

TEXTE

28/2018

Emissions- und Übertragungsfunktionen für die Modellierung der Auslaugung von Bauprodukten

TEXTE 28/2018

Projektnummer 92669

UBA-FB 002629

Emissions- und Übertragungsfunktionen für die Modellierung der Auslaugung von Bauprodukten

von

Olaf Tietje

Gruppe Mathematik, HSR Hochschule für Technik, Rapperswil

Michael Burkhardt, Mirko Rohr

Institut für Umwelt und Verfahrenstechnik, HSR Hochschule für Technik,
Rapperswil

Nicole Borho

Dr. Robert-Murjahn-Institut (RMI), Ober-Ramstadt

Ute Schoknecht

Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), Berlin

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber:

Umweltbundesamt
Wörlitzer Platz 1
06844 Dessau-Roßlau
Tel: +49 340-2103-0
Fax: +49 340-2103-2285
info@umweltbundesamt.de
Internet: www.umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt

Durchführung der Studie:

HSR Hochschule für Technik Rapperswil
Oberseestraße 10
Postfach 1475
8640 Rapperswil
Schweiz

Abschlussdatum:

November 2017

Redaktion:

Fachgebiet III 1.4 Stoffbezogene Produktfragen
Outi Ilvonen

Publikationen als pdf:

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen>

ISSN 1862-4359

Dessau-Roßlau, April 2018

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

Kurzbeschreibung

Die wetterbedingte Auslaugung von Stoffen aus Bauteilen kann zu einer Belastung von Boden, Grundwasser oder Oberflächengewässern führen. Die physikalischen und chemischen Prozesse, die dem Stofftransport an die Materialoberfläche zu Grunde liegen, sind dynamisch und multidimensional. Um die Stoffauswaschung besser zu verstehen und das damit verbundene Umweltrisiko besser einschätzen zu können, wurde das Simulationsmodell COMLEAM (COstruction Material LEAching Model) eingesetzt. COMLEAM ist eine Software, mit der der Transportpfad vom berechneten Bauteil bis zum Umweltkompartiment berechnet wird. Ein Teil dieses Modells sind Emissionsfunktionen, die die *Abhängigkeit der Stoffemission vom Wasserabfluss* beschreiben. Die Emissionsfunktionen fassen eine Reihe von Verteilungs- und Transformationsprozessen zusammen, die wiederum stark von einer zufälligen Variation von Einflussfaktoren abhängen.

Von den hier angewendeten fünf Funktionen, die an drei Felddatensätzen mit der Substanz Terbutryn in verputzten Fassaden umfassend getestet wurden, ist eine Vorhersage mit der logarithmischen Emissionsfunktion als die derzeit bestmögliche Schätzung zu betrachten. Die logarithmische Emissionsfunktion konnte die verwendeten drei Messdatensätze (Felddaten zur Auswaschung von Terbutryn aus Fassadenputz) mit einem akzeptablen residualen Standardfehler (rse, von 3 % bis 6 % der im jeweiligen Datensatz maximalen kumulativen Emission) beschreiben. Die logarithmische Emissionsfunktion hat den Vorteil, dass sie bei der Extrapolation tendenziell nur zu einer leichten Überschätzung der Emissionen führt. Bei anderen Funktionen muss bei der zeitlichen Extrapolation der Messdaten mit großen Überschätzungen gerechnet werden (diffusionsgetriebene und doppelt loglineare Emissionsfunktion) oder damit, dass die Daten stark unterschätzt werden (Emissionsfunktionen begrenztes Wachstum und Langmuir-Emissionsfunktion).

In einer Sensitivitätsanalyse zur Höhe eines Gebäudes bzw. der Fassaden wurde gezeigt, dass neben der Wahl der Emissionsfunktion die Ausrichtung einer Fassade als Eingangsgröße des Modells den größten Einflussfaktor für die Extrapolation von Daten sowie bei der abgeschätzten Gewässerbelastung darstellt. Eine Übertragungsfunktion, mit der die Gewässerbelastung aufgrund der Auswaschung am Gebäude abgeschätzt werden soll, kann daher mit einem Standardgebäude, eventuell unter Berücksichtigung von zwei Gebäudehöhen, und unter Berücksichtigung der Ausrichtung der Bauteile umgesetzt werden.

Abstract

The leaching behaviour of substances from construction products and buildings influence their occurrence in soil, groundwater and surface waters. The physical and chemical processes underlying mass transfer to the material surface are dynamic and multidimensional. In order to better understand the leaching of substances and to be able to better assess the associated environmental risk, the simulation model COMLEAM (COnstruction Material LEAching Model) was used. COMLEAM is a software that calculates the transport path from the component to the environment. Part of this model are emission functions describing the relation between the substance emission and runoff. The emission functions combine a series of distribution and transformation processes, which depend strongly on a random variation of influencing factors.

Out of the five emission functions extensively tested with three field data sets with the substance Terbutryn (biocide) in plastered facades, the logarithmic emission function is considered to give the best predictions. The logarithmic emission function was able to describe the three measured data sets used (field data for leaching of Terbutryn from facade plaster) with an acceptable residual standard error (rse, from 3 % to 6 % of the maximum cumulative emission in the respective data set). Moreover, this function has the advantage to overestimate the extrapolated emissions only slightly. For other functions, the measured data were largely overestimated (diffusion-controlled and double-loglinear emission function) or greatly underestimated (emission functions limited growth and Langmuir emission function).

In a sensitivity analysis for the height of a building or facades, it could be demonstrated that, in addition to the choice of the emission function, the orientation of a façade as the input variable of the model is the most important factor influencing the extrapolation of data as well as the estimated water pollution. A transfer function designed to estimate the water pollution due to leaching at the building can therefore be implemented with a standard building, possibly taking into account two building heights, and taking into account the orientation of the building components as a requirement.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	8
Tabellenverzeichnis	10
Zusammenfassung.....	11
Summary.....	14
1 Einleitung	17
1.1 Ziel des Projekts	18
2 Modellierung	20
2.1 Emissionsfunktionen.....	20
2.1.1 Logarithmische Emissionsfunktion.....	21
2.1.2 Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum.....	23
2.1.3 Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion.....	24
2.1.4 Langmuir-Emissionsfunktion und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion.....	25
2.1.5 Doppelt loglineare Emissionsfunktion	26
2.2 Modellierungs-Software COMLEAM.....	27
2.3 Schlagregenberechnung	29
2.4 Bilanzierung der Wasser- und Stoffmengen	30
3 Beschreibung der Eingabedaten.....	30
4 Beurteilung der Emissionsfunktionen.....	32
4.1 Beurteilungskriterien	32
4.2 Ergebnisse der Anpassungen an die Emissionsfunktionen.....	34
4.2.1 Logarithmische Emissionsfunktion.....	34
4.2.2 Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum.....	35
4.2.3 Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion.....	36
4.2.4 Langmuir- und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion	37
4.2.5 Doppelt log-lineare Emissionsfunktion	37
4.2.6 Übersicht über die Ergebnisse der Funktionsanpassungen	38
4.3 Beschreibung der Simulationen.....	40
4.3.1 Simulationsparameter.....	42
4.4 Vergleich zwischen Messung und Simulation.....	43
4.4.1 Simulationsergebnisse über die Versuchsdauer	43
4.4.2 Extrapolation der Versuchsdaten mittels Modellierung.....	44
4.5 Vorhersage der Abfluss-Emissions-Relation	45
5 Beurteilung der Übertragungsfunktion	46
5.1 Beschreibung der Szenarien	46

5.2	Ergebnisse für die simulierten Szenarien	48
6	Diskussion und Schlussfolgerungen.....	50
6.1	Beurteilung der Emissionsfunktionen.....	50
6.2	Beurteilung der Übertragungsfunktion	51
6.3	Ausblick.....	52
7	Quellenverzeichnis.....	54
Anhang	56

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Systemübersicht zur Auslaugung von Stoffen aus horizontal und vertikal beregneten Bauteilen bzw. Bauprodukten und den Eintragswegen in Boden und Gewässer.....	17
Abbildung 2: Physikalische Bedeutung der charakteristischen Parameter der logarithmischen Emissionsfunktion, dargestellt anhand des Wirkstoffs Terbutryn am Standort Zürich.	23
Abbildung 3: Parameterbereiche, aus denen die Eingangsgrößen für COMLEAM stammen.	28
Abbildung 4: Schema zur Schlagregenerberechnung an vertikal ausgerichteten Bauteilen.	29
Abbildung 5: Ergebnisse der Feldstudie Zürich mit <i>Terbutryn frei</i> (ca. 1 Jahr) und <i>Terbutryn verkapselt</i> (ca. 2 Jahre) und Ober-Ramstadt mit <i>Terbutryn frei</i> (ca. 1 Jahr). Alle Prüfkörper waren verputzt und mit unterschiedlichen Ausgangsmengen vom Wirkstoff Terbutryn ausgerüstet.	32
Abbildung 6: Kurvenanpassung der logarithmischen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (<i>Terbutryn frei</i>) und RMI (<i>Terbutryn frei</i>) (links), sowie Zürich (<i>Terbutryn verkapselt</i>) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts; Versuchsdauer fast zwei Jahre)	35
Abbildung 7: Kurvenanpassung der Emissionsfunktion begrenztes Wachstum an den Standorten Zürich (<i>Terbutryn frei</i>) und RMI (<i>Terbutryn frei</i>) (links), sowie Zürich (<i>Terbutryn verkapselt</i>) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)	36
Abbildung 8: Kurvenanpassung der diffusionsgetriebenen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (<i>Terbutryn frei</i>) und RMI (<i>Terbutryn frei</i>) (links), sowie Zürich (<i>Terbutryn verkapselt</i>) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)	36
Abbildung 9: Kurvenanpassung der Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (<i>Terbutryn frei</i>) und RMI (<i>Terbutryn frei</i>) (links), sowie Zürich (<i>Terbutryn verkapselt</i>) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts) .	37
Abbildung 10: Kurvenanpassung der doppelt loglinearen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (<i>Terbutryn frei</i>) und RMI (<i>Terbutryn frei</i>) (links), sowie Zürich (<i>Terbutryn verkapselt</i>) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)	38
Abbildung 11: Doppelt loglineare Emissionsfunktion für Zürich, Terbutryn verkapselt: Bereich der ersten Anpassung (grün), Bereich der zweiten Anpassung (blau), Bereich der Extrapolation (hellblau)	38
Abbildung 12: Residualer Standardfehler in [mg/m ²] (oben) und relativ residualer Standardfehler (in Prozent) (unten) zum Maximum der im jeweiligen Datensatz gemessenen kumulativen Emission. Residuale Standardfehler rse_A für die Datensätze a) Zürich <i>Terbutryn frei</i> , b) RMI	

Terbutryn frei und c) *Zürich Terbutryn verkapselt* sowie residualer Standardfehler rse_k für die Anpassung der Emissionsfunktionen an die erste Hälfte des Datensatzes *Zürich Terbutryn verkapselt* (d-Anpassung) und residualer Standardfehler rse_x für die Extrapolation der Emissionsfunktionen auf die zweite Hälfte des Datensatzes *Zürich Terbutryn verkapselt* (e-Extrapolation). 39

Abbildung 13: Übersicht über die Unsicherheiten bei der Emissionssimulation von Emissionen aus Fassaden..... 41

Abbildung 14: Simulationsergebnisse *Zürich Terbutryn frei* (links oben), *RMI Terbutryn frei* (rechts oben), *Zürich Terbutryn verkapselt* (links unten) und *Zürich Terbutryn verkapselt Extrapolation* (rechts unten)..... 44

Abbildung 15: Simulierte kumulative Emissionsfunktion (grün, teilweise verdeckt) und vorgegebene logarithmische Emissionsfunktion (blau, gestrichelt) (*Zürich Terbutryn frei*)..... 46

Abbildung 16: Terbutryn-Emissionen je Quadratmeter Fassadenfläche an den vier Fassaden des OECD-Hauses (links) und Terbutryn-Emissionen an den Westfassaden für das OECD-Haus (Höhe 2,5 m), für das DIBt-Haus (Höhe 7,5 m) und für das Hochhaus (Höhe 21 m) (rechts)..... 48

Abbildung 17: Konzentration von Terbutryn im benachbarten Fließgewässer für ein OECD Haus mit 2,5 m Höhe (links oben), für das DIBt-Haus mit 7,5 m Höhe (rechts oben) und für das Hochhaus mit 21 m Höhe (links unten) 49

Abbildung A 1: Relative Niederschlagsmenge nach Windrichtung (links) und Niederschlagsmenge pro Jahr (rechts) am Standort Hamburg 56

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Logarithmische Emissionsfunktion	21
Tabelle 2: Beispiele für den charakteristischen Abfluss und den charakteristischen Stoffanteil	22
Tabelle 3: Emissionsfunktion begrenztes Wachstum.....	24
Tabelle 4: Emissionsfunktion gemäß Diffusionsansatz.....	25
Tabelle 5: Langmuir Emissionsfunktion und Michaelis-Menten-Kinetik.....	26
Tabelle 6: Doppelt-loglineare Emissionsfunktion mit 5 Parametern	27
Tabelle 7: Übersichtsdaten der Feldstudien Zürich und Ober-Ramstadt.....	31
Tabelle 8: Simulationseinstellungen und -parameter für die drei Felddatensätze	42
Tabelle 9: Fassadenanteile nach Exposition für das OECD-Haus mit 2,5 m Höhe, das DIBt-Haus mit 7,5 m Höhe und das Hochhaus mit 21 m Höhe.....	47
Tabelle 10: Parameter der Schlagregenberechnung nach DIN EN ISO 15927 (2009)	48
Tabelle 11: Anzahl und Dauer von Grenzwertüberschreitungen der Gebäudeszenarien.	50
Tabelle A 1: Parameterwerte der logarithmischen Emissionsfunktion.....	56
Tabelle A 2: Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum	56
Tabelle A 3: Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion	57
Tabelle A 4: Langmuir- und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion.....	57
Tabelle A 5: Doppelt log-lineare Emissionsfunktion.....	57

Zusammenfassung

Durch den Einfluss des Wetters werden aus Bauprodukten bzw. Gebäuden während ihrer Nutzungsphase Stoffe ausgewaschen und in den Boden, in das Grundwasser oder in Oberflächengewässer eingetragen. Eine rationale Risikoabschätzung erfordert ein Modell für diesen Prozess, wie es mit dem *Construction Material Leaching Model* (COMLEAM, entwickelt durch die HSR) vorliegt. Darin werden zunächst in Abhängigkeit vom Wetter, von der Geometrie eines Bauteils und von den Emissionsparametern des Oberflächenmaterials der Abfluss von Wasser und die Emission von Substanzen aus dem Bauteil berechnet. Anschließend wird die Fracht, von einem Schnittstellenkompartiment ausgehend, in den Boden, in das Grundwasser oder in ein Oberflächengewässer verteilt. So kann die Umweltbelastung durch möglicherweise umweltproblematische Stoffe abgeschätzt werden.

Die Unsicherheiten bei der Modellanwendung entstehen durch die Wetterdaten (z.B. weil die Daten nicht direkt bei einer Fassade erhoben wurden), durch die Schlagregenberechnung (die hier nach der ISO-Norm erfolgt, DIN EN ISO 15927, 2009), durch die Emissionsberechnung (für die auf der Betrachtungsskala nicht alle Prozesse quantifizierbar sind) und durch die Voraussetzung unter den spezifischen Standortfaktoren, für die klimatische (Wetter), technische (Baumaterialien) und geographische (Stadt, Land, Wohn- und Industriegebiete) Randbedingungen angenommen werden müssen.

Für die in jedem Prozessmodell zur Auslaugung von Baustoffen vorhandene funktionale Abhängigkeit, mit dem die Emission in Abhängigkeit vom Abfluss berechnet wird, wird eine Emissionsfunktion verwendet. Die Emissionsfunktion beschreibt den Zusammenhang zwischen dem Abfluss und der dadurch hervorgerufenen Emission einer Substanz.

Das Ziel dieser Studie ist es, die Unsicherheiten bei der Emissionsberechnung abzuschätzen, einzugrenzen und deren Auswirkungen in Emissionsszenarien aufzuzeigen. Mit Hilfe der Ergebnisse soll eine mathematische Form für die Emissionsfunktion empfohlen werden. Daraus ergeben sich die folgenden Fragen:

- ▶ Welche Emissionsfunktion kann den gemessenen Zusammenhang zwischen Wasserabfluss und Emission am besten beschreiben?
- ▶ Welche Faktoren und Parameter der Emissionssimulation haben in einer realen Einbausituation besonders großen Einfluss? Wie wirken sich die notwendigen Annahmen und Vereinfachungen auf die langfristige Risikobeurteilung der Emission einer Substanz aus einem Bauteil aus?

Die Abfluss-Emissionsmessungen stammen aus drei unabhängigen Felduntersuchungen:

- ▶ Standort Zürich, Material Putz, Substanz Terbutryn frei (nicht verkapselt eingesetztes Biozid)
- ▶ Standort Robert-Murjahn-Institut RMI, Ober-Ramstadt, Material Putz, Substanz Terbutryn frei
- ▶ Standort Zürich, Material Putz, Substanz Terbutryn verkapselt

Zur Modellierung der funktionalen Abhängigkeit der kumuliert emittierten Stoffmenge (in mg/m²) von der kumulierten Menge an Ablaufwasser (in L/m²) wurden folgende fünf Funktionen untersucht:

- ▶ Logarithmische Emissionsfunktion $E_{\log}(q) = c_0 \cdot a_{\text{char}} \cdot \ln\left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}}\right)$
- ▶ Emissionsfunktion begrenztes Wachstum $E_{\text{LG}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{LG}} \cdot (1 - \exp(-b_{\text{LG}} \cdot q))$
- ▶ Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion $E_{\text{Diff}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{Diff}} \cdot \sqrt{q}$

- ▶ Langmuir-Emissionsfunktion

$$E_{\text{Langmuir}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{Langmuir}} \cdot \frac{b_{\text{Langmuir}} \cdot q}{1 + b_{\text{Langmuir}} \cdot q}$$
- ▶ Michaelis-Menten-Emissionsfunktion

$$E_{\text{MM}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{MM}} \cdot \frac{q}{K_{\text{MM}} + q}$$
- ▶ Doppelt loglineare Emissionsfunktion

$$E_{\text{loglin2}}(q) = c_0 \cdot \begin{cases} a_1 \cdot q^{a_2} & \text{wenn } q < b \\ a_3 \cdot q^{a_4} & \text{sonst} \end{cases}$$

Die Parameter der Funktionen wurden mit nichtlinearer Regression nach der Methode der kleinsten Quadrate ermittelt. Zur Beurteilung der Funktionen wurde der residuale Standardfehler (residual standard error) berechnet. Er stellt die mittlere Abweichung (genauer: die Wurzel aus der mittleren quadratischen Abweichung) der gemessenen Emissionen von den entsprechenden Funktionswerten dar und liegt bei den getesteten Funktionen für die drei Datensätze zwischen 0,4 und 2,4 mg/m². Relativ zu der maximalen gemessenen kumulativen Emission liegt der residuale Standardfehler bei 1,8 % bis 8,5 %.

Beim Datensatz „Zürich Terbutryn verkapselt“ liegen Daten über fast zwei Jahre vor. Daher konnte hier eine Zweiteilung vorgenommen werden. Der erste Teil der Abfluss- und Emissionsmessungen wurde zur Bestimmung der Funktionsparameter verwendet (bis 40 L Abfluss bzw. rund 1 Jahr), die dann zur unabhängigen Vorhersage des zweiten Teils (zweites Jahr) verwendet wurden. Hierdurch konnte eine Abschätzung für die Extrapolationsgüte getroffen werden. Weil die funktionalen Abhängigkeiten, die für die Emissionsfunktionen angenommen wurden, sich bei der Extrapolation stark unterscheiden, wurde ein wichtiger Hinweis gefunden, mit welcher Funktion eine Extrapolation sinnvoll ist. Die doppelt loglineare und die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion ergeben eine unverhältnismäßig große Überschätzung. Die Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum führt auf eine zu große Unterschätzung. Einen akzeptablen residualen Standardfehler von etwa 5 % im Bereich der Extrapolation ergeben die logarithmische und die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion.

Um den Einfluss der Emissionsfunktionen abzuschätzen, wurden Simulationen für die beprobten Flächen durchgeführt und das Verhalten der Emissionsfunktionen analysiert. Erwartungsgemäß stimmten die simulierten Emissionen in den Bereichen, in denen die Daten zur Anpassung der Emissionsfunktionen verwendet wurden, gut mit den gemessenen Emissionen überein. Bei der Extrapolation ergaben sich größere Unterschiede: Die doppelt loglineare Emissionsfunktion führt zur stärksten Überschätzung; beim letzten gemessenen Abfluss liegt die simulierte Emission um 28 % über der gemessenen kumulativen Emission. Das begrenzte Wachstum führt mit -28 % zur stärksten Unterschätzung. Die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion passt hier noch recht genau (+10 %). Dies kommt aber dadurch zustande, dass die Unterteilung der Daten (erster Teil zur Anpassung, zweiter Teil zur Extrapolation) gerade zu einem für die Diffusionsfunktion günstigen Zeitpunkt stattfindet. Theoretisch, und bei den drei Datensätzen auch praktisch, zeigt die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion auf lange Sicht eine zunehmende Überschätzung der Emissionsdaten. Die logarithmische und die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion sind auch im Extrapolationsbereich in recht guter Übereinstimmung mit den Daten. Die logarithmische Emissionsfunktion zeigt die geringste Überschätzung (+7 %) und die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion eine leichte Unterschätzung (-10 %) der Emissionen.

Als Schlussfolgerung ergab sich, dass die logarithmische Emissionsfunktion zur Verwendung empfohlen wird, weil sie eine akzeptable Anpassung an alle gemessenen Abfluss-Emissionsmessungen zeigt und aufgrund der (leichten) Überschätzung der Emissionen eine konservative Annahme darstellt.

Für die Abschätzung von Risiken, die sich aus der Auslaugung von Substanzen aus den Baustoffen ergeben, müssen die vorhandenen Abfluss-Emissionsmessungen auf Häuser in einer anderen Lage übertragen werden. Mit Hilfe einer Emissionsfunktion können diese Situationen modelliert werden. Obwohl bisher keine Erfahrungen vorliegen, unter welchen Voraussetzungen eine Übertragung auf andere Situationen möglich ist, können die Simulationen einen ersten Eindruck verschaffen und im Sinne einer Sensitivitätsanalyse ausgewertet werden. Wir untersuchten den Einfluss der Höhe eines Hauses, der Exposition einer Fassade und der Art der Emissionsfunktion an einem Szenario mit dem Material Putz und der Substanz Terbutryn und dem Wetterverlauf über 20 Jahre am Standort Hamburg (sog. Hamburg-Wetter, bekannt aus Focus-Szenarien).

