ereignisse	69	
Gesamtvolumen aller Probenahmeereignisse	151	m ³
Anteil des effektiv beprobten Volumens	124	m ³

5.5 Verkehrsaufkommen DTV

Für die Auswertung des täglichen Verkehrsaufkommens DTV wurden die Aufzeichnungen des Jahres 2019 verwendet, da dieses Kalenderjahr im Untersuchungszeitraum komplett erfasst worden ist. Die Zusammenfassung in sogenannte Fahrzweckgruppen erfolgte gemäß der Methodik für die Straßenverkehrszählung der Bundesanstalt für Straßenwesen (Kathmann et al., 2005). Hinsichtlich des täglichen Aufkommens wurden innerhalb der Fahrzweckgruppen kaum signifikante Unterschiede zwischen den Jahren 2010 und 2019 verzeichnet.

In Abbildung 5 sind die mittleren täglichen Kfz-Zahlen für die vier Fahrzeugklassen, getrennt nach Fahrtrichtung, für die einzelnen Wochentage aufgeführt. Augenscheinlich ist das Fahrzeugaufkommen in Fahrtrichtung stadteinwärts stets höher als das in die Gegenrichtung. Dies wird darauf zurückgeführt, dass neben dem Durchgangsverkehr in Richtung Hannover / Hameln Berufspendler und Besucher der Stadt Höxter die An- und Abfahrt offensichtlich auf unterschiedlichen Wegen zurücklegen.

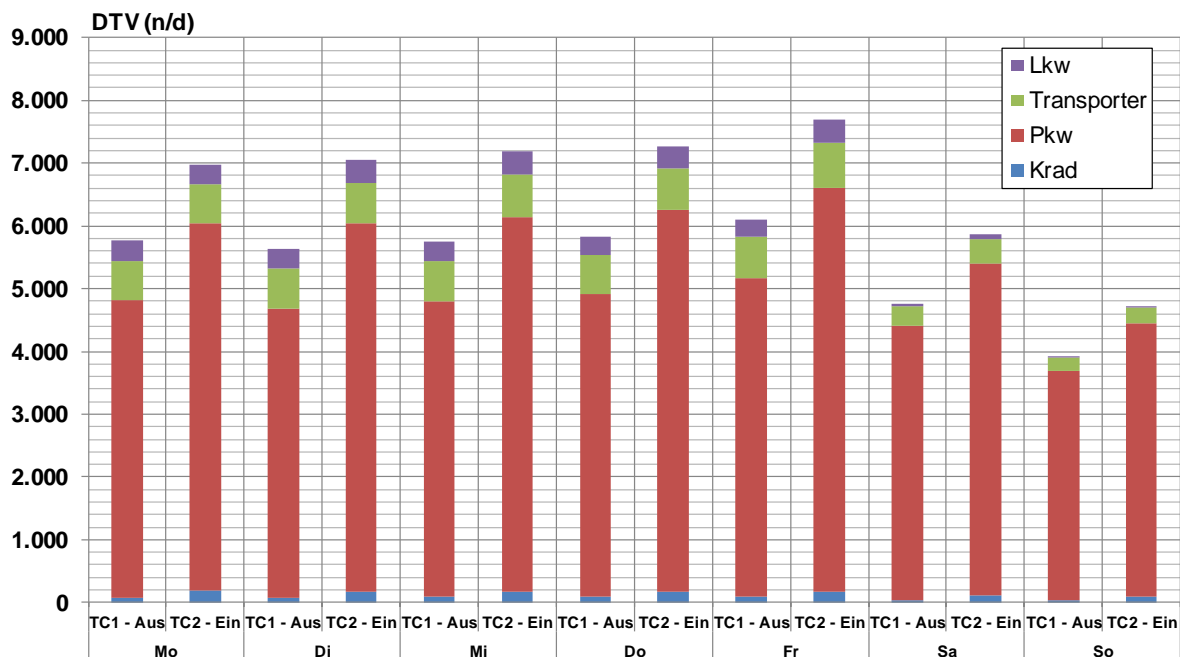


Abbildung 5: Durchschnittliches tägliches Verkehrsaufkommen für beide Fahrtrichtungen in den vier Fahrzeugklassen am Beprobungsstandort für das Jahr 2019

5.6 Wasserqualitätsparameter

Die Darstellung der allgemeinen Parameter erfolgt teilweise in Form von sogenannten Boxplot-Diagrammen jeweils für den gesamten Beprobungszeitraum sowie unterteilt in die einzelnen Quartale, um eventuell auftretende jahreszeitliche Schwankungen zu dokumentieren. Die ausgefüllte Box stellt den Perzentilbereich von 25 – 75% dar. Die Linie innerhalb der Box repräsentiert den Medianwert, der Punkt den arithmetischen Mittelwert. Die Minimal- und Maximalwerte sind durch die Enden der sogenannten Whisker gekennzeichnet.

pH-Wert

Für den gesamten Zeitraum wurde für den pH-Wert ein Medianwert von $\text{pH} = 6,9$ ermittelt, der geringen jahreszeitlichen Schwankungen unterworfen war (Quartale des Winterhalbjahres Q4 und Q1: $\text{pH} = 7,0 - 7,5$; Quartale des Sommerhalbjahres Q2 und Q3: $\text{pH} = 6,6 - 6,9$).

Leitfähigkeit

Die Leitfähigkeit wies über den Gesamtzeitraum einen Medianwert von $\text{LF} = 129 \mu\text{S}/\text{cm}$ auf, der, bedingt durch das Winterhalbjahr, stark vom arithmetischen Mittelwert mit $\text{LF} = 381 \mu\text{S}/\text{cm}$ abwich. Während des Winterhalbjahres wurden infolge von Tausalzeinflüssen z.T. extrem hohe Leitfähigkeiten bis zu $23.500 \mu\text{S}/\text{cm}$ registriert. Während des Sommerhalbjahres hatten die Werte insgesamt eine geringere Schwankungsbreite.

Trübung

Die Trübungswerte wiesen eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Jahreszeit auf. Der Medianwert aller Proben in Höhe von 84 FNU war im Winterhalbjahr mit 154 FNU bzw. 89 FNU höher als im Sommerhalbjahr, für das 58 – 73 FNU ermittelt wurden.

AFS63

Der Medianwert der Konzentration an AFS63 betrug über den gesamten Zeitraum 76 mg/l bei einem nahezu doppelt so hohen arithmetischen Mittelwert von 144 mg/l. Wie Abbildung 6 zeigt, wurden die höchsten Konzentrationen im Jahresverlauf im ersten Quartal mit einem Medianwert von 160 mg/l gefunden. Über das zweite Quartal mit 88 mg/l nahm der Medianwert auf 61 – 65 mg/l in den Quartalen Q3 und Q4 ab.

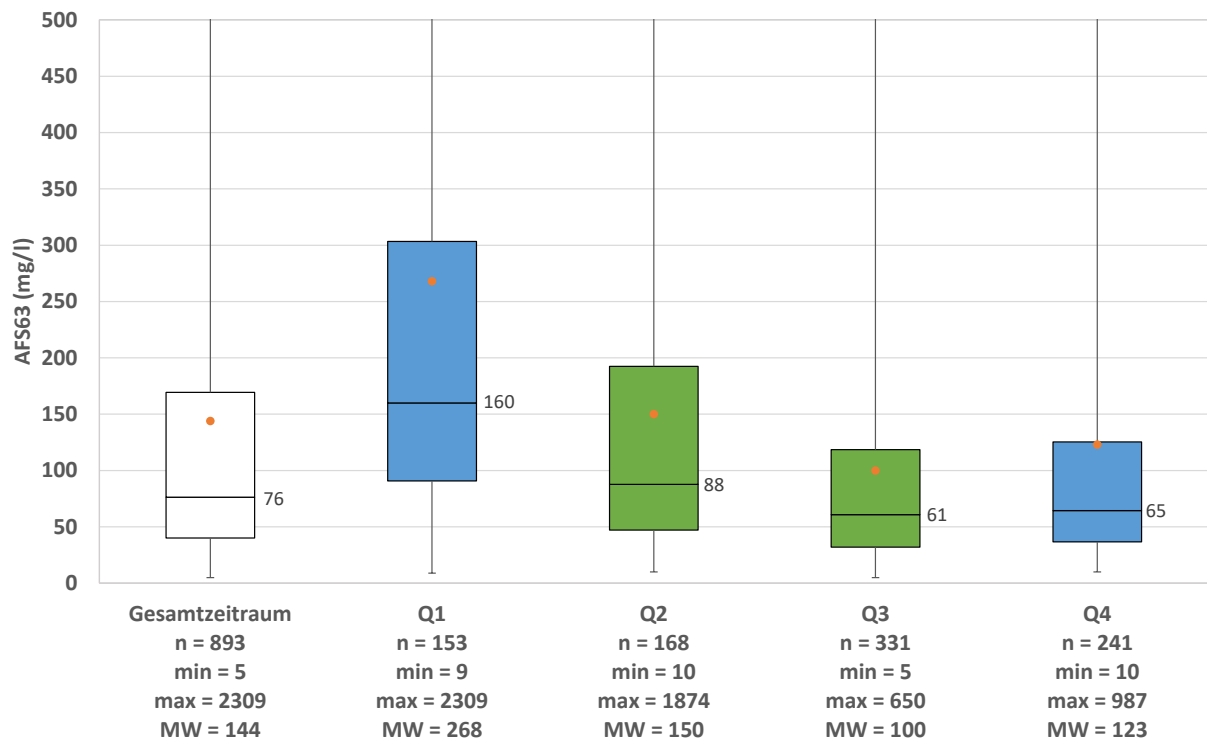


Abbildung 6: Statistische Auswertung des Parameters AFS63 für den gesamten Beprobungszeitraum und die einzelnen Quartale

