

TEXTE

14/2010

Mathematische Simulation des Eintrags von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Förderkennzeichen 3707 64 400
UBA-FB 001294

Mathematische Simulation des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration

von

Dr. Matthias Zippel

Dr. Stephan Hannappel

Klaus Duscher

HYDOR Consult GmbH, Berlin

Dr. Traugott Scheytt

Beate Müller

Technische Universität Berlin, Institut für Angewandte
Geowissenschaften, FG Hydrogeologie

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

UMWELTBUNDESAMT

Diese Publikation ist ausschließlich als Download unter http://www.umweltbundesamt.de/uba-info-medien/mysql_medien.php?anfrage=Kennnummer&Suchwort=3918 verfügbar. Hier finden Sie auch eine deutsche und eine englische Kurzfassung sowie die Dateien für das „SiMBaFi - Simulation Model Bank Filtration“ (läuft nur mit einem Access Programm) zum Download.

Die in der Studie geäußerten Ansichten und Meinungen müssen nicht mit denen des Herausgebers übereinstimmen.

ISSN 1862-4804

Herausgeber: Umweltbundesamt
Postfach 14 06
06813 Dessau-Roßlau
Tel.: 0340/2103-0
Telefax: 0340/2103 2285
Email: info@umweltbundesamt.de
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>

Redaktion: Fachgebiet IV 2.2 Arzneimittel, Wasch- und Reinigungsmittel
Dr. Jutta Klein-Goedicke

Dessau-Roßlau, März 2010

Berichts-Kennblatt

Berichtsnummer 1. UBA-FB 001294	2.	3.
4. Titel des Berichts Mathematische Simulation des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration		
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n) Zippel, Matthias; Scheytt, Traugott; Hannappel, Stephan; Müller, Beate		8. Abschlussdatum April 2009
6. Durchführende Institution (Name, Anschrift) HYDOR Consult GmbH, Am Borsigturm 40, 13507 Berlin Technische Universität Berlin, Institut für Angewandte Geowissenschaften, Fachgebiet Hydrogeologie, Ackerstraße 71-76, 13355 Berlin		9. Veröffentlichungsdatum März 2010
		10. UFOPLAN-Nr. 3707 64 400
		11. Seitenzahl: 160
		12. Literaturangaben: 202
7. Fördernde Institution (Name, Anschrift) Umweltbundesamt, Wörlitzer Platz 1, 06844 Dessau-Roßlau		13. Tabellen und Diagramme: 25
		14. Abbildungen: 63
15. Zusätzliche Angaben: 9 Anlagen inkl. 1 CD		
16. Kurzfassung Im Projekt wird eine für Arzneimittelwirkstoffe im Zulassungsverfahren allgemeingültige mathematische Simulation des Eintrages aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration realisiert. Die dafür entwickelte Methodik zur standortunabhängigen Beschreibung des Systems Uferfiltration basiert auf einer umfangreichen Literatur- und Datenrecherche. Die Bearbeitung umfasste den Aufbau eines vereinfachten Modellansatzes mit dem Programm Visual Modflow zur Abbildung der Uferfiltrationsprozesse. Damit wurde die Modellierung der Grundwasserströmung zur Bestimmung der Fließzeiten in Abhängigkeit von den Spannweiten der bekannten Standortparameter (Datenmatrix) durchgeführt. Diese Fließzeiten bilden die Grundlage zur Berechnung des Stofftransportes anhand der im Zulassungsverfahren vorliegenden Stoffparameter. Die Modellannahmen und die zur Berechnung des Stofftransportes verfügbaren Parameter erlauben die analytische Berechnung der Sorptions- und Abbauprozesse im Grundwasser. Die Ergebnisse konnten anhand von gemessenen Konzentrationen an bekannten Standorten verifiziert werden. Im Ergebnis liegt eine auf Microsoft Access basierende Anwendung in Form einer Eingabemaske vor, mit deren Hilfe die zu erwartende Konzentration eines Arzneimittelwirkstoffes im Grundwasser (PEC_{GW}) basierend auf der zu erwartenden Konzentration dieses Stoffes im Oberflächenwasser (PEC_{SW}) bestimmt wird.		
17. Schlagwörter Uferfiltration, Grundwasser, Oberflächengewässer, Stofftransport, Grundwasserströmungsmodell, Hydrogeologie, Stofftransportmodell, PEC, Arzneimittelwirkstoff, Fließzeiten, Sorption, Durchlässigkeitsbeiwert		
18. Preis	19.	20.

Report Cover sheet

Report. No. 1. UBA-FB 001294	2.	3.
4. Report Title: Mathematical transport simulation of pharmaceutical compounds in groundwater during bank filtration		
5. Authors, name(s), First name(s): Zippel, Matthias; Scheytt, Traugott; Hannappel, Stephan; Müller, Beate	8. Report date: April 2009	
6. Performing organisation (name, adress): HYDOR Consult GmbH, Am Borsigturm 40, 13507 Berlin Technische Universität Berlin, Department of Applied Geosciences, Hydrogeology Group, Ackerstraße 71-76, 13355 Berlin	9. Publication date: March 2010	
	10. UFOPLAN Ref. No. 3707 64 400	
	11. Number of pages: 160	
	12. No. of references:202	
7. Sponsoring agency (name, adress): Umweltbundesamt, Wörlitzer Platz 1, 06844 Dessau-Roßlau	13. No. of Tables and diagrams:25	
15. Supplementary notes: 9 annexes incl. 1 CD	14. No of Figures: 63	
	16. Abstract With this research project a universal mathematical simulation of the entry of pharmaceuticals from surface waters in the ground water via bank filtration was realized. This information is required within the scope of the authorization application for pharmaceutical compounds. Based on an extensive literature and data research, the development of own methodologies with the program Visual Modflow was necessary. It considers both, the complexity of the process at the bank filtration site as well as the requirement for a user-friendly query mask for determining the PEC_{GW} . This included the specification of a numerical model to calculate the groundwater flow and transport processes. Flow times were calculated as a function of the range of the known location parameters (data matrix). Because of the model assumptions and the simplifying description of the transport processes the analytical solution was used for process description beside the numerical solution. A verification of these calculations is done by calculating the mass transport at sites with measured concentrations of the pharmaceutical compounds. In the result a Microsoft Access-based application is given in the form of a query mask with whose help primary the concentration to be expected of a pharmaceutical compound in the groundwater (PEC_{GW}) based on the concentration to be expected of this compound in the surface water (PEC_{SW}) is determined.	
17. Keywords Bank filtration, groundwater, surface water, mass transport, groundwater flow model, hydrogeology, mass transport model, PEC, pharmaceuticals, flow rate, sorption, hydraulic conductivity		
18. Price	19.	20.

Inhaltsverzeichnis

1	Veranlassung und Zielsetzung	9
2	Erkenntnisstand und Grundlagen	10
2.1	Einleitung	10
2.2	Arzneimittelwirkstoffe	11
2.3	System Uferfiltration	12
2.3.1	Prozessbeschreibung und Randbedingungen für die Uferfiltration.....	13
2.3.2	Spannbreiten der hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Randbedingungen an Standorten mit überwiegender Uferfiltration zur Grundwassergewinnung.....	17
2.3.3	Zusammenstellung bisheriger Untersuchungen zur Wirksamkeit der Uferfiltration hinsichtlich der Entfernung von Arzneimittelwirkstoffen	19
2.4	Transportmechanismen	20
2.4.1	Wasserbewegung	20
2.4.2	Transportrelevante stoffliche Eigenschaften	23
2.4.3	Prozesse des reaktiven und nicht-reaktiven (konservativen) Stofftransportes	24
2.4.4	Richtlinien zur Bestimmung von Sorptions- und Abbauparametern.....	30
2.5	Notwendige Modelle zur Prozessbeschreibung	32
3	Recherche und Auswahl mathematischer Modelle zur Prozessbeschreibung	33
3.1	Vorgehensweise und Auswahlkriterien	33
3.2	Ergebnisse der Modellrecherche	34
3.2.1	Modelle zur analytischen Lösung der Strömungs- und Transportprozesse.....	34
3.2.2	Modelle zur numerischen Lösungen der Grundwasserströmung	35
3.2.3	Modelle zur numerischen Lösung des Stofftransportes	38
3.2.4	Gekoppelte Modelle (Programmpakete).....	40
3.3	Festlegung eines geeigneten Modells zur Prozessbeschreibung	48
4	Literaturrecherche	50
4.1	Einleitung	50
4.2	Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser durch Uferfiltration	51
4.2.1	Havelgewässer	52
4.2.2	Niederrhein	60
4.2.3	Ruhr	62
4.2.4	Elbe	62
4.3	Einträge von Arzneimittelwirkstoffen in die aquatische Umwelt	63
4.3.1	Abbau, Sorption und Transport von Arzneimittelwirkstoffen	64
4.3.2	Einträge von Arzneimittelwirkstoffen	68
4.3.3	Arzneimittelwirkstoffe in Kläranlagen.....	69
4.3.4	Arzneimittelwirkstoffe im Trinkwasser	71
4.3.5	Arzneimittelwirkstoffe im Oberflächenwasser.....	71
4.3.6	Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser	73
4.3.7	Arzneimittelwirkstoffe im Uferfiltrat	75

4.4	Prozess der Uferfiltration	76
4.5	Darstellung des Prozesses der Uferfiltration anhand von organischen und anorganischen Spurenstoffen.....	79
4.6	Transportmodellierung.....	80
5	Datenrecherche zum Eintrag von Arzneimittelwirkstoffe bei der Uferfiltration in das Grundwasser	82
5.1	Havelgewässer Berlin	82
5.2	Rhein - Düsseldorf.....	84
5.3	Elbe - Torgau-Dresden	86
5.4	Zusammenfassung der Standortinformationen	88
6	Ergebnisse der durchgeführten Strömungs- und Transportmodellierung	89
6.1	Methodisches Vorgehen	89
6.2	Numerische Simulation von möglichen (fiktiven) Szenarien zur Prozessbeschreibung der Grundwasserströmung bei der Uferfiltration.....	92
6.2.1	Hydrogeologie, Modellannahmen und Modellaufbau	92
6.2.2	Variation der Parameter und Randbedingungen.....	95
6.2.3	Kalibrierung des Strömungsmodells.....	97
6.2.4	Berechnung der kürzesten Fließzeiten sowie der Absenkung am Brunnen bei schrittweiser Variation der Parameter und Randbedingungen.....	110
6.2.5	Zusammenfassung der Berechnungsergebnisse der Grundwasserströmung.....	115
6.2.6	Statistische Auswertung zu bekannten Uferfiltratstandorten.....	116
6.2.7	Ableitung von drei Standardfällen der Fließzeit an Uferfiltratstandorten in Deutschland als Berechnungsgrundlage für die Stofftransportprozesse.....	121
6.2.8	Zusammenfassung	124
6.3	Berechnung des Stofftransportes im Grundwasser bei der Uferfiltration.....	125
6.3.1	Datengrundlage	126
6.3.2	Verwendung des Transportmodells zur Berechnung des Stofftransportes.....	128
6.3.3	Analytische Berechnung des Stofftransportes	133
6.3.4	Vergleich der Verfahren und Fehlerbetrachtung	138
6.4	Simulation des Stofftransportes anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche	138
6.5	Analytische Berechnung des Stofftransportes anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche	139
6.6	Vergleich der numerischen und analytischen Berechnungen anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche	141
6.7	Ableitung der Allgemeingültigkeit der Modellergebnisse.....	143
7	Entwicklung einer benutzergesteuerten Programmoberfläche zur Abschätzung des PEC- Grundwasser aus dem PEC-Oberflächenwasser	144
8	Zusammenfassung	147
9	Literaturverzeichnis.....	153

Verzeichnis der Anlagen

Anlage 1: Parameter für Standorte mit Uferfiltration nach Lenk et al. (2006)	161
Anlage 2: Parameter für Standorte mit Uferfiltration der Berliner Wasserbetriebe.....	166
Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI-Datenbank	167
Anlage 4: Daten für pharmazeutische Wirkstoffe am Standort Rhein.....	172
Anlage 5: Versuchsfeld Elbe: Daten für pharmazeutische Wirkstoffe und Röntgenkontrastmittel	173
Anlage 6: Kennwerte zum Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen nach Literaturangaben.....	174
Anlage 7: Ergebnisse der Grundwasserströmungsmodellierung (Datenmatrix).....	177
Anlage 8: Analytische Berechnungen zum Abbau (Datenmatrix) mit einer Quellkonzentration von 5000 ng/l.....	183
Anlage 9: Programmbeschreibung (manual) SIMBAFI.....	184

Verzeichnis der Abkürzungen (weitere Abkürzungen, z. B. Programmnamen, sind im Text erläutert)

BLAC	Bund-Länder-Ausschuss Chemikaliensicherheit	MGWL	Modellgrundwasserleiter
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung	N	Anzahl
BWB	Berliner Wasserbetriebe	NASRI	Natural and Artificial Systems for Recharge and Infiltration
C	Kohlenstoff	NWG	Nachweisgrenze
C _{org}	organischer Kohlenstoff	OWA	Oberflächenwasseraufbereitungsanlage
DOC	dissolved organic carbon	PEC _{GW}	predicted environmental concentration groundwater
DT50	disappearance time 50	PEC _{SW}	predicted environmental concentration surface water
EMA	European Medicines Agency	pK _a	Säuredissoziationskonstante
Fiok	Filteroberkante	PNEC	predicted environmental concentration
GOK	Geländeoberkante	Q	Entnahmemenge
GWA	Grundwasseranreicherung	Rd	Retardationskoeffizient
GWBR	Grundwasserbeobachtungsrohr	Std.abw	Standardabweichung
GWL	Grundwasserleiter	TZW	Technologiezentrum Wasser
K _a	Dissoziationskonstante	UBA	Umweltbundesamt
K _d -Wert	HENRY-Isotherme	USGS	United States geological survey
k _f -Wert	Durchlässigkeitsbeiwert (m/sec)		
K _{OW}	n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient		
KWB	Kompetenzzentrum Wasser Berlin		

Verzeichnis der Abbildungen

Abb. 1a: Schematische Darstellung der typischen Strömungsverhältnisse an Uferfiltratstandorten
Abb. 1b: Schematischer Profilschnitt eines Uferfiltratstandortes
Abb. 2: Schematisches Modell der Uferfiltration entlang der seenartigen Gewässer im Berliner Raum
Abb. 3: Profilschnitt entlang eines Entnahmebrunnens des Wasserwerkes Flehe am Rhein
Abb. 4: Herkunft des Wassers zur Trinkwassergewinnung in Deutschland
Abb. 5: Übersicht zu den Wasserwerksstandorten mit >50 % Uferfiltratanteil an der Trinkwassergewinnung
Abb. 6: Schema eines unterirdischen Fließsystems
Abb. 7: Verweilzeit-Spektren in verschiedenen Grundwasser-Systemen
Abb. 8: Bildschirm-Plot GFLOW
Abb. 9: Bildschirm-Plot SVFlux
Abb. 10: Bildschirm-Plot TRIWACO
Abb. 11: Bildschirm-Plot TRISHELL
Abb. 12: Bildschirm-Plot TRIPILOT
Abb. 13: Bildschirm-Plot AQUA3D
Abb. 14: Bildschirm-Plot HYDRUS - 3D-Layered Domain
Abb. 15: Bildschirm-Plot HYDRUS - Nutzung einer Hintergrundkarte
Abb. 16: Bildschirm-Plot FEFLOW - FE-Netz
Abb. 17: Bildschirm-Plot FEFLOW - Wärmetransport-Simulation
Abb. 18: Bildschirm-Plot FEFLOW - 3D Visualisierung
Abb. 19: Bildschirm-Plot FLONET/TRANS
Abb. 20: Bildschirm-Plot MODTECH
Abb. 21: Bildschirm-Plot VISUAL MODFLOW - Lösungsfortschritt und Simulationsergebnisse
Abb. 22: Bildschirm-Plot VISUAL MODFLOW - Ergebnisdarstellungen
Abb. 23: Lage der Transekten zur Untersuchung der Uferfiltration entlang der Havelgewässer im Westen Berlins

- Abb. 24: Lithologischer Profilschnitt entlang der Transekte 1 Wannsee - Brunnen 4
- Abb. 25: Wasserwerksstandorte am Rhein bei Düsseldorf
- Abb. 26: Profilschnitt entlang der Transekte am Wasserwerk Flehe
- Abb. 27: Lage der Uferfiltratfassungen und Profilschnitte WW Torgau-Ost
- Abb. 28: Anordnung der Messpunkte im Messprofil (Transekte) Torgau-Ost I
- Abb. 29: Schema der analytischen Lösung der Prozesse der Sorption und des Abbaus 1. Ordnung
- Abb. 30: Fließschema zur Entwicklung der Entscheidungsmatrix zur Bestimmung des PEC_{GW}
- Abb. 31: 3D-Ansicht des Modellraumes
- Abb. 32: Der Profilschnitt durch den Modellraum entlang der Brunnenstandorte zeigt ein Beispiel für unterschiedliche Verweilzeiten bei variabler Geometrie der Fassungsanlagen
- Abb. 33 Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme nach den Ergebnissen in Tab. 11
- Abb. 34: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Ufer-Brunnen-Abstände und zusätzlich in Abhängigkeit von Entnahmemengen nach den Ergebnissen in Tab. 12
- Abb. 35: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Entnahmen und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand nach den Ergebnissen in Tab. 12
- Abb. 36: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variablen Ufer-Brunnen-Abstand und zusätzlich in Abhängigkeit von der Filtertiefe nach den Ergebnissen in Tab. 13
- Abb. 37: Modellraum (vertikal überhöht) mit der exemplarischen Ansicht des inaktiven Modellbereiches
- Abb. 38 Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für Berechnungen im „unbegrenzten“ Modellraum
- Abb. 39 Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für Berechnungen im „begrenzten“ Modellraum
- Abb. 40 Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird an der Basis der Filterstrecke, im landseitigen Anstrom und parallel zum Anstrom begrenzt
- Abb. 41 Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird an der Basis der Filterstrecke und parallel zum Anstrom begrenzt - der landseitige Anstrom bleibt unbegrenzt
- Abb. 42 Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird an der Basis der Filterstrecke begrenzt - der landseitige Anstrom und die Bereiche parallel zum Anstrom bleiben unbegrenzt
- Abb. 43 Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird zum landseitigen Anstrom begrenzt - an der Basis der Filterstrecke und parallel zum Anstrom bleibt der Modellraum unbegrenzt
- Abb. 44 Darstellung des Anstrombereiches eines Einzelbrunnens im Modell anhand von Grundwasserstromlinien
- Abb. 45 Darstellung des Anstrombereiches von drei benachbarten Brunnen im Modell anhand von Stromlinien
- Abb. 46: Darstellung des Anstrombereiches eines Einzelbrunnens im Modell anhand von Grundwasserstromlinien und Strompfaden (Bildausschnitt Visual Modflow)
- Abb. 47: Deskriptive Statistik zu den Berechnungsergebnissen der Grundwasserströmung
- Abb. 48: Darstellung der Abhängigkeit der Fließzeit von den Geometrien der Uferfiltratstandorte im Modell anhand von Boxplots
- Abb. 49: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Filtertiefen und zusätzlich der Ufer-Brunnen-Abstände als Ganglinien
- Abb. 50: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und der Filtertiefen als Ganglinien
- Abb. 51: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Ufer-Brunnen-Abstände als Ganglinien
- Abb. 52: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Filtertiefe und zusätzlich der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien
- Abb. 53: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Ufer-Brunnen-Abstände und zusätzlich der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien
- Abb. 54: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien
- Abb. 55: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f), der Mächtigkeiten der Grundwasserleiter, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Fließzeiten im Grundwasser nach (LENK et al. 2006)
- Abb. 56: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Filtertiefen der Brunnen, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Entnahmemengen von Einzelbrunnen als Mittelwert der Galerie nach den Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke mit Uferfiltratanteil
- Abb. 57: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Filterunterkanten der Brunnen, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Entnahmemengen von Einzelbrunnen als Mittelwert der Galerie nach den Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke und den übrigen Standorten der Datenrecherche
-

Abb. 58: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Filtertiefen der Brunnen und der Ufer-Brunnen-Abstände nach den Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke mit Uferfiltratanteil und den übrigen Standorten der Datenrecherche sowie LENK et al. (2006)

Abb. 59: Durchbruchskurve für einen „Tracer“ (Annahme: Keine Sorption und kein Abbau)

Abb. 60.: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchskurven bei Wirkung von Sorption im Grundwasserleiter für unterschiedliche Fließzeiten

Abb. 61.: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchskurven für unterschiedliche Abbauraten (DT50) bei konstantem Ufer-Brunnen-Abstand

Abb. 62: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchskurven für eine konstante Abbaurate bei zunehmenden Ufer-Brunnen-Abständen

Abb.63: Schema der Eingabemaske zur Ermittlung der Wirkstoffkonzentration im Grundwasser bei der Uferfiltration

Verzeichnis der Tabellen

Tab. 1: Spannweite der Parameter und Randbedingungen für die Uferfiltration

Tab. 2: Zusammenstellung bisheriger Untersuchungen zur Wirksamkeit der Uferfiltration hinsichtlich der Entfernung von Arzneimittelwirkstoffen

Tab. 3: Grund- und Sickerwasserbewegung

Tab. 4: Standorte mit Untersuchungen zum Verhalten von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration

Tab. 5: Vergleich der Standorte anhand der für die Modellierung wichtigen Geometrien der Fassungsanlage, hydrogeologischen Parameter und untersuchten Arzneimittelwirkstoffe und Antibiotika

Tab. 6: Vergleichende Modellrechnungen zur Uferfiltration bei Verwendung von 10 bzw. 20 Meter Filterlänge am Entnahmebrunnen

Tab. 7: Anhaltswerte für die (effektive) Porosität und den Durchlässigkeitsbeiwert verschiedener Lockergesteine

Tab. 8.: Schrittweiten der Variablen (Parameter und Randbedingungen) zur Berechnung der Grundwasserströmung innerhalb ihrer Spannweiten

Tab. 9: Mögliche Verknüpfungen zur Darstellung der Fließzeiten in Abhängigkeit von den variablen Parametern

Tab. 10: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme - k_f -Wert, Ufer-Brunnen-Abstand und Kolmation sind konstant

Tab. 11: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Entnahmen und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - Filtertiefe, k_f -Werte und Kolmation sind konstant

Tab. 12: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - k_f -Wert, Entnahme und Kolmation sind konstant

Tab. 13: Ergebnisse der Berechnungen der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand bei konstanter Filtertiefe, Entnahme und Kolmation

Tab. 14: Ergebnisse der Berechnungen der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit von der Filtertiefe - Ufer-Brunnen-Abstand, Entnahme und Kolmation sind konstant

Tab. 15: Ergebnisse der Berechnungen der kürzesten Verweilzeit für variable Kolmation in Abhängigkeit von einem k_f -Wert - Ufer-Brunnen Abstand, Entnahme und Filtertiefe sind konstant

Tab. 16: Zusammenfassung der Angaben zum Modellaufbau und den Modellergebnissen für die Berechnung der Grundwasserströmung an den Standorten Flehe/Rhein und Torgau Ost/Elbe

Tab. 17: Rangstatistische Auswertung der Daten aller Uferfiltratstandorte (recherchiert im Rahmen des Projektes)

Tab. 18: Berechnete Fließzeiten für die aus Tab. 19 resultierenden Parameterkombinationen der drei „Standardfälle“ für Uferfiltratstandorte

Tab. 19.: Schrittweiten der Parameter zur Berechnung des Stofftransportes innerhalb ihrer Spannweiten

Tab. 20: Beim UBA vorliegendes Datenblatt mit den Kennwerten von exemplarischen Arzneimittelwirkstoffen

Tab. 21: Parameter für die Beispielrechnung zur analytischen Methode

Tab. 22: Ergebnisse der numerischen Modellrechnungen zu den Standorten der Datenrecherche

Tab. 23: Vergleich der Ergebnisse der analytischen Berechnungen und der numerischen Modellrechnungen zu den Standorten der Datenrecherche

Tab. 24: Parameter und Ergebnisse der analytischen Berechnungen zu Standorten der Datenrecherche

Tab. 25: Spannweiten der Parameter Durchlässigkeitsbeiwert (k_f) und Aquifermächtigkeit an Uferfiltratstandorten

1 Veranlassung und Zielsetzung

Arzneimittelwirkstoffe können auf unterschiedlichen Pfaden ins Grundwasser eingetragen werden. Die Eintragungspfade unterscheiden sich jedoch nicht prinzipiell von den Eintragungspfadern anderer Substanzen. Neben einem flächig begrenzten Eintrag über z. B. Deponien, Produktionsstätten und Lagerflächen gibt es einen Eintragungspfad über das Abwasser. Ein großer Anteil an Humanpharmaka gelangt durch den bestimmungsgemäßen Gebrauch oder durch die Entsorgung über die Toilette unverändert oder metabolisiert in das Abwasser. Über Leckagen im Kanalsystem können Wirkstoffe direkt in das Grundwasser gelangen.

Wird das Abwasser in einer Kläranlage behandelt, so wird dort ein Teil der Arzneimittelwirkstoffe abgebaut oder anderweitig aus dem Wasser entfernt. Untersuchungen haben jedoch gezeigt, dass Arzneimittelwirkstoffe in den Kläranlagen nicht vollständig entfernt werden (Heberer 2002). Die im Wasser verbliebenen Arzneimittelwirkstoffe gelangen anschließend in die Oberflächengewässer. Bei influenten Verhältnissen, wie bei der Uferfiltration und bei der künstlichen Grundwasseranreicherung, können die in den Oberflächengewässern befindlichen Stoffe in das Grundwasser eingetragen werden.

Durch Ausbringung von Wirtschaftsdüngern und von Klärschlamm in der Landwirtschaft oder bei der Abwasserverrieselung können Arzneimittelwirkstoffe auch flächenhaft ins Grundwasser eingetragen werden.

Nach derzeitigem Kenntnisstand ist der Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen über das Abwasser mengenmäßig am bedeutendsten. Der spezielle Fall eines Eintrags über die Uferfiltration gewinnt im Hinblick auf das Schutzgut Grundwasser besondere Bedeutung. Das Ziel dieses Projektes besteht daher in der Realisierung einer möglichst allgemeingültigen mathematischen Simulation von Arzneimitteleinträgen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser unter dem zugrunde liegenden Strömungsprozess der Uferfiltration. Die hierfür notwendigen Arbeiten der Datenrecherche und -akquisition, der Modellauswahl und -kalibrierung sowie von Vergleichsrechnungen werden im vorliegenden Bericht beschrieben.

Nach Vorgaben des Umweltbundesamtes wird die „Predicted Environmental Concentration“ (PEC) eines Arzneimittelwirkstoffes für die Oberflächengewässer (PEC_{SW}) derzeit als Ausgangsgröße für die zu bestimmende PEC Grundwasser (PEC_{GW}) angenommen. Damit ist die PEC_{GW} für den jeweiligen Arzneimittelwirkstoff eine standortabhängige Funktion. Unter Gleichgewichtsverhältnissen (stationäre Verhältnisse) sind die für die Bestimmung der PEC_{GW} entscheidenden Steuergrößen die Verweilzeit im Grundwasser, der Anteil von organischem Kohlenstoff (C_{org}) im Grundwasserleiter und die Adsorptions- und Abbaueigenschaften des betrachteten Arzneimittelwirkstoffes.

Die Wassergewinnung mittels Uferfiltration - also der Fall, wo Brunnen zur Trinkwassergewinnung in der Nähe von Oberflächengewässern stehen - ist an eine begrenzte Spannweite hydrogeologischer Verhältnisse und Anordnungen der Gewinnungsanlagen geknüpft. Für diese

Spannweiten müssen durch Modellrechnungen mit einem geeigneten Programm die Grundwasserdynamik und die jeweiligen Fließ- bzw. (synonym) Verweilzeiten ermittelt werden.

Die Berechnung der PEC_{GW} erfolgt dann in Abhängigkeit von den Verweilzeiten, den Sorptionskoeffizienten und den sog. „DT50“-Werten („disappearance time 50“; hier näherungsweise als „Halbwertszeiten“ eingesetzt) für den biologischen Abbau. Eine Verifizierung dieser Berechnungen erfolgt durch die Simulation des Stofftransportes an Standorten an denen gleichzeitig die Konzentrationen der Arzneimittelwirkstoffe im Oberflächengewässer und im Grundwasser am Entnahmebrunnen in der Praxis gemessen wurden.

Die für diese Vorgehensweise erforderlichen Daten wurden im Rahmen einer Literatur- und Datenrecherche zusammengetragen. Für die im Zusammenhang mit Forschungsprojekten erhobenen Standortdaten und Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen, die für dieses Projekt zur Verfügung gestellt wurden, danken wir den beteiligten Institutionen. Dies sind das Kompetenz Zentrum Wasser Berlin mit den Informationen zum „NASRI“-Projekt in Berlin, die Stadtwerke Düsseldorf mit Daten zu dem Standort Flehe am Rhein und der Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH), der Fernwasserversorgung Elbaue-Ostharz GmbH Torgau sowie dem Technologiezentrum Wasser (TZW) Karlsruhe mit Angaben zu Standorten an der Elbe.

Die inhaltlichen Ergebnisse des Projektes mündeten gemäß den Anforderungen des AG in der Erstellung eines Programms mit einer benutzergesteuerten Computereingabemaske in englischer Sprache. Dieses Programm ist auf die Anforderungen der behördlichen Aufgaben des UBA ausgelegt. In Kapitel 7 wird der fachliche Bezug zu den Ergebnissen des Projektes kurz erläutert. Anlage 9 enthält eine ausführliche Programmbeschreibung in englischer Sprache.

Das Projekt wurde im Zeitraum von September 2007 bis März 2009 unter der fachlichen Begleitung von Frau Dr. Jutta Klein-Goedicke (UBA, IV 2.2, Umweltbewertung-Arzneimittel) durchgeführt. Im Juni 2008 und im März 2009 fanden im UBA in Berlin zwei Fachgespräche mit eingeladenen Experten insbesondere aus dem Bereich Trinkwasserversorgung statt. Die Anregungen und Ergebnisse dieser Fachgespräche sind in den Abschlussbericht eingeflossen. Darüber hinaus fanden im Projektzeitraum sechs weitere Abstimmungsgespräche zwischen AG und AN statt.

2 Erkenntnisstand und Grundlagen

2.1 Einleitung

Bei der Zulassung von Humanpharmaka spielt die Untersuchung unerwünschter Wirkungen (Nebenwirkungen) bei direkter Anwendung der Arzneimittel eine zentrale Rolle. Art und Umfang

der toxikologischen Untersuchungen sind in zum Teil sehr detaillierten Prüfvorschriften festgelegt. Toxikologische Studientypen umfassen allgemeine Verträglichkeitsprüfungen nach einmaliger (akute Toxizität) und wiederholter Verabreichung (subakute und chronische Toxizität). Spezielle Untersuchungen beziehen sich auf Störungen der Fortpflanzung, erbgutverändernde und krebsauslösende Eigenschaften. Diese Daten werden üblicherweise an Tieren ermittelt, wobei die Untersuchungen zumeist an einer Nager-Spezies (Ratte, Maus) und einer Nicht-Nager-Spezies (Hund, Affe) durchgeführt werden. Anschließend erfolgt eine Extrapolation auf den Menschen (Keutz & Jekat 1998). Damit sind Arzneimittelwirkstoffe im Hinblick auf ihre Wirkungen auf den Menschen besser untersucht als jede andere Substanz (Zok 1998).

Wesentlich weniger umfangreich ist dagegen die Datenlage für eine ökotoxikologische Bewertung. Die Auswirkungen von Arzneimittelwirkstoffen auf die biotische Umwelt und damit indirekt möglicherweise auf den Menschen sind weitgehend unbekannt. Ungeklärt sind auch die ökotoxikologischen Auswirkungen von zeitgleich in der Umwelt vorkommenden verschiedenen Arzneimittelwirkstoffen bzw. von Arzneimittelwirkstoffen mit weiteren Substanzen.

Deshalb wird von der European Medicines Agency (EMA) im Rahmen der Pre-Authorisation Evaluation of Medicines for Human Use mit der *Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use (2006)* die Bewertung der ökotoxikologischen Bedeutung von Arzneimittelwirkstoffen in der Umwelt eingefordert. Die Stufen einer Risikoabschätzung bestehen in der Expositions- und Wirkungsanalyse. Bei der Expositionsanalyse wird die zu erwartende Konzentration in der Umwelt, die so genannte „Predicted Environmental Concentration“ (PEC) bestimmt. Bei der Wirkungsanalyse wird die Konzentration bestimmt, bei der keine Wirkung in der (biotischen) Umwelt zu erwarten ist („Predicted No Effect Concentration“, PNEC). Die PNEC wird aus Untersuchungen als artspezifische Wirkung ermittelt.

Bisher erfolgt die Berechnung über eine Multiplikation des PEC_{SW} mit dem Faktor 0,25. Dieser Ansatz ist an die Vorgehensweise aus dem Bereich der Zulassung von Pflanzenschutzmitteln angelehnt. Der Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen in das Grundwasser erfolgt in der Regel nicht, wie für Pflanzenschutzmittel typisch, flächenhaft.

2.2 Arzneimittelwirkstoffe

Bereits in den 1980er Jahren wurde ein von Humanpharmaka ausgehendes Grundwassergefährdungspotential abgeschätzt. Anfang der 90er Jahre wurden die ersten Arzneimittelwirkstoffe tatsächlich im Grundwasser nachgewiesen (Halling-Sørensen 1998, Kümmerer et al. 1997). Diese Nachweise führten zu weiteren Untersuchungen über Vorkommen von Arzneimittelwirkstoffen in der aquatischen Umwelt, zunächst in Deutschland und Europa, später auch weltweit. Vor allem durch eine stark verbesserte Analysetechnik wurden in Oberflächengewässern, im Grundwasser und teilweise sogar im Trinkwasser Arzneimittelwirkstoffe festgestellt.

Um neue Arzneimittel auf den Markt zu bringen, müssen mittlerweile umfangreiche Voruntersuchungen durchgeführt werden, so dass durchschnittlich 12 Jahre von der Neuentwicklung bis

zur Markteinführung vergehen. Diese Untersuchungen umfassen die pharmakologische Wirkung, die therapeutische Wirksamkeit und die Bestimmung möglicher Nebenwirkungen. Für neue Wirkstoffe wird seit 2006 im Rahmen des europäischen Zulassungsverfahrens eine Umweltgefährdungsabschätzung verlangt, welche der *EMEA Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use* zu folgen hat. Bei der Zulassung der bereits auf dem Markt befindlichen Arzneimittel waren derartige Umweltuntersuchungen noch nicht notwendig, so dass für diese Altwirkstoffe kaum Daten zur Umweltrisikobewertung vorliegen.

Das Vorkommen von Arzneimitteln im Abwasser und auch im Oberflächenwasser führt meistens nicht zu einem Eintrag in das Grundwasser. Unter den für Mitteleuropa typischen humiden Klimabedingungen herrschen zumeist effluente Grundwasserverhältnisse vor, d.h. Oberflächengewässer werden durch das Grundwasser gespeist. Zu den potentiellen Eintragspfaden von Arzneimitteln in das Grundwasser zählen:

- Versickerung von Abwasser, z.B. aus undichten Abwasserkanälen,
- Uferfiltration und künstliche Grundwasseranreicherung,
- Eintrag aus Deponien und Produktionsstätten,
- Ausbringung von Klärschlamm und Gülle in der Landwirtschaft sowie
- Verrieselung von Abwasser.

Grenzwerte für Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser wurden bisher noch nicht festgesetzt, doch liegen die gemessenen Konzentrationen für einzelne Arzneimittelwirkstoffe nicht selten oberhalb des für Pflanzenschutz- und -behandlungsmittel geltenden Grenzwerts von 0,1 µg/l. Der Vergleich von Arzneimittelwirkstoffen und Pflanzenschutzmitteln bietet sich an, da Arzneimittelwirkstoffe den Pflanzenschutzmitteln strukturell häufig sehr ähnlich sind. Vom Umweltbundesamt wird im Sinne des vorbeugenden Schutzes deshalb vorgeschlagen, auch für Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser einen Grenzwert von 0,1 µg/l einzuführen. Im Rahmen der hier durchgeführten Studie werden nur Arzneimittelwirkstoffe selber betrachtet und keine beim Abbau entstehenden Metabolite.

2.3 System Uferfiltration

Die Uferfiltration ist ein naturnahes Verfahren zur Gewinnung von Grundwasser für die Trinkwassererzeugung. Bei diesem Verfahren wird durch eine Grundwasserfassung entlang von Oberflächengewässern ein künstliches Gefälle erzeugt, wodurch das Wasser durch die Gewässersohle in das Grundwasser infiltriert und über die Brunnen der Wasserfassung wieder entnommen wird. Dabei wird das Oberflächenwasser durch verschiedene natürliche Prozesse gereinigt und kann die Qualität von Grundwasser erreichen. Das Verfahren wird in Deutschland z.B. im Berliner Raum und am Niederrhein bereits seit über 100 Jahren erfolgreich angewandt (Ray et al. 2002). Um gleichzeitig die beabsichtigte Reinigungsleistung und eine wasserwirt-

schaftlich verwertbare Fördermenge zu erzielen, ist die Nutzung der Uferfiltration auf Standorte mit sandigen bis kiesigen Grundwasserleitern begrenzt.

Nach Absprache mit dem AG wird bei der vorliegenden Betrachtung ausschließlich der direkte Pfad Oberflächengewässer - Grundwasserfassung (Brunnen) betrachtet. Diese Annahme ermöglicht in Abhängigkeit von den anderen Randbedingungen die Ermittlung des standortabhängigen „realistic worst case“ bei dem Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen in das Grundwasser durch Uferfiltration. Der Anteil einer möglichen Verdünnung durch landseitig dem Brunnen zuströmendes Grundwasser wird diskutiert, ist aber im Sinne der Definition keine Uferfiltration. Gleichzeitig wird davon ausgegangen, dass Galerien eines Wasserwerkes die als „Uferfiltratstandort“ angesprochen werden, im Sinne dieser Definition auch hauptsächlich Uferfiltrat fördern. Diese Grenze wird mit einem Anteil von $> 50\%$ Uferfiltrat an der Entnahme festgelegt. Standorte mit einem Uferfiltratanteil von $< 50\%$ lassen aufgrund der Randbedingungen kein „realistic worst case“ Szenario für die erwartete Konzentration im Grundwasser zu.

Eine Prozessbeschreibung der Uferfiltration im Sinne der Aufgabenstellung mit einer Ableitung der Voraussetzungen und Randbedingungen für Uferfiltratstandorte sowie eine Übersicht zu Standorten mit überwiegender Nutzung der Uferfiltration bei der Wassergewinnung erfolgt in den nächsten Abschnitten.

2.3.1 Prozessbeschreibung und Randbedingungen für die Uferfiltration

Uferfiltration bezeichnet den Vorgang zur Bildung von Uferfiltrat, wenn Wasser also aus einem Oberflächengewässer direkt in das Grundwasser einsickert. Dazu zählt nicht der Abfluss in Spalten und Klüften (Adam et al. 2000). Mit dem „direkten“ Übergang vom Oberflächengewässer in das Grundwasser werden wassergesättigte Verhältnisse im Grundwasserleiter angenommen, was für die zu betrachtenden Strömungs- und Transportprozesse von Bedeutung ist.

Dieser Vorgang der Infiltration von Oberflächen- in Grundwasser kommt in der Natur nur in Ausnahmefällen vor; so etwa zu Hochwasserereignissen, bei denen sich der Wasserspiegel des Oberflächengewässers kurzfristig über den Grundwasserspiegel erhebt. Normalerweise findet eine Exfiltration von Grundwasser in das Oberflächengewässer (Vorflutfunktion) statt.

Somit ist die Bildung von Uferfiltrat immer an den künstlich induzierten Prozess der Grundwasserentnahme in der Nähe von Oberflächengewässern gebunden und damit räumlich auf den Bereich der Grundwasserfassungen (im weiteren Sinne „Wasserwerksstandorte“) beschränkt. Erst die Grundwasserentnahme erzeugt eine Absenkung des Grundwasserspiegels, so dass Oberflächenwasser, dem künstlichen Gradienten folgend, in das Grundwasser eindringen kann. Um die Ergiebigkeit der Brunnen und eine ausreichende Reinigungsleistung bei der Grundwasserpassage zu gewährleisten, bleibt die Nutzung der Uferfiltration zudem auf Standorte mit sandiger bis kiesiger Ausbildung des genutzten Grundwasserleiters und einer durchlässigen Gewässersohle des Oberflächengewässers beschränkt. Diese Voraussetzungen sind in

Deutschland nur in bestimmten Abschnitten entlang der Flusstäler gegeben. Die daraus resultierenden Standorte für die Nutzung von Uferfiltration werden im Folgenden diskutiert.

Die Strömungsverhältnisse bei dem Prozess der Uferfiltration haben Hiscock & Grischek (2002) zusammengefasst. So sind sechs Typen der Grundwasserströmung an Uferfiltratstandorten möglich, die schematisch in Abb. 1a dargestellt sind. Bei Typ 1 bis 5 wird die Verwendung von Vertikalfilterbrunnen angenommen. Typ 6 zeigt das Strömungsmuster von Typ 3 unter Verwendung von Horizontalfilterbrunnen.

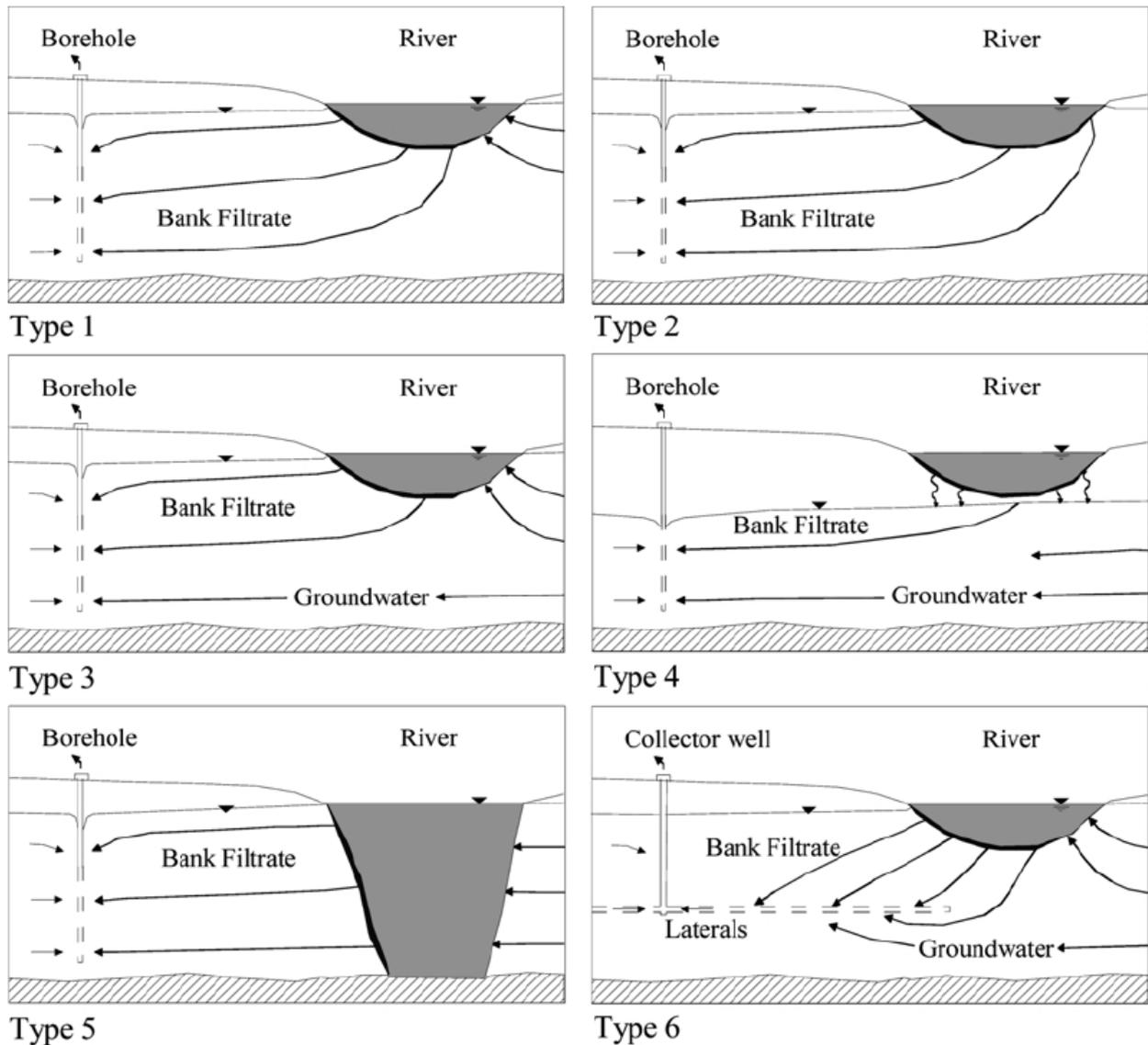


Abb. 1a: Schematische Darstellung der typischen Strömungsverhältnisse an Uferfiltratstandorten. Die Erläuterung erfolgt im Text. (aus: Hiscock & Grischek 2002)

An den meisten Standorten sind nach Angabe der Autoren die Strömungsverhältnisse nach Typ 1 vorherrschend. Seltener dagegen sind die Typen 2 und 3 ausgebildet, bei denen eine Unterströmung des Oberflächengewässers angenommen wird. Ebenfalls ungewöhnlich ist Typ 5, bei dem sich das Oberflächengewässer in den gesamten genutzten Grundwasserleiter bis auf den Liegenden Grundwasserhemmer einschneidet. Der Typ 4 stellt im engeren Sinne keine Uferfiltration mehr dar, da sich unterhalb des Oberflächengewässers eine ungesättigte Zone

ausbildet und somit kein „direkter“ Übergang vom Oberflächengewässer in das Grundwasser mehr gegeben ist. Aus wasserwirtschaftlicher Sicht ist dieser Zustand nicht gewollt, tritt aber kurzzeitig bei Missverhältnissen von zu hoher Entnahme am Brunnen und verringerter Durchlässigkeit der Gewässersohle durch Kolmation auf.

Im Rahmen des bearbeiteten Projektes wird nur der direkte Pfad vom Oberflächengewässer zur Entnahme am Brunnen betrachtet. Daher ist es unwesentlich, welcher der o. g. Typen der Uferfiltration vorliegt. Längere Fließwege im Grundwasserleiter durch Unterströmung des Oberflächengewässers oder das Heranführen von unbelastetem oder weniger belastetem Grundwasser aus größerer Entfernung werden nur in Hinsicht auf mögliche Verdünnungseffekte bzw. einen zeitlichen Versatz beim Auftreten der Wirkstoffe im Brunnen diskutiert.

Für die folgenden Betrachtungen (und Modellannahmen) wird der Vorgang „Uferfiltration“ daher auf den Abschnitt zwischen Oberflächengewässer und Entnahmebrunnen reduziert (abstrahiert), für den in einem homogenen Grundwasserleiter eine Stromlinie die hydraulisch (und geometrisch) kürzeste Verbindung darstellt. Dieser Ausschnitt ist schematisch in Abbildung 1b dargestellt und gekennzeichnet.

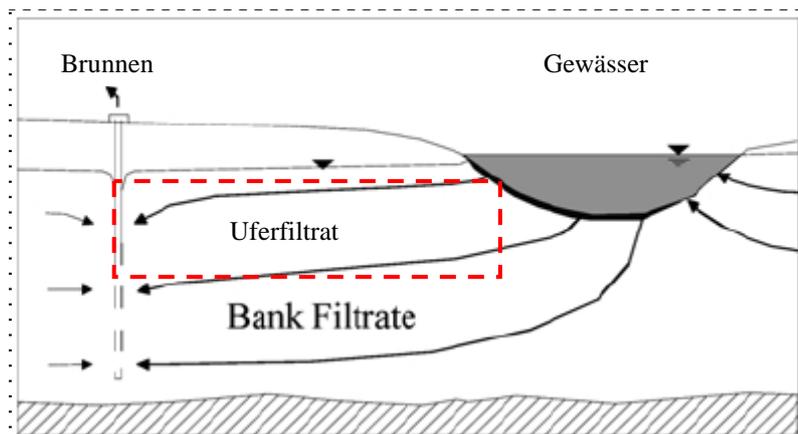


Abbildung 1b: Schematischer Profilschnitt eines Uferfiltratstandortes. Die Stromlinien zwischen Gewässer und Brunnen für mögliche Entfernungen und Filtertiefen sind angedeutet. Der mit einer gestrichelten Linie markierte Ausschnitt zeigt den für die vorliegenden Betrachtungen gewählten Bereich mit den geringsten Verweilzeiten in einem homogenen Grundwasserleiter. (abgeleitet aus Abbildung 02a, Typ 1, Hiscock & Grischek 2002)

Diese Festlegung resultiert aus der Annahme, dass bei der Betrachtung des Eintrages von

Arzneimitteln aus Oberflächen- in Grundwasser durch Uferfiltration die kürzeste Fließ- und Transportstrecke als „worst case“ Anwendung findet. Dem liegt die Modellvorstellung zugrunde, dass in einem homogenen Grundwasserleiter die Verweilzeit eine determinierende Größe für die Grundwasserströmung und das Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen darstellt.

Hinsichtlich der Grundwasserströmung ist die Verweilzeit als Zeitspanne zwischen dem Einsickern des Wassers von der Erdoberfläche (hier Gewässersohle) in den Untergrund bis zum Zutage treten durch Brunnenwasserförderung (Adam et al. 2000) definiert. In Bezug auf den Stofftransport handelt es sich also um die Zeit in der sich ein (gelöster) Stoff im Grundwasser befindet und in der dementsprechend ein Abbau bzw. eine Konzentrationsminderung der Substanz erfolgen kann. So gilt in erster Näherung: je kleiner die Verweilzeit umso geringer ist die Konzentrationsminderung eines Stoffes auf dem Weg vom Oberflächenwasser zum Brunnen.

Die Verweilzeit des Grundwassers wird bei der Uferfiltration durch den Abstand zwischen dem Ufer (Gewässersohle) und dem Brunnen sowie der Fließgeschwindigkeit (Abstandsgeschwin-

digkeit) im Grundwasserleiter bestimmt. Der Ufer-Brunnen-Abstand muss dabei noch in eine horizontale und vertikale Komponente unterteilt werden. Die vertikale Komponente wird durch die Lage der Filterstrecke des Brunnens im Grundwasserleiter definiert. Die Fließgeschwindigkeit wird durch die k_f -Werte (Durchlässigkeitsbeiwerte) des Grundwasserleiters (und auch Kolmationsschicht) und die Entnahmemenge sowie Filtertiefe (diese beeinflusst den hydraulischen Gradienten zwischen Gewässersohle und Brunnen) des Brunnens bestimmt. In Abhängigkeit von der hydrogeologischen Situation und der Geometrie für den Ufer-Brunnen-Abstand sind geringe Verweilzeiten bei großen k_f -Werten, hohen Entnahmemengen bzw. geringen Ufer-Brunnen-Abständen zu erwarten. Die Geometrien und k_f -Werte können als Randbedingungen der Uferfiltration zusammengefasst werden. In Abhängigkeit von der hydrogeologischen Situation können sie sehr unterschiedlich sein und werden im Kapitel 2.3.2 diskutiert.

Neben den feststehenden Geometrien der Wassergewinnungsanlagen, den Durchlässigkeitsbeiwerten (k_f) und kontrollierbaren Entnahmemengen wird die Uferfiltration noch durch zeitlich und räumlich variable Größen beeinflusst. Das sind die uferfiltratwirksamen Flächen am Gewässerboden und die Durchlässigkeit dieser Bereiche in Abhängigkeit von der Kolmation.

So sind Berliner Gewässer durch einen geringen Abfluss gekennzeichnet und innerjährliche Schwankungen werden durch Stauhaltungen kompensiert. Durch die geringe Fließgeschwindigkeit und den konstanten Wasserspiegel kommt es entlang der tieferen Gewässerabschnitte zu Muddeablagerungen, die den Austausch zwischen Oberflächengewässer und Grundwasser verhindern. Dieser Austausch und somit eine Uferfiltration sind auf ufernahe Bereiche beschränkt, die durch Wellengang freigehalten werden. Entlang dieser Bereiche wirkt aber eine (innere) Kolmationsschicht der ungehinderten Infiltration entgegen, die im Berliner Raum einen durchschnittlichen k_f -Wert von $1 \cdot 10^{-6}$ m/s aufweist. Dieser Umstand und eine im Durchschnitt mittelsandige Ausprägung des Grundwasserleiters ($k_f \sim 5 \cdot 10^{-4}$ m/s) führen zu verhältnismäßig geringen Fließgeschwindigkeiten und damit hohen Verweilzeiten des Uferfiltrats. Eine schematische Darstellung dieser typischen Standortbedingungen ist in Abb. 2 gegeben.

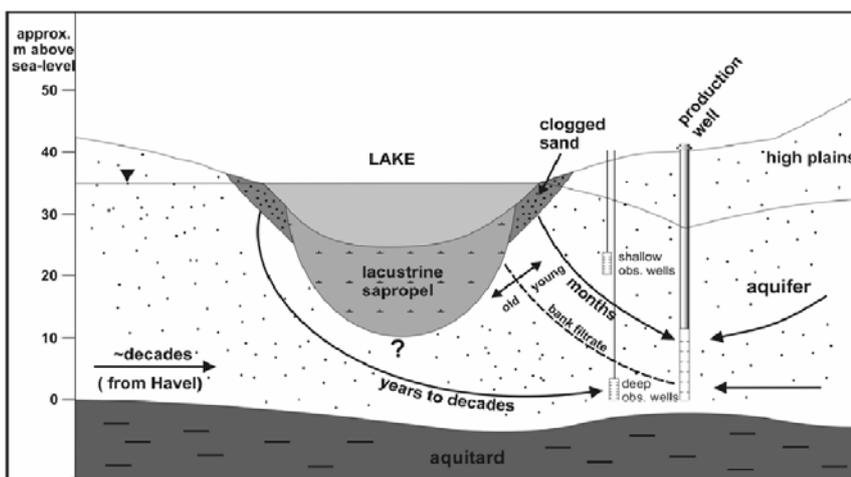


Abb. 2: Schematisches Modell der Uferfiltration entlang der seenartigen Gewässer im Berliner Raum. Die Mudde (lacustrine sapropel) bedeckt weite Bereiche des Gewässerbodens und verhindert einen Austausch zwischen Oberflächengewässer und Grundwasser. Nur entlang schmaler kolmatierter (clogged sand) Uferbereiche ist dieser Austausch möglich. Diese Dynamik und wird in der Abb. durch Strompfade (Pfeile) angedeutet denen gleichzeitig die durchschnittliche Verweilzeit in Abhängigkeit vom Abstand zum Entnahmehohr (production well) zugeordnet wird (aus: Massmann et al. 2007a).

Ganz andere Standortbedingungen, u. a. von Schubert (2002) beschrieben, sind entlang des Niederrheins und seiner Zuflüsse gegeben. Durch unterschiedlich hohe Abflüsse sind Schwan-

kungen des Wasserspiegels (s. Abb. 3) und damit verbunden auch Änderungen der Fließgeschwindigkeit charakteristisch. Dieser Wechsel von Hoch- und Niedrigwasserereignissen führt auch zu Veränderungen der uferfiltratwirksamen Flächen entlang der Gewässersohle, wobei generell über den gesamten Gewässerboden eine Infiltration möglich ist. Eine typische Gliederung wie bei den Berliner Gewässern mit Ausprägung eines Muddekörpers bildet sich nicht aus. Besonders bei Hochwasserereignissen wird die gesamte Gewässersohle bewegt und es kommt in Abhängigkeit von der Fließgeschwindigkeit des Wassers und der Lage im Flussprofil (Prall- bzw. Gleithang) zur Ausbildung von zeitlich und räumlich variablen Bereichen mit (äußerer) Kolmation. Nach Schubert (2002) sind besonders Uferfiltratstandorte an Prallhängen von erhöhter Kolmation bis hin zur Undurchlässigkeit betroffen. Am Beispiel von Profilen am Wasserwerk Flehe konnte eine Zonierung kolmatierter Bereiche in Abhängigkeit von der Entfernung zum Filter der Entnahmebrunnen nachgewiesen werden (s. Abb. 3). Die geringste Kolmation tritt dort am gegenüberliegenden Ufer am Gleithang auf - ein Bereich mit geringer Grundlast und geringer Infiltrationswirkung durch die Entnahmebrunnen.

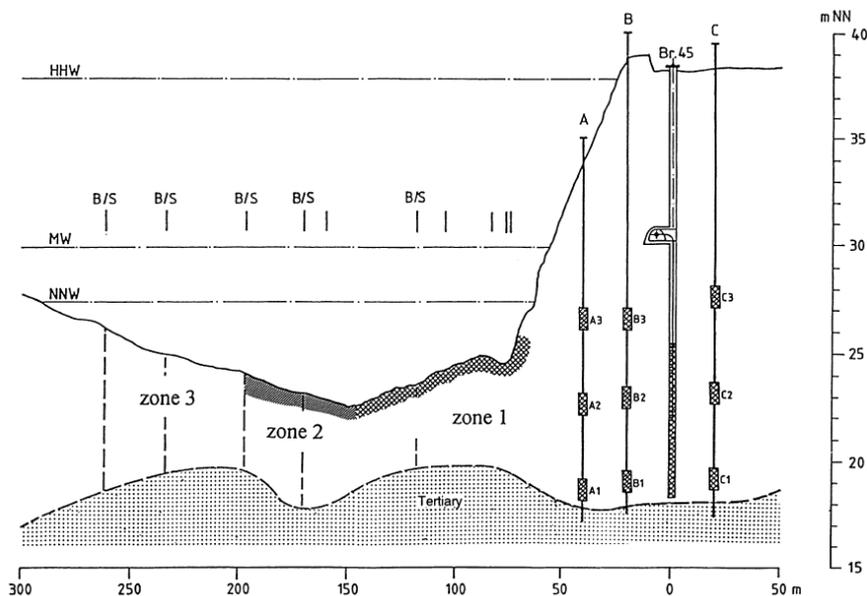


Abb. 3: Profilschnitt entlang eines Entnahmebrunnens des Wasserwerkes Flehe am Rhein (km 731,5). Neben den möglichen Wasserspiegelschwankungen wird auch die Ausbildung einer Zonierung der Durchlässigkeit des Gewässerbodens durch Kolmation veranschaulicht. Die Durchlässigkeit steigt von Zone 1 nach Zone 3 in Abhängigkeit von der Entfernung zum Brunnen und der Lage im Gewässerquerschnitt. (aus: Schubert 2002 Figure 6)

2.3.2 Spannweiten der hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Randbedingungen an Standorten mit überwiegender Uferfiltration zur Grundwassergewinnung

Im Kapitel 2.3.1 konnte anhand von hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Kriterien gezeigt werden, dass Stofftransport aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration (im Sinne der Aufgabenstellung) nur an Standorten von Wasserfassungen in Porengrundwasserleitern mit einem eng begrenzten Spektrum der hydraulischen Durchlässigkeit relevant ist. Dementsprechend kann bei Kenntnis dieser Standorte bzw. der Randbedingungen der Uferfiltration der Umfang der Bearbeitung definiert werden und eine Ableitung der „Allgemeingültigkeit“ im Sinne der Aufgabenstellung erfolgen. Eine Übersicht zu Wasserwerksstandorten mit Uferfiltratanteilen kann unterschiedlichen Statistiken entnommen werden. Nach Erfassungen des Statistischen Bundesamtes (2006) wurden im Jahr 2004 insgesamt 5371,7 Millionen m³ Wasser für die öffentliche Wasserversorgung genutzt. Davon entfielen 3516,1 Millionen

m³ auf das Grundwasser und lediglich 284,4 Millionen m³ (5,3 %) auf den Anteil der Uferfiltration an ca. 80 Wasserwerksstandorten in Deutschland. Das Dokument geht nicht auf Einzelstandorte ein und stellt somit nur eine grobe Orientierung dar. Es enthält z. B. für Berlin nicht nachvollziehbare Angaben. Die für die Stadt angegebenen 214,6 Millionen m³/a Wasserförderung werden zu 100 % dem Grundwasser zugeschrieben. Diese Angabe ist insofern korrekt, wenn Uferfiltrat als Entnahme aus dem Grundwasser betrachtet wird. In Hinsicht auf die zugrunde liegende Fragestellung ist jedoch eine genauere Zuordnung möglich. Nach Angaben der Berliner Wasserbetriebe werden ca. 2/3 des geförderten Grundwassers durch Uferfiltration gewonnen. Diese Angaben werden durch Berechnungen von HYDOR (2004), HYDOR (2007) und Zippel (2006) bestätigt.

Schmidt et al. (2003) beziffert dagegen die Anzahl der Wasserwerke mit Uferfiltrationsanteil in Deutschland auf mehr als 300 mit einem Anteil an der Gesamtwasserversorgung von 16 % (s. Abb. 4). Diese Angabe wird ebenfalls von Ray et al. (2002) im Rahmen der ‚International Riverbank Filtration Conference‘ 1999 genutzt. Dort sind allerdings keine Angaben zu den Wasserwerksstandorten und den Randbedingungen der Uferfiltration enthalten (s. Kapitel 2.3.1).

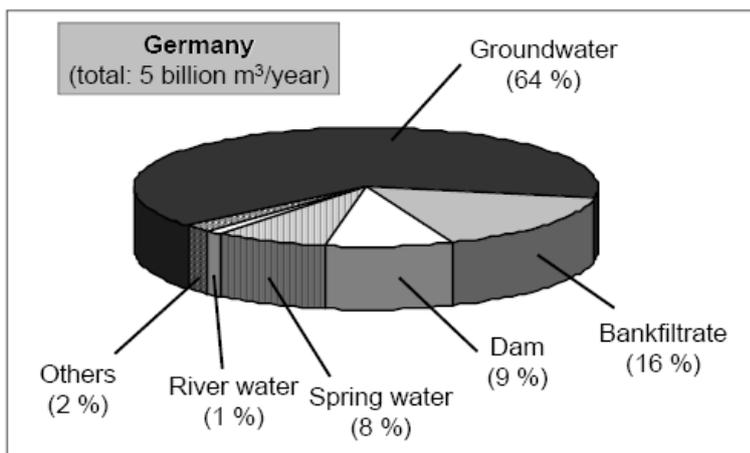


Abb. 4: Herkunft des Wassers zur Trinkwassergewinnung in Deutschland (Schmidt et al. 2003)

Eine genauere Standortanalyse wurde von Lenk et al. (2006) im Rahmen eines BMBF-Projektes mit dem Ziel einer Klassifizierung mitteleuropäischer Uferfiltratstandorte hinsichtlich der Reinigungsleistung durchgeführt (Projektbeschreibung s. Kapitel 4). Basierend auf einer Wasserstatistik des BGW e.V. von 1999 wurden 82 Wasserversorgungsunternehmen ermittelt und befragt, bei

denen der Anteil der Uferfiltration an der Gesamtförderung >50 % beträgt. Für 33 Standorte konnten ausreichend Daten für eine Analyse im Rahmen des BMBF-Projektes recherchiert werden. Davon befinden sich 29 Standorte in Deutschland, wobei die Schwerpunkte am Niederrhein und der Ruhr sowie entlang der Elbe und den Berliner Gewässern liegen (s. Abb. 5). Diese Schwerpunkte mit Standorten überwiegender Nutzung der Uferfiltration bei der Trinkwassergewinnung werden durch eigene Kenntnisse und die vom AN durchgeführte Literatur- und Datenrecherche (s. Kapitel 4) bestätigt. Zu allen Standorten werden bei Lenk et al. (2006) unterschiedlich detaillierte Angaben zu den Randbedingungen der Uferfiltration getroffen. Diese Angaben sind im Anlage 1 dokumentiert und bilden die Datengrundlage für die Modellierung der Uferfiltratstandorte (s. Kapitel. 6).

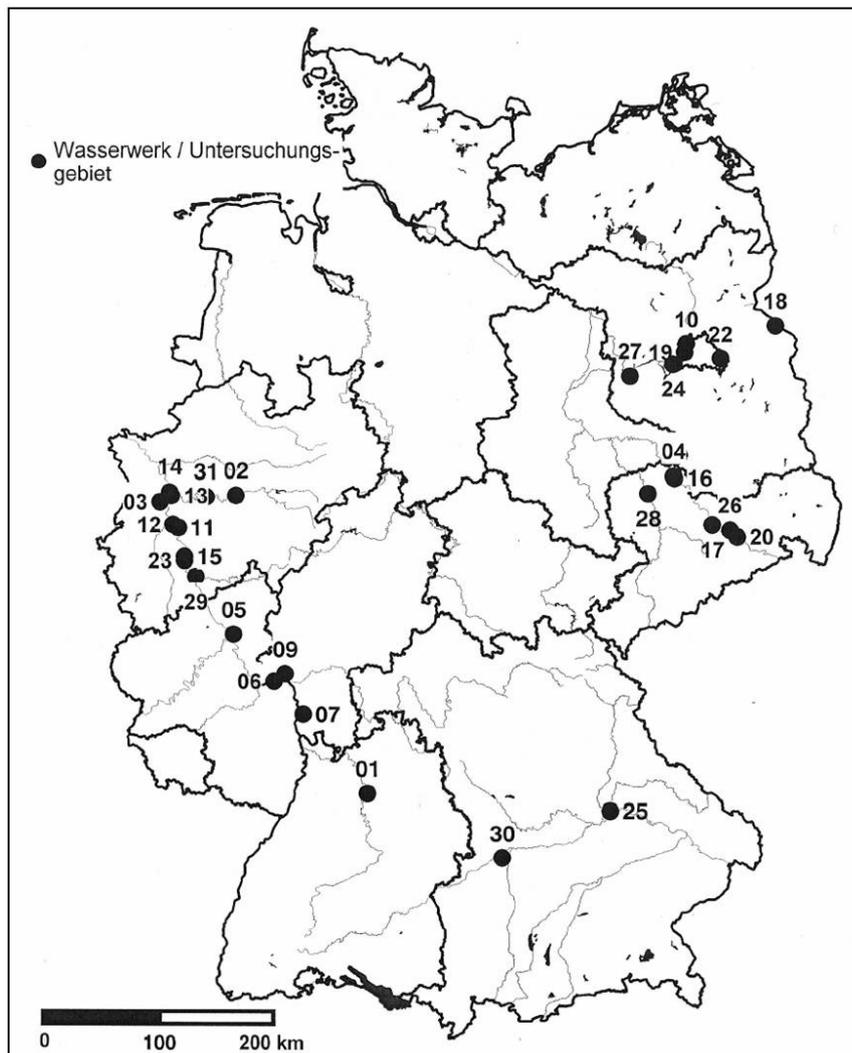


Abb. 05: Übersicht zu den Wasserwerksstandorten mit > 50 % Uferfiltratanteil an der Trinkwassergewinnung (nach Lenk et al. 2006). Deutlich werden die Nutzungsschwerpunkte entlang des Rheins und der Elbe und der Havel.

Die im Dokument genannten Spannweiten der für die Uferfiltration entscheidenden Parameter und Randbedingungen sind in Tab. 1 zusammengefasst. Die resultierenden Größen Verweilzeit und Abstandsgeschwindigkeit sind farbig hervorgehoben. Mittelwert bzw. Median sind in der zweiten Spalte dokumentiert. In der dritten Spalte sind die Extreme der Spannweiten dargestellt, die für sich oder in Kombination zu einem Minimum der Verweilzeit führen können. Die Werte der vierten Spalte verdeutlichen die Maximalwerte hinsichtlich der Verweilzeit.

Tab. 1: Spannweite der Parameter und Randbedingungen für die Uferfiltration nach Auswertung der in Lenk et al. (2006) dokumentierten Standorte

Steuergrößen (Parameter)	Median (M) bzw. Mittelwert (MW)	Minimum Verweilzeit	Maximum Verweilzeit
Verweilzeit	30 Tage (MW)	< 1 Tag	1100 Tage
Abstandsgeschwindigkeit	Nicht ermittelt	50 m/d	0,15 m/d
Ufer-Brunnen-Abstand	55 m (MW)	1,5 m	1200 m
Filtertiefe (Mächtigkeit GWL)	16 m (M)	4 m	70 m
Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f)	0,0017 m/s (M)	0,02 m/s	0,0001 m/s
Entnahmemenge je Brunnen (Infiltrationsraten) für Berlin (*)	Nicht ermittelt	5000 m ³ /d	500 m ³ /d

(*): Die Entnahmemengen für Einzelbrunnen einer Galerie werden dort nicht dokumentiert, daher sind in der letzten Zeile der Tabelle zum Vergleich die Werte der Berliner Wasserbetriebe aufgeführt

2.3.3 Zusammenstellung bisheriger Untersuchungen zur Wirksamkeit der Uferfiltration hinsichtlich der Entfernung von Arzneimittelwirkstoffen

Arzneimittelwirkstoffe die bisher hinsichtlich ihres Verhaltens und insbesondere der Entfernbarkeit bei der Uferfiltration untersucht wurden, fasst Schmidt et al. (2006) im Rahmen des BMBF-

Projektes ‚Uferfiltration‘ tabellarisch zusammen. Nach Schmidt et al. (2006) enthalten „die Tabellen eine Aufstellung von Untersuchungsergebnissen zum Verhalten von ca. 340 organischen Einzelstoffen bei der Uferfiltration in Abhängigkeit von den wesentlichen Einflussgrößen Redoxmilieu, Aufenthalts- bzw. Kontaktzeit, Ausgangskonzentration und Verdünnungseffekt durch landseitiges Grundwasser“. In dieser Auflistung sind nur 17 Stoffe der Kategorie „Pharmazeutische Wirkstoffe und Röntgenkontrastmittel“ zugeordnet (s. Tab. 2 auf der nächsten Seite). Da es sich bei drei Stoffen um Metabolite und bei zwei weiteren um Röntgenkontrastmittel handelt, engt sich der Kreis der bisher im Zusammenhang mit der Uferfiltration untersuchten Arzneimittelwirkstoffe auf lediglich 12 Stoffe ein. Diese Liste wird im Rahmen der eigenen Untersuchungen (Schmidt et al. 2006) noch etwas erweitert (s. Kapitel 5) aber es bleibt deutlich, dass bisher nur für eine geringe Zahl von Arzneimittelwirkstoffen das Verhalten bei Uferfiltrationsprozessen untersucht wurde. Die Details zu den Untersuchungen werden in Kapitel 4 als Ergebnisse der Literaturrecherche beschrieben.

2.4 Transportmechanismen

2.4.1 Wasserbewegung

Der Untergrund wird aus hydrogeologischer Sicht in die wasserungesättigte und die wassergesättigte Zone unterteilt. Die wasserungesättigte Zone beginnt an der Geländeoberfläche und umfasst den Boden im engeren Sinne und die darunter befindlichen Schichten bis zur Grundwasseroberfläche. Merkmal der ungesättigten Zone ist das Vorkommen von drei Phasen: Gesteinsmatrix, Bodenluft und Wasser. In der wassergesättigten Zone ist zwischen der Gesteinsmatrix als fester Phase und dem Wasser (Grundwasser) als flüssiger Phase zu unterscheiden. Die Wasserbewegung im gesättigten Bereich weist dabei eine meist horizontale Strömungsrichtung auf.

Die Wasserbewegung der ungesättigten wie auch der gesättigten Zone kann mit Hilfe des Potentialkonzepts beschrieben werden. Das Potential ist definiert als diejenige Arbeit, die notwendig ist, um eine Einheitsmenge Wasser innerhalb eines Potentialfeldes von einem gegebenen Punkt zu einem Bezugspunkt zu transportieren. Analog zur DARCY-Gleichung im wassergesättigten Bereich, wird die RICHARDS-Gleichung im wasserungesättigten Bereich angewandt. Dem Durchlässigkeitsbeiwert k_f der gesättigten Zone entspricht dabei der Durchlässigkeitsbeiwert k_u der ungesättigten Zone (Tab. 3). Dieser ist abhängig vom Wassergehalt w im betrachteten Bereich und nimmt mit abnehmender Wassersättigung ab.

Die Grundwasserströmung hat je nach den anstehenden Gesteinen ganz unterschiedliche Charakteristika. Besteht der Grundwasserleiter aus Lockergestein (z. B. Sand, Kies), so spricht man von einem Porengrundwasserleiter. Bei vergleichbaren hydraulischen Bedingungen sind die Fließgeschwindigkeiten in den Porengrundwasserleitern am niedrigsten (meist weniger als 1 m/d), in den Kluft- und Karstgrundwasserleitern können hingegen Werte von Zehn bis Hundert m/d, ja bis zu mehreren km/d erreicht werden.