Die Gebäudehöhen variierten zwischen 2,5 m (OECD-Haus), 7,5 m (DIBt-Haus) und 21 m (Hochhaus). Unter Verwendung der logarithmischen Emissionsfunktion für die Daten vom Standort Zürich Terbutryn frei war je Quadratmeter des Bauteils der Unterschied zwischen den Emissionen aus dem niedrigsten Haus und aus dem höchsten Haus mit 13 % nach 20 Jahren relativ klein. Die Nord-, Ost-, Süd- und Westfassaden des OECD-Hauses wurden zur Abschätzung des Einflusses der Exposition auf die kumulative Emission nach 20 Jahren verwendet. Der Unterschied zwischen der höchsten Emission an der Westfassade und der niedrigsten Emission an der Ostfassade machte etwa den Faktor 1,5 aus.

In weiteren Simulationen verwendeten wir auch die Funktionsparameter der anderen Emissionsfunktionen vom Standort Zürich frei, um für das OECD-Haus mit dem Wetterverlauf über 20 Jahre den Einfluss der Wahl der Emissionsfunktion abzuschätzen. Dabei resultierten große Unterschiede. Die Simulation extrapoliert mit der Emissionsfunktion begrenztes Wachstum die kleinste Emissionsmenge mit E_{LG} 24 mg/m² und mit der diffusionsgetriebenen Emissionsfunktion die größte Emissionsmenge E_{Diff} 100 mg/m². Die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion mit 32 mg/m² wurden eher als Unterschätzung der Emission beurteilt. Die bei der Extrapolation als zu hoch beurteilte doppelt loglineare Emissionsfunktion ergab hier 39 mg/m². Damit war die größte Schätzung viermal so hoch wie die kleinste Schätzung und deutlich gezeigt, wie sehr es auf die richtige Wahl der Emissionsfunktion ankommt. Der Wert von 52 mg/m², den die logarithmische Emissionsfunktion lieferte, wurde als „realistische Überschätzung“ und als eine vernünftige Annahme interpretiert.

Mit der logarithmischen Emissionsfunktion wurden auch die hypothetischen Auswirkungen auf ein kleines Fließgewässer untersucht. Die Gebäudehöhe, die auf die gesamte Emissionsmenge nur einen kleinen Einfluss hatte, hat auf dieses theoretische Gewässer einen durchaus signifikanten Einfluss. Weil in einem Hochhaus die Emission je Quadratmeter nur wenig geringer ausfällt als in einem niedrigen Haus, ist die Gesamtfracht wegen der größeren Fläche erheblich höher und die Höhe, die Anzahl und die Dauer der Konzentrationsspitzen (sog. Pulsbelastungen) im Gewässer nehmen zu. Die Wassermenge im Gewässer bestimmt das Verdünnungsverhältnis und dürfte deshalb ein weiterer sensibler Parameter für die Risikobeurteilung sein.

Summary

Due to the influence of the weather, substances are washed out of construction products or buildings during their use phase and transported into the soil, groundwater or surface waters. A rational risk assessment requires a model reflecting the different leaching processes and factors of importance, in our case the software Construction Material Leaching Model (COMLEAM, developed by HSR) was used. Depending on the weather, the geometry of a component and the emission parameters of the construction products, the water runoff and the emission of substances from the construction component are calculated first. Next, the substance flow from a virtual interface compartment to soil, groundwater or surface water is simulated. Thus, the environmental impact of potentially harmful substances in a construction product or buildings can be estimated.

The uncertainties in the model application arise a) from the weather data (e.g. if the data are not collected directly at the test site), b) by the wind driven rain calculation (simplified approach according to the ISO standard, DIN EN ISO 15927, 2009), c) by the emission calculation (not all processes are covered on the assessment scale), and d) by the prerequisite of site specific conditions in which climatic (weather), technical (construction materials) and geographical (city, countryside, residential and industrial areas) factors are summarized.

Modeling leaching of building materials is always based on a functional dependency, typically the emission is calculated as a function of the runoff. Such emission functions describing the relationship between the runoff and the resulting emission of a substance are also implemented in COMLEAM.

The aim of this study is to determine the uncertainties in the emission calculation procedures to narrow down their effects in different scenarios. Based on the results, a mathematical form for the emission function is recommended. The following questions are answered:

- ▶ Which emission function can best describe the measured relationship between water runoff and emission?
- ▶ Which factors and parameters of the emission simulation have a particularly large influence on the results? How do the necessary assumptions and simplifications affect the long-term risk assessment of the emission of a substance?

The runoff measurements are taken from three different field studies:

- ▶ Location Zurich, material render, substance Terbutryn free (non-encapsulated biocide)
- ▶ Location Robert Murjahn Institute RMI, Ober-Ramstadt, material render, substance Terbutryn free
- ▶ Location Zurich, material render, substance Terbutryn encapsulated

To model the functional dependence of the cumulated amount of substance emitted (in mg/m²) with the cumulated amount of runoff water (in L/m²), the following five functions were examined:

- ▶ logarithmic emission function $E_{\log}(q) = c_0 \cdot a_{\text{char}} \cdot \ln\left(1 + 1.72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}}\right)$
- ▶ emission function limited growth $E_{\text{LG}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{LG}} \cdot (1 - \exp(-b_{\text{LG}} \cdot q))$
- ▶ diffusion driven emission function $E_{\text{Diff}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{Diff}} \cdot \sqrt{q}$
- ▶ Langmuir emission function $E_{\text{Langmuir}}(q) = c_0 \cdot a_{\text{Langmuir}} \cdot \frac{b_{\text{Langmuir}} \cdot q}{1 + b_{\text{Langmuir}} \cdot q}$

- ▶ Michaelis-Menten emission function $E_{MM}(q) = c_0 \cdot a_{MM} \cdot \frac{q}{K_{MM} + q}$
- ▶ double loglinear emission function $E_{\log\ln 2}(q) = c_0 \cdot \begin{cases} a_1 \cdot q^{a_2} & \text{if } q < b \\ a_3 \cdot q^{a_4} & \text{else} \end{cases}$

The parameters of the functions were determined by non-linear least squares regression. To assess the validity of the functions, the residual standard error was calculated. This represents the mean deviation (more precisely, the root mean square error) of the measured emissions from the corresponding functional values and is between 0,4 and 2,4 mg/m² for the three data sets tested. Relative to the measured maximum cumulative emission, the residual standard error varied between 1,8 % and 8,5 %.

The data set “Zurich Terbutryn encapsulated” encompasses measurements during almost two years. Therefore, the data was divided into two parts. The first part of the runoff and emission measurements was used to determine the functional parameters (curve fitting; first year), which were then used to independently predict the second part of the emission (second year). This strategy allowed to estimate the quality of the temporal extrapolation of the emissions achieved by the different emission functions. By the fact that the emission functions differ greatly in the resulting extrapolations, an important reference was found under which conditions extrapolation is meaningful. The double log-linear and the diffusion driven emission function give an excessive overestimation. The limited growth emission function leads to underestimation. An acceptable residual standard error of about 5 % in the area of extrapolation is given by the logarithmic and Langmuir or Michaelis-Menten emission functions.

To estimate the influence of emission functions, simulations were carried out for the measured data and the performance of the different emission functions was analyzed. As expected, the simulated emissions were in good agreement with the emissions measured within the period of available data used for parametrization. The extrapolation (prediction) revealed larger differences. The double log-linear function leads to the largest overestimation with 28 % above the last measured cumulative emission and limited growth underestimated most with -28 %. The diffusion-controlled emission function still fits the data quite well (+10 %). However, this is due to the fact that the subdivision of the data (first part for curve fitting, second part for extrapolation) takes place precisely at a time that is favorable for the diffusion function. Theoretically, and in the three data sets also practically, the diffusion-controlled emission function shows in the long run an increasing overestimation of the emission. The logarithmic and the Langmuir and Michaelis-Menten emission functions also exhibit quite good agreement with the data in the extrapolation range. The logarithmic emission function shows a small overestimation (+7 %), and the Langmuir and Michaelis-Menten emission function show a slight underestimation (-10 %) of the emission.

In conclusion, the logarithmic emission function is recommended for use because it gives an acceptable fit to all measured data and represents a conservative approach due to the (slight) overestimation of emissions.

In order to estimate the risks arising from the leaching of substances from the building materials, the existing measurements must be transferred to other conditions, i.e. to buildings and sites at a different location. With the help of an emission function, these situations can be modeled. Although there is a lack of knowledge on the upscaling and data transfer, it is agreed that simulations are promising tools to assess the substances release and evaluate the sensitivity of certain processes. We examined the influence of the height of a house, the orientation of the facades and the type of emission function on a scenario with the material render containing the substance Terbutryn and weather over 20 years at Hamburg (representing a Focus-site).

The building heights varied between 2,5 m (OECD house), 7,5 m (DIBt house) and 21 m (high-rise building). Using the logarithmic emission function for the measured data from the Zurich, the difference between the emissions from the lowest and the highest house per square meter of the building was relatively small at 13 % after 20 years. The north, east, south and west facades of the OECD house were used to estimate the impact of exposure on cumulative emission. The difference between the highest emission on the west facade and the lowest emission on the east facade was about 1.5 times.

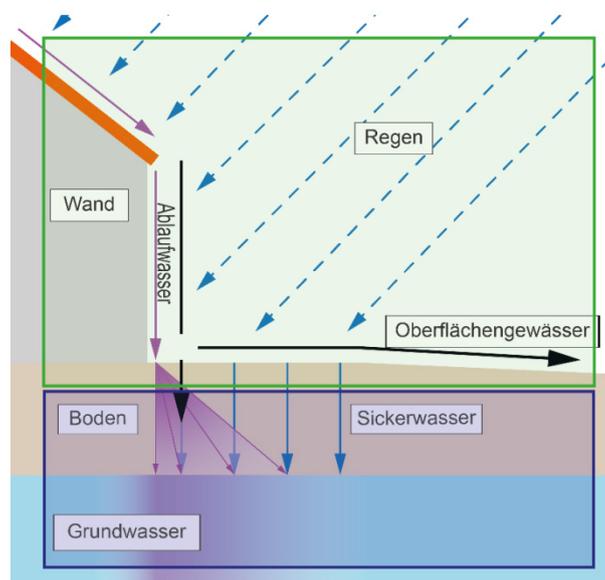
In further simulations carried out, we used the parameters of all emission functions derived from Zurich data Terbutryn free to proof the influence of a chosen function on leaching from an OECD house over 20 years. These settings resulted in large differences. The limited growth function extrapolated the smallest emission of $E_{LG} = 24 \text{ mg/m}^2$ whereas the diffusion-driven function resulted in the highest amounts of $E_{LG} = 100 \text{ mg/m}^2$. The Langmuir or Michaelis-Menten emission function with each 32 mg/m^2 underestimated the emission. The double log-linear emission function, which was considered too high for extrapolation, yielded to 39 mg/m^2 . Thus, the highest predicted emission was four times above the smallest which clearly demonstrates the importance of the selection of an emission function. The amount of 52 mg/m^2 provided by the logarithmic emission function was interpreted as a "reasonable overestimation" and as the best approach to assess the long-term emission.

Using the logarithmic emission function, the occurrence of Terbutryn in a small water body with 50 l/s flow was also examined. The building height, which had only a small influence on the total amount of emissions, had a significant effect on the concentration pattern in surface water. Although, the emission per square meter of a high-rise building is only slightly smaller than of the OECD house (2,5 m height), the total amount released is considerably higher due to the larger area. Consequently, the height, the number and the duration of peak concentrations (pulse pollution) is obviously greater. The flow conditions in surface water determines the dilution ratio and is therefore expected to be another sensitive parameter for the risk assessment.

1 Einleitung

Durch den Einfluss des Wetters werden über die Nutzungsphase von Bauprodukten bzw. Bauteilen Stoffe ausgewaschen und in den Boden, in das Grundwasser oder in Oberflächengewässer eingetragen (Abbildung 1) (Kahle and Nöh, 2009; Wittmer et al., 2010; Burkhardt et al., 2011; Clara et al., 2014; Wicke et al., 2017). Bei der Auslaugung von Substanzen aus einem Bauprodukt finden Verteilungs- und Transformationsprozesse statt (Bucheli et al., 1998; Wangler et al., 2012; Bollmann et al., 2015). Wesentliche äußere Einflussgrößen auf den Feuchtehaushalt des Bauprodukts sind der Niederschlag, die Luftfeuchtigkeit, die Taubildung, die Sonneneinstrahlung und die Temperatur (Burkhardt et al., 2012). Bei vertikalen Bauteilen verteilt sich der auftreffende Schlagregen zu einem großen Teil auf der beregneten Oberfläche und wird zu einem kleinen Teil vom Material aufgenommen oder je nach Tropfengröße durch Abprallen (Splash) zurückgeworfen. Die Feuchtigkeit, die auch durch Tau entstehen kann, dringt in die Matrix des Baumaterials ein und gelangt beim Trocknen wieder an die Oberfläche des Bauteils. Während des Wasserkontakts und bei der Rücktrocknung des Materials wird ein gelöster Stoff, zum Beispiel ein organisches Flammschutzmittel oder ein biozider Wirkstoff, mit der Wasserphase an die Oberfläche des Bauteils transportiert. Generell sind die Richtung und Geschwindigkeit des Stofftransports durch den Konzentrations-, Temperatur- und Feuchtegradienten sowie die Stoff- (Polarität, Wasserlöslichkeit etc.) und Matriceigenschaften (Porosität, Hydrophobizität etc.) bestimmt (Wangler et al., 2012; Schoknecht et al., 2016; Sauer, 2017). Organische Stoffe werden zudem chemisch, an der Bauteiloberfläche auch photochemisch oder mikrobiell, abgebaut (Burkhardt et al., 2012; Wangler et al., 2012; Bollmann et al., 2016). Für Substanzen mit toxischen Wirkungen sind Effekte auf aquatische oder terrestrische Organismen zu erwarten (Togerö, 2004; Burkhardt et al., 2009; Vermeirssen et al., 2017; Märkl, 2017).

Abbildung 1: Systemübersicht zur Auslaugung von Stoffen aus horizontal und vertikal beregneten Bauteilen bzw. Bauprodukten und den Eintragswegen in Boden und Gewässer.



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Für Bauprodukte und deren Inhaltsstoffe gilt eine Reihe von Europäischen Gesetzen. Die Umweltverträglichkeit von Bauprodukten wird als dritte Grundanforderung an Bauprodukte im Rahmen der EU-Bauproduktenverordnung (EU, 2011) behandelt. Die EU-Biozidproduktregulierung (BPR, Verordnung (EU) Nr. 528/2012) regelt die Zulassung und den Umgang mit bioziden Wirkstoffen bzw. Produkten und REACH die Zulassung und das Inverkehrbringen von Chemikalien.

In den letzten Jahren wurden auf Europäischer Ebene harmonisierte Testverfahren entwickelt, mit denen unter reproduzierbaren Laborbedingungen bei intermittierenden oder dauerndem Wasserkontakt die Auswaschung von Bauprodukten untersucht werden können (DIN CEN/TS 16637-1, 2014; DIN CEN/TS 16637-2, 2014; DIN EN ISO 16105, 2011). Aus einer Reihe von Forschungsprojekten (Burkhardt et al., 2012; Schoknecht et al., 2014; Bagda et al., 2011) liegen experimentelle Daten vor.

Jedoch ist weder eine langfristige Vorhersage der Freisetzung von gefährlichen Stoffen aus berechneten Bauteilen, noch die Übertragung der Daten auf andere Einbausituationen alleine auf Grundlage von Daten aus Labor- oder Feldversuchen möglich. Zudem ist das Generieren von experimentellen Daten sehr zeit- und kostenintensiv. Für diese Anforderungen an Stoffe und Bauprodukte sind modellgestützte Simulationsrechnungen erforderlich, die in einer nachvollziehbaren, einheitlichen emissionsorientierten Produktbewertung münden können.

Aus den Auslauguntersuchungen abgeleitete Emissionsfunktionen sind eine essentielle Eingangsgröße der Wasser- und Stoffflüsse an berechneten Bauteilen und der daraus resultierenden Risiken für die Umwelt. Eine harmonisierte Festlegung zur Auswertung und Interpretation der erhaltenen Auslaugdaten gibt es aber nur in einem einfachen linearen Ansatz für Biozidprodukte (time1-time2) im Rahmen der EU- Biozidprodukteverordnung, nicht aber für Bauprodukte.

Die wirksamen Faktoren und Prozesse der Auslaugung hängen stark vom Zufall ab und sind heterogen verteilt. Beispielsweise wird die zeitliche und räumliche Variabilität des Schlagregens durch turbulente Windströme erzeugt. Die Zusammensetzung, die Oberflächenstruktur und nicht zuletzt die Stoffgehalte sind nicht homogen über das Bauprodukt, das Bauteil oder das gesamte Gebäude verteilt. Die Faktoren und Prozesse wirken auf verschiedenen Ebenen, z.B. Adsorption, Desorption und Abbau auf der molekularen Skala, Porosität und Oberflächenstruktur auf einer mikroskopischen Skala, effektive Diffusion auf der makroskopischen (Bear, 1988) sowie Abwaschung der an die Materialoberfläche migrierten Stoffe durch Niederschlag oder Schlagregen auf der Feldskala.

Die praktische Anforderung, die komplexen Prozesse der Auslaugung und die Umweltexposition für Bauprodukte, Bauteile, Gebäude oder Siedlungen abschätzen zu wollen, führt deshalb dazu, dass nur auf einer höheren Skala modelliert werden kann (Wittmer et al., 2011; Coutu et al., 2012; Jungnickel et al., 2004; Schiopua et al., 2009; Walser et al., 2008), auf der variierende Parameter gemittelt oder kumulativ berücksichtigt werden. Die Modellierung der mikroskopischen Skala beantwortet dagegen andere Fragestellungen, z.B. temperaturabhängige effektive Diffusionslängen für bestimmte Materialien.

1.1 Ziel des Projekts

Im vorliegenden Projekt war die Freisetzung von organischen Stoffen mit verschiedenen Emissionsfunktionen und für verschiedene Geometrien über bis zu mehreren Jahren abzuschätzen. Unter Berücksichtigung einer Sensitivitätsanalyse für Gebäudehöhen und -ausrichtung sollten Empfehlungen für eine Emissions- und Übertragungsfunktion bei der Modellierung abgeleitet werden.

Aufgrund zahlreicher Untersuchungen ist das grobe Muster, dem die Emissionsmengen folgen, bekannt und wird meistens in einer Grafik dargestellt, die die kumulative Menge des auf einem Bauteil ablaufenden Wassers auf der Abszisse und die kumulative Menge der emittierten Substanz auf der Ordinate darstellt. Den mathematischen Funktionsverlauf bezeichnen wir hier als *Emissionsfunktion*.

Emissionsfunktionen beschreiben meistens die *Abhängigkeit der Emission* von Substanzen aus einem Bauteil (im Feld) oder Bauprodukt (im Labor) *von der abfließenden Wassermenge*. Alle statistischen Abschätzungen von Emissionen aus einem Bauteil verwenden eine funktionale Form und deren Ausprägung (gegeben durch die Parameter) einer Emissionsfunktion.

Die hier untersuchten Emissionsfunktionen beschreiben den Emissionsprozess sehr genau, einerseits durch die zeitliche Auflösung mit stündlichen Wetterdaten und andererseits durch den Typ der Emissionsfunktion, der den Emissionsprozess als Ganzes charakterisiert.

Eine langfristige Emissionsvorhersage über 20 Jahre bedeutet eine Extrapolation weit über den Zeitraum hinaus, für den Daten vorliegen, und hängt stark von der Art der verwendeten Emissionsfunktion ab. In diesem Projekt werden an ausgewählten Versuchsdaten mehrere Emissionsfunktionen zur langfristigen Vorhersage auf Ihre Eignung zur Dateninter- und -extrapolation hin getestet und ihre Unterschiede aufgezeigt. Die Extrapolationsgüte der Emissionsfunktionen wird miteinander verglichen.

Die Ergebnisse reduzieren die prognostische Unsicherheit, weil der Bereich eingegrenzt wird, in dem nach dem gegenwärtigen Stand des Wissens die langfristige Emissionsvorhersage zu erwarten ist. Wenn eine Emissionsfunktion ausgewählt ist, bleibt die Frage, welchen Einfluss die weiteren Annahmen für die Abschätzung der Umweltexposition haben, die für die Simulation der Emissionen erforderlich sind.

Für die modellgestützte Abschätzung der Auswaschung von Stoffen in Bauprodukten/-teilen, die Festlegung einer Übertragungsfunktion und die Bewertung der Umweltverträglichkeit von Bauprodukten in ihrer Nutzungsphase sind zwei Aspekte relevant:

- ▶ Welche Emissionsfunktion kann den vorliegenden Zusammenhang zwischen Emission und Wasserabfluss am besten beschreiben? Diese Frage wird in Kapitel 4 bei der Beurteilung der Emissionsfunktionen beantwortet.
- ▶ Welche Faktoren und Parameter der Emissionssimulation haben in einer realen Einbausituation besonders großen Einfluss auf die abgeschätzte Emission? Wie wirken sich die notwendigen Annahmen und Vereinfachungen auf die langfristige Risikobeurteilung der Emission einer Substanz aus einem Bauteil aus? Diese Frage wird in Kapitel 5 bei der Beurteilung der Übertragungsfunktion beantwortet.

In Kapitel 0 werden verschiedene Emissionsfunktionen, die Prozesse des Schlagregens und der Bilanzierung beschrieben. Im Kapitel 3 folgen die Datensätze, mit denen die Prozessabläufe substantiiert werden. Im Kapitel 4 ist das Vorgehen erläutert, wie die Emissionsfunktionen parametrisiert und diese Ergebnisse im Modell berücksichtigt werden, und zu welchen Ergebnissen die Simulationen geführt haben. Das Kapitel 5 stellt die Variablen vor, die die Übertragungsfunktion der Messdaten auf reale Einbausituationen beeinflussen. Im Kapitel 6 werden die Ergebnisse, die Schlussfolgerungen und weiterführende Empfehlungen zusammenfassend diskutiert.

Um die zu Grunde liegenden Prozesse besser zu verstehen und das damit verbundene Risiko besser einschätzen zu können, wird das modular aufgebaute Simulationsmodell COMLEAM (Construction Material Leaching Model) eingesetzt (Burkhardt et al., 2018). COMLEAM ist die erste Software, welche den Transportpfad vom berechneten Bauteil/Gebäude/Siedlung bis zum Umweltkompartiment abbildet und damit beispielsweise eine emissionsorientierte Produktbewertung ermöglicht. So lassen sich Fallstudien oder Szenarien mit Labor- und Felddaten berechnen und die Beiträge und Unsicherheiten der einzelnen Prozesse darstellen.

2 Modellierung

2.1 Emissionsfunktionen

Eine Emissionsfunktion beschreibt die von einem Bauteil kumuliert emittierte Stoffmenge (in mg/m^2) als Funktion der kumulierten Menge an Ablaufwasser (in L/m^2). Die hier verwendeten Emissionsfunktionen werden aus Felduntersuchungen hergeleitet. Wie diese Emissionsfunktionen im Labor ermittelt werden können, d.h. in wieweit die im Laborversuch von einem Bauprodukt emittierte Stoffmenge (in mg/m^2) als Funktion der kumulierten Kontaktwassermenge (in L/m^2) zur Bestimmung der Emissionsfunktion dienen kann, ist Gegenstand weiterer Untersuchungen.