AFS_{grob}

Für die Fraktion AFS_{grob} wurde für alle Messungen ein Medianwert von 39 mg/l ermittelt, wobei der arithmetische Mittelwert mit 83 mg/l mehr als doppelt so hoch ausfiel. Die höchsten Konzentrationen wurden innerhalb des zweiten (71 mg/l) und dritten Quartals (43 mg/l) beobachtet. Dies wird auf Einflüsse durch eine höhere Schleppwirkung für grobe anorganische Partikel infolge der im Sommerhalbjahr häufiger auftretenden Starkregen zurückgeführt.

AFS_{gesamt}

Die Summe der beiden Parameter AFS63 und AFS_{grob} wies als AFS_{gesamt} einen Medianwert aller Messungen in Höhe von 129 mg/l auf, der deutlich unter dem arithmetischen Mittelwert von 228 mg/l lag. Für diesen Parameter wurde ebenfalls ein ausgeprägter Jahresverlauf mit den höchsten Konzentrationen im ersten Quartal gefunden, was insbesondere auf den hohen Anteil der Fraktion AFS63 zurückzuführen ist. Der Medianwert erreichte hier einen Wert von 210 mg/l und nahm sukzessive über die folgenden Quartale bis auf einen Wert von 95 mg/l im vierten Quartal ab.

Für den überwiegenden Anteil aller beprobten Ereignisse konnte für den Parameter AFS ein ausgeprägter „First-flush-Effekt“ beobachtet werden, bei dem der erste Abfluss deutlich höhere Feststoffbelastungen aufwies als die nachfolgenden Wasservolumina, sofern eine ausreichende Wassermenge (Mindestabfluss) gegeben war. In Abbildung 7 ist exemplarisch ein Niederschlagsereignis mit den Konzentrationsverläufen für die beiden AFS-Fraktionen und für AFS_{gesamt} dargestellt.

Während des Ereignisses folgt der Verlauf der AFS-Konzentrationen dem Volumenstrom. Am Ereignisbeginn bei einem Volumenstrom von $Q_{\max.} \approx 2,6$ l/s beträgt die Anfangskonzentration an AFS_{gesamt} ca. 1.000 mg/l. Diese nimmt mit anhaltendem Abfluss rasch auf einen Wert von ca. 35 mg/l ab und steigt bei Erreichen der zweiten hydraulischen Spitze ($Q \approx 1,5$ l/s) wieder auf ca. 340 mg/l an. Während des gesamten Ereignisses verläuft die Konzentrationskurve von AFS₆₃ über der von AFS_{grob}.

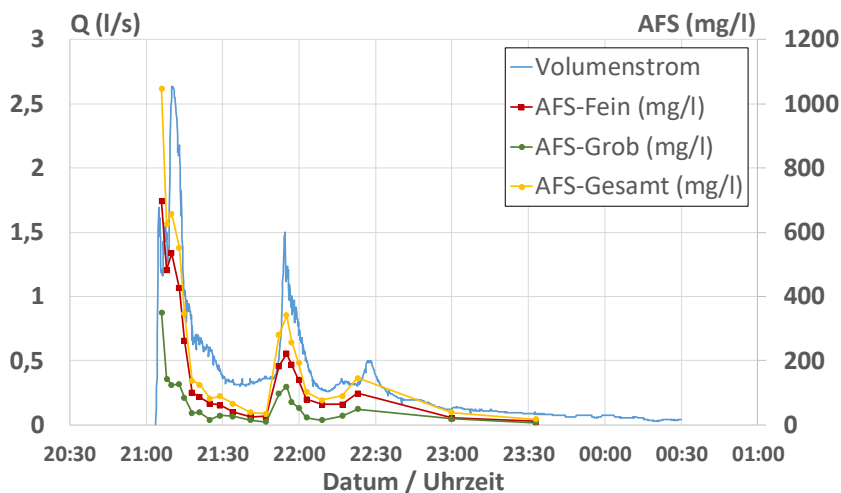


Abbildung 7: Verlauf der Parameter AFS₆₃, AFS_{grob} und AFS_{gesamt} während eines Ereignisses

Massenkonzentrationsanteil AFS₆₃

Der Anteil der Fraktion AFS₆₃ an der Gesamtkonzentration der abfiltrierbaren Stoffe AFS_{gesamt} wurde mit einem Medianwert von 67% und einem arithmetischen Mittelwert von 64% bestimmt. In den beiden Quartalen des Winterhalbjahres fiel der Wert mit 77% (Q4) bzw. 79% (Q1) signifikant höher aus als in den beiden Quartalen des Sommerhalbjahres (Q2: 56%; Q3: 53%).

Glühverlust und organische Trockensubstanz

Die Glühverluste wurden im überwiegenden Anteil der Proben bestimmt. Dabei wies die Fraktion AFS₆₃ für alle Messwerte einen Medianwert von 32% auf, der im Jahresverlauf nur geringen Schwankungen unterworfen war (26 – 37%). Für die Fraktion AFS_{grob} wurde ein Medianwert von 50% für alle Werte ermittelt, wobei die Glühverluste während des Winterhalbjahres höher (jeweils 55% in Q4 und Q1) und während des Sommerhalbjahres geringer waren (42 – 43%). Für den Parameter AFS_{gesamt} wurden die Ergebnisse der Einzelmessungen durch eine Gewichtung des Massenanteils der Fraktionen AFS₆₃ und AFS_{grob} zusammengeführt. Der Median aller Messwerte betrug 36%. Während der einzelnen Quartale variierten die Medianwerte im Bereich von 32 – 41%, wobei der höchste Wert für das vierte Quartal ermittelt wurde.

Gesamter Organischer Kohlenstoff (TOC)

Die Bestimmung des Parameters Gesamter Organischer Kohlenstoff (TOC) erfolgte nur in ausgewählten Proben. Als Medianwert aller Messungen wurde ein TOC von 36 mg/l ermittelt, der unter dem arithmetischen Mittelwert von 50 mg/l lag. Während des Jahresverlaufes wurden im ersten Quartal mit einem Medianwert von 61 mg/l signifikant höhere Konzentrationen verzeichnet als in den Quartalen Q2 – Q4, in denen die Werte im Bereich von 28 – 35 mg/l lagen.

Partikelgrößenverteilung

Die Ergebnisse der Partikelgrößenverteilungen in ausgewählten Probenserien werden anhand des Korndurchmessers d_{50} , des Medianwertes der Größenverteilung, dargestellt. Darüber hinaus erfolgt eine Auswertung des Anteils der Partikel mit einem Korndurchmesser von $d < 63 \mu\text{m}$, um eine Korrelation zu den Ergebnissen aus der Bestimmung des Parameters AFS63 herzustellen zu können.

Anhand eines Beispiels sollen die erhaltenen Daten in Form einer logarithmischen Dichteverteilungskurve und einer Summenverteilungskurve dargestellt werden. Abbildung 8 zeigt die Ergebnisse der Messungen von Proben aus einem Niederschlagsereignis vom 04.04.2019. Insgesamt weist die Dichteverteilung ein recht homogenes Verteilungsmuster der Partikelgrößen mit einem Maximum im von ca. $30 \mu\text{m}$ auf. Im Bereich zwischen $d = 500 - 1.000 \mu\text{m}$ ist bei vielen Proben ein zweites, schwächer ausgeprägtes Maximum zu erkennen. Die Homogenität der Ergebnisse spiegelt sich in einer schmalbandigen Kurvenschar in der Summenverteilungskurve wieder. Demzufolge liegt der d_{50} -Wert der Einzelproben im Bereich $25 - 60 \mu\text{m}$.