Tab. 2: Zusammenstellung bisheriger Untersuchungen zur Wirksamkeit der Uferfiltration hinsichtlich der Entfernung von Arzneimittelwirkstoffen nach Schmidt et al. (2006). Erläuterungen: C₀ : Ausgangskonzentration, Zeit: Aufenthalts- bzw. Kontaktzeit, UF: Uferfiltration, KGWA: Künstliche Grundwasseranreicherung, VA: Versuchsanlage, LFS: Laborfiltersäulen, Lfzt.: Laufzeit (bei Säulenversuchen im Kreislauf), η: Wirkungsgrad (Elimination), lds. Einfl.: landseitiger Grundwasser-Einfluss (Verdünnung), k.A.: keine Angabe

C ₀ [µg/L]	Redoxmilieu	Zeit [d]	Untersuchungsart	η [%]	lds. Einfl. [%]	Literaturstelle
4-Acetylaminoantipyrin [AAA, Metamizol-Metabolit]						
0,8	anoxisch	150-240	UF Tegeler See	>90	16-28	(SCHMIDT & BROCKMEYER, 2002)
0,22	aerob	4-25	KGWA Tegeler See	>77	kein	(ZÜHLKE, 2004)
Amidotrizoesäure						
0,96	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	70	<10	(SCHITTKO et al., 2004)
1,1-2,3	anoxisch	150-240	UF Tegeler See	65-95	16-28	(PUTSCHEW & JEKEL, 2001)
AMDOPH [Dimethylaminophenazon-Metabolit]						
0,15	anoxisch	20-65	UF Wannsee	0-10	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,355	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	0-70	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,43	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	keine Abnahme	kein	(HEBERER et al., 2003)
0,239	aerob	4-50	KGWA Tegeler See	keine Abnahme	kein	(ZÜHLKE, 2004)
Bezafibrat						
0,045	anoxisch	20-65	UF Wannsee	80-99	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,020	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	>75	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,025	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	>80	kein	(HEBERER et al., 2003)
100	aerob	<10 h	LFS	0-80	kein	(PREUS et al., 2001)
100	anoxisch	<10 h	LFS	0-20	kein	(PREUS et al., 2001)
Carbamazepin						
0,11	aerob	7-20	UF Rhein	keine Abnahme	kein	(BRAUCH et al., 2000)
0,11	aerob	40-60	UF Rhein	20	25	(BRAUCH et al., 2000)
0,11	aerob	60-100	UF Rhein	40	60	(BRAUCH et al., 2000)
0,315	anoxisch	20-65	UF Wannsee	0-20	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,325	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	0-40	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,393	aerob	4-50	KGWA Tegeler See	13-20	kein	(ZÜHLKE, 2004)
100	aerob	<10 h	LFS	0-40	kein	(PREUS et al., 2001)
100	anoxisch	<10 h	LFS	0-20	kein	(PREUS et al., 2001)
10	anoxisch	<1	LFS	0-17	kein	(MERSMANN et al., 2002)
Clofibrinsäure						
0,055	anoxisch	20-65	UF Wannsee	40-90	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,04	aerob	3	KGWA Ruhr	>75	kein	(TERNES et al., 2000)
100	aerob	<10 h	LFS	0-60	kein	(PREUS et al., 2001)
7	anaerob	<1	LFS	keine Abnahme	kein	(SCHEYTT et al., 1998)
100	anoxisch	<10 h	LFS	0-20	kein	(PREUS et al., 2001)
10	anoxisch	<1	LFS	keine Abnahme	kein	(SCHEYTT et al., 2004)
10	anoxisch	<1	LFS	keine Abnahme	kein	(MERSMANN et al., 2002)
Diclofenac						
0,05-0,5	aerob	7-20	UF Rhein	>80	kein	(BRAUCH et al., 2000)
0,05-0,5	aerob	40-60	UF Rhein	>95	25	(BRAUCH et al., 2000)
0,05-0,5	aerob	60-100	UF Rhein	>95	60	(BRAUCH et al., 2000)
0,075	anoxisch	20-65	UF Wannsee	50-80	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,015	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	30-99	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,05	aerob	3	KGWA Ruhr	>80	kein	(TERNES et al., 2000)
0,04	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	>88	kein	(HEBERER et al., 2003)
100	aerob	<10 h	LFS	60-80	kein	(PREUS et al., 2001)
0,1-10	aerob	30 (Lfzt.)	LFS	0-20	kein	(LINDNER et al., 2003)
100	anoxisch	<10 h	LFS	20-40	kein	(PREUS et al., 2001)
100	anoxisch	<10 h	LFS	40-60	kein	(PREUS et al., 2001)
10	anoxisch	<1	LFS	12	kein	(SCHEYTT et al., 2004)
10	anoxisch	<1	LFS	keine Abnahme	kein	(MERSMANN et al., 2002)

C ₀ [µg/L]	Redoxmilieu	Zeit [d]	Untersuchungsart	η [%]	lds. Einfl. [%]	Literaturstelle
4-Formylaminoantipyrin [FAA, Metamizol-Metabolit]						
0,2	anoxisch	150-240	UF Tegeler See	keine Abnahme	16-28	(SCHMIDT & BROCKMEYER, 2002)
0,439	aerob	4-25	KGWA Tegeler See	>89	kein	(ZÜHLKE, 2004)
Gemfibrozil						
100	aerob	<10 h	LFS	0-60	kein	(PREUS et al., 2001)
100	anoxisch	<10 h	LFS	0-20	kein	(PREUS et al., 2001)
Ibuprofen						
100	aerob	<10 h	LFS	0-80	kein	(PREUS et al., 2001)
100	anoxisch	<10 h	LFS	0-20	kein	(PREUS et al., 2001)
10	anoxisch	<1	LFS	54-91	kein	(MERSMANN et al., 2002)
Indomethacin						
0,015	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	>67	kein	(HEBERER et al., 2003)
0,015	anoxisch	20-65	UF Wannsee	>30	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
Iopromid						
0,841	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	82-99	<10	(GRÜNHEID et al., 2005)
0,86	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	95	<10	(SCHITTKO et al., 2004)
2,0-3,5	anoxisch	150-240	UF Tegeler See	>99	16-28	(PUTSCHEW & JEKEL, 2001)
0,737	aerob	4-50	KGWA Tegeler See	89-99	kein	(GRÜNHEID et al., 2005)
7	aerob	30	LFS	99,5	kein	(GRÜNHEID & JEKEL, 2005)
7	anoxisch	30	LFS	97	kein	(GRÜNHEID & JEKEL, 2005)
Phenazon						
0,344	aerob	4-25	KGWA Tegeler See	>85	kein	(ZÜHLKE, 2004)
Primidon						
0,055	anoxisch	20-65	UF Wannsee	0-20	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,055	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	20-60	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,095	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	keine Abnahme	kein	(HEBERER et al., 2003)
Propyphenazon						
0,135	anoxisch	20-65	UF Wannsee	20-50	kein	(HEBERER et al., 2003; 2004)
0,23	anoxisch	20-120	UF Tegeler See	30-90	kein	(HEBERER et al., 2004)
0,071	aerob	4-25	KGWA Tegeler See	>30	kein	(ZÜHLKE, 2004)
0,125	aerob	3-50	KGWA Tegeler See	80	kein	(HEBERER et al., 2003)
10	anoxisch	<1	LFS	keine Abnahme	kein	(SCHEYTT et al., 2004)
10	anoxisch	<1	LFS	0-12	kein	(MERSMANN et al., 2002)
Sulfadiazin						
0,004	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	50-70	<10	(HARTIG, 2000)
Sulfamethoxazol						
0,485	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	80	<10	(GRÜNHEID et al., 2005)
0,23	anoxisch	80-120	UF Tegeler See	70-90	<10	(HARTIG, 2000)
0,463	aerob	4-50	KGWA Tegeler See	40	kein	(GRÜNHEID et al., 2005)
2,2	aerob	30	LFS	95	kein	(GRÜNHEID & JEKEL, 2005)
2,2	anoxisch	30	LFS	60	kein	(GRÜNHEID & JEKEL, 2005)

Tab. 3: Grund- und Sickerwasserbewegung (Mattheß & Ubell 1983)

Grundwasserbewegung	Sickerwasserbewegung
$v_f = -k_f \cdot \text{grad } \phi$	$v_u = -k_u \cdot \text{grad } \psi$
v_f = Filtergeschwindigkeit im gesättigten Bereich	v_u = Filtergeschwindigkeit im ungesättigten Bereich
k_f = Durchlässigkeitsbeiwert im gesättigten Bereich	k_u = Durchlässigkeitsbeiwert im ungesättigten Bereich
$\text{grad } \phi$ = Potentialgradient im gesättigten Bereich	= $f(w)$ für $w = 100\%$ ist $k_u = k_f$ für $w < 100\%$ ist $k_u < k_f$
	$\text{grad } \psi$ = Potentialgradient im ungesättigten Bereich
	= $\psi_z + \psi_m + \dots$
	ψ_z = Gravitationspotential
	ψ_m = Matrixpotential
	= $f(w)$

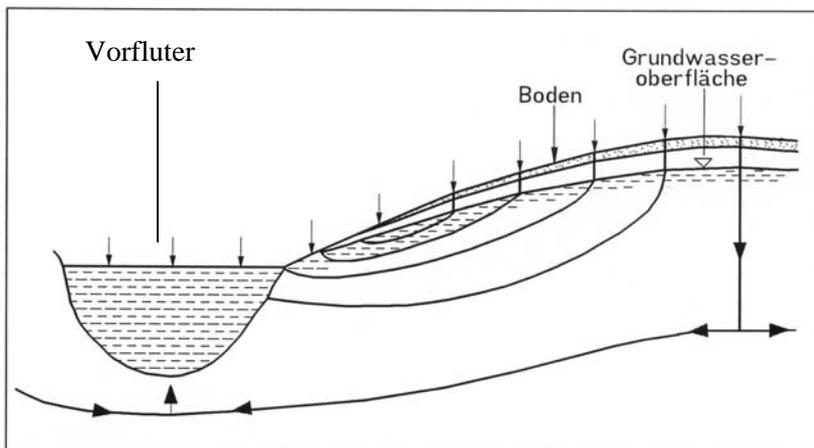


Abb. 06: Schema eines unterirdischen Fließsystems (nach Eriksson, 1986)

Bei räumlicher Betrachtung der Grundwasserströmung kann zwischen Grundwasserneubildungsgebieten, Transfergebieten und Entlastungsgebieten unterschieden werden. Häufig dienen morphologisch höher gelegene Regionen als Neubildungsgebiet und die Niederungsgebiete der Vorfluter als Entlastungsgebiete, wobei diese Vorfluter dann vom Grundwasser gespeist werden (Abb. 6).

Das Grundwasseralter wird insbesondere durch die Grundwasserströmung und die Fließstrecke zwischen Versickerungsbereich und Austrittsbereich bestimmt (Abb. 6, Abb. 7). Im Allgemeinen nimmt das Grundwasseralter mit zunehmender Tiefe zu. Das Spektrum der unterirdischen Aufenthaltszeiten der Wasser-Anteile in einem betrachteten Grundwassersystem richtet sich nach den Untergrundverhältnissen. In Abb. 7 sind die Anteile $F(T)$ des Grundwasserabflusses der Zeit T (Jahre) gegenübergestellt.

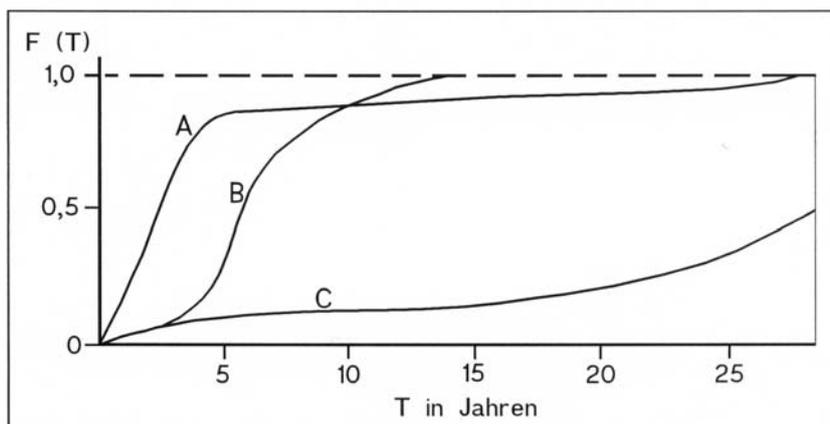


Abb. 7: Verweilzeit-Spektren in verschiedenen Grundwassersystemen (Eriksson 1986) In schlecht durchlässigen, z. B. metamorphen Gesteinen verweilt das meiste Grundwasser weniger als 3 Jahre im Einzugsgebiet, während in einem mächtigen Porengrundwasserleiter (Kurve C) Verweilzeiten von >100 Jahre, örtlich tausende Jahre, vorkommen. Ein gut geklüftetes Grundwasserleiter-System (Kurve B) fällt mit seiner Grundwasser-Verweilzeit zwischen die Fälle A und C.

2.4.2 Transportrelevante stoffliche Eigenschaften

Löslichkeit

Die Wasserlöslichkeit organischer Substanzen bestimmt wesentlich deren Transporteigenschaften. Wasserlösliche Stoffe werden mit dem Sickerwasser aus der wasserungesättigten Zone in das Grundwasser verlagert und können dort mit dem Grundwasser transportiert werden. Organische Säuren, Basen und Salze bilden als Elektrolyte echte Lösungen. Ihre Löslichkeit kann durch die Bildung löslicher oder unlöslicher Komplexe verändert werden. Viele organische Stoffe sind jedoch Nichtelektrolyte, die sich wiederum in polare und nicht polare organische Stoffe trennen lassen. Während polare organische Substanzen mit den Wasserdipolen in Wechselbeziehung treten und daher als Moleküle gut löslich sind, sind die nicht polaren organischen Substanzen meist verhältnismäßig schlecht löslich. Viele organische Stoffe sind relativ unpolare Substanzen, die wenig wasserlöslich sind und dazu neigen, sich an unpolaren Substanzen, z.B. den Huminstoffen, anzulagern. Arzneimittelwirkstoffe sollen nach der Anwendung schnell ihre Wirksamkeit entfalten. Diese Substanzen sind, im Gegensatz zur Mehrzahl anderer organischer Stoffe, meist polar und im Wasser vergleichsweise gut löslich.

Dampfdruck

Organische Substanzen mit hohem Dampfdruck halten sich bevorzugt in der Luft auf. Eine Volatilisierung von Arzneimittelwirkstoffen in die Atmosphäre schließt die Verdunstung von der Bodenoberfläche in die Luft und ihre Ausbreitung in der Atmosphäre ein. Dabei findet erst eine Phasenänderung vom flüssigen oder festen Zustand in die Dampfphase statt. Die anschließende Dispersion der Wirkstoffmoleküle in der Atmosphäre ist der gleiche Mechanismus, der den Transfer des Wasserdampfs, des CO₂ und anderer Gase steuert (Mattheß et al. 1997). Die Dampfdrücke der Arzneimittelwirkstoffe variieren über mehr als 20 Zehnerpotenzen, von 1,3*10⁻¹ mm HG für Amantadin bis 8,6*10⁻²⁷ mm HG (Dampfdruckangabe in Pascal) für Clarithromycin. Insgesamt sind die Dampfdrücke niedrig bis sehr niedrig, was niedrige Volatilisierungsraten vermuten lässt. Für die meisten Arzneimittelwirkstoffe kann eine Volatilisierung zumeist ausgeschlossen werden.

Lipophilität

Die Sorptionsfähigkeit einer organischen Verbindung im Untergrund ist abhängig von ihrer Polarität, die bestimmt, wie stark ihre lipophilen (hydrophoben) Eigenschaften ausgeprägt sind. Als Maß wird häufig der n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient K_{OW} (Gl. 1) zur Charakterisierung der Sorptionsfähigkeit angegeben. Der K_{OW} als Maß für das Bioakkumulationsvermögen (ohne Einheit) ist definiert als das Verteilungs-Verhältnis zwischen den Konzentrationen einer Chemikalie im Zweiphasensystem n-Octanol (mol/l) und Wasser (mol/l).

$$K_{OW} = \frac{c_{n\text{-Octanol}}}{c_{\text{Wasser}}}$$

Gl. 1

Für viele Substanzen ist der K_{OW}-Wert tabelliert oder kann experimentell bestimmt werden. Je größer der K_{OW}-Wert, d.h. je lipophiler, umso stärker die Neigung der Substanz, sich an

Sorbenten des Untergrunds anzulagern. Gleichzeitig steigt die Tendenz, sich im Fettgewebe von Organismen anzureichern. Ist der Verteilungskoeffizient einer Substanz zwischen Boden / Wasser nicht vorhanden, kann in Abhängigkeit von ihrer Struktur über entsprechende Gleichungen der k_{ow} zur Berechnung des k_{oc} herangezogen werden.

Säuredissoziationskonstante

Bei der Dissoziation von Elektrolyten können unter Anwendung des Massenwirkungsgesetzes und bei Kenntnis der Säuredissoziationskonstante K_a die Konzentrationen der beteiligten Stoffe errechnet werden. Analog zum pH wird die Dissoziationskonstante K_a einer Säure durch den negativen Potenzexponenten pK_a ausgedrückt. Über die Einordnung von Säure-Base-Systemen in eine protochemische Spannungsreihe kann die Stärke von Säuren und Basen beurteilt werden. Die überaus starken ($pK_a < ca. -3,5$) wie die mittelstarken Säuren ($pK_a ca. 0 \pm 3,5$) stehen im oberen, die schwachen Säuren ($pK_a ca. 7 \pm 3,5$) im unteren Teil der Reihe. Soweit die pK_a -Werte für Arzneimittelwirkstoffe ermittelt werden konnten, gehören die Arzneimittelwirkstoffe überwiegend zu den schwachen Säuren.

2.4.3 Prozesse des reaktiven und nicht-reaktiven (konservativen) Stofftransportes

Das Verhalten im Untergrund wird durch die physikalischen, chemischen und biologischen Prozesse in der belebten Bodenzone und im tieferen Untergrund bestimmt. Dabei wirken der advective bzw. konvektive Transport und die hydrodynamische Dispersion (nicht-reaktiver Stofftransport) mit hydrochemischen, physikalischen und mikrobiologischen Prozessen (reaktiver Stofftransport) zusammen. In der Bodenzone können organische Stoffe in allen drei Phasen (Bodenluft, Wasser, Gesteinsmatrix) vorkommen, im Grundwasserleiter sind die Stoffe entweder im Grundwasser gelöst oder an Feststoffe gebunden. Zu den bedeutenden Prozessen zählen Lösung/Fällung, Wasser-Gesteins-Wechselwirkungen wie Sorption/Desorption, physikalische Prozesse wie Filtration und Gasaustausch sowie abiotischer und biotischer Ab- und Umbau. Diese natürlichen Prozesse führen zu einer Verzögerung der Ausbreitung und auch zur völligen oder teilweisen Eliminierung dieser anthropogen eingetragenen Stoffe.

Advektion und Dispersion

Die Advektion bzw. Konvektion beschreibt den Transport von Stoffen mit dem Wasser in der wasserungesättigten und -gesättigten Zone. Dieser Prozess ist mit einer räumlichen Ausbreitung von Stoffen bei gleichzeitiger Konzentrationsabnahme verbunden, der Folge der hydrodynamischen Dispersion, welche sich aus der molekularen Diffusion und der hydromechanischen Dispersion zusammensetzt. Die molekulare Diffusion beruht auf der BROWNschen Molekularbewegung und ist, verglichen mit der hydromechanischen Dispersion, ein vergleichsweise langsamer Vorgang. Deshalb trägt die Diffusion nur dann merklich zur Stoffverteilung bei, wenn die Fließgeschwindigkeit des Sicker- bzw. Grundwassers sehr klein ist. Das Verhältnis zwischen der hydromechanischen Stoffverteilung gegenüber dem diffusiven Anteil wird durch die dimensionslose Péclet-Zahl Pe (Gl. 2) dargestellt.

$$Pe = \frac{v_a \cdot \bar{d}}{D_{mol}} \quad \begin{array}{l} \bar{d} = \text{Mittlerer Partikeldurchmesser [m]} \\ v_a = \text{Abstandsgeschwindigkeit [m/s]} \\ D_{mol} = \text{Koeffizient der molekularen Diffusion [m}^2\text{/s]} \end{array} \quad \text{Gl. 2}$$

Bei $Pe < 0,4$ übersteigt nach Bear & Verruijt (1992) die molekulare Diffusion die hydromechanische Dispersion. Bei $0,4 \leq Pe \leq 5$ liegen molekulare Diffusion und hydromechanische Dispersion in etwa gleichen Größenordnungen vor. Bei $Pe > 5$ überwiegt die hydromechanische Dispersion die Diffusion, die bei $Pe > 100$ vernachlässigbar klein wird.

Als Maß für die hydrodynamische Dispersion dient der Dispersionskoeffizient D , der aus der Summe von molekularem Diffusionskoeffizient D_{mol} und hydromechanischem Dispersionskoeffizient D_{dis} besteht. Die hydrodynamische Dispersion ist das Produkt von Dispersionslänge/Dispersivität $\alpha(m)$ und Abstandsgeschwindigkeit v_a (Gl. 3). Gleichzeitig wird in die longitudinale (in Fließrichtung) und in die transversale (senkrecht zur Fließrichtung) hydrodynamische Dispersion aufgeteilt. Für den longitudinalen Dispersionskoeffizienten D_L (m^2/s bei $b = 1$) gilt:

$$D_L = \alpha_L \cdot v_a^b \quad \text{mit } 0,9 < b < 1,2 \quad \text{Gl. 3}$$

Die geschwindigkeitsunabhängige Dispersivität α besitzt die Dimension einer Länge (m) und ist abhängig vom betrachteten Maßstab. Mit zunehmender Größe des Untersuchungsvolumens nimmt auch die Dispersivität zu; die Angaben schwanken zwischen 0,1 m und 500 m für Porengrundwasserleiter (Genske 1996).

Der transversale Dispersionskoeffizient D_T beträgt in der Regel in homogenen, porösen Medien 1/10, in geschichteten Grundwasserleitern 1/100 bis 1/1000 des longitudinalen Dispersionskoeffizienten (Mattheß 1994).

Sorption und Desorption

Viele Untergrundmaterialien, wie Tonminerale, Eisen- und Manganoxide und -hydroxide sowie Aluminiumhydroxid und organische Substanzen, vor allem Huminstoffe, können dissoziierte und nicht dissoziierte Stoffe, wie die hier interessierenden Arzneimittelwirkstoffe, auf dem Weg der Uferfiltration aus dem Wasser entfernen. Die dabei wirkenden Bindungskräfte umfassen alle Übergänge zwischen VAN DER WAALSchen Bindungskräften und chemischer Bindung (Stumm & Morgan 1996). Die Sorptionsprozesse werden wesentlich durch den ionischen Charakter, die Basizität, die Polarität und die Molekülgröße der Arzneimittelwirkstoffe gesteuert. Je niedriger die Wasserlöslichkeit (Polarität eines Wirkstoffs), desto höher ist meistens seine Sorptionstendenz und umso kleiner ist die von ihm ausgehende Grundwassergefährdung (Mattheß et al. 1997).

Der pH-Wert spielt für die organischen Verbindungen, die im Untergrund als undissoziierte Moleküle vorliegen, keine maßgebliche Rolle. Anders sieht es für organische Substanzen aus, die im pH-Bereich des Grund- und Sickerwassers (pH 3-8) zu Anionen oder Kationen dissoziieren. Für ihr Verhalten im Untergrund ist der pH-Wert von großer Bedeutung. So kann die Sorptionskapazität einer Matrix bei unterschiedlichen pH-Werten unterschiedlich hoch für anionische oder kationische Substanzen sein.

Die Sorptionsprozesse, die die Mobilität vieler Stoffe im Untergrund steuern, umfassen die Adsorption und Absorption. Unter Adsorption wird die Bindung von gelösten Stoffen an den äußeren und inneren Oberflächen eines festen Körpers verstanden, unter Absorption die Bindung im Innern des festen Körpers. Sorbierte Stoffe können völlig oder teilweise desorbiert, oder auch, im Extremfall, irreversibel festgelegt werden. Sorptionsprozesse werden im allgemeinen bei einer bestimmten Temperatur durch Sorptionsisothermen beschrieben, die die Beziehungen zwischen der Konzentration der an die festen Phasen sorbierten Mengen einer ionischen, polaren oder nicht-polaren Substanz und der Menge dieser Substanz in der Lösung erfassen. Zur Beschreibung dieses Sorptionsverhaltens wird häufig die FREUNDLICH-Isotherme verwendet (Gl. 4):

$$c_{sorb} = K_F \cdot c_{gel}^{1/N} \quad \text{Gl. 4}$$

c_{sorb} = Konzentration der an der Matrix sorbierten Substanz [mg/kg]

c_{gel} = Konzentration der im Wasser gelösten Substanz [mg/l]

$1/N$ = Steigung der logarithmierten Gleichung [-]

Für den Fall eines linearen Zusammenhangs zwischen c_{sorb} und c_{gel} ist $N = 1$. Dann vereinfacht sich das Sorptionsgleichgewicht zur linearen HENRY-Sorptionsisotherme und K_F wird zu K_d (ml/g). Die Sorptionskonstanten K_F und K_d sind Maße für die Bindungsstärke der Moleküle an die Gesteinsmatrix. Sie sind sowohl von der jeweiligen Substanz als auch von der jeweiligen Gesteinsmatrix abhängig. Je größer der K_F - bzw. K_d -Wert eines Stoffes ist, desto mehr Moleküle werden sorbiert und desto weniger Moleküle befinden sich relativ in der Bodenlösung. Beide Isothermen zeigen, dass eine Konzentrationszunahme einer gelösten Komponente die adsorbierte Menge erhöhen wird und umgekehrt eine Konzentrationsabnahme eine Desorption hervorrufen wird. In vielen Fällen weichen die Sorptionsisothermen von den Desorptionsisothermen ab, da viele Sorptionsvorgänge nicht vollständig reversibel sind oder die Sorptions- und Desorptionsraten sich unterscheiden. Diese so genannten Hysterese-Effekte besitzen eine Vielzahl von Ursachen (Ausfällung, Einbau in Boden- und Biomasse) (Mattheß 1994).

Da zwischen dem Sorptionsvermögen und dem organischen Kohlenstoffgehalt von Untergrundmaterialien eine enge Beziehung besteht (Karickhoff et al. 1979) und die FREUNDLICH- und HENRY-Sorptionsisothermen matrix- und substanzabhängig sind, werden diese Isothermen zur matrixunabhängigen Vergleichbarkeit verschiedener Substanzen auf den jeweiligen organischen Kohlenstoffgehalt (C_{org}) der untersuchten Matrix [g/g] bezogen (Gl. 5).

$$K_{OC} = \frac{K_F}{C_{org}} \quad \text{Gl. 5}$$

Der K_{OC} -Wert [ml/g] einer Substanz hat bei verschiedenen Untergrundmaterialien eine deutlich geringere Schwankungsbreite als der K_F -Wert. Er stellt für neutrale, d.h. nicht dissoziierende organische Substanzen ein praktikables Maß für die Beschreibung des Löslichkeits- bzw. Sorptionsverhaltens im Untergrund dar (Lewandowski et al. 1997).

Die unpolaren organischen Verbindungen werden in natürlichen Grundwasserleitermaterialien zu über 85% an der Partikelfraktion < 125 μm sorbiert, die damit als repräsentativ für die sorpti-

ven Eigenschaften der Erdstoffe angesehen werden kann (Mattheß et al. 1997). Bei Sorbenten mit weniger als 0,1% organischem Kohlenstoffanteil ($C_{org} < 0,001$ g/g) wird die relativ kleine Sorptionswirkung durch die spezifische Oberfläche der Mineralstoffe und deren Natur bestimmt (Schwarzenbach & Giger 1985). Durch die heterogene Zusammensetzung der natürlichen organischen Sorbenten variiert das Sorptionsvermögen gegenüber organischen Stoffen in den verschiedenen Böden selbst bei gleichem C_{org} -Gehalt z.T. erheblich.

Der Transport organischer Stoffe wird durch die Sorptionsvorgänge gegenüber dem Wasserfluss verzögert. Diese Verzögerung wird durch den dimensionslosen Retardationskoeffizienten R_d erfasst und als Quotient aus mittlerer Abstandsgeschwindigkeit v_a des Wassers [m/s] und mittlerer Transportgeschwindigkeit der jeweiligen Substanz [m/s] errechnet (Gl. 6). Bei bekanntem Verteilungskoeffizienten K_d oder K_F kann unter Annahme eines konstanten Flusses in einem homogenen porösen Medium und bei Gleichgewichtsbedingungen für die Sorptionsvorgänge folgende Gleichung zur Bestimmung von R_d angewendet werden:

$$R_d = \frac{v_{a,Grundwasser}}{v_{a,Substanz}} = 1 + \frac{(1-n)}{n} \rho_s \cdot K_d \quad \text{Gl. 6}$$

n = Porosität
 ρ_s = Rohdichte der Feststoffphase [g/ml]
 K_d = HENRY-Isotherme [ml/g]

Bei R_d -Werten gleich 1 wird der betrachtete Stoff mit der mittleren Abstandsgeschwindigkeit des Wassers transportiert; bei höheren Werten erfolgt eine Verzögerung. Bei allen K_d -Werten größer 0 wird die Substanz gegenüber dem Wasserfluss retardiert. Für zahlreiche Pflanzenschutzmittel, die sich ähnlich wie die Pharmazeutika verhalten werden, und für ein Spektrum der wichtigsten Porengrundwasserleiter in Mitteleuropa wurden die K_d - und R_d -Werte im Labor und Feld gemessen. Danach bewegen sich die Retardationsfaktoren zahlreicher Pflanzenschutzmittel zwischen 0,4 und 10 (Mattheß et al. 1997).

Die Geschwindigkeit von Sorptions-Desorptions-Vorgängen hängt von der molekularen Diffusionsrate des zu adsorbierenden Stoffes in den Sorbenten und von der Adsorptionsrate an der Oberfläche des Sorbenten ab. Die Einstellung des Sorptionsgleichgewichtes bei Böden oder Sedimenten mit höheren Gehalten an organischen Substanzen (Huminstoffen) findet in der Größenordnung von Tagen bis Monaten statt. Bei Fließgeschwindigkeiten $< ca. 1$ m/d kann trotz der langsamen Sorptionskinetik die Einstellung der Gleichgewichte angenommen werden, so dass der Retardationsfaktor einer gegebenen unpolaren organischen Substanz in einem gegebenen Grundwasserleiter abgeschätzt werden kann. Bei höheren Fließgeschwindigkeiten (> 1 m/d) können jedoch diese Verbindungen erheblich schneller transportiert werden, als aufgrund von Gleichgewichtsansätzen vorauszusagen wäre (Schwarzenbach & Giger 1985).

Komplexbildung

Viele organische Substanzen können mit dem natürlich gelösten organisch gebundenen Kohlenstoff (DOC) in Wechselbeziehung treten und Assoziate oder Komplexe bilden, deren physikalische und chemische Eigenschaften sich von denen der Ausgangssubstanzen unterscheiden.

den. Diese Wechselbeziehungen werden in den Oberböden durch längere Kontaktzeiten und die Anwesenheit natürlicher organischer Substanzen mit ihren hydrophoben und hydrophilen Eigenschaften begünstigt. Im Grundwasserleiter kann natürlich gelöster organischer Kohlenstoff eine beträchtliche Mobilität aufweisen. Bei entsprechenden Voraussetzungen werden die an den organischen Kohlenstoff sorbierten Verbindungen wesentlich weiter transportiert als eigentlich zu erwarten ist. Der DOC des Sickerwassers variiert im Oberboden zwischen etwa 5 und 20 mg/l und nimmt zur Tiefe hin ab, wo das Grundwasser meist durch DOC-Werte zwischen ca. 0,5 und 3 mg/l charakterisiert wird (Mattheß 1994).

Kolloid-Transport

Organische Substanzen können auch an suspendierte, meist negativ geladene Kolloidteilchen gebunden werden. Kolloide haben Durchmesser von 1 bis 1000 nm. Typische, im Zusammenhang mit dem Transport interessante Kolloide sind Tonminerale, Bakterien, Viren und organisches Material (Genske 1996). Durch die Abstoßung der negativ geladenen Kolloidteilchen durch die ebenfalls negativ geladenen Mineralkörner kommt es zu einem bevorzugten Transport der Kolloidteilchen in Makroporen, so dass diese im Mittel schneller als das Grundwasser transportiert werden. In gleicher Weise kann die Mobilität hydrophober organischer Verbindungen durch Sorption an bevorzugt transportierte organische Makromoleküle erhöht werden. Allerdings können durch physikalische und chemische Filtrationsprozesse diese Partikel auch wieder aus dem Wasser entfernt werden (Mattheß et al. 1997).

Kolloide können bei Kontakt mit Mineralkörnern durch Massen- und elektrische Kräfte gebunden werden. In Laborversuchen zur Kolloidstabilität zeigten Eisen- und Manganoxide im neutralen und sauren pH-Bereich eine positive Oberflächenladung. Dem steht eine negative Oberflächenladung von Silikaten und Huminsäuren im gleichen pH-Bereich gegenüber. Da Huminsäuren positive Oberflächenladungen abschatten können, treten unter den chemischen Bedingungen des unterirdischen Wassers meist negative Netto-Oberflächenladungen auf.

Das Adsorptionsverhalten nimmt wie bei Anionen mit zunehmendem Elektrolytgehalt und abnehmendem pH des Wassers zu. Bei abnehmenden Korngrößen, d.h. bei zunehmender spezifischer Oberfläche, und bei zunehmenden Gehalten an organischer Substanz, nimmt auch die Partikeladsorption zu. Diese Filterprozesse können makroskopisch (Gl. 7) mit dem Filterfaktor λ_f [m^{-1}] des porösen Mediums und der Abnahme der Anfangskonzentration einer Suspension c_0 [mol/l] entlang einer Fließstrecke s (m) auf die beobachtete Konzentration c_s [mol/l] beschrieben werden:

$$\ln(c_s / c_0) = -\lambda_f \cdot s \qquad \text{Gl. 7}$$

Demnach hängt der Filterfaktor von den chemischen und physiko-chemischen Eigenschaften des Grundwassers und des Filtermediums ab. Der Partikeltransport ist insbesondere von drei dominierenden Faktoren abhängig: dem wirksamen Korndurchmesser des Filterkörpers, der Partikelgröße und der Fließgeschwindigkeit. Hydraulische Mobilisierungsversuche ergaben bei einer hohen Empfindlichkeit gegenüber der Veränderung der Fließgeschwindigkeit eine Poren-

größen-limitierte Erhöhung der maximal ausgetragenen Partikelgrößen. Die Konzentration von anorganischen Partikeln liegt im Bereich der Uferfiltration bei 10 µg/l, bei der Langsandsandfiltration bei 1 µg/l. Damit ist der Anteil von an diesen anorganischen Partikeln gebundenen organischen Substanzen eher gering, wohingegen die makromolekularen organischen Substanzen für den Stofftransport durchaus eine Bedeutung besitzen.

Neben organischen Substanzen bilden biologische Komponenten eine weitere wichtige Gruppe von Partikeln. Dazu gehören Mikroorganismen, wie Bakterien und Protozoen sowie Sporen und Viren. Mattheß & Pekdeger (1985) untersuchten den Einfluss und den Transport von Bakterien und Viren im Grundwasserleiter. Häufig bildet sich bei der Uferfiltration, bei der Abwasserver-senkung oder der Verrieselung von Abwasser eine sehr wirksame Filterschicht, besonders an der Wasser/Feststoff-Grenze, die als Biofilm mit mikrobiellen Schleimen und amorphen anorga-nischen Ausscheidungen charakterisiert werden kann.

Abiotischer und biotischer Abbau

Organische Stoffe unterliegen im Boden und im tieferen Untergrund abiotischen und biotischen Prozessen, wie z. B. chemischen Reaktionen wie Hydrolyse und Oxidation. Diese führen zu un-terschiedlichen Ab- und Umbauprodukten und schließlich zur vollständigen Zersetzung zu Koh-lendioxid, Wasser oder weiteren anorganischen N- und S-Verbindungen. In Oberflächengewäs-ern, in den obersten Zentimetern des Bodens und in Grundwasserblänken kann ein Teil dieser Vorgänge durch Photolyse unterstützt werden (Mattheß et al. 1997), allerdings ist die Photolyse bei der Uferfiltration zu vernachlässigen. Der Abbau im Untergrund wird häufig durch Exponen-tialgleichungen beschrieben (Gl. 8):

$$c = c_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{DT_{50}}$$

c	= Konzentration [mg/l]
c ₀	= Ausgangskonzentration [mg/l]
λ	= Abbaukonstante [1/s]
t	= Zeit [s]
DT ₅₀	= disappearance time für 50% des Arzneimittelwirkstoffes, hier nä-herungsweise als Halbwertszeit des Wirkstoffes [d] eingesetzt

Gl. 8

Bei bekannter Halbwertszeit und Ordnung der Reaktion lässt sich über c/c₀ die Abbaukonstante λ bestimmen. Biologischer Abbau lässt sich über eine „biologische Halbwertszeit“ idealisieren. Freilich handelt es sich hier nur um eine erste Näherung (Genske 1996).

Der wichtigste abiotische (rein chemische) Abbauweg ist für zahlreiche organische Stoffe die saure oder basische Hydrolyse. Die hydrolytische Zersetzung organischer Stoffe wird durch Sorption an Ton- und Primärmineralen sowie an Metalloxiden meist erhöht, wohingegen die Ad-sorption an organischer Substanz (z.B. Huminstoffe) den Abbau einzelner Stoffe hemmen kann (Mattheß 1994). Über die Säuredissoziationskonstante pK_a kann eine grobe Vorhersage über das Ausmaß der Hydrolyse bei gegebenem pH-Wert vorgenommen werden.

Der Abbau von organischen Substanzen durch Redoxprozesse ist im allgemeinen mikrobiell ka-talysiert, wobei vor allem in nährstoffreichen Teilen der wasserungesättigten, und auch der ge-

sättigten Zone, organische Stoffe mikrobiellem Abbau in wesentlich stärkerem Maß unterliegen als rein chemischer Umwandlung. Die hieran beteiligte Mikroflora umfasst Bakterien, Aktinomyzeten, Pilze und - im Boden - Algen mit je nach den Umweltbedingungen (z.B. Nährstoff- und Sauerstoffangebot und Temperatur) unterschiedlicher Artenzusammensetzung. Die organische Substanz dient als Quelle für Energie, Kohlenstoff, Wasserstoff und unter Umständen für Stickstoff und Schwefel. Die mikrobielle Besiedlungsdichte des Untergrunds nimmt vom mikrobiell sehr aktiven Oberboden zur Tiefe hin ab, doch sind selbst in tieferen Bereichen der Grundwasservorkommen z.T. beträchtliche Keimzahlen in einer Größenordnung von 10^4 bis 10^5 /ml zu beobachten (Mattheß 1994).

In den seltensten Fällen führt mikrobieller Abbau direkt zur vollständigen Mineralisierung der organischen Substanzen, z.B. zu CO_2 , H_2O und teilweise NH_3 oder Chlorid. Eines der wenigen Beispiele für einen derart vollständigen Abbau von Arzneimittelwirkstoffen ist das Analgetikum Acetylsalicylsäure, welches über verschiedene Stufen zu Kohlendioxid und Wasser abgebaut wird (Richardson & Bowron 1985). Meist wandeln stattdessen die Mikroorganismen einen Teil der organischen Substanzen in Metabolite um, die in der Regel weniger (Inaktivierung, Entgiftung), manchmal jedoch auch stärker toxisch wirken als die Ausgangssubstanzen. Die mikrobiellen Umsetzungen können durch verschiedene anorganische und organische Substanzen gestört werden, die den Stoffwechsel hemmen oder die Mikroorganismen abtöten.

In der wassergesättigten Zone treten zumeist anaerobe Bedingungen auf. Hier werden vorwiegend Substanzen mit hohen Hydrolysekonstanten, sowie sauerstoffhaltige Stoffe, wie Alkohole, Ether und Ester abgebaut. Unter anaeroben Bedingungen können Mikroorganismen oxidierte Spezies oder sauerstoffhaltige Verbindungen, vorwiegend Nitrate und Sulfate, reduzieren, um Energie oder Sauerstoff zu gewinnen. Hydrophile Verbindungen werden im Allgemeinen schneller abgebaut als hydrophobe. Dabei zählen große Moleküle und chlorierte Verbindungen generell zu den schwer abbaubaren Stoffen.

2.4.4 Richtlinien zur Bestimmung von Sorptions- und Abbauparametern

Für die mathematische Simulation von Arzneimittelwirkstoffkonzentration im Grundwasser im Falle der Uferfiltration sind neben den hydraulischen Parametern, Angaben zur Sorption und zum Abbau der Wirkstoffe notwendig. In der Vergangenheit wurden bei der Neuzulassung von Humanpharmaka kaum Daten zur Umweltverträglichkeit der Wirkstoffe erhoben. Erst seit 2006 wird im Rahmen des europäischen Zulassungsverfahrens eine Umweltgefährdungsabschätzung verlangt, welche der EMEA *Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use* zu folgen hat. Für die bereits zugelassenen Arzneimittel müssen derartige Umweltuntersuchungen nur in bestimmten Fällen, z. B. bei neuen Indikationen, durchgeführt werden. Dazu gehören in der Phase II der EMEA-Guideline die Ermittlung des K_{OC^-} , K_F^- , und DT_{50} -Werte für das System Sediment/Wasser.

Es existieren verschiedene Methoden und Richtlinien zur Bestimmung von Adsorptions- und Abbauparametern für Arzneimittelwirkstoffe. In der EMEA-Richtlinie werden die Vorgaben der

OECD (Organization for Economic Cooperation and Development), der Europäischen Kommission (EC) oder der ISO (International Organization for Standardization) empfohlen.

Für die Berücksichtigung des Abbaus ist der DT_{50} -Wert von Bedeutung. DT_{50} steht für *Disappearance Time 50* und bezeichnet die Zeit in der die Ausgangskonzentration einer Substanz um 50 % abgenommen hat. Die Bestimmung der DT_{50} -Zeit wird in der OECD-Richtlinie 308 *Aerobic and Anaerobic Transformation in Aquatic Sediment Systems* vom April 2002 beschrieben. Es gibt weitere Abstufungen wie DT_{75} oder DT_{90} für Untersuchungen, in denen die Ausgangskonzentration um 75 % bzw. 90 % reduziert ist. In der OECD-Richtlinie 308 wird die Durchführung von Abbauprobungen in künstlichen Wasser/Sedimentsystemen sowohl unter aeroben als auch unter anaeroben Bedingungen beschrieben. Folgende Informationen können mit dem Verfahren der OECD-Richtlinie 308 gewonnen werden.

- Bestimmung der Abbaurate der Versuchssubstanz in einem Wasser-Sediment-System;
- Bestimmung der Abbaurate der Versuchssubstanz im Sediment;
- Bestimmung des vollständigen Abbaus der Versuchssubstanz und/oder der Abbauprodukte (bei Verwendung einer ^{14}C -markierten Testsubstanz);
- Bestimmung und Quantifizierung der Abbauprodukte im Wasser und im Sediment (bei Verwendung einer ^{14}C -markierten Testsubstanz) inklusive Massenbilanzierung;
- Bestimmung der Verteilung der Testsubstanz und der Abbauprodukte zwischen der festen und flüssigen Phase nach einer Inkubationszeit (um z.B. eine Algenblüte zu verhindern) bei konstanter Temperatur

Aus den Untersuchungen können DT_{50} -, DT_{75} - und DT_{90} -Werte abgeleitet werden (OECD 2002). In der OECD-Richtlinie 106 *Adsorption/Desorption Using a Batch Equilibrium Method* (2000) sind Adsorptions- und Desorptionsversuche zur Ermittlung der Sorptionskoeffizienten K_d bzw. K_F von chemischen Substanzen beschrieben, die zur Abschätzung der Mobilität chemischer Verbindungen im Untergrund herangezogen werden können. Bei den in dieser Richtlinie beschriebenen Batch-Versuchen wird die Sedimentprobe mit einer wässrigen Lösung des Wirkstoffs versetzt und für eine definierte Zeit geschüttelt. So kann über die Zeit verfolgt werden, welcher Anteil des Arzneimittelwirkstoffes im Wasser gelöst und welcher Anteil an den Bodenpartikeln adsorbiert wird

Folgende weitere OECD-Richtlinien existieren für zusätzliche Untersuchungen zum Abbaubehalten von Arzneimittelwirkstoffen:

- Guideline 302 A, B, C: Inherent Biodegradability, (*Richtlinie 302 A, B, C: Bestimmung möglicher (potentieller) Abbaubarkeit*), 1981, 1992;
- Guideline 301 A-F: Ready Biodegradability, (*Richtlinie 301 A-F: Bestimmung leichter Abbaubarkeit*) 1992.

Neben den genannten OECD-Richtlinien existieren ISO-Normen, die sich mit der Ermittlung der Abbaubarkeit unter aeroben und anaeroben Bedingungen beschäftigen (z.B. ISO 9888, ISO 7827, ISO 14593). Die Bestimmung des DT_{50} -Wertes ist stark von den Versuchsbedin-

gungen und physiko-chemischen Parametern (z. B. Redoxpotential, pH-Wert) abhängig. Die Übertragung der Daten zur Sorption und zum Abbau, die mit Hilfe der oben beschriebenen OECD-Richtlinien gewonnen werden, auf den Prozess der Uferfiltration und die dabei auftretenden Prozesse, stellt eine Näherung dar. Die dem UBA zur Verfügung stehenden Daten zum Abbau und zur Adsorption basieren auf den oben genannten OECD- Richtlinien.

Literaturangaben zu DT₅₀- und K_d-Werten von Arzneimittelwirkstoffen im System Grundwasserleiter (Sediment/Wasser-System) existieren kaum. Des Weiteren schwanken die Angaben zu Halbwertszeiten in der Literatur zum Teil erheblich. In vielen Fällen liegen DT₅₀-Werte für die Bestimmung im Oberflächenwasser vor. Diese sind für das System „Grundwasserleiter“ jedoch nur sehr eingeschränkt nutzbar, da im Oberflächenwasser der photochemische Abbau eine Rolle spielen kann, im Grundwasser jedoch nicht.

2.5 Notwendige Modelle zur Prozessbeschreibung

Die Mathematische Simulation des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration - basierend auf Angaben zum Vorkommen von Arzneimittelwirkstoffen im Grund- und Oberflächengewässer - erfolgt aus hydrogeologischer Sicht in drei Modell - Schritten.

1. Hydrogeologische Strukturmodelle (HSM)

Hydrogeologische Strukturmodelle ermöglichen eine modellhafte Darstellung der hydrogeologischen und geometrischen Parameter und Randbedingungen für die Spannweite der in Deutschland auftretenden Standorte mit Uferfiltration (s. Tab. 1).

2. Numerische Grundwasserströmungsmodelle

Der Aufbau von numerischen Grundwasserströmungsmodellen erfolgt basierend auf den unter Punkt 1. definierten hydrogeologischen Strukturmodellen. Damit wird die Simulation der Grundwasserströmung zur Ermittlung der Verweilzeiten durchgeführt.

3. Numerische Grundwassertransportmodelle

Die numerische Simulation des Stofftransportes für Arzneimittelwirkstoffe erfolgt für die unter Punkt 2. gerechneten Szenarien der Grundwasserströmung.

3 Recherche und Auswahl mathematischer Modelle zur Prozessbeschreibung

3.1 Vorgehensweise und Auswahlkriterien

Der Prozess der Trinkwassergewinnung durch Uferfiltration umfasst die Bewegung von Wasserteilchen und ihren Inhaltsstoffen aus den Oberflächengewässern über eine Grundwasserpassage zu einem Entnahmebrunnen. Der Bereich am Boden des Oberflächengewässers der für die Uferfiltratpassage zur Verfügung steht, wird im Wesentlichen durch Sedimentations- und Strömungsprozesse definiert. Bei langsam fließenden Gewässern und Seen werden die tieferen Bereiche durch Mudden bedeckt, die einen Austausch zum Grundwasser weitestgehend verhindern. Nur in den durch Wellen bewegten Flachwasserbereichen wird die Mudeablagerung verhindert und ein Austausch und somit auch Uferfiltration im engeren Sinne können stattfinden. Die so definierten Flächen sind zudem noch abhängig vom jeweiligen Wasserstand.

In schnell fließenden Gewässern tritt der Aspekt der Mudeverbreitung in den Hintergrund, da Kolmationsbereiche durch strömungsabhängige Sedimentation definiert und laufend verändert werden. Diese Dynamik ist abhängig vom Wasserstand und der Strömungsgeschwindigkeit. Zur modellhaften Darstellung eines Stoffeintrages allgemein (und hier speziell von Humanarzneimittelwirkstoffen) in das Grundwasser ist somit der wasserbedeckte und wasserdurchlässige Bereich am Gewässerboden von Bedeutung. Da dieser Bereich gleichzeitig die Grenzschicht zwischen Oberflächenwasser und Grundwasser darstellt, werden zur Darstellung des Fließpfades von Wasserteilchen von dieser Grenzschicht zum Entnahmebrunnen im Grundwasser Grundwasserströmungsmodelle genutzt. Sind diese Bereiche durch Wasserspiegelschwankungen im Fließgewässer stark variabel, kann die Dynamik zusätzlich mit Flusseinzugsgebiets- bzw. Oberflächenwassermodellen abgebildet werden. Mit diesen Modellen wird die Simulation von (zeitabhängigen) Wasserspiegelschwankungen im Fließgewässer und daraus resultierender veränderter Uferfiltrat wirksamer Bereiche möglich.

Die Simulation des Stofftransportes erfolgt dann durch die Kopplung von Stofftransportmodellen mit den Grundwassermodellen, da von einer Bewegung der Stoffe mit den Wasserteilchen in Lösung ausgegangen wird. Diese Modelle berücksichtigen die im Strömungsfeld ablaufenden physikalischen, chemischen und biochemischen Prozesse.

Somit befasste sich die Modellrecherche mit der Fragestellung, welche Modelle generell für die Simulation der Strömung bzw. den Stofftransport im Grundwasser (gesättigter Bereich) oder im besten Fall für beides geeignet sind. Zur möglichst realitätsnahen Abbildung der Uferfiltrationsprozesse ist eine zeitabhängige (instationäre) 3D-Betrachtung von Vorteil. Die Kopplung eines Oberflächenwassermodells mit dem Grundwassermodell wird ebenfalls in Betracht gezogen. Die Vielzahl der existierenden Modelle macht es erforderlich, die folgende Bewertung vornehmlich aufgrund der Programmdokumentationen oder dokumentierter Anwendungen in der Literatur durchzuführen. Daher wurde nicht nur eine ausschließliche Programmrecherche sondern auch gleichzeitig eine Suche nach Literatur mit Bezug zu Modellanwendungen mit den Fragestellungen „Stofftransport im Grundwasser“ und „Uferfiltration“ durchgeführt. Nur wenige Mo-

dellensysteme wurden bereits im Verlauf früherer Arbeiten selbst getestet. Dazu zählen die Programmgruppe „MODFLOW/MT3D“ (s. Kapitel 3.2.3) unter der Benutzeroberfläche „VISUAL MODFLOW“ (s. Kapitel 3.2.4) und das Softwarepaket „FEFLOW“ (s. Kapitel 3.2.4) mit denen jeweils die geforderten Strömungs- und Transportprozesse der Uferfiltration dargestellt werden können. Sie entsprechen höchsten Standards und werden laufend weiterentwickelt. FEFLOW ist u. a. speziell den Gegebenheiten der Lockergesteine Berlin/Brandenburgs angepasst, da die Software in der Region für Forschungszwecke entwickelt wurde. Referenzen für einen weltweiten Einsatz liegen ebenfalls vor. MODFLOW/MT3D ist ein vom US-amerikanischen Geologischen Dienst (USGS) entwickelter Programmcode der weltweit mit verschiedenen Benutzeroberflächen erfolgreich angewandt wird. Durch die freie Verfügbarkeit und einfache Handhabung sind diese Modelle die meistgenutzten und am häufigsten zitierten Anwendungen im Bereich der Modellierungen. Mit den Leistungen dieser beiden Programmpakete „VISUAL MODFLOW“ und „FEFLOW“ werden die zusätzlich recherchierten Modelle verglichen und nur bei deren deutlichen Vorteilen in die engere Wahl einbezogen.

3.2 Ergebnisse der Modellrecherche

In den Kapiteln 3.2.1 bis 3.2.4 werden alle recherchierten Programme detailliert beschrieben und in Hinsicht auf den Leistungsumfang klassifiziert. Es folgt eine ausführliche Bewertung der Programme und eine Einstufung hinsichtlich einer Eignung für das Projekt.

3.2.1 Modelle zur analytischen Lösung der Strömungs- und Transportprozesse

Programm: GFLOW (kommerzielles Programm, s. Abb. 8)

Simulation: Grundwasserströmung - Methode: analytisch - Dimension: 3D

Beschreibung:

GFLOW ist ein auf der „analytic element Methode“ basierendes Grundwasserströmungsmodell. Es löst Strömungsprobleme in heterogenen Grund unter Nutzung der Dupuit-Forchheimer-Annahme. Zudem wird eine lokale instationäre 3D-Strömungssimulation und unter Einschränkungen horizontale Strömung auf regionaler Ebene unterstützt. Zur weiteren Betrachtung ermöglicht GFLOW einen Daten-Export zu MODFLOW, wobei Eigenschaften des Grundwasserleiters und die Randbedingungen von GFLOW übernommen werden. Außerdem ist die Kopplung der Simulation von Oberflächenwasser und Grundwasser möglich.

Bewertung/Eignung:

Analytische Methoden bieten eine schnelle und einfache Lösung für einfache Strömungsprobleme. Somit wäre dieses Programm gut geeignet für eine erste Abschätzung der Ergebnisse komplexer Strömungs(Transport)probleme. Allerdings lässt die auf der genannten Web-Seite (GFLOW, s. Kapitel 9) aufgeführte Software hinsichtlich der Anforderungen an das Betriebssystem (Win 95/98/2000/NT), keine Angaben zur Aktualität bzw. Weiterentwicklung ab dem Stand Win2000/NT erkennen.

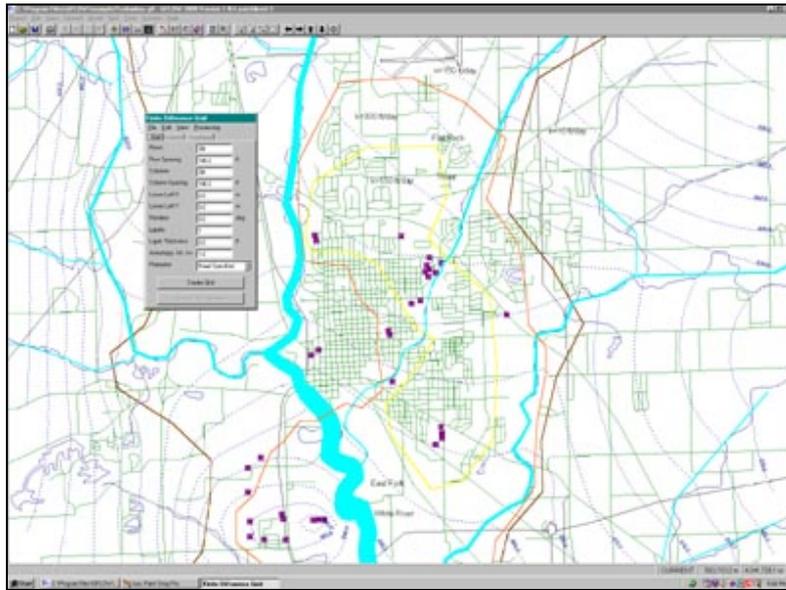


Abb. 8: Bildschirm-Plot GFLOW. Die Stärke der blauen Linien des Gewässernetzes ist proportional zur Abflussrate. Die Finite Differenz Gitterdialogbox ist für das Aufstellen eines MODFLOW-Modells, das alle Eigenschaften eines analytischen Modells enthält

Programm: SOLUTRANS

Simulation: Transportmodellierung - Methode: analytisch - Dimension: 3D

Beschreibung:

3-D-Transportmodell unter Anwendung der analytischen Methode zur Lösung von Gleichgewichts- und Ungleichgewichtsproblemen.

Bewertung/Eignung:

Das Programm ist nur bedingt geeignet, bisher ist kein Nutzungsbezug bekannt.

3.2.2 Modelle zur numerischen Lösungen der Grundwasserströmung

Bei diesen Programmen handelt es sich um Strömungs- bzw. Oberflächenwassermodellierungen mit Kopplung zum Grundwasser (numerische Lösung).

Programm: KOMPMOD

Simulation: Grundwasserströmung

Methode: Finite-Elemente, Dimension: quasi 3D

Beschreibung:

Das Modell ist ein einfaches quasi-dreidimensionales Modell zur Simulation der Wasserströmung in der ungesättigten und gesättigten Zone. Als Baustein dienen zwei Modelle: Ein vertikales Bodenwassermodell und ein zweidimensionales Finite-Elemente-Modell. Mit Hilfe des Modells kann eine teilgebietspezifische Grundwasserneubildung für verschiedene Zeiträume (z. B. 10 Tage, ein Monat) erfasst werden. Außerdem wird der Grundwasserstand simuliert. Das Modell ist insbesondere für Gebiete mit geringem Grundwasserflurabstand geeignet. Die Eingabedaten sind: Klima- und Vegetationsdaten (täglich) und Grundwasserdaten (10-tägig oder länger). Das Modell kann als Baustein in der quantitativ wasserwirtschaftlichen Planung eingesetzt werden.

Bewertung/Eignung:

Es liegt eine Programmdokumentation mit dem Stand Juni 1994 vor, wobei nicht bekannt ist, ob dieses Modell weiterentwickelt wurde. Zudem ist das Modell nur zur Berechnung von stationären 2D-Problemen konzipiert. Für die Nutzung im Projekt ist dieses Programm daher ungeeignet.

Programm: MIKE SHE (kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung in Kopplung mit Oberflächengewässern, Stofftransport

Methode: Finite Differenzen, Dimension: 3D

Beschreibung:

MIKE SHE ist ein Modellpaket der „DHI Group“ zur Simulation der „Landphase des Wasserkreislaufes“. Die Simulation der Oberflächengewässer erfolgt mit MIKE 11, eine Kopplung beider Programme ist möglich. MIKE SHE berechnet 3D-Grundwasserströmungen (instationär) unter Verwendung der Finite-Differenzen-Methode (ähnlich MODFLOW). Zusätzliche Stofftransportmodule („solute transport“) stehen zur Verfügung.

Der Stofftransport kann über verschiedene hydrologische Prozessgrenzen simuliert werden, z. B. der Pfad Fließgewässerinfiltration in die ungesättigte Zone - Grundwasser - Brunnen. Dieser Prozesspfad ist für die Betrachtung der Uferfiltrationsprozesse von Bedeutung.

Die einzelnen Module zur Stofftransportsimulation sind im Folgenden aufgelistet:

- Particle Tracking: erweitertes instationäres Program zur Beschreibung des Stofftransports, basierend auf der Random-Walk-Methode (SZ only);
- Advektion/Dispersion - Basis Advektion/Dispersion „solute transport“ Modul;
- Sorption/Degradation - equilibrium/non-equilibrium adsorption and first-order degradation;
- Biodegradation - advanced biological degradation;
- Macro Pore Flow - a dual porosity tool for both the saturated and unsaturated zones.

Bewertung/Eignung:

Laut Programmbeschreibung ist das Paket für die Beschreibung der Uferfiltratprozesse geeignet. Allerdings wurde auf der letzten FEFLOW-Nutzerkonferenz die erfolgreiche Kopplung von FEFLOW und MIKE 11 vorgestellt. Die Vorteile der jeweiligen Programmsysteme wurden damit kombiniert, demnach ist FEFLOW der bessere Simulator für die Grundwasserströmungs- und Transportprozesse und arbeitet nun mit dem Modul MIKE 11 zur Berechnung der Flusseinzugsgebiete zusammen. Da bei HYDOR bereits Erfahrungen mit dem Programm FEFLOW vorliegen, wird auch die Nutzung der o. g. Kopplung (FEFLOW/MIKE 11) bevorzugt.

Programm: RIBASIM Vers. 6.3 (kommerzielles Programm)

Simulation: Kopplung der Simulation von Oberflächengewässern mit Grundwasserbilanzen

Methode: unbekannt - Dimension: unbekannt

Beschreibung:

RIBASIM ist ein Modellpaket von „Delft Hydraulics“ und wurde zur (instationären) Simulation von Flusseinzugsgebieten (Oberflächengewässer) entwickelt. Es kann zusätzlich die Kopplung von Oberflächengewässern mit den jeweiligen Grundwasserbilanzen simulieren. Dabei stehen unterschiedliche Verfahren zur Realisierung dieser Prozesse zur Verfügung.

Bewertung/Eignung:

Die Nutzung dieses Programms, mit der Fähigkeit zur Kopplung von Fließprozessen im Oberflächenwasser mit denen im Grundwasser, wird in Betracht gezogen, wenn die Prozessbeschreibung zum Thema „Uferfiltration“ nicht ausreichend mit einem Grundwasserströmungsmodell beschrieben werden kann.

Programm: SVFlux 2D/3D (kommerzielles Programm, s. Abb.9)

Simulation: Grundwasserströmung - Methode: Finite-Elemente - Dimension: 3D

Beschreibung:

SVFlux ist laut eigener Internetseite (SVFlux, s. Kapitel 9) momentan auf dem Markt, die leistungsstärkste und stabilste Grundwassermodellierungssoftware auf Basis der Finite-Elemente-Methode. Mit der Software können 2D- und 3D-Probleme stationär/instationär gelöst werden, wobei der Ablauf weitestgehend automatisiert ist. Durch Automatisierung und CAD-Nutzung soll (gegenüber anderen Simulatoren) ein Zeitersparnis bei der Modellierung von bis zu 70% möglich sein. SVFlux beinhaltet eine Bodendatenbank mit Labordaten von über 6000 Bodenarten. Einige Programmspezifikationen sind:

- Simulation der Strömung im gesättigten und ungesättigten Bereich;
- Vollautomatische Netzgenerierung und Netzverfeinerung für komplexe Modellierungen;
- Visualisierung der Ergebnisse durch die Ausgabe von Grundwasser(Druck)gleichen, Stromlinien und Schnittflächen.

Bewertung/Eignung:

Die Leistungsbeschreibung des Grundwasserströmungsmodells ist in Hinsicht auf eine schnelle Problemlösung überzeugend. So ist das Programm für die Betrachtung des Teilaspektes „Grundwasserströmung“ durchaus geeignet. Allerdings sollte für das Projekt ein zusätzlicher Weg gefunden werden, um den Stofftransport auf der Basis der vorhandenen Ergebnisse von SVFlux modellieren zu lassen. Diese Kopplung ist vom Programm nicht vorgesehen. Damit ist diese Anwendung für die geplante Prozessbeschreibung „Uferfiltration“ nur bedingt geeignet.

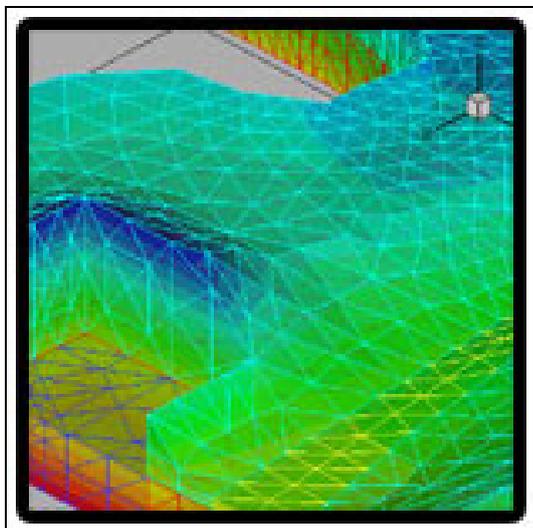


Abb. 9: Bildschirm-Plot SVFlux.

3.2.3 Modelle zur numerischen Lösung des Stofftransportes

In diesem Kapitel geht es um die Programme zur Transportmodellierung bzw. zur Modellierung geochemischer Reaktionen im Grundwasser.

Programm: PHREEQC (PARKHURST 1995) 60

Simulation: geochemische Reaktionen

Methode: keine Angaben

Dimension: 1D

Beschreibung:

PHREEQC (PARKHURST 1995) 60 ist die aktuelle Version der PHREEQ-Serie mit den umfassendsten Anwendungsmöglichkeiten. Das Programm ermöglicht auf der Basis eines thermodynamischen Gleichgewichtsmodells eine Vielzahl geochemischer Berechnungen, u. a. die Berechnung von Speziationen und Löslichkeiten, von Reaktionsverläufen und Transport unter Berücksichtigung irreversibler Reaktionen, Mischung von Lösungen, Mineral- Gasphasengleichgewichten, Oberflächenkomplexbildung, Ionenaustausch und Redoxreaktionen. Die inverse Modellierung zur Identifikation geochemischer Reaktionen unter Berücksichtigung der Massen- und Ladungsbilanz ist ebenfalls möglich. Das Programm fasst die Anwendungsmöglichkeiten der Programme PHREEQE und WATEQ4F sowie NETPATH, einem weiteren Programm zur Berechnung geochemischer Reaktionen, zusammen.

Des Weiteren existieren einige Simulationsprogramme, die PHREEQE bzw. PHREEQC mit Stofftransportmodellen koppeln, z. B. PHREAQUIFER (Uni Clausthal, s. HESSER 2002), Co-TAM (HAMER u. SIEGER 1994), COTREM (Uni Bremen,) und TREAC (TU BA Freiberg).

Bewertung/Eignung:

Die Programme der PHREEQ-Serie wurden am US Geological Survey entwickelt. Sie sind sehr weit verbreitet, wobei zahlreiche modifizierte Versionen existieren. PHREEQC ist ein gutes Programm, welches auf die eindimensionale Beschreibung geochemischer Reaktionen spezialisiert ist. Da bei der Betrachtung der Prozesse im Rahmen dieses Projektes aber der Focus auf dem Stofftransport liegen wird, ist es nur bedingt für Projekt das geeignet.

Programm: HYDROGEOCHEM, HYDROGEOCHEM 2 (kommerzielles Programm)

Simulation: Stofftransport und reaktiver Transport

Methode: Finite-Elemente - Dimension: 2D

Beschreibung:

HYDROGEOCHEM kann zur stationären/instationären Simulation des Stofftransportes in dichtabhängigen Strömungen, Wärmetransport und reaktiven Multispezies-transport im Grundwasser verwendet werden. Es ist das einzige kommerzielle Modell zur Simulation von reaktivem Multispezies- und Multikomponententransport im gesättigten und ungesättigten Bereich. Es ist

ein echtes Transportmodell, gekoppelt mit homogenen und heterogenen geochemischen Reaktionen. Es gibt keine Begrenzung hinsichtlich der Anzahl der Bodentypen bzw. der geologischen Einheiten und deren Eigenschaften. Die hydrologischen Prozesse Advektion, Dispersion und Diffusion und die chemischen Prozesse Adsorption/Desorption, Komplexbildung, Ionenaustausch, Fällung/Lösung, Redox- und Säure-Base-Reaktionen werden berücksichtigt.

Bewertung/Eignung:

Nach den Angaben der Programmdokumentation handelt es sich bei HYDROGEOCHEM um einen leistungsfähigen Simulator zur Beschreibung von Stofftransport- und chemischen Reaktionsprozessen im Grundwasser. Der Vorteil des Programms liegt in der Kombination dieser beiden Module. Gewöhnlich kommen für diese Aufgaben zwei getrennte Modelle (z.B.: MT3D und PHREEQC) zum Einsatz. Mit dem Schwerpunkt auf dem Stofftransport wird dieses Programm auch Ansprüchen an das Projekt gerecht. Allerdings ist die Betrachtung auf 2D-Prozesse eingeschränkt und eine direkte Kopplung zu einem Grundwasserströmungsmodell nicht möglich. Dies ist ein Nachteil bei der Betrachtung von dynamischen Uferfiltrationsprozessen und wird durch die o. g. Programme VISUAL MODFLOW bzw. FEFLOW besser gelöst.

Programm: MT3D in Kopplung mit MODFLOW

Simulation: Stofftransport (in Kopplung mit Grundwasserströmung - MODFLOW)

Methode: Finite-Differenzen(explizit finite Differenzen Methode)

Dimension: 3D

Beschreibung:

Mit MT3D erfolgt die Simulation des Stofftransports im Grundwasser unter Berücksichtigung von hydrodynamischer Dispersion, Abbau bzw. Zerfall und physikochemischen Wechselwirkungen. Als Lösungsverfahren kommen u. a. das Charakteristikenverfahren und seine Modifikationen zur Anwendung. Die Einsatzbereiche sind die Simulation der Konzentrationsänderungen von „single-species miscible contaminants“ im Grundwasser unter Berücksichtigung der Advektion, der Dispersion und einfacher chemischer Reaktionen. Dazu gehören lineare und nichtlineare Sorption (verschiedene Sorptionsisothermen: HENRY, LANGMUIR, FREUNDLICH) und Abbau erster Ordnung. Die Beeinflussung durch Quellen bzw. Senken wie Brunnen, Fließgewässer, Neubildung und Evapotranspiration kann auch abgebildet werden.

Bewertung/Eignung:

Der Programmcode MT3D wurde gemeinsam mit MODFLOW (Grundwasserströmung) vom USGS entwickelt und findet unter einer Vielzahl von Nutzeroberflächen weltweit Anwendung. Beide Programme sind aufeinander abgestimmt und anhand von unzähligen Anwendungen getestet und publiziert. MT3D in Kopplung mit MODFLOW zeichnet sich durch eine einfache Handhabung der Nutzeroberfläche und durch klar strukturierte Programmabläufe aus. Eine Simulation lässt sich wie folgt gliedern: Problemdefinition, Festlegung der Anfangs- und Randbedingungen, Bestimmen der Zeitschritte für die Transportsimulation, Erstellen der Massenbilanz

und Ausgabe der Simulationsergebnisse. Bei diesem Prozess werden Daten der Grundwasserströmungssimulation direkt mit den Transportberechnungen gekoppelt. Für die Beschreibung der Uferfiltrationsprozesse ist MT3D in Kopplung mit MODFLOW optimal geeignet.

3.2.4 Gekoppelte Modelle (Programmpakete)

In diesem Kapitel werden Programmpakete zur numerischen Simulation von Strömung, Transport und Modellierung einfacher geochemischer Reaktionen im Grundwasser nach der Finite-Elemente-Methode und Finite-Differenzen-Methode beschrieben.

Programm: TRIWACO, kommerzielles Programm

Simulation: Grundwasserströmung in Kopplung mit Oberflächenwasser (Schnittstelle Stofftransport)

Methode: Finite-Elemente, Finite-Differenzen - Dimension: 3D

Beschreibung:

Bei dem Programm TRIWACO handelt es sich um eine Modellumgebung zur Einbindung verschiedener Module zur Simulation der Oberflächenwasser- und Grundwasser-Strömung in der ungesättigten und gesättigten Zone sowie der Anbindung von Stofftransportmodellen über eine Schnittstelle. Die Nutzeroberfläche TRISHELL (ähnlich der Oberflächen von Visual Modflow, bzw. Processing Modflow) dient der Koordination der unterschiedlichen Simulatoren, der Datenvorbereitung und der graphischen Darstellung der Ergebnisse. Zur Modellierung der Grundwasserströmung kommen die Programme MODFLOW (Finite-Differenzen-Methode) und TRIWACO-FLAIRS (Finite-Elemente-Methode) zur Anwendung. Das Modul DIGEDIT wird zur Netzgenerierung (wahlweise Finite-Elemente oder Finite-Differenzen!) und TRACE zur Berechnung von Strompfaden und Geschwindigkeiten genutzt. Die Stofftransportberechnung erfolgt basierend auf einer Strömungssimulation. Dazu ermöglicht das Programm über verschiedene Schnittstellen die Kopplung mit FEFLOW, RT3D oder MT3D zur Berechnung und graphischen Darstellung des Stofftransportes.

Folgende Module arbeiten unter TRIWACO (s. Abb. 10, 11 und 12):

- Gridgenerator zur Netzgenerierung für Anwendungen der Finite-Elemente bzw. Finite-Differenzen-Methode,
- Strömung Oberflächengewässer,
- Grundwasserneubildung und ungesättigte Zone,
- Grundwasserströmung in der gesättigten Zone,
- Automatische Kalibrierung,
- Überprüfung der Modellergebnisse,
- Bilanzen für zeitlich und räumlich variierende Gebiete,
- Stromlinien und Stofftransport,
- Verweilzeiten; Einzugsgebiete von Quellen und Senken (z.B. Förderbrunnen),
- automatische Abgrenzung nutzungsbedingter Einzugsgebiete.

Bewertung/Eignung:

Das Programmsystem TRIWACO agiert als Nutzeroberfläche zur Einbindung und Kombination der Vorzüge eigenständiger Simulatoren wie MODFLOW, TRIWACO-FLAIRS und FEFLOW. Dieser modulare Aufbau ermöglicht die Simulation der Grundwasserströmung mit ausgewählten spezialisierten Simulatoren die je nach Aufgabenstellung gewählt werden können.

Diese Herangehensweise ist unter Nutzung der Programmgruppe „MODFLOW“ des USGS weit verbreitet. Beispiele für weltweite Nutzung sind die Programmsysteme PMWIN und VISUAL MODFLOW. Allerdings bietet TRIWACO kein Modul für die Beschreibung des Stofftransportes unter dieser Nutzeroberfläche, sondern nur Schnittstellen zur Datenanbindung. Somit ist TRIWACO aufgrund der Produktbeschreibung und im Vergleich zu VISUAL MODFLOW für die vorgesehene Anwendung nur beschränkt geeignet. Zudem lassen sich nur wenige Referenzen zur Anwendung von TRIWACO recherchieren. Aussagen zur Qualität und Vergleiche mit gängigen Anwendungen (wie PMWIN) sind nicht gefunden worden.