Zu Beginn dieser Studie war unklar, welches die geeignete mathematische Form ist, die die gemessenen Abfluss- und Emissionsdaten am besten beschreibt. Anhand von Feldversuchen wurden mehrere Emissionsfunktionen evaluiert. Dabei wurde vorausgesetzt, dass der Transport einer Substanz im Wasser erfolgt und ein funktionaler Zusammenhang zwischen der Wassermenge und der Emission angenommen werden kann. Weil die genauen Prozesse im Feld nicht erfassbar und stark variabel sind, wird in der Regel aus den vorliegenden Messungen auf eine speziell parametrisierte Funktion geschlossen. Die mathematische Form einer solchen Funktion muss folgende Bedingungen erfüllen:

- ▶ Die Funktion muss monoton wachsend sein.
- ▶ Die Funktion muss im Ursprung (d.h. im Punkt 0;0) beginnen.
- ▶ Die Steigung der Funktion muss immer kleiner werden (monoton fallend).
- ▶ Im betrachteten Zeitraum darf die im Bauteil vorhandene Menge nicht überschritten werden (d.h. die Bilanzsumme darf 100 % nicht überschreiten).
- ▶ Die Funktion muss gut an die Daten angepasst werden können (z. B. durch die Methode der kleinsten Quadrate).
- ▶ Die Funktion sollte möglichst universell sein, d.h. verschiedene Materialien und Inhaltsstoffe sollten durch verschiedene Parameter beschrieben werden können, ohne dass die Form der Funktion geändert werden muss.

Für alle Emissionsfunktionen $E_T(t)$ gilt:

$$E_T(t) = c_0 \cdot D_T(q(t)) \quad \text{G 1}$$

wobei

$E_T(t)$ Emissionsmenge je Quadratmeter Fläche [mg/m^2]

c_0 applizierte Menge je Quadratmeter Fläche [mg/m^2] (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/m^2]

r_{SR} Schlagregenmenge [L/m^2]

ψ Abflussbeiwert (dimensionslos)

Die Parameter der Emissionsfunktionen wurden durch nichtlineare Funktionsanpassungen nach dem Prinzip der kleinsten Quadrate so bestimmt, dass die Summe der Abweichungsquadrate zwischen den Messungen und den Funktionswerten minimal wird. Zur technischen Durchführung wurde die Prozedur „nls“ (non-linear least squares) der Software *R* verwendet (R Core Team, 2016). Die Funktionsanpassungen erfolgen dadurch, dass die Werte $E_{T,i}$ der Emissionsfunktionen

$$E_{T,i} = c_0 \cdot D_T(q_i)$$

G 2

für die gemessenen kumulativen Abflüsse $q_i, i = 1, \dots, n$ mit den gemessenen kumulativen Emissionen $E_i, i = 1, \dots, n$ verglichen werden.

Für die Messzeitpunkte $t_i, i = 1, \dots, n$ wird die quadratische Fehlersumme $RSS = \sum_{i=1}^n \varepsilon_i^2$ mit

$$\varepsilon_i = E_{T,i} - E_i = c_0 \cdot D_T(q_i) - E_i \text{ minimiert (s. Kapitel 4.1).}$$

Folgende fünf Emissionsfunktionen erfüllen die oben genannten Bedingungen und wurden deshalb im Projekt berücksichtigt:

- ▶ Logarithmische Emissionsfunktion (Kapitel 2.1.1, S. 21, Typ $T = \log$)
- ▶ Begrenzte Wachstumsfunktion (Kapitel 2.1.2, S. 23, Typ $T = \text{LG}$)
- ▶ Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion (Kapitel 2.1.3, S. 24, Typ $T = \text{Diff}$)
- ▶ Langmuir-Desorptionsfunktion oder Michaelis-Menten-Kinetik (Kapitel 2.1.4, S. 25, Typ $T = \text{Langmuir}$)
- ▶ Doppelt loglineare Emissionsfunktion (Kapitel 2.1.5, S. 26, Typ $T = \text{loglin2}$)

In den nachfolgenden Kapiteln 2.1.1 bis 2.1.5 werden die Emissionsfunktionen und ihre Parameter mathematisch definiert und ihre Vor- und Nachteile erläutert.

2.1.1 Logarithmische Emissionsfunktion

Bei der logarithmischen Emissionsfunktion E_{\log} ist die Stoffemission mit dem natürlichen Logarithmus abhängig von der kumulativen Wassermenge $q(t)$. Die logarithmische Emissionsfunktion besitzt im gesamten Messbereich nur die zwei Parameter a_{char} und q_{char} (Tabelle 1):

$$D_{\log}(q) = a_{\text{char}} \cdot \ln\left(1 + 1,72 \cdot \frac{q}{q_{\text{char}}}\right)$$

G 3

Die physikalische Bedeutung der Parameter wird gut verständlich, wenn die Annahme getroffen wird, dass $a_{\text{char}} = 0,5$ wäre, denn dann ist der charakteristische Abfluss q_{char} der „Halbwertsabfluss“, also gleich der Wassermenge, nach deren Abfluss an der Fassade die Hälfte der applizierten Stoffmenge emittiert ist.

Tabelle 1: Logarithmische Emissionsfunktion

Parameter	Einheit	Bereich	Kommentar
q_{char}	$\left[\frac{L}{m^2} \right]$	$0 < q_{\text{char}}$	Charakteristischer Abfluss q_{char} in $\left[\frac{L}{m^2} \right]$
a_{char}	dimensionslos	$0 < a_{\text{char}} < 1$	Charakteristischer Stoffanteil: der bis zum charakteristischen Abfluss q_{char} emittierte Anteil an der applizierten Menge c_0

Die Bedeutung des charakteristischen Abflusses wird auch folgendermaßen klar: Wenn die kumulative Abflusswassermenge $q(t)$ gleich dem charakteristischen Abfluss q_{char} ist, dann gilt:

$$\ln\left(1 + 1,72 \cdot \frac{q_{char}}{q_{char}}\right) = \ln(2,72) = \ln(e) = 1 \quad \text{G 4}$$

$$D_{log}(q_{char}) = a_{char} \cdot \ln\left(1 + 1,72 \cdot \frac{q_{char}}{q_{char}}\right) = a_{char} \quad \text{G 5}$$

Dabei ist die Zahl 1,72 der gerundete Wert von $e - 1$ (e = Eulersche Zahl).

Beispiel: Die applizierte Menge sei $c_0 = 1000 \text{ mg/m}^2$. Die Parameter der logarithmischen Emissionsfunktion seien der charakteristische Stoffanteil von 1 %, d.h. $a_{char} = 0,01$ und der charakteristische Abfluss $q_{char} = 10 \text{ L/m}^2$ (Tabelle 2). Nachdem $q_{char} = 10 \text{ L/m}^2$ an der Fassade abgefließen sind, beträgt die bis dahin aus der Fassade emittierte Menge $E_{char} = c_0 \cdot a_{char} = 1000 \cdot 0,01 = 10 \text{ mg/m}^2$. Die logarithmische Funktion zeigt, dass 50 % der applizierten Menge erst nach einer Abflussmenge von $1,69 \cdot 10^9 \text{ L/m}^2$ emittiert sind (also nach weit mehr als 1 Million Jahren). Die weiteren Beispiele in Tabelle 2 veranschaulichen die Abhängigkeiten.

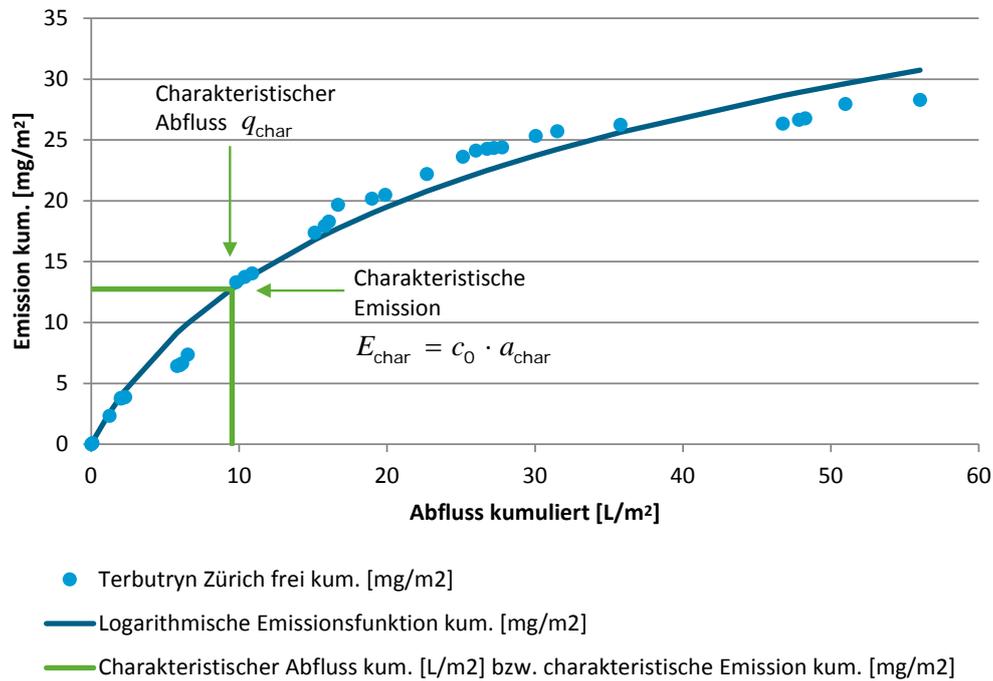
Tabelle 2: Beispiele für den charakteristischen Abfluss und den charakteristischen Stoffanteil

Charakteristischer Stoffanteil	Charakteristischer Abfluss	Bedeutung
a_{char}	q_{char}	
1 %	10 L/m^2	Nachdem 10 L/m^2 an der Fassade abgefließen sind, wurde 1 % der applizierten Menge emittiert.
2,52 %	$6,87 \text{ L/m}^2$	Nachdem $6,87 \text{ L/m}^2$ an der Fassade abgefließen sind, wurden 2,52 % der applizierten Menge emittiert.
0,57 %	$9,5 \text{ L/m}^2$	Nachdem $9,5 \text{ L/m}^2$ an der Fassade abgefließen sind, wurden 0,57 % der applizierten Menge emittiert.

Vor- und Nachteile: Der Vorteil dieser Funktion ist, dass mit nur zwei Parametern eine gute Anpassung erreicht werden kann. Das lässt darauf schließen, dass sich der in der Realität ablaufende Emissionsvorgang durch diese Parameter wesentlich beschreiben lässt. Wegen der Einfachheit der Funktion ist die Anwendung eindeutig und auch von verschiedenen Anwendern auf dieselbe Art lösbar. Ein weiterer Vorteil ist die physikalische Bedeutung der Funktionsparameter, die sehr einfach hergeleitet werden können (Tabelle 1, Tabelle 2, Abbildung 2). Wegen der geringen Anzahl von Parametern und deren physikalischer Bedeutung ist zu vermuten, dass eine Übertragbarkeit von Daten mit dieser Funktion vergleichsweise unproblematisch ist.

Nachteilig für den Gebrauch könnte der Einsatz der natürlichen Logarithmusfunktion sein. Anwender könnten irrtümlicherweise den dekadischen Logarithmus verwenden. Außerdem impliziert der exponentielle Zusammenhang, dass die berechnete Emissionsmenge theoretisch größer als die applizierte Stoffmenge werden kann. Dies würde aber bei Einsatz von praxisrelevanten Parametern erst nach Millionen von Jahren eintreten. Über die Lebensdauer eines Bauprodukts (häufig <30 Jahre) ist die logarithmische Funktion demnach auch geeignet.

Abbildung 2: Physikalische Bedeutung der charakteristischen Parameter der logarithmischen Emissionsfunktion, dargestellt anhand des Wirkstoffs Terbutryn am Standort Zürich.



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

2.1.2 Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum

Eine weitere Möglichkeit besteht in der begrenzten Wachstumsfunktion (*Limited Growth*), wobei $q = q(t)$ wiederum die kumulative Abflusswassermenge ist:

$$D_{LG}(q) = a_{LG} \cdot (1 - \exp(-b_{LG} \cdot q)) \quad G 6$$

Dieser Ansatz geht davon aus, dass die Emission kontinuierlich abnimmt. Der Parameter b_{LG} bedeutet hier die Abnahme der Emission. Er kann ebenfalls aus der Abflussmenge $q_{1/2}$, nach der die Hälfte der

Emission erfolgt ist, bestimmt werden als $b_{LG} = \frac{0,69}{q_{1/2}}$. Auch die begrenzte Wachstumsfunktion ver-

wendet zwei Parameter a_{LG} (dimensionslos) und b_{LG} mit der Einheit [m²/L], um den Verlauf der Emission bis zum Maximum zu beschreiben.

Die physikalische Bedeutung der Parameter liegt darin, dass einerseits der Anteil a_{LG} an der applizierten Menge, die zur Emission verwendet wird, andererseits die Abflussmenge $q_{1/2}$, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist, berücksichtigt sind.

Vor- und Nachteile: Wesentlicher Vorteil ist auch hier, dass nur zwei Parameter verwendet werden, die zudem eine klare physikalische Bedeutung haben. Die begrenzte Wachstumsfunktion ermöglicht die inhaltliche Interpretation, dass die Emissionsmengen als mit der Zeit abnehmend verstanden werden können. Das heißt, auch das begrenzte Wachstumsmodell passt zu dem effektiv auftretenden Prozess. Die Funktion ist einfach anzuwenden, weil sie mit nur einer Exponentialfunktion auskommt.

Der Nachteil ist, dass für längere Zeiträume eine deutlich geringere Emission vorhergesagt wird als mit der Logarithmusfunktion und daher das Vorsorgeprinzip (worst-case Betrachtung) weniger stark abgebildet ist. Für die gängigen experimentellen Daten ist die Funktion nicht optimal geeignet.

Tabelle 3: Emissionsfunktion begrenztes Wachstum

Parameter	Einheit	Bereich	Kommentar
a_{LG}	dimensionslos	$0 < a_{LG} < 1$	Proportionalitätsfaktor für den Anteil an der applizierten Menge, der zur Emission zur Verfügung steht.
b_{LG}	$[m^2 / L]$	$b_{LG} > 0$	$b_{LG} = \frac{0,69}{q_{1/2}}$ errechnet sich aus der Abflussmenge, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist.

2.1.3 Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion

Die Auswaschung von gelösten organischen Stoffen wird zu einem großen Anteil als durch Diffusion kontrolliert angesehen (Schoknecht and Töpfer, 2012; Wangler et al., 2012; Schoknecht et al., 2014). Der Prozess der effektiven Diffusion wird durch das 1. und 2. Fick'sche Gesetz beschrieben und kann für eine Beschichtung, die im Labor getestet wurde, iterativ und eindimensional abgebildet werden (Dinse, 2010). Allerdings ist die Zusammenfassung in einer Emissionsfunktion nicht angezeigt, weil sich in den Labor- oder Felddaten eine große Vielfalt an auftretenden Prozessen widerspiegelt. Aus diesem Grund lässt sich der Diffusionsansatz nur in einer vereinfachten Form mit Proportionalität zur Wurzelfunktion betrachten. Wangler (2011) hat den mathematischen Ansatz der Emission aus dem berechneten Bauteil als Kombination von effektiver Diffusion (D_{eff}) und Sorption (dargestellt durch den Sorptionskoeffizienten K_{pw}) beschrieben:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_{eff}}{K_{pw} + 1} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \tag{G 7}$$

Aus der Sorptions-Desorptionsfunktion, die zwischen einer Sorption-Desorption nullter Ordnung und einer erster Ordnung liegt, ergibt sich durch mathematische Ableitung somit eine Wurzelfunktion. Mit der Annahme, dass die mittlere Regenintensität konstant ist, lässt sich dieser Ansatz übertragen, um ihn hier folgendermaßen als Emissionsfunktion in Abhängigkeit vom Abfluss einzusetzen:

$$D_{Diff}(q) = a_{Diff} \cdot \sqrt{q} \tag{G 8}$$

Daher wird im Diffusionsansatz nur ein Parameter a_{Diff} in $\left[\frac{m}{\sqrt{L}}\right]$ verwendet, um den Verlauf der kumulativen Emission zu beschreiben. Mit Hilfe der Abflussmenge $q_{1/2} \left[\frac{L}{m^2}\right]$, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist, berechnet sich der Parameter a_{Diff} als $a_{Diff} = \frac{1}{2 \cdot \sqrt{q_{1/2}}}$.

Die physikalische Bedeutung des Parameters ist klar: Der Proportionalitätsfaktor a_{Diff} quantifiziert die diffusionsgetriebene Emission in dem emittierenden Bauteil. Das Modell der Diffusion entspricht der allgemeinen Annahme für die dynamische Verteilung des Stoffs in dem Bauteil.

Tabelle 4: Emissionsfunktion gemäß Diffusionsansatz

Parameter	Einheit	Bereich	Kommentar
a_{Diff}	$\left[\frac{m}{\sqrt{L}} \right]$	$a > 0$	$a_{\text{Diff}} = \frac{1}{2 \cdot \sqrt{q_{1/2}}}$ errechnet sich aus der Abflussmenge $q_{1/2}$, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist.

Vor- und Nachteile: Ein Vorteil ist, dass nur ein Parameter verwendet wird, der zudem eine klare physikalische Bedeutung hat. Das Modell der Diffusion entspricht der allgemeinen Annahme für die dynamische Verteilung des Stoffs im Bauprodukt, jedoch werden z.B. die Einflüsse von Porosität, Lösungs- und Fällungsprozessen trotzdem nicht dargestellt. Auf der Skala eines Bauteils können noch weitere Umlagerungs- und Transformationsprozesse eine wesentliche Rolle spielen (Burkhardt et al., 2012, Bollmann et al., 2016). Ob diese Prozesse sich zu einer Funktion mit einem einzelnen Parameter aggregieren lassen, ist derzeit offen. Aus mathematischen Überlegungen folgt, dass die Emission am Anfang unendlich groß ist und dass die kumulierte Emission langfristig weit grösser ist als bei der logarithmischen Emissionsfunktion. Dieses Verhalten entspricht nicht den Praxisbedingungen und wird nachteilig für den Einsatz der Funktion bewertet.

2.1.4 Langmuir-Emissionsfunktion und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion

Die Langmuir Sorptions-Desorptionsfunktion wird bei der Modellierung des Stofftransports im Boden verwendet, um das Gleichgewicht zwischen Sorption und Desorption von Substanzen an die Bodenmatrix zu berechnen, wenn die Anzahl der Sorptionsplätze begrenzt ist. Die Michaelis-Menten-Kinetik wird in der Pharmakokinetik verwendet, um die Freisetzung eines Wirkstoffes im Körper zu bestimmen. Diese beiden Funktionen sind äquivalent und unterscheiden sich nur durch das Verwenden des Inversen eines Parameters.

Bei der Langmuir-Desorptionsfunktion wird die Annäherung der maximal erreichbaren Emissionsmenge durch folgenden Ausdruck berechnet:

$$D_{\text{Langmuir}}(q) = a_{\text{Langmuir}} \cdot \frac{b_{\text{Langmuir}} \cdot q}{1 + b_{\text{Langmuir}} \cdot q} \tag{G 9}$$

Die Langmuir-Desorptionsfunktion verwendet also zwei Parameter a_{Langmuir} (dimensionslos) und b_{Langmuir} mit der Einheit $\left[\frac{m^2}{L} \right]$, um den Verlauf der Emission bis zum Maximum zu beschreiben. Die

Langmuir-Desorptionsfunktion entspricht einer Michaelis-Menten-Kinetik, bei der der Parameter $a_{\text{MM}} = a_{\text{Langmuir}}$ gesetzt wird und b_{Langmuir} durch $K_{\text{MM}} = \frac{1}{b_{\text{Langmuir}}}$ bestimmt wird:

$$D_{\text{MM}}(q) = a_{\text{MM}} \cdot \frac{q}{K_{\text{MM}} + q} \tag{G 10}$$

Hierbei ist der Halbwertsabfluss $q_{1/2}$, an dem die Hälfte der Emissionen erfolgt ist, erkennbar. Für den Halbwertsabfluss gilt $D_{\text{MM}}(q_{1/2}) = a_{\text{MM}} \cdot \frac{1}{2} = a_{\text{MM}} \cdot \frac{q_{1/2}}{K_{\text{MM}} + q_{1/2}}$, wobei der Parameter K_{MM} der Abflussmenge $q_{1/2}$ entspricht, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist, $K_{\text{MM}} = q_{1/2}$ ist.

Die physikalische Bedeutung der Parameter liegt in dem Anteil der applizierten Menge, die emittiert wird, und der Abflussmenge, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist.

Vor- und Nachteile: Wesentlicher Vorteil ist wiederum, dass auch nur zwei Parameter verwendet werden, die eine klare physikalische Bedeutung haben. Diese Desorptionsfunktion hat zudem den Charme, dass der gesamte Prozess der Emission auch inhaltlich als Desorption verstanden werden kann. Die Vorteile gegenüber der Logarithmusfunktion sind, dass diese Funktion noch einfacher ist, weil sie eben ohne natürlichen Logarithmus auskommt und dass diese Funktion vielen Anwendern bekannt sein dürfte.

Der Nachteil ist, dass für längere Zeiträume eine deutlich geringere Emission vorhergesagt wird als mit der Logarithmusfunktion und dass daher das Vorsorgeprinzip mit dieser Funktion eher infrage gestellt wird.

Tabelle 5: Langmuir Emissionsfunktion und Michaelis-Menten-Kinetik

Parameter	Einheit	Bereich	Kommentar
$a_{MM} = a_{Langmuir}$	dimen- sionslos	$0 < a < 1$	Proportionalitätsfaktor für den Anteil an der applizierten Menge, der zur Emission zur Verfügung steht.
$b_{Langmuir}$	$\left[\frac{m^2}{L} \right]$	$b_{Langmuir} > 0$	$b_{Langmuir} = \frac{1}{K_{MM}}$
K_{MM}	$\left[\frac{L}{m^2} \right]$	$K_{MM} > 0$	$K_{MM} = q_{1/2}$ ist die Abflussmenge, nach der die Hälfte der Emission erfolgt ist.

2.1.5 Doppelt loglineare Emissionsfunktion

Die doppelt loglineare Emissionsfunktion ist aus zwei logarithmischen Funktionen mit 4 oder 5 Parametern zusammengesetzt. Der Parameter b stellt die Abflussmenge dar, die den Trennpunkt angibt zwischen dem ersten und dem zweiten Teil der Funktion (Tabelle 6).

Mit 4 Parametern:

$$\log(D_{\loglin2}(q)) = \begin{cases} a \cdot \log(q) & \text{wenn } \log(q) < \log(b) \\ \log(c) + d \cdot \log(q) & \text{sonst} \end{cases} \quad \text{G 11}$$

Aufgelöst nach der Emissionsmenge:

$$D_{\loglin2}(q) = \begin{cases} q^a & \text{wenn } q < b \\ c \cdot q^d & \text{sonst} \end{cases} \quad \text{G 12}$$

Mit 5 Parametern:

$$\log(D_{\loglin2}(q)) = \begin{cases} \log(a_1) + a_2 \cdot \log(q) & \text{wenn } \log(q) < \log(b) \\ \log(a_3) + a_4 \cdot \log(q) & \text{sonst} \end{cases} \quad \text{G 13}$$

Aufgelöst nach der Emissionsmenge:

$$D_{\loglin2}(q) = \begin{cases} a_1 \cdot q^{a_2} & \text{wenn } q < b \\ a_3 \cdot q^{a_4} & \text{sonst} \end{cases}$$

G 14

Bei der doppelt-loglinearen Emissionsfunktion $D_{\loglin2}$ wird der Bereich des ersten bis maximal dritten Monats und der Bereich danach jeweils loglinear mit statistischer Regression angepasst. Der Unterschied zwischen der doppelt-loglinearen Emissionsfunktion $D_{\loglin2}$ mit 4 oder 5 Parametern liegt nur im Parameter a_1 , der für die Funktion mit 4 Parametern vereinfachend als 1 angenommen wird ($a_1 = 1$). Die möglichen Parameterwerte der doppelt log-linearen Emissionsfunktion sind in nachfolgender Tabelle angegeben.