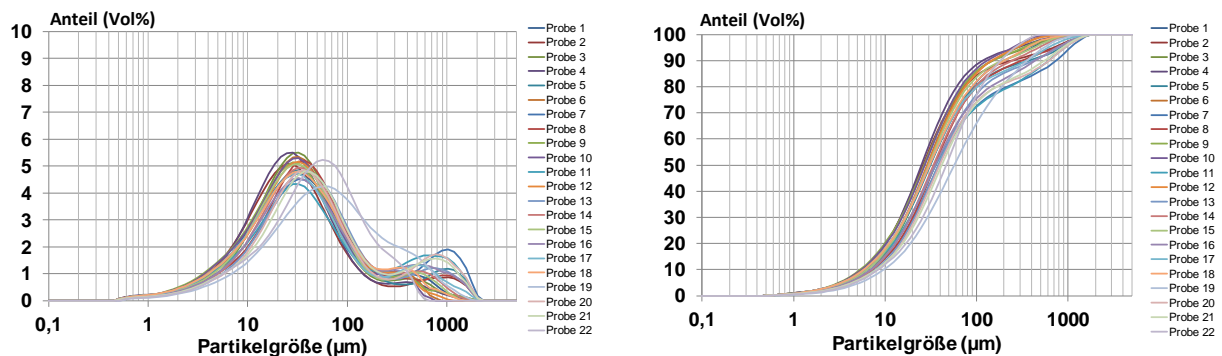


Abbildung 8: Messwerte aus der Bestimmung der Partikelgrößenverteilung eines Niederschlagsereignisses vom 04.04.2019; Links: Dichteverteilungskurve; Rechts: Summenverteilungskurve

Der aus den Volumenanteilen der einzelnen Größenklassen berechnete mittlere Korndurchmesser wies für alle Messungen einen Wert von $d_{50} = 31 \mu\text{m}$ auf. Bei der Betrachtung der einzelnen Quartale wurden in den Wintermonaten die geringsten Werte verzeichnet (viertes Quartal $d_{50} = 28 \mu\text{m}$; erstes Quartal $d_{50} = 29 \mu\text{m}$). Für die Sommermonate fielen die Werte etwas höher aus (zweites Quartal $d_{50} = 34 \mu\text{m}$; drittes Quartal $d_{50} = 48 \mu\text{m}$), und die Proben zeigten sich hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung inhomogener als im Winterhalbjahr.

Korrelation zwischen massen- und volumenbezogener AFS63-Bestimmung

Für die Ermittlung einer Korrelation zwischen den Ergebnissen der (massenbezogenen) AFS63-Bestimmungen und den (volumenbezogenen) Partikelgrößenverteilungen wurde aus den Messwerten der Laserbeugungsspektrometrie der Volumenanteil der Partikel bestimmt, die einen Korndurchmesser von $d < 63 \mu\text{m}$ aufweisen und somit der Fraktion AFS63 zuzuordnen sind. Anschließend wurden dann für die einzelnen Proben die Verhältnisse (Quotienten) zwischen dem Massenanteil an AFS63 und dem Volumenanteil für Partikel mit $d < 63 \mu\text{m}$ gebildet. Ein Wert von 1 bedeutet, dass die Anteile an AFS63 aus der massen- und der volumenbezogenen Auswertung übereinstimmen. Dies sollte dann der Fall sein, wenn die Korndichten in den Fraktionen AFS63 und AFS_{grob} (bzw. AFS_{gesamt}) annähernd gleich sind. Werte größer als 1 bedeuten eine höhere Korndichte, Werte unterhalb von 1 eine geringere Korndichte der Fraktion AFS63 im Vergleich zur Fraktion AFS_{grob}.

Für den Gesamtzeitraum wurde mit einem Medianwert von 0,99 und einem arithmetischen Mittelwert von 0,93 eine recht gute generelle Übereinstimmung der beiden Bestimmungsmethoden, allerdings mit gewissen Abweichungen bei einigen Einzelproben, festgestellt. Besonders gute Übereinstimmungen wurden in den Quartalen des Winterhalbjahres (Medianwerte von 1,06 und 1,02) verzeichnet. In den Quartalen des Sommerhalbjahres sind die Medianwerte mit 0,81 und 0,64 kleiner als 1, was auf eine geringere Korndichte der Fraktion AFS63 im Vergleich zur Fraktion AFS_{grob} hinweist.

In Abbildung 9 sind die Massenanteile der Fraktion AFS63 an AFS_{gesamt} und die Volumenanteile der Partikel mit einem Korndurchmesser von $d < 63 \mu\text{m}$ für zwei ausgewählte Niederschlagsereignisse dargestellt. Das Ereignis vom 03.04.2019 zeigt für beide Messverfahren eine sehr gute Übereinstimmung bezüglich der Anteile der feinputikulären Fraktion, die über die gesamte Niederschlagsdauer fast durchgehend im Bereich zwischen 60 und 80% liegen. Die maximale Abweichung der Werte aus beiden Bestimmungsmethoden beträgt hier nur etwa 20%.

Für das Ereignis vom 11.07.2019 zeigen beide Kurven zwar einen ähnlichen Verlauf, wobei der Anteil der feinputikulären Fraktion ab der Probennummer 6 abnimmt, jedoch sind die Abweichungen zwischen den Ergebnissen der beiden Methoden insgesamt größer als im ersten Beispiel. Dies kann anhand der Labornotizen für die AFS-Bestimmung nachvollzogen werden, demzufolge in den Proben 7 – 22 hohe Sandanteile in der Fraktion AFS_{grob} beobachtet wurden. Die extreme Abweichung in der Probe 19 ist auf ein Steinchen in der Fraktion AFS_{grob} zurückzuführen, welches absichtlich nicht entfernt worden ist. Aufgrund ihres Sandanteils weist die Fraktion AFS_{grob} in dieser Probenserie eine höhere Korndichte auf als die Fraktion AFS63.

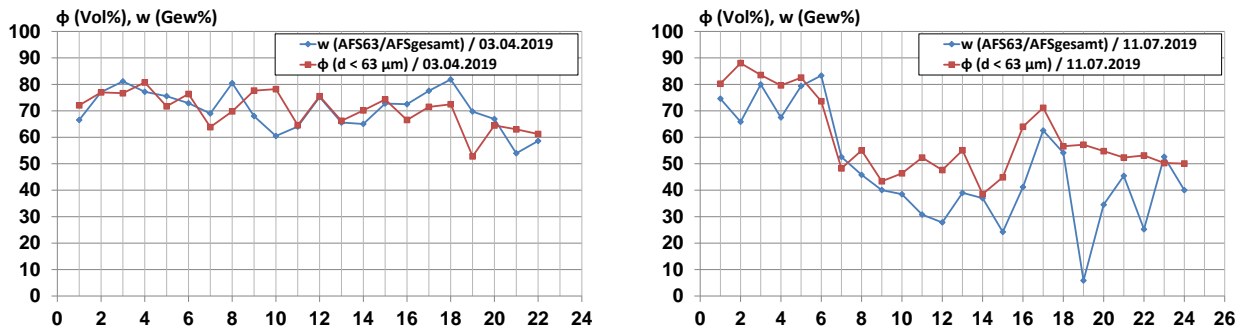


Abbildung 9: Massenanteile AFS63/AFS_{gesamt} und Volumenanteile der Partikel mit einem Durchmesser von d < 63 µm während zweier Niederschlagsereignisse; Links: Ereignis vom 03.04.2019; Rechts: Ereignis vom 11.07.2019

Korndichte

In ausgewählten Mischproben wurde die Korndichte der Fraktionen d > 125 µm, 63 < d < 125 µm, 25 < d < 63 µm und d < 25 µm (Siebdurchgang) nach Nasssiebung bestimmt. Hierbei wies die Fraktion d > 125 µm in allen Proben die höchste Korndichte auf (im Mittel ρ = 1,98 g/cm³). Für die restlichen drei Fraktionen wurden fast konstante mittlere Korndichten von ρ = 1,72 – 1,78 g/cm³ ermittelt. Es konnte auch gezeigt werden, dass durch Oxidation der organischen Anteile die Korndichte auf 2,55 g/cm³ gesteigert werden kann. Einzelpartikel mit einer Dichte von 1,15 g/cm³ entsprechend synthetischem Reifenabrieb ließen sich dagegen nicht identifizieren.