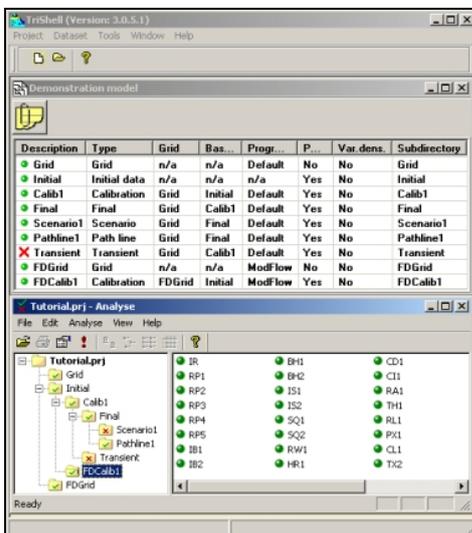


Abb. 10: Bildschirm-Plot TRIWACO mit Echtzeitinformation über den Modellierungsfortschritt und die Abhängigkeit von Daten-Sätzen und Parametern

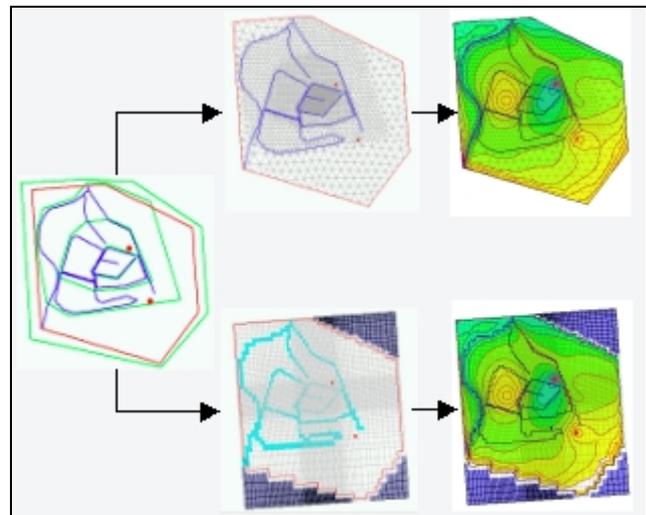


Abb. 11: Bildschirm-Plot TRISHHELL. Aufbau verschiedener Modelle unter Nutzung einer GIS- Grundlage - hier TRIWACO-FLAIRS und MODFLOW

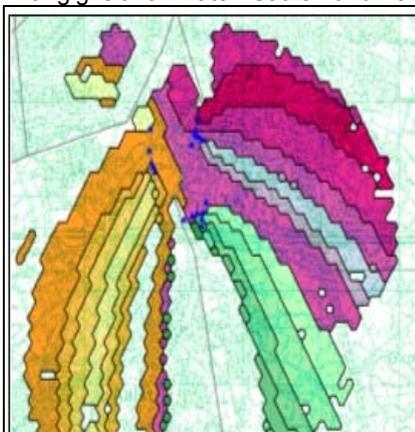


Abb. 12: Mit TriPlot visualisierte Einzugsgebiete einzelner Brunnen im Ergebnis einer Simulation

Programm: AQUA3D (kommerzielles Programm, s. Abb. 13)

Simulation: Grundwasserströmung und Transport, Methode: Finite-Elemente - Dimension: 3D

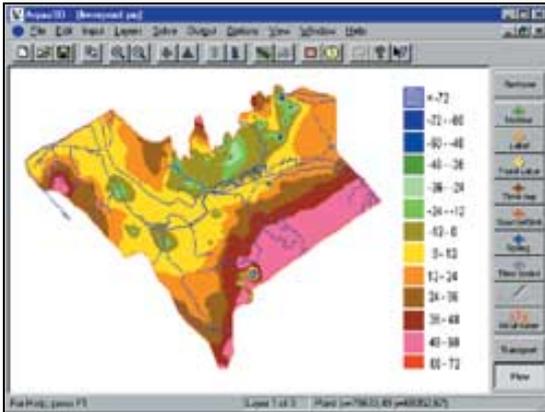


Abb. 13: Bildschirm-Plot AQUA3D

Beschreibung:

AQUA3D ist ein 3D Grundwasserströmungs- und Transport(Stoff und Wärme)Modell das die Galerkin Finite-Elemente-Methode nutzt. Die Grundwasserströmung kann instationär sowohl unter homogenen als auch anisotropen Bedingungen berechnet werden. Der Stoff- und Wärmetransport wird unter Berücksichtigung der Konvektion, des Zerfalls (Abbau), der Adsorption und der Dispersion berechnet.

Bewertung/Eignung:

Die Website ist von 1998 - es gibt keine Angaben zur Aktualität und es ist nicht bekannt, ob dieses Modell weiterentwickelt wurde. Da es zudem einen geringeren Funktionsumfang als FEFLOW aufweist, ist dieses Programm für unsere Nutzung ungeeignet.

Programm: HYDRUS 1D, 2D und 3D (seit 2007), kommerzielles Programm

Simulation: Grundwasserströmung und Transport, Methode: Finite-Elemente, Dimension: 3D

Beschreibung:

Mit HYDRUS kann, basierend auf der Finite-Elemente-Methode, bis hin zur 3-Dimensionalität, die Grundwasserströmung (variabel gesättigt) sowie Wärme- und Stofftransport entweder stationär oder instationär simuliert werden. Es existiert eine graphische Oberfläche für die Dateneingabe und Ergebnisdarstellung. Unter HYDRUS arbeiten automatische Optimierungsverfahren und Netzgeneratoren.

Numerische Lösungsverfahren für:

- „Richardsgleichung“, für gesättigte/ungesättigte Grundwasserströmung;
- „convection-dispersion type equations“, für Wärmeleitung und Konvektion sowie Stofftransport.

Die Transportgleichungen berücksichtigen Produktions- und Abbau(Zerfalls)prozesse in Abhängigkeit von anderen Stoffen. Weiterhin können Konvektion und Dispersion in der flüssigen Phase sowie Diffusion in der Gasphase gleichzeitig beschrieben werden. Mit HYDRUS können die Bewegungen von bis zu 15 unterschiedlichen Stoffen gekoppelt oder unabhängig voneinander simuliert werden.

Bewertung/Eignung:

Mit der neuen 3D-Version (Sommer 2007) bietet HYDRUS vergleichbare Leistungen wie MODFLOW/MT3D bzw. FEFLOW an. Allerdings liegen aufgrund der Aktualität nur wenige Anwendungen zum Test der neuen Eigenschaften (Stabilität, Performance etc.) vor. Lediglich ein Programm-Review bescheinigt sehr gute Eigenschaften (HYDRUS, s. Kapitel 9). In der Pro-

grammbeschreibung wird explizit auf die mögliche Verwendung zur Simulation der Kopplung (Austausch) von Oberflächengewässer - Grundwasser verwiesen. In Kombination mit dem ebenso integrierten Simulator für Stofftransport ist dieses Programmpaket für die vorliegende Aufgabenstellung geeignet.

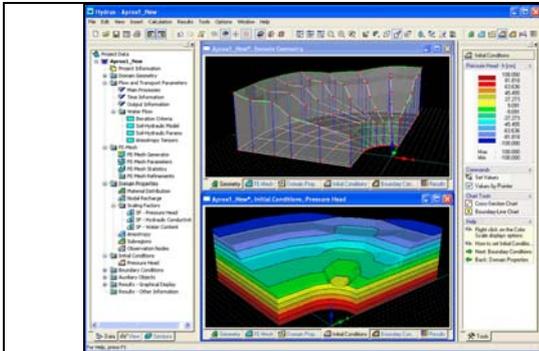


Abb. 14: Bildschirm-Plot HYDRUS - 3D-Layered Domain

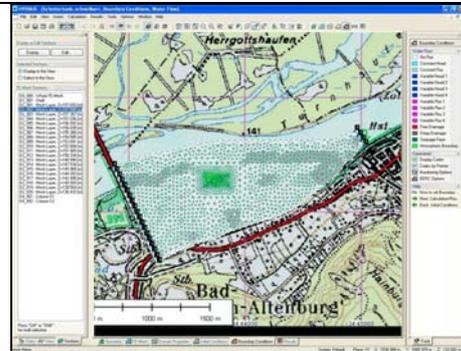


Abb. 15: Bildschirm-Plot HYDRUS - Nutzung einer Hintergrundkarte

Programm: FEFLOW (Finite Element Subsurface Flow and Transport Simulation System, kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung und Transport, Methode: Finite-Elemente, Dimension: 3D

Beschreibung:

FEFLOW ist ein Softwarepaket zur Berechnung von Wasserströmung, Massen- und Wärmetransport in porösen Medien. FEFLOW beinhaltet Vorverarbeitungs- und Nachbearbeitungsfunktionalität und einen effizienten Simulationskern. Eine benutzerfreundliche grafische Oberfläche erlaubt die komfortable Steuerung der umfangreichen Modellierungsmöglichkeiten. FEFLOW ist im Gegensatz zu manchen Konkurrenzprodukten nicht eine grafische Oberfläche für einen separaten Simulationskern, sondern ein vollständig integrales System, vom Simulationskern über die Eingabeoberfläche zum Postprozessor. Es bietet zudem eine offene Programmierschnittstelle. FEFLOW kann zahlreiche der im Untergrund ablaufenden physikalischen Strömungs- und Transportprozesse abdecken. Generell sind Simulationen unter instationären und stationären Bedingungen möglich.

Mathematische Vorzüge:

- Finite-Elemente-Methode (FEM),
- Diskrete Elemente (Klüfte),
- Adaptive Zeitschrittsteuerung,
- Adaptive Gitterverfeinerung,
- Schnelle und stabile Lösungsverfahren auch für große Modelle,
- Parallelisierung.

Randbedingungen und Materialeigenschaften:

- Zeitkonstante oder zeitabhängige Randbedingungen,
- Zeitkonstante oder zeitabhängige Nebenbedingungen für Randbedingungen,
- Zeitkonstante oder zeitabhängige Materialeigenschaften.

Strömungssimulation:

- Darcy-Strömung in porösen Medien
- gesättigte/ungesättigte Strömung
- Freie(r) Wasserspiegel
- Dichteströmung
- Kluftströmung

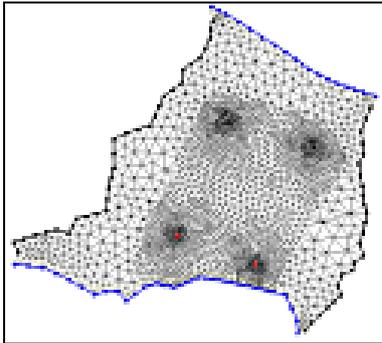


Abb. 16: Bildschirm-Plot FEFLOW - FE-Netz

Massentransportsimulation:

- Advektiver/dispersiver Massentransport
- Einkomponenten/Mehrkomponenten-Systeme
- Sorption
- kinetische Reaktion
- Salzwasserintrusion
- Doppel- oder multidiffusive Konvektion
- Freie, erzwungene und gemischte Konvektion
- Massentransport in Klüften

Wärmetransportsimulation:

- Advektiver/dispersiver Wärmetransport
- Freie, erzwungene und gemischte Konvektion
- Wärmetransport in Klüften
- Thermohaline Konvektion

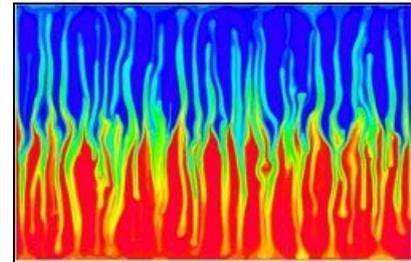


Abb. 17: Bildschirm-Plot FEFLOW - Wärmetransportsimulation

Bewertung/Eignung:

FEFLOW wurde u. a. für die speziellen Erfordernisse der Grundwasserleiter im Lockergestein der Region Berlin/Brandenburg entwickelt und ist mit seiner umfangreichen Funktionalität (s. o.) für die vorliegenden Erfordernisse geeignet.

Es bietet den Vorteil eines integralen Systems, im Gegensatz zur Nutzung verschiedener Module, unter einer Nutzeroberfläche (z.B.: MODFLOW/MT3D). Die Finite-Elemente-Methode lässt (gegenüber der Finite-Differenzen-Methode) die Verfeinerung/Anpassung der Gitterstrukturen an Punkten (z.B. Brunnen) oder unregelmäßigen Konturen/Rändern (z. B. Uferbereiche) zu, ohne die Gesamtfläche und damit die gesamte Performance des Modells (Rechengeschwindigkeit) zu beeinflussen. Im Vergleich zu den MODFLOW/MT3D basierten Programmsystemen ist die Handhabung komplizierter gestaltet, was sich besonders im Datenaustausch (Pre- und Postprocessing) sowie im Druck bemerkbar macht.

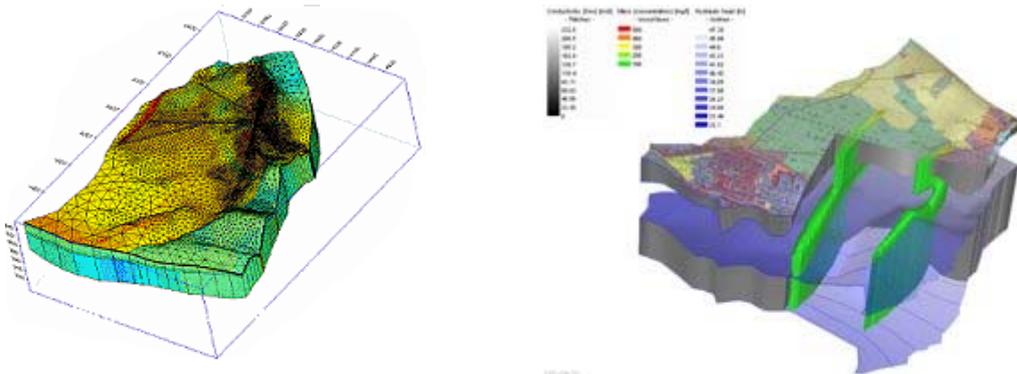


Abb. 18: Bildschirm-Plot FEFLOW - 3D Visualisierung

Programm: SPRING 2D/3D (kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung & -stofftransport, Methode: FE, Dimension: bis 3D

Beschreibung:

SPRING[®] ist laut eigener Website (SPRING[®], s. Kapitel 9), das Werkzeug zur Lösung nahezu aller, in der Praxis auftretenden Probleme, die durch Grundwasser- und Stofftransport-Modellierung gelöst werden müssen. Einige Programmspezifikationen sind:

- Simulation im gesättigten und ungesättigten Bereich sowie dichteabhängige Strömung,
- Interaktive Netzerstellung und automatische Netzgenerierung,
- Stofftransport unter Berücksichtigung von Dispersion / Diffusion, Adsorption, Produktion, Zerfall und Abbau,
- Wärmetransport.

Bewertung/Eignung:

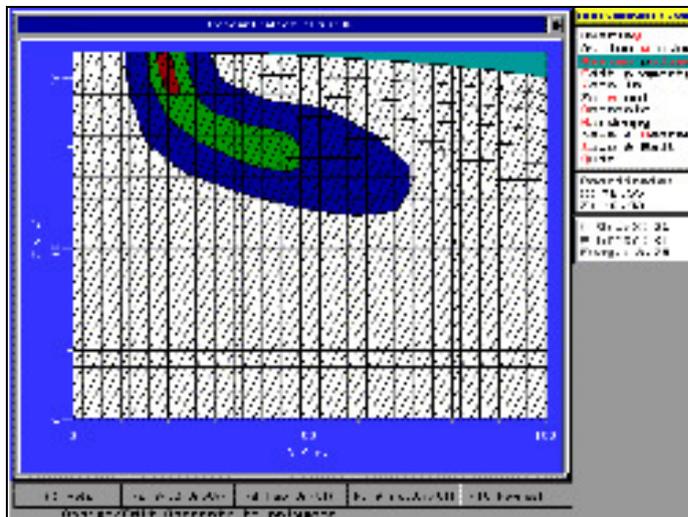
Aus der Leistungsbeschreibung des Modells lässt sich eine Eignung für das vorliegende Projekt ableiten. In der vorliegenden Literatur konnten aber keine Anwendungsbeispiele recherchiert werden, wodurch eine Bewertung und der Leistungsvergleich mit bekannten Modellen (MODFLOW/FEFLOW) erschwert wird.

Programm: FLONET/TRANS (kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung und Transport, Methode: Finite-Elemente, Dimension: 2D

Beschreibung:

FLONET/TRANS ist ein schnelles und einfaches zweidimensionales Programm zur Modellierung von vertikaler Grundwasserströmung in der gesättigten Zone und des Transportes. Neben der einfachen Handhabung durch Verwendung einer graphischen Benutzeroberfläche, gewährleistet die Finite-Elemente-Methode auch numerische Stabilität und flexible Einbindung von Geometrien. Die Software ist für die Simulation von advektiv/dispersiven Massentransport und der Retardation in Ein- oder Mehrkomponentensystemen ausgelegt.



Bewertung/Eignung:

Die Website ist von 1998 - es gibt keine Angaben zur Aktualität und es ist nicht bekannt, ob dieses Modell weiterentwickelt wurde. Da es auch einen geringeren Funktionsumfang als FEFLOW aufweist und nur zweidimensionale Prozesse simuliert, ist dieses Programm für die geplante Nutzung ungeeignet.

Abb. 19: Bildschirm-Plot FLONET/TRANS

Programm: MODTECH (kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung und Transport (MT3DMS)

Methode: Finite Differenzen, Dimension: 3D

Beschreibung:

Mit MODTECH werden Grundwasserströmung und Stofftransport mit echtem geographischen Lagebezug simuliert. Unter der Nutzeroberfläche werden der Simulator für die Grundwasserströmung und MT3DMS für den Stofftransport kombiniert. Spezifische Eigenschaften sind:

- Graphische und analytische Grid-Erstellung,
- Verschiedene Methoden zur Erstellung und Festlegung der Randbedingungen,
- Umwandlung geographischer Objekte oder Karten in Grids,
- Visualisierung der Eingabedaten und Modellergebnisse (2D/3D),
- Umwandlung der Modellergebnisse in geographische Objekte,
- Datenaustausch: GIS, CAD, Graphikformate.

Bewertung/Eignung:

In Auswertung der Programmbeschreibung ist MODTECH für die Beschreibung der Uferfiltrationsprozesse geeignet. Das Anwendungsspektrum des Grundwasserströmungsmodells, die Dimensionalität, die Lösungsalgorithmen und die Datenvisualisierung sind vergleichbar mit den Ergebnissen von MODFLOW unter den Nutzeroberflächen von VISUAL MODFLOW bzw. PMWIN. Allerdings wurde bisher kein Nutzungsbezug recherchiert. Die Transportprozesse werden wie bei den zuletzt genannten Programmen ebenfalls mit MT3DMS realisiert. Die hervorgerufenen Eigenschaften im Bereich der Einbindung geographischer Daten bringen für die kleinräumigen Betrachtungen der Uferfiltrationsprozesse keine Vorteile und somit auch keinen qualitativen Vorsprung gegenüber „herkömmlichen“ Simulatoren und deren GIS-Anbindung.

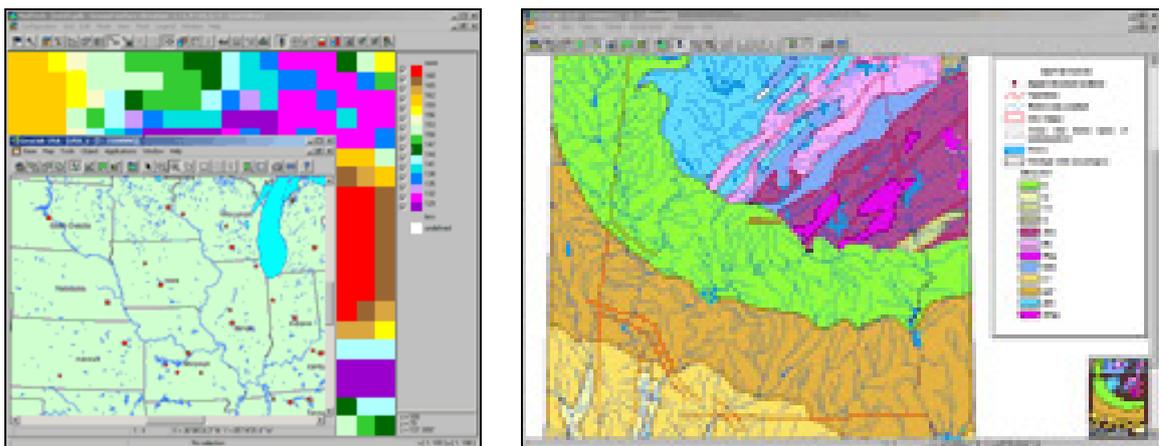


Abb. 20: Bildschirm-Plot MODTECH

Programm: Visual MODFLOW 4.2 (kommerzielles Programm)

Simulation: Grundwasserströmung (mit Kopplung zum Oberflächenwasser) und Stofftransport

Methode: Finite-Differenzen, Dimension: 3D

Beschreibung:

VISUAL MODFLOW (WHI 2005) ist ein modulares Programmpaket auf Basis der Finiten-Differenzen-Methode zur stationären/instationären Simulation von Grundwasserströmungs- und Transportprozessen sowie der Kopplung zum Oberflächenwassermodell unter einer graphischen Benutzeroberfläche. Die aktuelle Version (2008) enthält folgende Module:

- MODFLOW Surfact, 2000 (Grundwasserströmung)
- MODPATH (Stromlinien/Strompfade)
- MT3DMS, RT3D (Stofftransport und chemische Reaktionen (reaktiver Transport))
- Enviro-Base Pro
- SEAWAT 2000 (dichteabhängige Grundwasserströmung)
- VMOD 3D-Explorer (Datenvisualisierung und Datenaustausch)
- WinPEST (automatisierte Kalibrierung)

Die Verwendung von VISUAL MODFLOW zeichnet sich durch die einfach strukturierte graphische Benutzeroberfläche und eine klar strukturierte Gliederung des Programmablaufes aus. Alle Arbeitsschritte, wie Modellaufbau, Simulation, Kalibrierung und Ergebnisdarstellung, können unter der Benutzeroberfläche realisiert werden und der Eingriff in die Prozessabläufe ist jederzeit („real time“) möglich. So können Lösungsalgorithmen und Konvergenzkriterien während der Simulation korrigiert werden. Zur Auswahl stehen mehrere Lösungsmethoden, u. a. der von „Waterloo Hydrogeologic“ entwickelte „WHO Solver“ und die Unterstützung für den „Geometric Multigrid Solver“ (GMS). Der Lösungsfortschritt (Konvergenz) wird ebenso graphisch veranschaulicht wie die Ergebnisse der Mengenbilanz. Im Anschluss an die Simulation können die Ergebnisse visualisiert, exportiert, gedruckt und auch für weitere Simulationsschritte (Kalibrierung, Szenarien) sofort weiter bearbeitet werden.

Bewertung/Eignung:

Das Programmpaket VISUAL MODFLOW stellt eine der leistungsfähigsten Anwendungen zur gleichzeitigen Lösung von Grundwasserströmungs- und Stofftransportproblemen dar. Die vom

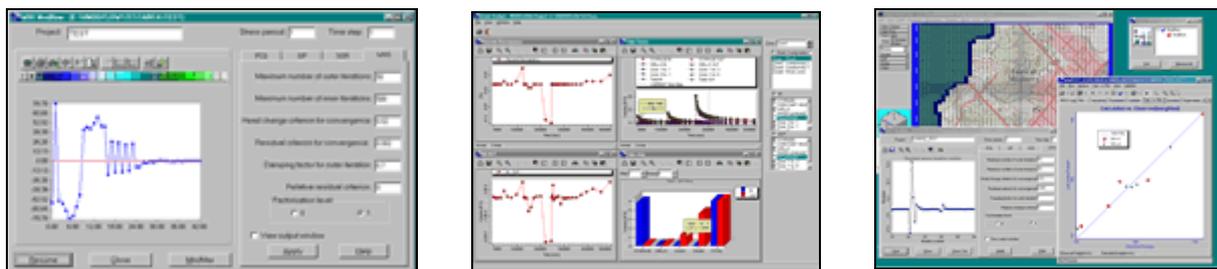


Abb. 21: Bildschirm-Plot VISUAL MODFLOW - Lösungsfortschritt und Simulationsergebnisse

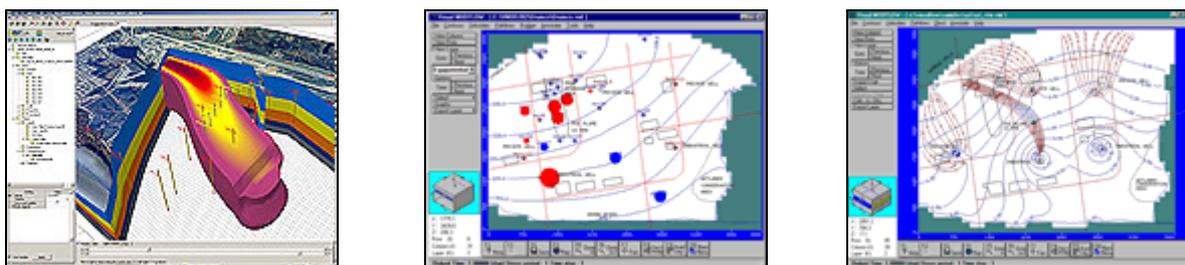


Abb. 22: Bildschirm-Plot Visual Modflow - Ergebnisbilder (3D-Stoffausbreitung, Differenzen und Strompfade)

USGS entwickelten Programme der „MODFLOW“-Gruppe werden dazu durch weitere Module ideal ergänzt und unter einer benutzerfreundlichen Bedieneroberfläche zusammengefasst.

Damit können alle Prozesse zur Darstellung der Uferfiltration, von der Dynamik der Fließgewässer bis hin zum Stofftransport und einfachen chemischen Reaktionen im Grundwasser, mit einer Anwendung simuliert werden. Das Programmpaket findet weltweit Verwendung und wurde auch bei HYDOR vielfach erfolgreich genutzt. Zu Anwendungen unter MODFLOW/MT3D liegen im Ergebnis der Programm- und Literaturrecherche die meisten Referenzen vor. Dazu zählt unter anderem das „NASRI“-Projekt in Berlin (KWB 2006). Somit stellt VISUAL MODFLOW im Ergebnis der Modellrecherche, das für die Prozessbeschreibung (Humanarzneimittelwirkstoffe Uferfiltrationspfad) beste Modell dar. Neben den o. g. Eigenschaften ist in VISUAL MODFLOW auch das Programm WinPEST integriert. Damit ist die automatisierte Kalibrierung mit dem Tool „PEST“ unter einer Windows-Oberfläche möglich - nach Angaben der Hersteller und im Ergebnis der Recherche einzigartig auf dem Markt.

Programm: ASM - Aquifer Simulation Model

Simulation: Grundwasserströmung und Transport, Methode: Finite Differenzen, Dimension: 2D

Beschreibung:

Das ASM ist ein einfaches zweidimensionales (horizontal oder vertikal) Finite-Differenzen-Modell zur Simulation von Grundwasserströmung und Transport. Der vorliegende Simulator läuft noch DOS-basiert und ist als Einsteiger- bzw. Schulmodell konzipiert. Die Lösung der Strömungsgleichung erfolgt unter Nutzung der Finite-Differenzen-Methode. Zur Lösung der Systemgleichungen kann entweder das „preconditioned conjugate gradients“ (PCG)-Verfahren oder die IADI-Methode (Iterative alternative direction implicit procedure) verwendet werden. Stromlinien und Isohypsen werden mit der Euler-Integration berechnet, für die Geschwindigkeit werden entweder die Pricket- oder Pollock-Methode verwandt. Zur Transportsimulation wird die Random-Walk-Methode nach der Fokker-Planck-Theorie genutzt. Die Berechnungen können nur für den stationären Fall durchgeführt werden.

Bewertung/Eignung:

Die Programmdokumentation hat den Stand Juni 1997. Daher ist nicht bekannt, ob dieses Modell weiterentwickelt wurde. Das Programm weist eine einfache Modellstruktur auf, da es nur zur Berechnung von stationären 2D-Problemen konzipiert wurde und vorwiegend zu Schulzwecken genutzt wird. Für die geplante Nutzung ist dieses Programm ungeeignet.

3.3 Festlegung eines geeigneten Modells zur Prozessbeschreibung

In Kapitel 3.2 wurden diverse Modellierungsprogramme beschrieben. Als besonders geeignet wurden die Programmpakete „VISUAL MODFLOW“ und „FEEFLOW“ angesehen. Insbesondere „VISUAL MODFLOW“ zählt in Verbindung mit MT3D zu den leistungsfähigsten Anwendungen zur gleichzeitigen Lösung von Grundwasser- und Stofftransportproblemen unter einer benutzer-

freundlichen Oberfläche, ergänzt durch weitere Module und wird daher für die Prozessbeschreibung der Arzneimittelwirkstoffe im Uferfiltrationspfad als das optimale Modell angesehen. FEEFLOW hat demgegenüber den Vorteil, durch die Finite-Elemente-Methode u. a. die Verfeinerung/Anpassung an Punkte wie z. B. Brunnen zuzulassen, ohne die Gesamtfläche zu beeinflussen. Der Nachteil bei dem Einsatz dieses Modells ist allerdings komplizierte Handhabung, was sich besonders im Datenaustausch bemerkbar macht.

Ebenfalls geeignet sind:

- MIKE SHE bzw. MIKE 11, da letzteres auch die Flusseinzugsbereiche berechnet;
- HYDRUS bietet seit Sommer 2007 vergleichbare Leistungen wie MODFLOW/MT3D und FEFLOW an. Allerdings gibt es aufgrund der Aktualität des Programms bisher laut der Modellrecherche nur wenige Anwender;
- RIBASIM Vers. 6.3 kann in Betracht gezogen werden, wenn die Prozessbeschreibung mit einem Grundwasserströmungsmodell nicht ausreichend beschrieben werden kann.

Als nur bedingt geeignet erwiesen sich:

- SOLUTRANS, bisher ist kein Nutzungsbezug bekannt;
- SVFlux2d/3D hat keine Kopplungsmöglichkeit, um den Stofftransport auf der Basis der vorhandenen Ergebnisse zusammen mit dem Grundwasserströmungsmodell darzustellen;
- PHREEQC existiert in vielen modifizierten Versionen, ist aber auf die eindimensionale Beschreibung der geochemischen Reaktionen spezialisiert;
- Bei dem Programm HYDROGEOCHEM, HYDROGEOCHEM 2 handelt es sich um einen leistungsfähigen Simulator zur Beschreibung von Stofftransport- und chemischen Reaktionen im Grundwasser, der aber auf eine Zweidimensionalität beschränkt ist und keine direkte Kopplung zu einem Grundwasserströmungsmodell ermöglicht;
- Im Vergleich zu MODFLOW bietet TRIWACO kein Modul zur Beschreibung des Stofftransportes, sondern verfügt nur über Schnittstellen zur Datenanbindung;
- Für SPRING 2D/3D lässt sich zwar generell eine Eignung erkennen, aber durch die fehlenden Anwendungsbeispiele wird eine Bewertung und ein Leistungsvergleich mit den Modellen MODFLOW/MT3D und FEFLOW erschwert. Dies trifft auch für MODTECH zu.

Als ungeeignet für die vorgesehene Modellierung werden folgende Programme angesehen:

- GFLOW, KOMPMOD, AQUA3D aufgrund fehlender Aktualität und Programmentwicklung;
- Zu FLONET/TRANS fehlen ebenfalls Angaben zur Aktualität und Weiterentwicklung und es weist einen geringeren Funktionsumfang als FEFLOW auf;
- Die Programme PMWIN und ASM sind für kommerzielle Anwendungen nicht geeignet.

Fazit:

Aufgrund der durchgeführten Modellrecherche und der Bewertung der Programme wird zur Beschreibung und Simulation des Uferfiltratsprozesses das Modell VISUAL MODFLOW in Kopplung mit MODPATH (zur Bestimmung der Fließzeiten auf Grundlage der Strömungssimulationen) und MT3D (Simulation des Stofftransportes) für das Projekt eingesetzt.

4 Literaturrecherche

4.1 Einleitung

Neben der Modellrecherche wurde zu Beginn auch eine umfangreiche Literaturrecherche zum nationalen und internationalen Kenntnisstand durchgeführt. Die Recherche umfasste neben veröffentlichten Literaturstellen auch unveröffentlichte Dokumente u. ä., Angaben hierzu enthält Kapitel 9. Da absehbar war, dass die spezielle Thematik „Transport von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser durch Uferfiltration“ in Gänze nur bei relativ wenigen Dokumenten behandelt werden, erfolgte eine erweiterte Recherche mit folgenden Einzelschwerpunkten:

- Einträge und damit verbunden auch der Transport von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser durch Uferfiltration, einschließlich der Laborversuche zu diesem Thema,
- Daten zu Einträgen, Eintragspfaden, Transport und Abbauprozessen im Oberflächengewässer und/oder im Grundwasser sowie den gemessenen Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen. Hier sind ebenfalls die Ergebnisse von Laborversuchen berücksichtigt,
- Beschreibung des Prozesses der Uferfiltration hinsichtlich der wirksamen hydrogeologischen und hydraulischen Parameter sowie die Lage der Entnahmebrunnen zu den bei der Uferfiltration wirksamen Gewässerabschnitten an den untersuchten Standorten,
- Darstellung des Prozesses der Uferfiltration anhand organischer und anorganischer Spurenstoffe.

Der größte Teil der recherchierten Dokumente kann inhaltlich den Einträgen von Arzneimitteln in die aquatische Umwelt (s. Kapitel 4.3) zugeordnet werden. Teilweise liegen sie als umfangreiche Rohdatentabellen, als standardisierte Daten, als Maximalwerte, als über oder unter einer Bestimmungsgrenze liegend oder auch als Einzelwerte vor.

Nachdem Anfang der 1990er Jahre im Berliner Grundwasser erstmals Arzneimittelwirkstoffe (Stan et al. 1994) nachgewiesen wurden, sind solche Vorkommen im Grund- und Oberflächenwasser sowie in Kläranlagenabläufen vorwiegend in Europa und den USA erforscht und nachgewiesen worden. Die Forschungen wurden besonders dort intensiv betrieben, in denen Oberflächenwasser über den Weg der Uferfiltration zur Trinkwassergewinnung genutzt wird. Dazu zählt neben Deutschland vor allem Großbritannien und die USA sowie z. T. auch Australien. Allerdings liegen zum Schwerpunktthema „Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen während der Uferfiltration“ (s. Kapitel 4.2) nur Informationen zu Standorten in Deutschland vor.

Zum Thema „Transport, Abbau und Einträge von Arzneimittelwirkstoffen“ (s. Kapitel 4.3) wurden Untersuchungen in Deutschland, USA, Großbritannien, Italien, Frankreich, Griechenland, Schweden, Spanien, Österreich, Polen, Finnland, Brasilien und der Schweiz durchgeführt.

Mit dem Thema „Prozess der Uferfiltration“ (s. a. Kapitel 4.4) befassten sich Arbeiten aus Deutschland, USA, Österreich, Kanada, USA und Australien. Andere organische Substanzen,

die in Beziehung zur Uferfiltration (s. Kapitel 4.5) stehen, wurden in deutschen und einer französischen Veröffentlichung abgehandelt. Mit der „Transportmodellierung“ (s. a. Kapitel 4.6) setzten sich deutsche, (nord)-amerikanische, australische und niederländische Autoren auseinander. Eine Gewichtung nach der Wichtigkeit erfolgt in der Reihenfolge der Kapitel.

Aussagen zur Toxizität der Arzneimittelwirkstoffe waren nicht Bestandteil der Literaturrecherche. Aus diesem Grund wird auf diesen Aspekt nicht näher eingegangen, die Veröffentlichungen (z. B. Ferrari et al. 2004, Jones et al. 2004, Koschorreck 2005, Lindquist et al. 2005, Salomon 2005, Tauxe-Wuersch 2005) dazu finden sich aber in Kapitel 9.

4.2 Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser durch Uferfiltration

Die im Folgenden aufgeführten Veröffentlichungen und Dokumente befassen sich ausschließlich mit dem Eintrag von Arzneimittelstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser durch Uferfiltration. Zu diesem Schwerpunkt wurden erst in jüngster Vergangenheit Forschungsprojekte durchgeführt. Im Wesentlichen handelt es sich um Forschungsprojekte an Gewässern in Deutschland (Berlin, Niederrhein, Ruhr und Elbe).

Eine wesentliche Arbeit (Schmidt et al. 2006a) wurde im Rahmen eines BMBF-Projektes zur „Ermittlung der potenziellen Reinigungsleistung der Uferfiltration hinsichtlich der Eliminierung organischer Schadstoffe unter standortspezifischen Randbedingungen“ (Projektverbund: Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung, Kernprojekt B6) erstellt. Hier wurde der gegenwärtige Kenntnisstand zur Reinigungsleistung der Uferfiltration gegenüber organischen Spurenstoffen (s. Kapitel 4.3.1) unter Berücksichtigung standortspezifischer Randbedingungen für die Fließgewässer Rhein, Ruhr und Elbe (s. Kapitel 4.2.2) zusammengefasst. Im Zusammenhang mit diesem Bericht wurde vom Technologiezentrum Wasser (TZW) eine „Datenbank“ zur Entfernbarkeit von organischen Stoffen bei der Uferfiltration herausgegeben (Schmidt 2005), die u. a. Angaben zu pharmazeutischen Wirkstoffe und Röntgenkontrastmittel sowie zu endokrin wirksamen Substanzen enthält

Nach Lenk et al. (2006) erfolgte eine Klassifizierung mitteleuropäischer Uferfiltrationsstandorte (s. Kapitel 4.4). Aus Literaturrecherchen und Umfragen bei Wasserwerken ermittelten Daten wurden mittels einer Clusteranalyse vier Standortgruppen unterschieden. Danach ist das Cluster 1 gekennzeichnet durch eine höhere Streuung der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) und der Sauerstoffkonzentrationen im Oberflächengewässer. In dieses Cluster fällt u. a. die Ruhr. Die Standorte am Rhein werden in das Cluster 2 eingeordnet, das durch eine mittlere Ausprägung der berücksichtigten Parameter (Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f), DOC, Sauerstoff und Nitrat) als „vollkommen homogen“ angesehen wird. Zu Cluster 3 zählt der Neckar und ein Standort an der Elbe, die Autoren gehen aufgrund der geringen Standortzahlen nicht weiter auf diese ein. Cluster 4 weist hohe DOC- und Sulfatgehalte, mittlere Nitratwerte im Oberflächenwasser auf, verfügt über mächtige Grundwasserleiter und relativ niedrige Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f). Die Berliner Gewässer und einige Standorte an der Elbe gehören in dieses Cluster. An den Stand-

orten der Berliner Havelseen und des Niederrheins erfolgt z. Z. die intensivste und umfangreichste Erforschung der Uferfiltrationsprozesse und der Einträge von Arzneimittelwirkstoffen in das Grundwasser durch die Uferfiltration. Die bisher recherchierten Informationen werden im Folgenden näher beschrieben.

4.2.1 Havelgewässer

Systematische Untersuchungen zu Prozessabläufen bei der Uferfiltration - nicht nur von Arzneimittelwirkstoffen - entlang der Havelgewässer in Berlin erfolgen seitens der Berliner Hochschulen (Freie und Technische Universität Berlin) seit einer Reihe von Jahren. Dazu wurden u. a. am Tegeler See und am Wannsee Transekten mit Grundwassermessstellen im Uferbereich zwischen Gewässer und Entnahmebrunnen errichtet. Ein Schwerpunkt der Untersuchungen in der Vergangenheit zu Einträgen von Arzneimittelwirkstoffen in den Wasserkreislauf Berlins lag bei der Beschreibung der Eintrags-, Abbau- und Transportprozesse.

Eine Bündelung aller Kompetenzen auf diesem Forschungsgebiet wurde mit dem sog. „NASRI“-Projekt (*Natural and Artificial Systems for Recharge and Infiltration*) realisiert, an dem unter der Leitung des Kompetenzzentrums Wasser Berlin verschiedene Hochschulinstitute und das IGB (Institut für Gewässerökologie und Binnenfischerei) beteiligt waren (KWB 2006, Heberer et al. 2008, Massmann et al. 2008).

Die insgesamt bisher unveröffentlichten Arbeiten sind jeweils in Schwerpunktthemen gegliedert. So beschäftigte sich die Arbeitsgruppe um Pekdeger (2006) am Tegeler See mit den hydrogeologischen und hydrochemischen Prozessen während der Uferfiltration und der Grundwasseranreicherung mittels verschiedener Tracer. Eine verlässliche Laufzeitenbestimmung war über eine Kombination verschiedener Tracer möglich. Die Altersbestimmung des Grundwassers erfolgte über radioaktives Tritium. Es ergab sich, dass relativ persistente Substanzen zusätzliche Hinweise auf das Alter des Uferfiltrats geben können. Die Fließzeiten variieren zwischen wenigen Monaten und mehreren Jahrzehnten (in größerer Tiefe). Infiltration findet nur in den kolmatierten Uferbereichen statt.

Im NASRI-Teilprojekt 3 (Jekel & Heberer 2006) wurden neben der Durchführung von Experimenten (Batch-, Säulen- und Enclosureversuchen) die Grundwasseranreicherungsanlage am Tegeler See (GWA) und die Oberflächenwasseraufbereitungsanlage Tegel (OWA) untersucht. Ziel war es, mehr Informationen über das Verhalten der Arzneimittelwirkstoffe während der aeroben Infiltration und zu erfahren. In Ausführung der monatlichen Probenahme an den Transekten Tegel und Wannsee, wurde die Verteilung der festgestellten Verbindungen im Wannsee ebenso wie das Auftreten dieser Substanzen im angrenzenden Oberflächenwasser (Unterhavel, Kleiner Wannsee und Teltowkanal) bestimmt.

NASRI-Teilprojekt 3: Batch-, Säulen-, Langsamsandfilter- und Enclosure-Experimente

Im Wannsee und im Tegeler See wurden die Arzneimittelwirkstoffe Diclofenac, Indometacin, Propyphenazon, Carbamazepin, Primidon, Bezafibrat und die beiden Metabolite AMDOPH (1-

acetyl-1-methyl-2-dimethyl-oxamoyl-2-phenylhydrazide) und Clofibrinsäure gefunden, die von Bedeutung für die Uferfiltration sind. Die Erforschung des Verhaltens während der Uferfiltration wurde begleitet durch Batch-Experimente, Säulenversuche, Langsamsandfilter und Enclosure Experimente. Die Batch-Versuche wurden mit Clofibrinsäure, Carbamazepin und Ibuprofen durchgeführt. Während der Experimente wurde kein Abbau von Carbamazepin festgestellt, kam aber Oberflächenwasser und mit Wannseesediment angereichertes Oberflächenwasser, zum Einsatz, ergab sich eine leichte Abnahme zwischen 20 % and 40 %. Keine Tendenz wurde bei der gelösten Clofibrinsäure oder bei dem angereicherten Bodenmaterial des Aquifers an der Transekte Wannsee beobachtet. Im Gegensatz zu diesem Verhalten führte angereichertes Sediment der Kolmationsschicht zur Verdünnung bis zu 40 %. Bei Ibuprofen wurde eine komplette Abnahme nach 26 Tagen beobachtet. Für die Langsamsandfiltration wurde das Abbauverhalten von 4 Arzneimitteln (Clofibrinsäure, Diclofenac, Ibuprofen, und Bezafibrat) untersucht. Clofibrinsäure wurde zu 80 % der infiltrierten Menge und Diclofenac zu 30 % im Ablauf des Langsamsandfilters wieder gefunden. Ibuprofen und Bezafibrat wurden während der Filtration vollständig verdünnt und daher im Ablauf nicht mehr detektiert. Das Enclosure Experiment ergab, dass Ibuprofen in den ersten 40 cm der Passage zu 80 % abgebaut wurde. Die Säulenversuche zeigten, dass Clofibrinsäure, Diclofenac, Ibuprofen, und Bezafibrat abgebaut wurden. AMDOPH wurde um 15-20 % reduziert, Ibuprofen wurde in den ersten 21 cm eliminiert, Bezafibrat in den ersten 84 cm und Diclofenac wurde zu 70 % in den ersten 21 cm der Bodensäulen reduziert, danach erfolgte ein weiterer langsamer Abbau.

NASRI-Teilprojekt 3: Grundwasseranreicherungsanlage Tegeler See

Bei der Untersuchung der Grundwasseranreicherung wurden die gleichen Arzneimittelwirkstoffe gefunden wie im Tegeler See, dies sind AMDOPH, Bezafibrat, Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Primidon, Propyphenazon und Indometacin. Der Vergleich der nachgewiesenen mittleren Ein- und Ablaufkonzentrationen ergab keine signifikanten Verdünnungsraten. In der Oberflächenreinigungsanlage wurden AMDOPH, Carbamazepin und Primidon nachgewiesen, ein moderater Abbau von $\leq 30\%$ zeigte sich im Well 20. Eine höhere Abbaurrate (55 %) für Carbamazepin wurde in einem Produktionsbrunnen festgestellt, was hauptsächlich auf eine Verdünnung mit dem landseitigen Grundwasser zurückzuführen ist, das sehr geringe Konzentrationen an Carbamazepin aufwies. Die gegenüber dem Einlauf im Wasser des RP 3 durchschnittlich um 240 % hohe Konzentration an AMDOPH im Wasser des Brunnens kann damit zusammenhängen, dass von der ehemaligen Produktionsstätte von Arzneimitteln in Oranienburg in die Havel und dann in das Grundwasser gelangten. Bei der Beprobung von TEG248, der nur vom Oberflächenwasser beeinflusst ist, wurde eine mittlere Abbaurrate von 28 % für AMDOPH festgestellt. Clofibrinsäure, Diclofenac und Propyphenazon sind charakterisiert durch eine hohe Abbaurrate von mehr als 70 %. Die erhöhte Konzentration an Propyphenazon in Well 20 kann auf den Anteil kontaminierten landseitigen Grundwassers zurückgeführt werden. Bezafibrat und Indometacin werden während der Bodenpassage vollständig abgebaut und konnten an zwei Messstellen in der Nähe des Ufers nicht nachgewiesen werden.

NASRI-Teilprojekt 3: Tegeler See

Im Tegeler See wurden acht Arzneimittelwirkstoffe nachgewiesen, von denen sechs für die Trinkwasserproduktion relevant sind, da sie auf dem Infiltrationsweg und in einem Brunnen zu finden waren. Indometacin und Bezafibrat wurden im Oberflächenwasser in niedrigen Konzentrationen bestimmt und zeigten Abbauraten > 95 % in den ersten Metern der Infiltration. Clofibrinsäure, Diclofenac und Propyphenazon zeigten mittlere Abnahmeraten an dieser flachen Messstelle. AMDOPH (als Metabolit von Dimethylaminophenazon), Carbamazepin und Primidon lagen ebenfalls in geringen Konzentrationen vor. An einem Produktionsbrunnen, in dem sich Oberflächenwasser mit landseitigem Grundwasser und altem Grundwasser aus dem tieferen Aquifer mischt, wurden Carbamazepin und Diclofenac zu 80 % beziehungsweise 86 % abgebaut. Eine niedrige Abbaurate von ca. 14 % wurde für die Clofibrinsäure im Wasser des Well 13 beobachtet, was auf die Durchmischung von jungem und älterem Uferfiltrat / Grundwasser mit höheren Werten zurückgeführt wird. Die mittlere Clofibrinsäurekonzentration von 180 ng/l im Grundwasser einer Messstelle lag höher als die im Oberflächenwasser. Dies wird mit den ehemals höheren Werten der früher eingesetzten Arzneimittel Clofibratethyl, Etofibrat und Etofyllinclofibrate erklärt. Für AMDOPH und Propyphenazon wurden teilweise bis zu 200 % höhere Konzentrationen in einem Brunnen als im Oberflächenwasser festgestellt. Wie bereits oben erwähnt, hängt dieses Verhalten mit dem Eintrag (über die Havel) durch die ehemalige Arzneimittelproduktion in Oranienburg zusammen. Zusätzlich wurden sehr hohe AMDOPH-Konzentrationen (Mittelwert von 6,2 µg/l) in einer Messstelle nachgewiesen. Hier wird die Hypothese aufgestellt, dass eine Durchmischung mit älterem Grundwasser erfolgte, das mit höheren Konzentrationen von pharmakatypischen Rückständen kontaminiert wurde.

NASRI-Teilprojekt 3: Wannsee

Im Wannsee wurden die Arzneimittelwirkstoffe AMDOPH, Carbamazepin, Primidon, Indometacin, Naproxen, Propyphenazon, Bezafibrat und Clofibrinsäure identifiziert und quantifiziert. Im März 2004 wurde eine Tendenz von höheren Konzentrationen an Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac und Bezafibrat am Ostufer beobachtet. Im Juli 2004 kehrte sich diese Tendenz um. Dies wurde damit erklärt, dass sich im Westen ein Yachthafen befindet, der hauptsächlich im Sommer genutzt wird und wo Fäkalabwasser ungeklärt in den See gelangen. Bei den anderen Substanzen wurde eine derartige Tendenz nicht festgestellt. Eine Nord-Südverteilung bestand für alle Substanzen (mit Ausnahme von AMDOPH und Propyphenazon), mit höheren Konzentrationen im Süden, was bedingt ist durch die Zuflüsse aus dem Teltowkanal, der während des Sommers das Abwasser aus drei kommunalen Klärwerken mit sich führt.

NASRI-Teilprojekt 3: Transekte 1 und 2 Wannsee

Sechs der im Oberflächenwasser des Wannsees ermittelten Arzneimittelwirkstoffe wurden auch in den Brunnen entlang der Infiltrationsstrecke beobachtet. Das Verhalten während der Uferfiltration an beiden Transekten ist vergleichbar und wurde in drei Gruppen mit unterschiedlichen Abbauraten eingeteilt. Bezafibrat und Indometacin wurden im Wannsee nachgewiesen, aber

während des Infiltrationsprozesses vollständig abgebaut. Diclofenac, Clofibrinsäure und Propyphenazon zeigten mittlere Abbauraten zwischen 62 % und 90 % in den flachen Beobachtungsbrunnen. AMDOPH, Carbamazepin und Primidon wurden während der Uferfiltration nicht signifikant abgebaut und zeigten in den Beobachtungsbrunnen Abbauraten zwischen 23 % und 43 %. In einem Trinkwasserbrunnen ist das Wasser eine Mischung aus Uferfiltrat und Grundwasser, in dem die Abbaurate für Carbamazepin und Diclofenac größer als 69 % war. Für Primidon wurde nur eine geringe Abbaurate von 48 % beobachtet. AMDOPH, Propyphenazon und Clofibrinsäure sind Ausnahmefälle, weil die gemessenen Konzentrationen in den tieferen Brunnen signifikant höher sind als im Oberflächenwasser. Dies wird für AMDOPH und Propyphenazon auch hier auf die Einträge aus der ehemaligen pharmazeutischen Anlage in Oranienburg zurückgeführt. Der Ausnahmefall des Metaboliten Clofibrinsäure wird, wie oben erwähnt, auf die zu früheren Zeiten eingesetzten Arzneimittel Clofibratethyl, Etofibrat und Etofyllinclofibrate erklärt. An der Tansekte Wannsee ist der höhere Filter des Brunnens Well 4 immer verstopft und das abgepumpte Rohwasser ist nur leicht durch die Uferfiltration beeinflusst. Hier wurden nur Spuren von Arzneimittelwirkstoffen nachgewiesen.

Die erhobenen Daten zu den Messstellen und Entnahmebrunnen entlang der Transekten am Tegeler See und am Wannsee sowie die zugehörigen Messwerte sind in der Access-Datenbank zum NASRI-Projekt (s. Kapitel 5) enthalten. Die Analysen erfolgten monatlich im Zeitraum Mai bis Oktober 2002 sowie Mai 2003 bis Dezember 2004. Es liegen insbesondere Messwerte für die Arzneimittelwirkstoffe (bzw. Metabolite) Bezafibrat, Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Primidon und Propyphenazon vor.

NASRI-Teilprojekt 4

Jekel (2006) führte im NASRI-4-Bericht Prozessstudien zum Verhalten von organischen Substanzen bei der Uferfiltration und der Grundwasseranreicherung durch. Dabei stellte sich heraus, dass einige Stoffe eine deutliche Abhängigkeit im Abbau von den vorherrschenden Redoxbedingungen und der Temperatur zeigten. Die Versuche mit Bodensäulen bestätigten im Großen und Ganzen die Ergebnisse der Felduntersuchungen für die meisten untersuchten Substanzen. Die Versuche ergaben, dass die Infiltrationszone für die Gesamtelimination und die Redoxentwicklung von großer Bedeutung ist. Einen nur geringen Abbau oder keine Elimination konnte für die Arzneimittelwirkstoffe Sulfamethoxazol, Carbamazepin, Primidon, Clofibrat, Propyphenazon und die untersuchten Röntgenkontrastmittel festgestellt werden. Die Uferfiltration wird als effektive Barriere für organische Substanzen angesehen, sofern die Randbedingungen erfüllt sind. Dies trifft vor allem auf die Redoxbedingungen zu, aber auch die Bodenpassage sollte sich über einen längeren Zeitraum (> 4 bis 5 Monate) hinziehen.

Weitere Teilaspekte des NASRI-Projektes

Die nachfolgend beschriebenen Arbeiten sind in Ergänzung zu den Berichten des NASRI-Projektes zu sehen. Massmann et al. (2007b) bestimmten die Laufzeiten von Uferfiltrat aus dem Oberflächenwasser zum Brunnen mit Hilfe der Isotopentracer Tritium, Helium 180 und Deuteri-

um, der Abwasserindikatoren Chlorid und Bor sowie mittels Arzneimittelrückständen. Die Untersuchungen wurden an zwei Standorten entlang von Transekten im Uferbereich der Havelgewässer (Wannsee, Tegeler See) im Zeitraum von 2001 bis 2004 in Berlin durchgeführt. Es handelt sich dabei um Oberflächenwasserproben an den Transekten Wannsee und Tegel sowie um tiefenabhängige Analysen entlang der Transekten. Neben den Traceruntersuchungen (s.o. und Gadolinium) wurden Messwerte zu den Arzneimittelwirkstoffen Phenazon, Propyphenazon, AMPH, AMDOPH, Carbamazepin erhoben. Gezeigt werden konnte u. a. die Abhängigkeit der gemessenen Konzentrationen von der Tiefe der Messstelle und auch der Fließzeit des Uferfiltrates je nach Wegstrecke bis ins Grundwasser. Die Laufzeiten des Uferfiltrates sind anhängig von der Tiefe und der Lage (Entfernung) des infiltrierenden Uferbereiches. Es wird bestätigt dass der Uferfiltrationsprozess nur an ufernahen Zonen und nicht entlang der muddebedeckten Bereiche am Gewässerboden wirksam wird. Dabei wird das Gewässer u. U. auch durch Uferfiltrat von der (dem Brunnen) gegenüberliegenden Seite unterströmt (unterschiedliches Alter gemessen). Des Weiteren zeigt sich im oberflächennahen Uferfiltrat ein verschobener Verlauf der Tracerinputfunktion, im tieferen Uferfiltrat ist keine Saisonalität zu erkennen.

Fritz (2003) beschreibt Grundlagen zur Uferfiltration und die eingesetzten Tracer zur Ermittlung von Aufenthaltszeiten, Uferfiltrat- und Klarwasseranteilen in den Brunnen. Die aufgeführten Untersuchungsergebnisse stammen aus dem Zeitraum von Mai 2002 bis Januar 2003 (Wannsee I), insgesamt konnten höhere Konzentrationen an AMDOPH, Carbamazepin, Propyphenazon und Primidon im Oberflächenwasser und im Grundwasser in Fließrichtung zum Brunnen und auch im Wasserwerksbrunnen nachgewiesen. Im Zeitraum von Mai bis Juli 2003 (Wannsee II) wurden Antibiotikarückstände untersucht. Auffällig war Sulfamethoxazol, das im Oberflächenwasser (Wannsee, 125 ng/l), in den flachen Messstellen in Fließrichtung Brunnen (Be206, BE202OP, um 100 ng/l) und selbst im Wasserwerksbrunnen (Well 3) in Spuren (4 ng/l) nachweisbar war.

Heberer et al. (2001) untersuchten den natürlichen Abbau/Verdünnung von Arzneimittelwirkstoffen und anderen umweltrelevanten Schadstoffen unter natürlichen Bedingungen. Die Untersuchungen an drei Standorten (Feldstudien) in Deutschland (Wannsee und Tegel) deuten darauf hin, dass besonders Arzneimittelwirkstoffe bei der Uferfiltration ein unterschiedliches Rückhaltevermögen / Abbauverhalten aufweisen. Da einige Substanzen im Trinkwasser gefunden wurden, wird von einem weiteren Forschungsbedarf ausgegangen. Heberer et al. (2004) beprobten im Rahmen des NASRI-Projektes zwischen Mai und Oktober 2002 die beiden Transekten am Tegeler See und am Wannsee in Berlin hinsichtlich der Belastung durch sechs Arzneimittelwirkstoffe. Das unterschiedliche Transportverhalten der Substanzen Diclofenac, Propyphenazon, Carbamazepin, Primidon, Clofobrinsäure und AMDOPH bei der Uferfiltration wurde dokumentiert. So werden Carbamazepin und Primidon nicht durch die Uferfiltration zurückgehalten und können somit als Indikator für Beeinflussungen des Grundwassers durch belastete Oberflächenwässer angesehen werden.

Bei Massmann et al. (2007b) geht es um die Trinkwassergewinnung über Uferfiltration am Beispiel des Wannsees und des Tegeler Sees. Es wurde festgestellt, dass neben den verwendeten Umwelttracern auch Rückstände an Arzneimitteln als Tracer (neben Helium, Chlor, Bor) genutzt werden können. Des Weiteren besteht eine Alters- und Redoxdifferenzierung, wobei tiefere Uferfiltrate älter und stärker reduzierend sind. Aufgrund der höheren Konzentrationen an Pharmaka im älteren Uferfiltrat im Vergleich zum Oberflächenwasser gehen die Autoren von Altlasten aus. Dies wird als gut geeignet zur Prozessbeobachtung angesehen. Einige Rückstände an Arzneimitteln wurden während der Passage entfernt, als persistent haben sich AMDOPH, Primidon und Carbamazepin erwiesen. Während lange Aufenthaltszeiten (natürliche Sperre) bei der Besiedlung von z. B. Keimen als positiv gesehen werden, ist die lange Verweildauer von Arzneimitteln negativ.

Heberer et al. (2006) stellte bei Untersuchungen fest, dass die mittlere Klärwerkszulaufkonzentration an z. B. Ethinylestradiol (endokrine Substanz) mit 8,8 ng/l weit über der Konzentration (0,1 ng/l) liegt, die bei Fischen Schäden am endokrinen System hervorrufen kann. In den beprobten Messstellen der Transekte Wannsee II wurden Antibiotikarückstände für z. B. Sulfamethoxazol gemessen. Diese Durchschnittswerte beziehen sich auf den Zeitraum Januar 2003 bis August 2004. Im oberflächennahen Bereich; in Fließrichtung Wasserwerksbrunnen, (206, 202, 203) wurden Konzentrationen zwischen 20-250 ng/l gemessen, im mittleren Bereich 5-73 ng/l (202) und in den unteren Schichten fanden sich keine Rückstände mehr. Im Brunnen (Well 3) belief sich die Konzentration auf 1-3 ng/l. Diese Durchschnittswerte liegen in gleicher Größenordnung wie die von Fritz (2003) für den Zeitraum Mai bis Juli 2002 angegebenen (Einzel-)Werte. Nach Engelmann & Luck (2005) fließt das Wasser mit einer mittleren Fließgeschwindigkeit von 0,46 m/d von einer Messstelle in 102 Tagen zu einem Brunnen. Heberer (2006) schlussfolgert, dass Arzneimittelrückstände aus dem kontaminierten Oberflächenwasser durch die Uferfiltration und die künstliche Grundwasseranreicherung entfernt bzw. verringert werden können, allerdings ist eine vollständige Entfernung der Rückstände und ihrer Metaboliten damit nicht vollständig möglich. Die Entfernung der Substanzen erfolgt in den meisten Fällen bereits in der Kolmationsschicht. Von den untersuchten Arzneimittelwirkstoffen sind u. a. Sulfamethoxazol und Dehydroerythromycin sehr gut abbaubar, Diclofenac gut abbaubar, Clofibrinsäure und Carbamazepin mäßig bis schlecht abbaubar, Propyphenazon mäßig abbaubar sowie AMDOPH und Primidon schlecht abbaubar. Arzneimittelrückstände werden als „exzellente“ Indikationen zur Ermittlung der Abwasserbeeinflussung gesehen.

Grünheid et al. (2005b) wollen mit ihren (Feld)- Untersuchungen und Experimenten zum Prozessverständnis während der Uferfiltration beitragen. Es wurden die Einflussfaktoren (Redoxbedingungen, Temperatur, Aufenthaltszeiten) auf den Abbau der organischen Spurensubstanzen (z. B. Röntgenkontrastmittel, Bakteriostatika, Naphthalindisulfonate) bei der Infiltration untersucht, mit dem Ergebnis, dass alle Spurenstoffe im Oberflächenwasser nachgewiesen wurden. Die Mehrheit der Spurenstoffe wurden am effektivsten unter aeroben Verhältnissen abgebaut, die jodierten Organika unter reduktiven Bedingungen. Die Säulenexperimente ergaben,

dass die Redoxverhältnisse beim Abbau der Spurenstoffe eine hohe Bedeutung haben. Das 1,5-Isomer von Naphthalindisulfonat wurde nicht effizient abgebaut und deshalb im „oberflächenwasserähnlichen“ Konzentrationen im Rohwasser der Brunnen nachgewiesen.

Fanck et al. (2005) wollen Informationen über die Effektivität der Entfernung von Arzneimittelrückständen bei der Uferfiltration und den daran beteiligten Mechanismen liefern. Dazu wurden Arzneimittelrückstände in Freiland- (Wannsee, Tegeler See und Speicherteich des Umweltbundesamtes in Berlin-Marienfelde) und Laborversuchen bezüglich des Transportverhaltens, der Sorptionseffekte und des mikrobiellen Abbaus untersucht. Bei den gefundenen Arzneimittelwirkstoffen handelt es sich um Bezafibrat, Carbamazepin, Diclofenac, Primidon, Propyphenazon und die Metaboliten Clofibrinsäure und AMDOPH. Deutlich abgebaut und nicht in das Rohwasser gelangten Bezafibrat und Diclofenac, alle anderen Substanzen waren, wenn auch in geringen Konzentrationen, im Rohwasser der Wasserwerksbrunnen nachweisbar. Für Carbamazepin, Propyphenazon und AMDOPH wird dies auf Verdünnungen, bei Primidon auf den Abbau zurückgeführt.

Ebenfalls im Rahmen des NASRI-Projektes schreibt Greskowiak (2006), dass als Ergebnis der Stofftransportmodellierung, die hydrochemischen Veränderungen in der direkten Umgebung des Injektionsbrunnens während der Speicherphase auf Konzentrationsänderungen der Bakterien zurückzuführen sind. Eine weitere Modellierung des Stofftransportes diene dazu, zu untersuchen, welche Prozesse in welchem Maße die Dynamik der Redoxzonen und das Abbauverhalten von Phenazon steuern. Als ein weiterer Schwerpunkt wurde die räumliche und zeitliche Verteilung von Redoxzonen unter einem Sickerbecken (Tegel) in Berlin untersucht. Im Sommer herrschten im vollgesättigten Sediment unter dem Becken nitrat- und mangan-reduzierende Bedingungen vor. In der darauf folgenden ungesättigten Phase kommt es durch Lufteintrag zur Reoxidierung von Eisensulfiden und zur beschleunigten Mineralisation von organischem Kohlenstoff. Im Winter bleibt das Sediment unter dem Becken trotz variabler gesättigter/ungesättigter hydraulischer Bedingungen im aeroben Zustand.

Außerhalb des NASRI-Projektes befassten sich Scheytt et al. (2004) mit dem Transport von Pharmaka (Diclofenac, Propyphenazon, Clofibrinsäure), mit dem Ergebnis einer höheren Konzentration an Clofibrinsäure im Grundwasser als im Uferfiltrat (Tegeler See). In Säulenversuchen sollte das Verhalten während des Transports im Grundwasser experimentell untersucht werden. Die Ergebnisse zeigten keinen signifikanten Abbau der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe unter den vorherrschenden Bedingungen in der Säule, auch wenn dies unter ähnlichen Bedingungen im Grundwasser erwartet werden würde. Dennoch gibt es eine hohe Variabilität zwischen den drei Wirkstoffen in Bezug auf ihre Mobilität: Clofibrinsäure repräsentiert einen höchst mobilen Wirkstoff, während die anderen beiden wenig mobil sind. Die hohen Wiederfindungsraten im Experiment zeigen, dass die beobachtete Sorption von Diclofenac, Propyphenazon fast reversibel ist mit einer vollständigen Desorption. Aus diesem Grund spiegeln die Pharmaka im Grundwasser der Wasserwerksbrunnen, Veränderungen als Abbauprozesse im Input

und in Desorptionsprozessen wider. Sind diese Wirkstoffe erstmal im Aquifer, ist es wahrscheinlich, dass sie innerhalb des Aquifers transportiert und wie im Fall der Brunnen am Tegeler See in niedrigen, aber messbaren Konzentrationen vorhanden sind.

Das Ziel der Arbeit von Schmidt und Brockmeyer (2002) war es, die Kenntnisse über die Verbreitung von Arzneimittelwirkstoffen in der Umwelt zu erweitern und den potenziellen Übergang der Stoffe vom Oberflächenwasser in das Grundwasser (Uferfiltrat) anhand von Zeitreihenuntersuchungen an der Oberflächenwasseranreicherungsanlage (OWA) in Tegel und an einer Transekte am Tegeler See zu untersuchen. Der Abwasseranteil, der aus dem Klärwerk Schönerlinde in den Nordgraben fließt, lag zwischen 48 % und 67 %. Nachgewiesen wurde Ambroxol mit 0,024 µg/l und 0,013 µg/l im Ablauf der QWA Tegel. Der Metabolit NA873 („Bio-transformationsprodukt“ von u. a. Ambroxol) wies Werte zwischen 0,013 und 0,059 µg/l auf. Nach der „Hustenperiode“ im Frühjahr nimmt Ambroxol wieder ab. Phenazon wurde mit 0,15 - 0,57 µg/l, dessen Metabolit 4-Hydroxy-antiphyrin mit 0,17 - 2,4 µg/l in der Kläranlage detektiert. Die Transekte am Tegeler See wurde 1999-2000 monatlich beprobt. Die Fließstrecke beträgt vom See bis zum Brunnen (13) 115 m, die Fließzeit 5 - 8 Monate. Der Uferfiltratanteil im Brunnen schwankt zwischen 72 % und 84 %. Die Phenazonverteilung vom Oberflächenwasser bis zum Brunnen verlief, in Konzentrationen ausgedrückt von 0,34 µg/l (Tegeler See), 0,25 µg/l (3311 Infiltrationsbrunnen, 2 - 4 m), 0,075 µg/l (3309 Messstelle, 5 - 9 m), 0,43 µg/l (3301 Messstelle, 20 - 23 m), 0,19 µg/l (3303 Messstelle, 20 - 23 m), bis zu 0,62 µg/l (Brunnen 13, 20 - 35 m). In der landseitigen Messstelle 3304 (20 - 23 m) wurden 0,020 µg/l ermittelt.

Zühlke (2004) schreibt, dass Phenazonderivate (Analgetika) insbesondere durch unsachgemäße Entsorgung von Industrieabwässern in das Grundwasser gelangen und in Wasserwerksbrunnen in Berlin-Tegel in Konzentrationen bis in den µg/l-Bereich gefunden wurden. Durch verschiedene Wasserbehandlungsmaßnahmen wie der konventionellen Abwasserbehandlung, der Behandlung in Membranbioreaktoren und in der Oberflächenwasserbehandlungsanlage (OWA Tegel) konnten für die polaren Arzneimittelwirkstoffe (u. a.) Phenazon und Propyphenazon deutliche Konzentrationsabnahmen festgestellt werden, während Carbamazepin und AMDOPH aufgrund ihrer Mobilität und Persistenz kaum Konzentrationsabnahmen erkennen ließen. Dieses Verhalten spiegelte sich auch in den Batchversuchen (im Rückspülwasser) wider. Im Uferfiltrat und bei der künstlichen Grundwasseranreicherung mit abwasserbelastetem Oberflächenwasser zeigten sich ebenfalls Abnahmen an Phenazon und Propyphenazon, wenn die Konzentrationen unter 1 µg/l lagen. Endokrine Wirkstoffe wurden im Grund-, Trink- und Abwasser nachgewiesen. Durch die Abwasserbehandlung konnte ein Abbau von 80-90 %, in der OWA Tegel bis 80 % und bei der Uferfiltration nach nur wenigen Metern bis unter die Nachweisgrenze festgestellt werden. Die Ergebnisse zum Verhalten und Abbau pharmazeutischer Verbindungen während der Bodenpassage bei der Uferfiltration und Grundwasseranreicherung sind erste Ergebnisse, die im Rahmen des NASRI-Projektes erhoben wurden (Zeitraum November 2001 bis Oktober 2003). Im Rahmen dieser Untersuchungen wurden alle o. g. Arzneimittelwirkstoffe nachgewiesen, aber nur AMDOPH und Carbamazepin fanden sich nach den

ersten Metern noch. Eine weitere Betrachtung dieser beiden Substanzen, insbesondere durch die Ableitung von höheren Mengen geklärten Abwassers aus dem Klärwerk Schönerlinde (bedingt durch die Stilllegung vom Klärwerk Falkenberg), ergab für Carbamazepin einen Anstieg der Konzentration in oberflächennahen Messstellen nach ca. 2 Monaten, die tieferen Messstellen wurden nach ca. 2 bis 3 Monaten erreicht. Bei AMDOPH lagen wegen der hohen Mobilität die Konzentrationen in den flachen Messstellen im ähnlichen Bereich. Für beide Substanzen wurde festgestellt, dass sie aufgrund der kurzen Durchbruchzeit und der Mobilität als Indikator für die Verunreinigung mit Abwasser geeignet sind.

4.2.2 Niederrhein

Die neben den Berliner Standorten umfangreichste Forschung auf dem Gebiet der Uferfiltration wird am Niederrhein betrieben. Lenk et al. (2006) haben diese Standorte in Cluster eingeteilt und charakterisieren sie als vollkommen homogen. Es wurden solche Wasserwerke und Untersuchungsgebiete berücksichtigt, in denen der Anteil des Uferfiltrats im Wasser der Brunnen und Grundwassermessstellen mindestens 50 % beträgt. Schöttler et al. (2004) zitieren aus dem Grundwasserbericht des Landes Nordrhein-Westfalen aus dem Jahr 2000, demnach die Gewinnung von Trinkwasser aus Uferfiltration und künstlicher Grundwasseranreicherung am Rhein bei 46 % liegt. In der Region sind mehrere Arbeitsgruppen an unterschiedlichen Institutionen und Arbeitsgemeinschaften tätig:

- TZW (Technologiezentrum Wasser) im DVGW (Deutscher Vereinigung des Gas- und Wasserfaches e.V.) in Karlsruhe,
- IfW (Institut für Wasserforschung GmbH Dortmund),
- DEW (Dortmunder Energie- und Wasserversorgung GmbH),
- ARW (Arbeitsgemeinschaft Rhein-Wasserwerke, Köln) und einzelne Stadtwerke,
- IWW Zentrum Wasser, Mülheim an der Ruhr,
- ESWE (Institut für Wasserforschung- und Wassertechnologie GmbH) Wiesbaden.

Preuß et al. (2001) untersuchten mit Hilfe naturnah betriebener Modellsysteme das Verhalten von Bezafibrat, Carbamazepin, Clofibrinsäure, Ibuprofen und Gemfibrozil während der Grundwasseranreicherung. Ein kontinuierlicher Zulauf mit einer Konzentration der Wirkstoffe von 100 µg/l erfolgte über vier Wochen. Weiterhin wurden noch aerobe und anaerobe Verhältnisse sowie durch Einsatz verschiedener Sedimente (Rheinsand, Ruhrschotter) unterschiedliche Filtergeschwindigkeiten simuliert. Die k_f -Werte variierten von $2,9 \cdot 10^{-3}$ bis $4,3 \cdot 10^{-4}$ m/s. Die Ergebnisse zeigten in Modell-Langsamsandfiltern eine gute Eliminierung (60 % bis 80 %) von Bezafibrat, Diclofenac und Ibuprofen, eine mittlere Eliminierung (40 % bis 60 %) von Clofibrinsäure und Gemfibrozil und eine geringe Eliminierung (20 % bis 40 %) von Carbamazepin.

Schmidt (2006) beschreibt grundlegende Wirkungsmechanismen wie Sorption und biotischer Abbau und damit zusammenhängende Transportprozesse von organischen Spurenstoffen mit

Beispielen von u. a. Arzneimitteln im Uferfiltrat von Rhein, Ruhr und Elbe. Es handelt sich um eine gute Darstellung der Transportmechanismen und der Abhängigkeit der mikrobiellen Abbauleistung von den Redoxvorgängen, leider sind keine Rohdaten der Ergebnisse beigefügt.

Schmidt et al. (2006a) haben im Rahmen des BMBF-Projektes zwei Versuchsfelder der Wasserwerke am rechten Ufer des Niederrheins untersucht.