Vor- und Nachteile: Der scheinbare Vorteil der doppelt loglinearen Emissionsfunktion liegt darin, dass die vorliegenden Daten gut beschrieben werden können (kleiner residualer Standardfehler).

Der Nachteil ist die hohe Anzahl der Parameter, die mit 4 oder 5 sehr groß ist, so dass die Parameter auch zusätzliche, nur zufällig auftretende Effekte repräsentieren können (Overfitting, vgl. Wollschläger, 2014, S. 492), die bei der Anwendung auf verschiedene Materialien zu Fehlern führen können.

Darüber hinaus sind die Parameter und der Einsatz von zwei Emissionsraten ohne direkte physikalische Bedeutung. Eine höhere Anfangsauswaschung durch beispielsweise lösungsdominierten Transport, die mit der Zeit in einen diffusionsdominierten, auf einer doppeltlogarithmischen Skala linearen Verlauf mündet, könnte dennoch eine mögliche Begründung für die Verwendung der doppelt-logarithmischen Funktion sein.

Tabelle 6: Doppelt-loglineare Emissionsfunktion mit 5 Parametern

Parameter	Einheit	Bereich	Kommentar
a_1	dimensionslos	$0 < a_1$	Proportionalitätsfaktor in der ersten Funktion für den Anteil an der applizierten Menge, der zur Emission zur Verfügung steht.
a_2	dimensionslos	$0 < a_2$	Exponent der Abflussmenge in der ersten Funktion, der die Steigung der Funktion bestimmt.
b	$[L / m^2]$	$0 < b$	Abflussmenge, die den Trennpunkt zwischen dem ersten und dem zweiten Teil der Funktion angibt
a_3	dimensionslos	$0 < a_3$	Proportionalitätsfaktor in der zweiten Funktion für den Anteil an der applizierten Menge, der zur Emission zur Verfügung steht.
a_4	dimensionslos	$0 < a_4$	Exponent der Abflussmenge in der zweiten Funktion, der die Steigung der Funktion bestimmt.

2.2 Modellierungs-Software COMLEAM

Die an der HSR Hochschule für Technik Rapperswil, Schweiz, entwickelte Software COMLEAM (COnstruction Material LEAching Model) dient dazu, die Auswaschung von potenziell umweltschädlichen Stoffen aus berechneten Gebäudebauteilen abzuschätzen, die vertikal oder horizontal exponiert

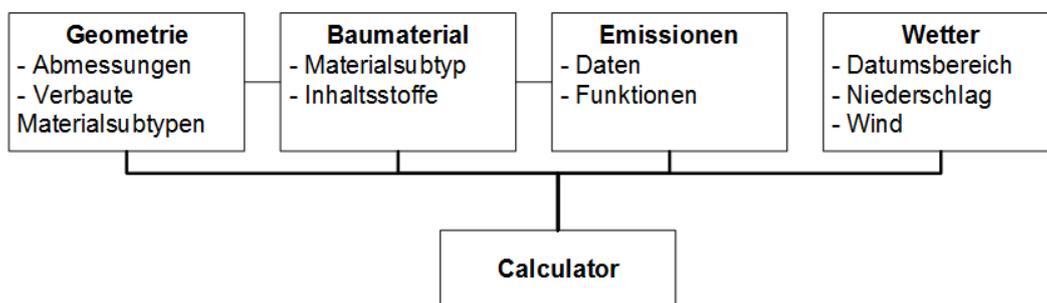
der Witterung ausgesetzt sind (Abbildung 1) (Burkhardt et al., 2018). Die Software stellt eine Plattform dar, mit der sich für vorgegebene Randbedingungen (z. B. Stoffe, Emissionsfunktionen) und Szenarien die Auswaschung und Umweltexposition abschätzen lassen. Der Anwender kann die Modellparameter und die entsprechenden Anforderungen aber auch individuell festlegen und dann simulieren.

Das auf ein Bauteil auftreffende Wasser wird aus den Wetterdaten abgeleitet: bei horizontalen Bauteilen wird der Niederschlag berücksichtigt und bei vertikalen Bauteilen der Schlagregen berechnet (Hochstrasser et al., 2016). Unter Berücksichtigung der Wassermenge am Bauteil wird mit einer Emissionsfunktion die Stoffauswaschung (Emission aus dem Bauteil) bestimmt. Ein System von Differentialgleichungen berechnet aus dem Abflusswasser und den Emissionen die Wasser- und Stoffgehalte in den nachfolgenden Kompartimenten, das heißt in Schnittstellenkompartimenten (SK) und in den Zielkompartimenten Boden und Gewässer.

Der Kern der Software, der *Calculator*, berechnet die Stoffflüsse anhand von Eingangsparametern aus den vier Modulen *Geometrie*, *Baumaterial*, *Emissionen* und *Wetter* (Abbildung 3).

Die *Geometrie* beschreibt die Abmessung, Ausrichtung und Materialien von einem oder mehreren Bauteilen (in COMLEAM „Komponenten“ genannt). Einzelne Bauteile werden über eine gemeinsame Identifikationsnummer (*buildingId*) zu einem Gebäude gruppiert. Jedes Bauteil kann aus verschiedenen Baumaterialien wie Glas, Kunststoff, mineralische Baustoffe etc. bestehen, wobei der relative Flächenanteil zugewiesen wird. So kann beispielsweise ein Bauteil, das eine Gebäudefassade widerspiegelt, einen Oberflächenanteil von 20 % Glas und 80 % mineralischen Putz umfassen.

Abbildung 3: Parameterbereiche, aus denen die Eingangsgrößen für COMLEAM stammen.



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Im Modul *Baumaterial* wird ein konkretes Bauprodukt beschrieben. Darin werden eine oder mehrere Substanzen mit ihren Anfangsgehalten definiert. Zudem wird für jedes Material ein spezifischer Materialtyp festgelegt. In COMLEAM sind fünf Materialgruppen (Mineralisch, Glas, Holz, Metall, Sonderformen) mit jeweils mehreren Materialtypen vordefiniert. Für jedes Bauprodukt werden spezifische Abflussbeiwerte vorgeschlagen. Die Abflussbeiwerte, d.h. der Anteil des Niederschlags (Schlagregens), der abflusswirksam wird, berücksichtigen die nicht eindeutig differenzierbaren und quantifizierbaren Wasserverluste durch Wasseraufnahme des Materials, Evaporation und Spritzwasser. Die Abflussbeiwerte lassen sich durch den Benutzer selber variieren. Unberücksichtigt bleiben die technische Variabilität sowie die hohe zeitliche Dynamik.

Im Modul *Emission* wird der Zusammenhang zwischen dem Abfluss an einem Bauteil und den dadurch ausgelösten Emissionen als wichtiger Teil der Modellierung abgebildet. Dieser Zusammenhang wird mit einer *Emissionsfunktion* beschrieben. Durch Integration der fünf Emissionsfunktionen in der Software COMLEAM können diese explizit getestet und verglichen werden. Die hier vorgestellten und implementierten Emissionsfunktionen stellen praktikable und plausible Vereinfachungen dar, wie sie in

der Praxis der Bauprodukte- oder Stoffbewertung gefordert sind. Bei einer weiteren gewünschten Detaillierung des Emissionsprozesses lässt sich auch die Diffusion der Substanzen innerhalb der emittierenden Bauprodukte oder der Abbau der Substanzen (z.B. photochemisch bedingt) modellieren.

Im Modul *Wetter* werden die Wetterdaten in stündlicher Auflösung abgelegt. Diese Zeitauflösung ist für die Berechnung des Schlagregens Voraussetzung. Die Datensätze enthalten neben Stationsname und Zeitstempel Angaben zur stündlich gemittelten Windrichtung und Windstärke sowie dem stündlichen Niederschlag.

COMLEAM ist in Java und einer browserbasierten Benutzerschnittstelle umgesetzt. Für die statistische Auswertung und die Erstellung eines einheitlichen Ergebnisberichts, der z. B. den Konzentrationsverlauf und die Austragsmengen an den Bauteilen, am Gebäude oder das zeitliche Auftreten im Gewässer enthält, wird auf die integrierte Statistiksoftware R zurückgegriffen.

2.3 Schlagregenberechnung

Der Schlagregen ist der Anteil des Niederschlags, der durch Wind auf die vertikalen Bauteile fällt. Er wird näherungsweise aus der Niederschlagsmenge, der Windgeschwindigkeit und der Windrichtung nach der ISO-Norm (DIN EN ISO 15927, 2009) berechnet. Hierbei werden die Exposition des Bauteils (Winkel des Bauteils gegen Nord), die Gebäudehöhe, die Lage zu anderen Gebäuden und die Lage im Gebiet berücksichtigt. Dieser Modellansatz ist in der Software COMLEAM implementiert.

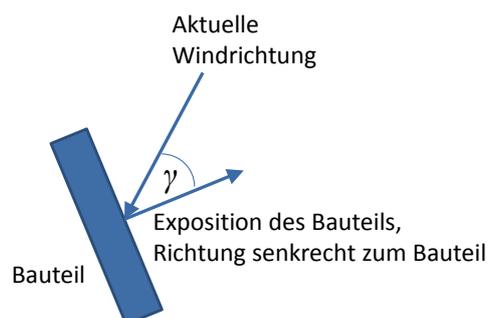
Der Schlagregen r_{SR} berechnet sich mit Hilfe des Standortfaktors α , der aktuellen Niederschlagsmenge r , der Windgeschwindigkeit w und des Winkels γ zwischen der Exposition des Bauteils und der aktuellen Windrichtung als

$$r_{SR} = \alpha \cdot r^{0,88} \cdot w \cdot \cos(\gamma) \quad \text{G 15}$$

Der Standortfaktor α berücksichtigt:

- ▶ Geländerauheit C_R : ob und wie stark die Windstärke reduziert wird durch viele und / oder hohe Gebäude in Windrichtung,
- ▶ Geländetopographie C_T : ob und wie stark das Bauteil durch seine Lage vor oder nach einem Hügel oder an einem See besonderer Witterung ausgesetzt ist,
- ▶ Versperrung des Bauteils O : durch Hindernisse (zum Beispiel durch andere Gebäude)
- ▶ Wandfaktor W : dieser berücksichtigt die Höhe des Gebäudes.

Abbildung 4: Schema zur Schlagregenberechnung an vertikal ausgerichteten Bauteilen.



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

2.4 Bilanzierung der Wasser- und Stoffmengen

Der Rechenkern (Calculator) von COMLEAM besteht aus Bilanzierungseinheiten, die die Abflüsse der Bauteile aufnehmen und an die Umweltkompartimente (z.B. Boden, Oberflächengewässer) verteilen. Dafür werden die Eingabedaten für Wetter, Geometrie, Baumaterial und Emission ausgewertet (Abbildung 3), um den zeitlich aufgelösten Wasserfluss und die dazugehörigen Substanzkonzentrationen als Input in die Bilanzierungseinheit, das sogenannte Schnittstellenkompartiment (SK) zu berechnen.

Die Änderung der Wassermenge im SK bilanziert den Zufluss (=Abfluss vom Bauteil) und den Abfluss. Die Abflussrate bestimmt die zeitliche Änderung des Wasserabflusses. So fließt in einem bestimmten Zeitraum nicht gleich viel Wasser ab wie als Zufluss durch (Schlag-)Regen aufgenommen wird:

$$\frac{dy}{dt} = Q_B - k \cdot y \quad \text{G 16}$$

mit: y = Wassermenge im Schnittstellenkompartiment [L]
 t = Zeit [Tage]
 Q_B = Abfluss von einem Bauteil [L/Tag]
 k = Abflussrate aus dem Schnittstellenkompartiment [1/Tag]

Die Zunahme einer Substanz im SK erfolgt durch die aus dem Bauteil emittierte Menge. Die Abnahme erfolgt proportional zur vorhandenen Menge wie in einem Linearspeicher-Modell:

$$\frac{dz}{dt} = z_{Em} - c \cdot k \cdot y - k_a \cdot z \quad \text{G 17}$$

mit:
 z = Stoffmenge [mg]
 t = Zeit [Tage]
 z_{Em} = Emission aus Bauteil [mg/Tag]
 c = Stoffkonzentration im SK [mg/L]
 k = Abflussrate aus SK [1/Tag]
 y = Wasser im SK [L]
 k_a = Abbaurate [1/Tag]

Die Änderung der Stoffmenge im SK ist abhängig von der ebenfalls zeitabhängigen Emission aus dem Bauteil (gegeben durch die Emissionsfunktion) abzüglich der Abflussrate sowie einer möglichen Abbaurate. Die Abflussrate bestimmt dabei die zeitliche Dynamik des Stofftransports. Über die Abbaurate kann der Aspekt des Stoffabbaus ebenfalls miteinkalkuliert werden. In diesem Bericht wird der Abbau im SK nicht in die Berechnungen aufgenommen.

3 Beschreibung der Eingabedaten

Für die durchgeführten Simulationen und die Beurteilung der Emissionsfunktionen und der Übertragungsfunktion werden drei verschiedene Datensätze verwendet (Tabelle 7, Abbildung 5):

- ▶ Standort Zürich, Material Putz, Substanz Terbutryn frei (nicht verkapselt eingesetztes Biozid)
- ▶ Standort Robert-Murjahn-Institut RMI, Ober-Ramstadt, Material Putz, Substanz Terbutryn frei
- ▶ Standort Zürich, Material Putz, Substanz Terbutryn verkapselt

Als Testfall zur grundlegenden Beurteilung der Emissionsfunktionen und Herleitung einer Übertragungsfunktion wurde die Substanz *Terbutryn* und als Material *Putz* festgelegt. Für *Terbutryn* liegen drei umfassende verlässliche Datensätze vor, der Wirkstoff lässt sich zuverlässig chemisch analysieren sowie weist eine hohe Stabilität in der Beschichtung und wässrigen Proben im Zeitrahmen der Analyse auf (Tabelle 7). Die ersten beiden Datensätze repräsentieren einen Messzeitraum von etwa einem Jahr, der dritte sogar von fast 2 Jahren. Die Daten stammen von drei unterschiedlichen, organisch gebundenen Putzrezepturen und wurden in voneinander unabhängigen Versuchen erhoben. Mit dem dritten Datensatz besteht darüber hinaus die Möglichkeit, die Verkapselung und deren Auswirkungen auf die betrachteten Emissionsfunktionen einzubeziehen. In Abbildung 5 sind die kumulierten Emissionen als Funktion der kumulierten Abflüsse dargestellt.

Tabelle 7: Übersichtsdaten der Feldstudien Zürich und Ober-Ramstadt.

	Zürich, Terbutryn frei	Ober-Ramstadt, Terbutryn frei	Zürich, Terbutryn verkapselt
Messzeitraum	18.1.2008 – 21.1.2009 (369 Tage)	1.10.2009 – 5.8.2010 (308 Tage)	8.10.2014 – 14.6.2016 (615 Tage)
Niederschlagsmenge	978 mm	607 mm	1756 mm
Wassermenge	56 L/m ²	58 L/m ²	78 L/m ²
Anzahl analysierter Proben (Messpunkte)	35	16	99
Emissionsmenge Terbutryn	28 mg/ m ² (1,24 % der Ausgangsmenge)	20 mg/ m ² (1,93 % der Ausgangsmenge)	20 mg/ m ² (1,43 % der Ausgangsmenge)

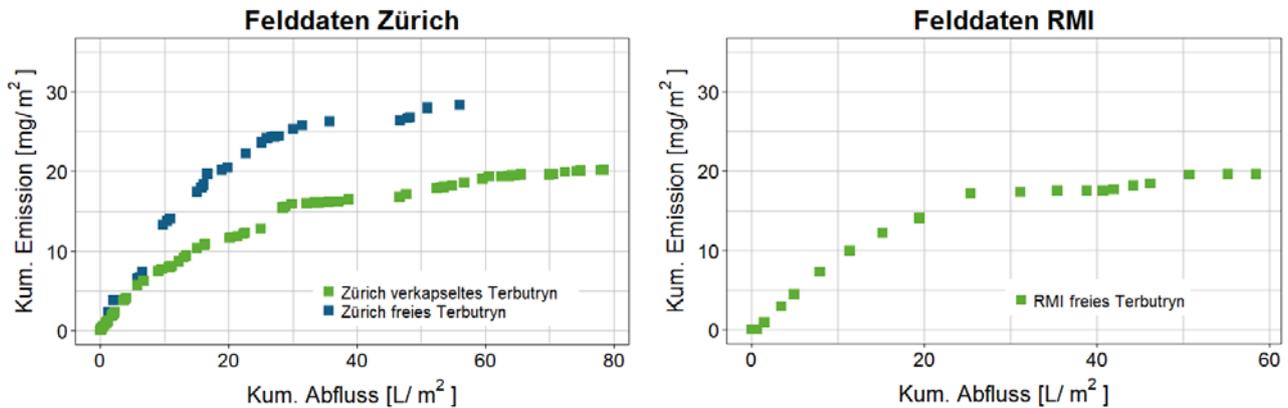
Terbutryn, ein biozider Wirkstoff gegen Algenbefall auf Farben und Putzen, dient hierbei als Leitsubstanz für andere vergleichbare organische Stoffe. Untersuchungen haben gezeigt, dass der funktionale Zusammenhang für andere Substanzen (z.B. Diuron, OIT, DCOIT, Carbendazim, Isopoturon, IPBC) ähnlich ist (Burkhardt et al., 2012).

Die Daten für freies Terbutryn, verbaut in einer Fassade mit Putz ohne Farbe, entstammen aus einem Feldversuch bei Zürich (CH) (Burkhardt et al., 2012). In einem Zeitraum von etwas mehr als einem Jahr wurden verschiedene Biozide im Abfluss von einem Modellhaus gemessen, unter anderem Terbutryn. Die Auswertung von einer westorientierten Testfassade mit 1,3 m² Größe (Höhe 1,8 m), an der der Abfluss ereignisbezogen aufgefangen und analysiert wurde, ist berücksichtigt. Die Ausgangskonzentration von Terbutryn in der Fassade betrug $c_0 = 2250 \text{ mg/m}^2$.

Die Daten aus einem Feldversuch in Ober-Ramstadt (RMI) für freies Terbutryn stammen aus einem Testkörper mit einer Größe von 0,8 m² (Höhe 1,25 m, Breite 0,6 m) und Ausrichtung Süd (180 Grad). Die Proben waren auf einer 2,5 m hohen Wand montiert. Der Ausgangsgehalt c_0 beträgt 1036 mg/m².

Die Daten für verkapseltes Terbutryn aus einer Fassade mit Putz ohne Farbe stammen ebenfalls aus einem Feldversuch in der Nähe von Zürich (CH). Insgesamt wurden 6 m² Fassadenfläche (3 m Höhe) mit $c_0 = 1400 \text{ mg/m}^2$ beprobt. Die Abflussdaten wurden während der Versuche erhoben.

Abbildung 5: Ergebnisse der Feldstudie Zürich mit *Terbutryn frei* (ca. 1 Jahr) und *Terbutryn verkapselt* (ca. 2 Jahre) und Ober-Ramstadt mit *Terbutryn frei* (ca. 1 Jahr). Alle Prüfkörper waren verputzt und mit unterschiedlichen Ausgangsmengen vom Wirkstoff Terbutryn ausgerüstet.



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

4 Beurteilung der Emissionsfunktionen

4.1 Beurteilungskriterien

Zur Modellierung der Emission stehen verschiedene mathematische Möglichkeiten zur Verfügung. Die fünf gewählten Funktionen - die logarithmische Emissionsfunktion, die Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum, die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion, die Langmuir-Emissionsfunktion, die Michaelis-Menten-Emissionsfunktion und die doppelt-loglineare Emissionsfunktion - werden auf ihre Eignung, die vorliegenden Daten möglichst gut wiederzugeben, systematisch mit folgenden vier Güteparametern beurteilt:

1. Anpassungsgüte: Die genannten Emissionsfunktionen E_T werden durch nichtlineare Regression an die Daten, bestehend aus gemessenen Abflussmengen q_i [L/m²] und Emissionsmengen E_i [mg/m²], angepasst. Die Güte der Anpassung ergibt sich aus dem residualen Standardfehler rse_A :

$$rse_A = \sqrt{\frac{1}{n - n_p} \cdot \sum_{i=1}^n (E_{T,i} - E_i)^2} \quad \text{G 18}$$

mit:	rse_A	residualer Standardfehler (englisch: <i>residual standard error</i>) [mg/m ²]
	n	Anzahl Messwerte
	n_p	Anzahl Parameter der Emissionsfunktion E_T
	E_1, \dots, E_n	zu den Zeitpunkten 1 bis n gemessene kumulative Emissionen [mg/m ²]
	$E_{T,i} = c_0 \cdot D_T(q_i)$	Werte der Emissionsfunktion E_T in [mg/m ²] für die Abflussmenge q_i
	q_1, \dots, q_n	gemessene Abflussmengen [L/m ²]
	i	Index der Messwerte von $i = 1$ bis n

Der residuale Standardfehler rse_A ist das anschauliche Standardmaß zur Beurteilung von Funktionsanpassungen und stellt die Wurzel aus der mittleren quadratischen Differenz zwischen den Messwerten E_i und den Funktionswerten $E_{T,i}$ dar. Der residuale Standardfehler gibt Auskunft darüber, wie stark eine Emissionsfunktion von den Daten abweicht (Abweichung zwischen Mess- und Funktionswerten) und besitzt dieselbe Einheit [mg/m²] wie die Messwerte E_i . Die Abweichungen können durch zufällige Effekte, durch Messfehler oder durch im Modell nicht berücksichtigte Prozesse entstehen.