Mikroskopische Untersuchungen

Materialproben aus einer Straßendecke sowie aus der Lauffläche eines handelsüblichen PKW-Reifens sind in Abbildung 10 dargestellt. Gut zu erkennen ist die Zusammensetzung des Asphaltes aus mineralischen Komponenten, die in eine organische Masse eingebettet sind. Der im rechten Bild dargestellte Reifenabrieb weist eine unregelmäßige, stark zerklüftete Struktur auf, die auf eine relativ hohe spezifische Oberfläche schließen lässt.

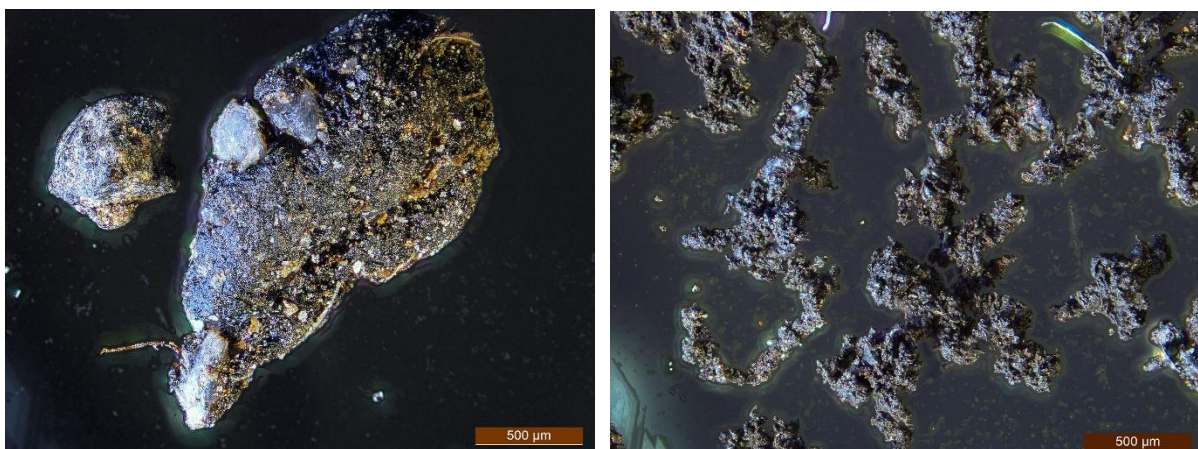


Abbildung 10: Materialproben aus einer Straßendecke (links) und aus der Lauffläche eines PKW-Reifens (rechts); Vergrößerung 50x; erfasst mittels Fokus-Stacking

Die an Siebfractionen einer Nasssiebung von Straßenablaufproben durchgeführten mikroskopischen Untersuchungen zeigten, dass in allen Fraktionen, insbesondere aber in der Fraktion $25\ \mu\text{m} < d < 63\ \mu\text{m}$, heterogene Aggregate aus mineralischen Körnchen und einem dunklen Material vorkommen. Es wird vermutet, dass es sich bei Letzterem um Reifenabrieb und/oder Bitumen aus der Straßenoberfläche handelt. Dies ist in Abbildung 11 für die Fraktionen $25\ \mu\text{m} < d < 63\ \mu\text{m}$ und $d < 25\ \mu\text{m}$ zu erkennen, letztere in Form eines Eindampfrückstandes. Die Aggregation der Sandteilchen in der Fraktion $25\ \mu\text{m} < d < 63\ \mu\text{m}$ zu größeren Verbänden vermittelt den visuellen Eindruck, als seien sie „verklebt“. Im Eindampfrückstand aus der Fraktion $d < 25\ \mu\text{m}$ werden auch graue, opake Partikel gefunden, die eventuell durch Salze gebildet worden sind, die bei der Einengung ausfallen.

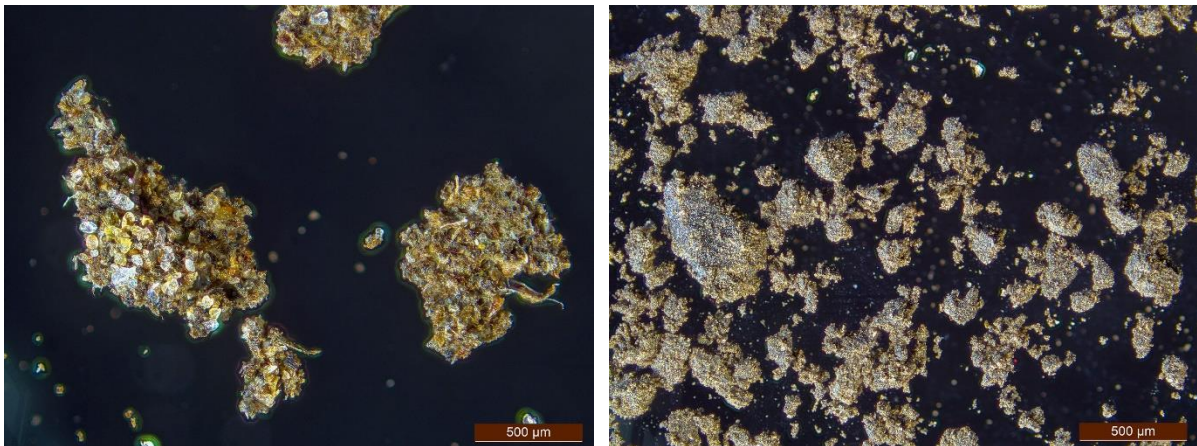


Abbildung 11: Fraktionen aus der Nasssiebung einer Niederschlagswasserprobe; Links: Fraktion $25\ \mu\text{m} < d < 63\ \mu\text{m}$; Rechts: Eindampfrückstand aus Fraktion $d < 25\ \mu\text{m}$; Vergrößerung 50x; erfasst mittels Fokus-Stacking

Mikroplastik, Reifenabrieb

Trotz der sehr aufwendigen Probenaufbereitung erwies sich die angewandte Raman-Spektroskopie für die vorliegende Probenmatrix als nicht geeignet. Zwar wurde in den Proben eine unterschiedlich große Anzahl an Partikeln und Fasern detektiert, unter anderem auch ein Anteil an schwarzen Partikeln, bei denen es sich um Reifen- oder Straßenabrieb handeln könnte. Es war jedoch nicht möglich, dafür ein auswertbares Raman-Spektrum zu erzeugen und eine Zuordnung zu anthropogenen Kunststoffen vorzunehmen. Dieser Befund bestätigt die in Abschnitt 2.2 zitierten Folgerungen von Borg Olesen et al. (2019).

Eindampfrückstände ausgewählter Mischproben, die mittels TED GC-MS analysiert wurden, ergaben positive Befunde für Naturkautschuk (NR) ($1,2 - 4\ \mu\text{g}/\text{mg TS}$) und Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR) ($5 - 9\ \mu\text{g}/\text{mg TS}$). Daneben wurden auch Polyethylen (PE) ($2,4 - 6,3\ \mu\text{g}/\text{g TS}$), Polypropylen (PP) ($0,3 - 2,2\ \mu\text{g}/\text{mg TS}$) und Polystyrol (PS) ($0,6 - 1,5\ \mu\text{g}/\text{mg TS}$) als ubiquitäre Belastung detektiert. Der Massenanteil des aus dem Parameter SBR abgeleiteten Reifenabriebs betrug $44 - 80\ \mu\text{g}/\text{mg TS}$ und lag damit bei $4,4 - 8\%$, bezogen auf $\text{AFS}_{\text{gesamt}}$.

In Trockenrückständen von vier Siebschnitten der Nasssiebung wurde bei abnehmendem Korndurchmesser eine Zunahme des Massenanteiles an Reifenabrieb, berechnet aus dem Parameter SBR, beobachtet ($d > 125 \mu\text{m}$: $5,9 \mu\text{g}/\text{mg TS}$; $d < 25 \mu\text{m}$: $33,2 \mu\text{g}/\text{mg TS}$). Der Massenanteil an Naturkautschuk wies in der groben Fraktion mit $d > 125 \mu\text{m}$ den geringsten Anteil ($1,65 \mu\text{g}/\text{mg TS}$) auf, während sich in den kleineren Kornklassen Werte auf annähernd gleichem Niveau ($2,4 - 2,8 \mu\text{g}/\text{mg TS}$) fanden.