Versuchsfeld A: hier liegen 6 Förderbrunnen (Vertikalbrunnen) in einer Entfernung von ca. 170 m parallel zum (rechten Rhein-)Ufer. Gefördert wird ein Mischgrundwasser aus Rheinuferfiltrat und landseitigem Grundwasser. Der Großteil des geförderten Wassers stammt aus dem unteren Grundwasserleiter und das geförderte Rohwasser enthält im Mittel einen Rheinuferfiltratanteil von ca. 60 %. Die Aufenthaltszeit des infiltrierten Wassers im Untergrund bis zum Erreichen dieser Messstelle liegt zwischen 7 und 20 Tagen. Der im Rheinwasser gelöste Sauerstoff (Median: 9,2 mg/l) wird zwar bei der Untergrundpassage bis zur Messstelle A1 deutlich vermindert (Median: 1,1 mg/l), das angetroffene Redoxmilieu der Transekte ist aber dennoch vornehmlich durch aerobe Verhältnisse gekennzeichnet. Die in Rhein und Messstelle A1 vergleichbaren Befunde für Leitfähigkeit, Chlorid und Sulfat deuten an, dass die Messstelle nicht von landseitigem Grundwasser beeinflusst wird. Zur Beurteilung der Eliminationsleistung dieser Uferfiltratstrecke in Bezug auf organische Spurenstoffe wurde auf Literaturdaten verwiesen. Zusätzlich wurde 2002 und 2003 der Rhein und die o. g. Messstelle auf iodierter Röntgenkontrastmittel beprobt. Von Oktober 2004 bis Juli 2005 erfolgten monatlich weitere Probenahmen zur Untersuchung auf (u. a.) pharmazeutische Wirkstoffe. Im Oberflächenwasser wurden die Arzneimittelwirkstoffe Bezafibrat, Diclofenac und Carbamazepin, in höheren Konzentrationen nachgewiesen. Der Wirkungsgrad (im aeroben Milieu) betrug für die beiden erstgenannten Substanzen mehr als 80 %. Bei Carbamazepin dagegen, das auch im Uferfiltrat noch erhöhte Werte aufwies, lag der Wirkungsgrad zwischen 0 % und 25 %. Die untersuchten Röntgenkontrastmittel zeigten i. d. R. auch gute Abbauraten bis auf Iopamidol, Amidotrizoesäure, Ioxitalaminsäure, hier lag der Wirkungsgrad zwischen 0 % und 50 %.

Versuchsfeld B: Die Gewinnungsanlagen umfassen eine parallel zum Rhein angeordnete Galerie von mehreren Vertikalbrunnen im Abstand von ca. 60 m zum Ufer, die so eingerichtet sind, dass die vom landseitigen Grundwasser weitestgehend unbeeinflusst sind. Die Verweilzeiten des Wassers bis zum Erreichen der jeweiligen Probenahmestellen betragen beim unteren Pegel P1 ca. 60 Tage, beim mittleren Pegel P2 etwa 30 Tage und bei Pegel P3 etwa 12 Tage. Das geförderte Wasser ist ein Mischwasser unterschiedlichen Alters und enthält im Mittel einen natürlichen Grundwasseranteil von ca. 25-30 %. Aufgrund der Wetterbedingungen im Untersuchungszeitraum (Sommer 2003) lagen die Oberflächenwasser-Temperaturen zwischen 23 und 27 °C und die Sauerstoffkonzentrationen des Uferfiltrats gingen deutlich zurück. Das Redoxpotential in der Transekte lag dementsprechend im suboxischen Bereich, d. h. in einen Grenzbereich zwischen aerob und denitrifizierend. Im Oberflächenwasser wurde Diclofenac, Metoprolol und Carbamazepin in höheren Konzentrationen nachgewiesen. Der Wirkungsgrad betrug für die

beiden erstgenannten Substanzen mehr als 80 %. Bei Carbamazepin, das auch im Uferfiltrat noch erhöhte Werte aufwies, lag der Wirkungsgrad zwischen 0 % und 25 %. Höhere Werte wiesen die untersuchten Röntgenkontrastmittel Iopamidol und Amidotrizoesäure auf, sie zeigten Abbauraten zwischen 0 % und 50 %.

4.2.3 Ruhr

An der mittleren und oberen Ruhr liegt nach Schöttler et al. (2004) der Anteil des Uferfiltrats am Trinkwasser bei 69 %. Zullei-Seibert et al. (2001) bewerteten die Ergebnisse, die bei Vorhaben des DEW und des IfW von 1988 bis 1999 in einem Untersuchungsprogramm zur Hormon- und Arzneimittelbelastung der mittleren Ruhr erhoben wurden, bei dem auch die Reinigungswirkung der Grundwasseranreicherung ermittelt wurde. Ergänzende Untersuchungen (Laborexperimente) durch das ESWE und den DVGW kamen hinzu. Es wurde Oberflächen-, Grund- und Trinkwasser untersucht, wobei in Zuläufen der Ruhr und in der Ruhr selber u. a. Clofibrinsäure und Ibuprofen (50 - 100 ng/l), Diclofenac (50 - 60 ng/l) und Bezafibrat (100-350 ng/l) festgestellt wurden. Im Grund- und Trinkwasser wurden keine Belastungen ermittelt. In Modellfilterversuchen wurde das Verhalten der Arzneimittelwirkstoffe während der aeroben und anaeroben Langsandsandfiltration getestet, mit dem Ergebnis, dass diese Simulation eine deutliche, aber nicht vollständige Eliminierung der Substanzen ergab.

Schmidt et al. (2006a) haben auch Untersuchungen an der Ruhr durchgeführt. Das ist ein reines Testgebiet, bei dem die Ruhr in einem Seitenarm aufgestaut wird. Durch Stauwehre im Ruhrlauf und am Auslauf des Stausees kann ein sehr konstanter Wasserspiegel beibehalten werden. Es resultieren Potentialgradienten von mehr als 5 m zwischen dem Oberflächenwasser und dem angrenzenden Aquifer. Das untersuchte Uferfiltrat bewegt sich ohne natürlichen Grundwasserzustrom vom Infiltrationsbereich der Stauseesohle unter natürlichem Gefälle zum Unterwasser unterhalb der Staustufe. Entlang der Strecke wurden sechs auf 1 m Länge verfiltrierte Messpegel eingerichtet. Die Entfernungen vom Stauseerand zu den Messstellen betragen zu I/A-Neu 1 m, zu I/B 38 m und zu I/C 93 m. Die Aufenthaltszeiten des Wassers im Untergrund sind vergleichsweise kurz und liegen je nach Standort der jeweiligen Messstellen zwischen 5 und 15 Tagen. Erfahrungsgemäß wird bereits am Stauseerand eine abgeschlossene Sulfatreduktion beobachtet. Dies machen auch die im Untersuchungszeitraum bestimmten Milieuindikatoren deutlich. So konnten Sauerstoff, Nitrat und Sulfat in keiner Uferfiltrat-Probe nachgewiesen werden und die Wässer waren stets durch hohe Gehalte an Eisen (25-50 mg/l) und Mangan (4-5 mg/l) gekennzeichnet. Die Transekte wurde im Zeitraum 2002 bis 2003 beprobt. Der Wirkungsgrad lag in diesem anaeroben Bereich für die mit hohen Konzentrationen vertretenen Substanzen Diclofenac, Iopamidol, Amidotrizoesäure höher als 80 %.

4.2.4 Elbe

Schmidt et al. (2006a) haben das Gebiet auf der linken Elbseite untersucht. Die Gewinnungsanlagen umfassen parallel zur Elbe angeordnete Brunnengalerien mit mehreren Vertikalbrunnen

in einem Abstand von ca. 300 m zur Uferlinie und sind vom landseitigen Grundwasser unbeeinflusst. Der Uferfiltratanteil im Rohwasser der Brunnen liegt bei ca. 60 %. Die Pegel erfassen unterschiedliche Teufen und sind in der jeweiligen Entnahmetiefe auf 1 m Länge verfiltert. Die Aufenthaltszeiten betragen im Mittelsandbereich des Messprofils bis zum Erreichen der Messstelle Z2 (zwischen 50 und 60 m NN) mehr als 150 Tage, im Bereich der besser durchlässigen Grobsandschicht zwischen 45 und 80 Tage. An dieser Transekte wurde das Oberflächenwasser, vier Pegel und ein Brunnen im Untersuchungszeitraum 2003 / 2004 beprobt. Der Grundwasserleiter ist bereits in bzw. kurz nach Passage der Infiltrationszone durch denitrifizierende Bedingungen charakterisiert. Trotzdem ist Sauerstoff zeitweise im oberen, gut durchlässigen Bereich des Grundwasserleiters nachweisbar. Höhere Sauerstoffkonzentrationen in diesem Bereich sind grundsätzlich Folgeerscheinungen von Hochwasserereignissen, die durch Grundwasserspiegelschwankungen vertikale Mischungsprozesse bedingen. Durch eine vorübergehende Auffüllung ungesättigter Aquifer-Bereiche wird das ursprünglich anoxische Uferfiltrat wieder mit Sauerstoff angereichert. Zusätzlich kommt es zu einer Auswaschung von Nitrat, so dass in flach ausgebauten Messstellen zeitweise sogar höhere Nitratkonzentrationen als in der Elbe festgestellt werden. Das Uferfiltrat im Bereich der Messstelle Z2 weist hingegen keinen Kontakt mit der ungesättigten Zone des Aquifers auf und ist entsprechend durch weitgehend sauerstoff- und nitratfreie Verhältnisse charakterisiert. Der Wirkungsgrad lag für Bezafibrat und Iohexol bei über 80 %, für Carbamazepin bei 26-50 %.

4.3 Einträge von Arzneimittelwirkstoffen in die aquatische Umwelt

In der Literatur spiegelt sich die seit ungefähr fünfzehn Jahren bestehende Forschungsaktivität auf dem Gebiet des Nachweises von Arzneimittelwirkstoffen in Oberflächengewässern und im Grundwasser sowie die Erforschung der Eintragswege und des Stoffabbaus wider. Ein direkter Bezug des Eintrages und des Transports dieser Substanzen durch den Prozess der Uferfiltration besteht in der Regel in diesen Arbeiten nicht, es werden lediglich Teilaspekte dieser Prozesse betrachtet.

Ein Teil der Veröffentlichungen umfassen Arbeiten, die sich mit Arzneimittelwirkstoffen im Trink- und Abwasser (überwiegend im Zu- und Ablauf von Kläranlagen) beschäftigen. In diesem Kapitel wird der Transport der Substanzen von dem Kläranlagenablauf (Abwasser) bis zur Trinkwasseraufbereitung (Rohwasser) betrachtet. In diesem Zusammenhang werden auch die Ergebnisse entsprechender Laborversuche berücksichtigt.

Einige Artikel befassen sich mit den bisherigen Erfahrungen auf dem Gebiet und auch den Bewertungen von Veröffentlichungen. So berichten Schmidt et al. (2003) über bisherige Erfahrungen in Deutschland zum Thema Uferfiltration und Infiltration und führen als Beispiele den Abbau von organischen Substanzen (DOC) auf. Über den Stand der Untersuchungen zum Verbleib von Arzneimittelwirkstoffen und endokrinen Substanzen während der Grundwasseranreicherung berichten Masters et al. (2004). Eine ausführliche Beschreibung der Arzneimittel ist bei Feldmann (2005, s. dort Anhang A) zu finden und beinhaltet neben einer Kurzbeschreibung und

der Darstellung der chemischen Struktur der Substanzen auch die Metabolisierung, die chemisch-physikalischen und ökotoxikologischen Parameter sowie die prozentuale Rückhaltung in Kläranlagen. Auch Daughton und Ternes (1999) haben eine ausführliche Stoffbeschreibung der Arzneimittelwirkstoffe in der Umwelt verfasst.

Der Verband Forschender Arzneimittelhersteller (VFA 2006) analysiert die rechtliche Situation und stellt die Problematik bisher ermittelten Konzentrationen der Arzneimittelwirkstoffe im Trinkwasser dar. Es wird davon ausgegangen, dass derzeit kein Risiko für Tier oder Umwelt besteht. Allerdings wird aufgrund der neuen Gesetzeslage, d. h. bei der Einreichung von Zulassungsanträgen für Arzneimittel mit neuen Wirkstoffen, Untersuchungsbedarf gesehen und geschlossen, dass bezüglich einer evtl. Langzeitwirkung Forschungsbedarf besteht.

Der Sachverständigenrat für Umweltfragen gab 2007 eine Stellungnahme zu „Arzneimitteln in der Umwelt“ heraus (SRU 2007), die auf einer Vielzahl von Veröffentlichungen basiert. Es werden die Belastungssituation dargestellt, Risikoabschätzungen vorgenommen und rechtliche Empfehlungen für bereits zugelassene und künftig zuzulassende Arzneimittel abgeleitet.

Zusammenstellungen und teilweise Bewertungen zu Originalarbeiten, werden vom Umweltbundesamt (UBA 2005) in der Veröffentlichung „Arzneimittel in der Umwelt - Zu Risiken und Nebenwirkungen fragen Sie das Umweltbundesamt“, zusammengestellt. Ebenfalls für das UBA bewertete Koschorreck (2005) ein Diskussionspapier der European Medical Agency (EMA), insbesondere ging er auf das BLAC-Monitoring-Programm (s. Kapitel 4.4) im Hinblick auf die Ökotoxizität von Arzneimittelwirkstoffen ein. Aus diesem Grund wird auf dieses Papier (Leitfaden zur Umweltrisikoprüfung von Arzneimitteln für den menschlichen Gebrauch) hier inhaltlich nicht näher eingegangen.

4.3.1 Abbau, Sorption und Transport von Arzneimittelwirkstoffen

In den aufgeführten Veröffentlichungen wurde der Abbau von Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagen (in Feldversuchen und experimentell) und Oberflächengewässern des In- und Auslandes untersucht. Es werden auch solche Publikationen berücksichtigt, die im Zusammenhang mit dem Abbau auf die Sorption und das Transportverhalten der Pharmaka eingehen.

So untersuchten Buser et al. (1999) das Verhalten von Ibuprofen in Kläranlagen und in Oberflächengewässern in der Schweiz. Die Daten beweisen den fast vollständigen (>95 %) Abbau - auch der Metabolite - während des Klärprozesses. Carballa et al. (2005) studierten unter den Gegebenheiten einer kommunalen Kläranlage in Spanien den Abbau verschiedener Pharmaka, dessen Ergebnisse aber leider nicht auf die Uferfiltration übertragbar sind. Es wird angenommen, dass nur stromabwärts ein Zusammenhang zwischen Verbrauchszeiträumen und der Konzentration im Gewässer besteht. In Auswertung der Messdaten wird das Abbauverhalten der Substanzen auf dem Transportweg von der Kläranlage in das Gewässer und dessen Verlauf abgeschätzt. Paxeus (2004) hat den Abbau von Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagen in fünf EU-Ländern untersucht, aber keinen Bezug zu Uferfiltration hergestellt.

Schmidt et al. (2006a) haben im Rahmen des BMBF-Projektes (s. Kapitel 4.3) die potenzielle Reinigungsleistung der Uferfiltration unter standortspezifischen Randbedingungen beschrieben, unter Verwendung von vorhandenem Datenmaterial und der Erhebung eigener Daten durch Feld- (Rhein, Ruhr, Elbe) und Laboruntersuchungen. Die Ergebnisse zeigen, dass der Abbau der Spurenstoffe maßgeblich durch die Redoxreaktionen im System bestimmt wird. Dieser Abbau erfolgt überwiegend durch Mikroorganismen, die optimal an das jeweilige Milieu adaptiert sind / sein müssen. Darin liegt aber auch das Problem, denn es kommt immer wieder zur unterschiedlichen Elimination von Schadstoffen. Dies wird darauf zurückgeführt, dass der mikrobielle Abbau an bestimmte Bedingungen gebunden ist (wie z.B. der Verweildauer der Substanzen, dem Vorhandensein spezialisierter Mikroorganismen und der ständigen Änderung der Artenzusammensetzung während der Untergrundpassage. Weiterhin wurde festgestellt, dass der Abbau überwiegend in dem ersten Teil der Fließstrecke stattfindet. Die Autoren konstatieren, dass durch das Redoxmilieu eine höhere Reinigungsleistung erzielt wird, als durch die Verweildauer der Substanzen im Untergrund. Trotzdem wurde beobachtet, dass auch Substanzen nach einer längeren Aufenthaltszeit noch eine höhere Elimination brachten.

Matamoros et al. (2005) beschäftigten sich mit der experimentellen Bestimmung des Abbauverhaltens von Clofibrinsäure, Carbamazepin und Ibuprofen beim Durchlaufen einer Kleinkläranlage über einen Zeitraum von 200 Tagen. Die bekannten Verhältnisse beim Stoff- und Sauerstoffabhängigkeit werden bestätigt. Clara et al. (2004) gingen auf den Abbau von Carbamazepin in „Laborgrößenordnungen“ ein.

Im Rahmen einer Studie wurden von Gross et al. (2004) die Einträge von Arzneimittelwirkstoffen u. a. Substanzen in den Santa Ana River (Kalifornien) gemessen und deren Transport und das Abbauverhalten im Fluss (über eine Distanz von 11 km) und einem angrenzenden Feuchtgebiet dokumentiert. Löffler et al. (2005) analysierten im Laborversuch (in einem Wasser/Sediment- System) das Abbauverhalten von 12 Arzneimittelwirkstoffen und den Metaboliten. Für die Arzneimittelwirkstoffe Diazepam, Carbamazepin und Clofibrinsäure wurde eine hohe Persistenz bestätigt. Cordy et al. (2004) führten Säulenexperimente zur Simulation der Grundwasseranreicherung mit belastetem Wasser durch, um Ergebnisse zum Rückhalte- bzw. Abbauvermögen der untersuchten Stoffe (u. a. Arzneimittelwirkstoffe) zu erhalten. Das Experiment bestätigt den Durchgang einiger Substanzen u. a. von Carbamazepin. Die experimentelle Erfassung der Stoffparameter ist in Hinsicht auf den Prozess der Grundwasserneubildung und nicht in Bezug auf Uferfiltration zu betrachten. Strenn et al. (2004) führten Laborexperimente zum Abbau von Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagen in Österreich durch. Zwiener und Frimmel (2003) führten ebenfalls Labortests zum Abbau von drei Arzneimittelwirkstoffen durch.

In der Veröffentlichung von Mersmann et al. (2002) werden Säulenexperimente zum Abbauverhalten von Arzneimittelwirkstoffen unter gesättigten Bedingungen beschrieben, um Informationen über Transporteigenschaften verschiedener Arzneimittelwirkstoffe (Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Ibuprofen, Propyphenazon) zu erhalten. Das Transportverhalten ist in

unterschiedlichem Maß von Sorptions- und Abbauprozessen charakterisiert. Während Ibuprofen hauptsächlich abgebaut wird, ist der Abbau bei Carbamazepin und Diclofenac im aeroben Milieu gering und bei Propyphenazon ist kein Abbau unter oxidischen Bedingungen nachzuweisen. Clofibrinsäure war gänzlich unbeeinflusst von Sorptions- und Abbauprozessen. Scheytt et al. (2005) führten Batchversuche zur Charakterisierung des Sorptionsverhalten dreier Arzneimittelwirkstoffe in verschiedenen Sedimenttypen aus Berlin durch. Das Ergebnis ergab insgesamt sehr niedrige Sorptionskoeffizienten. Da für Diclofenac und Ibuprofen die kalkulierten Werte wesentlich höher liegen (im Gegensatz zu Carbamazepin) als die Experimentaldaten, zeigt, dass diese beiden Substanzen eine wesentlich höhere Mobilität im natürlichen Aquifersediment aufweisen.

Stamatelatos et al. (2003) untersuchten die Verbreitung von Carbamazepin in verschiedenen Bereichen (belebter Schlamm, anaerober Faulschlamm, Meerwasser, Süßwasser, Boden). Danach scheint, in Abhängigkeit des Anteils organischer Bestandteile, eine Sorption von Carbamazepin an Festkörper stattzufinden.

Zum Thema Photodegradation (Abbau unter Lichteinfluss) führten Tixier et al. (2003) Messungen der Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen im Kläranlagenablauf und in anschließenden Oberflächengewässern für einen Zeitraum von drei Monaten in der Schweiz durch und analysierten u. a. das Abbauverhalten von Arzneimittelwirkstoffen (u. a. Photodegradation). Auch Boreen et al. (2003) und Andreozzi et al. (2003, s. Kapitel 4.3.2) beschäftigten sich mit der Photodegradation. Die Arbeit beschreibt Versuche zur Persistenz hinsichtlich der abiotischen Photodegradation zu verschiedenen Jahreszeiten (Abbau unter Lichteinwirkungen). Lam et al. (2004) führten Laboruntersuchungen zur Persistenz von acht Arzneimittelwirkstoffen hinsichtlich der Biodegradation und der Photodegradation durch. Eine weitere Untersuchung zum photochemischen Verhalten von vier Arzneimittelwirkstoffen im Oberflächengewässer (Mississippi) ist von Packer et al. (2003). Letzel et al. (2007) wiesen durch diverse Abbaubarkeitstest (gemäß OECD), dass Diclofenac nicht biologisch abgebaut wurde. Es zeigt sich im Ergebnis, dass die Elimination in (Labor-)Kläranlagen nach 90 Tagen < 10 % und die Hydrolyse bei 7 % lag. Daraus wurde in der Studie der Schluss gezogen, dass ein Abbau nur durch Photolyse stattfinden kann. Es erfolgte eine Modellierung nach dem ATV-DVWK-Gewässergütemodell, um eine Abschätzung von Spurenstoffen im Gewässer vornehmen zu können. Die Modellierung war geeignet, allerdings nur unter der Voraussetzung, dass detailliertes Datenmaterial (Stoffdaten, Eintragsbilanzierung) vorliegen muss.

Hari et al. (2005) untersuchten für vier Substanzen die Adsorption in Abhängigkeit vom pH-Wert und der Anwesenheit von zwei verschiedenen Tensiden. Jäger & Liedl (2000) beschrieben ein Modell zur Sorptionskinetik als retardierte Diffusion im Intrapartikelbereich. Dieser sehr spezielle Artikel ist geeignet zur Erklärung von Transporten persistenter Stoffe. Rügner et al. (1997) untersuchten den Zusammenhang zwischen sorptionsrelevanten Parametern und den physikalischen und chemischen Eigenschaften der Gesteine anhand von Experimenten zur Sorpti-

onskapazität und -kinetik eines polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffes (Phenanthren). Dieser Artikel geht zwar nicht auf einen Arzneimittelwirkstoff ein, zeigt aber, dass Prozesse wie Verwitterung und Transport keine signifikante Änderung der sorptionsrelevanten Parameter (K_{oc} , D') bewirken. Preuß et al. (2002) schätzten mit ihrer zur Untersuchung von Herbiziden bei der künstlichen Grundwasseranreicherung die Adsorption an sandige und kiesige Filter-/ Untergrundmaterialien ebenfalls als unbedeutend ein.

In der Veröffentlichung von Scheytt et al. (2006) geht es um die Durchführung von Säulenversuchen zur Erfassung des Transportverhaltens von Arzneimittelwirkstoffen (Carbamazepin, Diclofenac, Ibuprofen, Propyphenazon) in der ungesättigten Zone. Für die einzelnen Substanzen wurden die Retardationsfaktoren ermittelt. In den ebenfalls von Scheytt et al. (2007) durchgeführten Säulenversuche geht es um die Erfassung der Parameter, die bei der Bodenpassage (ungesättigte Zone) den Abbau und das Rückhaltevermögen von Arzneimittelwirkstoffen bestimmen. Diese Versuche simulieren den Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen mit dem Abwasser auf Rieselfeldern im Süden Berlins. Gurr & Reinhard (2006) beschrieben die beim natürlichen Abbau von Arzneimittelwirkstoffen und Hormonen in Flüssen wirksamen Prozesse an Beispielstandorten in den USA.

Eine Reihe von Veröffentlichungen beziehen sich auf anorganische Substanzen als sogenannte Indikatoren (Synonym Tracer), andere kamen aufgrund erhöhter Konzentrationen einzelner Arzneimittelwirkstoffe zu dem Schluss, diese als Indikatoren zu nutzen.

Die Bearbeiter des Berichts aus Baden-Württemberg (LFU 2002) wiesen Arzneimittelwirkstoffe und endokrin wirksame Substanzen in 80 % aller untersuchten Grundwassermessstellen in Baden-Württemberg nach. Korrelationen mit Bor waren nicht signifikant, ein direkter Zusammenhang bestand nur zwischen den ermittelten Befunden im Grundwasser und der Abwasserbeeinflussung im Einzugsgebiet. In Fließgewässern konnte dagegen eine eindeutige Korrelation zwischen Arzneimittelwirkstoffen und Bor festgestellt werden (s. a. Kapitel 4.4.6). BLAC (2003) und Sacher et al. (2002 & 2005) benennen ebenfalls Bor als Tracer. Bei Sacher et al. (2005) ist eine Korrelation zwischen Bor und Arzneimittelwirkstoffen zu erkennen.

Die Autoren des UBA in Österreich (2006) kommen zu dem Schluss, dass sich Carbamazepin aufgrund seiner Mobilität und dem geringen Abbau als Leitparameter für Untersuchungen zur Interaktion an uferfiltratbeeinflussten Grundwassermessstellen geeignet ist. Carbamazepin ist ein Antiepileptikum, das weder in Kläranlagen, im Grundwasser noch im Uferfiltrat nennenswert abgebaut (Halbwertszeit ca. 5 Jahre) oder zurückgehalten wird. Es ist ein sehr mobiler Wirkstoff. Die festgestellten Konzentrationsabnahmen sind vorwiegend auf Verdünnungen im Grundwasser zurückzuführen. Aufgrund der Persistenz ist auch ein Vorkommen im Trinkwasser möglich. Auch CLARA et al. (2004) kommen zu dem Schluss, dass sich Carbamazepin als langlebiger/schwer abbaubarer Stoff als Marker für anthropogene Einflüsse eignet.

Hinkle et al. (2005) stellten fest, dass sich Primidon und Phenobarbital als brauchbare Indikatoren für den Nachweis von menschlichem Abwasser in der aquatischen Umwelt erwiesen. Feld-

mann (2005) führte mathematisch-pharmakokinetische Modellberechnungen zur Ermittlung von Arzneimittelrückständen im kommunalen Abwasser unter Berücksichtigung der Verursacher durch. Als Indikatorsubstanzen wurden Carbamazepin und jodierte Röntgenkontrastmittel eingesetzt. Zusätzlich wurde das ökotoxikologische Potenzial (PEC/PNEC) sowie resistente und multiresistente Mikroorganismen im Abwasserstrom ermittelt. Die Abbauraten in Kläranlagen zeigen eine gute Übereinstimmung mit Literaturwerten und belegen, dass vor allem Carbamazepin kaum oder nur geringfügig abgebaut wird.

Ashton et al. (2004) wiesen 12 Substanzen in Kläranlagenabläufen und Oberflächengewässern in Südengland nach. Es wird angenommen, dass nur stromabwärts eine Korrelation zwischen Verbrauchszeiträumen und der Konzentration im Gewässer besteht. In Auswertung der Messdaten wird das Abbauverhalten der Substanzen auf dem Transportweg von der Kläranlage in das Gewässer abgeschätzt. Drewes et al. (2003) untersuchten an zwei Standorten im Südwesten der USA Anlagen zur Grundwasseranreicherung hinsichtlich des Abbauverhaltens und Rückhaltevermögens von Pharmazeutika (Arzneimittelwirkstoffe und „personal care products“). Die Studie zeigt, dass bei diesem Verfahren nur eine bestimmte Gruppe der untersuchten Stoffe nicht in das Grundwasser eingetragen wird. Andere (Carbamazepin, Primidon) werden (unabhängig von den Sauerstoffbedingungen) nahezu unbeeinflusst transportiert. Unterschiedliche Transportzeiten von bis zu 8 Jahren wurden berücksichtigt.

4.3.2 Einträge von Arzneimittelwirkstoffen

Standortübergreifende Messwerte, aus zum Teil nur stichprobenhaften Untersuchungen, gibt es inzwischen zu allen Flussgebieten in Deutschland. Hier sind insbesondere die Arzneimittelberichte der Landesämter und des Umweltbundesamtes sowie die Berichte der ARGE Elbe und des Bund/Länderausschuss für Chemikaliensicherheit (BLAC 1999 & 2003) zu nennen. Durch den BLAC erfolgte, auf der Basis des Beschlusses der 53. Umweltministerkonferenz, eine bundesweite, umfangreiche Erhebung von Daten mit einer ausführlichen Übersicht über die Arzneimittelwirkstoffe. Es wurden Klärwerkszuflüsse, -abläufe, klärwerksbeeinflusstes und repräsentatives (nicht exponiertes) Oberflächen- (Flüsse) und Grundwasser, Deponiesickerwasser, Klärschlamm und Sedimente untersucht. Im Vergleich der Konzentrationen insgesamt traten die Arzneimittelwirkstoffe in der Reihenfolge Röntgenkontrastmittel, Diclofenac, Carbamazepin, Bezafibrat, Clofibrinsäure, Metoprolol, Sotalol, Phenazon, Sulfamethoxazol und Erythromycin auf. Eine Kurzbeschreibung der Ergebnisse findet sich in den Kapiteln zu Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagen (s. a. Kapitel 4.3.3), Oberflächengewässern (s. a. Kapitel 4.3.5), im Grundwasser (s. a. Kapitel 4.3.6) und im Uferfiltrat (4.3.7).

Die ARGE ELBE (2003) hat einen Überblick über Arzneimittel, den Metabolismus im menschlichen Körper, die chemische Struktur wichtiger Arzneistoffe, den Eintrag in aquatische Ökosysteme, den biologischer Abbau (in Kläranlagen), das Vorkommen in Fließgewässern, Trink- und Grundwasser (hier: nach Kontakt mit Abwasser, Gülle, aus Deponien) zusammengestellt. Bei

den wenigen vorliegenden Messdaten für Uferfiltrat-Proben handelt es sich ausschließlich um Untersuchungsergebnisse anderer Autoren, so dass eine Verwertung der Daten nur über die Originalarbeiten erfolgen kann. Der gleiche Sachverhalt trifft für die Uferfiltratuntersuchungen auch auf die Veröffentlichung des Bund/Länderausschuss für Chemikaliensicherheit (BLAC 2003) zu. So wird beispielsweise für die Proben aus Berlin-Tegel auf die Arbeit von Schmidt und Brockmeyer (s. Kapitel 4.2.1) verwiesen.

Debska et al. (2004) veröffentlichten eine Zusammenfassung polnischer Untersuchungen zum Auftreten von Arzneimittelwirkstoffen und deren bekanntes Abbauverhalten. Es erfolgt eine Klassifizierung der Stoffgruppen sowie eine tabellarische Übersicht zu den gemessenen Konzentrationen der Einzelstoffe mit Bezug zur zugrunde liegenden Literaturdatenbank. Diese umfasst (länderbezogen) weltweite Analysen und mit Bezug zum belasteten Medium (Abwasser, Seewasser, Oberflächenwasser, Grundwasser, etc.) und Jahr der Analysen.

In Großbritannien hat der Eintrag von Arzneimitteln aus Haushaltsmüll in die aquatische Umwelt noch große Bedeutung. Aus diesem Grund wurde von Bound et al. (2005) ein Modell entworfen, um den Eintragspfad in die Umwelt abschätzen zu können. Dieses Modell zeigt, dass die Entsorgung ungenutzter Pharmaka über den Hausmüll und über Spüle und Toilette erfolgt.

4.3.3 Arzneimittelwirkstoffe in Kläranlagen

Dieses Kapitel beinhaltet Veröffentlichungen, die auf Arzneimittelwirkstoffe in Kläranlagen (Abwasser) und in Kläranlagenabflüssen eingehen, die Pfade Kläranlage - Oberflächenwasser, Kläranlage - Oberflächenwasser - Grundwasser und Kläranlage - Oberflächengewässer - Uferfiltrat - Grundwasser beschreiben sowie auf die Klärschlammproblematik aufzeigen.

In den bundesweit durchgeführten Untersuchungen des BLAC (2003) lagen die Medianwerte in den Klärwerkszuflüssen und -abläufen deutlich über 1 µg/l. Ein Unterschied zwischen Zu- und Abläufen war nicht signifikant gegeben, so dass daraus der Schluss gezogen wurde, dass kein nennenswerter Abbau oder Rückhalt während des Klärprozesses erfolgte.

In Sachsen (LFUG 2005) wurden Untersuchungen von Abwasser (Kläranlagen) und Oberflächenwasser (Flusseinzugsgebiet Elbe-Oder) durchgeführt. Es ergaben sich erhöhte Konzentrationen durch Diclofenac, Carbamazepin und einen endokrin wirksamen Stoff. Auf die Häufigkeit und Verteilung von (u. a.) Arzneimittelwirkstoffen im Abwasser geht Zimmermann (2005), s. Kapitel 4.3.4 ein. Mit jodhaltigen Röntgenkontrastmittel in der Umwelt beschäftigen sich Sacher et al. (2005). Die Elimination insbesondere von ionischen Röntgenkontrastmitteln liegt in Kläranlagen unter 20 %. Ein Abbau ist auf mikrobielle Abbauvorgänge zurückzuführen, die von den Milieubedingungen abhängig sind. Durch Kläranlagenabläufe in Fließ- und Oberflächengewässern nachgewiesen, gelangen RKM ebenfalls in das Grundwasser. Im Bericht des Landesumweltamtes Brandenburg (LUA 1999) wurde eine Zusammenstellung der für Brandenburg relevanten Humanarzneimittel in Kläranlagen und Fließgewässern vorgenommen, dies sind Roxithomycin, Proparanolol, Acetylsalicylsäure, Paracetamol, Prophenazon und Ibuprofen. Clo-

fibrin ist aus heutiger Sicht unbedeutend, wurde aber bereits in der DDR verkauft und ist deshalb als Indikator für Brandenburg wichtig. Eigene Daten wurden nicht erhoben, sondern Verweise auf andere Autoren gegeben.

Lindquist et al. (2005) stellten nach Untersuchungen an Kläranlagenabläufen und anschließenden Gewässern in Finnland, das Auftreten von fünf Arzneimittelwirkstoffen (Ibuprofen, Naproxen, Ketoprofen, Diclofenac, Bezafibrat) fest. Die gefundenen Werte stimmen mit den Literaturangaben überein. Es wird detailliert auf Ibuprofen eingegangen, da es in Finnland das meistgenutzte Arzneimittel ist, was sich in den Analysen widerspiegelt. Andererseits wird Ibuprofen in den Kläranlagen am besten und Diclofenac am wenigsten abgebaut. Auch in Italien, Frankreich, Griechenland und Schweden wurden gemäß Andreozzi et al. (2003) Arzneimittelwirkstoffe in den Kläranlagenabflüssen gemessen und zusätzlich mit Literaturangaben aus Deutschland verglichen. Mehr als 20 Substanzen wurden gefunden. Bei Kreuzinger et al. (2004) geht es um Feldversuche in Österreich, bei denen über einen Zeitraum von 14 Monaten Klarwasser (Klärerwerksablauf) in das Grundwasser (s. Kapitel 4.4.6) infiltriert wurden.

Die Einträge aus Kläranlagen in Oberflächengewässer werden von Vieno et al. (2005) und Roberts & Thomas (2006) beschrieben. So führten Vieno et al. (2005) Untersuchungen zum Eintrag von fünf Arzneimittelwirkstoffen aus Kläranlagen in einen Fluss (Aura) in Finnland und dem Auftreten in Trinkwassergewinnungsanlagen flussabwärts in Abhängigkeit von der Jahreszeit durch. Roberts & Thomas (2006) untersuchten das Auftreten von 13 Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagenabflüssen und im Wasser des Tyne in Großbritannien.

Die Arbeit von Salomon (2005) basiert auf Daten aus BLAC (2003) und fasst die maximal gemessenen Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagenabflüssen, in Oberflächengewässern und im Grundwasser zusammen und diskutiert die Wirkungsweisen und den daraus resultierenden Handlungsbedarf. Ashton et al. (2004) wiesen 12 Substanzen in Kläranlagenabläufen und Oberflächengewässern in Südengland nach (s. Kapitel 4.3.1).

Den Pfad Kläranlage Oberflächengewässer - Uferfiltrat - Grundwasser zeichnet der Bericht der LFU Bayern (2004) nach. Die beschriebenen Untersuchungen von Arzneimittelwirkstoffen in Bayern ergaben in Kläranlagenabläufen einen maximalen Wert von 10 µg/l, im Grundwasser keine Auffälligkeiten, im Oberflächenwasser- (Fließgewässer) einen Maximalwert von 1,3 µg/l und im Uferfiltrat von 0,05 µg/l (hier Carbamazepin).

Einem speziellen Fall wandten sich Tauxe-Würsch et al. (2005) zu. Sie führten Untersuchungen zum Auftreten von einigen Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagenabläufen z. B. nach Starkregenereignissen in der Schweiz durch.

Zullei-Seibert & Skark (2002) untersuchten die Gehalte an Pharmaka, Hormonen und endokrin wirksamen Substanzen in u. a. Klärschlamm. Sie kommen für die Arzneimittelwirkstoffe zu dem Schluss, dass aufgrund der schlechten Sorption der persistenten Substanzen nicht von einer signifikanten Belastung des Klärschlammes auszugehen ist. Bei Steroidhormonen verhält sich

dies anders. Durch häufig auftretende anaerobe Verhältnisse bei der Klärschlammstabilisierung und der Güllelagerung werden die biologischen Abbauprozesse behindert. Außerdem ist ein landseitiger Eintrag in das Grundwasser möglich.

4.3.4 Arzneimittelwirkstoffe im Trinkwasser

Als relevant für die Trinkwasserversorgung werden von Sacher & Brauch (2004) Carbamazepin, Sulfamethoxazol und die jodierten Röntgenkontrastmittel angesehen, da sie als schlecht abbaubar gelten. Dementsprechend müssten spezielle Aufbereitungsverfahren angewandt werden.

Willme et al. (1999) berichten über das Vorkommen von ausgewählten Arzneimittelwirkstoffen und hormonellen Substanzen in (u. a.) Trinkwasser aus künstlicher Grundwasseranreicherung vor seiner Aufbereitung (s. Kapitel 4.3.5). Auch Huber et al. (2003) beschäftigten sich mit Arzneimittelwirkstoffen bei der Trinkwasseraufbereitung. Sie führten Untersuchungen zur Reaktion dieser Substanzen bei der Aufbereitung durch. Versuche mit weitergehenden Oxidationsverfahren bei der Wasseraufbereitung führten laut Sacher et al. (2005) bei jodierten Röntgenkontrastmitteln zu einer signifikanten Reduzierung. In der Dissertation von Zühlke (2004) geht es u. a. um verschiedene Wasserbehandlungsmaßnahmen, auch in der Oberflächenwasserbehandlungsanlage Tegel (OWA Tegel) konnten für die polaren Arzneimittelwirkstoffe Phenazon und Propyphenazon deutliche Konzentrationsabnahmen festgestellt werden, während Carbamazepin und AMDOPH aufgrund ihrer Mobilität und Persistenz kaum Konzentrationsabnahmen erkennen ließen.

Die Häufigkeit und Verteilung von (u. a.) Arzneimittelwirkstoffen im Abwasser (s. Kapitel 4.3.3) und im abwasserbeeinflussten Trinkwasser beschrieb Zimmermann (2005). Heberer (2002) befasst sich in seiner Arbeit mit dem erhöhten Risiko für eine Trinkwasserverunreinigung durch große Abwasser- und Klarwassermengen und einen geringen Oberflächenabfluss (näheres s. Kapitel 4.3.5). In der Arbeit befindet sich insbesondere eine ausführliche Beschreibung der Berliner Situation (1996-2000) hinsichtlich des Einflusses von Arzneimittelwirkstoffen auf die Trinkwasserproduktion. Weyer & Riley (2001) haben in einer Veröffentlichung die Ergebnisse eines Workshops zum Thema der endokrin wirksamen Substanzen und der Arzneimittelwirkstoffe in Trinkwasser zusammengestellt. Der Teil, der sich mit den pharmazeutisch aktiven Substanzen in der Umwelt befasst, beruht auf den Arbeiten anderer Autoren, wie beispielsweise in der von Daughtin & Ternes (1999, s. Kapitel 4.3). Reddersen (2004) befasst sich mit dem Pfad Kläranlage - Oberflächengewässer - Trinkwasser (s. Kapitel 4.3.5).

4.3.5 Arzneimittelwirkstoffe im Oberflächenwasser

Untersuchungen zum Auftreten von Arzneimittelwirkstoffen in der Elbe und ihren Nebenflüssen stellten Wiegel et al. (2004) in einer ausführlichen Datensammlung vor. Neben der Elbe untersuchten Sacher et al. (1998) auch Rhein, Main, Donau und Neckar auf Arzneimittelwirkstoffe und Metabolite. Benotti et al. (2006) zogen einen Vergleich von Grundwasserproben mit Fließ-

gewässeruntersuchungen in den USA (1998-2000), näheres s. Kapitel 4.3.6. In den bundesweit durchgeführten Untersuchungen des BLAC (2003) lagen die Medianwerte in den klärwerksbeeinflussten Wasserproben aus Flüssen höher als 0,5 µg/l, in den repräsentativen Flüssen bis zu 0,5 µg/l. Nach einer Frachtschätzung wurde festgestellt, dass die Konzentrationen an Arzneimittelwirkstoffen über denen an Pflanzenschutzmitteln lagen.

Willme et al. (1999) berichten über das Vorkommen von ausgewählten Arzneimittelwirkstoffen und hormonellen Substanzen in Ruhrwasser und im Trinkwasser aus künstlicher Grundwasseranreicherung. Nach Aufbereitung des Grundwassers über Langsandsandfiltration wurden keine Befunde im Grundwasser und Vorfiltrat festgestellt. Deng et al. (2003) haben ein neues Untersuchungsverfahren für Diclofenac an Trink- und Oberflächenwasserproben in Deutschland und Österreich getestet.

Heberer (2002) geht auf das erhöhte Risiko für eine Trinkwasserverschmutzung ein, wenn es große Abwasser- und Klarwassermengen und einen geringen Oberflächenabfluss gibt. Demnach werden einige Arzneimittelwirkstoffe beim Passieren der Kläranlage nicht komplett entfernt und als Schadstoffe dem Vorfluter zugeführt. Sowohl vor als auch nach der Passage durch die Kläranlage und in sämtlichen Oberflächenwasserproben wurden Arzneimittelwirkstoffe (Clofibrinsäure, Diclofenac, Ibuprofen, Propyphenazon, Primidon, Carbamazepin) nachgewiesen. Teilweise wurden diese auch in Leitungswasserproben gefunden. Die Daten stammen alle aus früheren Arbeiten des Autors bzw. aus Arbeiten anderer Autoren, so dass es sich empfiehlt, diese Originalarbeiten heranzuziehen. Reddersen (2004) hat in seiner Dissertation über „Das Verhalten von Arzneimittelrückständen im Wasserkreislauf Berlins“ den Verbleib von ausgewählten Arzneimittelrückständen im Wasserkreislauf Berlins untersucht. Das Monitoring umfasste 15 Messstellen (Berliner Oberflächenwasser, Reinwasser Wasserwerke, Klarwasser Klärwerke) über einen Beobachtungszeitraum von zwei Jahren. Höchste Konzentrationen im Oberflächenwasser wurden im Teltowkanal gemessen. Die vergleichsweise höchste Konzentration in den Berliner Wasserwerken wurde für die Substanz AMDOPH ermittelt. Weiterhin erfolgte die Berechnung von Jahresfrachten der Arzneimittelrückstände.

In Sachsen (LFUG 2005) wurden Untersuchungen von Abwasser (Kläranlagen) und Oberflächenwasser (Flusseinzugsgebiet Elbe-Oder) durchgeführt (s. Kapitel 4.4.3). Vieno et al. (2005) s. Kapitel 4.3.3. Roberts & Thomas (2006) untersuchten das Auftreten von 13 Arzneimittelwirkstoffen in Kläranlagenabflüssen und im Wasser des Tyne (Fluss, Großbritannien). In Brandenburg (LUA 1999) wurde eine Zusammenstellung der für das Land relevanten Humanarzneimittel in Kläranlagen und Fließgewässern vorgenommen, näheres s. Kapitel 4.3.3.

SALOMON (2005) wertet Daten des BLAC (2003) aus und fasst die maximal gemessenen Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen im Grundwasser, Oberflächengewässer und in Kläranlagenabflüssen zusammen und diskutiert die Wirkungsweisen und den Handlungsbedarf. Den Pfad Kläranlage Oberflächengewässer - Uferfiltrat - Grundwasser zeichnet der Bericht der LFU Bayern (2004) nach, näheres s. Kapitel 4.3.3.

In den USA stellen Vogel et al. (2005) in einer aus drei Teilen bestehenden Studie ihre Arbeiten zum Thema „Occurrence of Selected Pharmaceutical and Non-Pharmaceutical Compounds and Stable Hydrogen and Oxygen Isotope Ratios in a Riverbank Filtration Study, Platte River, Nebraska“ für den Zeitraum 2001-2005 vor. In den Teilen 1 und 2 geht es um das bessere Verstehen der Effizienz von Uferfiltration im Hinblick auf endokrin wirksame Substanzen und um die Evaluation der Uferfiltration als einem effektiven Mittel zur Trinkwassergewinnung. Allerdings wird in den Arbeiten dieser Zusammenhang nicht mehr hergestellt, es geht ausschließlich um die Probenahme, Untersuchung und Verteilung der Arzneimittelwirkstoffe im Bereich des Platte Rivers. Teil 3 der Studie beinhaltet umfangreiches Datenmaterial. Im Untersuchungsgebiet befinden sich horizontale Sammelbrunnen und vertikale Brunnen. Es wurden Abwasserproben entnommen und Oberflächenwasser, Grundwasser und Trinkwasser untersucht. Pharmazeutische Substanzen wurden von 2001 bis 2003 häufig im Kläranlagenablauf gefunden, in Oberflächengewässern und im Grundwasser dagegen waren die gemessenen Konzentrationen gering. Im Trinkwasser wurden bis auf Koffein und Cotinin, einem Metabolit von Nikotin, keine Arzneimittelwirkstoffe nachgewiesen. Von 2002-2005 wurden Arzneimittelwirkstoffe im Oberflächengewässer nachgewiesen, wenn auch in niedrigen Konzentrationen. Hormone wurden nur in Oberflächenwasser nachgewiesen, nicht im Grund- und Trinkwasser.

4.3.6 Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser

Den Pfad Kläranlage Oberflächengewässer - Uferfiltrat - Grundwasser zeichnen die Berichte der LFU Bayern (2004, näheres s. Kapitel 4.4.3) und des BLAC (2003) nach. So lagen die Medianwerte im „gewässernahen Grundwassern (Uferfiltrat)“ höher als 0,1 µg/l, im repräsentativen Grundwasser dagegen traten selten Arzneimittelwirkstoffe auf. In Deponiesickerwässern wurden Konzentrationen über 100 µg/l gemessen, was den Schluss zulässt, dass diese Substanzen bei einer fehlenden Basisabdeckung in das Grundwasser gelangen können.

Das Verhalten von sechs ausgewählten Arzneimittelwirkstoffen in Böden hinsichtlich der Mobilität und eines möglichen Eintrages in das Grundwasser wird von Oppel et al. (2004) untersucht. Dazu wurden verschiedene Böden mit unterschiedlichen Parametern (Korngrößenverteilung, C_{org} , pH) untersucht und so Rückschlüsse auf das Vorkommen im Grundwasser ermöglicht. Da Böden ein hohes Rückhaltevermögen aufweisen, wird als entscheidender Eintragspfad die Uferfiltratpassage genannt.

Scheytt (2002) nennt die bedeutsamsten Arzneimittelwirkstoffe wie die Acetylsalicylsäure, Paracetamol, Diclofenac, Ibuprofen, Bezafibrat, Etofibrat, Fenofibrat, Carbamazepin, Primidon, Tetracycline, Makrolide und Sulfonamide. Diese Substanzen gelangen in das Abwasser und sind dementsprechend in hohen Konzentrationen in kommunalen Abwässern und in Krankenhausabwässern zu finden. Über Leckagen im Kanalisationssystem, aber auch über die Verrieselung und Versickerung von Abwässern können Arzneimittelwirkstoffe in das Grundwasser gelangen. Am Beispiel der Rieselfelder südlich Berlins zeigte sich, dass die Clofibrinsäure aufgrund der hohen Mobilität bis in die tieferen Grundwasserleiter transportiert werden kann. Bei

der Reinigung der Abwässer in den Kläranlagen erfolgt eine deutliche Abnahme der Gehalte, dennoch werden Substanzen, die eine hohe Persistenz und eine geringe Sorption aufweisen, mit den Klärwerksabläufen in Oberflächengewässer eingetragen, wo die Konzentrationen allerdings deutlich niedriger als im Abwasser sind. Zu den Substanzen mit Konzentrationen über 1.000 ng/l zählen u.a. Bezafibrat, Clofibrinsäure, Diclofenac und Carbamazepin. Aus Oberflächenwasser gelangen Arzneimittelwirkstoffe durch die Uferfiltration und durch die künstliche Grundwasseranreicherung in die Gewässer. Mit einem Eintrag auf dem Pfad Oberflächenwasser - Grundwasser ist bei Diclofenac und Ibuprofen auszugehen, die insbesondere im anaeroben Milieu eine hohe Persistenz besitzen und durch eine mittlere Mobilität charakterisiert sind. Keinem Abbau unterliegen die Wirkstoffe Bezafibrat, Clofibrinsäure, Propyphenazon und Phenazon sowie Primidon und Carbamazepin. Die bei Krebserkrankungen eingesetzten Zytostatika sind zwar mengenmäßig ohne Bedeutung, die beiden am häufigsten verwendeten Wirkstoffe Cyclophosphamid und Ifosfamid besitzen nach vorliegenden Untersuchungen aber sowohl eine hohe Persistenz als auch eine hohe Mobilität. Die häufig eingesetzten Penicilline und Makrolide sind sehr gut abbaubar sind. Tetracycline unterliegen zwar einem geringen Abbau aber einer starken Sorption. Sulfonamide und Metronidazol können in das Grundwasser eingetragen werden und besitzen eine geringe (Sulfonamide) bzw. hohe (Metronidazol) Mobilität.

Der Arzneimittelbericht Südhessen (HLUG 2005) geht in einer allgemeinen Beschreibung auf die dortigen Arzneimittelvorkommen Südhessen ein, dabei werden auch die Untersuchungsergebnisse in Grundwasser- und Oberflächenwasserproben dargestellt und bewertet.

Bei Kreuzinger et al. (2004) geht es um Feldversuche in Österreich, bei denen über einen Zeitraum von 14 Monaten Klarwasser (Klärwerksablauf) über die ungesättigte Zone in das Grundwasser infiltriert wurde. Das Grundwasser wurde mit zunehmender Distanz zur Versickerungsstelle beprobt und auf Arzneimittelrückstände untersucht. Die untersuchten Substanzen zeigten je nach chemischer Struktur, Verlauf und Verbleib durch die Wiederaufbereitung unterschiedliches Verhalten. Dabei verhielt sich Carbamazepin sehr konservativ und wurde nach langen Fließstrecken im Untergrund nur geringfügig abgebaut. Im Gegensatz dazu konnte im Beobachtungsverlauf (erst im Klärwerk, anschließend in den Grundwassermessstellen) ein teilweiser Abbau bei den Substanzen Diazepam und Diclofenac beobachtet werden.

Die Arbeit von Salomon (2005) basiert auf Daten aus BLAC 2003. Sie fasst maximal gemessene Werte von Arzneimittelwirkstoffen im Grundwasser, Oberflächengewässer und in Kläranlagenabflüssen zusammen und diskutiert den Handlungsbedarf.

In LFU (2002) wurden Arzneimittelwirkstoffe und endokrin wirksame Substanzen in 80 % aller untersuchten Grundwassermessstellen in Baden-Württemberg nachgewiesen. Ein direkter Zusammenhang mit den ermittelten Befunden an Bor (s. a. Kapitel 4.3.1) bestand nur zwischen dem Grundwasser und der Abwasserbeeinflussung im Einzugsgebiet. Je nach Abbaubarkeit der Wirkstoffe verringerten sich die Konzentrationen in zunehmender Entfernung von den Kläranlagen. In LUBW (2006) standen die landwirtschaftstypischen Parameter wie Nitrat und Pflan-

zenschutzmittel im Vordergrund der Grundwasseruntersuchungen. Es wurden in diesem Rahmen aber auch Untersuchungen auf organische Spurenstoffe, u. a. Arzneimittelwirkstoffe an 22 Verdachtsmessstellen durchgeführt, von denen in sechs Messstellen keine Arzneimittel nachweisbar waren. Die anderen 16 Messstellen waren mit bis zu sieben Wirkstoffen belastet. Die sowohl nach Anzahl als auch nach Konzentration am häufigsten vertretenen Substanzen waren Carbamazepin, Diclofenac und die iodierten Röntgenkontrastmittel Iopamidol und Amidotrizoesäure. Bei der Beprobung 2000 (s. a. LFU 2002) waren acht Messstellen unbelastet, maximal vier Substanzen wurden an den am stärksten belasteten Messstellen gefunden. Gegenüber dem Jahr 2000 (LFU 2002, s. o.) wurden 2006 also mehr Wirkstoffe an mehr Messstellen nachgewiesen. Am höchsten mit den meisten Wirkstoffen belastet, waren zu beiden Untersuchungszyklen die zwei Messstellen, die sich neben oder auf dem Betriebsgelände von Kläranlagen befanden, gefolgt von einer Messstelle im Bereich einer Abwasserhebeanlage und zwei Messstellen, die zwischen Abwassersammler und Bächen lagen. Carbamazepin, Diclofenac und Bezafibrat wurden in Konzentrationen von 500 bis 1200 ng/l gefunden, Röntgenkontrastmittel wurden in geringeren Konzentrationen von bis zu 200 ng/l nachgewiesen. In Messstellen, die durch Kläranlagenabläufe bzw. Uferfiltrat beeinflusst sind, fanden sich Bezafibrat und Diclofenac nicht mehr, aber Carbamazepin und Amidotrizoesäure in vergleichsweise hohen Konzentrationen. Dies ist der Fall bei den durch die Donau (1/716-8) und den Neckar beeinflussten Messstellen wobei sich insbesondere am Neckar der starke Einfluss der Uferfiltration durch die Stauhaltung zeigte.

Sacher et al. (2005) wiesen nach, dass jodierte Röntgenkontrastmittel durch Kläranlagenabläufe in Fließ- und Oberflächengewässern feststellbar sind und ebenfalls in das Grundwasser gelangen, näheres s. Kapitel 4.4.3. Benotti et al. (2006) untersuchten 70 Grundwasserproben (aus dem oberen Glazial) auf 24 Arzneimittelwirkstoffe, die zwei häufigsten waren Carbamazepin und Sulfamethoxazol. Ein Vergleich mit Fließgewässeruntersuchungen in den USA (1998-2000) ergab, dass die Durchschnittswerte im ähnlichen Bereich lagen, aber 5- bis 7-mal niedriger waren, als die therapeutische Dosis. Die Häufigkeit einzelner Wirkstoffe im Grundwasser lag außerdem niedriger als in den Fließgewässern.

Untersuchungen hinsichtlich der Grundwasserbeeinträchtigung durch Arzneimittelwirkstoffe und andere organische Belastungen an fünf Standorten im Umfeld einer Deponie in Oklahoma (USA) nahmen Barnes et al. (2004) vor. Die ermittelten Werte sind unterschiedlich in Abhängigkeit vom Alter der deponierten Substanzen (Ablagerung) und der Entfernung vom Standort.

4.3.7 Arzneimittelwirkstoffe im Uferfiltrat

Den Pfad Kläranlage Oberflächengewässer - Uferfiltrat - Grundwasser zeichnet der Bericht der LFU Bayern (2004) nach, näheres s. Kapitel 4.3.3. In den bundesweit durchgeführten Untersuchungen des BLAC (2003) wurden im „gewässernahen Grundwassern (Uferfiltrat)“ Medianwerte ermittelt, die höher als 0,1 µg/l waren. Im Rahmen umfangreicher und systematischer Untersu-

chungen des TZW zum Vorkommen von Arzneimittelwirkstoffen in der aquatischen Umwelt, beschreiben Sacher et al. (2001) die Untersuchungen von 250 Proben in den Jahren 1996-2000 entlang des Rheins (Basel, Karlsruhe, Mainz, Düsseldorf). Am häufigsten traten Diclofenac und Carbamazepin, in Konzentrationen zwischen 10 und 1000 ng/l, auf. Während Diclofenac während der Uferfiltration gut abgebaut wird, findet sich Carbamazepin regelmäßig in den Uferfiltratproben. Ternes (2002) beschäftigte sich mit vier relevanten Arzneimittelwirkstoffen (Diclofenac, Carbamazepin, Clofibrinsäure und Bezafibrat) und deren Abbau während der Uferfiltration und der künstlichen Grundwasseranreicherung. Der biologische Abbau ist einer der entscheidenden Faktoren, der die Elimination von organischen Substanzen während dieser Prozesse bestimmt. Um die generelle biologische Abbaubarkeit von Pharmaka in der aquatischen Umwelt zu bewerten, wurden Batch-Experimente gemäß den OECD-Richtlinien durchgeführt. Dazu kam Oberflächenwasser, Grundwasser und Filtermaterial zum Einsatz. Die Bedingungen waren sowohl anoxischer wie auch aerober Art. Es wurde kein signifikanter Abbau der Arzneimittelwirkstoffe festgestellt, dies wurde auf die niedrigen Sorptionseigenschaften, eine hohe Persistenz und nichtangepasste Mikroorganismen zurückgeführt. Daraufhin erfolgte ein Einsatz von verschiedenen Wasserbehandlungsverfahren (Flockung, Ozonierung).

4.4 Prozess der Uferfiltration

Die Arbeiten zu diesem Schwerpunkt befassen sich mit den wirksamen hydrogeologischen und hydraulischen Parameter sowie der Lage der Entnahmebrunnen zu den bei der Uferfiltration wirksamen Gewässerabschnitten an den untersuchten Standorten.

Wie bedeutend die Uferfiltration für die Wassergewinnung in Deutschland, Großbritannien und den USA ist, wird durch nachfolgend beschriebene Veröffentlichungen zum Prozess der Uferfiltration verdeutlicht. Hier werden die Strömungs- und Transportprozesse untersucht, die im Oberflächengewässer, im Grundwasser und an der Grenzschicht (Kolmationsschicht) den Prozess Uferfiltration beeinflussen. Die Veröffentlichung von Sheets et al. (2002) präsentiert die Ergebnisse einer Studie zur Uferfiltration in Ohio (USA). Die Reduzierung pathogener Keime wird angesprochen, ist aber nicht Bestandteil der Untersuchungen der Arbeit. Es geht vielmehr um die Grundlagen wie die Feldparameter Grundwasserspiegel, Leitfähigkeit und Wassertemperatur. Es wurde festgestellt, dass ein einfacher messbarer Feldparameter wie z.B. die Leitfähigkeit verwendet werden kann, um die Fließgeschwindigkeiten des Flusses zu den Beobachtungsbrunnen abzuschätzen. Es hat sich auch gezeigt, dass die Zeiten kürzer und die Geschwindigkeit beständiger ist, wenn das Pumpen kontinuierlich abläuft.

Untersuchungen zu Uferfiltrationsprozessen entlang der Elbe werden im Raum Torgau durchgeführt. Die recherchierten Veröffentlichungen (Grischek et al. 1997, Hiscock & Grischek 2002) beschreiben jedoch entweder nur den Prozess der Uferfiltration unabhängig von Arzneimittelwirkstoffen oder analysieren nur Daten zu Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen im Oberflächengewässer bzw. Grundwasser. Dabei ist die Beschreibung von Transekten entlang der Galerien des Wasserwerkes Torgau (Grischek 1997) für die vorliegenden Untersuchungen am

interessantesten. Es geht in erster Linie um das Verhalten von EDTA bei der Untergrundpassage und der Ausweisung von Infiltrationszonen an der Elbe. Auf der Grundlage von Messungen in der Elbe und im Grundwasser können durch Uferfiltration beeinflusste Bereiche des Grundwasserleiters sicher ausgewiesen werden. Weiterhin ist eine Abschätzung der Mischungsanteile von Uferfiltrat und echtem Grundwasser im Rohwasser der Brunnen möglich. Die Messungen erfolgten entlang zweier Transekten im Bereich der Brunnen des Wasserwerkes Torgau. Die beschriebenen Uferfiltrationsprozesse besitzen auch Bedeutung für die Betrachtung hinsichtlich der Einträge von Arzneimittelwirkstoffen.

Bloem & Jekel (2006) befassen sich in Experimenten in Batchreaktoren und Festbettfiltern mit der Rolle des Redoxmilieus für die Aufbereitungswirkung der Uferfiltration. Analytische Verfahren zur Bestimmung der minimalen Fließzeit vom Ufer zum Brunnen werden von Dillon et al. (2002) erläutert. Hintergrund ist die Standortoptimierung für Brunnen zur Nutzung von Uferfiltrat in Bereichen mit salinem Grundwasser und Mikrozystinen im Oberflächenwasser am Murray River in Australien. Verwendet wird hier das Programm Modflow (s. Kapitel 4.6).

Kelly & Rydlund (2006) untersuchten im Grundwasser physikalische und chemische Parameter, Chlorophyll und Bakterien, Protozoen und Viren. Die Fließgeschwindigkeit des Grundwassers vom Missouri River (USA) zur Brunnengalerie schwankte zwischen 0,37 und 2,02 Meter / Tag. Diese Raten sind geringer als in Langsamsandfiltern. Eine langsamere Grundwasserströmung führt zu größerer Filtration und zeigt damit an, dass die Uferfiltration mit dem Langsamsandfilter vergleichbar ist oder effektiver sein kann. Eindeutige Unterschiede in der Wasserqualität des Flusses und der Brunnen wurden nicht gefunden, was auf den starken Einfluss der Uferfiltration zurückgeführt wird. Untersucht wurden u. a. Chloroform und Tannin (zusammen mit Lignin), letzteres kommt bei Hauterkrankungen zum Einsatz.

Untersuchungen zur Durchlässigkeit der Kolmationsschicht (clogging) bei Fließgewässern (Saint John River in Kanada) wurden von Goldschneider et al. (2007) durchgeführt, mit Hinblick auf die Einflüsse von Flutereignissen. Ebenfalls auf Hochwasser gehen Wett et al. (2002) ein, das destabilisierend auf das Flussbett einwirkt und die Filtereffizienz des Ufers reduziert. Zum Nachweis wird Nitrat als Tracer empfohlen, allerdings nur in einem aeroben Aquifer mit hohen Hintergrundkonzentrationen im Grundwasser.

Hiscock und Grischek (2002) fassen in ihrer Arbeit die Ergebnisse eines Workshops verallgemeinert zusammen. Sie zeigen auf, dass der Erfolg der Wassergewinnung aus Uferfiltrat zum großen Teil von der mikrobiellen Aktivität und der chemischen Umwandlung in der Kolmationsschicht des Flussbettes abhängt. Eine Vielzahl von Faktoren im Oberflächenwasser, im Grundwasser und in der Kolmationsschicht bestimmt am Ende die Qualität des als „Uferfiltrat“ entnommenen und zur Trinkwassergewinnung verwendeten Wassers.

Bei Horner et al. (2007) geht es um die Betrachtung von DOC und in Auswertung von Säulenversuchen um ein Stofftransportmodell, das mit MATLAB (1D Finite Differenzen Methode) und PHREEQC (reaktiver Transport) erstellt wurde.

Lenk et al. (2006) beschäftigen sich mit technischen Konzepten und abgestimmten Betriebsweisen zur optimalen Anpassung der Uferfiltration an lokale Randbedingungen. Dazu erfolgt die Klassifizierung mitteleuropäischer Uferfiltrationsstandorte anhand von Literaturdaten und Umfragen bei Wasserversorgungsunternehmen. Berücksichtigt wurden Wasserwerke und Untersuchungsstandorte mit einem Anteil von mindestens 50 % Uferfiltrat im Wasser der Brunnen und Grundwassermessstellen. Die Untersuchungen verschiedener Uferfiltratsysteme zeigen Abhängigkeiten bei Transport-, Eliminierungsverhalten und bei der Fixierung von Stoffen im Untergrund von hydrogeologischen, hydraulischen und physikalisch-chemischen Faktoren. Die aus den Literaturrecherchen und den Umfragen ermittelten Daten führten mittels einer Clusteranalyse zur Unterscheidung in vier Standortgruppen (s. a. Kapitel 4.3). Die Ergebnisse zur Reinigungsleistung aller mitteleuropäischen Standorte und von ähnlichen Standortgruppen mit Uferfiltration wurden mit den Parametern DOC, Sauerstoff und Nitrat modellhaft dargestellt. Auch Ziegler (2001) untersucht in seiner Dissertation zum Thema „Untersuchungen zur nachhaltigen Wirkung der Uferfiltration im Wasserkreislauf Berlins“ die Reinigungsleistung der Berliner Uferfiltration für organische Stoffe anhand von DOC. Es stellte sich heraus, dass während der Bodenpassage in Kläranlagen ca. 20-45 % (im Mittel) des DOC entfernt wurden, während in Experimenten (Bodensäulen) 30 % eliminiert (nach 3 m) wurden. Diese DOC-Werte können als Vergleiche für Stoffeinträge (z. B. für Arzneimittelwirkstoffe) herangezogen werden.

Marschke et al. (2005) gehen ebenfalls auf die Reinigungsleistung ein. Beurteilt wird diese in Bezug auf die Mechanismen biologischer Abbau und Lösungs-/Fällungsreaktionen. Dominierende Mechanismen sind der Stofftransport, die biochemischen Reaktionen (Redoxpotenzial, Sauerstoffgehalt) und die mikrobiologische Umsetzung. Es wurden die drei Standorte Rhein und Nebenflüsse Ruhr und Sieg, der Rhein bei Flehe und die Elbe bei Torgau (-Ost I) untersucht. Hierzu wurde auf die Untersuchungen anderer Autoren zurückgegriffen. Das Ergebnis war eine hohe Abbauleistung der Mikroorganismen zu Beginn der Uferfiltratpassage, eine Verminderung bei zunehmender Fließstrecke. Im Verlauf der Passage gewinnen Mischeffekte mit unbelastetem Grundwasser an Bedeutung. Bei hohem Anteil organischen Materials im Sedimentkörper kann es entlang anaerober Uferfiltratstrecken zur Methanbildung kommen.

Schubert (2002) beschreibt in seiner Arbeit Untersuchungen zu Fließ- und Transporteigenschaften bei der Wassergewinnung aus Uferfiltrat am Rhein (Wasserwerk Flehe mit Beschreibung der Brunnenstandorte, Entfernungen, Entnahmentiefen, Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) die Dynamik von Fluß-Aquifer-Wechselbeziehungen und die Auswirkungen von Pegelschwankungen. Diese Schwankungen sind von Bedeutung für Verdichtungs- und Hemmungsprozesse ebenso wie für Geschwindigkeiten und Verweilzeiten im Untergrund, können aber ebenfalls die Wasserqualität beeinflussen. Die Alterstiefenschichtung des Uferfiltrats wirkt ausgleichend auf Konzentrationsschwankungen von gelösten Inhaltsstoffen.

Kuhlmann (1997) geht nicht auf den Abbau von Arzneimitteln im Uferfiltrat ein, sondern auf den biologischen Abbau allgemein.

Die Veröffentlichungen von Schmidt (2006) und Schmidt et al. (2006b) mit den Titeln „Assessing the impact of local boundary conditions on the fate of organic micropollutants during underground passage“ und „Natürliche Barrieren und Effektivität der Ufer- und Langsandsandfiltration zur Entfernung organischer Spurenstoffe“ haben jeweils den gleichen Inhalt wie im BMBF-Projekt vorgestellt (Schmidt et al. 2006a).

Schulte-Ebbert (2004) geht u. a. auf die Historie der Trinkwassergewinnung durch Uferfiltration ein, formuliert daraus die Ziele zur Eliminierung pathogener Keime und chemischer Wasserinhaltsstoffe und kommt zu dem Schluss, dass dieses Verfahren auch in Ländern einsetzbar ist, die nicht über entsprechende Techniken verfügen. Des Weiteren wird auf die Grundlagen der Uferfiltration eingegangen, auch im Unterschied zur Grundwasseranreicherung. Ein ausführlicher Teil behandelt die Reinigungsmechanismen während des Prozesses. Die Ergebnisse zeigen, dass in einer Kies-Vorfiltration nur ein mäßiger Abbau von organischen Substanzen erfolgt, in Langsandsandfiltern ist der Abbau gegenüber der Kies-Vorfiltration um 50 % höher. Während der Untergrundpassage erhöht sich der Abbau von organischem Kohlenstoff weiter und wird in mikrobiell besonders aktiven Filterbereichen oxidiert, so dass sich der Anteil an Huminstoffen am organischen Kohlenstoff während der Infiltration erhöht.

4.5 Darstellung des Prozesses der Uferfiltration anhand von organischen und anorganischen Spurenstoffen

Die Untersuchungen zum Stofftransport anderer Substanzen außer den Arzneimittelwirkstoffen stellen den Schwerpunkt einiger Forschungsarbeiten dar, werden aber bei der Modellierung nicht berücksichtigt. Im Ergebnis der Literaturrecherche liegen Veröffentlichungen vor, die durch Feld- oder Laborversuche entweder grundsätzliche Prozessabläufe dokumentieren oder Uferbereiche beschreiben, an denen Untersuchungen zum Abbauverhalten organischer Substanzen (Schmidt 2004 & 2006) durchgeführt wurden.

Bourg et al. (1989) beschreiben u. a. ein Beispiel für geochemische Filtration und Schwermetalleinträge im Uferfiltrat eines belasteten Flusses im Norden Frankreichs. Worch et al. (2002) haben durch Laborversuche mit einem zweistufigen Test (Biologische Abbaubarkeit und Adsorption) festgestellt, dass die Abbaubarkeit der Nitroaniline und der höher chlorierten Aniline langsam verläuft. Für die Versuche wurde zum einen Wasser aus der Elbe und zum anderen Sand aus dem Aquifer der Uferfiltration in der Nähe von Torgau entnommen. Die Simulation des Sorptionsprozesses erfolgte gemäß den Säulenexperimenten von Kümmel & Worch (1990). Die Adsorption auf das sandige Material war niedrig.

Strauch et al. (2005) führten nach dem Hochwasser 2002 Untersuchungen an den Flüssen Mulde und Elbe durch. Beide dienen der Uferfiltration. Es wurden diverse Boden- und Pflanzenproben aus den überschwemmten Uferbereichen im Wasserschutzgebiet der Elbe entnommen und hinsichtlich anorganischer Kontaminanten untersucht. Es wurden aber keine Arzneimittelwirkstoffe im Oberflächenwasser, Grundwasser oder im Uferfiltrat untersucht.

4.6 Transportmodellierung

Nachfolgend wird - ergänzend zu Kapitel 3, wo die Modelle selber im Mittelpunkt standen - ausgewählte Literatur beschrieben, die sich entweder mit der Transportmodellierung, mit der Uferfiltration oder mit Arzneimittelwirkstoffen befasst. Zumeist haben die veröffentlichten Arbeiten keinen gemeinsamen Bezug zur Uferfiltration und zu Arzneimittelwirkstoffen.

Kim und Corapcioglu (2002) haben ein rein theoretisches, kinetisches Modell zur Simulation des Schadstofftransports nach der finite-difference-Methode, für eine Flussuferfiltration (Texas, USA), auf der Grundlage des DOC und in Anwesenheit von Bakterien, entwickelt. Die Verfasser greifen im allgemeinen Teil auf Arbeiten anderer Autoren zurück, eigene Daten wurden nicht erhoben. Ackerman et al. (2006) setzen sich mit den Bedingungen für die Entwicklung eines Grundwasserströmungsmodells auseinander, das auf die komplexen geologischen Verhältnisse in einem Flussgebiet in Idaho abgestimmt ist. Prechtel et al. (2006) beschreiben Anforderungen an ein Modell, in diesem Fall um die Simulation von BTX (2-D) und Arsen (1-D) auf der Basis eines eigenständigen plattformunabhängigen Softwarewerkzeuges (Richy).

Hund-Göschel et al. (2007) entwickelten auf der Basis der Strömungsmodelle MODFLOW und MT3DMS ein Transportmodell, um Simulationsberechnungen für Nitratgehalte in einem Grundwassereinzugsgebiet (Mannheim-Rheinau) durchführen zu können. Der Wasserversorger soll auf diese Weise in die Lage versetzt werden, vorausschauend zu planen sowie die Grundwasserbewirtschaftung und die Rohwasseraufbereitung optimieren zu können. BEIMS (1997) stellte in den „Materialien zur Altlastenbehandlung“ (Sachsen), Simulationen von Grundwasserströmungs- und Schadstofftransportprozessen in Lockergesteinsgrundwasserleitern vor. Verwendet werden numerische Lösungen von Strömungsproblemen und numerische Berechnungen des Stofftransportes auf der Grundlage von FD-, FE-, FV-Verfahren, Charakterisierungsmethode und Random-Walk-Verfahren. Leider stammen die eingesetzten Programme, wie auch das von Chen et al. (1992, Oklahoma, USA), aus den frühen neunziger Jahren. Auf die Bedingungen und Ansprüche an ein Grundwasserströmungs- und Transportmodell geht Mandle (2002) ein. Strauch et al. (2003) gehen ebenfalls auf die Bedingungen zur Erstellung eines Strömungsmodells ein. Ein erstes Modell für das Untersuchungsgebiet Halle/Saale und der Saale soll den Gebrauch von Indikatoren zur Bewertung urbaner Effekte auf das Oberflächengewässer demonstrieren. Konzentrationsmuster von u. a. endokrin wirksamen Substanzen (ermittelt wurden solche mit ökotoxischen und immunstimulierenden Effekten) zeigen eine unterschiedliche Belastung entlang der Stadtquerung der Saale.