2. Modellierungsgüte: Mit den genannten Emissionsfunktionen wird der Verlauf der Emissionen unter den lokalen Wetterbedingungen simuliert. Die Modellierungsgüte ist die Differenz zwischen den Messungen und den mit der jeweiligen Funktion zur gleichen Zeit modellierten Emissionen. Die Modellierungsgüte ergibt sich aus dem residualen Standardfehler rse_m :

$$rse_m = \sqrt{\frac{1}{n - n_p} \cdot \sum_{i=1}^n (E_{m,i} - E_i)^2} \quad \text{G 19}$$

rse_m	residualer Standardfehler der Modellierung [mg/m ²]
n	Anzahl Messwerte
n_p	Anzahl Parameter der Emissionsfunktion E_T
i	Index der Messwerte von $i = 1$ bis n
t_1, \dots, t_n	Messzeitpunkte der Emissions- und Abflussmessungen [Tage]
E_1, \dots, E_n	zu den Zeitpunkten t_1, \dots, t_n gemessene kumulative Emissionen [mg/m ²]
$E_{m,i}$	zu den Zeitpunkten t_1, \dots, t_n modellierte Emissionen $E_{m,1}, \dots, E_{m,n}$ [mg/m ²]

Der residuale Standardfehler der Modellierung rse_m ist das anschauliche Standardmaß zur Beurteilung von Modellen. Er stellt die Wurzel aus der mittleren quadratischen Differenz zwischen den Messwerten E_i und den entsprechenden Modellwerten $E_{m,i}$ dar und besitzt dieselbe Einheit wie die Messwerte [mg/m²]. Der residuale Standardfehler der Modellierung gibt Auskunft darüber, wie stark die Ergebnisse der Modellrechnungen von den gemessenen Emissionsmengen abweichen. Die Abweichungen entstehen durch die Messungen (durch zufällige Effekte (Variabilität) der Messungen oder durch Messfehler) oder durch das Modell. Abweichungen des vorliegenden Modells von den gemessenen Emissionsmengen können einerseits durch die Schlagregen- und Abflussberechnung entstehen, bei der die Abflüsse am Bauteil in Abhängigkeit von der lokalen Wettersituation berechnet werden. Andererseits sind Abweichungen durch im Modell nicht berücksichtigte Prozesse möglich, wie zum Beispiel durch den Stoffabbau, das Migrationsverhalten des Stoffs im Bauteil, die Wasseraufnahme im Bauteil und die Verdunstung von Ablaufwasser.

3. Vorhersagegüte: Der vorliegende Datensatz von Zürich mit verkapseltem Terbutryn umfasst Abfluss- und Emissionsmessungen über einem Zeitraum von fast zwei Jahren. Deshalb wurde die Emissionsfunktion an die erste Hälfte (d.h. an das erste Jahr) der Abfluss-Emissionsdaten angepasst und mit dem Modell COMLEAM sowie den ermittelten Emissionsfunktionen die zweite Hälfte der Daten vorhergesagt (Extrapolation; keine Datenanpassung). Folgende zwei Merkmale spielen bei der Vorhersagegüte eine Rolle:

Der residuale Standardfehler rse_k beschreibt die Anpassung an die $k = \frac{n+1}{2}$ Datensätze (Bedeutung und Interpretation siehe oben „Anpassungsgüte“)

$$rse_k = \sqrt{\frac{1}{k - n_p} \cdot \sum_{i=1}^k (E_{T,i} - E_i)^2} \quad \text{G 20}$$

Der residuale Standardfehler rse_x beschreibt die Extrapolation auf die verbleibenden $n - k$ Datensätze (Messwerte E_{k+1}, \dots, E_n)

$$rse_x = \sqrt{\frac{1}{n - k - n_p} \cdot \sum_{i=k+1}^n (E_{T,i} - E_i)^2} \quad \text{G 21}$$

Der residuale Standardfehler der Extrapolation zeigt an, wie genau sich die vorhergesagte Emission gegenüber Messdaten durch eine Emissionsfunktion abbilden lässt. Da die Modellierung in der Regel immer für Vorhersagen genutzt wird, ist die Güte der Extrapolation von hohem Stellenwert für die Beurteilung und Empfehlung von Emissionsfunktionen.

4. Extrapolationsdifferenz: Die Extrapolationsdifferenz $d_x = rse_x - rse_k$ zwischen dem residualen Standardfehler der Extrapolation rse_x und dem residualen Standardfehler der Anpassung rse_k . Die *Extrapolationsdifferenz* zeigt an, wie sehr eine genaue Anpassung (kleiner residualer Standardfehler der Anpassung) durch Zufallseffekte zustande gekommen ist. Eine große *Extrapolationsdifferenz* deutet darauf hin, dass die Übertragbarkeit des Modells und die Extrapolation in die Zukunft mit Vorbehalten zu versehen ist.

4.2 Ergebnisse der Anpassungen an die Emissionsfunktionen

Die Funktionsanpassungen wurden nach dem Prinzip der kleinsten Quadrate durchgeführt. Zur technischen Durchführung wurde die Prozedur „nls“ (non-linear least squares) der Software *R* verwendet (R Core Team, 2016). Hierbei werden die Funktionsparameter der Emissionsfunktionen so bestimmt, dass die Summe der Abweichungsquadrate zwischen den Messungen und den Funktionswerten minimal wird.

Es werden für jede Emissionsfunktion vier Anpassungen durchgeführt:

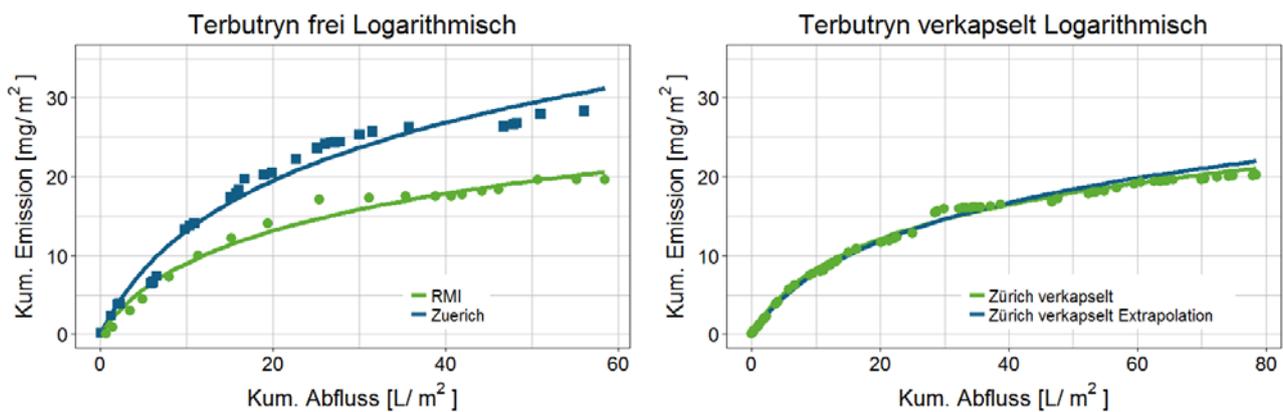
- ▶ Anpassung und Berechnung des residualen Standardfehlers rse_A für die Daten Zürich Terbutryn frei,
- ▶ Anpassung und Berechnung des residualen Standardfehlers rse_A für die Daten RMI Terbutryn frei
- ▶ Anpassung und Berechnung des residualen Standardfehlers rse_A für alle vorliegenden Daten Zürich Terbutryn verkapselt
- ▶ Anpassung und Berechnung des residualen Standardfehlers rse_k für die erste Hälfte der Daten Zürich Terbutryn verkapselt und Extrapolation und Berechnung des residualen Standardfehlers rse_x für den Bereich der zweiten Hälfte der Daten Zürich Terbutryn verkapselt (Vorhersage)

4.2.1 Logarithmische Emissionsfunktion

Die logarithmische Emissionsfunktion E_{\log} kann den Verlauf der kumulativen Abfluss-Emissionsdaten gut darstellen. Es gibt Abweichungen im Detail, aber die visuelle Wahrnehmung (Abbildung 6) scheint

zu bestätigen, dass der Datenverlauf im Mittel gut getroffen wird (vgl. Tabelle A 1). Dabei wird berücksichtigt, dass die aktuelle Emission durch die Steigung der Emissionsfunktion bestimmt wird, die gut mit der visuell aus den Daten ableitbaren Steigung übereinstimmt. Besondere Aufmerksamkeit verdient hier der Anfangsbereich, weil in diesem Bereich die Emissionen besonders stark sind. In diesem Bereich werden die Daten sehr gut durch die logarithmische Emissionsfunktion beschrieben.

Abbildung 6: Kurvenanpassung der logarithmischen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (*Terbutryn frei*) und RMI (*Terbutryn frei*) (links), sowie Zürich (*Terbutryn verkapselt*) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts; Versuchsdauer fast zwei Jahre)



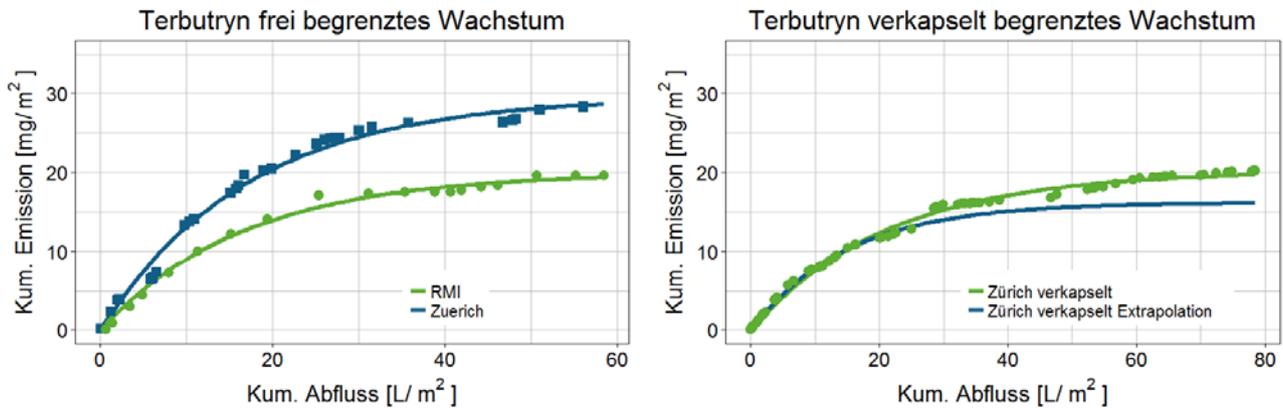
Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Der zweite kritische Bereich für die Kurvenanpassung ist der Bereich am Ende der Messungen, weil er bestimmt, wie die Funktion die Daten extrapoliert. Für den Datensatz *Zürich Terbutryn verkapselt* wurde auch die Extrapolation mit dem residualen Standardfehler getestet. Die Übereinstimmung der logarithmischen Emissionsfunktion im Extrapolationsbereich mit der auch in diesem Bereich angepassten Funktion ist sehr groß (Abbildung 6). Wie bei allen Funktionsanpassungen mit der logarithmischen Emissionsfunktion, wird der Verlauf gegen Versuchsende leicht überschätzt.

4.2.2 Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum

Die Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum E_{LG} kann die vorliegenden Datensätze etwas besser beschreiben als die logarithmische Emissionsfunktion (Tabelle A 2, Abbildung 7). Der entscheidende Nachteil der Emissionsfunktion begrenztes Wachstum ist die Berechnung der Wachstumsgrenze. Das zeigt sich an der Extrapolation für den Datensatz *Zürich Terbutryn verkapselt*. Die Wachstumsgrenze wird bei der Extrapolation deutlich unterschritten. Dadurch ist die Vorhersage von zukünftigen Emissionen mit der Emissionsfunktion begrenztes Wachstum nicht zu empfehlen.

Abbildung 7: Kurvenanpassung der Emissionsfunktion begrenztes Wachstum an den Standorten Zürich (*Terbutryn frei*) und RMI (*Terbutryn frei*) (links), sowie Zürich (*Terbutryn verkapselt*) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)

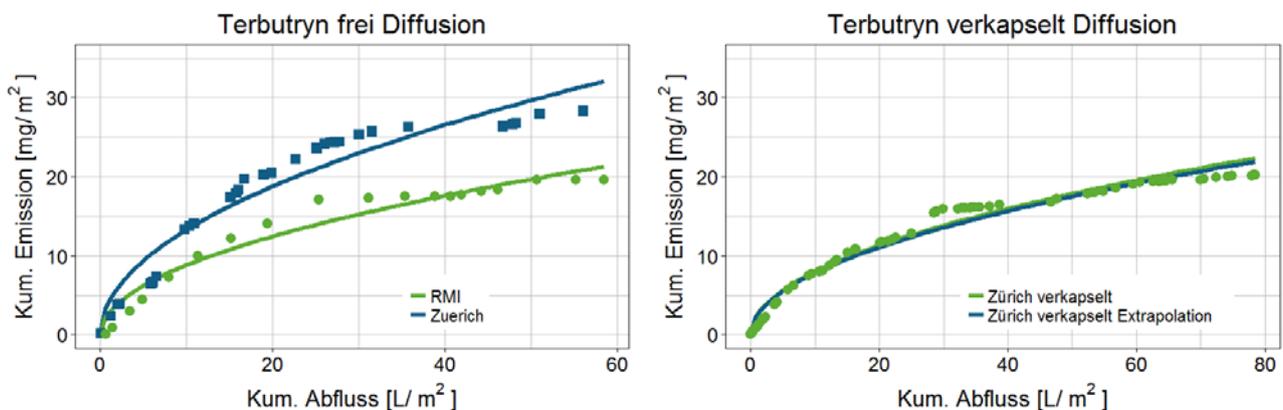


Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

4.2.3 Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion

Die Kurvenanpassung der diffusionsgetriebenen Emissionsfunktion E_{Diff} zeigt, dass diese Emissionsfunktion ungeeignet ist, die realen Emissionsdaten zu beschreiben (Tabelle A 3, Abbildung 8). Der Bereich am Anfang wird ungenügend angepasst. Die Wurzelfunktion besitzt hier eine unendlich große Steigung und prognostiziert daher in diesem Bereich eine viel zu hohe Emission. Der Bereich am Ende des Messzeitraums wird außerdem überschritten. Auch wenn es in diesem Beispiel nicht so deutlich visuell sichtbar ist, ergibt sich aus mathematischen Überlegungen, dass die Wurzelfunktion über den Messzeitraum hinaus wesentlich (d.h. um Größenordnungen) höhere Werte annimmt als die logarithmische Emissionsfunktion, weil die logarithmische Emissionsfunktion sehr viel langsamer wächst als jede Potenzfunktion.

Abbildung 8: Kurvenanpassung der diffusionsgetriebenen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (*Terbutryn frei*) und RMI (*Terbutryn frei*) (links), sowie Zürich (*Terbutryn verkapselt*) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)



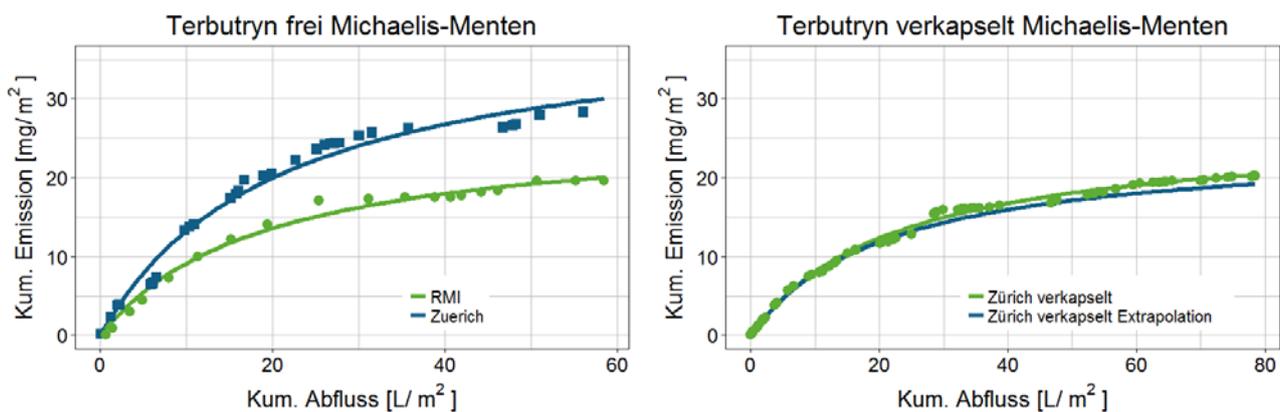
Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Die Extrapolation mit Hilfe der Diffusionsfunktion scheint dagegen ein sehr gutes Ergebnis zu liefern. Allerdings ist dieses Ergebnis durch Zufall zustande gekommen, weil zur Funktionsanpassung gerade diejenigen Messungen abgeschnitten wurden, die eine erhöhte Emission erzeugt hätten. Anhand der Ergebnisse lässt sich erkennen, dass die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion den flacheren Funktionsverlauf am Ende des Messzeitraums nicht nachvollziehen kann.

4.2.4 Langmuir- und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion

Die Funktionen Michaelis-Menten E_{MM} und Langmuir $E_{Langmuir}$ ergeben dieselben Kurvenverläufe, wie in der Parameter-Tabelle A 4 und in Abbildung 9 dargestellt ist. Diese Funktionen geben den Verlauf der Abfluss-Emissionsdaten sehr gut wider, sowohl am Anfangs als auch zum Ende des Messzeitraums. Der Nachteil ist, dass die Funktionen bei der Extrapolation (Abbildung 9, hier bei Terbutryn verkapselt) den Datenverlauf unterschätzen und sich daher eher nicht für eine Beurteilung zukünftiger Emissionen und deren Umweltvorkommen eignen (Vorsorgegedanke nicht abgebildet).

Abbildung 9: Kurvenanpassung der Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (*Terbutryn frei*) und RMI (*Terbutryn frei*) (links), sowie Zürich (*Terbutryn verkapselt*) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)

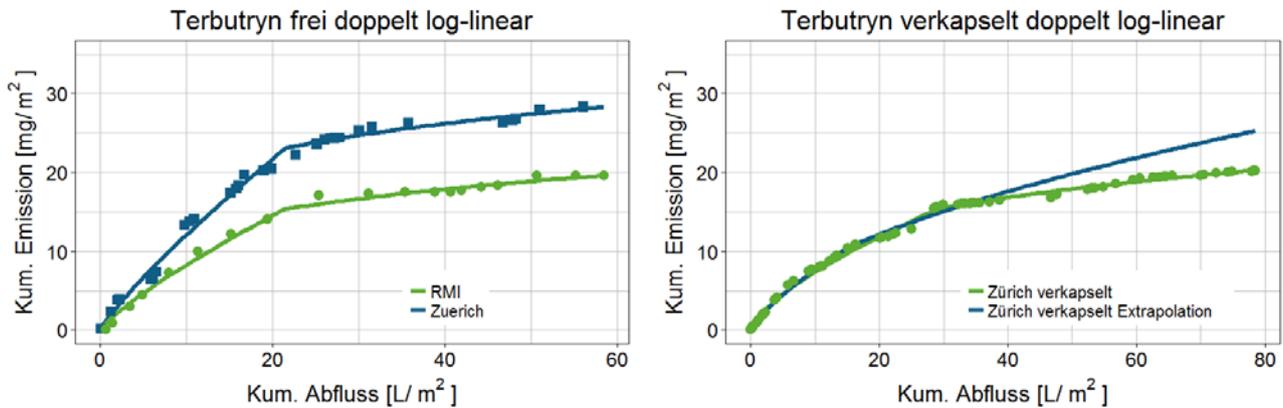


Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

4.2.5 Doppelt log-lineare Emissionsfunktion

Die Doppelt loglineare Emissionsfunktion mit 4 oder 5 Parametern kann die Daten zwar am besten anpassen (Tabelle A 5, Abbildung 10), beinhaltet aber auch mögliche zufällige Effekte, die von dem Wesentlichen des Funktionsverlaufs ablenken. Die Berücksichtigung der zufälligen Effekte führt dazu, dass bei der Übertragung auf eine andere Situation ein unrealistischer Funktionsverlauf entstehen kann (sogenanntes "Overfitting", vgl. Wollschläger, 2014, S. 492). Das zeigt sich in der starken Überschätzung der Emissionen im Extrapolationsbereich (Abbildung 10).

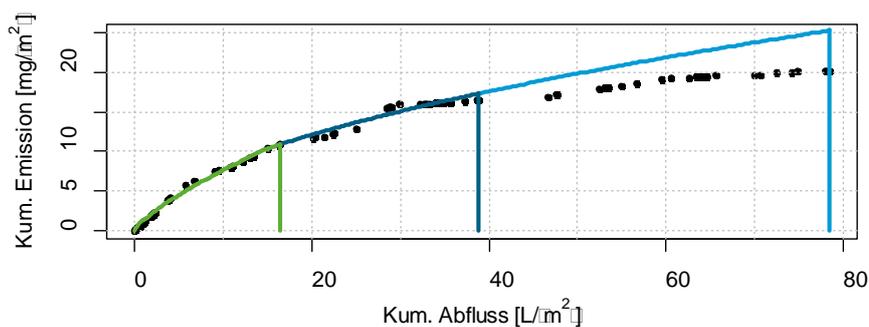
Abbildung 10: Kurvenanpassung der doppelt loglinearen Emissionsfunktion an den Standorten Zürich (*Terbutryn frei*) und RMI (*Terbutryn frei*) (links), sowie Zürich (*Terbutryn verkapselt*) bei Anpassung an alle Daten und bei Extrapolation der zweiten Hälfte der Daten (rechts)



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Abbildung 11 zeigt, wie die doppelt loglineare Funktion zur Extrapolation von der Terbutryn-Auswaschung (Zürich, verkapselt) angewendet wurde. Im ersten (grünen) Bereich (erstes Viertel der Messungen) wurde der erste Teil der doppelt loglinearen Emissionsfunktion angepasst, im zweiten (blauen) Bereich (zweites Viertel der Messungen) wurde der zweite Teil der doppelt loglinearen Emissionsfunktion angepasst. Im dritten (hellblauen) Bereich wurde die doppelt-loglineare Emissionsfunktion (genau wie die anderen Funktionen auch) zur Extrapolation fortgesetzt bis ans Ende des Messzeitraums. Der dritte Bereich ist eine echte Auswaschvorhersage ohne Kurvenanpassung.