Die aus den Ergebnissen für die Mischproben berechneten Konzentrationen an Reifenabrieb im Straßenabfluss lagen mit einem arithmetischen Mittelwert von $c(\text{Reifenabrieb}) = 32 \text{ mg}/\text{l}$ auf einem Niveau von rund 50% des abgeschätzten maximalen theoretischen Wertes von $62 \text{ mg}/\text{l}$. Daher sind die gefundenen Werte durchaus als plausibel anzusehen, denn eine Verfrachtung auf dem Luftweg in Trockenwetterphasen stellt eine zweite wahrscheinliche Senke für Reifenabrieb dar, so dass nicht die Gesamtmenge im Straßenablauf zu erwarten ist. Um quantitativ genauere Aussagen treffen zu können, hätte allerdings ein wesentlich umfangreicheres Analysenprogramm für den Parameter SBR durchgeführt werden müssen.

Die Anwendung der Pyrolyse-GC-MS zur Bestimmung von Styrol-Butadien-Kautschuk führte beim Einsatz von wässrigen Proben zu Negativbefunden, die vom Analysenlabor auf die vorliegende Probenmatrix zurückgeführt wurden. Hier ist eine Verbesserung des Analysenverfahrens erforderlich. Beim Einsatz von Trockenrückständen als Probenmaterial wurde SBR zwar detektiert, die Ergebnisse wurden jedoch als halbquantitativ eingestuft, da es auch in diesem Fall zu Überlagerungseffekten vor allem durch natürliche organische Stoffe kam.

5.7 Untersuchungen zur Langzeitstabilität von Proben

Der Einfluss einer längeren Lagerung von Wasserproben auf deren Matrices wurde anhand von zwei Referenzproben untersucht, die unterschiedliche Konzentrationen an AFS aufwiesen. Die Konzentrationen an gelöstem Sauerstoff nahmen in beiden Proben während der gesamten Zeit nur geringfügig von $11 \text{ mg}/\text{l}$ auf $10 \text{ mg}/\text{l}$ ab. Auch die Konzentrationen an TOC und DOC wiesen für beide Proben über den gesamten Untersuchungszeitraum ein annähernd gleichbleibendes Niveau auf.

Aus den Messwerten konnten für die betrachtete Zeitspanne von 3 Wochen keine signifikanten Veränderungen der Probenmatrices bei einer gekühlten Lagerung unter Lichtabschluss abgeleitet werden. Aerobe Abbauprozesse hätten zu einer deutlichen Abnahme der Sauerstoffkonzentration führen müssen. Anaerobe Prozesse wären durch die Abwesenheit von Sauerstoff gekennzeichnet, was bei beiden Proben nicht der Fall war. Mögliche Auswirkungen auf die Partikelgrößenverteilung in den Proben sind im Rahmen dieser Untersuchung nicht betrachtet worden.

5.8 Korrelation zwischen Trübungswerten und AFS-Konzentrationen

Der Parameter Trübung lässt sich rasch mit verhältnismäßig geringem Aufwand bestimmen. Er kann linear von der Konzentration der im Wasser enthaltenen Feststoffe abhängen, sofern die Partikelgrößenverteilung keiner großen Varianz unterliegt. Daher kann bei Einhaltung gewisser Randbedingungen eine Abschätzung der Feststoffkonzentration im Wasser anhand einer Trübungsmessung erfolgen.

Bei einer Auftragung der Parameter AFS63 und AFS_{gesamt} gegen die im Labor in den Proben gemessenen Trübungen zeigte sich, dass die Korrelation zwischen Trübung und AFS63 mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,68$ besser war als die zwischen Trübung und AFS_{gesamt} mit einem Wert von $R^2 = 0,36$. In beiden Fällen war jedoch eine relativ große Streuung der Werte um die jeweilige Regressionsgerade zu verzeichnen. Die Trübungsmessung wäre demnach nur bedingt geeignet, um eine verlässliche Aussage zur gesamten Feststoffkonzentration in den Proben zu treffen. Überschlägig könnte dagegen der Parameters AFS63 mit Hilfe der zugehörigen Regressionsgeraden $AFS63 = 1,26 \cdot \text{Trübung}$ aus dem Trübungswert abgeleitet werden.

5.9 Abflussgewichtete Konzentrationen und spezifischer Stoffabtrag

Für eine überschlägige Abschätzung des spezifischen Stoffabtrages wurden die abflussgewichteten Konzentrationen für die drei AFS-Fractionen (AFS63, AFS_{grob}, AFS_{gesamt}) für die einzelnen Quartale und den gesamten Untersuchungszeitraum ermittelt (Abbildung 12). In der Auswertung wurden hierbei nur die 69 vollständig beprobten Ereignisse berücksichtigt. Dabei zeigte sich, dass im ersten Quartal die Konzentration an AFS63 mit 242 mg/l mehr als doppelt so hoch ausfiel wie in den restlichen drei Quartalen. Für den Gesamtzeitraum wurde für die Fraktion AFS63 der Wert $c(\text{AFS63}) = 132 \text{ mg/l}$ und für die Fraktion AFS_{grob} der Wert $c(\text{AFS}_{\text{grob}}) = 73 \text{ mg/l}$ als abflussgewichtete Konzentrationen ermittelt. Unter Berücksichtigung der im Laubfang zurückgehaltenen Feststoffe, die einer abflussgewichteten Konzentration von $c(\text{AFS}_{\text{Laubfang}}) = 40 \text{ mg/l}$ entsprechen, ergibt sich für den Untersuchungsstandort ein spezifischer Stoffabtrag von $\dot{m}(\text{AFS}) = 1.365 \text{ kg}/(\text{ha} \cdot \text{a})$. Dieser fällt noch rund 30% höher aus als im vorangegangenen F+E-Vorhaben, in dem der ermittelte Abtrag bei rund $960 \text{ kg}/(\text{ha} \cdot \text{a})$ lag. Maßgeblich für den Unterschied dürfte der nur neunmonatige Untersuchungs- und Beprobungszeitraum des vorangegangenen Vorhabens sein, bei dem das besonders feststoffreiche erste Quartal nicht beprobt worden war.

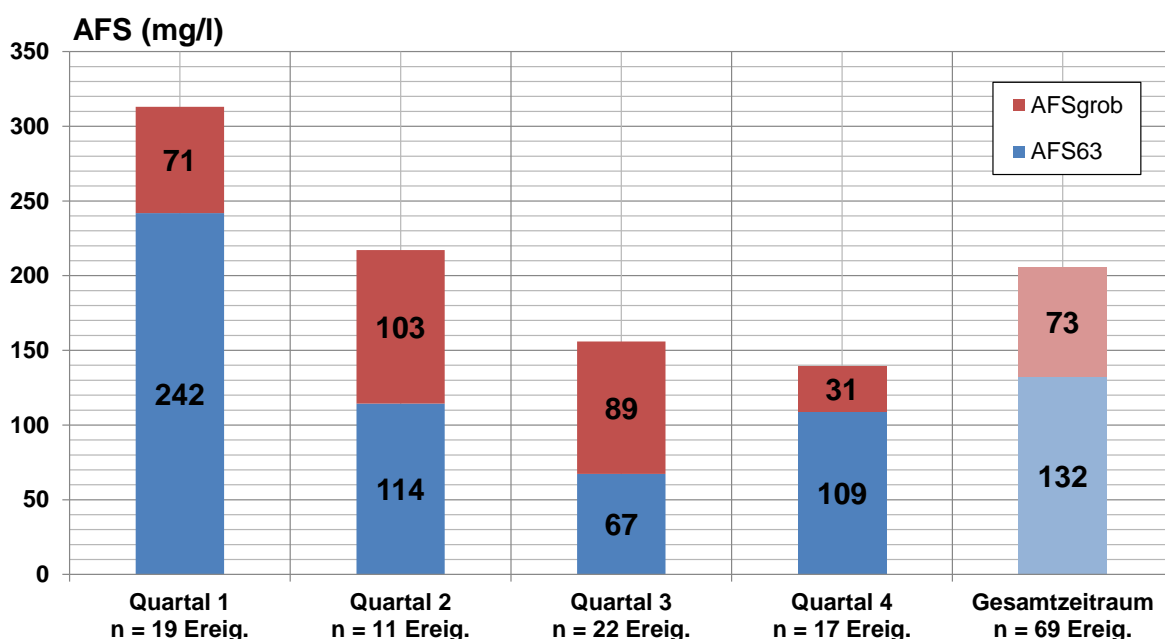


Abbildung 12: Abflussgewichtete mittlere Konzentrationen an AFS63 und AFS_{grob} für die einzelnen Quartale und den Gesamtzeitraum

5.10 Empfehlungen für die Auswahl von Prüfmedien zur Prüfung von dezentralen Abscheidern

Wie die in Abschnitt 5.6 dargestellten Ergebnisse zeigen, liegt der Medianwert des Partikeldurchmessers über alle Messungen bei 31 μm . Der Anteil von AFS63 an AFS_{gesamt} beträgt im Mittel 67%. Verglichen mit den in der Literatur zu findenden Angaben sind die Feststoffe also als relativ feinkörnig einzustufen. Bei den Glühverlusten liegt der Medianwert für AFS_{gesamt} bei 36%, wobei die Fraktion AFS_{grob} stärker dazu beiträgt (Medianwert 50%) als AFS63 (Medianwert 32%). Sie sind maßgeblich auf organische Anteile zurückzuführen, wie durch TOC-Messungen belegt werden kann. Die Korndichte beträgt für die Teilchen $<125 \mu\text{m}$ $\rho = 1,72 - 1,78 \text{ g/cm}^3$ und für Partikel $>125 \mu\text{m}$ im Mittel $\rho = 1,98 \text{ g/cm}^3$. Einzelpartikel, die wie synthetischer Reifenabrieb eine Dichte von $\rho = 1,15 \text{ g/cm}^3$ haben, ließen sich dagegen nicht identifizieren. Auch die mikroskopischen Untersuchungen zeigen, dass in allen Fraktionen heterogene Aggregate aus mineralischen Körnchen und einem dunklen Material vorkommen.