Ebenfalls in Sachsen (LFUG 2001), in den Materialien zur Altlastenbehandlung, wurden Simulationsprogramme zur Anwendung von Schadstoffprogrammen unter Berücksichtigung anorganischer und organischer Schadstoffe vorgestellt. Es handelt sich um eine inverse Modellierung am Beispiel einer Deponie mit dem Programm PHREEQC (Berechnung der Gleichgewichte in wässrigen Lösungen und Wechselwirkungen mit Feststoff- und Gasphasen). In der Arbeit von Trepel & Kluge (2002) werden gängige Modelle (FLOTTRANS und MODFLOW) genannt, die zur

Umsetzung der WRRL in Schleswig-Holstein eingesetzt werden können, die u. a. für hydrogeologische Fragen im Grundwasserschutz verwendet werden, um Anströmungen und Verweilzeiten zu berechnen. Zur Simulation der Grundwasserströmung und daran gekoppelte Transport- und Transformationsprozesse wurden u. a. MODFLOW, PMWIN, FEFLOW, MIKE-SHE als geeignet angesehen. Nicht auf der Grundlage, aber mit einer Schnittstelle zu MODFLOW 96 und MIRT3D(ms) testeten Zaadnoordijk und van der Wal (2002) im holländischen Küstengebiet das TRIWACO-Modell, um die Dichteverteilung im Grundwasserabfluss des Süß- und Brackwassers festzustellen. Dazu wurde die Anfangsverteilung aus den Messungen und den hydrogeologischen Kenntnissen abgeleitet und die Verteilung in der Kalibrierung des Grundwasser-Modells verbessert. Das System hat eine beträchtliche Bandbreite, das den Benutzern erlaubt, Anreicherungsverhältnisse zu bestimmen sowie Oberflächenabfluss etc. zu errechnen.

Analytische Verfahren zur Bestimmung der minimalen Fließzeit vom Ufer zum Brunnen werden von Dillon et al. (2002) mit Bezug zu MODFLOW, als einer sehr guten Wahl zur Prozessabbildung der Uferfiltration erläutert. Wiese (2006) erstellte ein inverses Transportmodell, das mit hydraulisch kalibrierten Parametern eine Vorhersage der ablaufenden Prozesse ermöglicht. Er kommt zu dem Ergebnis, dass der Sauerstoffeintrag die Redoxprozesse in der Infiltrationszone dominiert. In Kombination mit der Lage des Grundwasserstauers führt das dazu, dass auch widersprüchliche und lokale geochemische Verhältnisse schlüssig interpretiert werden können.

Fazit

Die Auswertung der national und international vorliegenden Literatur verdeutlicht, dass zu der speziellen Thematik bisher nur an wenigen Standorten detaillierte Forschungsergebnisse vorliegen, die gleichzeitig Aussagen zu Prozessen der Uferfiltration, des Transportes von Arzneimittelwirkstoffen und dessen Simulation durch ein mathematisches Modell beinhalten.

Den wesentlichen Anteil der Veröffentlichungen bilden Arbeiten zu gemessenen Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen in Oberflächengewässern bzw. Kläranlagenabläufen oder nur im Grundwasser ohne Betrachtung des Eintragspfades. Konkrete Untersuchungen des Stofftransportes bei der Uferfiltration entlang von Transekten vom Oberflächengewässer hin zum Entnahmebrunnen wurden nur an Standorten im Berliner Raum (Havel/Spree) sowie am Rhein und der Elbe vorgenommen und im Rahmen der jeweiligen Forschungsprojekte publiziert.

Auf Grundlage der Ergebnisse und Daten dieser Arbeiten (s. Kapitel 5) wurden die weiteren Arbeitsschritte konzipiert und die Strömungs- und Transportmodellierung (s. Kapitel 6) mit dem Programm Visual Modflow durchgeführt.

5 Datenrecherche zum Eintrag von Arzneimittelwirkstoffe bei der Uferfiltration in das Grundwasser

In Kapitel 4.2 und 4.3 wurden die im Rahmen der Literaturrecherche beschriebenen Standorte an der Havel, dem Niederrhein und der Elbe hinsichtlich des Verhaltens von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration analysiert. An den Standorten wurden im Rahmen der beschriebenen Forschungsprojekte Daten entlang von Transekten erfasst, mit denen sich Transportprozesse beschreiben und modellhaft darstellen lassen. Die den Ergebnisse zugrunde liegenden unveröffentlichten Rohdaten zum zeitlichen Verlauf der Verteilung der Arzneimittelwirkstoffe sowie die genauen hydraulischen und hydrogeologischen Randbedingungen entlang der Transekten sind für die Verifizierung der Modellergebnisse im Rahmen dieser Bearbeitung unverzichtbar. Von den in Tab. 4 aufgeführten Institutionen wurden diesbezüglich Daten projektbezogen recherchiert und digital zur Verfügung gestellt:

Tab. 4: Standorte mit recherchierten Daten zum Verhalten von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration

Standort	Wassergewinnung	Projektträger
Havelgewässer (Berlin)	WW Tegel, WW Beelitzhof	Kompetenz Zentrum Wasser Berlin (KWB)
Niederrhein (Düsseldorf)	WW Flehe, WW Grind	Stadtwerke Düsseldorf
Elbe (Torgau-Ost)	WW Torgau-Ost	Fernwasserversorgung Elbaue-Ostharz GmbH Torgau

Eine detaillierte Beschreibung der Standorte anhand der übergebenen Daten wird im Folgenden vorgenommen und orientiert sich an den für die Bearbeitungsmethodik wichtigen Schlüsselparametern. Daher liegen die Schwerpunkte der Darstellung (im Gegensatz zu den Ausführungen in Kapitel 4.2) auf den hydrogeologischen und hydraulischen Gegebenheiten entlang der Transekten, der Geometrie von Uferbereich und Wasserfassungen (Lage der Brunnen und GWM), der Betriebsweise der Brunnen sowie den Daten zu den Arzneimittelwirkstoffen.

5.1 Havelgewässer Berlin

Zum NASRI-Projekt (s. Kapitel 4.2.1) wurden vom KWB die bisher unveröffentlichten Teilberichte sowie eine Datenbank mit Stammdaten der Messstellen und Brunnen sowie Messwerten der Arzneimittelwirkstoffe (Massmann et al. 2008, Heberer et al. 2008) übergeben. So kann die Grundwasserströmung entlang der Transekten anhand detaillierter hydrogeologischer Profilschnitte nachvollzogen werden. Eine Abschätzung des Stofftransportes der Arzneimittelwirkstoffe bei der Uferfiltration wird durch mehrjährige Messreihen mehrerer Wirkstoffe ermöglicht.

Weiterhin stehen Grundwasserströmungsmodelle (Engelmann 2005, Wiese 2006) für diese Bereiche zur Verfügung, die auf dem Simulator PMWIN basieren. Die Modelle können aufgrund ihrer Dimensionierung und zugrunde liegenden Fragestellung nicht für diese Bearbeitung übernommen bzw. genutzt werden. Allerdings dient die für eine Simulation der Grundwasserströmung optimierte Parameterverteilung als zusätzliche Datengrundlage.

Standortbeschreibung

Entlang der Havelgewässer und der Spree wurden in Berlin mehrere Transekte mit Grundwassermessstellen zwischen dem Oberflächengewässer und der jeweiligen Brunnengalerie zu unterschiedlichen Forschungszwecken errichtet. Im Rahmen des NASRI-Projektes fand eine Untersuchung des Verhaltens von Arzneimittelwirkstoffen an drei Transekten statt. Davon befindet sich eine am Tegeler See und zwei weitere nebeneinander am Wannsee (s. Abb. 23).

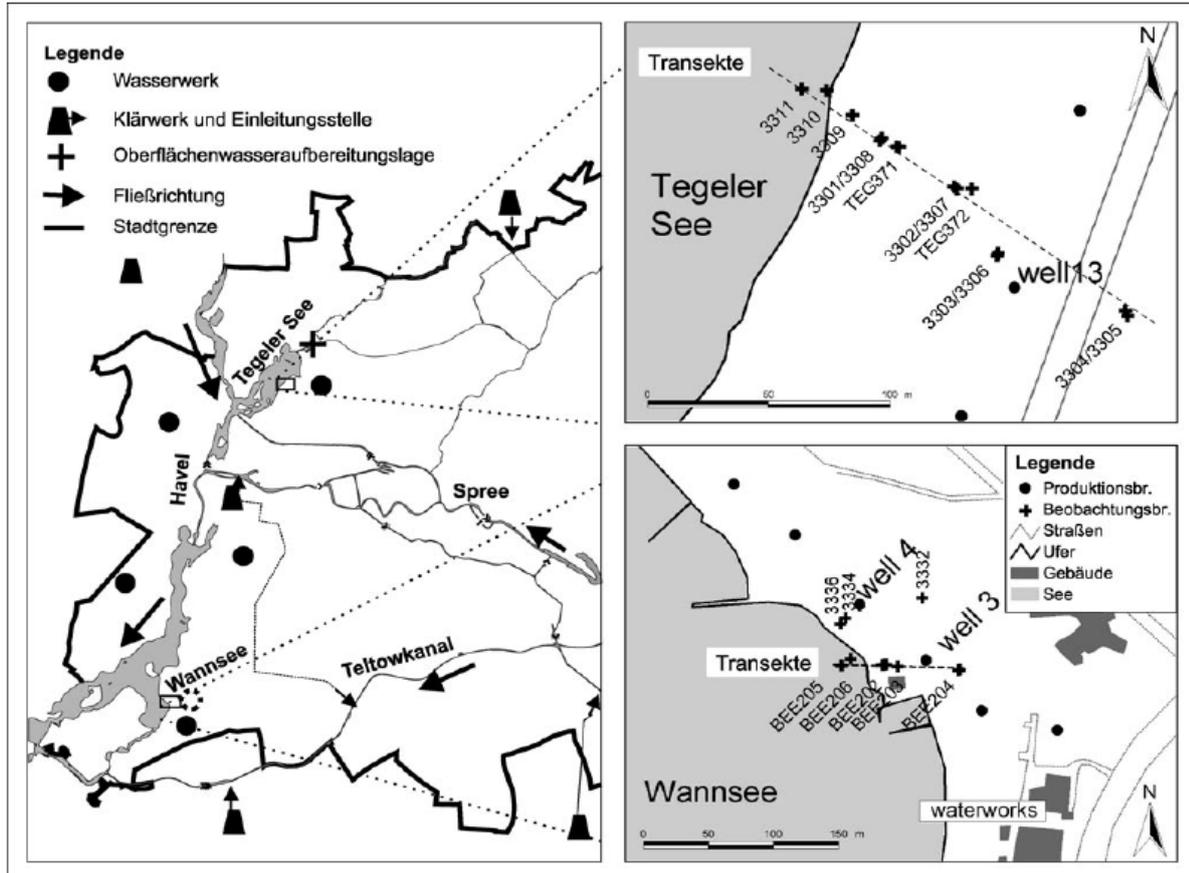


Abb. 23: Lage der Transekten zur Untersuchung der Uferfiltration entlang der Havelgewässer im Westen Berlins (aus: Massmann et al. 2007a).

Bedingt durch eine bessere Datenlage und das stabilere Förderregime der Galerie Beelitzhof wird nur der Standort am Wannsee mit dem Transekt 2 für die weiteren Modellbetrachtungen genutzt und wird im Folgenden beschrieben.

Die Transekte 2 am Wannsee befindet sich im Südwesten Berlins am Brunnen 3 der Galerie Beelitzhof der BWB. Hier ist der genutzte oberflächennahe Grundwasserleiter durch Wechselagerungen pleistozäner glazifluviatiler Lockersedimente der Saale- und Weichsel-Kaltzeit gekennzeichnet. Es handelt sich überwiegend um fein- bis grobkörnige Mittelsande, mit Durchlässigkeitsbeiwerten zwischen $1 \cdot 10^{-5}$ und $1 \cdot 10^{-3}$ m/s (Massmann et al. 2007a). Die Grundwasserleiterbasis für den oberen Grundwasserleiter bildet ein Ton des Holstein-Interglazials mit hohem Anteil organischen Kohlenstoffs. Entlang der Galerie am Wannsee sind die Brunnen teilweise auch in einem tieferen elsterzeitlichen glazifluviatilen Grundwasserleiter verfiltriert, der wiederum von einem elsterzeitlichen Schluff unterteilt wird. Ein vereinfachtes geologisches Profil des Transektes 1 am Wannsee mit Angabe der k_f -Werte zeigt Abb. 24.

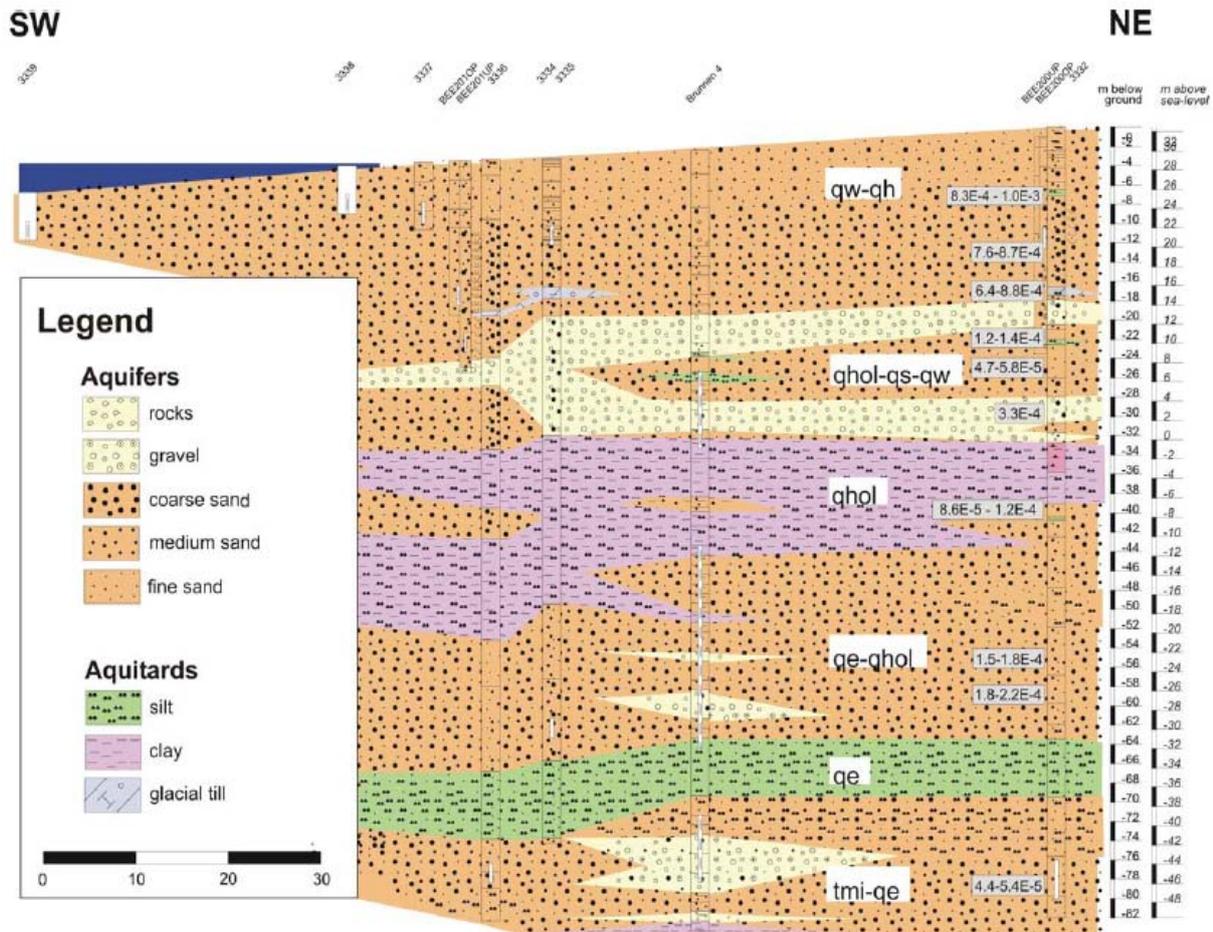


Abb. 24: Lithologischer Profilschnitt entlang der Transekte 1 Wannsee - Brunnen 4 in direkter Nachbarschaft zur Transekte 2 (Pekdeger et al. 2006)

Die Brunnen befinden sich ca. 30 Meter vom Ufer des Wannsee entfernt und sind in einer Tiefe von 25 bis 80 Meter unter GOK ausgebaut. Der Ufer-Brunnen-Abstand ist relativ konstant da der Wasserspiegel durch Stauhaltung reguliert wird. Dabei befindet sich die oberste Filterstrecke im (durch die Wasserwerke hauptsächlich genutzten sog.) Hauptgrundwasserleiter oberhalb der bindigen Sedimente des Holstein Interglazials (s. Abb. 26 & 27) und wird direkt durch Uferfiltrat gespeist. Nur diese 10 m lange Filterstrecke ist daher von Interesse.

Datenlage

In der NASRI Datenbank sind für den Zeitraum 2002-2004 Messwerte zu nachgewiesenen Arzneimittelwirkstoffen entlang der Transekten Tegel und Wannsee zusammengestellt. Dabei wurde zwischen der Gruppe der Arzneimittelwirkstoffe im engeren Sinne (Bezafibrat, Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Indometacin, Primidon, Propyphenazon) und den Antibiotika (Acetyl-, Sulfomethoxazol, Trimethoprim, Clarithromycin, Clindamycin, Sulfadimidin, Roxithromycin, Dehydrato-Erythromycin) unterschieden. Die Ergebnisse zu den Arzneimittelwirkstoffen (Massmann et al. 2008 sowie Heberer et al. 2008) sind in Anlage 3 dokumentiert.

5.2 Rhein - Düsseldorf

Der Standort Wasserwerk Flehe am Rhein wurde im Zuge eines BMBF-Vorhabens im Jahre 1988 angelegt und seitdem zur Untersuchung der Uferfiltration mit unterschiedlicher Zielstellung

genutzt. Messwerte von Untersuchungen zum Verhalten von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration liegen bei den Stadtwerken Düsseldorf für das Jahr 2003 vor. Diese Datenbank und detaillierte Standortinformationen wurden zur projektbezogenen Verwendung seitens der Stadtwerke Düsseldorf dem UBA zur Verfügung gestellt.

Standortbeschreibung

Die Transekte des Testfeldes am WW Flehe (s. Abb. 25) liegt am Stromkilometer 731,5 am Rhein im Einzugsgebiet des Wasserwerkes Flehe und wurde im Jahre 1988 angelegt.

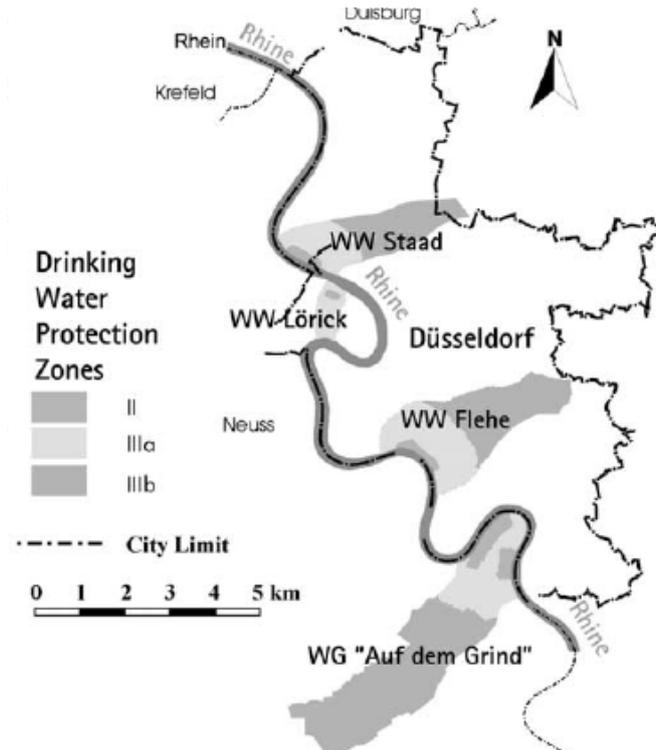


Abb. 25: Standorte am Niederrhein (Eckert & Irmischer 2006)

Die Profilstrecke verläuft durch den Heberbrunnen 45 und wird von drei Messstellengruppen in je drei Teufen ergänzt (s. Abb. 26). Der durchschnittliche Uferbrunnen-Abstand beträgt 50 m, ist aber im Gegensatz zu den Berliner Gewässern auch vom Wasserstand im Rhein abhängig. Hier ist auch die Lage des für 2003 vorherrschenden Niedrigwasserstandes skizziert. Weiterhin wird deutlich, dass der Gradient innerhalb der Uferpassage neben der Entnahmemenge insbesondere vom Rheingang abhängig ist. Bei geringerem Wasserstand im Rhein ist bei gleicher Entnahmemenge ein höherer Anteil landseitigen Grundwassers zu erwarten.

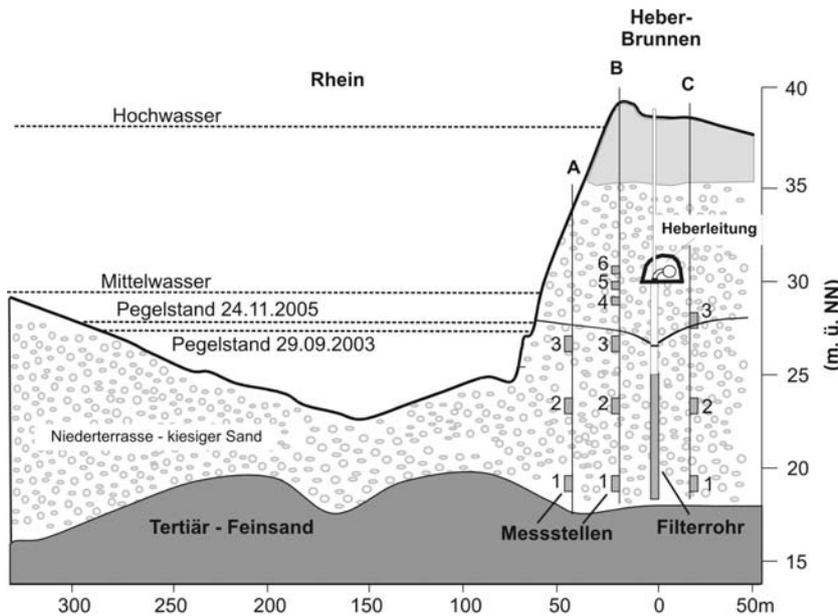


Abb. 26: Profilschnitt entlang der Transekte am Standort Flehe (Eckert 2006)

Der genutzte Grundwasserleiter in der Niederterrasse würde bei Mittelwasser eine wassererfüllte Mächtigkeit von ca. 10 Metern aufweisen. Der Brunnen ist an der Basis des genutzten Grundwasserleiters mit einer Filterstrecke von 7 Metern ausgebaut. Die auf Pumpversuchen basierenden k_f -Werte weisen mittlere Werte zwischen 1 bis $3 \cdot 10^{-3}$ m/s im Bereich der Niederterrasse auf. Dementsprechend liegen

die Entnahmemengen der Einzelbrunnen bei ca. 30 bis 35 m³/h.

Datenlage

Die hydrochemischen Daten wurden als Excel-Dateien übergeben und liegen als Zeitreihen aus dem Jahr 2003 vor. Zur Bewertung der Daten wurden die Veröffentlichungen zu den einzelnen Forschungsprojekten beigelegt. Zu folgenden Arzneimittelwirkstoffen liegen vom Sommer 2003 vom Rhein und den B-Messstellen Messwerte vor die in Anlage 4 dokumentiert sind: Carbamazepin, Amidotrizoesäure, Sulfametaxol, Iopamidol, Diclofenac und Bezafibrat.

5.3 Elbe - Torgau-Dresden

Am Standort an der Elbe am Wasserwerk Torgau-Ost wurden seit 1991 zwei Transekte „Torgau-Ost I und II“ inklusive sogenannter Kolmationsmessstellen zur Untersuchung und Überwachung der Uferfiltration, und 20 Messstellen zur Überwachung des landseitigen Grundwasserzuflusses errichtet. Zur Untersuchung von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration wurde die Transekte im Rahmen eines BMBF-Projektes (Schmidt et al. 2006a) an einem Termin im Jahr 2003 und an 4 Terminen im Jahr 2004 beprobt. Die sehr detaillierte Standortbeschreibung der hydrogeologischen Verhältnisse des genutzten Grundwasserleiters entstammt einer Dokumentation der HTW Dresden. Die Daten zu den Arzneimittelwirkstoffen sind der Veröffentlichung von Schmidt et al. (2006a) entnommen.

Standortbeschreibung

Das Einzugsgebiet des Wasserwerkes Torgau-Ost befindet sich östlich der Stadt Torgau in der Elbtalglazialwanne und gehört zum mitteldeutschen Altmoränengebiet (s. Abb. 27).

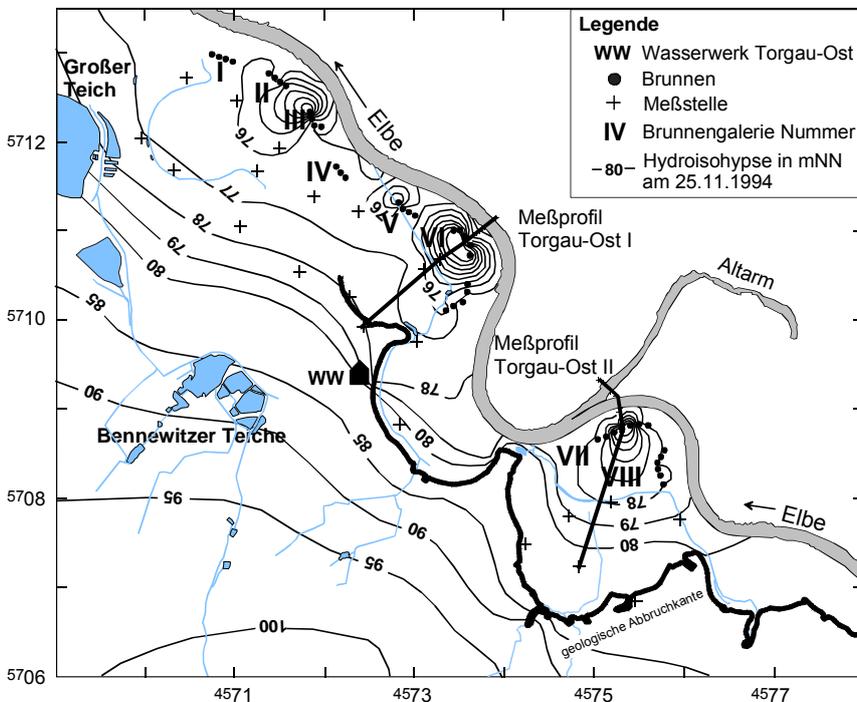


Abb. 27: Lage der Uferfiltratfassungen und Profilschnitte WW Torgau-Ost

Die Transekte entlang Brunnen 22 liegt auf dem Messprofil Torgau-Ost I. Der geologische Aufbau der bis zu 120 m mächtigen quartären Ablagerungen im Bereich der Dahleiner Heide ist extrem kompliziert und regellos und beinhaltet Schollenstapelmoränen inklusive zugehöriger Braunkohlenflöze. In der Elbtalwanne liegt auf dem tertiären Grundwasserstauer eine 6 bis 12 Meter mächtige Wechsellagerung von Fein-

kiesen und Grobsanden, überlagert von einer 25 bis 31 Meter mächtigen Wechsellagerung von Mittel- und Grobsanden, 5 bis 11 Meter mächtigen holozänen Elbeschottern und einer bis zu 3

Meter mächtigen Auelehmschicht. Diese Auelehmschicht fehlt oft völlig. Die Mächtigkeit des Grundwasserleiters beträgt bis zu 55 Meter. Die Grundwasserbewegung ist von Süd bis Südwest nach Nord bis Nordost zur Elbe hin gerichtet und wird bei Brunnenbetrieb aufgrund der großen Ergiebigkeit des Grundwasserleiters erst in Fassungsnahe abgelenkt (s. Abb. 28). Bei Hochwasser der Elbe kann es zu einem Wechsel von ungespannten zu lokal gespannten Verhältnissen kommen. Der aus Siebanalysen ermittelte Durchlässigkeitsbeiwert der Mittelsandschicht (Abb. 28) liegt im Mittel bei $6 \cdot 10^{-4}$ m/s, für die Grobsand- und Feinkieschichten im oberen und unteren Bereich des Grundwasserleiters bei $2 \cdot 10^{-3}$ m/s. Die Grundwasserspiegelschwankungen in der Elbtalwanne nehmen in Elbnähe zu und führen dort verstärkt zu vertikalen Mischungsprozessen.

Daten zu Arzneimittelwirkstoffen wurden nur am Messprofil I (Abb. 28) gewonnen. Diese Transekte ist repräsentativ für die Fassungen I bis VII. Das Profil quert die Elbe und verläuft über den zentralen Brunnen der Brunnengalerie VI zu einer hinter dem Brunnen befindlichen Messstelle (Abb. 27). Die Grundwassermessstellen wurden als Messstellengruppen gebaut. Sie verfügen in der Regel über drei GWBR in unterschiedlichen Teufen. Die Durchmesser der GWBR betragen 4,5“ oder 2“, die Filterlänge beträgt 1 m. Die Messstellen des Messprofils Torgau-Ost I wurden zusätzlich um je zwei verloren eingebaute Membranpumpen ergänzt. Damit ermöglichen die Profile eine teufenabhängige Probenahme in drei oder fünf Horizonten. Landseitig der Brunnen wurden in Abhängigkeit von der Mächtigkeit des Grundwasserleiters insgesamt 20 Messstellenbündel aus 5“-GWBR mit bis zu drei Teufen errichtet.

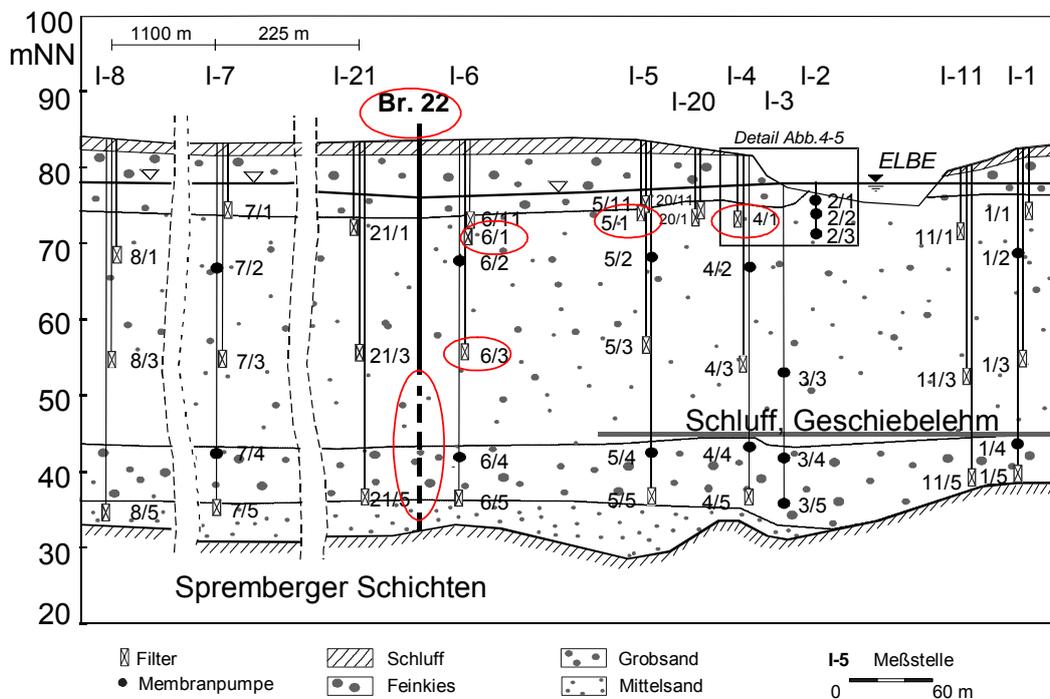


Abb. 28: Anordnung der Messpunkte im Messprofil (Transekte) Torgau-Ost I (Zuarbeit Prof. Grischek). Rot markiert sind die Messpunkte mit ihrer Zuordnung zu den Analysen (Messwerte) in der Datenbank (s. Anlage 5).

Das Wasserwerk Torgau-Ost wurde 1981 gebaut. Neun Brunnengalerien mit insgesamt 42 Vertikalfilterbrunnen können $150.000 \text{ m}^3/\text{d}$ fördern. Der genutzte Uferabschnitt der Elbe ist etwa 15

km lang. Die Uferfiltratfassungen wurden gemäß den damaligen Kolmationswiderständen für eine Uferbelastung von $10 \text{ m}^3/(\text{m} \cdot \text{d})$ ausgelegt. Die Brunnen der Fassungen I bis IX mit einer Förderleistung von je $150 \text{ m}^3/\text{h}$ befinden sich im Mittel 300 m vom Elbufer entfernt. Die 20 m langen Filter der Brunnen liegen zwischen 30 bis 50 Meter unter Gelände in der unteren Grobsandschicht und der mächtigen Mittelsandschicht und reichen bis auf den tertiären Stauer. Der Uferfiltratanteil im Rohwasser liegt bei 45 bis 60 %.

Datenlage

Die Messwerte zu den untersuchten Arzneimittelwirkstoffen entlang der Transekte Torgau-Ost I sind in Anlage 5 dokumentiert. Für diesen Standort konnten allerdings nicht die detaillierten Rohdaten der Stichtagsmessungen erworben werden. Es liegen nur die bei Schmidt (2006) veröffentlichten und zu Minimum, Maximum und Median je Messpunkt zusammengefassten Werte vor. Untersucht wurden folgende Arzneimittelwirkstoffe: Atenolol, Bezafibrat, Bisoprolol, Carbamazepin, Clarithromycin, Clindamycin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Dehydratoerythromycin, Ibuprofen, Indometacin, Naproxen, Pentoxifyllin, Sotalol, Sulfamethoxazol, Trimethoprim. Zur Zuordnung der Messstellennamen in Anlage 5 zu den Standorten s. Abb. 28.

5.4 Zusammenfassung der Standortinformationen

In Tab. 5 wird eine Übersicht zu den hydrogeologischen Parametern und den Geometrien der Fassungsanlagen gegeben, die für die Methodik der weiteren Bearbeitung und Modellierung (s. Kapitel 5) Schlüsselparameter darstellen. Weiterhin sind die an den jeweiligen Transekten untersuchten (und identifizierten) Arzneimittelwirkstoffe und Antibiotika aufgelistet.

Tab. 5: Vergleich der Standorte anhand der für die Modellierung wichtigen Geometrien der Fassungsanlage, hydrogeologischen Parameter und untersuchten Arzneimittelwirkstoffe und Antibiotika.

Transekte / Gewässer	Rhein	Wannsee / Havel	Tegeler See / Havel	Elbe
Ufer-Brunnen Abstand [m]	50	50	95	300
Filterlänge	7 Meter	7 Meter	14 Meter	20 Meter
Filtertiefe	12 Meter u. GOK	22 Meter u. GOK	20 Meter u. GOK	30 Meter u. GOK
Fördermenge je Brunnen	35 [m ³ /h]	50-70 [m ³ /h]	50-70 [m ³ /h]	150 [m ³ /h]
Ø k _f [m/s]	$1\text{-}3 \cdot 10^{-3}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$2\text{-}3 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-3}$
Untersuchte/Identifizierte Arzneimittel	AMIDOTRIZOESÄURE E BEZAFIBRAT CARBAMAZEPIN DICLOFENAC SULFAMETHOXAZOL (Daten Eckert 2008) Bezafibrat CARBAMAZEPIN CLINDAMYCIN CLOFIBRINSÄURE DEHYDRAT- ERYTHROMYCIN DICLOFENAC METOPROLOL SOTALOL SULFAMETHOXAZOL (Schmidt et al. 2006)	AMDOPH Bezafibrat CARBAMAZEPIN CLOFIBRINSÄURE DICLOFENAC INDOMETACIN PRIMIDON PROPYPHENAZON (ACETYL-) SULFAMETHOXAZOL TRIMETHOPRIM CLARITHROMYCIN CLINDAMYCIN SULFADIMIDIN ROXITHROMYCIN DEHYDRAT- ERYTHROMYCIN (NASRI Datenbank)	AMDOPH Bezafibrat CARBAMAZEPIN CLOFIBRINSÄURE DICLOFENAC INDOMETACIN PRIMIDON PROPYPHENAZON (ACETYL-) SULFAMETHOXAZOL TRIMETHOPRIM CLARITHROMYCIN CLINDAMYCIN SULFADIMIDIN ROXITHROMYCIN DEHYDR- ERYTHROMYCIN (NASRI Datenbank)	ATENOLOL Bezafibrat BISOPROLOL CARBAMAZEPIN CLARITHROMYCIN CLINDAMYCIN CLOFIBRINSÄURE DEHYDRATO- ERYTHROMYCIN IBUPROFEN INDOMETACIN NAPROXEN PENTOXIFYLLIN SOTALOL SULFAMETHOXAZOL TRIMETHOPRIM (Schmidt et al. 2006)

6 Ergebnisse der durchgeführten Strömungs- und Transportmodellierung

Für eine möglichst genaue Analyse des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration und anschließender Aussage zur Allgemeingültigkeit ist die Kenntnis der Konzentrationen der Arzneimittelwirkstoffe entlang des zu beschreibenden Transportweges für einen langen Zeitraum erforderlich.

Tatsächlich zeigen die Ergebnisse der Literatur- und Datenrecherche (s. Kapitel 4 und 5) jedoch, dass der Transportpfad Uferfiltration nur an wenigen Standorten hinsichtlich einer Verteilung der Arzneimittelwirkstoffe zeitgleich im Oberflächengewässer, im Grundwasser und im Entnahmebrunnen untersucht wurde. Neben Standorten der Havelgewässer in Berlin sind dies solche entlang des Niederrheins (bzw. seinen Zuflüssen) und der Elbe. Im Rahmen dieser Untersuchungen liegen auch genaue Angaben zu den im Kapitel 2 beschriebenen hydrogeologischen Randbedingungen und Geometrien der Wasserfassungen an diesen Standorten vor.

Die Methodik zur mathematischen Simulation des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration kann also nur auf Basis der Detailinformationen weniger Standorte und der Kenntnis der Spannweiten der hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Randbedingungen (s. Kapitel 2.3.2) verifiziert werden.

6.1 Methodisches Vorgehen

Für die Beantwortung der Fragestellung nach einem PEC_{GW} soll - ausgehend von einem PEC eines Arzneimittelwirkstoffes für die Oberflächengewässer (PEC_{SW}) im Zulassungsverfahren - ein PEC für das Grundwasser (PEC_{GW}) modellgestützt bestimmt werden. Gefragt ist dabei der mögliche Wert für ein Auftreten des Arzneimittelwirkstoffes im Grundwasser - ein sog. „realistic worst case“ - nach Einstellung eines Gleichgewichtszustandes (stationärer Zustand), der dann auch im Rahmen der Zulassung genutzt werden kann. Es wird von einem dauerhaften gleichmäßigen Eintrag aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser ausgegangen, wobei die gesamte Wasser- bzw. Stoffmenge im System Uferfiltration verbleibt. Als Referenzstandort für die Bestimmung der Konzentration im Grundwasser wird dabei der jeweilige Entnahmebrunnen eines Wasserwerkes festgelegt, der das Uferfiltrat fördert.

Für dieses Szenario würde der theoretisch maximale Wert für den PEC_{GW} dem PEC_{SW} entsprechen. Nach derzeitigem Kenntnisstand unterliegen aber alle Stoffe bei der Untergrundpassage gewissen Abbau- und Rückhalteprozessen. Daher wird die erwartete Konzentration im Grundwasser immer ein gegenüber der Konzentration im Oberflächengewässer verringerter Wert sein. Der PEC_{GW} wird also in erster Linie eine Funktion dieser Abbau- und Sorptionsprozesse sein. Im Rahmen des Zulassungsverfahrens werden dem UBA dafür als nutzbare Parameter zur Charakterisierung des Stofftransportes bei der Uferfiltration Angaben zur Sorption (K_{OC} - und K_d -Wert), zur Elimination (DT_{50}) und eine Charakterisierung der für die Ermittlung der Kennwerte genutzten Boden- und Wasser-Sediment-Studien vorliegen. Das bedeutet zum einen, dass lediglich anhand dieses limitierten Datensatzes die Bestimmung des PEC_{GW} erfolgen muss und

andererseits die Bestimmung der erwarteten Konzentration im Grundwasser (am Brunnen) in Abhängigkeit vom Retardationsfaktor (lineare Sorption) und der Abbaurrate innerhalb der zur Verfügung stehenden Zeit erfolgt. Eine Abschätzung des PEC_{GW} mit den Prozessen der Sorption und des Abbaus 1. Ordnung kann auch rein *analytisch* (also ohne den Einsatz numerischer Modelle) erfolgen. Vereinfacht stellt sich die Problematik wie folgt dar:



Abb. 29: Schema der analytischen Lösung der Prozesse der Sorption und des Abbaus 1. Ordnung

Die Schlüsselkomponente bei diesen Betrachtungen stellt aber der Zeitfaktor dar - der Einfluss ist im Fließschema als Fragezeichen verdeutlicht. Jeder der o.g. Prozesse stellt eine Funktion der Zeit - im Fall der Uferfiltration der Fließzeit (Verweilzeit) im Grundwasser zwischen Uferbereich und Entnahmebrunnen - dar (s. Kapitel 2.3). Somit kann der PEC_{GW} als eine standortabhängige Funktion betrachtet werden denn, für jeden Uferfiltratstandort ergibt sich aufgrund der verschiedenen Geometrien der Fassungsanlagen, der unterschiedlichen Entnahmemengen und hydrogeologischen Parameter eine andere Fließzeit des Grundwassers zwischen Ufer und Brunnen. Da Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser dem advektiven Transport (also der Bewegung mit der Grundwasserströmung) unterliegen, bestimmt die kürzeste Fließzeit (Verweilzeit) zwischen dem Oberflächengewässer und dem Filterbereich des Brunnens die Mindestaufenthaltsdauer eines Wirkstoffes im Grundwasser (s. Kapitel 2.3). Dieser Zeitraum kann durch sorptive Vorgänge verlängert werden. Daraus lässt sich ableiten, dass das Ergebnis einer Konzentrationsminderung im kürzesten Zeitraum den „worst case“ für eine Konzentration im Grundwasser an diesem Standort darstellt.

Die Ermittlung des PEC_{GW} ausgehend vom PEC_{SW} erfordert daher zwei Bearbeitungsschritte (Phasen) die in den folgenden Kapiteln erläutert werden.

Im ersten Bearbeitungsschritt (Phase 1) wird die Spannweite der kürzesten Fließzeiten bestimmt, die aufgrund der Kombination der für Uferfiltrat-Standorte möglichen (realistischen) Randbedingungen (s. Tab. 1) auftreten können. Der „Umweg“ zur Bestimmung der Fließzeiten anhand der genannten Standortparameter ist erforderlich, da zu den Fließzeiten selbst keine oder häufig nur geschätzte Angaben vorliegen. Somit kann nur auf Basis der bekannten Standortparameter eine Bestimmung der Fließzeiten erfolgen. Dies erfordert den Aufbau eines numerischen Grundwasserströmungsmodells (hier mittels VISUAL MODFLOW) zur Simulation von Szenarien zur Prozessbeschreibung innerhalb der Spannweiten der relevanten hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Randbedingungen der Uferfiltratstandorte. Mit diesem Modell werden schrittweise die kürzesten Verweilzeiten des Grundwassers für eine definierte Anzahl Kombination der hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Randbedingungen der Uferfiltratstandorte ermittelt. Die so ermittelten Spannweiten der Verweilzeit bilden die Basis der Berechnung der Transportprozesse.

Für den Modellaufbau werden die Daten zur Standortbeschreibung aus der Arbeit von Lenk et al. (2006) sowie die Geometrien und (aus Modellberechnungen bekannte) Hydraulik der Fassungsanlagen in Berlin (HYDOR 2004 & 2007) genutzt. Wie bereits in Kapitel 2.3.2 und 5 beschrieben, werden durch diese Arbeiten die Spannweiten aller hydrogeologischen und wasserwirtschaftlichen Parameter für die wichtigen Uferfiltratstandorte in Deutschland verdeutlicht (s. Anlage 1). Daraus wurde der Modellaufbau abgeleitet. Folgerichtig umschreibt die größte Modellausdehnung (Grundwasserströmungsmodell) jeweils die Maxima der entsprechenden Randbedingungen wie sie in Tab. 1 zusammengefasst sind. Für die Berechnung der Fälle mit geringerer Ausdehnung werden Modellbereiche deaktiviert.

Im zweiten Bearbeitungsschritt (Phase 2) wird basierend auf den im ersten Schritt bestimmten Spannweiten der Verweilzeit der mögliche Einfluss von Sorption und Abbau ermittelt. Diesen Berechnungen liegen Werte für die Sorption und dem Abbau zugrunde, deren Spannweiten anhand von Literaturangaben und Berechnungen von Scheytt (2002) festgelegt wurden. Sowohl bei der Sorption als auch beim Abbau variieren die Eigenschaften mit einer Spannweite von vollständigem Abbau bereits im Oberflächenwasser bzw. einer Anlagerung an Sedimente des Gewässerbodens bis hin zu Tracer-ähnlichem Verhalten (kein Abbau bzw. Sorption). Auf dieser Datenbasis lassen sich mathematische Funktionen zu Abbau und Sorption nutzen, mit denen der Transport von Arzneimittelwirkstoffen für jeden möglichen Uferfiltratstandort abgeschätzt werden kann.

Für die Berechnungen werden die Gleichungen 4 und 6 (s. Kapitel 2.4) zur Bestimmung des Retardationsfaktors anhand des K_d -Wertes (Sorption) und des Abbaus anhand der Abbaurate genutzt. Die Gleichungen lassen erkennen, dass neben den genannten Stoffparametern nur die Verweilzeit (Fließzeit) Einfluss auf die Ergebnisse hat. Diese steht im Ergebnis der Modellrechnungen für alle möglichen Uferfiltratstandorte zur Verfügung. Für jede Fließzeit kann nun - ausgehend vom PEC_{SW} und den Stoffparametern - der PEC_{GW} direkt bestimmt werden.

Gekoppelt bilden also die Berechnungsergebnisse der beiden Bearbeitungsschritte die Datengrundlage für die Entscheidungsmatrix zur Bestimmung des PEC_{GW} in Abhängigkeit von den Standortfaktoren und der Transportparameter. Die Entscheidungsmatrix wird über eine Abfragemaske gesteuert und in Kapitel 7 erläutert. Ein Fließschema zeigt Abb. 30:

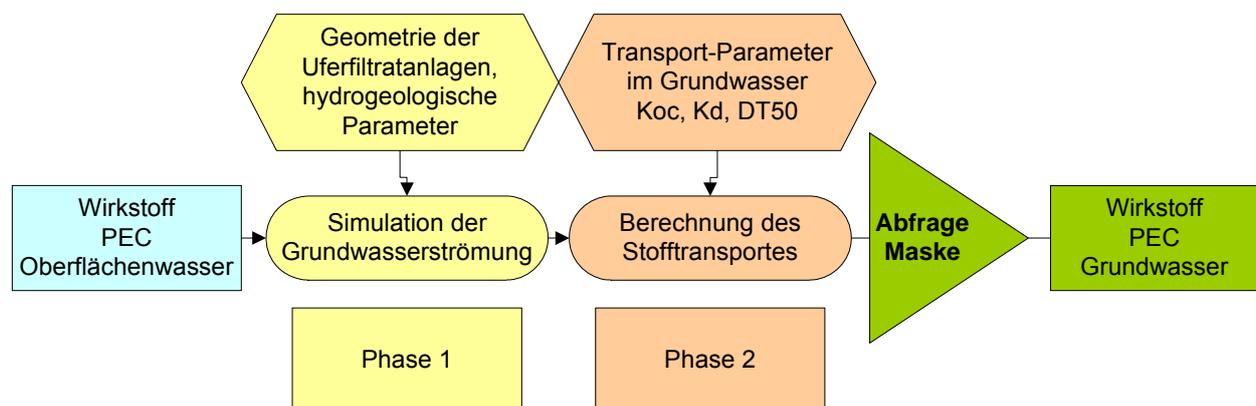


Abb. 30: Fließschema zur Entwicklung der Entscheidungsmatrix zur Bestimmung des PEC_{GW}

6.2 Numerische Simulation von möglichen (fiktiven) Szenarien zur Prozessbeschreibung der Grundwasserströmung bei der Uferfiltration

Begründet durch die erforderliche Allgemeingültigkeit der Modellergebnisse des Projektes wird ein Modellansatz zur Simulation der Grundwasserströmung aufgebaut, der auf die Simulation des Uferfiltrationsprozesses, ausgelöst durch Entnahmen an einem Vertikalfilterbrunnen, entlang eines einheitlichen Uferstreifens reduziert ist. Mit diesem Modellansatz wird dann unter Verwendung der verschiedenen Randbedingungen die Grundwasserströmung für jeden aus wasserwirtschaftlicher und hydraulischer Sicht möglichen Fall der Uferfiltration nachvollzogen. Dabei wird ausschließlich der Prozess Uferfiltration betrachtet, also der Anteil des Uferfiltrats am Brunnen mit 100 Prozent angenommen. Mögliche Verdünnungseffekte durch landseitiges Grundwasser (Grundwasserneubildung) werden als Wahlfunktion in der Entscheidungsmatrix berücksichtigt. Modellaufbau und die Modellannahmen werden im Folgenden erläutert.

6.2.1 Hydrogeologie, Modellannahmen und Modellaufbau

Die Auswertung der Literatur, der vorhandenen Daten und Erfahrungen zum Aufbau und den hydrogeologischen Voraussetzungen zum Betrieb von Uferfiltratstandorten zeigt, dass solche Anlagen nur bei Durchlässigkeiten im Grundwasserleiter (k_f -Werte) von mehr als $1 \cdot 10^{-5}$ m/s effektiv arbeiten können. Da die beabsichtigte Reinigungswirkung des Oberflächenwassers bei der Uferfiltration nur in Porengrundwasserleitern erzielt werden kann, sind damit also Lockergesteine der Sand- und Kiesfraktion ab dem Feinsand gemeint.

Weiterhin gelten mittlere Ufer-Brunnen-Abstände von 1,5 bis 1200 Metern, mittlere Filtertiefen (Endteufe) von 4 bis 70 Metern und mittlere Entnahmemengen von 500 bis 5000 m³/d als im Rahmen dieser Recherche gesicherte Randbedingungen. Für diese Entnahmemengen konnte mittels Modellrechnungen (HYDOR 2004, 2007) anhand der Randstromlinien die maximale Entnahmebreite von Einzelbrunnen der Berliner Wasserbetriebe ermittelt werden. Aufgrund der vergleichsweise geringen Durchlässigkeiten des Grundwasserleiters im Berliner Raum werden Werte von 300 Metern erreicht, die gleichzeitig als Maximum innerhalb der möglichen Spannweiten für diese Randbedingung angenommen werden.

Die aus diesen Werten resultierende Geometrie des Modellraumes ist in Abb. 31 dokumentiert. Der Ufer-Brunnen-Abstand beträgt 1500 Meter. Für die Mächtigkeit des Grundwasserleiters (und damit die maximale Filtertiefe) werden 100 Meter und für die Modellbreite (s. o.) 300 Meter festgelegt.

Die horizontale Diskretisierung erfolgt durch Rechteckflächen mit einer Ausdehnung von 5x5 Metern. In der Vertikalen werden 20 Modellgrundwasserleiter (MGWL) mit einer konstanten Mächtigkeit von 5 Metern festgelegt. Der Uferfiltrat-wirksame Bereich der Gewässersohle hat eine Breite von 30 Metern und wird im Modell über die „River“-Randbedingung auf einer Tiefe von 90-95 Metern abgebildet (s. Abb. 31). Als weitere Modellannahmen werden folgende Festlegungen getroffen:

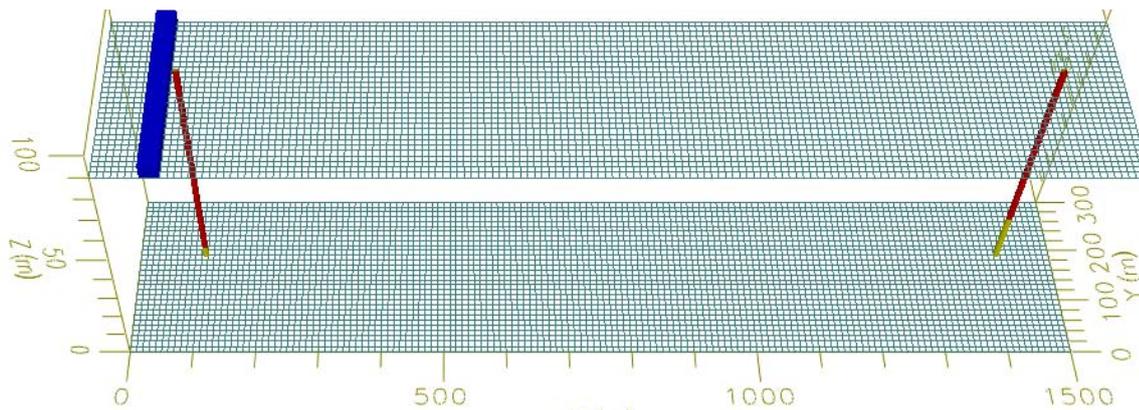


Abb. 31: 3D-Ansicht des Modellraumes (vertikal überhöht) mit der exemplarischen Ansicht des Modellgitters an der Unterkante der Modellgrundwasserleiter 2 und 20 sowie zwei Vertikalfilterbrunnen (rote Stäbchen) und dem Uferfiltrat wirksamen Bereich der Gewässersohle (blauer Balken).

1. Filterstrecke und Filtertiefe: Der Brunnen wird bei allen Berechnungen mit einer einheitlichen Länge der Filterstrecke von 10 Metern belegt. Dies entspricht für die Brunnen der Berliner Wasserbetriebe ungefähr dem Mittelwert der Filterstrecken mit Entnahme im Hauptgrundwasserleiter. Am Wasserwerk Flehe sind die Filter kürzer als 10 Meter, wogegen der mächtige Grundwasserleiter am Wasserwerk Torgau-Ost eine Filterlänge von 20 Metern zulässt. Filterstrecken sind zusammen mit den anderen Geometrien der Wasserfassung und der Entnahmemenge für die optimale Dargebotsnutzung im jeweiligen Grundwasserleiter konzipiert. Daher können die Längen auch innerhalb einer Wasserfassung stark variieren. Aus hydraulischer Sicht wird bei konstanten Randbedingungen (insbesondere Entnahmemenge) durch Verlängerung des Filters die Verweilzeit des Wassers für den kürzesten Fließweg erhöht. Für den Modellansatz wird dieser Zusammenhang in Tab. 6 verdeutlicht.

Tab. 6: Vergleichende Modellrechnungen zur Uferfiltration bei 10 bzw. 20 Meter Filterlänge des Brunnens

		Ufer-Brunnen-Abstand 50m, Fiok 80 Meter u. GOK			
		Filterlänge 10m		Filterlänge 20m	
kf-Wert	Entnahme	Zeit	Absenkung	Zeit	Absenkung
[m/s]	[m ³ /d]	[d]	[m NN]	[d]	[m NN]
0.01	500	531	94.99	623	94.99
0.01	5000	53	94.90	62	94.90
0.0005	500	524	94.95	616	94.95
0.0005	5000	52	94.45	61	94.47

		Ufer-Brunnen-Abstand 500m, FiOk 20m u.GOK			
		Filterlänge 10m		Filterlänge 20m	
kf-Wert	Entnahme	Zeit	Absenkung	Zeit	Absenkung
[m/s]	[m ³ /d]	[d]	[m NN]	[d]	[m NN]
0.01	500	1368	94.95	1908	94.96
0.01	5000	135	94.48	190	94.61
0.0005	500	1341	94.10	1886	94.36
0.0005	5000	112	81.98	173	87.68

Statt zusätzlich die Fließzeiten für unterschiedlich lange Filter zu berechnen, werden vereinfachend verschiedene Entnahmemengen für einen Standort berechnet - die Spannweiten der kürzesten Fließzeiten werden damit indirekt erfasst. Eine Ausnahme bildet der innerhalb der Spannweiten gerechnete oberste Filterbereich von 10 bis 15 m mit einer Länge von lediglich 5 Metern. Diese Geometrie wurde zusätzlich gerechnet, da dies im Laufe der Bearbeitung zur Darstellung extrem kurzer Fließzeiten erforderlich wurde. Die Angaben der Filtertiefen beziehen sich auf den Abstand der Filteroberkante (FioK) zur Geländeoberkante (GOK), wobei diese mit der oberen Modellbegrenzung immer einen Wert von 100 Metern annimmt. Abweichend davon wird die maximale Filtertiefe (bzw. Endteufe) verwendet, wenn diese Daten aus den Literaturangaben stammen oder in Bezug zur Mächtigkeit des Grundwasserleiters gebracht werden.

2. Für die Kolmation der Gewässersohle (Leakagefaktor) wird auf den Metern 0 bis 20 (brunnenseitig) ein einheitlicher Wert von $1 \cdot 10^{-5}$ m/s und für die Meter 21 bis 30 ein Wert von $1 \cdot 10^{-6}$ m/s verwendet. Dies entspricht den mittleren Werten für die Standorte Berlin (Havel/Spree) und Torgau-Ost (Elbe) und ist ein vergleichbar niedriger Wert. Ein veränderter Leakagefaktor (in diesem Fall höhere Durchlässigkeiten) hat bei Nutzung dieses Modellansatzes nachweislich keinen Einfluss auf die Bestimmung der kürzesten Fließzeit zwischen Gewässerboden und Brunnen.
3. Da für die Porosität im Grundwasserleiter keine Daten vorliegen wird ein einheitlicher Wert von 0,2 für die effektive Porosität und von 0,35 für die Gesamtporosität genutzt. Für die bei der Uferfiltration betrachtete Spannweite der Lockergesteine stellen diese Werte eine gute Näherung dar. Nach Hölting (1984) liegt die effektive Porosität für das Spektrum Feinsand bis Mittelkies zwischen 10 und 30 Prozent. Zudem wird darauf verwiesen, dass „zwischen Gesamtporosität und Durchlässigkeit nur ein loser Zusammenhang besteht“. Es ist somit nicht ohne weiteres möglich einem Durchlässigkeitsbeiwert eine bestimmte effektive Porosität zuzuordnen. Anhaltswerte für den Zusammenhang zwischen Porosität und Durchlässigkeit nach Lege et al. (1996) sind in Tab. 7 dargestellt.

Gestein	Porosität n	effektive Porosität n_e	Durchlässigkeitsbeiwert k_f (Busch et al. 1993)
Sandiger Kies	0,25...0,35	0,20...0,25	$3 \cdot 10^{-3} - 5 \cdot 10^{-4}$ m/s
Kiesiger Sand	0,28...0,35	0,15...0,20	$1 \cdot 10^{-3} - 2 \cdot 10^{-4}$ m/s
Mittlerer Sand	0,30...0,38	0,10...0,15	$4 \cdot 10^{-4} - 1 \cdot 10^{-4}$ m/s
Schluffiger Sand	0,33...0,40	0,08...0,12	$2 \cdot 10^{-4} - 1 \cdot 10^{-5}$ m/s
Sandiger Schluff	0,35...0,45	0,05...0,10	$5 \cdot 10^{-5} - 1 \cdot 10^{-6}$ m/s
Toniger Schluff	0,40...0,55	0,03...0,08	$5 \cdot 10^{-6} - 1 \cdot 10^{-8}$ m/s
Schluffiger Ton	0,45...0,65	0,02...0,05	ca. 10^{-8} m/s

Tab. 7: Anhaltswerte für die Porosität, die effektive Porosität und den Durchlässigkeitsbeiwert verschiedener Lockergesteine (aus Lege et al. 1996)

Da zur Berechnung der Fließzeiten mit MODPATH als Berechnungsgröße die Porosität genutzt wird, wirkt sich diese Festlegung auf das methodische Vorgehen aus. Die Abhängigkeit der Fließzeit von veränderten Durchlässigkeitsbeiwerten kann somit nicht direkt abgebildet werden. Bei gleich bleibender Porosität kann im Modell diese Abhängigkeit nur über eine veränderte Absenkung am Brunnen abgebildet werden.

4. Die Grundwasserneubildung spielt für den hier betrachteten Prozess der Uferfiltration nur eine untergeordnete Rolle und wird daher bei den Modellrechnungen vernachlässigt. Da die neubildungswirksame Fläche zwischen Ufer und Entnahmebrunnen sehr klein ist, würde nur ein geringer Anteil Grundwasserneubildung an der Entnahmemenge resultieren. Dies kann anhand eines Beispiels verdeutlicht werden. Unter Annahme einer mittleren Grundwasserneubildung von 150 mm/a an einem Uferfiltrat-Standort mit dem Ufer-Brunnen-Abstand von 50 Metern und der Entnahmemenge von 5000 m³/d werden nur 6 m³ Grundwasserneubildung (ca. 0,1 % der Entnahmemenge) wirksam. Bei geringeren Entnahmemengen erhöht sich der Anteil entsprechend. Der landseitige Zustrom (Grundwasserneubildung im weiteren Einzugsgebiet) wird im Modell ebenfalls nicht berücksichtigt. Dieser Zustrom unterliegt großen Schwankungen in Abhängigkeit einer Vielzahl von Faktoren (Grundwasserneubildung, Wasserstand im Oberflächengewässer, Entnahmemenge, etc.) und kann somit für diesen Modellansatz nicht eindeutig abgebildet werden. Der prozentuale Einfluss einer Verdünnung wird als Wahlfunktion in der Entscheidungsmatrix berücksichtigt.
5. Hinsichtlich der k_f-Werte (Durchlässigkeitsbeiwerte) werden zwei Festlegungen getroffen. Im gesamten Modellraum werden jeweils einheitliche k_f-Werte verwendet. Für die Bilanz einer Grundwasserströmungsmodellierung bzw. die Erfassung der Fließzeiten bei der Uferfiltration ist es nicht von Bedeutung, ob eine Schichtung von unterschiedlichen k_f-Werten oder ein Mittel über diese genutzt wird. Allerdings wird die überwiegend horizontal geschichtete Lagerung der Lockergesteine im Grundwasserleiter durch Verwendung doppelt so hoher Durchlässigkeiten in horizontaler Richtung im Verhältnis zur Vertikalen berücksichtigt.

6.2.2 Variation der Parameter und Randbedingungen

Mit dem beschriebenen Modell wird die Grundwasserströmung bei der Uferfiltration unter stationären Bedingungen simuliert. Im Ergebnis der Modellläufe wird jeweils die kürzeste Verweilzeit (Fließzeit) für den Fließpfad zwischen Ufer (Gewässersohle) und Brunnen (oberer Filterbereich) in Abhängigkeit der Änderung einer der folgenden Variablen bestimmt:

1. Ufer-Brunnen-Abstand
2. Filtertiefe (Mächtigkeit GWL)
3. k_f-Werte (Durchlässigkeitsbeiwerte)
4. Entnahmemengen am Brunnen.

Die Bestimmung der Fließzeit erfolgt mit MODPATH auf der Grundlage der Strömungssimulation mit VISUAL MODFLOW. Auf Basis der jeweils kürzesten Fließ-(Verweil)-zeiten erfolgt darauf aufbauend eine Simulation des Stofftransportes wie es nachfolgend beschrieben wird. Ein Beispiel für den unter Punkt 1 bzw. 2 genannten variablen Ufer-Brunnen-Abstand bzw. die variable Filtertiefe wird in Abb. 32 veranschaulicht. Schematisiert sind unterschiedlich lange Fließpfade

vom Gewässer (linker Modellrand) zum Brunnen (Filter) und die resultierenden Verweilzeiten dargestellt. Es wird deutlich, dass für tiefe Brunnen nahe am Gewässer die vertikale Strömungskomponente dominiert.

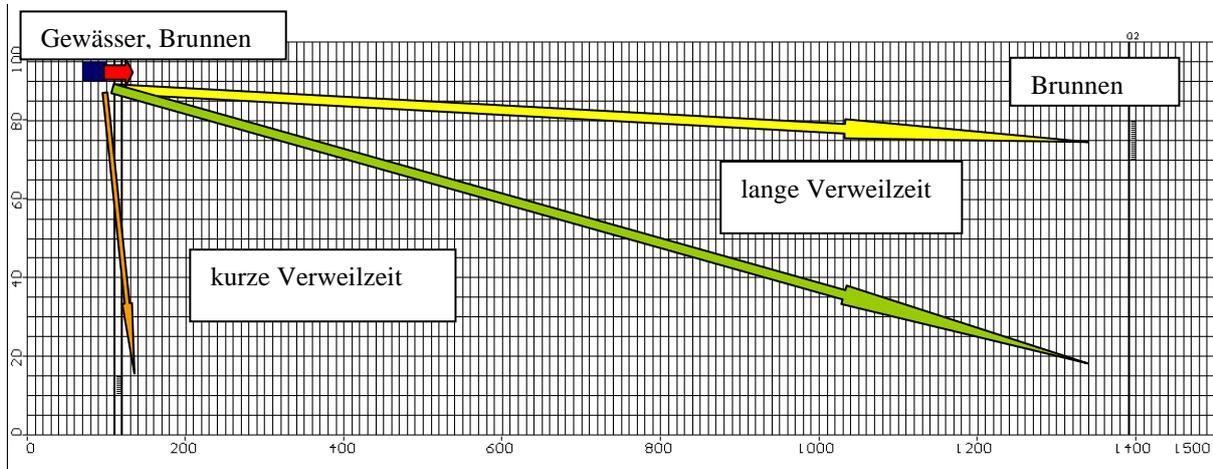


Abb. 32: Der Profilschnitt durch den Modellraum entlang der Brunnenstandorte zeigt ein Beispiel für unterschiedliche Verweilzeiten bei variabler Geometrie der Fassungsanlagen aber unter Annahme konstanter Werte der Entnahme und Durchlässigkeit des Grundwasserleiters. Die unterschiedliche Pfeillänge verdeutlicht dabei resultierende unterschiedliche Verweilzeiten im Grundwasser.

Die Berechnung der Verweilzeit im Ergebnis der Variation einer Randbedingung erfolgt in definierten Schritten innerhalb der Spannweiten wie in Tab. 9 dargestellt. Dabei orientieren sich die Schrittweiten an Größen, die an bekannten Wasserwerksstandorten auftreten bzw. an den für einzelne Flussbereiche typischen Randbedingungen.

Tab. 9: Schrittweiten der Variablen (Parameter und Randbedingungen) zur Berechnung der Grundwasserströmung

Variablen	Dimension	Schrittweiten der Berechnung
Ufer-Brunnen-Abstand	m	1000, 500, 300, 100, 50, 25, 5
Durchlässigkeitsbeiwert	m/s	$1 \cdot 10^{-2}$, $5 \cdot 10^{-3}$, $3 \cdot 10^{-3}$, $1 \cdot 10^{-3}$, $5 \cdot 10^{-4}$, $1 \cdot 10^{-4}$
Filtertiefe	m u. GOK ^(*)	80-90, 50-60, 30-40, 20-30, 10-20, 10-15 ^(**)
Entnahmemenge	m ³ /d	5000, 2000, 1000, 750, 500, 250

*: Als Geländeoberkante wird eine Höhe von 100 Meter angenommen, das entspricht der oberen Modellbegrenzung

** : Eine fünf Meter lange Filterstrecke in Abweichung zu den Modellannahmen.

Die kürzeste Verweilzeit wird als Funktion der Zeit und vergleichend mit der Änderung eines zweiten Parameters bzw. einer Randbedingung tabellarisch und grafisch dargestellt. Die möglichen Verknüpfungen zur Darstellung sind in Tab. 10 gekennzeichnet.

Tab. 10: Verknüpfungen zur Darstellung der berechneten Fließzeiten in Abhängigkeit von den variablen Parametern

	Ufer-Brunnen-Abstand	Durchlässigkeitsbeiwert	Filtertiefe	Entnahmemenge
Ufer-Brunnen-Abstand	X		X	X
Durchlässigkeitsbeiwert		X	X	X
Filtertiefe			X	X
Entnahmemenge				X

6.2.3 Kalibrierung des Strömungsmodells

Der Einsatz eines Grundwasserströmungsmodells erfordert normalerweise im ersten Arbeitsschritt die Modellkalibrierung. Wasserstände und Modellbilanzen im Ergebnis der Modellierung werden dabei den natürlichen Gegebenheiten (gemessene Grundwasserstände) durch Variation der Parameter und Randbedingungen angepasst. Diese aber werden im Unterschied dazu bei dem vorliegenden Modellkonzept gezielt innerhalb ihrer Spannweiten variiert, um Fließzeiten zu ermitteln. Diese Fließzeiten werden für fiktive Zustände der Grundwasserströmung simuliert, ohne dabei einen bestimmten Standort nachzubilden. Daher ist hier eine Modellkalibrierung im klassischen Sinne weder erforderlich noch möglich.

Allerdings müssen die Randbedingungen und Parameter im Modell so aufeinander abgestimmt sein, dass sie realitätsnah den Prozess der Uferfiltration abbilden und durch Variation innerhalb der jeweiligen Spannweiten plausible Simulationsergebnisse liefern. Da die im Modell zu variierenden Parameter und Randbedingungen die tatsächlichen Gegebenheiten an Uferfiltrationsstandorten widerspiegeln können, war es erforderlich zu prüfen, ob die fiktiven Modellannahmen zu plausiblen Ergebnissen führen. Dazu wurden Vergleichsrechnungen (Sensitivitätstests) zur Modellausdehnung, der Geometrie des Uferfiltratstandortes und der Fassungsanlagen, dem Einfluss von k_f -Werten und der Kolmation sowie zum Nachvollziehen von Fließzeiten an bekannten Standorten (s. Kapitel 5) durchgeführt. Diese Modellrechnungen wurden mit einer repräsentativen Auswahl zur Variation der Parameter und Randbedingungen durchgeführt. In einer ersten Serie von Modellrechnungen kamen Modellannahmen zur Anwendung, denen zu starke Vereinfachungen in Bezug auf die Modellgeometrie zugrunde lagen. So wurden alle Varianten mit der in Abb. 32 dokumentierten Modellausdehnung gerechnet. Die dadurch ermittelten kürzesten Fließzeiten und Modellergebnisse werden im Sinne eines ersten Ergebnisses im Folgenden diskutiert.

Abweichend von den endgültigen Festlegungen (s. Kapitel 6.2.2) liegen den graphischen Darstellungen der Berechnungen als Funktionen immer zugrunde, dass drei Parameter „konstant“ gehalten werden, während zwei Parameter schrittweise variiert werden, da hier zusätzlich noch der Einfluss der Kolmation berücksichtigt wurde. Zudem wurden Schrittweiten mit kleineren Intervallen genutzt, wie aus den Wertetabellen ersichtlich wird. Für die konstanten Parameter gelten dann folgende Werte:

- k_f -Wert horizontal: 0,001 m/s
- k_f -Wert vertikal: 0,0005 m/s
- Kolmation: für die Meter 0 bis 20 (brunnenseitig) ein einheitlicher Wert von $1 \cdot 10^{-5}$ m/s und für die Meter 21 bis 30 ein Wert von $1 \cdot 10^{-6}$ m/s
- Ufer-Brunnen-Abstand: 100 m
- Filtertiefe: 30 bis 50 m u. GOK (Verwendung von 20 Meter langen Filterstrecken)
- Entnahmemenge am Brunnen: 4000 m³/d

Die Auswertung und eine Fehlerbetrachtung erfolgt im Anschluss.

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme: k_f -Wert, Ufer-Brunnen-Abstand und Kolmation sind konstant

Für diese Datenreihe wurden die beiden Parameter Filtertiefe und Entnahmemenge verändert. Die minimalen und maximalen Werte variieren für die Entnahmemenge von 500 m³/d bis zu maximal 10000 m³/d und für die Filteroberkante von 10 m unter GOK bis zu 80 m unter GOK.

In Tab. 11 sind für unterschiedliche Entnahmemengen am Brunnen die kürzesten Fließzeiten bis zur jeweiligen Filtertiefe dokumentiert. Für ausgewählte Entnahmemengen ist der zeitliche Verlauf in Abb. 33 grafisch dargestellt. Die Fließzeiten liegen ungefähr in einem Bereich von 10 bis 950 Tagen. Die Ergebnisse sind plausibel da sie ein Anwachsen der Dauer der Fließzeit für eine Verkleinerung der Entnahmemenge und Vergrößerung der Filtertiefe zeigen.

Tab. 11: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme: K_f -Wert, Ufer-Brunnen-Abstand und Kolmation sind konstant

Filtertiefe [m u. GOK]	Entnahmen [m ³ /d]									
	500	750	1000	1500	2000	3000	5000	7500	10000	
10	330	220	165	110	83	55	33	22	17	
15	359	239	179	120	90	60	36	24	18	
25	430	286	214	143	107	72	43	29	22	
30	472	315	236	157	118	79	47	32	24	
35	524	349	261	174	131	87	52	35	26	
45	645	430	323	215	161	108	65	43	32	
55	798	532	399	266	199	133	80	53	40	
80	962	641	481	320	240	160	96	64	48	

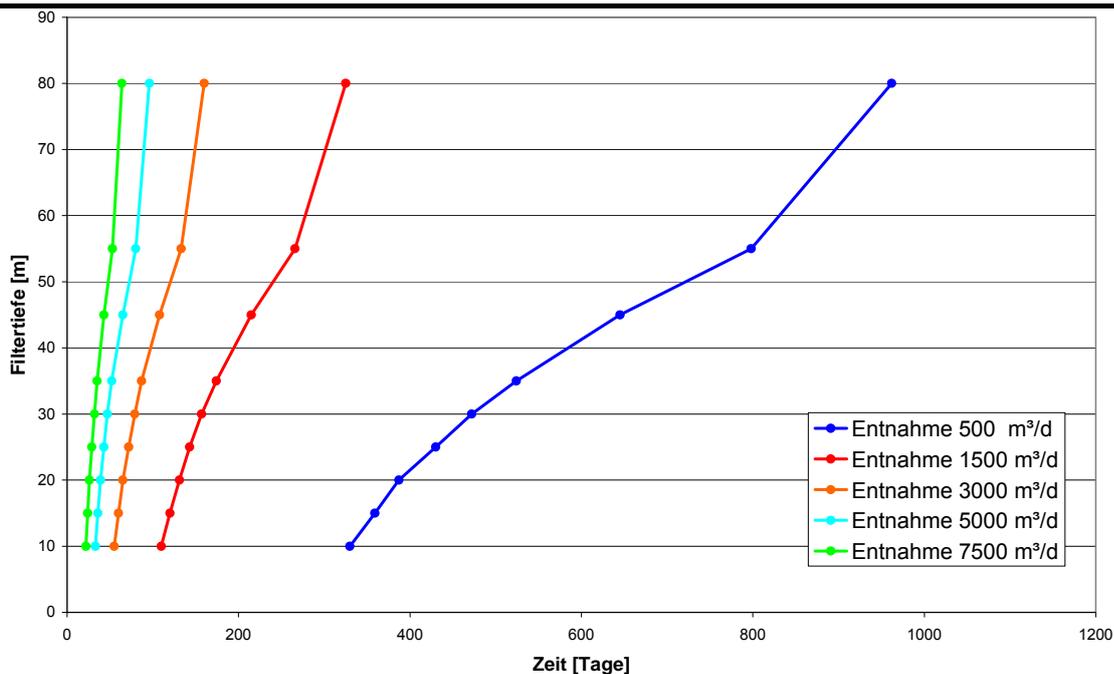


Abb. 33 Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe (m u. GOK bei 20 m Filterlänge) und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme nach den Ergebnissen in Tab. 10.