Abbildung 11: Doppelt loglineare Emissionsfunktion für Zürich, Terbutryn verkapselt: Bereich der ersten Anpassung (grün), Bereich der zweiten Anpassung (blau), Bereich der Extrapolation (hellblau)



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

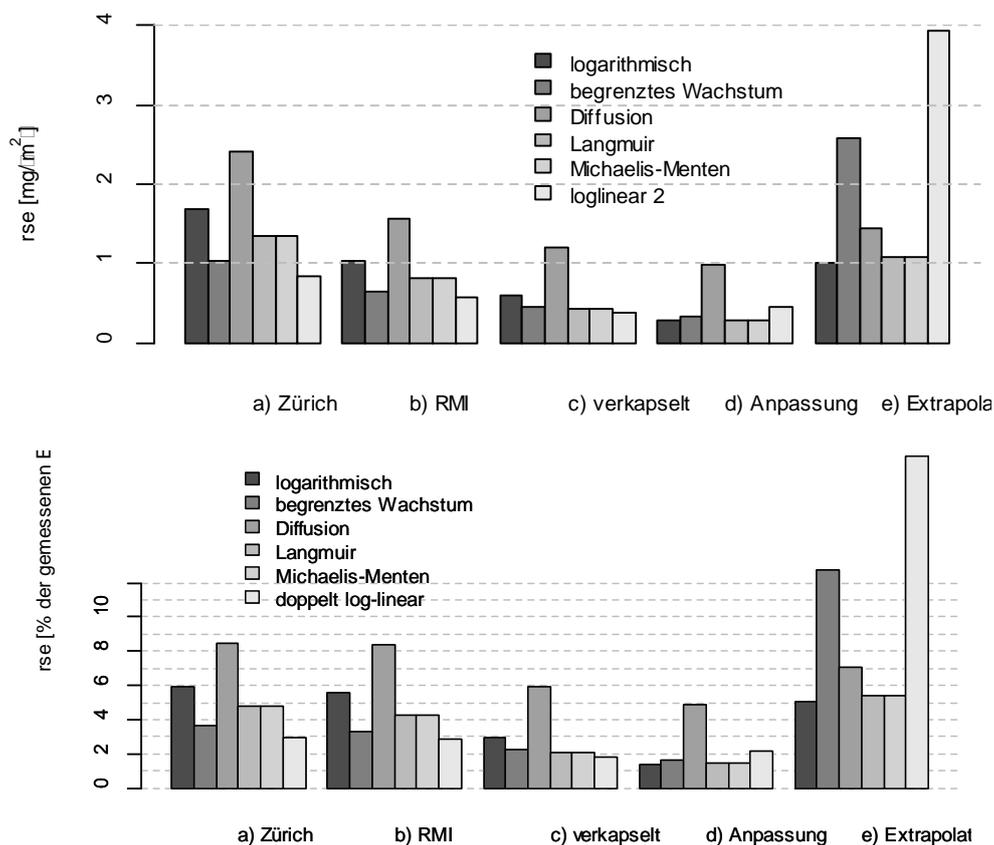
4.2.6 Übersicht über die Ergebnisse der Funktionsanpassungen

Um die Einzelergebnisse aus den Kapiteln 4.2.1 bis 4.2.5 möglichst übersichtlich zusammenzufassen, wurde der residuale Standardfehler als statistische Kennzahl zur Beurteilung herangezogen (vgl. Kapitel 4.1) (Abbildung 12). Funktionsanpassungen wurden auch für den ersten Teil des Datensatzes Zürich *Terbutryn verkapselt* bis zum Abfluss 40 L/m² durchgeführt (Abbildung 12: d-Anpassung). Die auf den ersten Teil angepassten Emissionsfunktionen wurden auf den zweiten Teil fortgesetzt (Abbildung 12: e-Extrapolation).

Für die drei Datensätze ergibt sich dabei ein konsistentes Bild: Den geringsten residualen Standardfehler bei der Funktionsanpassung hat die doppelt loglineare Emissionsfunktion, gefolgt von der Emissionsfunktion des begrenzten Wachstums, der Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Funktion, der logarithmischen Emissionsfunktion und als letztes der diffusionsgetriebenen Emissionsfunktion.

Weil die doppelt-loglineare Emissionsfunktion zu viele Parameter besitzt und der Zeitpunkt des Umschaltens von dem ersten auf den zweiten Teil sehr vage ist, kommt sie dennoch für eine generelle Anwendung nicht infrage. Ein weiterer Grund, warum sie nicht infrage kommt, liegt darin, dass sie bei der Extrapolation fast einen viermal so hohen Fehler hat wie andere Funktionen.

Abbildung 12: Residualer Standardfehler in $[mg/m^2]$ (oben) und relativ residualer Standardfehler (in Prozent) (unten) zum Maximum der im jeweiligen Datensatz gemessenen kumulativen Emission. Residuale Standardfehler rse_A für die Datensätze a) Zürich Terbutryn frei, b) RMI Terbutryn frei und c) Zürich Terbutryn verkapselt sowie residualer Standardfehler rse_K für die Anpassung der Emissionsfunktionen an die erste Hälfte des Datensatzes Zürich Terbutryn verkapselt (d-Anpassung) und residualer Standardfehler rse_X für die Extrapolation der Emissionsfunktionen auf die zweite Hälfte des Datensatzes Zürich Terbutryn verkapselt (e-Extrapolation).



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Die Emissionsfunktion begrenztes Wachstum kommt für eine generelle Anwendung nicht infrage, weil sie tendenziell die Emissionen unterschätzt, besonders stark bei der Extrapolation. Dasselbe gilt für die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion, wenn auch in geringerem Maße.

Daher ergibt sich aus den Funktionsanpassungen, dass die logarithmische Emissionsfunktion am besten geeignet ist für die Verwendung als Emissionsfunktion, und zwar aus folgenden Gründen:

- ▶ Der Anpassungsfehler ist in allen Fällen akzeptabel.
- ▶ Ein Modellierungsfehler in dem Sinne, dass für einen Bereich physikalisch ungeeignete Werte auftreten, ist in keinem Fall gegeben, weil am Anfang eine sehr genaue Anpassung erfolgt und zum Ende hin eine leichte Überschätzung erfolgt.
- ▶ Der Vorhersagefehler – im Sinne einer großen Abweichung bei der Extrapolation – ist im Vergleich mit allen anderen Emissionsfunktionen am kleinsten.

Die logarithmische Emissionsfunktion ist geeignet, weil sie die Daten genau genug anpassen kann und die kleinstmögliche Überschätzung bei der Extrapolation liefert.

Die sehr gute Übereinstimmung der logarithmischen Emissionsfunktion mit den Daten ist besonders wichtig für die angemessene Beurteilung der akuten und langfristigen Belastungen in nachfolgenden Umweltkompartimenten (Boden, Grundwasser, Oberflächengewässer).

4.3 Beschreibung der Simulationen

Bei den Simulationen werden die Emissionsfunktionen im COMLEAM mit den im Kapitel 4.2 dargestellten Parametern auf die lokalen Wettersituationen angewendet. Zur Berechnung des Schlagregens bzw. des Abflusses werden die in Tabelle 8 (s.u.) angegebenen Gebäudeparameter eingegeben. Die Simulationen wurden durchgeführt, um die Ungenauigkeiten abzuschätzen, die durch die Emissionsfunktionen entstehen. Die Standardvergleichsgröße ist die Differenz zwischen den simulierten und den gemessenen Variablen, hier also die Differenz der Messungen und der simulierten Variablen, wie in Abbildung 13 mit der (4) angedeutet.

Dieser Vergleich gibt die Gesamtsituation aber nur zum Teil wieder. Insbesondere gibt dieser Vergleich nicht ausschließlich die Genauigkeit der Emissionsfunktion, sondern gleichzeitig auch die Summe aus folgenden Ungenauigkeiten wieder:

- ▶ Wie genau repräsentieren die Wetterdaten das Wetter (siehe (1) in Abbildung 13)?
- ▶ Wie genau ist die Berechnung des Schlagregens und der Abflussmenge mit Hilfe der Wetterdaten (siehe (2) in Abbildung 13)?
- ▶ Wie genau kann eine Emissionsfunktion die Abhängigkeit der Emissionen vom Abfluss wiedergeben (siehe (3) in Abbildung 13)?
- ▶ Wie genau kann mit der gegebenen Emissionsfunktion die Kombination aus Abfluss und Emission vorhergesagt werden (siehe (5) in Abbildung 13)?

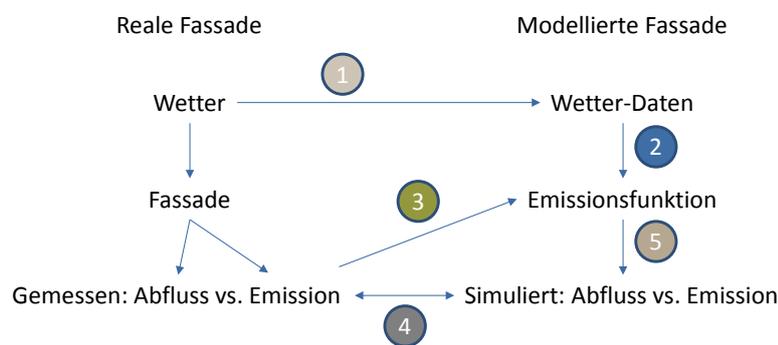
Umverteilungs- und Transformationsprozesse bewirken, dass die Stoffkonzentrationen auf dem Bauteil nicht kontinuierlich abnehmen. Die Abweichungen der simulierten Abfluss-Emissionswerte von den Messungen entstehen durch die Summe der genannten zusätzlichen Prozesse und variierenden Randbedingungen und sind nicht allein der Ungenauigkeit einer Emissionsfunktion geschuldet.

Im Gegenteil: Weil die Emissionsfunktionen, die in den Simulationen verwendet werden, aus den Daten abgeleitet sind (vergleiche (3) in Abbildung 13), wirkt die Emissionsfunktion stabilisierend auf die Simulationsergebnisse. Die Differenzen zwischen den gemessenen Abflüssen und Emissionen einerseits und den simulierten Abflüssen und Emissionen andererseits (vergleiche (4) in Abbildung 13), sind also insbesondere den Ungenauigkeiten in den Wetterdaten und der Ungenauigkeit der Schlagregenberechnung geschuldet. Differenzen, die sich aus parallel auf einer kleinen Zeitskala stattfindenden Umverteilungs- und Transformationsprozessen ergeben (z.B. durch Diffusionsprozesse innerhalb des

Bauteils), werden durch die Anpassung der Emissionsfunktionen an die Daten (Kapitel 4.2) herausgemittelt und durch den residualen Standardfehler (Kapitel 4.1 und 0) beurteilt (Anpassungsfehler). Langfristig wirksame Umverteilungs- und Transformationsprozesse (wie die Emission selbst und der mögliche Abbau von Terbutryn im Bauteil), werden summarisch in der Emissionsfunktion zusammengefasst. Die hierbei entstehenden Differenzen (Modellierungsfehler) zwischen den gemessenen Abflüssen und Emissionen einerseits und den simulierten Abflüssen und Emissionen andererseits können ebenfalls bereits mit der Anpassungsgüte (in Kapitel 4.2) beurteilt werden.

Im vorangegangenen Kapitel wurden die Emissionsfunktionen beurteilt nach ihrer Eignung, die gemessenen Daten Abfluss vs. Emission zu beschreiben (vgl. Nummer (3) in Abbildung 13).

Abbildung 13: Übersicht über die Unsicherheiten bei der Emissionssimulation von Emissionen aus Fassaden



- 1: Ungenauigkeiten bei der Messung, Verwendung entfernter Messstation
- 2: Ungenaue Abschätzung der Schlagregenmenge nach Norm ISO-15927
- 3: Ableitung der Emissionsfunktion aus den Abfluss-Emissions-Daten (hier s.o.)
- 4: Standardvergleichsgrösse: Simuliert vs. Gemessen
- 5: Übereinstimmung der simulierten Abfluss-Emissions-Daten mit der vorgegebenen Emissionsfunktion

Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Im folgenden Kapitel 4.4 wird zum Vergleich der Emissionsfunktionen die Differenz der Messungen und der simulierten Variablen dargestellt, wie es in Abbildung 13 mit (4) angedeutet ist. Dieser Vergleich (4) *gemessen – simuliert* soll zeigen:

- a) dass und inwieweit die in der Simulation verwendeten Wetterdaten die Wetterverhältnisse während der Versuchsdurchführung gut wiedergeben,
- b) dass und inwieweit die Berechnung des Schlagregens nach der ISO-Norm (DIN EN ISO 15927, 2009) eine für diese Untersuchung akzeptable Genauigkeit aufweist,
- c) dass und inwieweit die an die Daten angepassten Emissionsfunktionen für die Simulation der realen Versuchssituationen geeignet sind, und
- d) ob es spezifische Charakteristika der Emissionsfunktionen gibt und welche es sind.

Die ersten drei Punkte a) bis c) in dieser Liste können nur summarisch behandelt werden, weil die Summe der entsprechenden Ungenauigkeiten die Differenz gemessen versus simuliert erzeugt. Welcher dieser drei Punkte a), b) oder c) besonders stark für die Differenz gemessen - simuliert verantwortlich ist, kann mit dieser Differenz nicht entschieden werden. Da jedoch die Ungenauigkeiten aus den Wetterdaten (a) und der Schlagregenberechnung (b) für alle Emissionsfunktionen gleich sind,

können die Differenzen gemessen - simuliert dazu herangezogen werden, die Emissionsfunktionen relativ zueinander zu analysieren und zu bewerten (siehe Kapitel 4.4).

Im darauffolgenden Kapitel 4.5 *Vorhersage der Abfluss-Emissions-Relation* wird gefragt, ob und inwieweit eine aus den Simulationsergebnissen abgeleitete Abfluss-Emissions-Relation von der gegebenen Emissionsfunktion abweicht. Die Antwort gibt Aufschluss darüber, wie groß die Ungenauigkeit ist (Abbildung 13, (5)). Dieser Vergleich zeigt einerseits die Plausibilität des Modellansatzes und andererseits die numerische Genauigkeit der Simulation (Simulationsgüte).

4.3.1 Simulationsparameter

Die Simulationen stellen eine Art der Sensitivitätsanalyse dar (Pianosi et al., 2016), in der alle Eingabeparameter auf einmal variiert werden („all-factors-at-a-time“). Dadurch werden die verschiedenen Eingabefaktoren einschließlich der Wechselwirkungen zwischen ihnen getestet. Zusammen ergeben sie 20 Simulationsszenarien, die in zwei Dimensionen geordnet werden:

- ▶ ad1) die Variation der drei Datensätze (Zürich Terbutryn frei, RMI Terbutryn frei und Zürich Terbutryn verkapselt) und einer Datensatzvariante (Extrapolation der Emissionsfunktion am Standort Zürich Terbutryn verkapselt)
- ▶ ad2) die Variation der 5 Emissionsfunktionen (logarithmisch, begrenztes Wachstum, Diffusion, Michaelis-Menten, doppelt loglinear).

Für die Simulationen der drei Messreihen wurde als Start- und Enddatum die gleiche Zeitspanne wie bei den Versuchen gewählt. Simuliert wurde entsprechend der Feldversuche eine einzelne Fassade mit gleicher Exposition. In Tabelle 8 sind die Parameter festgehalten, die für die Simulationen mit den drei Datensätzen und der Datensatzvariante eingesetzt wurden. Die Parameter sind für die spätere Analyse der Simulationsergebnisse wichtig, um die Einflussstärke der Parameter abschätzen zu können.

Tabelle 8: Simulationseinstellungen und -parameter für die drei Felddatensätze

Parameter	Zürich Terbutryn frei	Zürich Terbutryn verkapselt	RMI Terbutryn frei
Wetter	Dübendorf	Kloten	Darmstadt
Geometrie	Fläche: 1,3 m ² Exposition: 270 ° Bodenwinkel: 90 °	6 m ² 275 ° 90 °	0,8 m ² 180 ° 90 °
Material mit applizierter Menge c_0	Putz ohne Farbe mit $c_0 = 2250 \text{ mg/ m}^2$	Putz ohne Farbe mit $c_0 = 1400 \text{ mg/ m}^2$	Putz ohne Farbe mit $c_0 = 1036 \text{ mg/ m}^2$
Abflussbeiwert	1,0	1,0	1,0
Schlagregenparameter	C_R : 0,72 C_T : 1 O : 0,6 W : 0,55	0,72 1 0,6 0,55	0,72 1 1 0,5

4.4 Vergleich zwischen Messung und Simulation

In diesem Abschnitt werden die Emissionsfunktionen (logarithmisch, begrenztes Wachstum, Diffusion, Michaelis-Menten, doppelt loglinear) miteinander verglichen, insbesondere in Hinsicht darauf, wie genau die Funktionen die simulierten Emissionsmengen in den vier Beispielen nachvollziehen können:

- ▶ Zürich Terbutryn frei
- ▶ RMI Terbutryn frei
- ▶ Zürich Terbutryn verkapselt
- ▶ Zürich Terbutryn verkapselt Extrapolation.

4.4.1 Simulationsergebnisse über die Versuchsdauer

Die Simulationsergebnisse zum Datensatz *Zürich Terbutryn frei* im Vergleich mit den realen Messdaten sind in Abbildung 14 oben links gezeigt. Die Simulationen wurden über 1,5 Jahre durchgeführt, um den weiteren Trend der Emissionsfunktionen abschätzen zu können. Ersichtlich ist, dass die Simulationen mit den Emissionsfunktionen doppelt-loglinear und begrenztes Wachstum zu einer Unterschätzung der Emissionen führen. Die Logarithmusfunktion bilanziert die kumulierte Emission am Ende des Feldversuchs (365 Tage) minimal höher als die realen Messdaten, allerdings mit einer Tendenz zu einer Überschätzung der langfristigen Emissionsvorhersage. Die beste Übereinstimmung weist die Michaelis-Menten-Emissionsfunktion auf. Die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion unterschätzt dagegen den Anstieg der kumulierten Emissionen im Zeitraum zwischen 60 bis 260 Tagen am stärksten und überschätzt die Gesamtemission ebenfalls am stärksten.

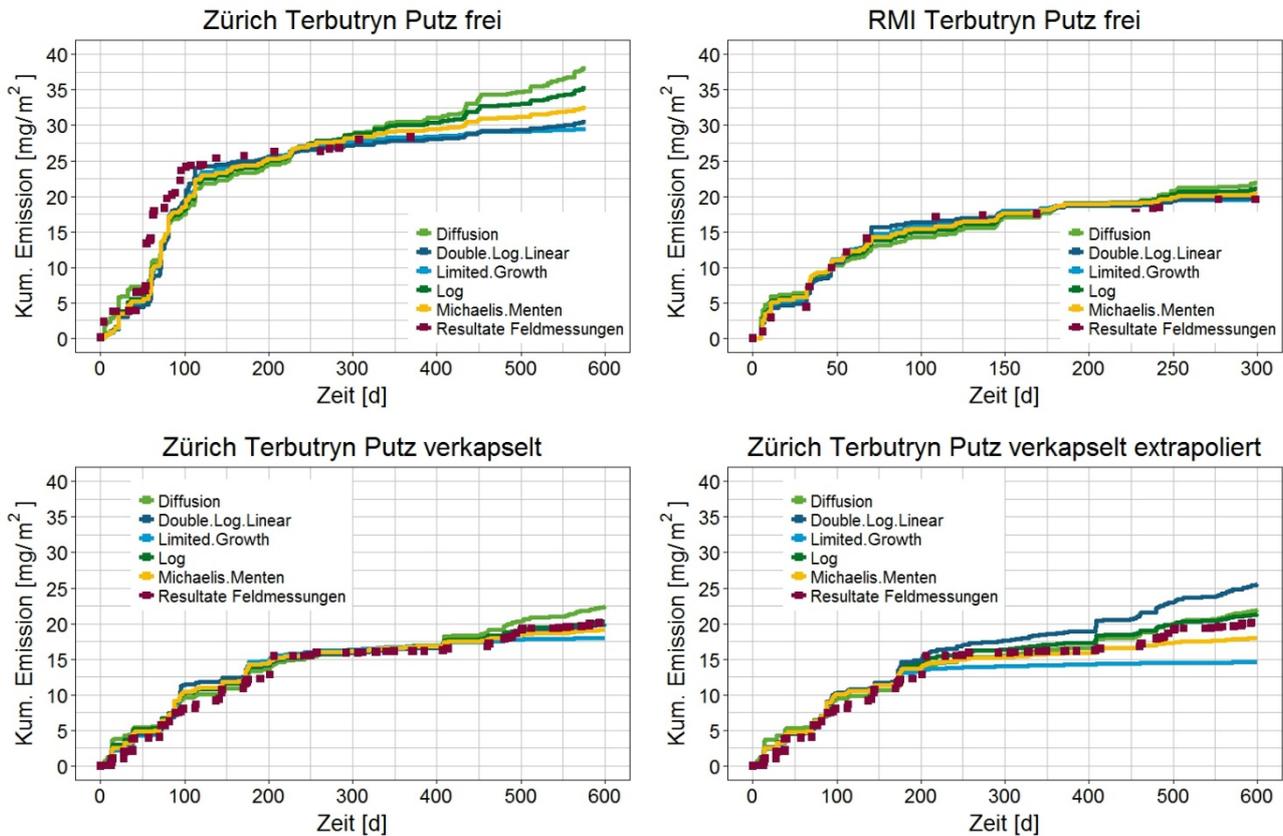
Allerdings muss darauf hingewiesen werden, dass eine Unterschätzung nicht zwingend nur der jeweiligen Emissionsfunktion anzulasten ist. Beispielsweise sind auch folgende Gründe für eine Unterschätzung in Betracht zu ziehen:

- ▶ Die Emissionsfunktion selbst, die den Bereich zwischen 20 und 30 Tagen unterschätzt. Der Grund dafür könnte sein, dass die Emissionsfunktion gewisse stoffrelevante Prozesse zu stark vereinfacht.
- ▶ Die Abschätzung der Windrichtung bzw. der Windgeschwindigkeit durch den in der ISO-Norm (DIN EN ISO 15927, 2009) vorgegebenen Algorithmus bildet zusätzliche Faktoren, die während des Versuchs auftreten könnten, nicht ab.
- ▶ Die Wetterdaten passen nicht vollständig zu den Abflüssen, weil die Wetterbedingungen an einer rund 5 km entfernt gelegenen Wetterstation erfasst wurden.

Die Daten des RMI werden ebenfalls relativ gut angenähert (Abbildung 14, rechts oben). Obwohl es sich um eine völlig andere Niederschlagsverteilung bzw. ein anderes Wetter handelt, ist es wieder die Zeitspanne in der Mitte der Versuchsdauer, in der die größten Abweichungen auftreten. Wiederum überschätzt die diffusionsbasierte Funktion am deutlichsten die effektive Auswaschmenge,

Bei den Daten aus den Versuchen mit verkapseltem Terbutryn ist die Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit den Daten im ersten Jahr überaus gut (Abbildung 14, links unten). Danach zeigt sich eine gewisse Bandbreite der verschiedenen Emissionsfunktionen (Abbildung 14, rechts unten) mit plus/minus ca. 10-30 % gegenüber dem letzten Messwert. Die doppelt-loglineare Emissionsfunktion überschätzt die Auswaschung am stärksten und die für begrenztes Wachstum unterschätzt am stärksten. Dagegen ist wiederum die logarithmische Funktion die passendste, diesmal zusammen mit der Diffusionsfunktion.

Abbildung 14: Simulationsergebnisse Zürich Terbutryn frei (links oben), RMI Terbutryn frei (rechts oben), Zürich Terbutryn verkapselt (links unten) und Zürich Terbutryn verkapselt Extrapolation (rechts unten)



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

4.4.2 Extrapolation der Versuchsdaten mittels Modellierung

Für einen Putz mit verkapseltem Terbutryn liegt eine Datenreihe von fast zwei Jahren vor. Hier wurde getestet, welche Auswirkungen das Vorgehen hat, auf das wir in den meisten Modellierungsfällen angewiesen sind: Aufgrund von Messresultaten über ein Jahr wurden die Terbutryn-Emissionen für das zweite, darauffolgende Jahr vorhergesagt. Die Daten des ersten Jahres werden also verwendet, um die Parameter der Emissionsfunktionen zu bestimmen (Anpassungszeitraum ein Jahr). Im zweiten Jahr wird die Emissionsentwicklung – aufgrund der vorhandenen Wetterdaten – extrapoliert ohne dass eine Korrektur durch die Daten aus dem zweiten Jahr stattfindet (Extrapolationszeitraum). Die Emissionsmessungen des zweiten Jahres werden nur dazu verwendet, die Güte der Extrapolation zu beurteilen und stellen eine echte Vorhersage (Prognose) dar.