Ein Prüfmedium zur Prüfung von dezentralen Abscheidern sollte sowohl die in dieser Arbeit gefundenen Partikelgrößenverteilungen abbilden als auch dem organischen Anteil Rechnung tragen. Zudem sollte die Dichte des Materials eher bei $1,7 - 2,0 \text{ g/cm}^3$ liegen; Feinsand ist dazu also ungeeignet. Mit einem solchen Medium könnten vermutlich die Diskrepanzen, die sich in der Vergangenheit zwischen Prüfwerten und in der Praxis beobachteten Wirkungsgraden gezeigt haben, deutlich verringert werden.

5.11 Schlussfolgerungen hinsichtlich der Leistungsgrenzen von Absetzsystemen

Bei der Optimierung von Absetzsystemen zur Behandlung von Straßenabflüssen sollte man versuchen, den hier dargestellten Ergebnissen gerecht zu werden. Für die ermittelten Partikelgrößenverteilungen und -dichten wurde deshalb eine Abschätzung der bei einer Sedimentation zu erwartenden Wirkungsgrade wie folgt vorgenommen: Zunächst wurden die Partikelgrößenverteilungen quartalsweise und für den gesamten Zeitraum gemittelt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 13 zusammen mit der Größenverteilung von Millisil W4 dargestellt.

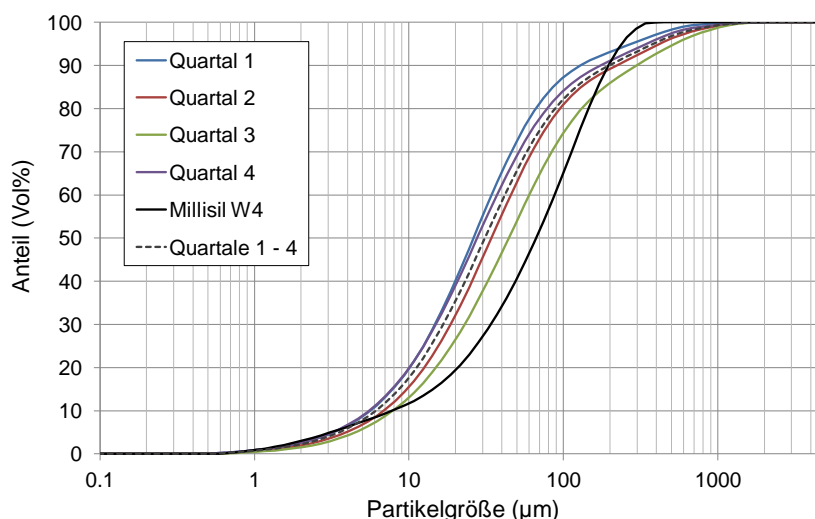


Abbildung 13: Mittlere Partikelgrößenverteilungen, quartalsweise und im gesamten Zeitraum

Unter Verwendung einer mittleren Partikeldichte von $1,75 \text{ g/cm}^3$ wurde dann für jede Größenklasse die Sinkgeschwindigkeit v_{sed} nach STOKES berechnet und mit den Oberflächenbeschickungen q_A verglichen. Bei einem Quotienten $v_{\text{sed}}/q_A \geq 1$ wurden die Partikel als vollständig abscheidbar klassifiziert, bei $v_{\text{sed}}/q_A < 1$ wurde nur ein entsprechender Anteil aus der jeweiligen Größenklasse berücksichtigt. Aus der Aufsummierung über alle Größenklassen ergab sich schließlich die insgesamt abscheidbare Stoffmenge und daraus durch Bezug auf die Ausgangsmenge der Gesamtwirkungsgrad.

Aufgrund des größeren Feinanteils in den Quartalen 1 und 4 waren die Wirkungsgrade für das Winterhalbjahr deutlich geringer als für die Sommermonate. Dieser Effekt ist auch aus praktischen Untersuchungen bekannt (Fettig et al., 2017). Für eine Oberflächenbeschickung von $4 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ führte die Abschätzung zu Wirkungsgraden von 40 - 57% für $\text{AFS}_{\text{gesamt}}$ und 23 - 28% für AFS_{63} .

Die auf der Basis der mittleren Partikelgrößenverteilungen für den gesamten Zeitraum gefundenen Ergebnisse sind in Abbildung 14 zusammen mit der entsprechenden Abschätzung für Millisil W4 aufgetragen. Demnach liegt der Wirkungsgrad bei einer Oberflächenbeschickung von $4 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ für $\text{AFS}_{\text{gesamt}}$ im Mittel bei 47% und für AFS_{63} bei 25%. Bei einer Oberflächenbeschickung von $10 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ gehen die Werte auf 33% bzw. 10% zurück.

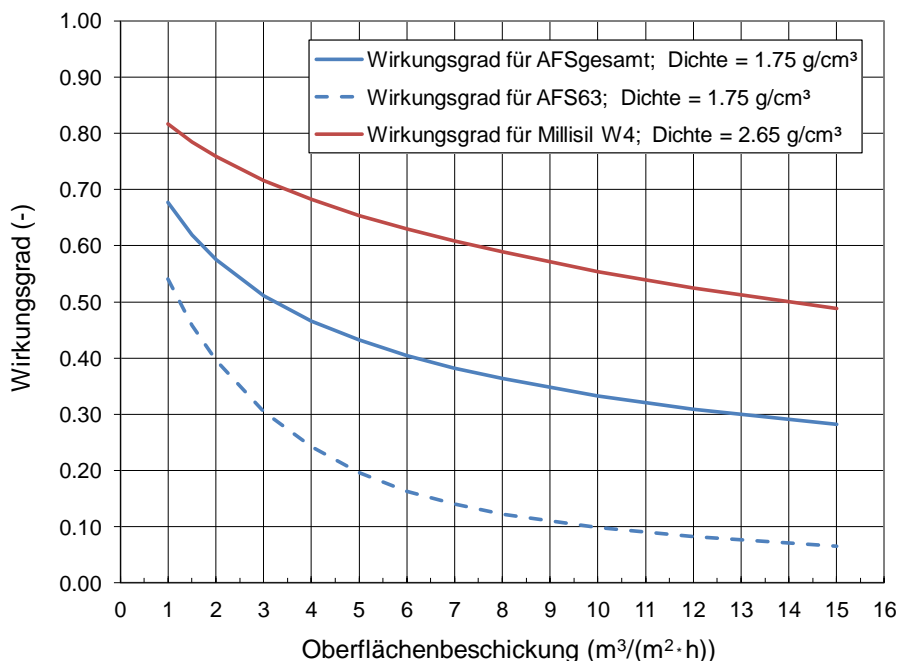


Abbildung 14: Berechnete Wirkungsgrade eines Absetzsystems für AFS, AFS_{63} und Millisil W4 bei 10°C

Außerdem wird deutlich, dass die für das Prüfmedium Millisil W4 berechneten Daten, bedingt durch die nach Abbildung 13 etwas gröbere Körnung sowie insbesondere durch die höhere Korndichte, erheblich über den für die Partikel im Straßenabfluss abgeschätzten Wirkungsgraden liegen.