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Entnahmen und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - Filtertiefe, K_f -Werte und Kolmation sind konstant

Für diese Daten-Reihe wurden die beiden Parameter Ufer-Brunnen-Abstand und die Entnahmemenge verändert. Die minimalen und maximalen Werte variieren für die Entnahmemenge von 500 m³/d bis zu maximal 10000 m³/d und für den Abstand von 5 m bis 1000 m. Die Berechnungsergebnisse sind in Tab. 11 dokumentiert. Die Fließzeiten liegen ungefähr in einem Bereich von 1 bis 9000 Tagen. Bei kurzen Entfernungen hat die Höhe der Entnahmerate einen sehr geringen Einfluss auf die Variabilität der Fließzeit.

Abb. 34 zeigt die Entnahmemenge über der Fließzeit bei verschiedenen Ufer-Brunnen-Abständen, Abb. 35 die Entfernung über der Fließzeit bei verschiedenen Entnahmeraten. Die Ergebnisse sind plausibel und zeigen, dass bei einer hohen Entnahme und einem kurzen Ufer-Brunnen-Abstand die Dauer der Fließzeit kurz ist.

Tab. 11: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Entnahmen und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - Filtertiefe, k_f -Werte und Kolmation sind konstant (Werte in Klammern sind aufgrund einer ungenauen Modellbilanz möglicherweise fehlerbehaftet)

Entnahmen [m ³ /d]	Ufer-Brunnen-Abstand [m]										
	5	10	20	30	50	100	200	300	500	1000	1500
500	(21)		(41)		(125)	387	1251		3461	9229	
750	(14)		(28)		82	262	(841)		2306	6145	
1000	11		(21)		62	198	624		1727	4599	
1500	7		14		41	131	414		1150	3062	
2000	6		11		31	98	310		861	2292	
3000	4		7		21	65	206		573	1524	
5000	3		4		13	39	123		343	910	
7500	2		3		9	26	82		228	603	
10000			2			20	61		170	449	

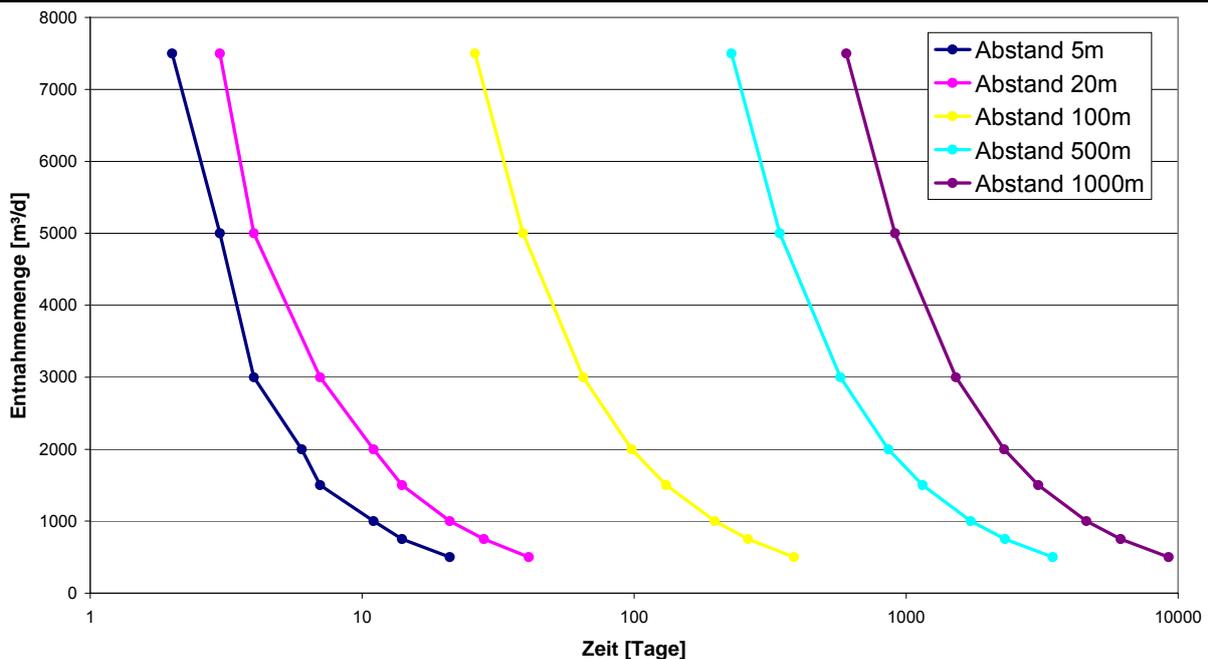


Abb. 34: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Ufer-Brunnen-Abstände und zusätzlich in Abhängigkeit von Entnahmemengen nach den Ergebnissen in Tab. 11

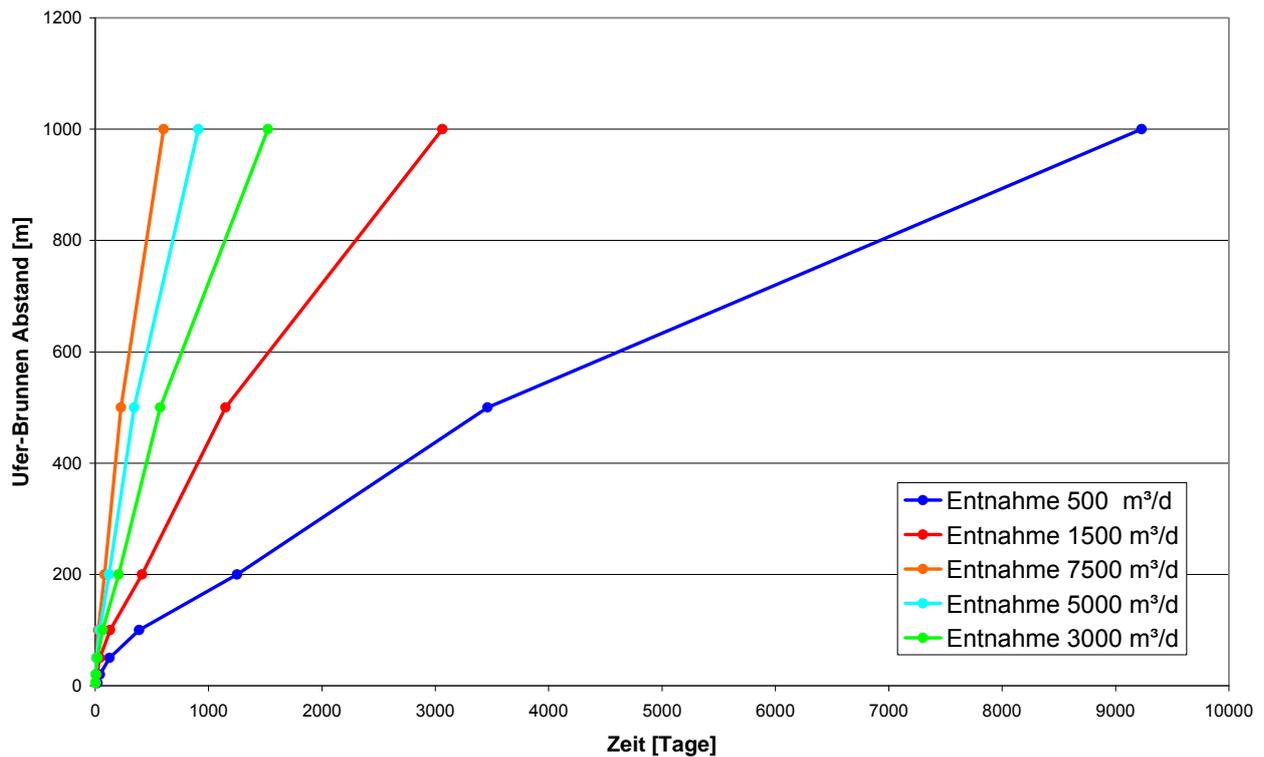


Abb. 35: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variable Entnahmen und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand nach den Ergebnissen in Tab. 11

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - k_f -Wert, Entnahme und Kolmation sind konstant

Für diese Daten-Reihe wurden die beiden Parameter Ufer-Brunnen-Abstand und Filtertiefe verändert. Die Spannweiten und Abstufungen der Parameter sind dieselben wie bei den oben dokumentierten Berechnungen.

Abb. 36 zeigt den Ufer-Brunnen-Abstand über der Fließzeit bei verschiedenen Filtertiefen. Die Fließzeit liegt zwischen 1 und 1200 Tagen. Der Verlauf aller Graphen ist ähnlich, was darauf schließen lässt, dass die Filtertiefe im Vergleich zum Ufer-Brunnen-Abstand einen geringen Einfluss auf die Dauer der Fließzeit besitzt. Dieses Ergebnis ist plausibel, da bei dieser Parameterkombination durch beide Parameter die Länge des Fließweges variiert wird und die Veränderung der Länge des Weges bei dem Parameter Ufer-Brunnen-Abstand im Verhältnis viel größer ist als bei der Filtertiefe. Dass diese trotz ihrer vergleichsweise geringen geometrischen Veränderungen sichtbar ist, liegt daran, dass der vertikale k_f -Wert nur halb so groß ist wie der horizontale k_f -Wert und sich Änderungen der horizontalen Fließstrecke stärker auswirken. Die Ergebnisse sind plausibel und zeigen, dass bei einem größeren Ufer-Brunnen-Abstand und einem tieferen Filtereinbau die Fließzeit länger wird.

Tab. 12: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand - k_f -Wert, Entnahme und Kolmation sind konstant

Filtertiefe [m u. GOK]	Ufer-Brunnen-Abstand [m]										
	5	10	20	30	50	100	200	300	500	1000	1500
10	1		3		10		145		420	1131	
15	2		4		13		150		424	1135	
20	3		5		16		155		429	1140	
25	5		8		19		160		435	1146	
30	9		11		23		167		442	1153	
35	12		16		28		174		450	1160	
45	20		25		42		192		467	1177	
55	30		35		52		213		488	1197	
80	61		65		80		233		510	1221	

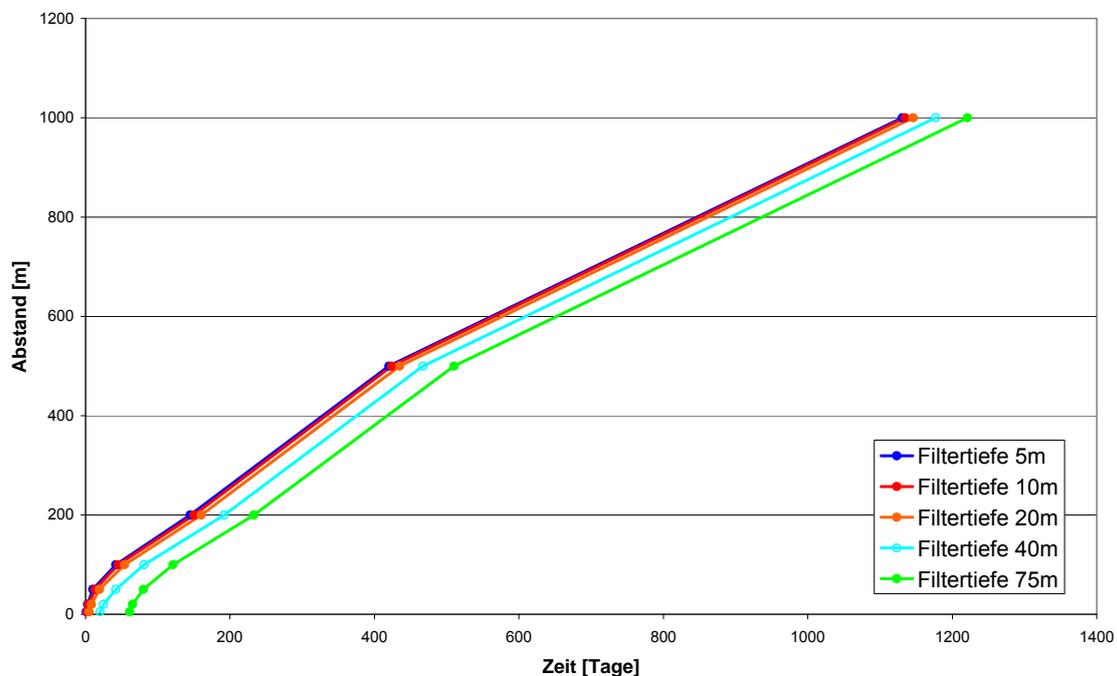


Abb. 36: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für variablen Ufer-Brunnen-Abstand und zusätzlich in Abhängigkeit von der Filtertiefe nach den Ergebnissen in Tab. 13

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand bei konstanter Filtertiefe, Entnahme und Kolmation

Bei dieser Daten-Reihe war vorgesehen, den k_f -Wert über der Fließzeit bei verschiedenen Abständen zwischen dem Fluss und dem Entnahmebrunnen (5 m bis 1400 m) darzustellen. Allerdings wurde deutlich, dass bei dem vorliegenden Modellansatz (und den Modellannahmen) keine direkte Abhängigkeit zwischen veränderten k_f -Werten und der Fließzeit simuliert werden kann. Stattdessen wird im Modell ein veränderter k_f -Wert durch eine geänderte Absenkung am Brunnen abgebildet. Somit wird über die Anpassung des Gradienten zwischen Uferbereich und Brunnen die Fließzeit konstant gehalten, wie in Tab. 13 anhand der annähernd gleichen Fließzeiten für die Ufer-Brunnen-Abstände von 50, 100 und 200 m gezeigt wird.

Tab. 13: Ergebnisse zu den Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit vom Ufer-Brunnen-Abstand bei konstanter Filtertiefe, Entnahme und Kolmation; (Werte in Klammern sind aufgrund einer ungenauen Modellbilanz möglicherweise fehlerbehaftet)

k_f -Wert [m/s]	Ufer-Brunnen-Abstand [m]										
	5	10	20	30	50	100	200	300	500	1000	1400
0,01	-		6		(16)	52					
0,008	3		6		(17)	51	(158)				
0,005	3				(17)	51	(159)				
0,003					-	50	(157)				
0,001	3	4	5	8	16	49	161	298	580	1285	1800
0,0008	3					49					
0,0005	3				15	48	153				
0,0003						48					
0,0001	3		5		14	46	149				
0,00005	-				--	103					

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit von der Filtertiefe - Ufer-Brunnen-Abstand, Entnahme und Kolmation sind konstant

Bei dieser Daten-Reihe war vorgesehen, den k_f -Wert über der Fließzeit bei verschiedenen Filtertiefen (5m bis 75m) darzustellen. Wie bei Tab. 13 kann auch dieser Zusammenhang nicht direkt über die Fließzeit dargestellt werden (Tab. 14, Spalte 4). Auch für diesen Fall müssen die Modellergebnisse durch eine geänderte Absenkung am Brunnen abgebildet werden.

k_f -Wert m/s	Filtertiefe [m u. GOK]									
	10	15	20	25	30	35	45	55	80	
0,01			52							
0,008			51							
0,005			51							
0,003			51							
0,001	42	45	49	54	59	66	81	100	121	
0,0008			49							
0,0005			48							
0,0003			48							
0,0001			46							
0,00005			103							

Tab. 14: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variablen k_f -Wert und zusätzlich in Abhängigkeit von der Filtertiefe: Ufer-Brunnen-Abstand, Entnahme und Kolmation sind konstant

Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Kolmation in Abhängigkeit vom k_f -Wert - Ufer-Brunnen-Abstand, Entnahme und Filtertiefe sind konstant

Die Kolmation der Gewässersohle wird ebenfalls durch einen k_f -Wert ausgedrückt und lässt sich daher auch nicht als Funktion der Fließzeit simulieren. Es war vorgesehen Änderungen im Bereich $1 \cdot 10^{-3}$ bis $5 \cdot 10^{-6}$ m/s zu berechnen (s. Tab. 15).

Tab. 15: Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit für variable Kolmation in Abhängigkeit von einem k_f -Wert: Ufer-Brunnen-Abstand, Entnahme und Filtertiefe sind konstant

k_f -Wert [m/s]	Kolmation [m/s]							
	0,001	0,005	0,0001	0,0005	0,00001	0,00005	0,000001	0,000005
0,001	-		48	48	49	48	49	49

Zusammenfassung und Bewertung der bisherigen Ergebnisse

Die Parameter Filtertiefe, Ufer-Brunnen-Abstand und Entnahmemenge am Brunnen lassen sich mit dem Modellansatz als Funktion der Fließzeit bestimmen. Aufgrund der Maximalwerte der jeweiligen Spannweiten ergeben sich Fließzeiten von 1 bis zu 10000 Tagen (ca. 30 Jahre). Damit kann durch Variation der Geometrien der Wasserfassung jeder mögliche Uferfiltratstandort als Funktion der Fließzeit abgebildet werden. Grundsätzlich lässt sich diese Methodik somit auf die vorliegende Fragestellung anwenden.

Der geänderte k_f -Wert bewirkt im Modell eine Änderung des Gradienten zwischen Ufer und Brunnen. Ein geringerer k_f -Wert bewirkt somit eine größere Absenkung am Brunnen. Dieser Zusammenhang muss daher über eine Erfassung der Absenkung (unterschiedliche Gradienten bei gleicher Fließzeit) abgebildet werden. In dieser Form wird auch der mögliche Einfluss einer Kolmationsschicht abgebildet, da diese auch über einen k_f -Wert definiert wird. Für die Bestimmung von Fließzeiten kann die Kolmationsschicht aber vernachlässigt werden, denn es handelt sich um geringmächtige Schichten mit kleinerem k_f -Wert als im umgebenden Grundwasserleiter. Sie bewirken eine geringfügige Änderung des mittleren k_f -wertes für den gesamten Fließweg und werden somit innerhalb der Annahmen (Spannweite) für die k_f -Werte des Grundwasserleiters mit abgebildet.

Einfluss der Modellausdehnung auf die Fließzeiten

Eine wesentliche Vereinfachung der Modellrechnungen sollte bei der vorgesehenen Vielzahl an Berechnungsvarianten eine einheitliche Modellausdehnung bewirken. Es war vorgesehen, auf Grundlage der maximalen Ausdehnung der Modellgrundwasserleiter die Variation aller Parameter und Randbedingungen zu simulieren. In Auswertung der Ergebnisse erwies sich diese Modellannahme als unzureichend realitätsnah. Daher wurde eine Anpassung der Modellausdehnung an die jeweilige maximale Filtertiefe des Brunnens (Endteufe) und in zwei Schritten (Abständen) auch auf den Ufer-Brunnen-Abstand vorgenommen. Dazu werden im Modellraum Bereiche deaktiviert, die keine Funktion für die jeweilige Uferfiltratsituation haben. Die Unterschiede werden anhand von Fallbeispielen im Folgenden diskutiert.

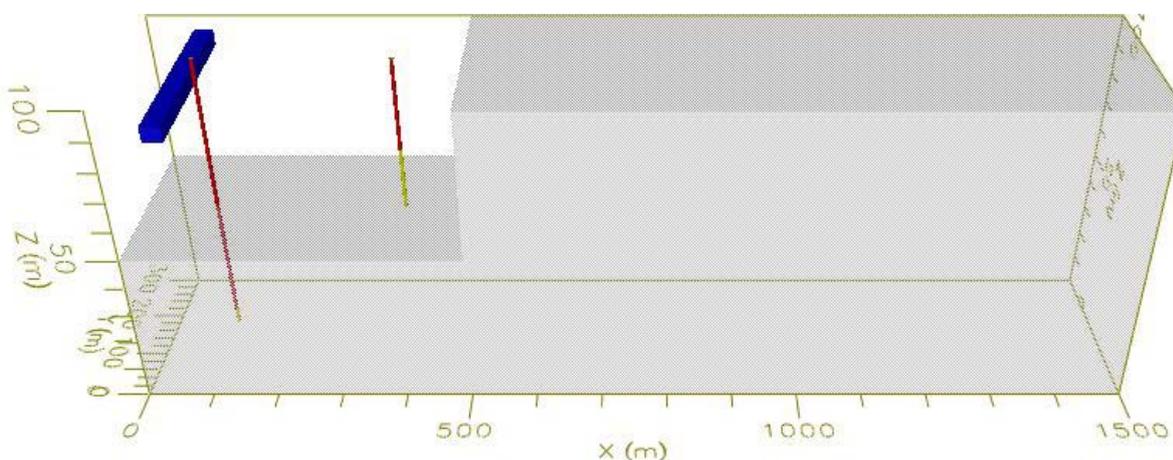


Abb. 37: Modellraum mit der exemplarischen Ansicht des inaktiven Modellbereiches (grau) sowie zwei Standorten von Vertikalfilterbrunnen (rote Stäbchen) und dem Uferfiltratwirksamen Bereich der Gewässersohle (blauer Balken).

Die realitätsnahe Begrenzung des Anstrombereiches des Brunnens im Modell kann auf unterschiedliche Weise erfolgen.

- an der Basis der Filterstrecke, als untere Begrenzung des genutzten Grundwasserleiters;
- am Brunnen hin zum landseitigen Anstrom (der im Modellansatz nicht berücksichtigt wird);
- an der seitlichen Begrenzung des Anstrombereichs des Brunnens.

Zum Vergleich der Auswirkungen der unteren und landseitigen Begrenzungen wurden für ein Szenario - variierende Filtertiefe und veränderte Entnahmen - vergleichende Rechnungen mit einem an die jeweilige Geometrie angepassten Modell gerechnet. Im landseitigen Anstrom wurde das Modell bis 100m Entfernung vom Brunnen „inaktiv“ definiert. Zusätzlich wurden jeweils die Bereiche im Liegenden der Filterunterkante im Modell deaktiviert. Beispielhaft ist dieses Szenario in Abb. 37 abgebildet. Die Berechnungen mit diesem „begrenzten“ Modellraum werden mit den Berechnungen der kürzesten Verweilzeit für variable Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme (k_f -Wert, Ufer-Brunnen-Abstand und Kolmation sind konstant, s. Tab. 10) verglichen. Die kürzesten Fließzeiten für das Szenario mit „unbegrenztem“ Modellraum sind noch einmal in Abb. 38 dokumentiert. Wie sich die Begrenzung des Modellraumes auf die jeweiligen Fließzeiten auswirkt zeigen die Kurvenverläufe in Abb. 39.

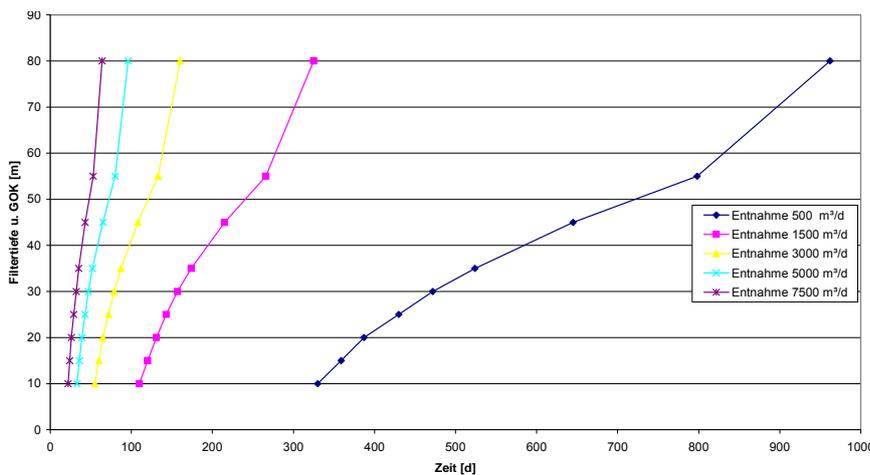


Abb. 38: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für Berechnungen im „unbegrenzten“ Modellraum - mit variabler Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme nach den Ergebnissen in Tab. 12.

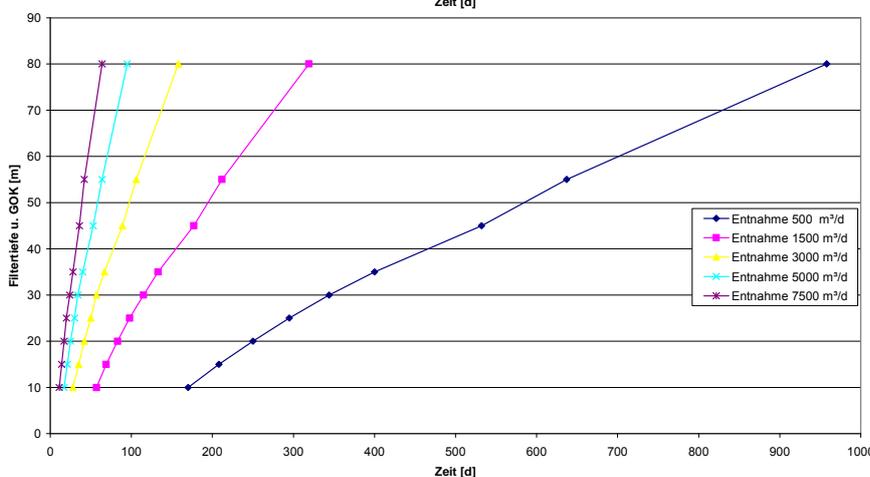


Abb. 39: Grafische Darstellung der kürzesten Verweilzeit für Berechnungen im „begrenzten“ Modellraum (s. Abb. 38) - mit variabler Filtertiefe und zusätzlich in Abhängigkeit von der Entnahme

Die Fließzeiten für die tiefsten Filterbereiche sind für beide Szenarien gleich da hier eine Begrenzung in der Vertikalen nicht wirksam ist. Dies bedeutet aber auch, dass die vorgenommene

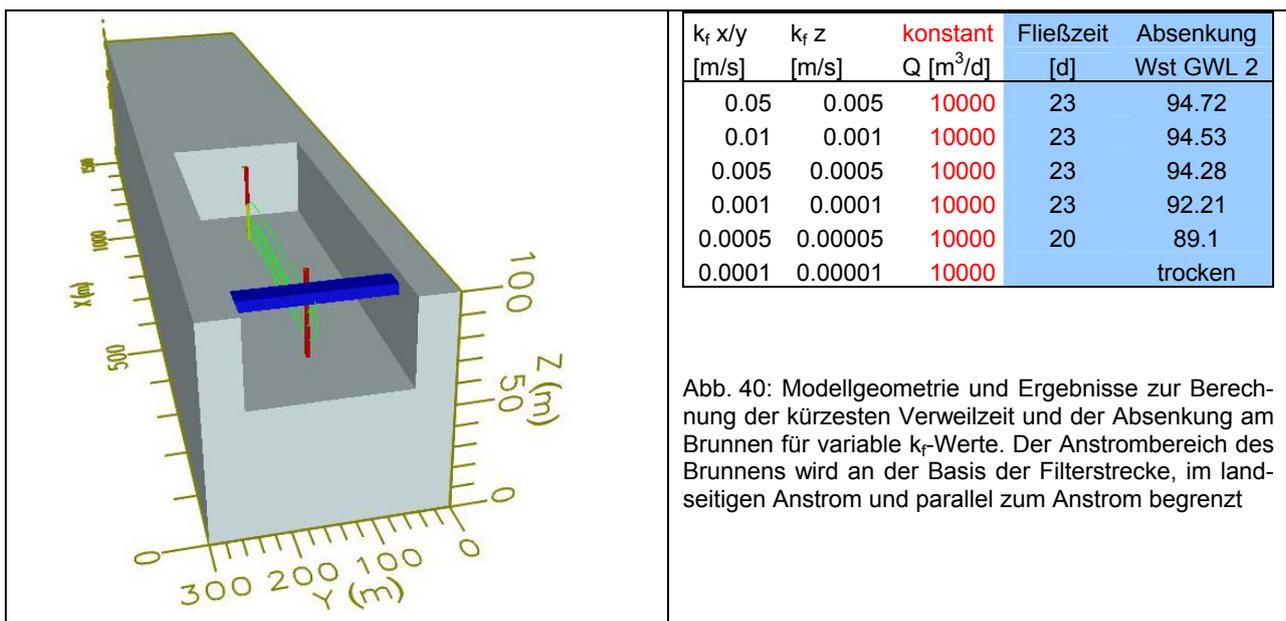
landseitige Begrenzung auf die Ergebnisse keinen Einfluss hat. Jedoch bewirkt diese Volumenbegrenzung eine vorteilhafte Verminderung der Rechenzeit im Modell und wird daher für diese Berechnungen übernommen. Bis hin zu den geringsten Filtertiefen werden durch die Begrenzung des Grundwasserleiters an der Filterunterkante verringerte Fließzeiten von bis zu 50 % (bei Filtertiefe 10m) - unabhängig von der Entnahmemenge - berechnet. Da die Wasserwerke zur maximalen Ausnutzung des Dargebotes die Filter an der Basis des genutzten Grundwasserleiters ausbauen, wird diese Begrenzung als Modellannahme übernommen.

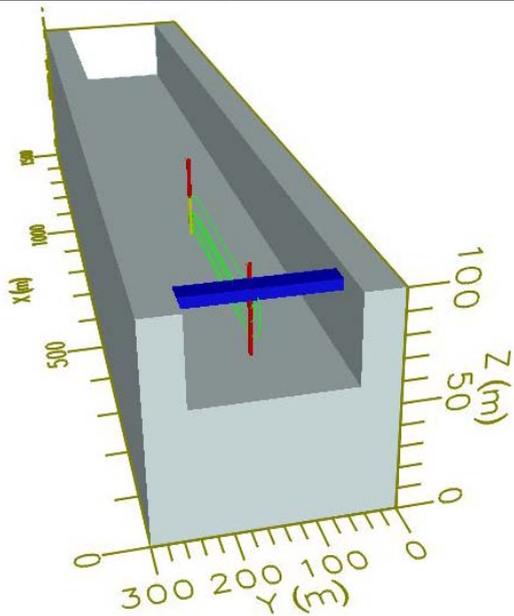
Darstellung des Einflusses geänderter k_f -Werte bei unterschiedlicher Modellausdehnung

Die folgenden Ergebnisse dokumentieren gleichzeitig den Einfluss veränderter k_f -Werte auf die Absenkung (Gradient) am Brunnen bei konstanter Entnahme und auch bei veränderter („begrenzter“) Geometrie des Grundwasserkörpers. In den Abbildungen 40 bis 43 wird dazu jeweils schematisch die Geometrie des Modellraumes den entsprechenden Ergebnissen der Berechnungen (kürzeste Fließzeiten und Absenkung am Brunnen) gegenübergestellt. Für alle Darstellungen des Modellraumes gilt, dass die 3D-Grafiken dreifach überhöht sind.

- Grau: inaktive Bereiche im Modellkörper
- Blau: River-Randbedingung
- Rot: Brunnen (nur der hintere ist für die Berechnung aktiv)
- Grün: Stromlinien für kürzesten Fließpfad

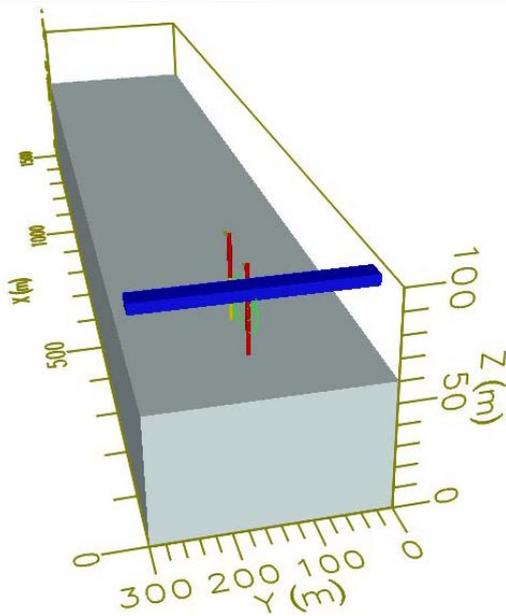
Der Ufer-Brunnen-Abstand beträgt einheitlich 100m (in Abb. 40 und 41 sind zur besseren Veranschaulichung 500m dargestellt aber 100m gerechnet!), die Entnahmemenge 10000 m³/d und die Filtertiefe 20 bis 40 Meter, um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten.





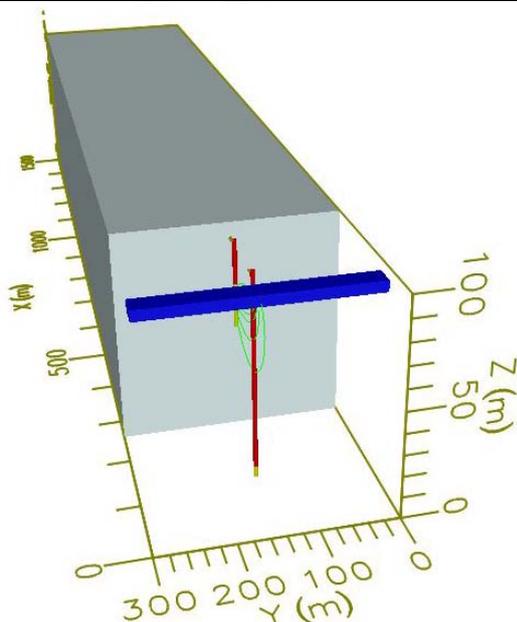
k_f x/y [m/s]	k_f z [m/s]	konstant Q [m ³ /d]	Fließzeit [d]	Absenkung Wst GWL 2
0.05	0.005	10000	23	94.72
0.01	0.001	10000	23	94.53
0.005	0.0005	10000	23	94.28
0.001	0.0001	10000	23	92.21
0.0005	0.00005	10000	20	89.1
0.0001	0.00001	10000		trocken

Abb. 41: Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird an der Basis der Filterstrecke und parallel zum Anstrom begrenzt - der landseitige Anstrom bleibt unbegrenzt



k_f x/y [m/s]	k_f z [m/s]	konstant Q [m ³ /d]	Fließzeit [d]	Absenkung Wst GWL 2
0.05	0.005	10000	29	94.81
0.01	0.001	10000	30	94.67
0.005	0.0005	10000	29	94.49
0.001	0.0001	10000	28	93.02
0.0005	0.00005	10000	28	90.94
0.0001	0.00001	10000		trocken

Abb. 42: Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird an der Basis der Filterstrecke begrenzt - der landseitige Anstrom und die Bereiche parallel zum Anstrom bleiben unbegrenzt



k_f x/y [m/s]	k_f z [m/s]	konstant Q [m ³ /d]	Fließzeit [d]	Absenkung Wst GWL 2
0.05	0.005	10000	34	94.82
0.01	0.001	10000	34	94.70
0.005	0.0005	10000	34	94.55
0.001	0.0001	10000	32	93.32
0.0005	0.00005	10000	31	91.61
0.0001	0.00001	10000		trocken

Abb. 43: Modellgeometrie und Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Verweilzeit und der Absenkung am Brunnen für variable k_f -Werte. Der Anstrombereich des Brunnens wird zum landseitigen Anstrom begrenzt - an der Basis der Filterstrecke und parallel zum Anstrom bleibt der Modellraum unbegrenzt

Ein wesentliches Ergebnis dieser Berechnungen ist die Möglichkeit der direkten Darstellung des Einflusses geänderter k_f -Werte auf die Absenkung am Brunnen. Die Absenkung wird daher als Ergebnisparameter für die weiteren Berechnungen übernommen. Dadurch können ebenso hydraulische Grenzfälle von Geometrien der Uferfiltratstandorte ermittelt werden, bei denen aufgrund der Parameterkonstellation der Brunnen teilweise oder ganz trocken fällt.

Hinsichtlich der Modellbegrenzungen konnte anhand der Abb. 40 und 41 gezeigt werden, dass die Begrenzung des landseitigen Zustroms keinen Einfluss auf Fließzeit bzw. Absenkung haben. Deutliche Differenzen werden dagegen im Vergleich der Geometrien der Abbildungen 42 und 43 sichtbar. Davon ausgehend, dass die Begrenzung an der Basis der Filterstrecke die realitätsnahe Annahme darstellt (Abb. 42), wird in Abb. 43 die Abweichung ohne diese Basis dokumentiert. Deutlich längere Fließzeiten und geringere Absenkungen am Brunnen entstehen durch die zusätzliche Nutzung des Wasservolumens unterhalb des Filters für dieses hydraulische Szenario und bestätigen die Notwendigkeit einer Begrenzung an der Filterbasis.

Diskussion der Einflüsse einer seitlichen Begrenzung des Brunnenanstroms

Es ist vorgesehen, den Anstrombereich des Brunnens seitlich nur innerhalb der Modellgeometrie (Außenseiten) zu begrenzen. Das bedeutet, dass im Modell dem Entnahmebrunnen bei zentraler Lage seitlich je 150 Meter (unabhängig von den anderen Randbedingungen) zur Entfaltung des Einzugsgebietes zur Verfügung stehen. Das ist eine vereinfachende Modellannahme, obwohl in der Realität entlang von Galerien meist eine Beeinflussung der Brunnen gegeben ist. In Abhängigkeit von der Geometrie der Wasserfassung und der Entnahme konkurrieren die Einzugsgebiete der Einzelbrunnen in der Galerie mit dem Nachbarbrunnen. Schematisch ist dies in den Abb. 44 und 45 dargestellt. Allerdings wird das aus ökonomischer Sicht entlang der Wasserfassungen nur in einem geringen Umfang stattfinden - Geometrien der Wasserfassungen und Entnahmemengen sind seitens der Werke optimiert.

Diese Begrenzung bewirkt für den Galeriestandort eine verstärkte Absenkung und eine verkürzte Fließzeit gegenüber einem richtigen Einzelbrunnen. Dies konnte anhand der den Abb. 41 und 42 sowie 44 und 45 zugrunde liegenden Ergebnissen im Modell gezeigt werden. Für das erste Szenarien-Paar wurde die Begrenzung durch eine Deaktivierung der seitlichen Modellbereiche bewirkt. Das zweite Szenarien-Paar dokumentiert die realitätsnahe Beschränkung des Anstroms durch den Einsatz von Nachbarbrunnen mit der gleichen Leistung. In beiden Fällen verkürzt sich die Fließzeit am zentralen Brunnen vergleichbar mit einer Erhöhung der Entnahmemenge. Dies ist auch die Ursache dafür, dass bei der vorliegenden Fragestellung die seitliche Begrenzung mit einer einheitlichen Geometrie gerechnet werden kann. Da im Ergebnis die Spannweiten der kürzesten Fließzeiten durch Kombination der Variablen gefragt sind, kann jeder Fall einer Verkürzung der Fließzeit durch eine seitliche Begrenzung auch durch eine andere Kombination (z.B. höhere Entnahmemenge) abgebildet werden. (Die unzähligen Kombinationsmöglichkeiten, die zu einer Begrenzung führen, wären ohnehin nicht im Rahmen dieser Bearbeitung realisierbar).

Vergleichsrechnungen an Standorten der Datenrecherche

Zur Verifizierung des Modellansatzes wurde versucht, reale Standorte anhand ihrer gemessenen Parameter im Modell abzubilden und die Fließzeit zu bestimmen. Die berechneten Fließzeiten sollten größenordnungsmäßig mit den Angaben zu den einzelnen Standorten übereinstimmen. Eine exakte Übereinstimmung der Standortangaben mit den berechneten Fließzeiten ist allerdings nicht zu erwarten, da die Anwendung des Modellansatzes auf Annahmen basiert, die sich von den Randbedingungen (Gegebenheiten) bei der Ermittlung der Standortangaben unterscheiden und weil ein verallgemeinertes Modell zu entwickeln war.

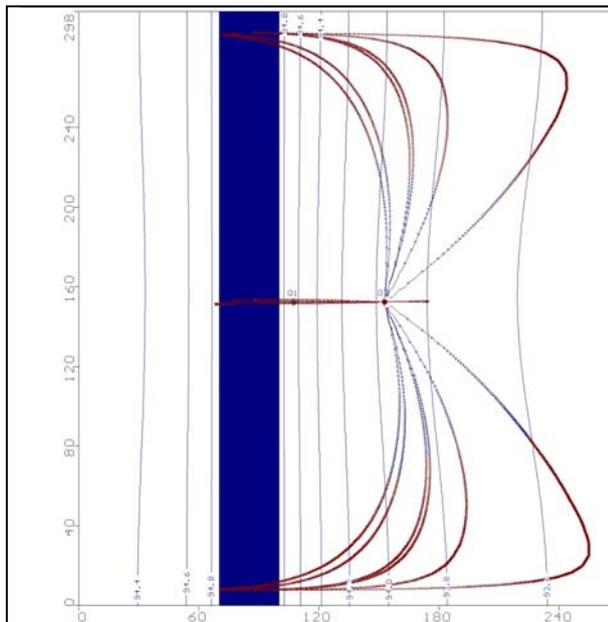


Abb. 44: Darstellung des Anstrombereiches eines Einzelbrunnens im Modell anhand von Grundwasserstromlinien - die komplette Modellbreite wird ausgenutzt (Modellparameter: $Q: 1 \times 1333,33 \text{ m}^3/\text{d}$, $k_f: 0,0001 \text{ m/s}$, Ufer-Brunnen-Abstand: 50 m, FiOK: 30 m)

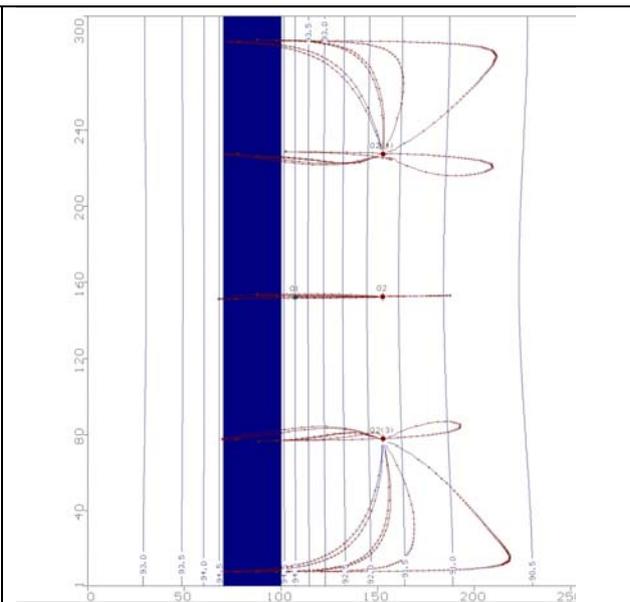


Abb. 45: Darstellung des Anstrombereiches von drei benachbarten Brunnen (mit jeweils der gleichen Entnahmemenge wie in Abb. 45) im Modell anhand von Grundwasserstromlinien: der Anstrom des zentralen Brunnens wird eingeschränkt (Modellparameter: $Q: 3 \times 1333,33 \text{ m}^3/\text{d}$, $k_f: 0,0001 \text{ m/s}$, Ufer-Brunnen-Abstand: 50 m, FiOK: 30 m)

Die Grundwasserströmung an den Standorten Flehe (Rhein) und Torgau-Ost (Elbe) wurde unter Nutzung ihrer bekannten Parameter und Randbedingungen (s. Kapitel 5.3 und 5.4) mit dem vorliegenden Modellansatz simuliert. Auch für diese Modellanwendung fand nur eine Modifikation der Geometrien der Brunnenfassung, die Entnahmemenge am Brunnen und die Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) entsprechend der Angaben (s. Tab. 16 und Abb. 46) statt. Für den Standort Flehe beträgt die berechnete kürzeste Fließzeit des Uferfiltrates 30 Tage, wogegen für den Standort Torgau-Ost 210 Tage berechnet wurden. Die Strompfade für diesen Zustand sind jeweils in Tab. 18 visualisiert. Als Vergleich liegen Angaben zu den mittleren Fließzeiten des Uferfiltrates beider Standorte vor. Nach Angaben der Stadtwerke Düsseldorf (Hr. Eckert, mdl. Mitteilung) beträgt diese für den Standort Flehe 35 Tage und ist somit mit dem Modellergebnis vergleichbar. Die Angabe zur mittleren Aufenthaltszeit des Uferfiltrates von > 150 Tagen am Standort Torgau-Ost ist für einen Vergleich ungeeignet. Aber größenordnungsmäßig stimmt auch diese Angabe mit dem Modellergebnis überein.

Tab. 16: Zusammenfassung der Angaben zum Modellaufbau und den Modellergebnissen für die Berechnung der Grundwasserströmung an den Standorten Flehe/Rhein und Torgau-Ost/Elbe.

Modellparameter und Randbedingungen		Flehe / Rhein	Torgau Ost / Elbe
Ufer-Brunnen-Abstand	[m]	65	300
Filtertiefe Brunnen	[m u. GOK]	10-17	35-55
Entnahme Brunnen	[m³/d]	840	3600
Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f)	[m/s]	0,001	0,002
effektive Porosität		0,2	0,2
Angaben zur mittleren Fließzeit Uferfiltrat	[d]	35	>150
Modellergebnis: berechnete kürzeste Fließzeit Uferfiltrat (lt. Methodik) [d]		30	210

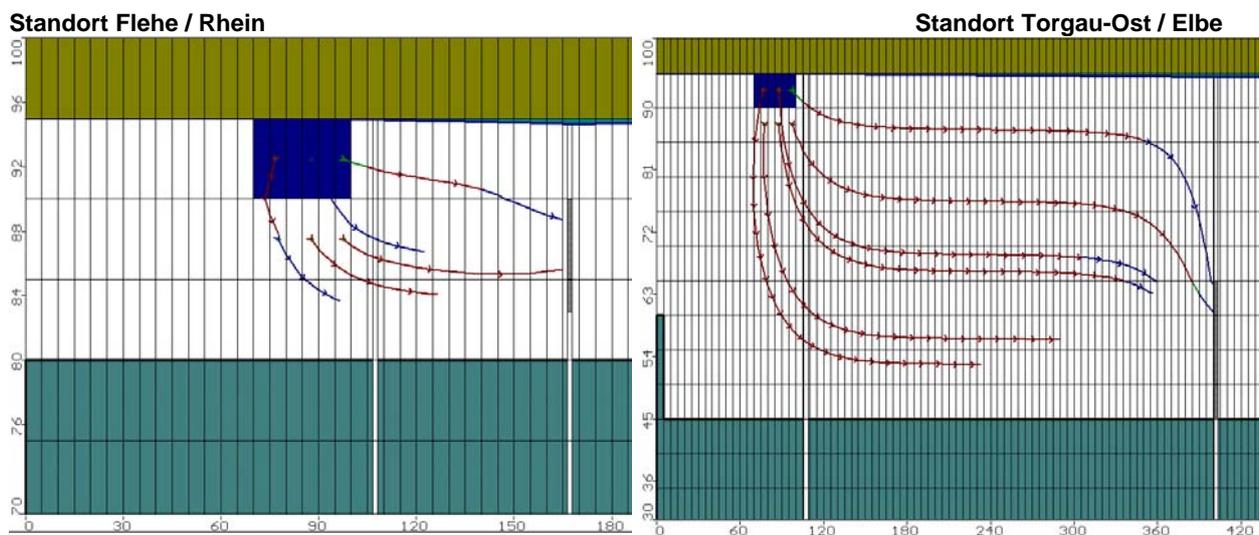


Abb. 46: Visualisierung der Modellrandbedingungen und Strompfade (Bildschirmausdruck Visual Modflow)

Dargestellt ist für beide Standorte der Profilschnitt zwischen Oberflächengewässer und Entnahmebrunnen im Finite-Differenzen-Gitter von Visual Modflow. Die Grundwasserströmung wird durch Strompfade beginnend am Gewässer („River“ Randbedingung, blauer Quader) in Richtung Filter am Entnahmebrunnen (grauer Balken) verdeutlicht. Aktive Modellbereiche sind in Weiß, inaktive Bereiche in Grün und trockene Teile der aktiven Bereiche in Oliv dargestellt. Die Dimensionen entlang der x-Achse und der überhöhten y-Achse sind Meter.

Als **Fazit** dieses Vergleiches ist eine gute Übereinstimmung der Angaben zu den mittleren Fließzeiten und den berechneten Fließzeiten festzustellen. Die Genauigkeit ist ausreichend, da es nicht Ziel der Bearbeitung ist, einzelne Uferfiltratstandorte mit komplexer Hydrogeologie und Hydraulik nachzubilden, sondern für die Spannweite der jeweiligen Parameter mögliche Fließzeiten zu berechnen. Dementsprechend vereinfacht ist der Modellansatz konzipiert. Die gegebenen Daten sind im jeweiligen Kontext zu sehen und stellen eine Information für einen speziellen hydraulischen Zustand (z.B. Niedrigwasser im Fluss, hohe Entnahme am Brunnen, etc.) dar.

6.2.4 Berechnung der kürzesten Fließzeiten sowie der Absenkung am Brunnen bei schrittweiser Variation der Parameter und Randbedingungen

Im Anschluss an die in Kapitel 6.2.3 beschriebene Kalibrierung wurde die Grundwasserströmung bei der Uferfiltration durch schrittweise Variation der Entnahmemenge am Brunnen, des Ufer-Brunnen-Abstandes, der Filtertiefe und der Durchlässigkeitsbeiwerte (Tab. 8) berechnet. Für jeden Modelllauf liegen im Ergebnis Werte zur kürzesten Fließzeit, der Absenkung am Brunnen und Angaben zum Fehler in der Modellbilanz (ab Fehler > 0,5%) in einer Datenmatrix vor. Alle Ergebnisse sind in Anlage 7 dokumentiert. In Auswertung der Kalibrierung kam für die Berechnungen der anfangs diskutierte Modellansatz (Abb. 30) zur Anwendung. Allerdings wurde zusätzlich die Modellbasis der jeweiligen Filterunterkante angepasst sowie eine landseitige Begrenzung durch deaktivieren der brunnenfernen Modellbereiche definiert (s. Abb. 39 bis 41). Durch Kombination aller Parameter miteinander entsteht eine Gesamt-Matrix mit 1512 zu berechnenden Datenpaaren. In Anlage 7 werden diese Kombinationen in erster Abhängigkeit von der Filtertiefe unter Gelände (hier: GOK 100 m) blattweise dokumentiert. Aus hydraulischer Sicht wurden vorab 129 Kombinationen ausgeschlossen, die hydraulisch nicht bei der Uferfiltration realisierbar sind. Weitere 93 Kombinationen lassen sich mit dem Modellergebnis - „trockener Filter“ - als Uferfiltratfall ausschließen. Somit liegen für 1290 Modellrechnungen Ergebnisse in der Datenmatrix vor, die im Folgenden grafisch dargestellt und diskutiert werden.

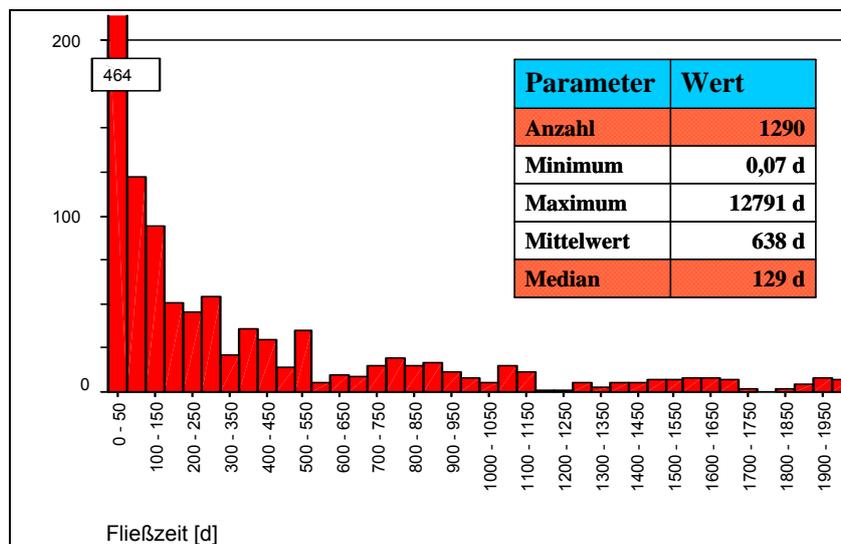


Abb. 47: Deskriptive Statistik zu den Berechnungsergebnissen der Grundwasserströmung. Abgebildet sind die Häufigkeiten der berechneten kürzesten Fließzeiten in Tagen im Bereich von 0 bis 2000 Tage. Dabei kommen 1186 von 1290 Werten (Anzahl N) zur Darstellung. Weitere statistische Parameter sind in der Tab. aufgelistet.

Die Häufigkeiten der berechneten Fließzeiten (in Tagen) sowie andere allgemeine statistische Parameter zeigt Abb. 47. Bedingt durch die genutzten Parameterkombinationen ergibt sich eine kürzeste Fließzeiten von 0,07 Tagen sowie als längste berechnete Fließzeit 12791 Tage (in Abb. 47 sind nur Werte im Bereich bis 2000 Tage dargestellt). Für den Median wurde ein Wert von 129 Tagen bestimmt. Damit wird gleichzeitig deutlich, dass aus der Mehrzahl der gewählten Parameterkombinationen eine schnelle Grundwasserströmung zwischen Uferbereich und Brunnen resultiert. Es werden also tendenziell „worst case“ Fälle simuliert, was im Sinne der Aufgabenstellung war. So ergeben 464 Berechnungsergebnisse kürzeste Fließzeiten von weniger als 50 Tagen (s. Abb. 47). Ob diese Berechnungen mit den Gegebenheiten an Uferfiltratstandorten übereinstimmen, wird im nächsten Kapitel diskutiert.

Eine Analyse der Abhängigkeit der Fließzeit von den Geometrien der Uferfiltratstandorte im Modell erfolgt anhand der Boxplots in Abb. 48. Es kommt jeweils die Fließzeit als Funktion von zwei Parametern zur Darstellung. Hinsichtlich der Darstellung eines „worst case“ Szenarios für die Fließzeiten bei der Uferfiltration können erwartungsgemäß folgende Zusammenhänge abgeleitet werden. Bei geringer Filtertiefe und hoher Entnahme werden die geringsten Fließzeiten simuliert. Dabei ist zu erkennen, dass bei hohen Entnahmen der Einfluss der Filtertiefe vergleichbar gering ist (Abb. 48 Bild A). Kurze Fließzeiten resultieren auch aus der Kombination von geringem Ufer-Brunnen-Abstand und geringer Filtertiefe (Abb. 48 Bild B, C) bzw. von geringem Ufer-Brunnen-Abstand und hoher Entnahme (Abb. 48 Bild D, E).

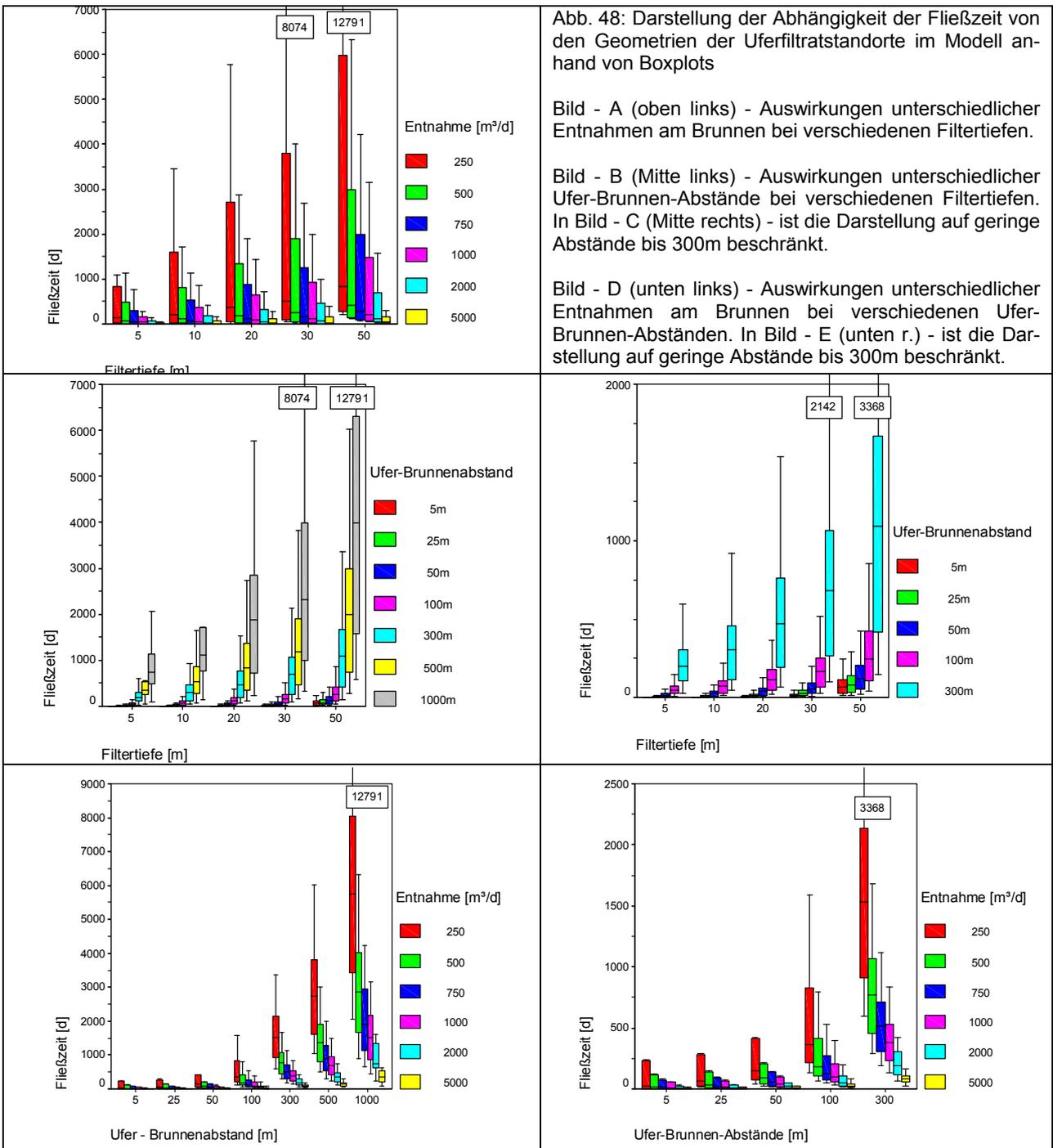


Abb. 48: Darstellung der Abhängigkeit der Fließzeit von den Geometrien der Uferfiltratstandorte im Modell anhand von Boxplots

Bild - A (oben links) - Auswirkungen unterschiedlicher Entnahmen am Brunnen bei verschiedenen Filtertiefen.

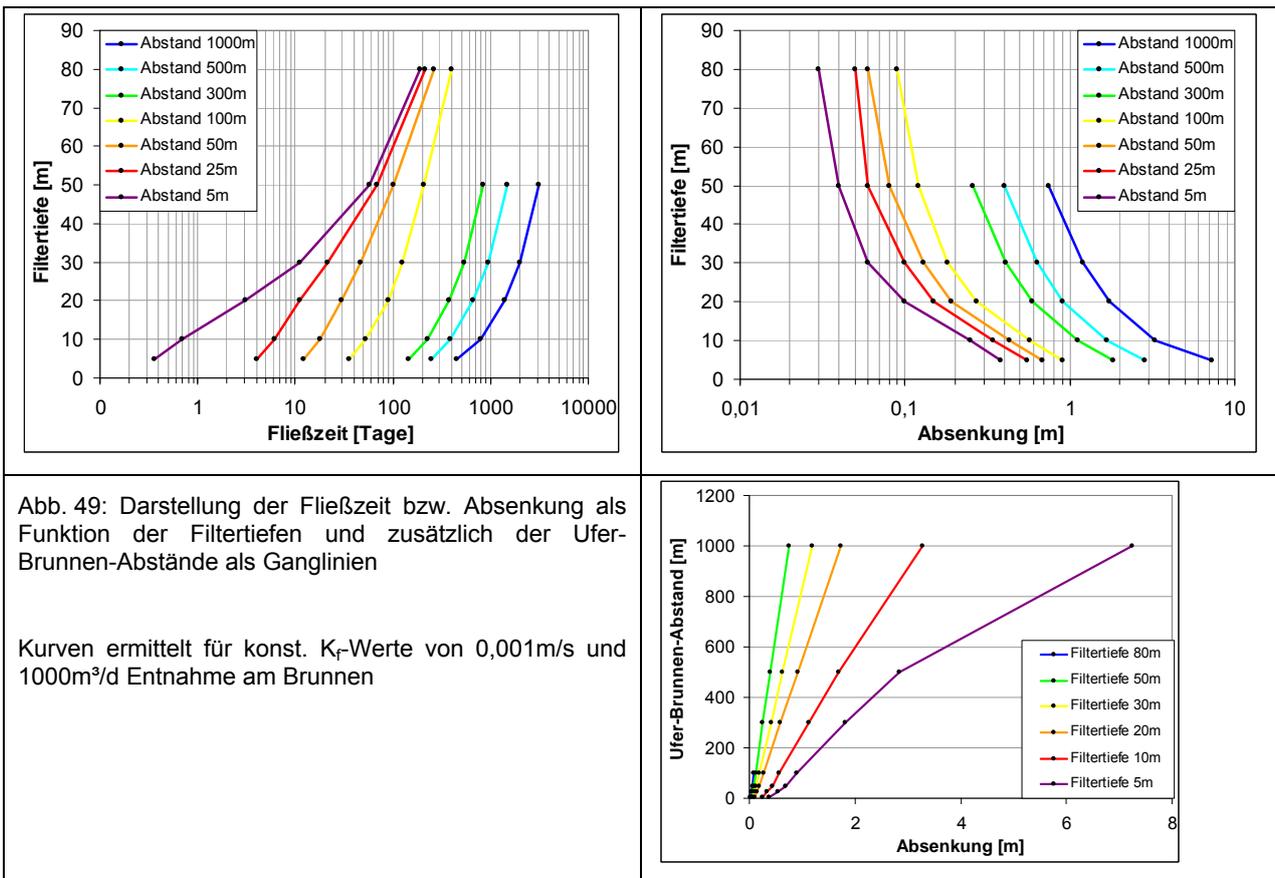
Bild - B (Mitte links) - Auswirkungen unterschiedlicher Ufer-Brunnen-Abstände bei verschiedenen Filtertiefen. In Bild - C (Mitte rechts) - ist die Darstellung auf geringe Abstände bis 300m beschränkt.

Bild - D (unten links) - Auswirkungen unterschiedlicher Entnahmen am Brunnen bei verschiedenen Ufer-Brunnen-Abständen. In Bild - E (unten r.) - ist die Darstellung auf geringe Abstände bis 300m beschränkt.

Eine andere Art der Darstellung der kürzesten Fließzeiten als Funktion der Geometrien der Uferfiltratstandorte und der Durchlässigkeitsbeiwerte sind Ganglinien. Zwischen den berechneten Einzelwerten innerhalb der Spannweiten wird dabei der Verlauf interpoliert und kann somit als Funktion dargestellt werden. Im Folgenden werden beispielhaft einige ausgewählte Kombinationen vorgestellt, anhand derer sich die gültigen Zusammenhänge ableiten lassen. Anhand der Farbgebung der Kurven lassen sich die kürzesten Fließzeiten für die „worst case“ Szenarien erkennen. Diese liegen im Bereich des Farbspektrums von Gelb bis Violett.

Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Filtertiefe und der Ufer-Brunnen-Abstände

Zur Visualisierung der Auswirkungen von Filtertiefe und Ufer-Brunnen-Abstand auf die Fließzeiten bzw. die Absenkungen am Entnahmebrunnen zeigt Abb. 49 jeweils eine Kurvenschar einfach logarithmisch und für die Absenkung zusätzlich linear. Die Kurven wurden für konstante k_f -Werte von 0,001m/s und 1000m³/d Entnahme am Brunnen ermittelt und repräsentieren somit durchschnittliche Uferfiltratbedingungen. Die kürzesten Fließzeiten (in diesem Beispiel < 1 Tag) resultieren erwartungsgemäß aus der Kombination von geringer Filtertiefe und geringem Ufer-Brunnen-Abstand. Diese Parameterkombination führt auch zu geringen Absenkungen am Entnahmebrunnen, wobei diese sich mit zunehmender Filtertiefe noch verringert.



Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Filtertiefen

Die Auswirkungen von geänderter Filtertiefe und Entnahmemenge auf die Fließzeiten bzw. die Absenkungen am Entnahmebrunnen zeigt Abb. 50 exemplarisch für konstante k_f -Werte von 0,005m/s und einem Ufer-Brunnen-Abstand von 25 Metern. Dabei sind die Fließzeiten einfach

logarithmisch aufgetragen und zeigen erwartungsgemäß die geringsten Werte (< 1 Tag) bei hohen Entnahmen und geringer Filtertiefe. Die geringsten Absenkungen resultieren aus der Kombination von geringer Entnahme und tiefer Filterlage am Brunnen.

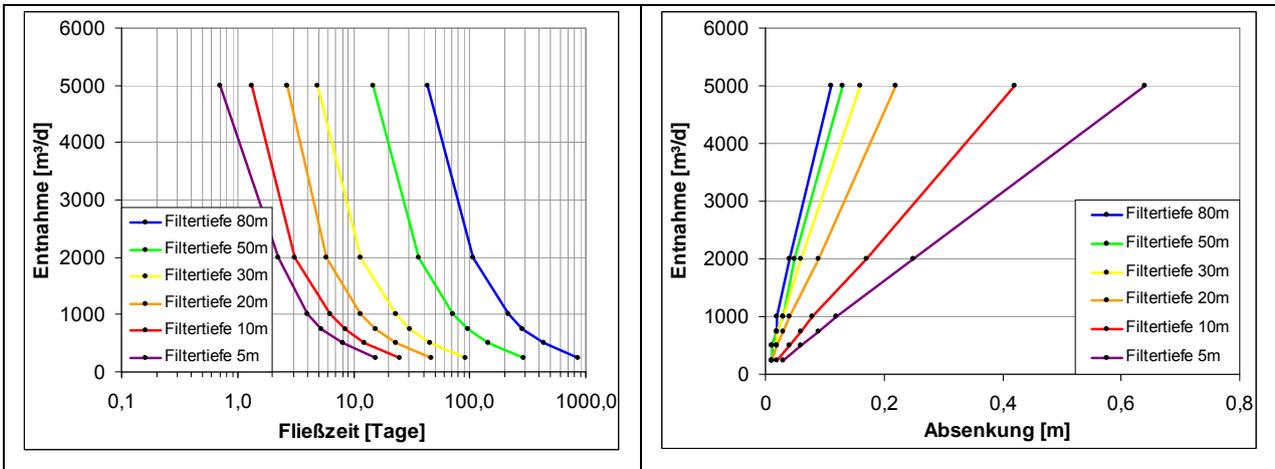


Abb. 50: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Filtertiefen als Ganglinien (Kurven ermittelt für konst. k_f -Werte von 0,005m/s und 25m Ufer-Brunnen-Abstand)

Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und der Ufer-Brunnen-Abstände

Werden die Ufer-Brunnen-Abstände und die Entnahmen bei konstanten k_f -Werten von 0,001m/s und einer Filtertiefe 50m geändert, ergeben sich die in Abb. 51 dokumentierten Kurvenverläufe. Die kürzesten Fließzeiten (hier ca. 15 Tage) berechnen sich aus der Parameterkombination von hoher Entnahme und geringem Ufer-Brunnen-Abstand. Die geringsten Absenkungen am Entnahmebrunnen treten erwartungsgemäß bei geringen Entnahmen und geringem Ufer-Brunnen-Abstand auf.

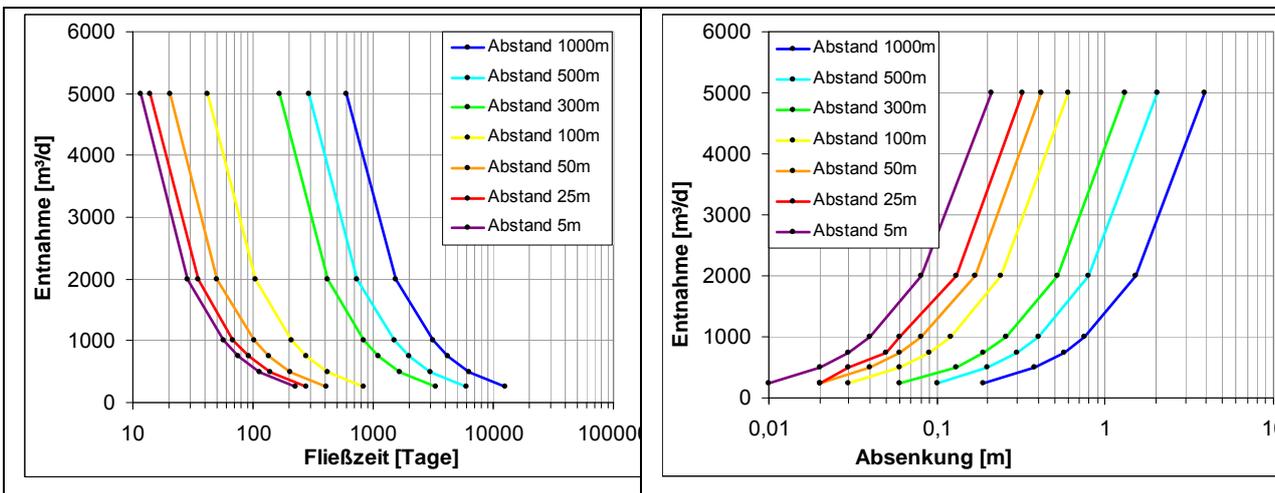


Abb. 51: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Ufer-Brunnen-Abstände als Ganglinien (Kurven ermittelt für konst. k_f -Werte von 0,001m/s und 50m Filtertiefe)

Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Filtertiefen und der Durchlässigkeitsbeiwerte

Die Abhängigkeit der Fließzeit von den k_f -Werten konnte mit dem vorliegenden Modellansatz nicht direkt gezeigt werden wie anhand der Abbildungen 52 bis 54 zu erkennen ist. Als gesteinspezifische Eigenschaft wird zur Berechnung der Fließzeit nur die Porosität berücksichtigt. Diese wird aber bei den vorliegenden Betrachtungen nicht verändert. Wird im Modell nur

der k_f -Wert verändert, berechnet Modflow/Flowpath einen entsprechend veränderten Gradienten unter Beibehaltung der Fließzeiten. Der Einfluss der k_f -Werte wird daher mit Hilfe der Absenkung am Brunnen verdeutlicht. Abb. 52 dokumentiert die Berechnungsergebnisse für die Fließzeiten bzw. Absenkungen am Brunnen für die Spannweiten der Filtertiefen und k_f -Werte im Modell. Die Werte wurden für konstante Entnahmen am Brunnen von $500\text{m}^3/\text{d}$ und 5m Ufer-Brunnen-Abstand für die Fließzeit bzw. $1000\text{m}^3/\text{d}$ Entnahme bei 50m Ufer-Brunnen-Abstand für die Absenkung ermittelt. Die kürzesten Fließzeiten werden bei den geringsten Filtertiefen erreicht - unabhängig von den verwendeten k_f -Werten. Die geringsten Absenkungen und somit auch die besten hydraulischen Wegsamkeiten für das Uferfiltrat resultieren zudem aus der Berechnung mit großen Filtertiefen und den höchsten k_f -Werten im Modell.

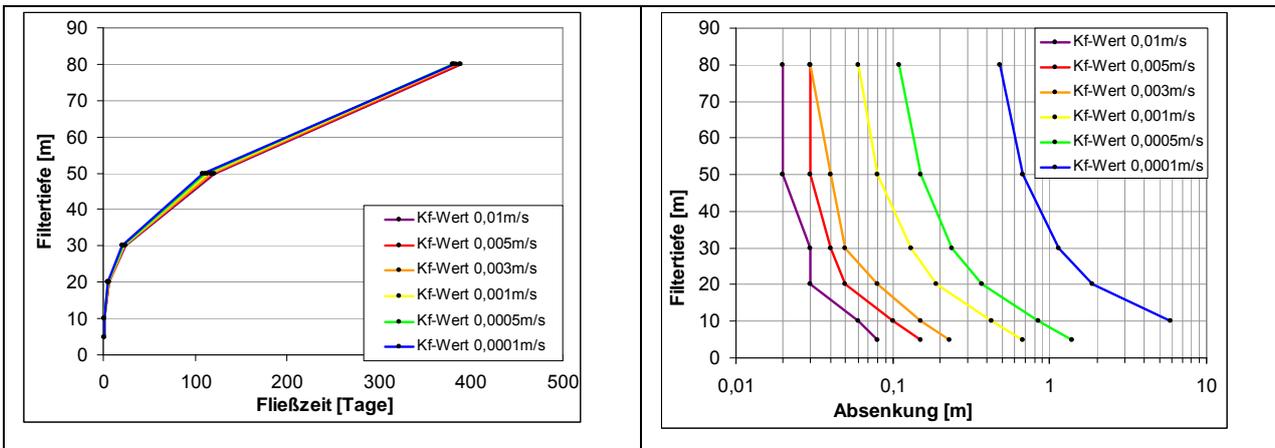


Abb. 52: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Filtertiefe und zusätzlich der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien (Kurven ermittelt für konst. Entnahmen am Brunnen von $500\text{m}^3/\text{d}$ und 5m Ufer-Brunnen-Abstand für die Fließzeit und $1000\text{m}^3/\text{d}$ Entnahme bei 50m Ufer-Brunnen-Abstand für die Absenkung)

Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Abstände und der Durchlässigkeitsbeiwerte

In Abb. 53 werden die Fließzeiten und die Absenkungen als Funktion der k_f -Werte und zusätzlich der Ufer-Brunnen-Abstände dargestellt. Die Kurven für konstante Entnahmen am Brunnen von $1000\text{m}^3/\text{d}$ und einer Filtertiefe wurde von $30\text{--}40\text{m}$ ermittelt. Die kürzesten Fließzeiten resultieren aus der Verwendung geringer Ufer-Brunnen-Abstände.