Die Ergebnisse in Abbildung 14, rechts unten, entsprechen insofern den Erwartungen, dass die Berechnung der Emissionen im ersten Jahr etwa die Genauigkeit wie in den anderen Fällen aufweist. Im zweiten, vorhersagenden Abschnitt der Extrapolation steigt die Bandbreite der Ergebnisse der beteiligten Emissionsfunktionen deutlich an. Die begrenzte Wachstumsfunktion erreicht ein Plateau am Ende des ersten Jahres, weil keine weiteren, höheren Emissionsmessungen in die Bestimmung der Funktionsparameter eingehen. Dementsprechend werden – erwartungsgemäß – die Emissionen im zweiten Jahr durch die Emissionsfunktion des begrenzten Wachstums am meisten unterschätzt (rund 20 %).

Die größte Überschätzung verbindet sich mit der doppelt-loglineare Emissionsfunktion (rund 20 %). Weil hier nur die Daten des ersten Jahres zur Bestimmung der Funktionsparameter verwendet werden

dürfen, muss dieser Zeitraum nochmal geteilt werden, um die Parameter der ersten und der zweiten Phase getrennt zu bestimmen. Der Zeitpunkt, der das Ende der ersten Phase und den Anfang der zweiten Phase darstellt, wurde der Einfachheit halber selbst nicht in die Optimierung mit aufgenommen. Die Festlegung dieses Zeitpunktes hat aber einen Einfluss auf die Güte der Extrapolation. Es ist aber nicht so, dass der für die Funktionsanpassung optimale Trennungzeitpunkt zu der besten Extrapolation führt. Die verschiedenen Annahmen, wo dieser Trennungzeitpunkt liegt, führen zu einer beliebigen Fortsetzung der Extrapolation. Im vorliegenden Fall wurde die erste Hälfte der Messungen aus dem Anpassungszeitraum für die erste Phase verwendet und die zweite Hälfte der Messungen aus dem Anpassungszeitraum für die zweite Phase der doppelt-loglinearen Emissionsfunktion. Eine statistische Optimierung des Trennungzeitpunktes könnte die Güte der Extrapolation verändern, hängt aber selbst wiederum davon ab, welche Daten für den Anpassungszeitraum und welche Daten für den Extrapolationszeitraum verwendet werden.

Die Michaelis-Menten-Emissionsfunktion führt wie die begrenzte Wachstumsfunktion zu einer Unterschätzung der Emissionen im Extrapolationszeitraum. Aufgrund des funktionalen Zusammenhangs wird nach dem Anpassungszeitraum zwar kein Plateau erreicht, aber die Steigung der Emissionskurve wird unterschätzt.

Die logarithmische Emissionsfunktion weist wiederum die beste Übereinstimmung mit den Messdaten auf, d.h. die kleinste Überschätzung bei der Extrapolation ist die Folge. Auch die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion weist eine vergleichbar hohe Übereinstimmung auf.

Wenn die Extrapolationsgüte im Zeitraum 300 bis 600 Tage nach Simulationsbeginn das einzige Kriterium zur Auswahl einer Emissionsfunktion wäre, um eine „konservative“ Extrapolation durchzuführen, sind sowohl die diffusionsgetriebene als auch die logarithmische Emissionsfunktion besonders geeignet. Allerdings wächst die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion viel schneller: nach 600 Tagen 25 % und nach weiteren 600 Tagen 80 % stärker als die logarithmische Emissionsfunktion.

4.5 Vorhersage der Abfluss-Emissions-Relation

Die Vorhersage der Emissionen aus einem berechneten Bauteil mit einem Simulationsmodell wie COMLEAM enthält drei Teile, zu denen die Unsicherheit abgeschätzt werden sollte: die Wetterdaten, die Vorhersage des Abflusses (bei vertikalen Bauteilen des Schlagregens) und die Emissionsfunktion (Abbildung 13). Um die Unsicherheiten bei der Simulation zu beurteilen, müssen diese Aspekte gleichermaßen berücksichtigt werden.

Die Beurteilung der Unsicherheiten durch die Emissionsfunktion besteht selbst aus zwei Teilen: Einerseits die Unsicherheiten bei der Ermittlung der Emissionsfunktion (vgl. Nummer (3) in Abbildung 13) und andererseits die Unsicherheit bei der Vorhersage der Abfluss-Emissions-Relation (vgl. Nummer (5) in Abbildung 13), die in diesem Kapitel behandelt wird.

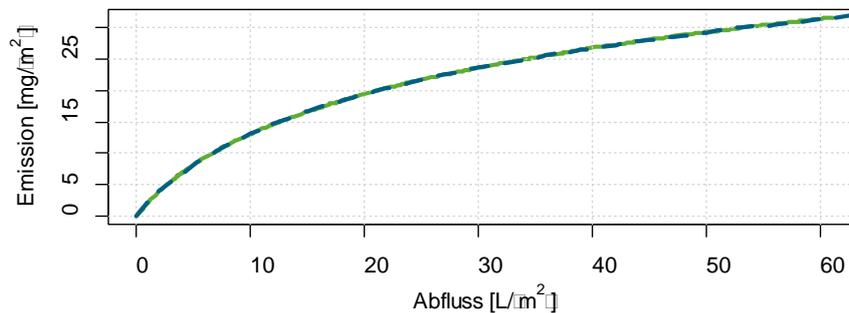
In diesem Kapitel wird also geklärt, wie genau sich Abfluss und Emission berechnen lassen, wenn die standortspezifischen Wetterdaten vorliegen, der Schlagregen genau berechnet wird und die geeignete Emissionsfunktion bekannt ist.

Um diese Frage zu beantworten, wird folgender Ansatz verfolgt: Die Simulationsergebnisse umfassen die Zeitreihe *Abfluss* (d.h. die Wassermenge, die zum Beispiel an der Unterkante der Fassade abfließt) und die Zeitreihe *Emission* (d.h. die Emissionsmenge, also in diesem Fall die Menge von Terbutryn im Abfluss). Stellt man nun die zu einem Zeitpunkt *simulierte Abflussmenge* und die zu demselben Zeitpunkt *simulierte Emissionsmenge* jeweils kumulativ gegenüber, so erhält man eine *simulierte Emissionsfunktion*. Mit demselben Vorgehen wurden (wie in Kapitel 4.2 beschrieben) die *gemessenen Emissionsfunktionen* ermittelt, indem die zu einem Zeitpunkt *gemessene Abflussmenge* und die zu demselben Zeitpunkt *gemessene Emissionsmenge* jeweils kumulativ gegenübergestellt wurden.

Wenn die Annahme getroffen wird, dass der Abfluss genau berechnet wird, dann ergibt sich die Antwort aus der Genauigkeit, mit der die *simulierte Emissionsfunktion* und die bei der Simulation *vorgegebenen Emissionsfunktion* übereinstimmen.

Entsprechend sind in Abbildung 15 der *simulierte kumulative Abfluss* auf der *x-Achse* sowie auf der *y-Achse* die *simulierten kumulativen Emissionen* und der zum jeweiligen Abflusswert gehörende *Wert der Emissionsfunktion* dargestellt. Aufgrund des Prinzips der Massenerhaltung bei den COMLEAM-Berechnungen stimmen die beiden Kurven weitgehend überein (residualer Standardfehler 0,07 mg/m²).

Abbildung 15: Simulierte kumulative Emissionsfunktion (grün, teilweise verdeckt) und vorgegebene logarithmische Emissionsfunktion (blau, gestrichelt) (*Zürich Terbutryn frei*)



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

5 Beurteilung der Übertragungsfunktion

Die an einem Bauteil oder Standard-Haus bestimmten Emissionen sollen bei einer Umweltexpositionsabschätzung in der Regel auf andere Gebäudegeometrien unter Berücksichtigung des Einleitgewässers (Vorfluter) übertragen werden. Dieser Ablauf in der Modellierung wird als *Übertragungsfunktion* zusammengefasst.

Grundsätzlich gilt, dass die Emissionen an einem Haus aufgrund seiner spezifischen Geometrie (Länge, Höhe etc.), der vorliegenden Materialeigenschaften (z.B. Putz mit einer applizierten Menge Terbutryn) und dem lokalen Wetter spezifisch ermittelt werden müssen. Mit Hilfe von Szenarien soll eine Vorstellung gegeben werden, wie eine Übertragung aussehen kann und welchen Einfluss die Gebäudehöhe und die Ausrichtung einer Fassade dabei haben können.

5.1 Beschreibung der Szenarien

Einen wesentlichen Einfluss auf die Auswaschung bei einem Regenereignis hat die Fassadenfläche, dabei insbesondere auch die Gebäudehöhe. Für die Beurteilung der Übertragungsfunktion wird daher eine Referenzgeometrie mit drei unterschiedlichen Höhen über einen Zeitraum von 20 Jahren simuliert. Bestimmt werden die expositionsabhängigen Gesamtemissionen eines Gebäudes. Deshalb werden in allen Simulationen jeweils alle vier Fassaden des Gebäudes berücksichtigt. In Tabelle 9 sind die Geometriedaten der simulierten Gebäude, aufgeteilt nach deren Exposition, aufgeführt.

Als Referenzgrundfläche für die drei Gebäudehöhen wird das OECD-Haus (7,5 m × 17,5 m = 131,25 m²) verwendet. Für die Berechnungen sind die beiden längeren Fassaden des Hauses nach Osten und Westen ausgerichtet.

Die drei Höhen sind wie folgt:

- ▶ OECD-Haus = 2,5 m Höhe
- ▶ DIBt-Haus (2-geschossig) = 7,5 m Höhe
- ▶ Hochhaus (6-geschossiges Haus) = 21 m Höhe

Der Schlagregen für das OECD- und DIBt-Haus wurde von Hochstrasser et al. (2016) für den Standort Hamburg simuliert. Neu ist das 6-geschossige Gebäude, welches ein Hochhaus widerspiegeln soll. Der Einfluss der Fassadenhöhen manifestiert sich in den Parametern für die Schlagregenberechnung (Tabelle 10).

Tabelle 9: Fassadenanteile nach Exposition für das OECD-Haus mit 2,5 m Höhe, das DIBt-Haus mit 7,5 m Höhe und das Hochhaus mit 21 m Höhe

Exposition	OECD-Haus (2,5 m Höhe)		DIBt-Haus (7,5 m Höhe)		Hochhaus (21 m Höhe)	
	Fläche total [m ²]	Fläche mit Terbutryn [m ²]	Fläche total [m ²]	Fläche mit Terbutryn [m ²]	Fläche total [m ²]	Fläche mit Terbutryn [m ²]
0	18,75	15	56,25	45	157,5	126
90	43,75	35	131,25	105	367,5	294
180	18,75	15	56,25	45	157,5	126
270	43,75	35	131,25	105	367,5	294
Horizontal	0	0	0	0	0	0
Total	125	100	375	292	1050	840

An jedem Haus sind 20 % der Fassadenfläche mit Glas definiert. Diese Fläche emittiert kein Terbutryn, sodass sie für die Berechnung der Emission nicht berücksichtigt wird. Sehr wohl aber wird der Flächenanteil für die Berechnung der anfallenden Schlagregenmenge einbezogen, wodurch sie als abflusswirksame Fläche die Gesamtemission der Fassaden verdünnt (Einfluss auf die Konzentrationshöhe). Die Dachfläche wird bei der Simulation dagegen durchweg nicht mitberücksichtigt (Fläche horizontal = 0 m²) (Tabelle 9).

Als Emissionsfunktion wurde die am besten geeignete Emissionsfunktion, die logarithmische Funktion, mit den Parametern aus der Feldstudie *Zürich Terbutryn frei* verwendet. Simuliertes Material war Putz ohne Farbe. Zum Vergleich der Szenarien wurde das Wetter vom Standort Hamburg über 20 Jahre ausgewählt (Abbildung A 1). Der Standort Hamburg ist in der Modellierung von Pflanzenschutzmitteln als sogenanntes Focus-Wetterszenario etabliert.

Tabelle 10: Parameter der Schlagregenberechnung nach DIN EN ISO 15927 (2009)

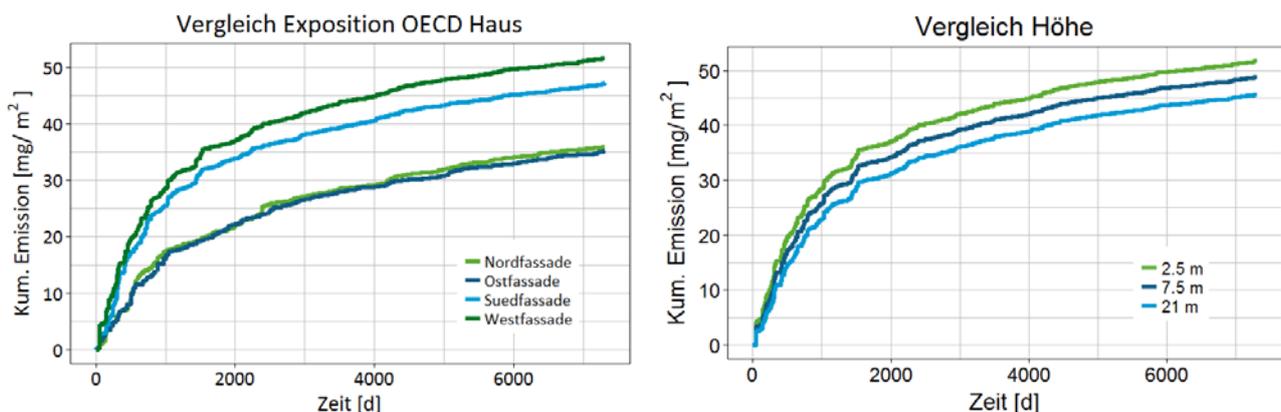
Schlagregenparameter	OECD -Haus (2,5 m Höhe)	DIBt-Haus (7,5 m Höhe)	Hochhaus (21 m Höhe)
C_R	0,67	0,67	0,67
C_T	1	1	1
O	0,4	0,4	0,4
W	0,55	0,3	0,2

Das Einleitgewässer weist einen Abfluss von 50 l/s auf. Angenommen wurde, dass die gesamthaft emittierte Stofffracht vollständig und direkt in das Gewässer eingeleitet wird, so wie es für ein Gebäude mit dränierten Flächen und unmittelbarem Anschluss an die Trennkanalisation zu erwarten ist. Demzufolge bleiben eine mögliche Versickerung von Regenwasser und der mögliche Stoffabbau zwischen Fassade und Oberflächengewässer unberücksichtigt.

5.2 Ergebnisse für die simulierten Szenarien

Entsprechend der Niederschlagsverteilung und in Abhängigkeit von der bevorzugten Windrichtung ergeben sich die höchsten Emissionen an der Westfassade (Abbildung 16). Die höchsten Emissionen erfolgen in den anfänglichen Schlagregenperioden während des ersten Jahres nach der Fertigstellung. Auch an den weniger wind- und niederschlagsexponierten Ost- und Nordfassaden treten bei Schlagregen relativ hohe Emissionen auf. Dabei ist die Abhängigkeit von der Expositionsrichtung bemerkenswert, die nicht linear auftritt. Eine Fassade mit doppelt so hoher Niederschlagsmenge emittiert nicht doppelt so viel Substanzmenge.

Abbildung 16: Terbutryn-Emissionen je Quadratmeter Fassadenfläche an den vier Fassaden des OECD-Hauses (links) und Terbutryn-Emissionen an den Westfassaden für das OECD-Haus (Höhe 2,5 m), für das DIBt-Haus (Höhe 7,5 m) und für das Hochhaus (Höhe 21 m) (rechts)



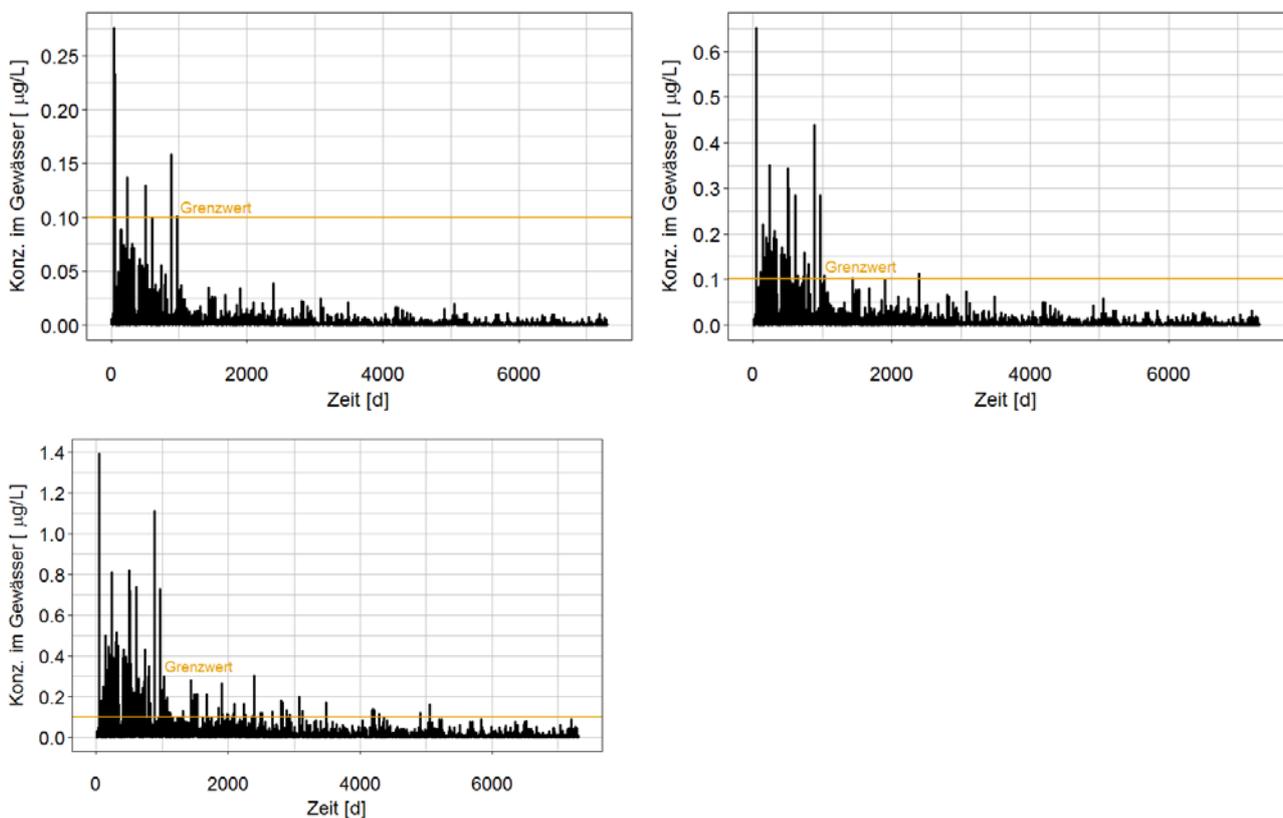
Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Die gesamte Emissionsmenge an einer hohen Fassade bzw. einem hohen Gebäude ist grösser als die an einer niedrigen Fassade bzw. einem niedrigen Gebäude. Wegen verschiedener Effekte (Verdunstung, Windprofil etc.) ist jedoch die Emissionsmenge je Quadratmeter Fassadenfläche an einem hohen Haus

geringer. In den simulierten Szenarien ergibt sich eine Reduktion der Emission je Quadratmeter bei der Erhöhung der Gebäudehöhe von 2,5 auf 7,5 m von 6,6 % (Abbildung 16). Beim Sprung von 7,5 auf 21 m Gebäudehöhe beträgt die Reduktion sogar 7,5 %.

Wegen der höheren gesamten Emissionsmenge aus dem Hochhaus, die sich aber auf eine geringere Ablaufwassermenge je Quadratmeter verteilt als beim OECD-Haus, sind die Konzentrationen von Terbutryn in dem kleinen Bach mit 50 L/s Abfluss grösser (Abbildung 17). Eine Überschreitung vom angenommenen Anforderungswert von 0,1 µg/l pro Biozid im Fließgewässer durch das niedrige OECD-Haus zeigt sich allerdings nur innerhalb des ersten Jahres bei entsprechenden Schlagregenereignissen. An dem 21 m hohen Gebäude dagegen treten auch nach vielen Jahren noch Konzentrationen auf, die im Bereich des Grenzwertes oder darüber liegen (Abbildung 17).

Abbildung 17: Konzentration von Terbutryn im benachbarten Fließgewässer für ein OECD Haus mit 2,5 m Höhe (links oben), für das DIBt-Haus mit 7,5 m Höhe (rechts oben) und für das Hochhaus mit 21 m Höhe (links unten)



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Beim OECD-Haus werden nur 5 Überschreitungen mit 125 h Dauer erwartet (Tabelle 11). Beim Hochhaus, welches 8mal höher ist als das OECD-Haus, treten dagegen 30mal häufiger Überschreitungen (149) mit insgesamt 4844 h Dauer auf (38mal mehr). Das Hochhaus, in seiner Höhe und baulichen Charakterisierung durchaus typisch für viele Städte, ist somit von bedeutend größerem Einfluss auf die Gewässerqualität als das in der Biozid-Beurteilung etablierte OECD-Haus mit 2,5 m Höhe. Das DIBt-Haus liegt dazwischen und repräsentiert somit ein Durchschnittsgebäude.

Es sei darauf hingewiesen, dass in dieser exemplarischen Betrachtung mögliche Verdünnungseffekte durch nicht verschmutztes Regenwasser horizontaler Flächen (z.B. Platz-, Straßen-, Dachwasser) nicht einbezogen wurden.

Tabelle 11: Anzahl und Dauer von Grenzwertüberschreitungen der Gebäudeszenarien

Gebäude	Stunden über Grenzwert	Anzahl Überschreitungen
OECD-Haus	126	5
DIBt-Haus	1079	62
Hochhaus	4844	149

6 Diskussion und Schlussfolgerungen

6.1 Beurteilung der Emissionsfunktionen

Die Emissionsfunktionen stellen einen wichtigen Bestandteil der Modellierung und Simulation von Stoffflüssen dar, die von berechneten Bauteilen bzw. Gebäuden ausgehen. Mit Hilfe des Simulationsmodells COMLEAM wurden diese Emissionsfunktionen getestet. Die Daten von den drei Standorten Zürich Terbutryn frei, RMI Terbutryn frei und Zürich Terbutryn verkapselt ermöglichen die Beurteilung der Eignung und Aussagegüte der Emissionsfunktionen. Die Datensätze repräsentieren bestimmte Materialien (Putz), Substanzen (Terbutryn frei, verkapselt), Standorte (ähnliche Koeffizienten der Schlagregenberechnung) und Wetter (mitteleuropäische Typen von Wetterstandorten). Durch die Parametervielheit geben die Simulationen wertvolle Hinweise auf die generelle Anwendbarkeit oder Nichtanwendbarkeit der Emissionsfunktionen.