Auch wenn die zugrunde gelegten Partikelgrößenverteilungen vom Standort beeinflusst sein mögen, können die in der Praxis beobachteten niedrigen Wirkungsgrade von Absetzsystemen mit der beschriebenen Abschätzung rechnerisch gut nachvollzogen werden. Zudem wird die in Abschnitt 5.10 gegebene Empfehlung bestätigt, dass mit einem Prüfmedium wie Millisil W4 das reale Verhalten bei der Sedimentation von Partikeln in Straßenabflüssen nur unzureichend abgebildet werden kann.

5.12 Ursache-Wirkungsbeziehungen ausgewählter Randbedingungen auf die stoffliche Belastung des Straßenabflusses

Festlegung der zu untersuchenden Randbedingungen

Die Fragestellung, inwieweit bestimmte Randbedingungen die stoffliche Belastung des Straßenabflusses beeinflussen, wurde anhand der aufgezeichneten Daten aus dem Untersuchungszeitraum für die folgenden Parameter betrachtet:

- Dauer der einem Niederschlagsereignis vorangegangenen Trockenphase (Dauer TP)
- Verkehrsaufkommen während der vorangegangenen Trockenphase (Kfz TP)
- Verkehrsaufkommen während des beprobten Niederschlagsereignisses (Kfz PN)
- Niederschlagshöhe des Ereignisses (NS Höhe)
- Maximaler Volumenstrom Q_{max} gemäß der Daten des Q-Loggers (Q max PN)
- Mittlere Windrichtung während des Ereignisses (Windrichtung)

Für die Ermittlung der Trockenphasen vor einem beprobten Ereignis wurde bei Auswertung der Daten des Regenmessers zur Trennung der Ereignisse neben der festgelegten Trockenzeit von 240 Minuten auch ein Trockenäquivalent von $h_N = 0,5$ mm berücksichtigt. Dies bedeutet, dass ein Niederschlagsereignis nach einer Trockenzeit von 240 Minuten mindestens eine Niederschlagshöhe von $h_N = 0,5$ mm aufweisen musste, um als solches gewertet zu werden.

Beschreibung der statistischen Auswertung

Aufgrund der hohen Anzahl der zu untersuchenden Parameter und der zugrundeliegenden Daten wurde die statistische Auswertung mit der Software R (Version 3.6.3) in Form einer Rangkorrelationsanalyse nach Kendall durchgeführt. Das Verfahren eignet sich sowohl für normal- als auch nichtnormalverteilte Daten und weist eine geringe Empfindlichkeit gegen Ausreißerpaare auf.

Ergebnisse

Die Korrelationsanalyse zwischen der stofflichen Belastung des Straßenabflusses und den o.a. Einflussgrößen zeigte signifikante Korrelationen nur mit den hydrologischen und hydraulischen Bedingungen während des jeweiligen Niederschlagsereignisses auf. Stärkere Niederschläge mit höheren Spitzenabflüssen führten demnach zu höheren AFS-Frachten. Abhängigkeiten von der Verkehrsstärke und der Dauer der vorangegangenen Trockenphase konnten für den Untersuchungsstandort dagegen nicht abgeleitet werden, obwohl für diese Parameter bei längeren Zeiträumen ein Einfluss aufgrund eines erhöhten Feststoffaufkommens aus der Deposition und dem Abrieb von Reifen und Straßenbelag zu erwarten sein sollte.

Dies setzte bei einer frachtbezogenen Betrachtung allerdings voraus, dass während eines Niederschlagsereignisses die gesamten auf der Straßenoberfläche abgelagerten Feststoffe zum Abfluss gelangen. Wenn dagegen nur ein Teil abgetragen wird, könnte es durch die verbleibenden Feststoffe zum Aufbau eines Depots auf der Straßenfläche kommen.

Auf einen gewissen Depoteffekt deutet auch die Beobachtung hin, dass es selbst nach längerer Dauer eines Niederschlagsereignisses noch zu einem Anstieg der AFS-Werte kommen kann, wenn der Volumenstrom des abfließenden Wassers wieder zunimmt.

Für zwei Ereignisse wurde aus den AFS-Frachten auf eine für den Abtrag verfügbare mittlere Flächenkonzentration zurückgerechnet. Sie lag bei 3,8 g AFS/m² Straßenfläche und damit im unteren Bereich der Spannweite von 2,5 – 55 g AFS/m², die von Zhao et al. (2018) für asphaltierte Straßenflächen mit unterschiedlichen Rauigkeiten genannt worden ist. Es wäre also gut möglich, dass die Flächenkonzentration an AFS am Standort an der B64 wesentlich höher anzunehmen ist als mit $c(\text{AFS}) = 3,8 \text{ g AFS/m}^2$. Die damit verbundene Pufferwirkung könnte eine Erklärung dafür sein, dass eine Abhängigkeit der AFS-Fracht von der vorangegangenen Trockendauer und dem Verkehrsaufkommen nicht zu erkennen war.

Eine schwache Abhängigkeit der AFS-Fracht vom Verkehrsaufkommen hat sich jedoch während eines Ereignisses gezeigt. Hierfür wird nicht nur der (geringe) kontinuierliche Feststoffeintrag durch Reifen- und Straßenabrieb verantwortlich gemacht, sondern vielmehr auch physikalisch-mechanische Effekte beim Kontakt zwischen Reifen und Straße, die aufgrund des damit verbundenen Energieeintrages zu einer vermehrten Freisetzung von im Porenraum abgelagerten Feststoffen führen könnten.

Für ein besseres Verständnis der Speicherung und Freisetzung von Feststoffen auf Straßenoberflächen wird es jedoch erforderlich sein, weitere Untersuchungen zu den Abtragsprozessen und den sie bestimmenden Parametern durchzuführen.

6 Kernbefunde

- Am Versuchsstand an der B64 (Ortsausfahrt Höxter) wurden 81 Niederschlagsereignisse mit abflusswirksamen Volumina von 0,5 – 5,0 m³ zeitlich hoch aufgelöst erfasst. Für den pH-Wert wurde ein Medianwert von pH = 6,9 mit geringen jahreszeitlichen Schwankungen ermittelt. Die Leitfähigkeit wies einen Medianwert von LF = 129 µS/cm auf, allerdings kamen im Winter auch extrem hohe Werte vor. Die Trübung war in den Winterquartalen deutlich höher als in den Sommerquartalen.
- Der Medianwert der AFS63-Konzentration für alle Proben betrug 76 mg/l. Die höchsten Konzentrationen traten im ersten Quartal (Medianwert 160 mg/l) auf. Der Anteil der Fraktion AFS63 an AFS_{gesamt} wies insgesamt einen Medianwert von 67% auf, wobei er im Winter signifikant höher war als im Sommer. Bei den meisten beprobten Ereignissen war ein ausgeprägter „First-flush-Effekt“ zu beobachten.
- Der Glühverlust für die Fraktion AFS63 hatte einen Medianwert von 32%, während er für AFS_{gesamt} bei 36% lag. Diese Größenordnung für den organischen Anteil der Partikel konnte durch TOC-Messungen bestätigt werden.
- Die Partikel hatten einen mittleren Korndurchmesser von d₅₀ = 31 µm. Im Winter war er etwas niedriger als im Sommer, und die Proben zeigten sich hinsichtlich der Größenverteilung homogener. Die Anteile der Fraktion AFS63 an AFS_{gesamt} wurden durch die Ergebnisse der Partikelgrößenanalysen bestätigt.
- Für die Fraktion d > 125 µm wurde eine mittlere Korndichte von 1,98 g/cm³ ermittelt, während sie bei den Fraktionen 63 < d < 125 µm, 25 < d < 63 µm und d < 25 µm bei 1,72 – 1,78 g/cm³ lag. Einzelpartikel mit einer Dichte von 1,15 g/cm³ analog zu synthetischem Reifenabrieb ließen sich nicht identifizieren. Mikroskopische Untersuchungen zeigten dagegen, dass in allen Fraktionen heterogene Aggregate aus mineralischen Körnchen und einem dunklen Material vorkamen.
- Analysen mittels Thermo-Extraktion-Desorption-GC-MS ergaben einen Massenanteil von aus dem Parameter SBR abgeleiteten Reifenabrieb von 4,4 – 8%, bezogen auf AFS_{gesamt}. Die daraus berechneten Konzentrationen an Reifenabrieb im Straßenabfluss lagen mit einem arithmetischen Mittelwert von 32 mg/l bei ca. 50% des aus theoretischen Überlegungen abgeleiteten Maximalwertes von 62 mg/l.
- Aus abflussgewichteten Konzentrationen wurde für den Untersuchungsstandort ein spezifischer Stoffabtrag von $\dot{m}(\text{AFS}_{\text{gesamt}}) = 1.365 \text{ kg}/(\text{ha} \cdot \text{a})$ abgeschätzt.
- Ein Medium zur Prüfung von dezentralen Abscheidern sollte die hier ermittelten Korngrößenverteilungen abbilden und ihrem organischen Anteil Rechnung tragen. Zudem sollte die Materialdichte unter 2,0 g/cm³ liegen. Mit den gefundenen Korngrößen und Korndichten sind klare Leistungsgrenzen für dezentrale Abscheider gegeben. So ist für ein Absetzsystem bei einer Oberflächenbeschickung von 4 m/h für die Fraktion AFS63 nur ein Wirkungsgrad von etwa 25% zu erwarten.
- Eine Korrelationsanalyse möglicher Ursache-Wirkungs-Beziehungen zwischen der stofflichen Belastung des Straßenabflusses und verschiedenen Randbedingungen zeigte signifikante Korrelationen nur mit den hydrologischen und hydraulischen Verhältnissen während des jeweiligen Niederschlagsereignisses. Abhängigkeiten von der Verkehrsstärke, der Dauer der vorangegangenen Trockenphase und weiteren meteorologischen Bedingungen konnten dagegen nicht abgeleitet werden.