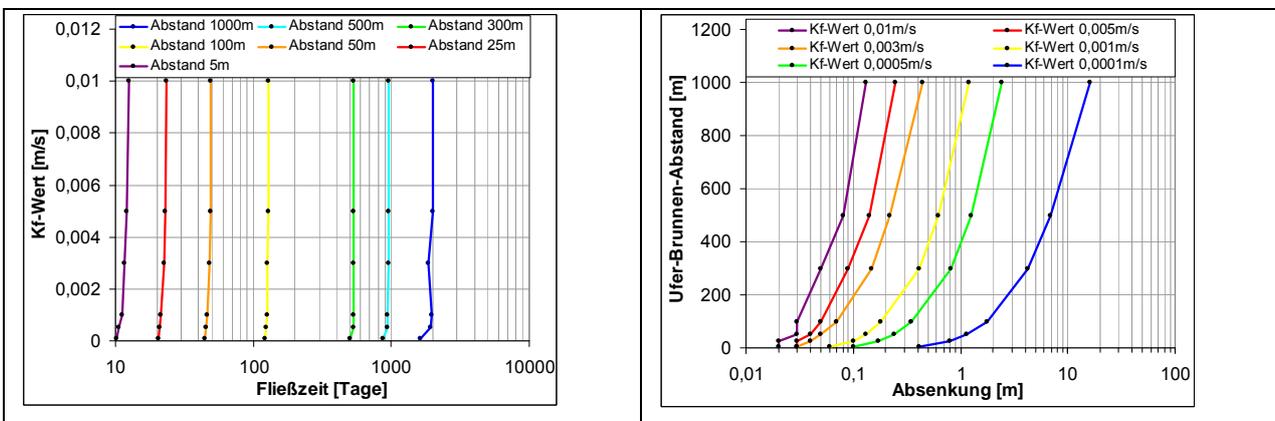


Abb. 53: Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Ufer-Brunnen-Abstände und der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien (Kurven ermittelt für konst. Entnahmen am Brunnen von $1000\text{m}^3/\text{d}$ und einer Filtertiefe von $30\text{--}40\text{m}$)

Dabei haben die k_f -Werte wieder keinen Einfluss auf die berechneten Fließzeiten sondern nur auf die Absenkung am Brunnen. So wird beim kleinsten Ufer-Brunnen-Abstand und dem

höchsten k_f -Wert auch die geringste Absenkung errechnet.

Absenkung als Funktion der Entnahme und der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f)

Die letzte darstellbare Parameterkombination ergibt sich aus der Variation der Entnahmemenge und der k_f -Werte. Das Beispiel in Abb. 54 zeigt Fließzeiten und Absenkungen ermittelt für konstante Filtertiefen von 30 bis 40 sowie 50 Meter Ufer-Brunnen-Abstand. Dabei werden die Fließzeiten über die Spannweite der k_f -Werte ebenfalls (vom Modell) konstant gehalten. Die höchste Entnahmemenge bewirkt die kürzeste Fließzeit. Der Einfluss der hydraulischen Durchlässigkeit (k_f) wird aber als Funktion der Absenkung deutlich - hohe Entnahmen führen bei geringen k_f -Werten erwartungsgemäß zu hohen Absenkungsbeträgen (hier bis 2 Meter).

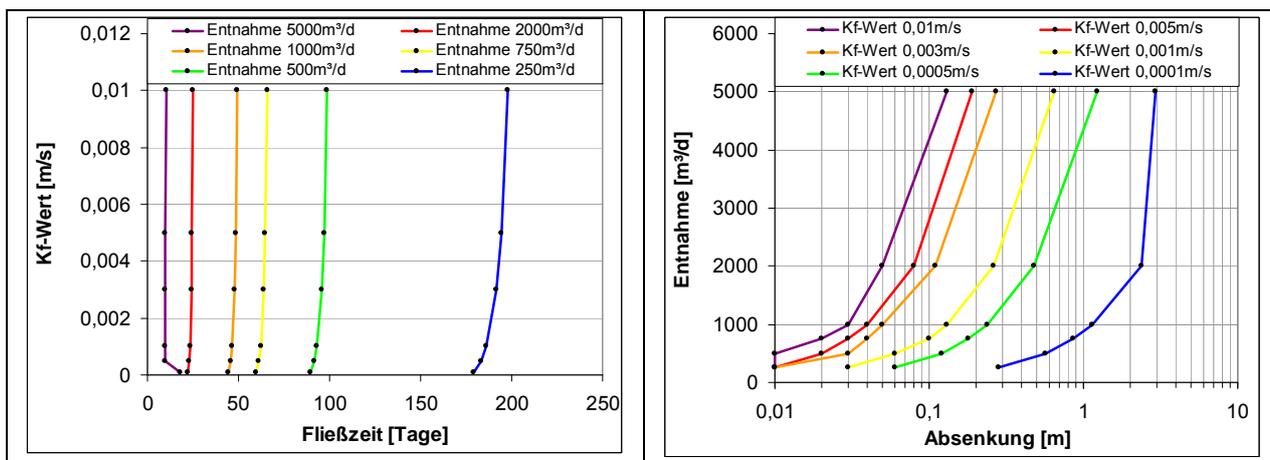


Abb. 54: Darstellung der Fließzeit bzw. Absenkung als Funktion der Entnahme und zusätzlich der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) als Ganglinien (Kurven ermittelt für konst. Filtertiefen von 30-40m und 50m Ufer-Brunnen-Abstand)

6.2.5 Zusammenfassung der Berechnungsergebnisse der Grundwasserströmung

Im Ergebnis der Modellrechnungen mit dem Grundwasserströmungsmodell liegen zu 1290 Parameterkombinationen (s. Tab. 8) Datenpaare mit Angaben zur gesuchten kürzesten Fließzeit und der Absenkung am Entnahmebrunnen vor. Für die Berechnungen sind die Spannweiten der einzelnen Parameter anhand bekannter Uferfiltratstandorte in Deutschland abgeleitet worden. Durch die Kombination aller Parameter werden die möglichen Spannweiten an Uferfiltratstandorten erfasst und dafür die kürzesten Fließzeiten zwischen Uferbereich und Entnahmebrunnen bestimmt. Diese bilden eine Grundlage zur Berechnung des standortbezogenen Transportes von Arzneimittelwirkstoffen (Kapitel 6.3), da die Verweilzeit der Stoffe im Grundwasserleiter der Schlüsselparameter für Abbau- und Sorptionsprozesse im Grundwasser ist. Im Ergebnis der Berechnungen (s. Anlage 7) liegen Fließzeiten in einem Intervall von wenigen Stunden bis zu 35 Jahren vor (s. Abb. 47). Der Median dieser Daten bildet mit einem Wert von 129 Tagen einen durchschnittlichen Uferfiltratstandort ab, wie die statistische Auswertung bekannter Standorte im folgenden Kapitel zeigen wird. Erwartungsgemäß resultieren die kürzesten Fließzeiten und damit der hieraus abgeleitete „worst case“ aus folgenden Parameterkombinationen der Geometrien der Uferfiltratstandorte:

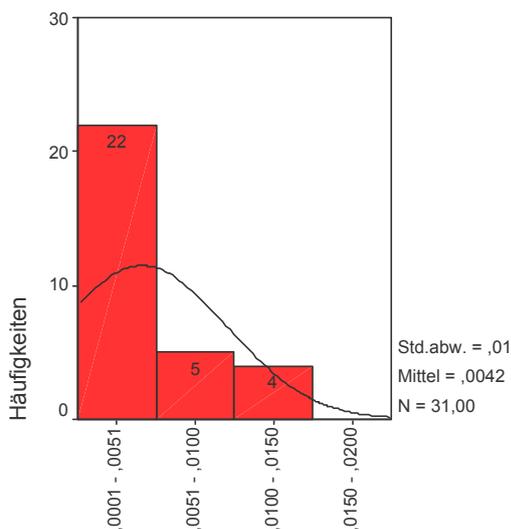
→ Geringe Filtertiefe, geringer Ufer-Brunnen-Abstand und hohe Entnahmemenge.

Diese Zusammenhänge werden anhand von Boxplots in Abb. 48 und Gangliniendarstellungen von repräsentativen Fallbeispielen in den Abbildungen 49 bis 51 visualisiert. Der Einfluss der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) wird mit diesem Ansatz nur indirekt über die Absenkung am Brunnen erfasst. Wie anhand der Abb. 52 bis 54 gezeigt werden kann, ist eine gute hydraulische Durchlässigkeit (hohe k_f -Werte) Voraussetzung für eine hohe Ergiebigkeit des Entnahmebrunnens (hohe Entnahmemengen) und damit für das Eintreten von worst case Fällen.

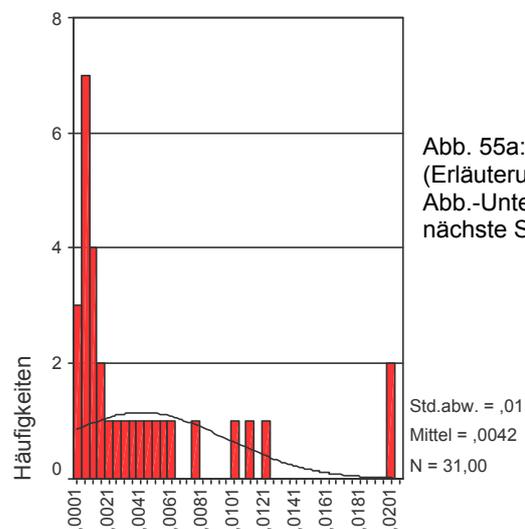
6.2.6 Statistische Auswertung zu bekannten Uferfiltratstandorten

Die Berechnungen zu den Fließzeiten im vorangegangenen Kapitel basieren zwar auf der Nutzung von Parametern innerhalb ihrer Spannweiten an bekannten Standorten. Anhand der Datenmatrix allein kann aber keine Aussage zu Häufigkeiten bzw. dem Auftreten von Bedingungen (Parameterkombination) zum „realistic worst case“ getroffen werden. Für diese Aussagen werden die Standorte nach Lenk et al. (2006) sowie die Standorte, zu denen im Zuge der Datenrecherche Rohdaten zur Verfügung standen (Niederrhein, Elbe, Havel) einer Analyse unterzogen und mit den Modellergebnissen in Beziehung gesetzt.

Die vorliegenden Daten sind hinsichtlich ihrer Inhalte sehr inhomogen. Der für diese Bearbeitung umfangreichste Datensatz liegt bei Lenk et al. (2006) vor. Er umfasst u. a. die wesentlichen Angaben zu den Geometrien der Brunnenfassungen und zu den Durchlässigkeitsbeiwerten (k_f) im Grundwasserleiter (s. Anlage 1). Angaben zu den Entnahmemengen der einzelnen Brunnen liegen nicht vor. In Abb. 55 sind zum Datensatz von Lenk et al. (2006) als Spannweindiagramme (Histogramme) die Häufigkeiten jeweils der Mittelwerte der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f), der Mächtigkeiten der Grundwasserleiter (wird hier in grober Näherung mit der Filtertiefe gleichgesetzt, da die Brunnen zumeist an der Basis des Grundwasserleiters ausgebaut sind), der Ufer-Brunnen-Abstände und der Fließzeiten im Grundwasser aufgetragen. Der Schwerpunkt der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) liegt im Bereich von $5 \cdot 10^{-3}$ m/s und bei Grundwasserleitermächtigkeiten bis zu 20 Metern. Die meisten Brunnen befinden sich in einem Abstand von 100 Metern zum Ufer und die Verweilzeiten sind zumeist geringer als 200 Tage.



Mittelwerte der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) [m/s]



Mittelwerte der Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) [m/s]

Abb. 55a:
(Erläuterungen s.
Abb.-Unterschrift
nächste Seite)

Mittelwerte der Filterunterkanten (Endteufe) der Brunnen, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Entnahmemengen von Einzelbrunnen als Mittelwert der Galerie.

Zu den Durchlässigkeitsbeiwerten (k_f) entlang der einzelnen Galerien liegen keine Angaben seitens der Wasserbetriebe vor, allerdings können als Orientierung durchschnittliche Werte von 3 bis $5 \cdot 10^{-4}$ m/s angenommen werden. Die meisten Brunnen weisen relativ geringe Ufer-Brunnen-Abstände von weniger als 100 Metern auf, wobei die Filter hauptsächlich in Tiefen von 20 bis 40 Metern ausgebaut sind. Die durchschnittlichen Entnahmemengen von Einzelbrunnen der Galerien weisen eine Häufung im Bereich von 500 bis 1000 m³/d auf.

Fasst man den Berliner Datensatz mit Angaben zu den übrigen Standorten der Datenrecherche (s. Kapitel 5) zusammen, erhält man veränderte Aussagen, wie die Histogramme in Abb. 57 belegen. Die Kategorien sind mit denen der Berliner Standorte (s. Abb. 56) identisch, weisen aber hinsichtlich der Schwerpunkte innerhalb der Kategorien Abstand und Filtertiefe jeweils höhere Werte auf. So liegen die Ufer-Brunnen-Abstände schwerpunktmäßig auch im Bereich bis zu 100 Metern aber der Anteil von Galerien mit größeren Entfernungen ist - im Vergleich zu Berlin - gestiegen. Die Filter sind primär in Tiefen von 30 bis 50 Meter ausgebaut und die Entnahmemengen von Einzelbrunnen der Galerien weisen eine Häufung im Bereich von 500 bis 1000 m³/d auf.

Alle Datensätze enthalten Angaben zu den Filtertiefen (Mächtigkeit des Grundwasserleiters wird hier in grober Näherung mit der Filtertiefe (Filterunterkante) gleichgesetzt, da Entnahmebrunnen der Wasserwerke zumeist an der Basis des Grundwasserleiters ausgebaut sind) sowie den Ufer-Brunnen-Abständen. Daher konnten diese Angaben standortübergreifend für alle Datensätze ausgewertet werden. Die Histogramme dazu sind in Abb. 58 dargestellt.

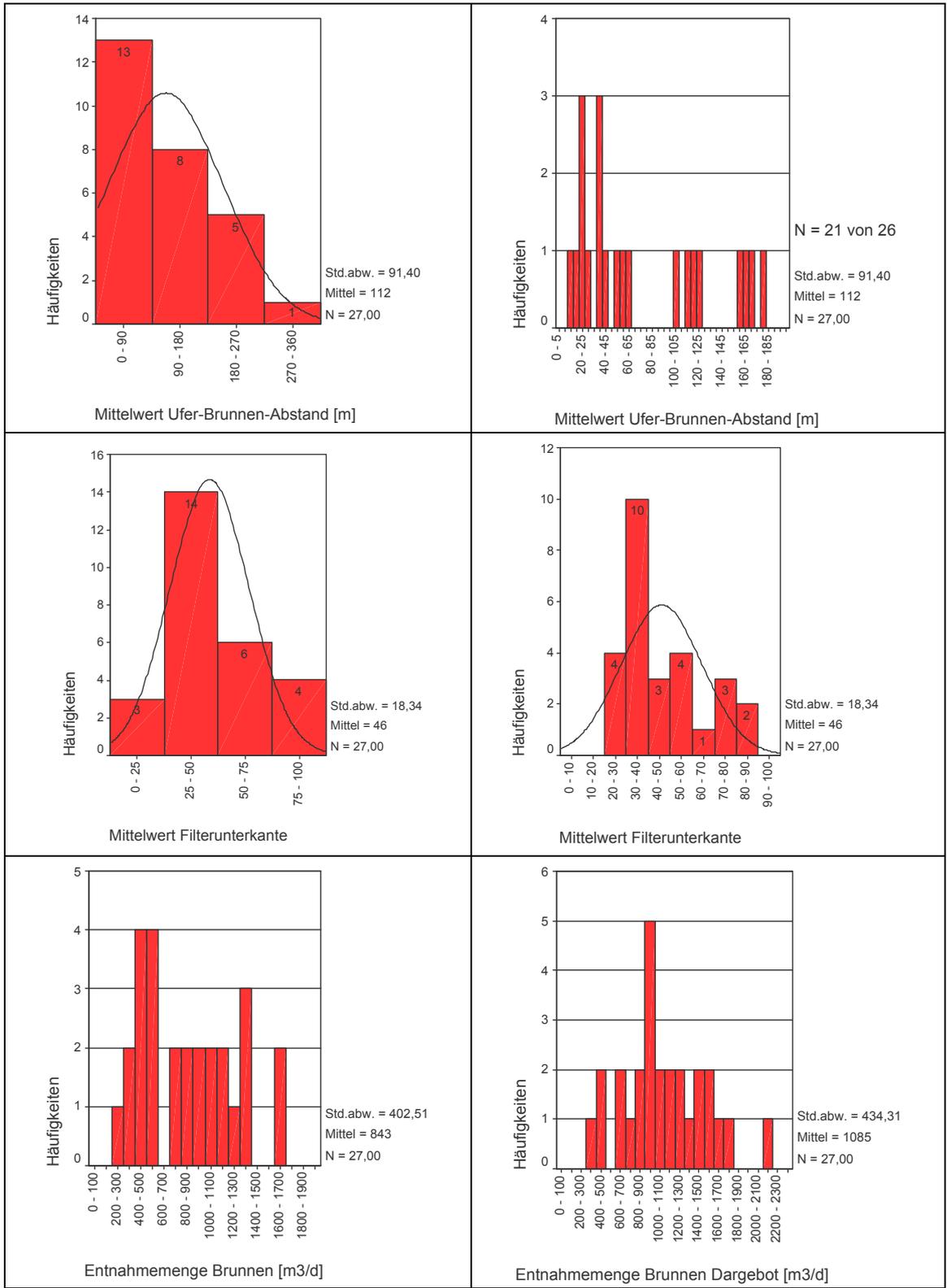


Abb. 56: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Filterunterkanten der Brunnen, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Entnahmemengen von Einzelbrunnen als Mittelwert der Galerie nach den Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke mit Uferfiltratanteil. Es werden jeweils eine grobe Klassifizierung der Geometrien auf der linken Seite und eine Detailbetrachtung auf der rechten Seite vorgenommen. Hinsichtlich der Entnahmemengen sind auf der linken Seite aktuelle Mengen und rechts Dargebotsmengen betrachtet worden.

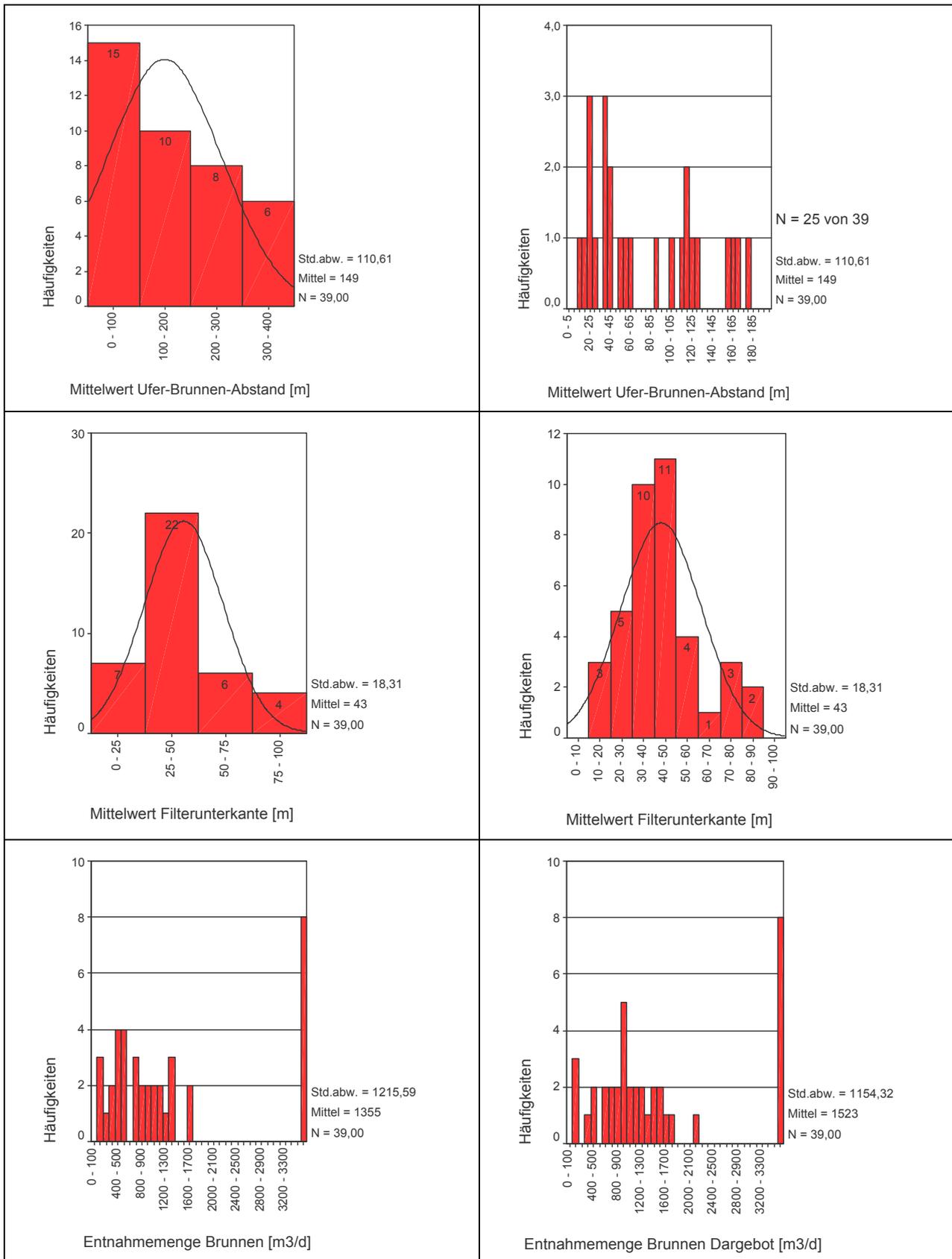


Abb. 57: Histogramme jeweils zu den Mittelwerten der Filterunterkanten der Brunnen, der Ufer-Brunnen-Abstände und der Entnahmemengen von Einzelbrunnen als Mittelwert der Galerie nach den Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke und den übrigen Standorten der Datenrecherche. Es werden jeweils eine grobe Klassifizierung der Geometrien auf der linken Seite und eine Detailbetrachtung auf der rechten Seite vorgenommen. Hinsichtlich der Entnahmemengen sind links aktuelle Mengen und rechts Dargebotsmengen betrachtet worden.

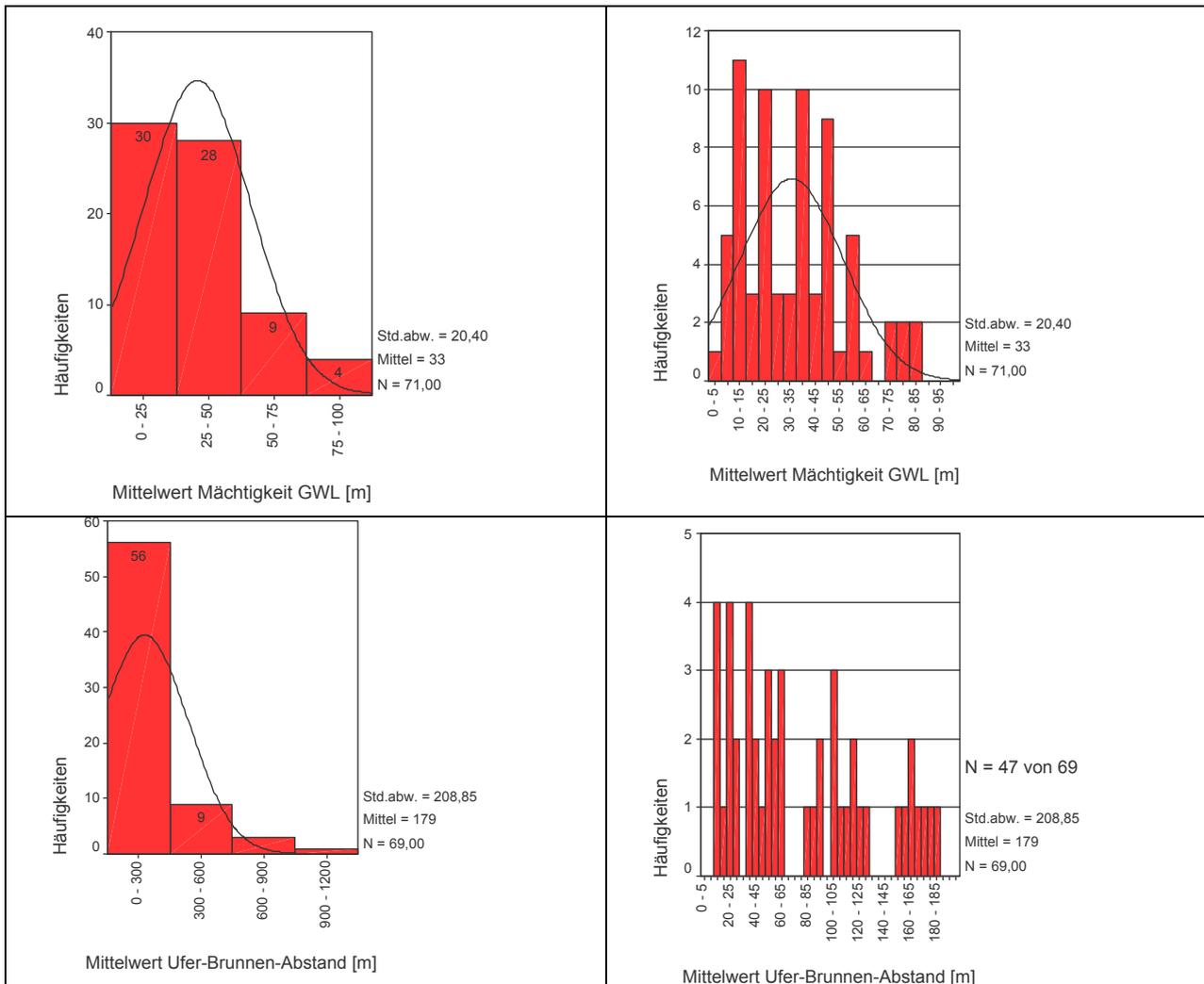


Abb. 58: Histogramme zu den Mittelwerten der Filtertiefen der Brunnen und der Ufer-Brunnen-Abstände nach den Daten der Berliner Wasserwerke und den übrigen Standorten der Datenrecherche sowie Lenk et al. (2006). Es wird jeweils eine grobe Klassifizierung der Geometrien links und eine Detailbetrachtung rechts vorgenommen.

6.2.7 Ableitung von drei Standardfällen der Fließzeit an Uferfiltratstandorten in Deutschland als Berechnungsgrundlage für die Stofftransportprozesse

Anhand der in Kapitel 6.2.6 ausgewerteten Datensätze wird in diesem Kapitel die Ableitung von drei Standardfällen der Fließzeit an Uferfiltratstandorten in Deutschland vorgenommen. Das Ziel ist die Festlegung eines verallgemeinerten, typischen (oder: „realistic worst case“) für die Grundwasserströmung an Uferfiltratstandorten als Basis zur Berechnung des PEC_{GW} für Arzneimittelwirkstoffe im Zulassungsverfahren. Ein „worst case“ sowie ein „median case“ der Grundwasserströmung werden ebenfalls festgelegt. Dazu werden die Daten zu den Durchlässigkeitsbeiwerten, den Entnahmeraten, den Filtertiefen (bzw. -unterkanten) und des Ufer-Brunnen-Abstandes einer rangstatistischen Analyse unterzogen und mit den Modellergebnissen (s. Kapitel 6.2.4) in Beziehung gesetzt. Für die so ermittelten Standortparameter werden dann mit dem Modellansatz die kürzesten Fließzeiten berechnet.

In Tab. 17 sind die Berechnungen der Perzentile für die vier Standortparameter anhand der verfügbaren Daten (Anlage 1 und 2) dargestellt. Die Klassifizierung anhand von Perzentilen gewährleistet die Identifizierung der Werte der einzelnen Parameter anhand ihrer relativen Anord-

nung in den zugrunde liegenden Datensätzen und nicht anhand ihrer absoluten Höhe der Zahlenwerte. So wird gesichert, dass die Parameter innerhalb einer Kombination (Perzentil) auch immer auf der gleichen Anzahl von bekannten Standorten basieren. Zur Verwendung kamen jeweils die Mittelwerte der zur Verfügung stehenden Einzelwerte der Datensätze. Farblich sind jeweils die Perzentile hervorgehoben, die in Kombination der jeweiligen Parameter die Größenordnung für die Werte der drei Standardfälle ergeben. Diese werden im Folgenden erläutert und im Anschluss für die weiteren Betrachtungen und die Modellrechnungen (Berechnung der Fließzeiten und des Stofftransportes) gerundet (s. Tab. 18).

Schnellster Fall - „worst case“ (5. / 95. Perzentil)

Dieser Fall ist durch sehr kurze (jedoch nicht das Minimum) Fließzeiten bzw. hohe Fließgeschwindigkeiten gekennzeichnet. Diese resultieren aus der Kombination von sehr kurzen Fließwegen zwischen dem Oberflächengewässer und dem Brunnen sowie sehr hohen Entnahmen und Durchlässigkeitsbeiwerten (k_f) im Grundwasserleiter. Dementsprechend findet für die Filtertiefe und den Ufer-Brunnen-Abstand das 5. Perzentil mit Werten von jeweils 12,6 Metern Verwendung. Vergleichsweise hohe Entnahmen von 2792 m³/d und sehr hohe Durchlässigkeiten (k_f) im Grundwasserleiter von 0,02 m/s werden durch das 95. Perzentil abgebildet.

Realistischer schneller Fall - „realistic worst case“ (20. / 80. Perzentil)

Durch die Wahl dieser Parameterkombination wird ein „realistic worst case“ hinsichtlich der Fließzeiten im Grundwasser abgebildet. Durch die Verwendung des 20. Perzentils der Gesamtheit der Werte von der Filtertiefe (23,8 Meter) und dem Ufer-Brunnen-Abstand (33,3 Meter) sind kurze Fließwege zwischen dem Oberflächengewässer und dem Entnahmebrunnen gegeben. Dementsprechend hohe Entnahmemengen (2544 m³/d) und hohe Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) von 0,069 m/s des 80. Perzentils bewirken hohe Fließgeschwindigkeiten und damit geringe Fließzeiten bei der Uferfiltration.

Langsamer Fall - median case (50. Perzentil - Median).

Der im Rahmen dieser Bewertung gewählte „langsame Fall“ setzt sich aus den jeweiligen Median-Werten der Datensätze zusammen. Daraus resultiert ein Uferfiltratstandort mit einer Parameterkombination, die der häufigsten Verteilung der Standorte (s. auch Abb. 53 bis 55) entspricht. Der Medianwert für den Ufer-Brunnen-Abstand beträgt 105,3 m und für die Filtertiefe 31,1 m. Der Median der Entnahmemenge am Brunnen beträgt 1085 m³/d und der Durchlässigkeitsbeiwert (k_f) 0,0017 m/s.

Tab. 17: Rangstatistische Auswertung der Daten aller Uferfiltratstandorte (recherchiert im Rahmen des Projektes). Der Auswertung liegen jeweils die Daten zugrunde die auch für die Abbildungen 53 bis 56 genutzt wurden - die Zuordnung ist in der Tab. gekennzeichnet. Zu den farblich gekennzeichneten Perzentilbereichen erfolgt die Erläuterung im Text. (k_f : Durchlässigkeitsbeiwerte; Q: Entnahmemenge am Brunnen; Abstand: Ufer-Brunnen)

Perzentile	k_f [m/s] ¹⁾	Q [m ³ /d] ^{2) 3)}	Filtertiefe [m] ^{1) 2) 3)}	Abstand [m] ^{1) 2) 3)}
1	0,0001	268	12,3	10,3
5	0,0002	276	12,6	12,6
10	0,0003	391	16,7	17,7
15	0,0005	520	19,0	22,9
20	0,0006	668	23,8	33,3
25	0,0006	815	26,8	41,5
50	0,0017	1085	31,1	105,3
75	0,0055	1615	44,8	227,3
80	0,0069	2544	50,5	280,7
85	0,0102	2574	57,5	360,3
90	0,0118	2645	68,6	434,8
95	0,0200	2792	73,9	544,2
99	0,0200	2863	78,3	625,0

Datenquellen: 1) Lenk et al. (2006), 2) Daten der Brunnengalerien der Berliner Wasserwerke mit Uferfiltratanteil (s. Kapitel 5), 3) Standorte der Datenrecherche (s. Kapitel 5)

Es sei noch einmal darauf hingewiesen, dass die aus der Statistik hervorgegangene Kombination der Parameter zu den drei Standardfällen (Tab. 17 und 18) keinem verwendeten Uferfiltratstandort entspricht, sondern eine Aggregation von Einzelkomponenten der jeweiligen Parametergruppe darstellt.

Zur weiteren Berechnung der zugehörigen Fließzeiten und Kopplung mit den Stofftransportberechnungen erfolgte eine abschließende Klassifizierung durch Rundung der Werte. Die Ergebnisse sind in Tab. 18 zusammengefasst und die Zuordnung wiederum mit den aus Tab. 17 genutzten Farben gekennzeichnet. Zusätzlich ist die mit dem Grundwasserströmungsmodell für diese Standardfälle berechnete kürzeste Fließzeit in Tab. 18 in der letzten Zeile dokumentiert. Die zusätzlichen Berechnungen waren nötig, da die fallbezogenen Parameterwerte von den Schrittweiten zur Berechnung der kürzesten Fließzeiten abweichen.

So wird für den schnellsten Fall (5. bzw. 95. Perzentil - s. Tab. 17) -*worst case* - eine kürzeste Fließzeit von 0,15 Tagen errechnet. In der Gesamtheit der Berechnungsergebnisse (Modellierung Kapitel 6.2.4) der Grundwasserströmung entspricht eine Fließzeit von 0,18 Tagen dagegen dem 1. Perzentil.

Die Berechnung der Kombination der Parameter für den realistischen schnellen Fall - *realistic worst case* (20. bzw. 80. Perzentil) im Modell resultiert in einer Fließzeit von 5 Tagen. Dieser Wert entspricht in der Matrix der Modellergebnisse dem 10. Perzentil.

Für den langsamen Fall - *median case* (50. Perzentil - Median) wird eine Fließzeit von 110 Tagen errechnet, die gut zu dem Median der Matrix der Modellergebnisse (129 Tage) passt.

Die Übereinstimmung der Perzentile der Standortparameter mit denen der Matrix der Modellergebnisse stellt kein zwingendes Qualitätskriterium dar. Aber eine Übereinstimmung in der genannten Größenordnung ist gegeben und war zu erwarten, denn die Festlegung der Schrittweiten zur Berechnung der Fließzeiten mit dem Grundwasserströmungsmodell wurde mit den gleichen Datensätzen wie zur rangstatistischen Auswertung (s. Tab. 17) vorgenommen.

Wie aus der Methodik hervorgeht, sind die Parameterkombinationen aus Durchlässigkeitsbeiwert (k_f), Entnahmemenge am Brunnen, Filtertiefe und Ufer-Brunnen-Abstand für jeden der drei Fälle ein Resultat der statistischen Erhebung. Sie stellen somit keinen realen Standort dar sondern eine Parameterkombination im Ergebnis der jeweiligen Rangstatistik - also einer ermittelten Wahrscheinlichkeit aus der Gesamtheit bekannter Daten. Entscheidend für die weiteren Betrachtungen des Stofftransportes sind aber ausschließlich die aus den Parameterkombinationen resultierenden Fließzeiten. Neben den statistisch ermittelten Parametern (Tab. 17 & 18) ergeben auch eine Vielzahl anderer Parameterkombinationen diese Fließzeiten. Allein schon für die auf je sechs bis sieben Werte beschränkte Kombination zur Berechnung der Datenmatrix (Anlage 7) resultieren beispielsweise aus 15 verschiedenen Parameterkombinationen Fließzeiten von ca. 5 Tagen. Eine vergleichbare Anzahl ergibt Werte von ca. 0,15 bzw. 110 Tagen Fließzeit.

Tab. 18: Berechnete Fließzeiten für die aus Tab. 19 resultierenden Parameterkombinationen der drei „Standardfälle“ für Uferfiltratstandorte. Für diese Parameterkombinationen wurde die kürzeste Fließzeit separat berechnet, da diese Werte in der Datenmatrix nicht vertreten sind.

Parameter	Berechnungsvariante		
	„schnellster Fall“ (worst case)	„realistischer schneller Fall“ (realistic worst case)	„langsamer Fall“ (median case)
Durchlässigkeitsbeiwert (k_f)	0,02 m/s	0,007 m/s	0,002 m/s
Entnahme am Brunnen	3000 m ³ /d	2000 m ³ /d	1000 m ³ /d
Ufer-Brunnen-Abstand	10 m	30 m	100 m
Filtertiefe (*)	5-10 m	10-20 m	20-30 m
Berechnete Fließzeit	0,15 Tage	5 Tage	110 Tage

(*) unter dem Wasserspiegel im Gewässer, liegt im Modell bei 95 m. Rot: Schnellster Fall - worst case, Gelb: realistischer schneller Fall - realistic worst case, Grün: langsamer Fall - median case

6.2.8 Zusammenfassung

Die Fließzeit des Grundwassers zwischen Uferbereich und Entnahmebrunnen an einem Uferfiltratstandort bestimmt die für mögliche Abbauprozesse verfügbare Mindestverweilzeit eines Wirkstoffes im Grundwasser. Da jeder Uferfiltratstandort durch eine einzigartige Kombination von hydrogeologischen und hydraulischen Parametern und Randbedingungen gekennzeichnet ist, resultieren daraus auch dementsprechend viele unterschiedliche Fließzeiten. Diese Fließzeiten sind auch nur für die wenigsten Standorte bekannt und können somit nicht direkt als Grundlage für die Bearbeitung des Projektes dienen.

In Hinsicht auf die Bestimmung eines Eintrages von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächengewässer in das Grundwasser war es dementsprechend in einem ersten Schritt erforderlich, die Spannweiten der Fließzeiten der möglichen Uferfiltratstandorte anhand bekannter Daten zu ermitteln. Dazu wurde ein numerisches Grundwasserströmungsmodell konzipiert und kalibriert und durch schrittweise Kombination der Parameter Durchlässigkeitsbeiwert, Entnahmemenge am Brunnen, Filtertiefe und Ufer-Brunnen-Abstand innerhalb ihrer Spannweiten die jeweiligen Fließzeiten und die Absenkungen am Brunnen ermittelt. Die Ergebnisse liegen als Datenmatrix mit 1290 Wertepaaren vor. Die Spannweite der so ermittelten Fließzeiten reicht von einem Minimum < 1 Tag bis hin zu einem Maximum von ca. 35 Jahren. Der Median der Berechnung liegt bei einer Fließzeit von 129 Tagen. Dabei ist zu beachten, dass es sich bei der Kombination jedes Parameters mit jedem anderen meist um fiktive „Uferfiltratstandorte“ handelt, welche so nicht als realer Standort vorkommen. Dazu zählen besonders die Kombinationen mit berechneten Fließzeiten von mehr als 2000 Tagen. Aus diesen Modellergebnissen lässt sich somit kein realitätsbezogener worst case ableiten, sondern nur die Spannweite der hydraulisch möglichen Fließzeiten aufzeigen.

Die Festlegung eines „realistic worst case“ für die Grundwasserströmung bei der Uferfiltration wurde erst durch die zusätzliche rangstatistische Auswertung der bekannten Standortparameter möglich. Durch Kombination des 20. bzw. 80. Perzentils der einzelnen Parameter resultierte ein fiktiver Uferfiltratstandort, der dem geforderten „realistic worst case“ repräsentiert. Dabei handelt es sich im Einzelnen um einen Durchlässigkeitsbeiwert von 0,007 m/s, einer Entnahme von 2000 m³/d, einer Filtertiefe von 10-20 Metern und einem Ufer-Brunnen-Abstand von 30 Metern. Aus dieser Parameterkombination berechnet sich eine Fließzeit von 5 Tagen. Zusätzlich wurden noch zwei Referenzfälle mit einerseits sehr kurzer Fließzeit („worst case“: 0,15 Tage) und andererseits der den Medianwerten der Standortparameter entsprechenden Fließzeit („Median case“: 110 Tage) festgelegt.

Basierend auf den Fließzeiten (u. a. auch dieser drei sog. Standardfälle der Grundwasserströmung an Uferfiltratstandorten) erfolgt die Berechnung des Stofftransportes im Grundwasserleiter. Die Herangehensweise wird in den folgenden Kapiteln erläutert.

6.3 Berechnung des Stofftransportes im Grundwasser bei der Uferfiltration

In den folgenden Kapiteln wird das Vorgehen bei der Ermittlung und Durchführung einer Methodik zur Berechnung des Stofftransportes im Grundwasser im Rahmen des Projektes dargelegt. Bei diesen Betrachtungen wird davon ausgegangen, dass es sich bei den betrachteten Stoffen um Arzneimittelwirkstoffe handelt, deren Eigenschaften erst im Rahmen des Zulassungsverfahrens bekannt werden. Die Stoff(transport)parameter, welche dem UBA zur Berechnung des PEC_{GW} übergeben werden, sind folgende: K_{oc} , K_d und DT_{50} , wie in Kapitel 6.1 erläutert. Des Weiteren wird angenommen, dass kommende Arzneimittelwirkstoffe auch dem advektiven Transport im Grundwasser unterliegen.

Bei den Einträgen von Stoffen aus einem Oberflächengewässer in das Grundwasser (am Entnahmebrunnen) bei der Uferfiltration kann vereinfacht von einem punktuellen Eintrag ausgegangen werden. Im Gegensatz dazu wird bei der Betrachtung von PSM von einem flächenmäßigen Eintrag ausgegangen. Dementsprechend kann die Berechnung des Stofftransportes vereinfachend mit analytischen Methoden oder aber unter Verwendung eines numerischen Modells erfolgen. Zur numerischen Lösung der Transportgleichungen wurde der für die Strömungsberechnung (Kapitel 6.2) genutzte Modellansatz erweitert. Beide Methoden werden im Folgenden erläutert und miteinander verglichen. Der Vergleich der beiden Methoden im Verlauf der Bearbeitung erbrachte in Hinsicht auf die Verwendung in der Abfragemaske eindeutige Vorteile der analytischen Methode. Daher wird dann im Ergebnis der Arbeiten die analytische Methode in der Abfragemaske zur Bestimmung des PEC_{GW} verwendet. Mit dem numerischen Modell wurden aber im Vorfeld umfangreiche Berechnungen durchgeführt, um die Aussagen der analytischen Berechnungen zu sichern und Modellannahmen zu verifizieren. Zusätzlich zu diesen theoretischen Betrachtungen wird versucht, die beiden Methoden anhand von gemessenen Konzentrationen an Uferfiltratstandorten zu überprüfen.

6.3.1 Datengrundlage

Die Berechnung des Transportprozesses erfolgt auf der Grundlage der Ergebnisse zur Berechnung der kürzesten Fließzeit. Diese Fließzeit zwischen Uferbereich und Grundwasserentnahme am Brunnen stellt die kürzesten Eintragszeiten (Verweilzeiten) für wasserlösliche Substanzen dar, die keiner weiteren Reaktion im Grundwasserleiter unterliegen. Eine Verlängerung der Verweilzeit wird bewirkt, für eine Konzentrationsminderung sind - unter der Annahme, dass die Sorption reversibel ist - Abbauprozesse verantwortlich (s. Kap. 2.4).

Nur für diese beiden Prozesse stehen im Rahmen des Zulassungsverfahrens auch Kennwerte der Arzneimittelwirkstoffe zur Verfügung. Das sind einerseits K_d - und K_{oc} -Werte für die sorptiven Vorgänge, die sich als Retardation darstellen lassen und andererseits DT_{50} -Werte für die Abbauprozesse im Grundwasser bzw. am Sediment. Die Grundlagen sind in Kapitel 2.4 erläutert. Darüber hinausgehende Untersuchungen, speziell für das System Grundwasserleiter, stehen meist nicht zur Verfügung.

Analog zur Vorgehensweise zur Ermittlung der kürzesten Fließzeiten (Grundwasserströmung) an Uferfiltratstandorten, war es auch für die Betrachtungen zum Stofftransport erforderlich die Spannweiten der Parameter anhand bisheriger Erkenntnisse zu ermitteln.

In Tab. 19 sind die Spannweiten für den K_d -Wert, den DT_{50} -Wert und die Fließzeit zusammengestellt. Innerhalb dieser Spannweiten wurden wiederum charakteristische Schrittweiten definiert anhand derer eine numerische Modellierung erfolgt. Gleichzeitig erfolgte für diese Werte die Berechnung nach der analytischen Methode (Kapitel 6.3.3). Für den Parameter Fließzeit wurden mit Hilfe des numerischen Grundwassermodells Schrittweiten für die Abstufung der Fließzeit festgelegt. Insgesamt liegt die Spannweite für die berechnete Grundwasserfließzeit

zwischen 1 und 10950 d für das System Uferfiltration. Die Abstufungen beruhen auf der statistischen Auswertung der mit dem Grundwasserströmungsmodell ermittelten Fließzeiten.

Tab. 19.: Schrittweiten der Parameter zur Berechnung des Stofftransportes innerhalb ihrer Spannweiten

Variablen	Dimension	Schrittweiten der Berechnung
K _d -Wert	ml/g	0,01; 0,1; 1; 10; 100; 1000
DT ₅₀ -Wert	d	0,1; 0,5; 1; 5; 10; 100; 500; 1000
Fließzeit	d	1; 5; 10; 15; 20; 30; 50; 100; 365; 1825; 3650; 10950

Auf Grund von Sorptionsprozessen kommt es zu einer Verzögerung des Stofftransportes verglichen mit der Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers. Mit Hilfe des Sorptionskoeffizienten (K_d-Wert) wird die Retardation, also die Verzögerung des Stofftransportes berechnet. Für den K_d-Wert wurden folgende Abstufungen vorgenommen:

K_d-Wert [ml/g]: 0,01; 0,1; 0,5; 1; 10; 100; 1.000.

Die Abstufungen und Spannweiten des K_d- und des DT₅₀-Wertes basieren auf Angaben aus der Literatur und den vom UBA zur Verfügung gestellten Daten. Je größer der Retardationsfaktor ist, umso länger ist die Fließzeit für den betrachteten Stoff. Matthes et al. (1997) haben das Transport- und Abbauverhalten von Pflanzenschutzmitteln untersucht. Diese Untersuchungen ergaben für die Pflanzenschutzmittel Retardationsfaktoren von 0,4 bis 10. Stuer-Laudrisen et al. (2000) haben für die 25 am häufigsten angewendeten Arzneimittelwirkstoffe Dänemarks K_d-Werte berechnet bzw. in Sorptionsversuchen mit Klärschlamm bestimmt. Die Mehrzahl der K_d-Werte liegt im Bereich < 1.000 l/kg. Lediglich für einzelne Substanzen z.B. Östrogene oder Xylometazolin liegen die aus den K_{ow}-Werten berechneten K_d-Werte über 1.000 l/kg. Bei sehr hohen K_d-Werten (100 und 1.000 l/kg) werden die Verweilzeiten für die Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasserleiter sehr groß. Dies hat zur Folge, dass der biologische Abbau länger wirken kann und die Konzentrationen deutlich reduziert werden bzw. die Stoffe am Entnahmebrunnen nicht mehr nachgewiesen werden können. Für die Berechnung des (biologischen) Abbaus der Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser wurden folgende Abstufungen für die DT₅₀-Werte eingesetzt:

DT₅₀ [d]: 0,1; 0,5; 1; 5; 10; 100; 500; 1000.

Die DT₅₀-Werte im unteren Bereich wurden in relativ kleinen Abständen gewählt, da vor allem im Uferfiltrations-Bereich der Abbau wirken kann und zu einer Abnahme der Arzneimittelwirkstoffkonzentration im Grundwasser führen kann. Bei sehr großen Halbwertszeiten ist für den Fall der Uferfiltration davon auszugehen, dass bei dem Transport vom Oberflächengewässer zum Entnahmebrunnen kein Abbau stattfindet, da die Transportzeiten für den Stoff im Grundwasser zu gering sind. Basierend auf Literaturrecherchen und eigenen Arbeiten wurden Kennwerte für bekannte Arzneimittelwirkstoffe in Anlage 6 zusammengestellt.

In Anlage 8 sind exemplarisch für eine große Spannweite von Fließzeiten und DT_{50} -Werten die berechneten Konzentrationen im Grundwasser am Brunnen dargestellt. Für die Berechnungen wurde die Halbwertszeit in folgenden Abstufungen eingesetzt:

DT_{50} [d]: 0,1 / 0,5 / 1 / 5 / 10 / 50 / 100 / 200 / 300 / 400 / 500 / 1000.

Die Abstufungen der Fließzeiten zwischen 0,15 d und 13.000 d erfolgten auf Basis der hydraulischen Modellberechnungen für den Fall der Uferfiltration. Als Ausgangskonzentration (Quelle) wurden 5000 ng/l im Oberflächenwasser angenommen. Dies entspricht der bisher gemessenen Maximalkonzentration eines Arzneimittelwirkstoffes im Oberflächenwasser (BLAC 2003). Die Berechnungen in Anlage 8 zeigen, dass die hier ermittelten und verwendeten Spannweiten der Fließzeiten und Abbauraten (selbst für diese extrem hohen Konzentrationen) die Beschreibung der Prozesse bis hin zum vollständigen Abbau im Grundwasser ermöglichen.

6.3.2 Verwendung des Transportmodells zur Berechnung des Stofftransportes

Die numerische Berechnung des Stofftransportes erfolgt in Visual Modflow - aufbauend auf dem Grundwasserströmungsmodell - mit dem separaten Modul MT3DMS. Der für die Berechnung der Fließzeiten (Grundwasserströmung) bei der Uferfiltration genutzte Modellansatz wird dafür um die Randbedingungen und Parameter für den Stofftransport erweitert. Für die Berechnungen wird das implizite „upstream Finite Differenzen“ Verfahren genutzt. Die dafür erforderlichen Modellannahmen und der Modellaufbau werden im Folgenden erläutert.

Modellannahmen

Im Modell soll der Stoffeintrag ausgehend von einer Konzentration im Oberflächengewässer (PEC_{SW}) in das Grundwasser am Entnahmebrunnen (PEC_{GW}) simuliert werden. Dabei wird von der Annahme ausgegangen, dass entsprechend der Definition des PEC_{SW} im Gewässer dauerhaft eine konstante Konzentration vorliegen wird, die Fließzeit als Grundlage der Berechnung eine feste Größe darstellt (keine Änderung der hydraulischen Verhältnisse) und der Eintrag in den unbelasteten Grundwasserleiter zeitlich unbegrenzt erfolgen wird. Damit liegen für die Modellbetrachtungen stationäre Verhältnisse vor.

Weiterhin wird analog zur Grundwasserströmung davon ausgegangen, dass die gesamte Stoffmenge im System Uferfiltration verbleibt (bzw. abgebaut wird) und damit Vorgänge der Dispersion vernachlässigt werden können. Sorptive Vorgänge werden als reversibel betrachtet und der Abbau erfolgt mit der gleichen Abbauraten in der Lösung wie am Feststoff. Für die Berechnungen wurde näherungsweise angenommen, dass Sorption und Desorption in gleichem Umfang stattfinden.

Der Stoffeintrag in das Grundwasser erfolgt entlang eines relativ schmalen Bereiches am Gewässerboden und wird seitlich durch das Brunneneinzugsgebiet begrenzt. Damit kann der Eintrag im Modell als Punktquelle realisiert werden. Eine Konzentrationsminderung erfährt der Stoff nur durch Abbauprozesse und die Entnahme (Senke) am Brunnen. Der Brunnen dient analog

zur Fließzeitberechnung als Referenzpunkt für die Berechnung der Stoffkonzentration im Grundwasser. Der PEC_{gw} entspricht somit einem Messwert an einem Brunnen, der unter standardisierten Standortbedingungen und der dafür berechneten Fließzeit ermittelt wird (s. Kapitel 6.2). Am Brunnen kann damit in Abhängigkeit der Stoffparameter der $PEC_{gw} = 0$ sein, obwohl auf dem Weg zwischen Uferbereich und Brunnen im Allgemeinen höhere Konzentrationen bis zu einem maximalen Wert des PEC_{sw} zu erwarten sind.

Modellaufbau und Modellparameter

Der Modellansatz für das Grundwasserströmungsmodell (Kapitel 6.2.1 bis 6.2.3) wird für die Stofftransportberechnungen um die entsprechenden Randbedingungen und die jeweiligen Parameter erweitert. Der in den Abbildungen 32 bzw. 38 dokumentierte Aufbau wird dafür nicht verändert. Allerdings geht den jeweiligen Transportberechnungen die Auswahl einer Parameterkombination für die Grundwasserströmung voraus, die eine für die Transportberechnung erwünschte Fließzeit ergibt. Dieser Modellansatz wird dann für die Transportberechnung modifiziert:

Auf dem Gewässer („river“ Randbedingung) wurde eine Punktquelle („point source“) mit dem Wert der Ausgangskonzentration definiert.

Zur Erfassung und Dokumentation der Konzentration am Entnahmebrunnen wurde ein Beobachtungsbrunnen (oder: „Grundwassermessstelle“) mit der gleichen Filtertiefe gesetzt.

Entsprechend den Modellannahmen wird im Grundwasserleiter die Anfangskonzentration mit einem Wert von Null definiert. Dies entspricht der Annahme, dass der Stoffeintrag über den Weg der Uferfiltration erstmalig also in einen unbelasteten Grundwasserleiter erfolgt.

- Die Dispersion wird bei allen Modellrechnungen als unwirksam angenommen.
- Neben der Fließzeit werden für jede Transportvariante entweder die Sorption (K_d) oder die Abbaurate (DT_{50}) oder beide Parameter variiert.
- Die Simulationszeit beträgt 10.000 Tage - dieser Zeitraum erwies sich als ausreichend für die Einstellung des Gleichgewichtszustandes im Grundwasserleiter nach Eintrag des Wirkstoffes. Außerdem werden innerhalb dieser Zeit bei den gewählten Spannweiten für den Abbau (DT_{50}) und den Maximalwerten der bekannten Wirkstoffe im Oberflächengewässer mögliche Einträge vollständig abgebaut (s. Kapitel 6.3.3).

Modellrechnungen

Die numerische Berechnung des Stofftransportes erfolgte im Rahmen dieser Bearbeitung mit folgenden Zielstellungen:

- Überprüfen des Grundwasserströmungsmodells und Kontrolle (Kalibration) der Randbedingungen für den Stofftransport mit einem „Tracers“ (Transport ohne Sorption und Abbau);
- Berechnung des Stofftransportes in den Spannweiten der Parameter Sorption und Abbau;
- Simulation des Stofftransportes anhand der Konzentrationen an bekannten Standorten im Vergleich zur analytischen Berechnung.

Insgesamt wurden dafür annähernd 400 Modellrechnungen durchgeführt. Analog zur Kalibrierung des Grundwasserströmungsmodells entfiel ein Teil davon auf das Einstellen der optimalen Lösungsmethode, des Simulationszeitraumes und der Randbedingungen sowie für Sensitivitätsanalysen zur Wirkung der Modellparameter und der verwendeten Variablen innerhalb der Spannweiten im Rahmen der Uferfiltration. Die Ergebnisse dieses Prozesses wurden in den jeweiligen Kapiteln beschrieben.

Zu diesem vorbereitenden Arbeitsschritt gehörten Vergleichsrechnungen des „FD“- (Finite Differenzen-) mit den „MOC“- (method of characteristics) Lösungsverfahren. Die FD-Verfahren sind vergleichsweise schnell, haben aber den Nachteil einer „numerischen Dispersion“. So fallen die Modellergebnisse immer geringer aus als vergleichbare analytische Berechnungen. Dagegen tritt die numerische Dispersion bei den MOC-Verfahren nicht auf. Allerdings benötigt ein Rechendurchlauf für diesen Modellansatz im Vergleich zum FD-Verfahren mindestens die zehnfache Zeit. Da die Ergebnisse der Transportmodellierung nicht für die Abfrage-Maske verwendet werden, kam für diese Bearbeitung das schnelle FD-Verfahren zur Anwendung.

Die Simulationszeit von 10.000 Tagen wurde so gewählt, dass für die Berechnungen des Stofftransportes bei den gewählten kurzen Fließzeiten (Verweilzeiten) von bis zu 2.000 Tagen die Einstellung eines Gleichgewichtszustandes gewährleistet war. Längere Verweilzeiten wurden nicht berücksichtigt, da hier die Beschreibung eines „worst case“ Szenarios Vorrang hatte. Zudem erwies sich, dass innerhalb der Spannweiten der Abbauraten selbst extrem hohe Ausgangskonzentrationen von 2.000 ng/l in einem Zeitraum von 10.000 Tagen nahezu vollständig abgebaut werden. Diese Berechnungen anhand der analytischen Methode werden im folgenden Kapitel erläutert. Die Berücksichtigung längerer Zeiträume und somit auch einer längeren Simulationszeit ist damit nicht erforderlich.

Der im Ergebnis dieser Vorüberlegungen und der Kalibrierung vorliegende Modellansatz kam zur Verwendung bei den endgültigen Berechnungen des Stofftransportes. Diese Arbeiten werden anhand einiger Beispielfälle im Folgenden erläutert. So werden exemplarisch das Transportverhalten eines „Tracers“, d. h. eines Wirkstoffes der entweder nur dem Abbau bzw. nur der Sorption unterliegt und die Kombination beider Prozesse simuliert. Die Berechnungen setzen immer die Wahl eines geeigneten Grundwasserströmungsmodells mit der entsprechenden Fließzeit und die Anfangskonzentration des Wirkstoffes im Oberflächengewässer voraus.

Beobachtet werden die resultierenden Stoffkonzentrationen am Entnahmebrunnen anhand der grafischen Darstellung der jeweiligen Durchbruchkurve. Diese zeigt die Stoffkonzentrationen für die entsprechende Simulationszeit und hat für den vorliegenden dauerhaften Eintrag in das Grundwasser die Form einer integrierten Gaußkurve. Erst nach Einstellung des Gleichgewichtes im Grundwasserleiter (Plateaubereich der Kurve am Beobachtungsbrunnen) kann am Ende der Simulationszeit der maximale Wert für diese Standortbedingungen abgelesen werden. Für die Durchbruchkurve gilt zudem, dass innerhalb der kürzesten Fließzeit des Uferfiltrates erst 50% der Ausgangskonzentration des Stoffes den Entnahmebrunnen erreicht haben. Dies ist ei-

ne umfänglichere Information im Vergleich zur analytischen Lösung bei der anhand der Fließzeit bereits die maximale Konzentration für genau diese Verweilzeit berechnet wird.

Ermittlung des Transportverhaltens eines Tracers (keine Sorption, kein Abbau) in Abhängigkeit vom Strömungsregime

Anhand der Durchbruchkurve einer Substanz mit der Eigenschaft eines Tracers (keine Sorption und kein Abbau im Grundwasserleiter) kann die Funktionalität des Transportmodells geprüft werden. Bei der in Abb. 59 dokumentierten Berechnung kommt der Modellansatz der Grundwasserströmung mit einer Fließzeit von 1820 Tagen für das Uferfiltrat zum Einsatz. Die angenommene Konzentration im Oberflächengewässer beträgt 10 ng/l und es gelten die vorweg erläuterten Modellannahmen. Erwartungsgemäß beschreibt die Durchbruchkurve am Entnahmebrunnen den Verlauf einer integrierten Gaußkurve, wobei 50 % der Anfangskonzentration (5 ng/l) nach ca. 2000 Tagen am Entnahmebrunnen vorliegen. Nach einer Simulationszeit von 10000 Tagen ist der Gleichgewichtszustand erreicht und die Konzentration am Entnahmebrunnen (also im Grundwasser) entspricht der Anfangskonzentration. Die Berechnung zeigt, dass die Modellannahmen und Randbedingungen den Anforderungen genügen.

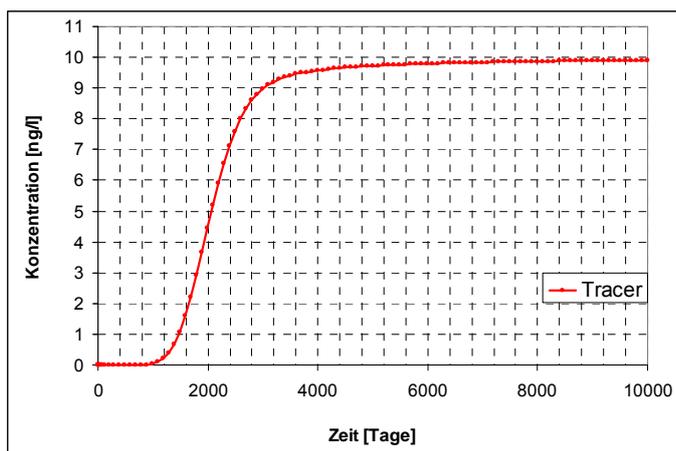


Abb. 59: Durchbruchkurve für einen „Tracer“ (Annahme: Keine Sorption und kein Abbau). Die Fließzeit des Uferfiltrates bei dieser Berechnung beträgt 1820 Tage. Bei einer Anfangskonzentration von 10 ng/l im Oberflächengewässer stellt sich dieser Wert am Ende der Simulationszeit auch im Grundwasser wieder ein.

Ermittlung des Transportverhaltens einer Substanz die der Sorption unterliegt (kein Abbau) in Abhängigkeit vom Strömungsregime

Aufgrund der im Grundwasser auftretenden Sorption kommt es beim Transport der Wirkstoffe zur Retardation. Der für die Berechnungen vorliegende Parameter ist der K_d -Wert - als Kennwert für die lineare Sorptionsisotherme. Der Einfluss dieses Parameters verlängert die Verweilzeit des Wirkstoffes im Grundwasser. Da dieser gegenüber der Fließzeit des Wassers um den Retardationsfaktor verzögert am Entnahmebrunnen eintrifft, verlängert sich somit die Zeit in der Abbau zusätzlich wirken kann. Eine Verringerung der Ausgangskonzentration wird dadurch nicht bewirkt.

Eine Verlängerung der Verweilzeit mit zunehmenden K_d -Wert bzw. Ufer-Brunnen-Abstand wirkt sich graphisch durch ein Abflachen der Durchbruchkurve aus (ohne Sorption wäre bei jeder Entfernung die gleiche Kurvenform zu erwarten). Für diesen beispielhaften Fall sind die Modell-ergebnisse in Abb. 60 dokumentiert.

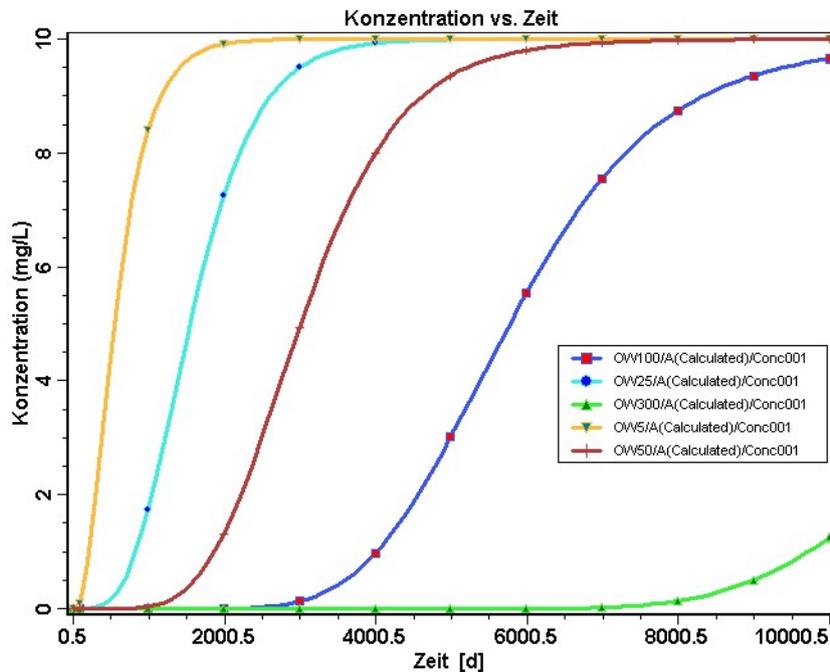


Abb. 60: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchkurven bei Wirkung von Sorption im Grundwasserleiter für unterschiedliche Fließzeiten. Die verwendeten Modellgeometrien und Parameter werden im Text beschrieben. Farbgebung der Kurven für den Ufer-Brunnen-Abstand in Metern: gelb = 5, türkis = 25, braun = 50, blau = 100, grün = 300.

Die Berechnungen basieren auf einem Grundwasserströmungsmodell mit einer Fließzeit von 100 Tagen bei einem Ufer-Brunnen-Abstand von 300 Metern. Die Ausgangskonzentration im Oberflächengewässer beträgt 10 mg/l und es wirkt ein K_d -Wert von 10 nl/g. Die Durchbruchkurven wurden in einer Entfernung von 5, 25, 50, 100 und 300 Metern ermittelt. Für den geringen Ufer-Brunnen-Abstand von 5 Metern wird noch eine vergleichsweise steile Durchbruchkurve berech-

net. Aber bereits in einer Entfernung von 100 Metern bewirkt der hohe Retardationsfaktor, dass innerhalb der Simulationszeit von 10.000 Tagen sich noch kein Gleichgewichtszustand eingestellt hat (Abb. 60).

Ermittlung des Transportverhaltens einer Substanz die dem Abbau unterliegt (keine Sorption) in Abhängigkeit vom Strömungsregime

Nur durch Abbauprozesse wird eine dauerhafte Reduzierung der Stoffkonzentration im Grundwasser bewirkt. Die Abbauleistung wird häufig in erster Näherung durch die Abbaurrate 1. Ordnung ausgedrückt. Da eine derartige Abbaurrate nicht zur Verfügung stand, wird die sog. „disappearance time 50“, zu der 50 % der Substanz eliminiert wird, ersatzweise als Halbwertszeit verwendet.

Abb. 61 zeigt die Modellergebnisse für die Wirkung unterschiedlicher DT_{50} -Werte für einen Standort mit ansonsten gleichen Randbedingungen und einer Fließzeit von 100 Tagen als Durchbruchkurve.

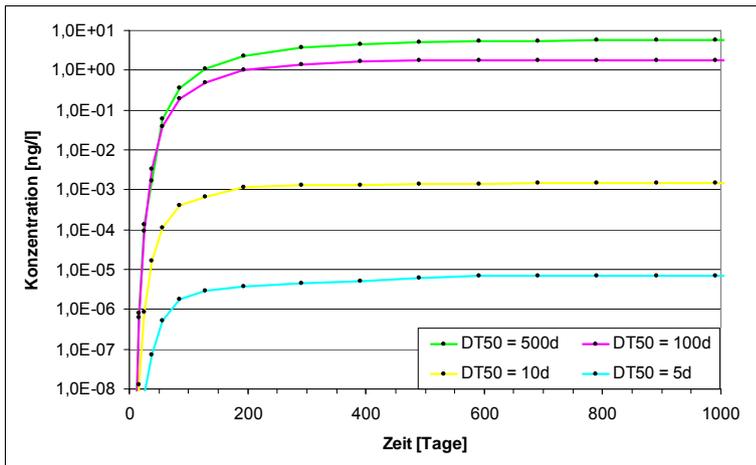


Abb. 61: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchkurven für unterschiedliche Abbauraten (DT_{50}) bei konstantem Ufer-Brunnen-Abstand. Die verwendeten Modellgeometrien und Parameter werden im Text beschrieben. Farbgebung der Kurven für die DT_{50} -Werte in Tagen: Grün = 500, pink = 100, gelb = 10, türkis = 5

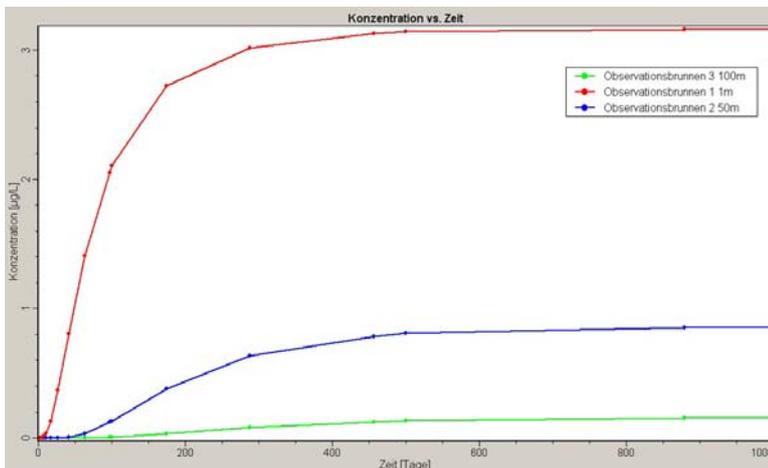


Abb. 62: Vergleich der mit dem Transportmodell berechneten Durchbruchkurven für eine konstante Abbaurate bei zunehmenden Ufer-Brunnen-Abständen. Die verwendeten Modellgeometrien und Parameter werden im Text beschrieben. Farbgebung der Kurven für den Ufer-Brunnen-Abstand in Metern: rot = 1, blau = 50, grün = 100.

Die Ausgangskonzentration im Oberflächenwasser beträgt 10 ng/l. Bei einer geringen Abbaurate ($DT_{50} = 500d$) wird die Ausgangskonzentration nur wenig verringert (grüne Linie). Dagegen bewirkt eine hohe Abbaurate ($DT_{50} = 5d$) eine Reduzierung der Ausgangskonzentration bis nahezu Null (türkisfarbene Linie).

Die gleiche Wirkung wird durch Verlängerung der Verweilzeit im Grundwasserleiter erzielt. Abb. 62 zeigt die Durchbruchkurven für die Berechnungsergebnisse bei einer Abbaukonstante von 0,01 ($DT_{50} = 70$ Tage) aber zunehmenden Ufer-Brunnen-Abstand und damit zunehmender Verweilzeit. Die Ausgangskonzentration im Oberflächenwasser beträgt hier 10 µg/l. Erwartungsgemäß nimmt die Konzentration mit zunehmender Entfernung ab.

6.3.3 Analytische Berechnung des Stofftransportes

Der Stofftransport ist von verschiedenen Prozessen und Stoffeigenschaften abhängig. Für die Berechnung der PEC_{GW} im Fall der Uferfiltration wurden die Prozesse Sorption und Abbau berücksichtigt und mit den in Kapitel 2.4 aufgeführten Gleichungen analytisch berechnet. Für diese Prozesse sowie hinsichtlich der Behandlung der Dispersion gelten die Modellannahmen analog zur Verwendung im Transportmodell. In der EMEA-Richtlinie (2006) wird festgestellt, dass für Substanzen, die einen K_{oc} -Wert von > 10.000 l/kg und/oder einen DT_{90} -Wert von < 3 d aufweisen, ein Eintrag in das Grundwasser durch Uferfiltration nicht oder nur in unbedeutendem Maß stattfindet und die Substanzen somit keine Gefährdung für das Grundwasser darstellen. Das Ausschlusskriterium $K_{oc} > 10.000$ l/kg wurde für die im Rahmen dieses Projektes entwickelte Entscheidungshilfe übernommen. Da DT_{90} -Werte im Allgemeinen nicht zur Verfügung stehen

(siehe Wirkstoffdatenblatt, Tab. 22), konnte dieses Kriterium nicht in die Entscheidungshilfe integriert werden. Ist der K_{oc} -Wert also <10.000 l/kg wird zunächst die Retardation, also die Verzögerung des Transportes des Arzneimittelwirkstoffes durch Sorptionsprozesse gegenüber dem Grundwasserfluss berechnet. Daraus ergibt sich eine längere Verweilzeit der Substanz im Grundwasserleiter verglichen mit der Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers. Anschließend erfolgt die Berechnung des Abbaus 1. Ordnung für die Verweilzeit des Stoffes im Grundwasserleiter. Als Ergebnis erhält man die Konzentration des betrachteten Arzneimittelwirkstoffes im Grundwasser am Entnahmebrunnen.

Dem UBA liegen bei der Phase-II-Bewertung nach EMEA-Richtlinie Daten zum Abbau und zur Adsorption vor. Ein Beispiel für derartige Daten ist im Wirkstoffdatenblatt in Tab. 20 dargestellt. Diese Daten werden im Rahmen von Neuzulassungen von Arzneimittelwirkstoffen von den Arzneimittelherstellern dem UBA vorgelegt. Diese dem Benutzer der Entscheidungshilfe vorliegenden Parameter bilden die Grundlage der Berechnung der Retardation und des Abbaus der Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser.