Die hier angewendeten fünf Funktionen umfassen:

- ▶ Einen Vorschlag für eine praktikable, ausgleichende, in vielen Fällen adäquate Funktion (logarithmische Emissionsfunktion)
- ▶ Eine aus zwei logarithmischen Teilen zusammengesetzte Funktion (doppelt loglineare Emissionsfunktion)
- ▶ Eine Funktion, die sich am Emissionsprinzip des Transports von Substanzen an die Oberfläche des Materials orientiert (diffusionsgetriebene Emissionsfunktion)
- ▶ Eine Funktion, die sich an der Begrenztheit der Emission orientiert (Emissionsfunktion begrenztes Wachstum)
- ▶ Eine Funktion, die sich an dem Prozessprinzip der Emission orientiert (Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion)

Damit ist ein sehr breites Spektrum von einfachen praktikablen und vom Prozess her sinnvollen Funktionen abgedeckt. Formuliert man Exponentialfunktionen, die die Emission als Abbau simulieren (Schoknecht and Töpfer, 2012), als weitere Emissionsfunktionen, resultiert eine Funktion vergleichbar zur Emissionsfunktion begrenztes Wachstum mit ähnlichen Vor- und Nachteilen. Die oben entwickelten Methoden zur Evaluation der Emissionsfunktionen lassen sich mit Hilfe von COMLEAM sehr leicht auf weitere Funktionen anwenden.

Die statistische Anpassung der Emissionsfunktionen an die Daten erfolgt nach der Methode der kleinsten Quadrate als nichtlineare Regression. Die doppelt loglineare Emissionsfunktion konnte nicht gesamthaft angepasst werden, weil die entstehende Matrix singular wird. Das deutet darauf hin, dass diese Funktion überparametrisiert ist und dass die fünf Parameter voneinander abhängig sind. Alle anderen Anpassungen führten bei allen Datensätzen nach wenigen Iterationen auf die richtige Lösung. Das heißt, dass die Emissionsdaten im Allgemeinen so strukturiert sind, dass die nichtlineare Regression unproblematisch ist.

Abweichungen der Daten von den angepassten Emissionsfunktionen entstanden bei den verschiedenen Funktionen in ähnlicher Weise. Das heißt zum Beispiel, es gab Messpunkte in den Datensätzen, die durch alle Emissionsfunktionen unterschätzt wurden. Solche punktuell entstehenden Abweichungen können durch weitere Umlagerungs- oder Transformationsprozesse entstehen und eine ergänzende Berücksichtigung zusätzlicher Prozesse nahelegen. Die Abweichungen können aber auch zufällige Abweichungen oder Messungenauigkeiten darstellen, welche sich nicht valide abbilden lassen. Erfreulicherweise werden in beiden Fällen die Abweichungen durch die Emissionsfunktionen herausgemittelt und verlieren dadurch an Relevanz für die Emissionsvorhersage.

Die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion stellt am Anfang ein unrealistisches (d.h. in den Daten so nicht erkennbares) Verhalten dar und überschätzt die Emissionen über das Ende der vorhandenen Datensätze hinaus (Vorhersage ungenau). Sie wird daher nicht für eine generelle Anwendung zur Emissionsabschätzung empfohlen. Ebenfalls nicht empfohlen wird die Emissionsfunktion begrenztes Wachstum. Sie impliziert, dass die Emission ab einem bestimmten Zeitpunkt auf Null zurückgeht. Daher folgt eine starke Unterschätzung der Emissionen, wenn über den Anpassungszeitraum hinaus simuliert wird. Die Michaelis-Menten-Emissionsfunktion führt nur auf eine leichte Unterschätzung der Emissionen am Ende des Anpassungszeitraums. Da aber auch bei der Extrapolation eine Unterschätzung auftritt, wird auch diese Funktion nicht für eine generelle Anwendung zur Emissionsabschätzung empfohlen. Die doppelt loglineare Emissionsfunktion wird aus mehreren Gründen ebenfalls nicht empfohlen. Die hohe Anzahl von Parametern, die unklare Definition des Trennpunktes zwischen dem ersten und dem zweiten Teil der Emissionsfunktion und die hohe Ungenauigkeit bei der Extrapolation sind nicht akzeptabel.

Die logarithmische Emissionsfunktion dagegen ist für eine generelle Anwendung in der Emissionsabschätzung von Bauprodukten und Gebäuden sowie der Risikobeurteilung mittels Modellierung (z.B. mit COMLEAM) zu empfehlen. Sie zeigt in allen Bereichen ein plausibles Verhalten, hat die geringste Abweichung bei der Extrapolation und überschätzt nur geringfügig die Emissionsdaten gegen Ende des Messzeitraums, so dass auch darüber hinaus mit einer kleinen Überschätzung gerechnet werden kann.

Generell führte die Extrapolation der Emissionsdaten bei einigen Emissionsfunktionen zu teilweise erheblichen Abweichungen. Eine leicht zu hohe, aber eher konservative Abschätzung, ist nur durch die logarithmische Emissionsfunktion gegeben.

6.2 Beurteilung der Übertragungsfunktion

Bei der Beurteilung der Übertragung von aktuellen Messergebnissen auf die zukünftig erwarteten Emissionen stellt sich die Frage, welche Emissionsfunktion geeignet ist. Die Spannweite der Emissionsvorhersagen über die simulierten 20 Jahre ist groß. Die Simulation des OECD-Hauses für das Wetter in Hamburg (15'013 mm Niederschlag) ergibt an der Westfassade 878 L/m² Schlagregen. Abbildung 16 zeigt die Simulation mit der logarithmischen Emissionsfunktion, die auf den Messungen am Standort Zürich (*Terbutryn frei*) basiert (Abbildung 6). Die Extrapolation dieses Messzeitraums von einem Jahr auf 20 Jahre kann auch mit den anderen Emissionsfunktionen durchgeführt werden, wobei

jeweils die Parameter der Funktionsanpassungen an dieselben Messdaten verwendet werden (vgl. Kapitel 4.2 und die Parameterwerte im Anhang Tabellen A1 bis A5). Die Simulation über 20 Jahre extrapoliert die Emissionsfunktion begrenztes Wachstum auf die kleinste Emissionsmenge von $E_{LG} = 24 \text{ mg/m}^2$ und die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion auf die größte Menge $E_{Diff} = 100 \text{ mg/m}^2$. Damit ist die größte Schätzung viermal so hoch wie die kleinste Schätzung. Dass der Unterschied groß ist, war aufgrund der Simulationen (Abbildung 14) und der Ergebnisse für die diffusionsgetriebene Emissionsfunktion (Kapital 4.2.3) zu erwarten. Die Langmuir- bzw. Michaelis-Menten-Emissionsfunktion kommt auf eine Emission von je 32 mg/m^2 , was eher als Unterschätzung zu interpretieren ist. Die bei der Extrapolation als zu hoch beurteilte doppelt loglineare Emissionsfunktion ergibt 39 mg/m^2 . (Abbildung 14). Die Vorhersage der logarithmischen Emissionsfunktion ist nach obigen Überlegungen am ehesten realistisch mit $E_{log} = 52 \text{ mg/m}^2$ und eine vernünftige Annahme für die Beurteilung. Die Simulationen mit den verschiedenen Emissionsfunktionen zeigen deutlich, wie sehr es auf die richtige Wahl der Emissionsfunktion ankommt.

Die Sensitivität der erwarteten Emissionen auf die Emissionsfunktion ist also mit einem Faktor 4 sehr groß. Als Vergleich dazu werden in Abbildung 16 die Emissionen an den vier Fassaden des OECD-Hauses angegeben. Der Unterschied zwischen der höchsten Emission an der Westfassade und der kleinsten Emission an der Ostfassade beträgt gerade etwa Faktor 1,5.

Der Unterschied zwischen der höchsten Emission am Hochhaus mit der Höhe von 21 m und der kleinsten Emission bei der Höhe von 2,5 m beträgt etwa Faktor 1,13 (also 13 %) (Abbildung 16). Die Unterschiede sind demnach $<20 \%$ und werfen die Frage auf, ob die Definition eines höheren Gebäudes als „Referenzhaus“ wirklich erforderlich ist für eine Risikoabschätzung von Bauprodukten oder bioziden Wirkstoffen.

In Abbildung 17 werden die hypothetischen Auswirkungen auf ein kleines Gewässer dargestellt. Die Gebäudehöhe, die auf die gesamte Emissionsmenge nur einen kleinen Einfluss hat, hat auf dieses theoretische Gewässer einen durchaus signifikanten Einfluss (Tabelle 11). Es zeigt sich, dass ein kleines Gewässer neben einem niedrigen Haus (Höhe 2,5 m) nur wenige Grenzwertüberschreitungen aufweist. Verläuft das Gewässer neben einem Hochhaus (Höhe 21 m), so nehmen die Anzahl, die Dauer und die Höhe der Konzentrationsspitzen (sog. Pulsbelastungen) zu.

Die Wassermenge im Gewässer bestimmt das Verdünnungsverhältnis und dürfte deshalb ein weiterer sensibler Parameter für die gesamte Risikobeurteilung sein. Zu erwarten ist aufgrund schon realisierter Simulationen, dass die Gewässergröße sogar von höherer Wichtigkeit ist als die Gebäudehöhe.

6.3 Ausblick

Die logarithmische Emissionsfunktion wird als geeignete Form von Emissionsfunktion empfohlen. Sie ist eine praktikable, minimalkonservative Schätzung für zukünftige Modellierungen und den anderen vier getesteten Funktionen überlegen.

Durch weitere Berechnungen mit dem Simulationsmodell COMLEAM können die Abweichungen quantifiziert werden, die sich durch die Berücksichtigung zusätzlicher Prozesse (Diffusion im Bauteil, Abbau der Substanz) ergeben. Den Einfluss der Parameter in den Emissionsfunktionen detaillierter zu beschreiben, könnte die Genauigkeit der Vorhersage noch verbessern.

Zusätzliche Langzeitsimulationen für andere Materialien und Substanzen für längere Zeiträume helfen, die Übertragbarkeit der Resultate zu den Emissionsfunktionen abzuschätzen.

Ergänzende Sensitivitätsanalysen von weiteren Datensätzen, wie Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Niederschlagsmenge und die Eingabedaten zu den Windberechnungen (z.B. der Wandfaktor), sowie zu

anderen Bauprodukten und Substanzen/Bioziden würden die Aussagegüte bei harmonisierten Bauproduktbewertungen verbessern.

Mittels Simulation lässt sich für Feldstudien auch der optimale (d.h. minimale) Probenumfang, die Verteilung der Proben sowie die Versuchsdauer ermitteln, um die beste Grundlage für eine Emissions- und Risikobeurteilung zu erhalten.

Der Einfluss von Einzugsgebietsflächen, die den Abfluss von emissionsbehafteten Flächen verdünnen (z.B. Dächer, Parkplätze etc.), und der Gewässergröße im Vergleich zur Gebäudehöhe sollte abgeschätzt und beurteilt werden. Damit lassen sich die wesentlichen Variablen der Austrags- und Expositionsmodellierung auf wenige Größen eingrenzen und die emissionsorientierte Produktbewertung nachfolgend in wenigen Szenarien abbilden. Um den Aufwand weiter zu reduzieren bietet sich ein gestuftes Vorgehen (tiered approach) an, bei dem mit „worst-case“ Szenarien begonnen würde (z.B. kleinste Abflussmenge im Oberflächengewässer).

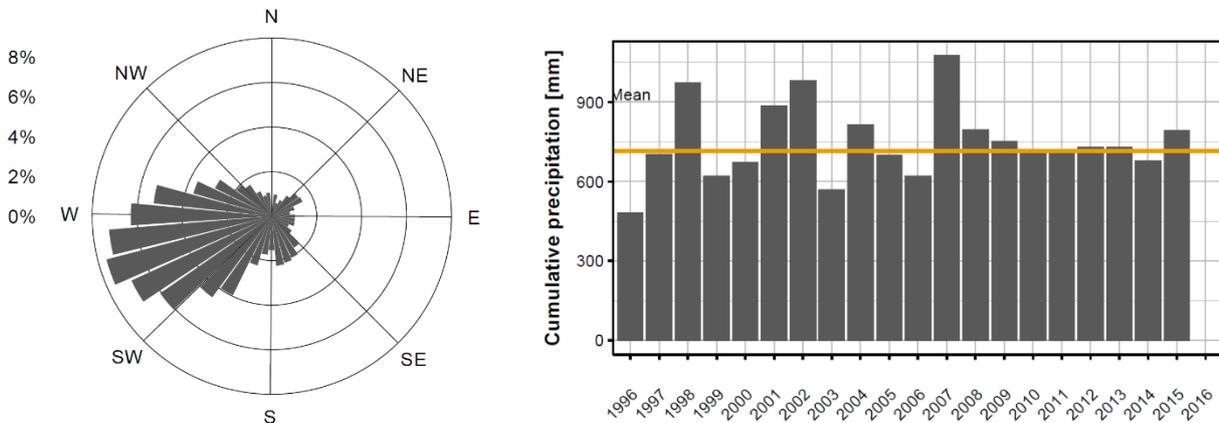
7 Quellenverzeichnis

- Bagda, E., Borho, N. and Schoknecht, U., 2011, Leaching of biocides from facade coatings. *European Coatings Journal*, 6: 33-37.
- Bear, J., 1988, *Dynamics of fluids in porous media*. Dover Publications, New York, N.Y. 764 S. p.
- Bollmann, U.E., Ou, Y., Mayer, P., Trapp, S. and Bester, K., 2015, Polyacrylate-water partitioning of biocidal compounds: enhancing the understanding of biocide partitioning between render and water. *Chemosphere*, 119: 1021-1026.
- Bollmann, U.E., Minelgaite, G., Schlüsener, M., Ternes, T., Vollertsen, J. and Bester, K., 2016, Leaching of Terbutryn and Its Photodegradation Products from Artificial Walls under Natural Weather Conditions. *Environmental Science & Technology*, 50: 4289-4295.
- Bucheli, T.D., Müller, S.R., Voegelin, A. and Schwarzenbach, R.P., 1998, Bituminous Roof Sealing Membranes as Major Sources of the Herbicide (R,S)-Mecoprop in Roof Runoff Waters: Potential Contamination of Groundwater and Surface Waters. *Environmental Science & Technology*, 32: 3465-3471.
- Burkhardt, M., Junghans, M., Zuleeg, S., Schoknecht, U., Lamani, X., Bester, K., Vonbank, R., Simmler, H. and Boller, M., 2009, Biozide in Gebäudefassaden – ökotoxikologische Effekte, Auswaschung und Belastungsabschätzung für Gewässer. *Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung*, 21: 536–547.
- Burkhardt, M., Zuleeg, S., Vonbank, R., Schmid, P., Hean, S., Lamani, X., Bester, K. and Boller, M., 2011, Leaching of additives from construction materials to urban storm water runoff. *Water Science and Technology*, 63: 1974-1982.
- Burkhardt, M., Zuleeg, S., Vonbank, R., Bester, K., Carmeliet, J., Boller, M. and Wangler, T., 2012, Leaching of Biocides from Façades under Natural Weather Conditions. *Environmental Science & Technology*, 46: 5497-5503.
- Burkhardt, M., Engelke, D., Gehrig, S., Hochstrasser, F., Rohr, M. and Tietje, O., 2018, Introduction and application of the software COMLEAM – Manual Version 1.0. HSR University of Applied Sciences Rapperswil, Switzerland 50 p.
- Clara, M., Gruber, G., Humer, F., Hofer, T., Kretschmer, F., Ertl, T., Scheffknecht, C. and Windhofer, G., 2014, Spurenstoffemissionen aus Siedlungsgebieten und von Verkehrsflächen. BMLFUW Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft, Wien.
- Coutu, S., Rota, C., Rossi, L. and Barry, D.A., 2012, Modelling city-scale facade leaching of biocide by rainfall. *Water Research*, 46: 3525-3534.
- DIN CEN/TS 16637-1, 2014, Bauprodukte - Bewertung der Freisetzung von gefährlichen Stoffen - Teil 1: Leitfaden für die Festlegung von Auslaugprüfungen und zusätzlichen Prüfschritten; Deutsche Fassung CEN/TS 16637-1:2014.
- DIN CEN/TS 16637-2, 2014, Bauprodukte - Bewertung der Freisetzung von gefährlichen Stoffen - Teil 2: Horizontale dynamische Oberflächenauslaugprüfung; Deutsche Fassung CEN/TS 16637-2:2014
- DIN EN ISO 15927, 2009, Wärme- und feuchteschutztechnisches Verhalten von Gebäuden - Berechnung und Darstellung von Klimadaten - Teil 3: Berechnung des Schlagregenindex für senkrechte Oberflächen aus stündlichen Wind- und Regendaten; Deutsche Fassung EN ISO 15927-3:2009.
- DIN EN ISO 16105, 2011, Beschichtungsstoffe - Laborverfahren zur Bestimmung der Freisetzung von Substanzen aus Beschichtungen in intermittierendem Kontakt mit Wasser; Deutsche Fassung EN 16105:2011-12.
- Dinse, D., 2010, Mechanismen der Auswaschung aus Beschichtungsstoffen, Diplom-Arbeit FH Lübeck
- EU, 2011 EU-Bauproduktenverordnung VO (EU) Nr. 305/2011 Berichtigung der deutschen Fassung EU.
- Hochstrasser, F., Burkhardt, M. and Tietje, O., 2016, Schlagregenermittlung für Gebäudefassaden. Exemplarische Anwendung der Simulationssoftware COMLEAM, Report, DIBt
- Jungnickel, C., Ranke, J. and Stock, F., 2004, Gewässerbelastung durch den Eintrag von Bioziden aus Dachfarben. Universität Bremen 62 p.
- Kahle, M. and Nöh, I., 2009, Biozide in Gewässern: Eintragspfade und Informationen zur Belastungssituation und deren Auswirkungen. UBA-Texte 09/2009, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau 50 p.
- Märkl, V., 2017, Leaching of inorganic and organic substances from construction materials and their ecotoxicological impact, Dissertation TU Berlin, 158 p.
- Pianosi, F., Beven, K., Freer, J., Hall, J.W., Rougier, J., Stephenson, D.B. and Wagener, T., 2016, Sensitivity analysis of environmental models: A systematic review with practical workflow. *Environmental Modelling & Software*, 79: 214-232.
- R Core Team, 2016, A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. <https://www.R-project.org>
- Sauer, F., 2017, Microbicides in Coatings. Vincentz Network, Hannover

- Schiopua, N., Tiruta-Barnab, L., Jayra, E., Méhue, J. and Moszkowicze, P., 2009, Modelling and simulation of concrete leaching under outdoor exposure conditions. *Science of the Total Environment*, 407: 1613–1630.
- Schoknecht, U. and Töpfer, A., 2012, Characterisation of leaching of biocidal active substances of main group 2 "preservatives" from different materials under weathering conditions, Report (UBA-FB) 001641/E, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau
- Schoknecht, U., Kalbe, U., van Zomeren, A. and Hjelm, O., 2014, Laboratory leaching tests on treated wood according to different harmonised test procedures. *Environmental Sciences Europe*, 26:25: 1-10.
- Schoknecht, U., Mathies, H. and Wegner, R., 2016, Biocide leaching during field experiments on treated articles. *Environmental Sciences Europe*, 28: 6.
- Togerö, Å., 2004, Leaching of hazardous substances from concrete constituents and painted wood panels, Dissertation, Chalmers University of Technology, Göteborg
- Vermeirssen, E.L.M., Dietschweiler, C., Werner, I. and Burkhardt, M., 2017, Corrosion protection products as a source of bisphenol A and toxicity to the aquatic environment. *Water Research*, 123: 586-593.
- Walser, A., Burkhardt, M., Zuleeg, S. and Boller, M., 2008, Gewässerbelastung durch Biozide aus Gebäudefassaden. *Gas, Wasser, Abwasser GWA*, 8: 639-647.
- Wangler, T., 2011, Modeling biocide release from architectural coatings. *Chimica Oggi*, 29: 14 -16.
- Wangler, T.P., Zuleeg, S., Vonbank, R., Bester, K., Boller, M., Carmeliet, J. and Burkhardt, M., 2012, Laboratory scale studies of biocide leaching from façade coatings. *Building and Environment*, 54: 168-173.
- Wicke, D., Matzinger, A., Sonnenberg, H., Caradot, H., Schubert, R.-L., Rouault, P., Heinzmann, B., Dünbier, U. and von Seggern, D., 2017, Spurenstoffe im Regenwasserabfluss Berlins. *KA Korrespondenz Abwasser, Abfall*, 5: 394-404.
- Wittmer, I.K., Bader, H.-P., Scheidegger, R., Singer, H., Lück, A., Carlsson, C. and Stamm, C., 2010, Significance of urban and agricultural land use for biocide and pesticide dynamics in surface waters. *Water Research*, 44: 2850-2862.
- Wittmer, I.K., Scheidegger, R., Bader, H.-P., Singer, H. and Stamm, C., 2011, Loss rates of urban biocides can exceed those of agricultural pesticides. *Science of the Total Environment*, 409: 920-932.
- Wollschläger, D., 2014, Grundlagen der Datenanalyse mit R eine anwendungsorientierte Einführung. Springer Spektrum, Berlin XVII, 621 S. p.

Anhang

Abbildung A 1: Relative Niederschlagsmenge nach Windrichtung (links) und Niederschlagsmenge pro Jahr (rechts) am Standort Hamburg



Eigene Darstellung, Hochschule für Technik, Rapperswil.

Tabelle A 1: Parameterwerte der logarithmischen Emissionsfunktion

Datensatz	Parameter mit Einheit	
	a_{char} [dimensionslos]	q_{char} $\left[\frac{L}{m^2} \right]$
Zürich Terbutryn, Putz frei	0,00566	9,52
RMI Terbutryn, Putz frei	0,00769	8,19
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt	0,00531	8,43
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt Extrapolation	0,00629	12,1

Tabelle A 2: Emissionsfunktion für begrenztes Wachstum

Datensatz	Parameter mit Einheit	
	a_{LG} [-]	b_{LG} [L/m ²]
Zürich Terbutryn, Putz frei	0,0132	0,0581
RMI Terbutryn, Putz frei	0,0193	0,0598
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt	0,0145	0,0467
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt Extrapolation	0,0116	0,0662

Tabelle A 3: Diffusionsgetriebene Emissionsfunktion

Datensatz	Parameter mit Einheit
	$a_{\text{Diff}} \left[\frac{m}{\sqrt{L}} \right]$
Zürich Terbutryn, Putz frei	0,00187
RMI Terbutryn, Putz frei	0,00269
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt	0,00199
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt Extrapolation	0,0018

Tabelle A 4: Langmuir- und Michaelis-Menten-Emissionsfunktion

Datensatz	Parameter mit Einheit		
	$a_{\text{MM}} = a_{\text{Langmuir}}$ [-]	b_{Langmuir} [m ² /L]	K_{MM} [L/m ²]
Zürich Terbutryn, Putz frei	0,0181	0,0482	20,7
RMI Terbutryn, Putz frei	0,0257	0,0522	19,2
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt	0,0187	0,0441	22,7
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt Extrapolation	0,0174	0,0474	21,1

Tabelle A 5: Doppelt log-lineare Emissionsfunktion

Datensatz	Parameter mit Einheit				
	a_1 [-]	a_2 [-]	a_3 [-]	a_4 [-]	b [L/m ²]
Zürich Terbutryn, Putz frei	0,000766	0,846	0,00549	0,204	21,5
RMI Terbutryn, Putz frei	0,00121	0,818	0,00698	0,245	21,3
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt	0,00108	0,686	0,00433	0,277	29,5
Zürich Terbutryn, Putz verkapselt Extrapolation	0,00094	0,763	0,00172	0,538	14,8