7 Literatur

Barjenbruch, M., Kober, P.: Vergleich der Zu- und Ablaufwerte der dezentralen Anlagen in situ. Abschlusspräsentation zum Projekt „Dezentrale Reinigung von Straßenabflüssen“ im Berliner Umweltentlastungsprogramm UEPII/2, Berlin, 5. Oktober 2015.

Baumann, W., Ismeier, M.: Kautschuk und Gummi. Daten und Fakten zum Umweltschutz Bd. 1, Springer-Verlag, Berlin 1998.

Bertling, J., Bertling, R., Hamann, L.: Kunststoffe in der Umwelt: Mikro- und Makroplastik. Ursachen, Mengen, Umweltschicksale, Wirkungen, Lösungsansätze, Empfehlungen. Kurzfassung der Konsortialstudie des Fraunhofer-Instituts für Umwelt-, Sicherheits- und Energietechnik, Oberhausen 2018.

Borg Olesen, K., Stephansen, D.A., van Alst, N., Vollertsen, J.: Microplastics in a Stormwater Pond. *Water* (2019) 11, 1466; doi:10.3390/w11071466

Charters, F.J., Cochrane, T.A., O'Sullivan, A.D.: Particle size distribution variance in untreated urban runoff and its implication on treatment selection. *Water Res.* 85 (2015), 337-345.

Dierschke, M.: Methodischer Ansatz zur Quantifizierung von Feinpartikeln (PM63) in Niederschlagsabflüssen in Abhängigkeit von der Herkunftsfläche. Dissertation, TU Kaiserslautern 2014.

Eisentraut, P., Erik Dümichen, E., Ruhl, A.S., Jekel, M., Albrecht, M., Gehde, M., Braun, U.: Two Birds with One Stone-Fast and Simultaneous Analysis of Microplastics: Microparticles Derived from Thermoplastics and Tire Wear. *Environ. Sci. Technol. Lett.* 2018, XXX, XXX-XXX; doi:10.1021/acs.estlett.8b00446

Enfrin, M., Dumée, L.F., Lee, J.: Nano/microplastics in water and wastewater treatment processes - Origin, impact and potential solutions. *Wat. Res.* 161 (2019), 621-638.

Fettig, J., Pick, V., Liebe, H.: Particle separation from road runoff by a decentralised lamella system – laboratory tests and experiences in the field. *Wat. Sci. Technol.* 75 (2017) 9, 2056-2063.

Gehrke, I., Bertling, R.: Kunststoffemissionen im Wasserkreislauf. *Korrespondenz Abwasser Abfall* 67 (2020) 2, 99-104.

Grotehusmann, D., Kornmayer, K.: Immissionsbezogene Bewertung der Einleitung von Straßenabflüssen. Bericht für die Niedersächsische Landesbehörde für Straßenbau und Verkehr, Hannover 2018.

Grüning, H., Schmitz, T.: Systeme zur technischen Regenwasserfiltration, Teil 2: Kennwerte und Bemessung. *gwf Wasser | Abwasser* 159 (2018) 3, 63-69.

Hartmann, N.B., Hüffer, T., Thompson, R.C., Hassellöv, M., Verschoor, A., Daugaard, A.E., Rist, S., Karlsson, T., Brennholt, N., Cole, M., Herrling, M.P., Hess, M.C., Ivleva, N.P., Lusher, A.L., Wagner, M.: Are We Speaking the Same Language? Recommendations for a Definition and Categorization Framework for Plastic Debris. *Environ. Sci. Technol.* 53 (2019), 1039–1047.

Herr, C., Sansalone, J.J.: In Situ Volumetric Filtration Physical Model to Separate Particulate Matter from Stormwater. *J. Environm. Engrg.* 2015; doi:10.1061/(ASCE)EE.19437870.0000946

Kathmann, T., Ziegler, H., Thomas, B.: Straßenverkehrszählung 2005, Methodik. Berichte der Bundesanstalt für Straßenwesen (bast), Verkehrstechnik Heft V 179, 15, DTV-Verkehrsconsult GmbH, Aachen 2005.

Kole, P.J., Löhr, A.J., Van Belleghem, F.G.A.J., Ragas, A.M.J.: Wear and Tear of Tyres: A Stealthy Source of Microplastics in the Environment. *Int. J. Environ. Res. Public Health* (2017) 14, 1265; doi:10.3390/ijerph14101265

Kreider, M.L., Panko, J.M., McAtee, B.L., Sweet, L.I., Finley, B.L.: Physical and chemical characterization of tire-related particles: Comparison of particles generated using different methodologies. *Science of the Total Environment* 408 (2010), 652–659.

Liu, Y., Wang, C., Yu, Y., Chen, Y., Du, L., Qu, X., Peng, W., Zhang, M., Gui, C.: Effect of Urban Stormwater Road Runoff of Different Land Use Types on an Urban River in Shenzhen, China. *Water* (2019), 11, 2545; doi:10.3390/w11122545

Luhana, L., Sokhi, R., Warner, L., Mao, H., Boulter, P., McCrae, I., Wright, J., Osborn, D.: Characterisation of exhaust particulate emissions from road vehicles, Deliverable 8: Measurement of non-exhaust particulate matter. EC-Project Report, Hatfield, UK 2004.

Malene Nielsen, M., Winther, M., Boll Illerup, J., Hjort Mikkelsen, M.: Danish emission inventory for particulate matter (PM). Research Note No. 189, National Environmental Research Institute, Denmark 2003. <http://research-notes.dmu.dk>

Ntziachristos, L., Boulter, P.: Road transport: Automobile tyre and brake wear, and road abrasion. *Air Pollutant Emission Inventory Guidebook*, European Environmental Agency, 2016.

Nyström, F., Nordquist, K., Herrmann, I., Hedström, A., Viklander, M.: Treatment of road runoff by coagulation/flocculation and sedimentation. *Wat. Sci. Technol.* 79 (2019) 3, 518-525.

Panko, J.M., Chu, J.A., Kreider, M.L., McAtee, B.L., Unice, K.M.: Quantification of tire and road wear particles in the environment. *Transactions on The Built Environment Vol. 128*, WIT Press 2012; doi:10.2495/UT120061

Rommel S.H., Helmreich, B.: Influence of Temperature and De-Icing Salt on the Sedimentation of Particulate Matter in Traffic Area Runoff. *Water* (2018) 10, 1738; doi:10.3390/w10121738

Sun, S., Barraud, S., Castebrunet, H., Aubin, J., Marmonier, P.: Long-term stormwater quantity and quality analysis using continuous measurements in a French urban catchment. *Water Res.* 85 (2015), 432-442.

Wagner, S., Hüffer, T., Klöckner, Ph., Wehrhahn, M., Hofmann, T., Reemtsma, T.: Tire wear particles in the aquatic environment - A review on generation, analysis, occurrence, fate and effects. *Wat. Res.* 139 (2018), 83-100.

Wik, A., Dave, G.: Occurrence and effects of tire wear particles in the environment – A critical review and an initial risk assessment. *Environm. Pollut.* 157 (2009), 1-11.

Winston, R.J., Hunt, W.F.: Characterizing Runoff from Roads: Particle Size Distributions Nutrients, and Gross Solids. *J. Environm. Engrg.* 143 (2017) 1; doi:10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001148

Zhao, H., Jian, Q., Xie, W., Li, X., Yin, C.: Role of urban surface roughness in road-deposited sediment build-up und wash-off. *J. Hydrology* 560 (2018), 77-79.