Die Sorptionskoeffizienten K_d , K_F und der K_{oc} -Wert werden im Zulassungsverfahren an verschiedenen Böden oder Klärschlämmen bestimmt. Die Böden sind durch Korngrößenverteilung, Anteil an organischem Kohlenstoff sowie pH-Wert charakterisiert, der Klärschlamm nur durch den Gehalt an organischem Kohlenstoff.

Die Bestimmung der Sorptionskoeffizienten in einem Sediment erfolgt nicht. Eine K_d -Wert-Bestimmung, die im Klärschlamm durchgeführt wurde, hat für die Berechnung der Retardation im Sediment keine Gültigkeit. Ersatzweise müssen für die Berechnung die Sorptionskoeffizienten der Böden herangezogen werden. Dabei ist auf einen Boden mit hohem Sandgehalt und neutralem pH-Wert zurückzugreifen, um einen für Lockergesteinsgrundwasserleiter möglichst typischen Sorptionskoeffizient für die Berechnung nutzen zu können.

Neben den Sorptionskoeffizienten liegen aus Untersuchungsstudien DT_{50} -Werte für den Abbau der Wirkstoffe vor. Die Bestimmung der DT_{50} -Werte im Boden und im Wasser-/Sedimentsystem wird vorzugsweise unter aeroben Bedingungen durchgeführt. Für den im Rahmen dieses Projektes betrachteten Fall der Uferfiltration sind DT_{50} -Werte, die in einem Wasser/Sedimentsystem bestimmt wurden, zu bevorzugen. Die Abbaurate der Arzneimittelwirkstoffe ist des Weiteren von den Redoxbedingungen im Grundwasserleiter abhängig. Der Abbau von Arzneimittelwirkstoffen kann sowohl unter aeroben als auch anaeroben Bedingungen erfolgen. Die Entscheidung, ob der DT_{50} -Wert für das aerobe oder das anaerobe System in die entsprechende Formel eingesetzt wird, ist vom vorherrschenden Redoxpotential (anaerobe oder aerobe Grundwasserverhältnisse) im betrachteten Grundwasserleiter abhängig.

Tab. 20: beim UBA vorliegendes Datenblatt mit den Kennwerten von exemplarischen Arzneimittelwirkstoffen

Wirkstoff	Adsorption						Abbau				Bemerkungen		
	K _{oc} [ml/g]	K _d [ml/g]	K _F	Charakterisierung Boden			DT ₅₀ Wasser aerob [d]	DT ₅₀ Wasser anaerob [d]	DT ₅₀ Sediment aerob [d]	DT ₅₀ Sedi-ment anaerob [d]		DT ₅₀ Boden [d]	Charakterisierung
				pH	% Sand	% o.c.							
andere HAMW													
Stoff A ¹⁾	25	0,568		5,7	77,5	2,29	0,9					sandy loam pH Wasser 7,98 pH Sediment 7,11	- Antibiotikum - mäßig bis hoch persistent
	146	1,812		6,8	48,4	1,24	1,1					silty clay loam pH Wasser 8,17 pH Sediment 7,19	
	381	7,235		6,7	22,1	1,90		3,06				silt loam pH Wasser 7,09 pH Sediment 7,13	
	151	2,202		7,2	14,5	1,46							
	K _{oc} -Studie valide nach OECD 106, April 2007						Wasser/Sediment-Studie valide nach OECD 308, Mai 2007						
Stoff B ¹⁾	55800			4,3	86	0,5	1		2,8 (Gesamtsystem)			sand	- Antibiotikum
	nach OECD 106, aber nicht validierbar, da Studienreport nicht vorliegt, 2007						nach OECD 308, aber nicht validierbar, da Studienreport nicht vorliegt, 2007						
Stoff C ¹⁾	2650	957	1350 k.A. ²⁾		sludge	36,1	11	11				sand pH 7,6 bzw. 6,5	- Behandlung von Diabetes
	K _{oc} Studie valide, nach OECD 302A, Juli 2003						Wasser/Sediment-Studie valide nach OECD 308, April 2006						

¹⁾ aus UBA-Bewertung

²⁾ keine Angabe

Für die bearbeitete Fragestellung wurden näherungsweise der DT_{50} -Wert und die Halbwertszeit gleichgesetzt. Die Halbwertszeit ist die für die 50%-ige Transformation einer Testsubstanz ermittelte Zeit, wenn die Transformation mittels Kinetik erster Ordnung beschrieben werden kann. Sie ist unabhängig von der Ausgangskonzentration. Der DT_{50} -Wert beschreibt die Zeitspanne, in der sich die Ausgangskonzentration der Testsubstanz um 50 % reduziert hat. Die zur Verfügung stehenden DT_{50} -Werte wurden zur Berechnung der zu erwartenden Konzentration im Grundwasser herangezogen. Die zu erwartende Arzneimittelwirkstoffkonzentration im Grundwasser wird in drei Schritten berechnet.

1. Schritt: Berechnung der Retardation erfolgt mit der Formel:

$$R_d = 1 + \left(\frac{1-n}{n} \right) * \rho_s * K_d \quad \text{Gl. 9}$$

n = Porosität
 ρ_s = Rohdichte der Feststoffphase [g/ml]
 K_d = HENRY-Isotherme [ml/g]

Der K_d -Wert wird dem Wirkstoffdatenblatt (Tab. 22) entnommen. Der Retardationsfaktor ist ein Maß für die Verzögerung des Stofftransportes im Vergleich zur Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers, welche durch Sorptionsprozesse verursacht ist.

2. Schritt: Berechnung der Verweilzeit des Stoffes im Grundwasserleiter:

Die Sorption des Arzneimittelwirkstoffes während des Transportes im Grundwasser bewirkt eine Verlängerung der Verweilzeit des Stoffes im Grundwasserleiter. Die Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers wird mit der Gleichung 10 berechnet.

$$v_{a,Grundwasser} = \frac{x}{t} \quad \text{Gl. 10}$$

x = Abstand zwischen Oberflächengewässer und Entnahmebrunnen [m]
t = Fließzeit [d]

Um die längere Fließzeit der retardierten Substanz zu berechnen, wird der mit Gleichung 10 berechnete Retardationsfaktor in folgende Formel eingesetzt.

$v_{a,Grundwasser}$ = Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers [m/d]

$$v_{a,Substanz} = \frac{v_{a,Grundwasser}}{R_d} \quad \text{Gl. 11}$$

R_d = Retardationsfaktor [-]

3. Schritt: Berechnung des Abbau

In einem dritten Schritt wird schließlich der Abbau berücksichtigt. Wie bereits in Kapitel 2.4 beschrieben wird die Abbaurate 1. Ordnung mit der folgenden Formel berechnet.

$$c = c_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t_{\text{Substanz}}}$$

Gl. 12

$$\lambda = \frac{\ln 2}{DT_{50}}$$

c	= Konzentration am Entnahmebrunnen [mg/l]
c ₀	= Ausgangskonzentration [mg/l]
λ	= Abbaukonstante [1/d]
t _{Substanz}	= Transportzeit für den Arzneimittelwirkstoff [d]
DT ₅₀	= disappearance Time für 50 % der Wirkstoffkonzentration, wird hier näherungsweise gleichgesetzt mit Halbwertszeit [d]

Als Ergebnis erhält man die zu erwartende Konzentration der betrachteten Substanz am Entnahmebrunnen. Die Formel (Gl. 12) hat ihren Ursprung in der Berechnung des radioaktiven Zerfalls. Sie stellt jedoch auch für die Berechnung des biologischen Abbaus von Substanzen im Grundwasser eine erste Näherung dar und wird in der Praxis oft angewendet. Soweit Daten vorhanden sind, kann zwischen anaerobem und aerobem Abbau unterschieden werden.

Analytische Berechnung des Stofftransportes unter Verwendung der beim UBA vorliegenden Daten

Die Berechnung der zu erwartenden Konzentration am Entnahmebrunnen soll im Folgenden an einem Beispiel dargestellt werden. In der folgenden Tabelle sind die für das Berechnungsbeispiel relevanten Parameter und deren Herkunft aufgelistet. Die beschriebenen Werte stellen keinen konkreten Fall dar, sind jedoch als realistisch einzustufen.

Tab. 21: Parameter für die Beispielrechnung zur analytischen Methode

Parameter [Einheit]	Wert	Quelle
Sorptionskoeffizient K _d [ml/g]	2	Angaben in Tab. 22
Sorptionskoeffizient bezogen auf organischen Kohlenstoffgehalt der untersuchten Matrix K _{oc} [l/kg]	< 10.000	Angaben in Tab. 22
Porosität n [-]	0,35	s. Kapitel 6.2.1
Rohdichte der Feststoffphase ρ _s [g/cm ³]	2,65	s. Kapitel 6.2.1
Ausgangskonzentration im Oberflächengewässer c ₀ [µg/l]	10	Annahme
Ufer-Brunnen-Abstand x [m]	10	Annahme
Fließzeit des Grundwassers für die Strecke zwischen Ufer und Brunnen t [d]	20	Ergebnis der Strömungsmodellierung
DT ₅₀ -wert der Substanz [d]	100	Wirkstoffdatenblatt

Zunächst wird der Retardationsfaktor mit der Gleichung 9 berechnet. In diesem Fall ergibt sich ein Retardationsfaktor von 11. Das bedeutet, dass der Stoff gegenüber der Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers 11mal langsamer transportiert wird. Die Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers beträgt 0,5 m/d. Die Transportgeschwindigkeit des betrachteten Stoffes beträgt somit 0,045 m/d (Gl. 11). Das heißt der Stoff braucht für die Strecke von 10 m ca. 220 Tage. Die Anwendung der Formel für die Abbaurate 1. Ordnung ergibt schließlich eine PEC_{GW} am

Entnahmebrunnen von 2,18 µg/l. Im folgenden Kapitel (6.4 und 6.5) werden die Berechnungen anhand von konkreten Beispielen verifiziert.

6.3.4 Vergleich der Verfahren und Fehlerbetrachtung

Sowohl mit der analytischen Methode als auch mit der numerischen Lösung zur Stofftransportberechnung sind für das Projektziel hinreichend genaue Ergebnisse erzielt worden. Der Vorteil der numerischen Lösung liegt in der Möglichkeit einer dreidimensionalen Betrachtung mit Berücksichtigung konkreter Randbedingungen und hydrogeologischer Parameter sowie einer Massenbilanz für Grundwasserströmung und Stofftransport.

Allerdings könnten dann - analog zur Berechnung der kürzesten Fließzeiten - auch wieder nur eine begrenzte Anzahl von Ergebnissen in Form einer Matrix ermittelt werden. Anhand der in Tab. 20 vorgestellten Schrittweiten innerhalb der Spannweiten für die beteiligten Parameter, wären nur dafür ca. 600 Modellläufe erforderlich. Da numerische Transportrechnungen wesentlich komplexer und zeitaufwendiger sind, würde dieser Vorgang zumindest ein vergleichbar schnelles Lösungsverfahren erfordern. Dafür bietet sich das implizite Finite Differenzen Lösungsverfahren an mit dem auch die beschriebenen Modellrechnungen in Kapitel 6.3.2 durchgeführt wurden. Der Nachteil dieses Verfahrens liegt darin, dass durch numerische Dispersion immer eine Verminderung der Ergebniskonzentration im Grundwasser (in diesem Falle der PEC_{GW}) auftritt. Die numerische Dispersion ist nur durch andere Lösungsverfahren (wie MOC) vermeidbar, die allerdings mindestens die zehnfache Rechenzeit benötigen. Zudem wird bei der Ermittlung einer Konzentration im Grundwasser anhand von Durchbruchkurven (s. Kapitel 6.3.2) immer die mittlere Fließzeit (also der Durchbruch einer Stofffront) zugrunde gelegt.

Die analytische Methode zur Berechnung der Stoffkonzentration im Grundwasser ist nur für vereinfachte Transportprozesse geeignet. Wie eingangs bereits beschrieben sind diese Voraussetzungen hier gegeben. Aufgrund der Modellannahmen erfolgt die Betrachtung eindimensionaler Stofftransportprozesse - idealisiert entlang eines Strompfades für die kürzeste Fließzeit. Durch diese Betrachtungsweise wird dann bei der Berechnung ein worst case für die Fließzeiten und somit auch für die Stoffkonzentration im Grundwasser realisiert. Im Vergleich zum numerischen Verfahren werden somit durch Anwendung der analytischen Methode höhere Konzentrationen im Grundwasser ermittelt. Ein wesentlicher Vorteil liegt auch noch in der Möglichkeit, für jeden beliebigen PEC_{SW} einen PEC_{GW} zu berechnen - nicht beschränkt durch vorgegebene Werte einer Matrix. Dieser Vorteil der analytischen Berechnung wird in der Abfragemaske umgesetzt, so dass der Bearbeiter direkt aus dem konkreten Wert für PEC_{SW} einen konkreten Wert für PEC_{GW} erhält.

6.4 Simulation des Stofftransportes anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche

Zur Überprüfung der Modellannahmen und Berechnungsergebnisse wurden für die Standorte Flehe/Rhein und Torgau/Elbe anhand der recherchierten Daten zu Arzneimittelkonzentrationen

im Oberflächengewässer und im Grundwasser vergleichende Modellrechnungen mit dem hier verwendeten Modellansatz durchgeführt. Die Modelle mussten dafür nach den Vorgaben bzw. den hydrogeologischen Standortinformationen modifiziert werden, wobei bis auf die Länge der Filter die standardisierten Vorgaben (Randbedingungen und Modellgeometrie) genutzt wurden. Die Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) und Ufer-Brunnen-Abstände weichen dementsprechend von den Schrittweiten der Strömungsberechnung ab, liegen aber innerhalb der Spannweiten.

Die verwendeten Stoff- und Modellparameter und Randbedingungen sowie die Ergebnisse im Vergleich zu den gemessenen Konzentrationen sind in Tab. 24 dokumentiert. Die Modellrechnungen erfolgten beispielhaft für die Arzneimittelwirkstoffe Carbamazepin und Diclofenac wobei jeweils die berechneten Konzentrationen (in Tab. 24 farbig hervorgehoben) an den jeweiligen Entnahmekunnen mit den tatsächlich gemessenen Konzentrationen verglichen wurden.

Die Ermittlung der Konzentrationen im Grundwasser sowie die Festlegung der Randbedingungen für den Stofftransport erfolgten analog zum Vorgehen, wie in Kapitel 6.3.2 beschrieben.

Analog zur Verwendung der analytischen Methode (Kapitel 6.5) kamen für beide Standorte zur Berechnung die Maximalwerte der gemessenen Konzentrationen im Oberflächengewässer zur Anwendung. Die Quellenangaben für alle genutzten Werte und Parameter sind in Tab. 26 dokumentiert. Für beide Standorte wurde das Transportverhalten von Carbamazepin und Diclofenac simuliert, wobei Carbamazepin wenig (hohe Halbwertszeit und geringe Sorption) und Diclofenac gut (geringe Halbwertszeit und geringe Sorption) im Grundwasser abgebaut wird. Die Standorte unterscheiden sich vor allem hinsichtlich der Fließzeiten, die in Flehe im Mittel ca. 35 Tage und in Torgau >150 Tage betragen soll. Die Modellrechnungen nach den vorliegenden Parametern ergaben Fließzeiten von 33 bzw. 210 Tagen (ermittelt nach Methodik s. Kapitel 6.2) und entsprechen somit den Angaben der Datenrecherchen.

Am Standort Flehe liegen für Carbamazepin 200 ng/l und für Diclofenac 110 ng/l als maximale Ausgangskonzentration im Oberflächengewässer vor. Im Grundwasser wurde Carbamazepin mit einem Wert von 220 ng/l (höher als im Oberflächengewässer) nachgewiesen und Diclofenac dagegen nicht mehr. Die Modellergebnisse bestätigen diese Größenordnungen mit Werten von jeweils 109 ng/l bzw. 0,8 ng/l. Ähnlich verhält es sich am Standort Torgau-Ost, wobei die Anfangskonzentrationen mit Werten von 130 ng/l für Diclofenac bzw. 340 ng/l für Carbamazepin sogar höher sind. Aufgrund der längeren Verweilzeiten werden aber vergleichbar kleinere Werte im Grundwasser berechnet. Diclofenac wird vollständig abgebaut und für Carbamazepin wird eine Konzentration von 91 ng/l ermittelt. Auch hier entsprechen die Modellergebnisse in ihren Größenordnungen den Messwerten vor Ort.

6.5 Analytische Berechnung des Stofftransportes anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche

Für die Standorte Flehe/Rhein, Berlin/Wannsee, Berlin/Tegeler See und Torgau/Elbe standen Daten zu Arzneimittelkonzentrationen im Oberflächengewässer und im Grundwasser zur Verfü-

gung. Für die Arzneimittelwirkstoffe Carbamazepin, Diclofenac und Propyphenazon wurden darauf basierend die zu erwartenden Konzentrationen an den jeweiligen Entnahmebrunnen nach der analytischen Methode berechnet und mit den tatsächlich analysierten Konzentrationen verglichen. In Tab. 22 sind die Berechnungen zusammengefasst.

Tab. 22: Ergebnisse der numerischen Modellrechnungen zu den Standorten der Datenrecherche

Standort		Flehe/ Rhein	Flehe/ Rhein	Torgau/ Elbe	Torgau/ Elbe
Arzneimittelwirkstoff		Carbamazepin	Diclofenac	Diclofenac	Carbamazepin
Stoffparameter					
K _d -Wert (Literatur)	[ml/g]	0,131	0,572	0,572	0,131
Retardationsfaktor (berechnet)		2,30	6,70	6,70	2,30
Halbwertszeit (Literatur)	[d]	328	45	45	328
Lamda (berechnet)	[1/d]	0,002113	0,0154	0,0154	0,002113
(Ausgangs-)Konzentration Gewässer [ng/l] (Datenrecherche Maximalwert)		200	110	130	340
Modellparameter und Randbedingungen					
Ufer-Brunnen-Abstand	[m]	50	50	300	300
Filtertiefe Brunnen	[m u.GOK]	10-17	10-17	35-55	35-55
Entnahme Brunnen	[m ³ /d]	840	840	3600	3600
Mittlere Fließzeit Uferfiltrat [d]		35	35	>150	>150
Durchlässigkeitsbeiwerte k _f	[m/s]	0,001	0,001	0,002	0,002
Porosität		0,35	0,35	0,35	0,35
Feststoffdichte	[g/cm ³]	2,65	2,65	2,65	2,65
Dichte GW-Körper	[g/cm ³]	2,0	2,0	2,0	2,0
Ergebnisse im Vergleich					
Fließzeit im Modell lt Methodik	[d]	33	33	210	210
Konzentration am Brunnen analysiert (Datenrecherche)	[ng/l]	220	<NWG	<NWG	86
Konzentration am Brunnen analytisch berechnet	[ng/l]	177	14	0	164
Konzentration am Brunnen mit MT3DMS simuliert	[ng/l]	109	1	0	91

In allen Beispielen wurde eine Porosität von 0,35 angenommen, wie sie in einem Lockergesteinsgrundwasserleiter mit kiesiger bis sandiger Zusammensetzung zu erwarten ist (Hölting, 2009). Für die Feststoffdichte wurde ein Wert von 2,65 g/cm³ eingesetzt. Dies entspricht der Dichte von Quarz, dem Hauptbestandteil der Grundwasserleiter. Als Ausgangskonzentration im Oberflächenwasser und als gemessene Konzentration im Grundwasser wurden Maximalwerte eingesetzt, um so den „Worst case“ abbilden zu können. Der Ufer-Brunnen-Abstand und die Verweilzeit des Grundwassers wurden den Ergebnissen der Grundwasserströmungsmodellierung, den Angaben der Betreiber der Uferfiltrationsanlagen bzw. der Literatur entnommen. Die DT₅₀-Werte und die Adsorptionskoeffizienten (K_d-Werte) für die Arzneimittelwirkstoffe sind Literaturzitate.

Die Ergebnisse zeigen zum großen Teil eine gute Übereinstimmung der berechneten mit den analysierten Konzentrationen. Eine Ausnahme bildet die Propyphenazon-Konzentration am Tegeler See in Berlin. Nach Massmann et al. (2007) treten die erhöhten Propyphenazon-Konzentrationen in (> 10 Jahre) altem Grundwasser auf. Die am Brunnen analysierten Konzentrationen sind demnach die Folge von höheren Propyphenazon-Konzentrationen im Tegeler See in der Vergangenheit. Scheytt (2001) gibt als weitere Ursache für das Vorkommen von Propyphenazon in den Wasserwerksbrunnen am Tegeler See an, dass Propyphenazon am Sediment sorbiert ist und beim Einschalten der Wasserwerksbrunnen remobilisiert wird.

Die Parameter K_d -Wert, Fließzeit und DT_{50} haben einen besonders starken Einfluss auf die berechneten Konzentrationen. Die Porosität und die Feststoffdichte haben einen weniger starken Einfluss.

6.6 Vergleich der numerischen und analytischen Berechnungen anhand gemessener Werte an Standorten der Datenrecherche

In den Tab. 23 und 24 sind die Ergebnisse der in Kapitel 6.4 und 6.5 durchgeführten Berechnungen und die am Brunnen gemessenen Konzentrationen für die Wirkstoffe Carbamazepin und Diclofenac gegenübergestellt. Erwartungsgemäß sind die analytisch berechneten Werte höher als die Werte nach den Berechnungen mit dem Transportmodell (MT3DMS). Die Gründe sind in Kapitel 6.3.4 erläutert. Die Ergebnisse bestätigen die Vorteile einer Nutzung der analytischen Methode zur „worst case“-Bestimmung des PEC_{GW} , denn es wird im Vergleich zur numerischen Modellierung ein höherer Wert ermittelt. Gleichzeitig wird die Schwierigkeit deutlich, anhand von wenigen Messwerten im Oberflächengewässer und Grundwasser genaue Aussagen zum Verhalten der Stoffe im Grundwasser zu treffen. Beispielhaft sei die höhere Konzentration von Carbamazepin im Grundwasser gegenüber der Anfangskonzentration im Oberflächengewässer genannt. Auf die möglichen Ursachen wurde bereits im Kapitel 5 eingegangen. Daher ist es auch nicht möglich, den Modellansatz anhand der vorliegenden Messwerte exakt nachzuziehen.

Tab. 23: Vergleich der Ergebnisse der analytischen Berechnungen und der numerischen Modellrechnungen zu den Standorten der Datenrecherche

Standort	Flehe/ Rhein	Flehe/ Rhein	Torgau/ Elbe	Torgau/ Elbe
Arzneimittelwirkstoff	Carbamazepin	Diclofenac	Diclofenac	Carbamazepin
(Ausgangs-)Konzentration Gewässer [ng/l] (Datenrecherche Maximalwert)	200	110	130	340
Ergebnisse im Vergleich				
Konzentration am Brunnen [ng/l] analysiert (Datenrecherche)	220	<NWG	<NWG	86
Konzentration am Brunnen [ng/l] analytisch berechnet	177	14	0	164
Konzentration am Brunnen [ng/l] MT3DMS simuliert	109	1	0	91

Tab. 24: Parameter und Ergebnisse der analytischen Berechnungen zu Standorten der Datenrecherche

Standort	Stoff	K _d -Wert	Porosität n	Feststoffdichte	Ausgangskonzentration (Max)	Retardationsfaktor R _d	Ufer-Brunnenabstand	Verweilzeit (ohne Retardation)	v _a Grundwasser	v _a Stoff	Fließstrecke bei v _a Stoff	Verweilzeit mit Retardation	Halbwertszeit	Lambda	C am Brunnen berechnet	C am Brunnen analysiert (Max)
Einheit		[ml/g]		[g/cm ³]	[ng/l]		[m]	[d]	[m/d]	[m/d]	[m]	[d]	[d]	[d ⁻¹]	[ng/l]	[ng/l]
Flehe/Rhein	Carbamazepin	0,131 ¹	0,35	2,65	200	1,6	50	35	1,4	0,9	30	58	328 ⁶	0,002113	177	220
Flehe/Rhein	Diclofenac	0,572 ¹	0,35	2,65	110	3,8	50	35	1,4	0,4	13	134	45 ¹	0,0154	14	<NWG
Berlin, Wannensee	Carbamazepin	0,131 ¹	0,35	2,65	540 ⁴	1,6	50	120 ³	0,4	0,3	30	197	328 ⁶	0,002113	356	95 ⁴
Berlin, Tegeler See	Propyphenazon	0,187 ²	0,35	2,65	385 ⁶	1,9	95	25	3,8	2,0	49	48	20 ¹	0,03465	73	180 ⁴
Torgau/Elbe	Diclofenac	0,572 ¹	0,35	2,65	130	3,8	300	210	1,4	0,4	79	801	45 ¹	0,0154	0	<NWG ⁵
Torgau/Elbe	Carbamazepin	0,131 ¹	0,35	2,65	340	1,6	300	210	1,4	0,9	182	345	328 ⁶	0,002113	164	86 ⁵

Anmerkungen:

*R_d - Retardationsfaktor, "C": Konzentration

¹ Scheytt et al. 2006

² Mersmann 2003

³ Massmann et al. 2007a

⁴ NASRI-Datenbank

⁵ Lenk et al. 2006

⁶ Löffler et al. 2005

6.7 Ableitung der Allgemeingültigkeit der Modellergebnisse

Für die geplante europaweite Anwendung der Methodik zur Bestimmung einer erwarteten Konzentration eines Arzneimittelwirkstoffes (in der Zulassung) im Grundwasser auf dem Wege der Uferfiltration, muss festgestellt werden, ob die gewählte Methode auf alle Uferfiltratstandorte innerhalb Europas übertragbar ist. Eine weitestgehende Allgemeingültigkeit der Ergebnisse für mitteleuropäische Standorte kann anhand der Ergebnisse der Literaturrecherche und den durchgeführten Berechnungen sowie deren Ergebnissen postuliert werden.

Eine solche Allgemeingültigkeit ist deswegen gegeben, weil der hier betrachtete Prozess des Eintrages von Oberflächenwasser in das Grundwasser bei der Trinkwassergewinnung durch Uferfiltration auf Standorte mit vergleichbaren typischen hydrogeologischen Eigenschaften beschränkt ist. Uferfiltration wird nach Kühn et al. (2006) in Europa neben dem Schwerpunkt Deutschland hauptsächlich in den Niederlanden an Rhein und Maas, an der Donau in Österreich rund um Wien beginnend und weiterhin flussabwärts in der Slowakischen Republik in Ungarn und Serbien/Montenegro betrieben. Die im Ergebnis der Literaturrecherche (s. Kapitel 4) vorliegenden Erkenntnisse bestätigen diese Aussagen.

Die Uferfiltratstandorte befinden sich dabei aus Gründen der technischen Realisierbarkeit im Sinne einer hydraulischen Verbindung zwischen Oberflächengewässer und Grundwasser in Flussauen in denen sich unter den gemäßigten Klimabedingungen in Europa sandig bis kiesig geprägte Poren-Grundwasserleiter ausgebildet haben. Aus ökonomischer Sicht zum Betrieb der Wasserfassungen und hinsichtlich einer optimalen Reinigungsleistung bei der Uferfiltration sind solche Standorte nur innerhalb eng begrenzter Spannweiten der hydrogeologischen Parameter und der Geometrien der Wasserfassungen realisiert. So weist Lenk et al. (2006) basierend auf der Analyse der hydrogeologischen und hydrogeochemischen Bedingungen an Uferfiltratstandorten in Deutschland, Frankreich, Österreich und der Schweiz charakteristische Mittelwerte für mitteleuropäische Standortgruppen mit Uferfiltration aus. Nach dieser Arbeit ist Uferfiltration in Lockergesteinen der Flussauen generell nur möglich mit Durchlässigkeitsbeiwerten (k_f) oberhalb 10^{-4} m/s und optimal möglich erst ab Mächtigkeiten des Grundwasserleiters von mehr als 4 Metern. Die Spannweiten dieser Parameter sind in Tab. 25 dargestellt.

Tab. 25: Spannweiten der hydrogeologischen Parameter Durchlässigkeitsbeiwert (k_f) und Aquifermächtigkeit an Uferfiltratstandorten. Begrenzend für den Betrieb der Uferfiltration sind vor allem die Minimum-Werte für die jeweiligen Parameter

Parameter im Grundwasserleiter	Median	Maximum	Minimum
Durchlässigkeitsbeiwerte (k_f) [m/s]	0,0017	0,02	0,0001
Grundwasserleitermächtigkeit	16 Meter	70 Meter	4 Meter

Wie in den Kapiteln 2.3 und 6.1 beschrieben wurde, basiert die Herleitung der vorliegenden Methode auf diesen Untersuchungen. Daher ist nach dem heutigen Erkenntnisstand die Allgemeingültigkeit der Bearbeitungsergebnisse für Uferfiltration unter mitteleuropäischen Verhältnissen gegeben.

7 Entwicklung einer benutzergesteuerten Programmoberfläche zur Abschätzung des PEC-Grundwasser aus dem PEC-Oberflächenwasser

Im letzten Arbeitsschritt des Projektes wurden die Ergebnisse der im Kapitel 6 dokumentierten Berechnungen unter einer Programmoberfläche in Form einer Abfragemaske zusammengeführt. Die Anwendung basiert auf den programmierten Funktionen innerhalb eines Microsoft Access-Datenblattes und lässt sich somit ohne zusätzliche Installationen auf jedem Computer mit Office- inkl. Access-Installation ausführen. Das Programm mit den Namen „SiMBaFi“ (**S**imulati-**o**n **M**odel **B**ank **F**iltration) sowie ein Handbuch dazu wurden in englischer Sprache entwickelt und liegen beide als Anlage 9 diesem Bericht in analoger bzw. digitaler Form bei.

Die Funktion besteht in der für den Nutzer automatisierten und bedienerfreundlichen Kopplung der Berechnungsergebnisse zur Grundwasserströmung mit den Berechnungen des Stofftransportes. Es wird die Fragestellung beantwortet, wie hoch die zu erwartende Konzentration eines Arzneimittelwirkstoffes im Grundwasser (PEC_{GW}) bei bekannter Konzentration des Wirkstoffes im Oberflächengewässer (PEC_{SW}) für den Prozess Uferfiltration unter Annahme der berechneten Fließgeschwindigkeit für einen „worst case“ und einen „realistic worst case“ ist. Die genauen Bedienungsvorschriften und rechnerische Voraussetzungen werden im Handbuch erläutert. Im Folgenden werden die Voraussetzungen zum Verständnis des Programms gegeben und auf Beschränkungen hingewiesen.

Die Standardfunktionen der Abfragemaske sind in Form eines Ablaufschemas in Abb. 63 dargestellt. Dem Nutzer stehen drei Möglichkeiten zur Verfügung, den Stoffeintrag in das Grundwasser zu schätzen. Dies ist zum Einen die Standardberechnung für den PEC_{GW} anhand der drei vorgegebenen Fließzeiten die aus den Berechnungsergebnissen zur Grundwasserströmung und statistischen Erhebungen im Kapitel 6.2 resultieren. Aus diesen Berechnungen geht der „worst case“ mit einer Fließzeit von 0,15 d, der „realistic worst case“ mit 5 d und ein weiterer Wert mit 110 d hervor. In Abb. 63 ist dieser Funktionsumfang grün hinterlegt.

Zum Anderen besteht als Erweiterung des Funktionsumfangs die Möglichkeit der Berechnung eines Pec_{GW} nach benutzerdefinierten Vorgaben entweder der Fließzeit oder der konkreten Standortparameter. Die benutzten Werte für die Berechnungen basieren ebenfalls auf den Basisangaben der Standardberechnung und werden in Abb. 63 mit roter Farbe hinterlegt. Diese Funktionalität ist nur für Anwender mit Kenntnissen der Hydrogeologie eines konkreten Standortes gedacht. Aus diesen Berechnungen resultiert nicht ein verallgemeinerter PEC_{GW} sondern eine Wirkstoffkonzentration im Grundwasser im Ergebnis der Eingabe konkreter Standortparameter. Alle Eingaben sowie Berechnungsergebnisse werden in einer Datentabelle gespeichert. Angaben zu einem Vorgang können als Protokoll gedruckt oder als Datei abgelegt werden. Es besteht die Möglichkeit Eingaben zu verändern wobei ein neuer Datensatz erzeugt wird. Zu einem Wirkstoff können beliebig viele Berechnungen mit unterschiedlichen Fragestellungen durchgeführt werden. Dabei sollte auf die sorgsame Dokumentation der einzelnen Berechnungsvarianten geachtet werden, um die Nachvollziehbarkeit zu gewährleisten.

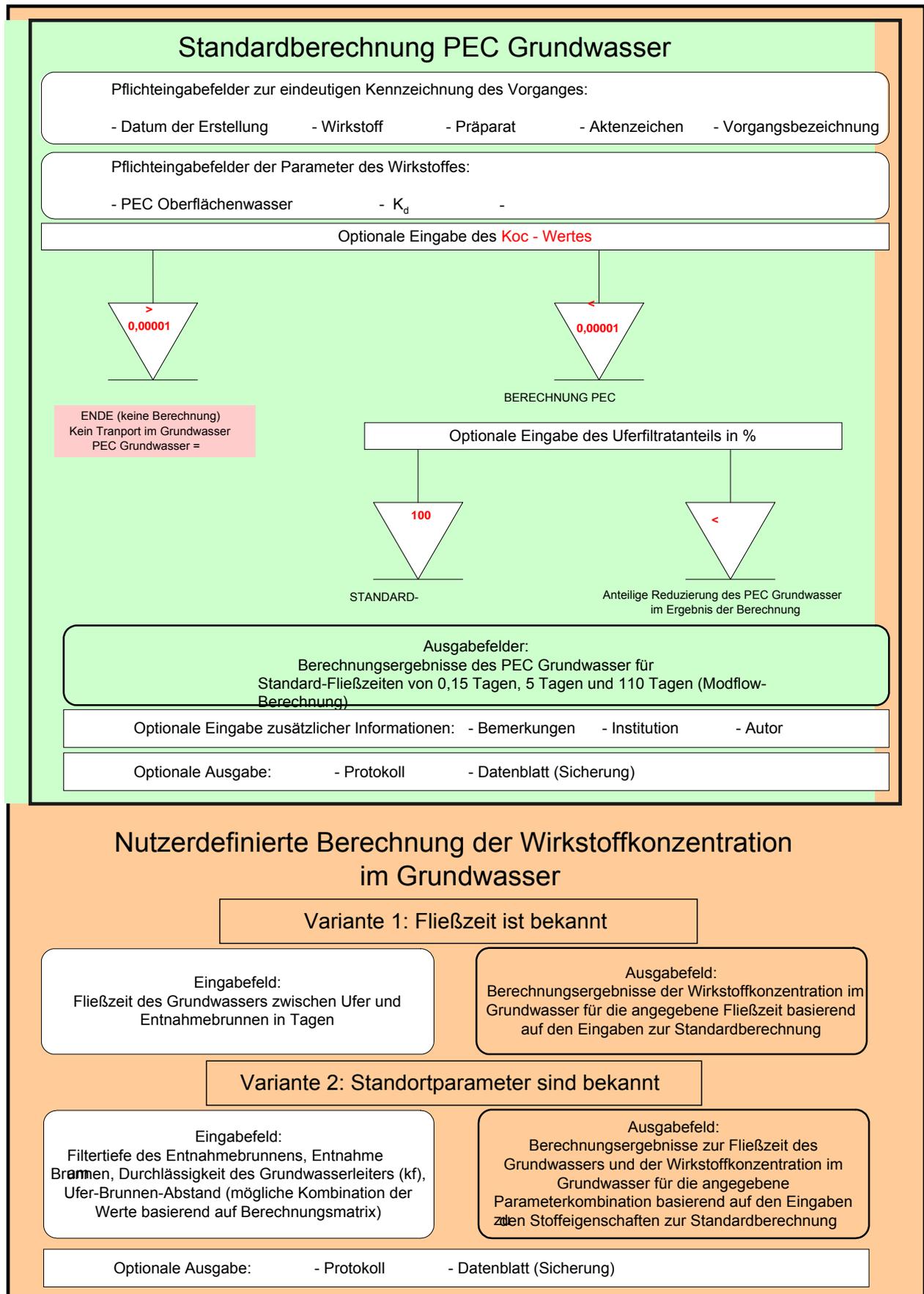


Abb. 63.: Ablaufschema der Eingabemaske zur Bestimmung der Wirkstoffkonzentration im Grundwasser bei der Uferfiltration. Im grün hinterlegten Feld sind alle Funktionen zur Standardberechnung des PEC im Grundwasser zusammengefasst. Die benutzerdefinierten Berechnungen basieren ebenfalls auf den Eingaben zur Standardberechnung - daher umfasst dieses rot hinterlegte Feld den gesamten Funktionsumfang

Standardberechnung zur Ermittlung des PEC_{GW}

Im Rahmen des Zulassungsverfahrens für einen Arzneimittelwirkstoff wird für den „realistic worst case“ für eine konkrete zu erwartende Konzentration im Oberflächengewässer eine konkrete zu erwartende Konzentration im Grundwasser (PEC_{GW}) gesucht. Diese Funktion übernimmt innerhalb der Abfragemaske der Teil „Standardberechnung PEC_{GW} “. Die Berechnungen basieren auf dem beim Umweltbundesamt vorliegenden Stoffparametern zum jeweiligen Wirkstoff und dem berechneten PEC_{SW} . Wie in Abb. 63 ersichtlich ist, müssen alle für den Vorgang notwendigen Angaben und Wirkstoffparameter eingegeben werden, um die Berechnung durchzuführen. Die Hintergründe zur Verwendung der Parameter K_d , K_{oc} und DT_{50} werden im Kapitel 6.3.2 erläutert. Die Berechnungen werden nur für K_{oc} - Werte < 10.000 durchgeführt - für größere Werte wird ein Transport im Grundwasser ausgeschlossen. Daher wird standardmäßig ein Wert von 0 angenommen. Eine weitere optionale Möglichkeit zur Modifikation der Berechnungsergebnisse ist durch Eingabe des konkreten Uferfiltratanteils gegeben. Da die vorliegende Methodik ausschließlich den Prozess der Uferfiltration berücksichtigt (s. Kapitel 2) ist standardmäßig ein Wert von 100 % voreingestellt. Dieser Wert sollte nur verändert werden wenn genauere Untersuchungen zu den betrachteten Uferfiltratstandorten vorliegen. Der empfohlene Wert für den PEC_{GW} verringert sich im Ergebnis anteilig.

Im Ergebnis der Standardberechnung werden für drei Standardfließzeiten Konzentrationen in Grundwasser ausgegeben. Die Grundlagen zur Verwendung dieser Fließzeiten (s. Tab. 18) werden im Kapitel 6.2.7 erläutert. Die Konzentration im Grundwasser für eine Fließzeit von 5 Tagen wird zur Verwendung als PEC_{GW} für den „realistic worst case“ im Zulassungsverfahren empfohlen. Die beiden anderen Angaben zu Konzentrationen bei einer Fließzeit von 0,15 Tagen bzw. 110 Tagen sind Vergleichswerte zur Beurteilung der Spannweiten möglicher zu erwartender Konzentrationen im Grundwasser an unterschiedlichen Uferfiltratstandorten.

Nutzerdefinierte Berechnungen der Wirkstoffkonzentration im Grundwasser

Diese Funktionalität ist Anwendern vorbehalten, die mit detaillierten Kenntnissen der Uferfiltratstandorte Einträge von Arzneimittelwirkstoffen in das Grundwasser abschätzen wollen. Die Berechnungen beruhen ebenfalls auf den Angaben zu den Stoffparametern bei der Standardberechnung. Es stehen zwei Möglichkeiten einer Modifikation zur Verfügung, die schematisch in Abb. 63 dargestellt sind. Bei der Berechnungsvariante 1 ist die Fließzeit des Grundwassers zwischen Ufer und Entnahmebrunnen bekannt. Basierend auf diesem Wert wird die Konzentration im Grundwasser ausgehend von der Konzentration im Oberflächengewässer berechnet. Die Berechnungsvariante 2 ermöglicht zuerst die Abschätzung der kürzesten Fließzeit basierend auf den Angaben zu den konkreten Standortparametern. Bei dieser Funktion wird auf die im Kapitel 6.2.4 dokumentierten Berechnungsergebnisse der Grundwasserströmung zugegriffen, die als Datenmatrix vorliegen. Daher muss die Auswahl der Parameter in der vorgegebene Reihenfolge und zu den konkreten Werten in der jeweiligen Schrittweiten der Berechnung (s. Tab. 8) erfolgen. Anhand der resultierenden Fließzeit wird dann wiederum die Konzentration im Grundwasser ausgehend von der Konzentration im Oberflächenwasser berechnet.

8 Zusammenfassung

Auf Grundlage der Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use (2006) der European Medicines Agency (EMA) wird im Zuge des Zulassungsverfahrens von Arzneimittelwirkstoffen eine mögliche Belastung des Grundwassers durch Arzneimittelwirkstoffe betrachtet. In der Richtlinie wird ein Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen aus dem Oberflächenwasser ins Grundwasser bei dem Prozess der Uferfiltration angenommen und daher die PEC (Predicted Environmental Concentration) für das Grundwasser aus der Multiplikation der PEC für das Oberflächenwasser mit dem festgelegten Faktor 0,25 gewonnen. Somit ist in der EMA-Richtlinie der Wert für die PEC Grundwasser invariabel an den Wert der PEC Oberflächenwasser gebunden.

Ziel der vorliegenden Arbeit war die Entwicklung einer MS Access basierten Anwendung zur Ermittlung der PEC Grundwasser bei der Uferfiltration unter Einbeziehung der tatsächlichen räumlichen Gegebenheiten bei der Uferfiltration und der Eigenschaften der Substanzen. Bei der Uferfiltration handelt es sich um einen künstlich induzierten Prozess, bei dem aufgrund der Entnahme von Grundwasser in der Nähe eines Oberflächengewässers ein hydraulischer Gradient vom Oberflächengewässer zum Grundwasser erzeugt wird. Ziel der Uferfiltration ist die Gewinnung von Trinkwasser. Das gewonnene Wasser entstammt dem Oberflächengewässer, wird aber im Zuge der Uferfiltration durch natürliche Vorgänge gereinigt. Im Rahmen einer umfangreichen Literaturrecherche wurden die vorhandenen Unterlagen und Forschungsergebnisse zur Uferfiltration gesammelt und ausgewertet. In Deutschland wird Uferfiltration am Rhein, in Berlin an Havel und Spree, an der Elbe und an der Donau betrieben. In Europa verfügen die Niederlande, Österreich, Slowakei, Ungarn und Serbien über Anlagen zur Uferfiltration.

Allen Standorten ist gemein, dass sie sich in der Nähe von Oberflächengewässern befinden und dass die Brunnen in mittel bis gut durchlässigen Gesteinen verfiltert sind. Auch die Tiefenlage der Filter und – soweit Kenntnisse hierzu verfügbar waren - die Entnahmemengen an Grundwasser liegen innerhalb relativ enger Bereiche. Die Abstände der Brunnen vom Ufer liegen zwischen 1,5 und 1200 Metern, mittlere Filtertiefen (Endteufe der Filter) wurden zwischen 4 und 70 Metern ermittelt. Entnahmemengen sind in der Literatur meist nicht dokumentiert und wurden daher aus eigenen Modellrechnungen für den Berliner Raum abgeleitet. Diese Werte liegen zwischen 500 und 5000 m³/d pro Brunnen. Insofern wiesen die unterschiedlichen Standorte vergleichsweise ähnliche Bedingungen auf. Allerdings sind Kenntnisse und Forschungsergebnisse zum Transport und zur Mobilität von Arzneimittelwirkstoffen bei der Uferfiltration kaum vorhanden und vollständige Transekten mit Messungen von Arzneimittelwirkstoffkonzentrationen im Oberflächenwasser und Grundwasser entlang von Strombahnen praktisch nicht verfügbar. Zu den wenigen Standorten mit derartigen Untersuchungen gehören Transekten in Berlin (Tegel, Wannsee), am Rhein (Flehe) und an der Elbe (Torgau).

Anders als die oben genannten gemeinsamen Charakteristika für die Uferfiltratstandorte ist die Grundwasserströmung an den Standorten bestenfalls nur annähernd bekannt. Dazu gehören insbesondere die Grundwasserfließzeiten, zu denen es nur vereinzelt Angaben gibt. Die Fließzeiten sind jedoch von größter Bedeutung bei der Beschreibung des Stofftransportes im

Grundwasser. Um die Fließzeiten und deren Variabilität zu erhalten, sind numerische Grundwasserströmungsmodelle sehr gut geeignet.

Die computergestützten Programme Exposit und FOCUS-Pelmo werden im Zulassungsverfahren der Pflanzenschutzmittel, das Programm FOCUS-Pearl im Zulassungsverfahren für Arzneimittel zur Abschätzung des flächenhaften Eintrags von Pflanzenschutz- und Pflanzenbehandlungsmitteln in das Grund- und Oberflächenwasser eingesetzt. Allerdings erwiesen sich diese Programme für die hier vorliegende Fragestellung als ungeeignet, da sie zum einen den Transport in der wasserungesättigten Zone behandeln und zum anderen einen flächenhaften Eintrag über den Boden nachbilden. Demgegenüber findet bei der Uferfiltration ein linienförmiger Eintrag in das Grundwasser statt, ohne dass der Boden oder die wasserungesättigte Zone tangiert werden. Daher bestand die Notwendigkeit, ein völlig neues und unabhängiges Rechenmodell mit Eingabemaske zu erstellen, das auf der Grundlage der Grundwasserströmung und des Transports von gelösten Stoffen mit der Grundwasserströmung basiert.

Nach der Recherche numerischer Strömungs- und Transportmodelle wurde Visual Modflow als Modellierungswerkzeug für die Grundwasserströmungsmodellierung ausgewählt. Basierend auf den vorhandenen Daten zu den Uferfiltratstandorten wurde ein Modellgebiet so aufgebaut, dass alle Standorte sich dort wiederfinden. Das Modellgebiet hat einen maximalen Abstand der Brunnen zum Ufer von 1500m, eine maximale Mächtigkeit des Grundwasserleiters - und somit auch eine maximale Filtertiefe – von 100m und eine Modellbreite von 300m. Innerhalb dieses Streifens können alle zuvor recherchierten Uferfiltratstandorte eingepasst werden. Die horizontale Diskretisierung erfolgte durch Rechteckflächen mit einer Ausdehnung von 5 x 5m.

Mit dem beschriebenen Modell wird die Grundwasserströmung bei der Uferfiltration unter stationären Bedingungen simuliert. Ziel der Modellierung ist die Bestimmung der kürzesten Fließzeit zwischen Ufer und Brunnen, da diese kürzeste Fließzeit das erste mögliche Auftreten eines Stoffes im Brunnen bedeutet. Im Ergebnis der Modellläufe wird jeweils die kürzeste Verweilzeit (Fließzeit) für den Fließpfad zwischen Ufer (Gewässersohle) und Brunnen (oberer Filterbereich) in Abhängigkeit der Änderung einer der folgenden Variablen bestimmt:

- Ufer-Brunnen-Abstand,
- Filtertiefe (Mächtigkeit GWL),
- k_f -Werte (Durchlässigkeitsbeiwerte) und
- Entnahmemengen am Brunnen.

Die Berechnung der Verweilzeiten durch Variation der Randbedingungen erfolgt in definierten Schritten innerhalb gewählter Spannweiten. Dabei orientieren sich die Schrittweiten an Größen, die an bekannten Wasserwerksstandorten auftreten bzw. an den für einzelne Flussbereiche typischen Randbedingungen.

Das Ergebnis der Modellrechnungen sind Kombinationen der o.g. Parameter mit 1290 Datenpaaren zur kürzesten Fließzeit zwischen Ufer und Brunnen und dazugehöriger Absenkung des Grundwasserspiegels im Brunnen. Diese Grundwasserfließzeiten schwanken zwischen weni-

gen Stunden und bis zu 35 Jahren, wobei der Median der Daten einen Wert von 129 Tagen aufweist. Dieser Wert stimmt sehr gut mit der durchschnittlichen Fließzeit bekannter Standorte überein, wie eine statistische Auswertung ergab. Alle Wertepaare sind in einer Access Datenbank erfasst und es kann mit geeigneten Abfragen ein Zugriff erfolgen.

Der Transport von im Wasser gelösten Stoffen hängt von einer Vielzahl an Prozessen im Wasser selbst und zwischen im Wasser gelösten Stoffen und dem umgebenden Feststoff ab. Die größte Bedeutung hat die Advektion, d.h. der Transport einer gelösten Substanz mit der Grundwasserströmung. Ziel der vorliegenden Untersuchung war eine Aussage zum Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen zu treffen, die unabhängig vom betrachteten Ort erfolgen soll. Deshalb sind alle Aspekte zur räumlichen Verteilung im Gestein (Variabilität, Heterogenität, Schichtenaufbau, etc.) nicht betrachtet worden, da sie nur lokalen Charakter besitzen. Zusätzlich ist der Kenntnisstand zu den transportrelevanten Eigenschaften der Substanzen beim Zulassungsverfahren eingeschränkt. Beim Zulassungsverfahren liegen bestenfalls Angaben zum K_{OC} -Wert, zum K_d -Wert (Henry-Isotherme) und manchmal auch zum K_f -Wert (Freundlich-Isotherme), der bei unterschiedlichen pH-Werten und Feststoffen ermittelt wurde, sowie zum DT_{50} -Wert unter aeroben und anaeroben Bedingungen vor. Mit diesen Angaben werden Sorptions- und Abbauprozesse gut abgebildet. Der K_{OC} Wert wird in Anlehnung an die EMEA-Richtlinie so verwendet, dass eine Substanz mit einem Wert $K_{OC} > 10000$ ml/g als immobil angesehen und daher kein Eintrag in das Grundwasser angenommen wird.

Sorptionsprozesse führen beim Transport eines gelösten Stoffes zur Verzögerung des Transports (sog. Retardation) der Substanz gegenüber einem Wasserteilchen. Abbauprozesse führen zu einer Konzentrationsverminderung. Mittels der vorliegenden Angaben zu den Substanzen kann über den K_d -Wert der Retardationsfaktor und hilfsweise über die Gleichsetzung von DT_{50} (DT = Disappearance Time) und Halbwertszeit der Abbau 1. Ordnung berechnet werden. Da beide einfache numerische Berechnungen darstellen und da von stationären Grundwasserströmungsbedingungen ausgegangen wird, wurde auf eine aufwändige Transportmodellierung verzichtet und dafür mittels analytischer Berechnungen das Transportverhalten eines gelösten Stoffes erfasst. Basierend auf den durch die Strömungsmodellierung vorgegebenen Verweilzeiten wird unter Vorgabe der Ausgangskonzentration im Oberflächenwasser und nach Eingabe des K_d -wertes die Retardation und die Verweilzeit der jeweiligen Substanz bestimmt. Danach erfolgt über den DT_{50} die Berechnung des Abbaus für diese Verweilzeit. Dies erweist sich zusätzlich als vorteilhaft gegenüber einer Modellierung, da auf diese Weise die PEC Grundwasser für jeden beliebigen K_d und DT_{50} -Wert bestimmt werden kann.

Den Abschluss der Arbeiten bildet die Bestimmung eines „realistic worst case“. Das Ziel ist die Festlegung eines verallgemeinerten, typischen Falles für die Grundwasserströmung an Uferfiltratstandorten als Basis zur Berechnung der PEC Grundwasser für Arzneimittelwirkstoffe im Zulassungsverfahren. Ein „worst case“ sowie ein „median case“ der Grundwasserströmung werden ebenfalls festgelegt. Dazu werden die Daten zu den Durchlässigkeitsbeiwerten, den Entnahmeraten, den Filtertiefen (bzw. -unterkanten) und des Ufer-Brunnen-Abstandes einer rangstatistischen Analyse unterzogen und mit den Modellergebnissen in Beziehung gesetzt. Für die derart ermittelten Standortparameter werden dann mit dem Modellansatz die jeweiligen Fließ-

zeiten berechnet. Als „realistic worst case“ wurde von uns als Synonym für charakteristische, kurze Fließzeiten das 20%-Perzentil ausgewählt, das entspricht einer Fließzeit vom Gewässer zum Brunnen von nur 5 Tagen. Als „worst case“ für sehr kurze Fließzeiten wurde das 5%-Perzentil ausgewählt, das entspricht einer Fließzeit von nur 0,15 Tagen, also knapp 4 Stunden. Der „median case“ entspricht dem Median (110 Tage). Mittels dieser standardisierten Fälle für Fließzeiten lassen sich bei Kenntnis der transportrelevanten Stoffeigenschaften die Konzentrationen der Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser als „worst case“, „realistic worst case“ und als „median case“ unmittelbar bestimmen.

Die Ergebnisse der Grundwasserströmungsmodellierung sind in einer Datenbasis vorhanden und werden zusammen mit den Berechnungen zum Stofftransport über eine Entscheidungsmatrix gesteuert. Dem Nutzer steht die komfortable Abfragemaske SiMBaFi (Simulation Model Bank Filtration) für die Eingabe und Berechnung der Konzentrationen für die genannten Fälle und für individuelle, benutzergesteuerte Berechnungen zur Verfügung.

Summary

Following the EMEA (2006) “Guideline on the environmental risk assessment of medicinal products for human use” a value for the predicted environmental concentration in groundwater (PEC_{GW}) at bank filtration sites has to be calculated when potential risks of medicinal products to the environment are evaluated. In the above-mentioned guideline PEC_{GW} is calculated based on the predicted environmental concentration of surface water (PEC_{SW}) multiplied by 0.25. Due to this calculation PEC_{GW} is invariably connected to the PEC_{SW} without taking into account the groundwater flow situation or transport behavior of the compounds.

The aim of the project is to develop a program to calculate the PEC_{GW} of pharmaceutical compounds from human medical care in groundwater at bank filtration sites. The result is a Microsoft Access application in form of a query mask based on groundwater flow and transport modeling of pharmaceutical compounds.

The first step required a definition of the “bank filtration” process. We define “bank filtration” as an artificially induced process of groundwater withdrawal in the vicinity of surface water bodies with the aim of drinking water production. This water originates from surface water but it is purified along its path to the well in the subsurface. At the beginning, an intensive literature research revealed a multitude of papers (about 200 references) on this topic. In Europe, bank filtration is mainly used in Germany and the Netherlands on the rivers Rhine and Meuse, on the Danube River in Austria and further downstream in the Slovak Republic, in Hungary, and in Serbia / Montenegro.

All bank filtration sites are located in the vicinity of surface water bodies and the wells are screened in medium to highly permeable unconsolidated sediments. Therefore, geological and hydrogeological properties of the aquifer, depth of screen interval and – as far as published – also the extraction rates are comparable within certain quite narrow ranges. The distance between surface water body and the extraction wells varies between 1.5 and 1200m and screen depths reach from 4 to 70m. Extraction rates are often difficult to acquire but own results from

the Berlin area show typical values between 500 and 5000 m³ /day per extraction well. The various bank filtration sites show similar conditions. However, only little information is available on transport and mobility of pharmaceuticals from human medical care at bank filtration sites. Studies on the complete path of pharmaceutical compounds from surface water to groundwater including time series are especially rare. Some of these studies were performed at so called transects in the Berlin area at the rivers Havel and Spree, at the river Rhine (Flehe), and at the river Elbe (Torgau).

The above-mentioned characteristics that are quite comparable at the different sites do not apply for groundwater flow conditions. Especially, information on groundwater flow times is rare. However, these flow times are essential for the description of solute transport in groundwater. Numerical groundwater flow models are capable of calculating these flow times and their variability. The programs Exposit and FOCUS-Pelmo were developed to assess the concentration of pesticides and the program FOCUS-Pearl to assess the concentrations of medicinal products in the groundwater based on a diffusive input via land surface and the water unsaturated zone. This approach is not suitable for bank filtration sites because there is no unsaturated zone between surface water and groundwater water and the input can be regarded as a linear source. Therefore, it was decided to build a new application from the scratch based on a groundwater flow model.

All commonly available software packages for simulation of groundwater flow and transport were evaluated and finally the software package for groundwater flow modeling VISUAL MODFLOW was chosen to create a basic model which would enable to model the groundwater flow at all bank filtration sites. The model area has a spatial extend of 1500m from the bank of the surface water body to the extraction well, a depth of 100m – which coincides with the maximum length of the filter screen and a width of 300m. Within this strip all previously studied bank filtration sites can be adapted. The horizontal discretisation was performed using rectangles with sizes of 5 x 5m. With this model the shortest flow times for groundwater flow from the bank to the well were determined for all combinations of possible hydrogeological and water management conditions. These data pairs were obtained by variations of these variables:

- Distance from bank to groundwater well
- Depth of screen and screen interval (thickness of aquifer)
- Hydraulic conductivity
- Groundwater extraction rate at the well

Calculation of groundwater flow time was performed using defined steps within certain ranges. These steps and ranges were adjusted to values that have been reported from bank filtration sites. As a result of these calculations 1290 data pairs representing combinations of shortest flow time and groundwater drawdown at the well were obtained. The flow times varied between a few hours and 135 years. The median of these data had a value of 129 days and coincides very well with the average flow time from real bank filtration locations. All data pairs are stored in a Microsoft Access Data Base.

The occurrence and concentration of pharmaceutical compounds in groundwater well depends on the advective transport of the substance and on the reactions along the flow path. The aim of this study was to calculate a value for PEC_{GW} that does not depend on site-specific characteristics. Therefore, all aspects regarding spatial variability within the aquifer (heterogeneity, layers, etc.) have been neglected, as they only refer to specific sites. Additionally, knowledge on transport relevant characteristics of the compounds is limited to certain values that have to be delivered in the course of the environmental risk assessment. These parameters are K_{OC} , K_d (Henry isotherm) and sometimes also K_f (Freundlich isotherme) determined at different pH values and in different soil materials as well as DT_{50} values for aerobic and anaerobic conditions. Using these parameters, sorption and elimination processes can be described quite well.

Based on the residence time the concentration of pharmaceutical compounds at the extraction well was calculated by including transport parameters sorption and degradation. In case of sorption, linear sorption isotherms K_d are used to calculate the retardation. Retardation leads to increased residence times of the compounds compared to the residence time of the groundwater. The K_{OC} is used as suggested in the EMEA guideline (2006) where no entry of compounds via bank filtration is considered for a $K_{OC} > 10.000$ mL/g.

Furthermore, values for the Disappearance Time for 50 % (DT_{50}) of the compound are provided during the application process for medicinal products. As this is the only indication for degradation of a compound we took this data on elimination and regarded the DT_{50} to calculate a degradation factor. With this degradation factor and residence time of the compound in groundwater the final concentration of the pharmaceutical compound in groundwater is calculated analytically applying the first order decay equation. Linear sorption and first order degradation can be calculated quite easily and flow conditions are assumed steady-state. Therefore, it was preferred not to incorporate sorption and degradation into a transport model. Sorption and degradation were calculated analytically based on the previously modeled values for the residence time and based on the initial concentration as provided by the PEC_{SW} . The advantage of this approach is that sorption and degradation parameters can be entered as they are.

The final task was to define the so-called “realistic worst case” for PEC_{GW} calculation. Therefore, the groundwater flow times were analyzed statistically with a focus on fast flow times indicating early arrival and little time for elimination. We decided to choose the 20 % percentile as the “realistic worst case” which means a groundwater flow time of 5 days between the surface water and the groundwater well. For comparison the 5 % percentile (0.15 days) as “worst case” and the median (110 days) as “median case” are also reported.

The results of the groundwater model are available in a database. These data are combined with calculations on sorption and degradation and can be used via a user controlled query mask called SiMBaFi (Simulation Model Bank Filtration). This interface offers possibilities for an input of data on the pharmaceutical compounds and calculates concentrations for the above-mentioned cases. Additionally, individual calculations can be performed with flow times retrieved from the database.

9 Literaturverzeichnis

Das Literaturverzeichnis umfasst sowohl die für den vorliegenden Bericht als auch die innerhalb der Anlagen zum Verständnis erforderlichen Quellen.

- Ackerman, D.J., Rattray, G.W., Rousseau, J.P., Davis, L.C., Orr, B.R. (2006): A Conceptual Model of Ground-Water Flow in the Eastern Snake River Plain Aquifer at the Idaho National Laboratory and Vicinity with Implications for Contaminant Transport; U.S. Geological Survey.
- Adam, C., Gläßler, W., Hölting, B. (2000): Hydrogeologisches Wörterbuch. 311 S.; Stuttgart: Enke.
- Andreozzi, R., Raffaele, M. und Nicklas, P. (2003): Pharmaceuticals in STP effluents and their solar photodegradation in aquatic environment. *Chemosphere* 50, Nr. 10, S. 1319-1330.
- AQUA3D : http://www.scisoftware.com/environmental_software/product_info.php?products_id=31.
- ARGE ELBE (2003): Arzneistoffe in Elbe und Saale. Arbeitsgemeinschaft zur Reinhaltung der Elbe. URL: <http://www.arge-elbe.de/wge/Download/Berichte/03Arzn.pdf>.
- Ashton, D., Hilton, M. und Thomas, K. V. (2004): Investigating the environmental transport of human pharmaceuticals to streams in the United Kingdom. *Science of the Total Environment* 333, Nr. 1-3, S. 167-184.
- ASM: Kinzelbach, W.; Rausch, R. (1993): ASM, Aquifer-Simulations-Modell, Programmdokumentation, April 1993, Universität Heidelberg, Stuttgart.
- Barnes, K. K., Christenson, S. C., Kolpin, D. W., Focazio, M. J., Furlong, E. T., Zaugg, Meyer, M. T. und Barber, L. B. (2004): Pharmaceuticals and other organic waste water contaminants within a leachate plume downgradient of a municipal landfill. *Ground Water Monitoring & Remediation* 24, Nr. 2, S. 119-126.
- Bear, J., Verruijt, A. (1992): Modeling Groundwater Flow and Pollution. 414 S., D. Reider Publi. Comp., Dordrecht.
- Beims, U. (1997): Materialien zur Altlastenbehandlung - Simulation von Grundwasserströmungs- und Schadstofftransportprozessen in Lockergesteinsgrundwasserleitern im Rahmen der Altlastenbehandlung. Institut für Forschung und Weiterbildung in der Umwelttechnik Dresden.
- Benotti, M.J., Fisher, S.C., Terracciano, S.A. (2006): Occurrence of Pharmaceuticals in Shallow Ground Water of Suffolk County, New York, 2002-2005. U.S. Geological Survey.
- BLAC Bund/Länderausschuss für Chemikaliensicherheit (1999): Arzneimittel in der Umwelt Konzept für ein Untersuchungsprogramm. Bericht an die 53. Umweltministerkonferenz.
- BLAC Bund/Länderausschuss für Chemikaliensicherheit (2003): Arzneimittel in der Umwelt Auswertung der Untersuchungsergebnisse. Bericht an die 61. UM-Konferenz. Institut für Hygiene und Umwelt, <http://hh.hamburg.de/stadt/Aktuell/behoerden/bsg/hygiene-umwelt/umwelt/chemikalien/arznei03-pdf.property=source.pdf>.
- Bloem, D., Jekel, M. (2006): Rolle des Redoxmilieus für die Aufbereitungswirkung der Uferfiltration. Abschlussbericht BMBF-Projekt 02WT0280 (Teilprojekt B3 im BMBF-Projektverbund: Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und entsorgung, Teil 1: Trinkwasser).
- Boreen, A. L., Arnold, W. A. und McNeill, K. (2003): Photodegradation of pharmaceuticals in the aquatic environment: A review. *Aquatic Sciences* 65, S. 320-341.
- Bound, J.P., Voulvoulis, N. (2005): Household Disposal of Pharmaceuticals as a Pathway for Aquatic Contamination in the United Kingdom. *Environ. Health Perspect.* 113, 1705-1711.
- Bourg, A.C.M., Darmendrail, D., Ricour, J. (1989): Geochemical Filtration of Riverbank and Migration of Heavy Metals Between the Defile River and the Ansereuilles Alluvion-Chalk Aquifer (Nord, France). *Geoderma* 44, 229-244.
- Buser, H-R. Poiger, T., Müller, M.D. (1999): Occurrence and Environmental Behavior of the Chiral Pharmaceutical Drug Ibuprofen in Surface Waters and in Wastewater. *Environ. Sci. Tech.* 33, 2529-2535.
- Carballa, M., Omil, F., Lema, J.M., Llompart, M., García, C., Rodríguez, I., Gómez, M., Ternes, T. (2005): Behaviour of pharmaceuticals and personal care products in a sewage treatment plant of northwest Spain. *Water Sci. Tech.* 52, 29-35.
- Chen, Z., McTernan, W.F. (1992): Multi-substrate, multi-option groundwater transport model. *J. Contam. Hydrol.* 11, 215-244.
- Clara, M., Strenn, B., Kreuzinger, N. (2004): Carbamazepine as a possible anthropogenic marker in the aquatic environment: investigations on the behaviour of Carbamazepine in wastewater treatment and during groundwater infiltration. *Water Research* 38, 947-954.
- Cordy, G. E., Duran, N. L., Bouwer, H., Rice, R. C., Furlong, E. T., Zaugg, S. D., Meyer, M. T., Barber, L. B. und Kolpin, D. W. (2004): Do pharmaceuticals, pathogens and other organic waste water compounds persist when waste water is used for recharge? *Ground Water Monitoring & Remediation* 24, Nr. 2, S. 58-69.
- Daughton, C., G., Ternes, T., A. (1999): Pharmaceuticals and personal care products in the environment: Agents of subtle change? *Environ Health Perspect* 107 (suppl 6), S. 907-938.
- Debska, J., Kot-Wasik, A. und Namiesnik, J. (2004): Fate and analysis of pharmaceuticals residues in the aquatic environment. *Critical Reviews in Analytical Chemistry* 34, Nr. 1, S. 51-67.
- Deng, A., Himmelsbach, M., Zhu, Q.-Z., Frey, S., Sengl, M., Buchberger, W., Niessner, R. und Knopp, D. (2003): Residue analysis of the pharmaceutical diclofenac in different water types using ELISA and GC-MS. *Environmental Science and Technology* 37, S. 3422-3429.
- Dillon, P.J., Miller, M., Fallowfield, H., Hutson, J. (2002): The potential of riverbank filtration for drinking water supplies in relation to microcystin removal in brackish aquifers. *J. Hydrol.* 266, 209-221.

- Drewes, J. E., Heberer, T., Rauch, T. und Reddersen, K. (2003): Fate of pharmaceuticals during ground water recharge. *Ground Water Monitoring & Remediation* 23, Nr. 3, S. 64-72.
- Eckert, P. & Imscher, R (2006): Over 130 years of experience with Riverbank Filtration in Düsseldorf, Germany. *J Water SRT - Aqua* 55, 283-291.
- Engelmann, F. I., Luck, P. (2005): Arbeitsbericht. Uferfiltration unter Viskositätseinfluss und Förderung von Grundwasser auf den WW- Galerien Wannsee und Wiesenleitung, Transportrechnung für Antibiotika sowie Möglichkeiten und Grenzen von 3D-Stömungsmodellverein-fachungen. Im Rahmen des Verbundvorhabens Uferfiltration und Grundwasseranreicherung NASRI Mai 2002 - April 2005; unveröff.
- Eriksson, E. (1986): Critical loads for acid deposition on groundwater.- In: Nilsson, J. (Hrsg.): Critical loads for sulphur and nitrogen.- Nordisk Ministerrad, Miljö Rapp. 11, S. 71-86, Stockholm.
- EU (1991): Council directive concerning the placing of plant protection products on the market.- Direction General, No. 91/414/EEC, Brüssel.
- EU (1995): Assessment of potential risks to the environment posed by medical products for human use (excluding products containing live genetically modified organisms).- Direction General III, 5504/94 dr. 6, Vs. 4, Brüssel.
- European Medicines Agency EMEA (2006): Pre-Authorisation Evaluation of Medicines for Human Use, Doc. Ref. EMEA/CHMP/SWP/4447/00, London.
- Fanck, B., Mechlinski, A., Richter, C., Adam, M., Heberer, Th., Jekel, M. (2005): B03 Natural and Artificial Systems for Recharge and Infiltration (NASRI): Auftreten und Verhalten von Arzneimittelrückständen und anderer polarer Kontaminanten in der Uferfiltration. Mai 2002 bis April 2005 (unveröffentlicht).
- FEFLOW: <http://www.wasy.de/deutsch/produkte/feflow/index.html>.
- Feldmann, D.F. (2005): Modellberechnungen zum Verhalten und Verbleib von Arzneimittelrückständen im Krankenhausabwasser und Beurteilungsmöglichkeiten ihres ökotoxikologischen Gefährdungspotentials. Diss. TU Berlin; URL: http://opus.kobv.de/tuberlin/volltexte/2005/1059/pdf/feldmann_dirk.pdf.
- Ferrari, B., Mons, R., Vollat, B., Fraysse, B., Paxeus, N., Lo Giudice, R., Pollio, A. und Garric, J. (2004): Environmental risk assessment of six human pharmaceuticals: Are the current environmental risk assessment procedures sufficient for the protection of the aquatic environment? *Environmental Toxicology and Chemistry* 23, Nr. 5, S. 1344-1354.
- FLONET/TRANS: <http://www.data-surge.com/datasurgescorpo/trans.htm> .
- Flöser, V. (1998): Ausgewählte Aspekte zu Krankenhausabwasser - Expertengespräch in München.- Korrespondenz Abwasser 45, S. 2225-2229, Hennef.
- Fritz, B. (2003): Uferfiltration und Wasseranreicherung. Kompetenz-Zentrum Wasser Berlin GmbH; URL: http://www.wwt-online.de/_fachinfo/artikel/pdf/WWT-2003-10-10.pdf.
- Genske, D. (1996): Schadstoffausbreitung in geklüfteten Medien - Alternativen.- 150 S., (Sven von Loga) Köln.
- GFLOW: Grundwasserströmungs- und Transportmodell. http://www.scisoftware.com/environmental_software/detailed_description.php?products_id=92.
- Goldschneider, A.A., Haralampides, K.A., MacQuarrie, K.T.B. (2007): River sediment and flow characteristics near a bank filtration water supply: Implications for riverbed clogging. *J. Hydrol.* 344, 55-69.
- Greskowiak, J.J. (2006): Reactive transport processes in artificially recharged aquifers -Field and modelling studies.- HU Berlin. URL: http://deposit.d-nb.de/cgi-bin/dokserv?idn=983305501&dok_var=d1&dok_ext=pdf&filename=983305501.pdf.
- Grischek, T., Neitzel, P., Andrusch, T., Lagois, U., Nestler, W. (1997): Verhalten von EDTA bei der Untergrundpassage und Ausweisung von Infiltrationszonen an der Elbe. *Vom Wasser* 89, S. 261-282.
- Gross, B., Montgomery-Brown, J., Naumann, A. und Reinhard, M. (2004): Occurrence and fate of pharmaceuticals and alkyphenol ethoxylate meabolites in an effluent-dominated river and wetland. *Environmental Toxicology and Chemistry* 23, Nr. 9, S. 2074-2083.
- Grünheid S., Amy G. & Jekel M. (2005a) Removal of bulk dissolved organic carbon (DOC) and trace organic compounds by bank filtration and artificial recharge. *Water Research* 39, 3219-3228.
- Grünheid, St., Kutz, K., Mucha, M., Jacob, C., Hübner, U., Jekel, M. (2005b): A13 Natural and Artificial Systems for Recharge and Infiltration (NASRI): Organische Substanzen in der Uferfiltration und künstlichen Grundwasseranreicherung - Prozessuntersuchungen (a). Juli 2002 bis Juni 2005. Unveröffentlicht.
- Gurr, C. J. und Reinhard, M. (2006): Harnessing natural attenuation of pharmaceuticals and hormones in rivers. *Environmental Science & Technology* (40), Nr. 9, S. 2872-2876.
- Halling-Sørensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P.F., Ingerslev, F., Holten Lützhøft, H.C., Jørgensen, S.E. (1998): Occurrence, Fate and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment - A Review. *Chemosphere*, Vol. 36, 357-393.
- Hamer, K. u. R. Sieger (1994): Anwendung des Modells CoTAM zur Simulation von Stofftransport und geochemischen Reaktionen.
- Hanisch, B., Abbas, B., Kratz, W., Schüürmann, G. (2004): Humanarzneimittel im aquatischen Ökosystem - Bewertungsansatz zur Abschätzung des ökotoxikologischen Risikos von Arzneimittelrückständen. *UWSF Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung*, 16(4), 223-238.
- Hari, A. C., Paruchi, R. A., Sabatini, D. A. und Kibbey, T. C. G. (2005): Effects of pH and cationic and nonionic surfactants on the adsorption of pharmaceuticals to a natural aquifer material. *Environ. Science & Technology*.

- Heberer T., Mechlinski A., Fanck B., Knappe A., Massmann G., Pekdeger A. & Fritz B. (2004) Field studies on the fate and transport of pharmaceutical residues in bank filtration. *Ground Water Monitoring & Remediation* 24, 70-77.
- Heberer, T. (2002): Tracking persistent pharmaceutical residues from municipal sewage to drinking water. *J. Hydrol.* 266, 175-189.
- Heberer, T., Adam, M. (2004): Transport and attenuation of pharmaceutical residues during artificial groundwater replenishment. *Environmental Chemistry*, Nr. 1, S. 22-25.
- Heberer, T., Mechlinski, A., Fanck, B., Knappe, A., Massmann, G., Pekdeger, A. und Fritz, B. (2004): Field studies on the fate and transport of pharmaceutical residues in bank filtration. *Ground Water Monitoring & Remediation* 24, Nr. 2, S. 70-77.
- Heberer, T., Verstraeten, I.M., Meyer, M.T., Mechlinski, A., Reddersen, K. (2001): Occurrence and fate of pharmaceuticals during bank filtration - preliminary results from investigations in Germany and the United States.; URL: http://www.ucowr.siu.edu/updates/pdfn/V120_A2.pdf.
- Heberer, Th., Fanck, A. Mechlinski, M. Adam, M. Voigt, D. Wicke, E. Licht, S. Rögler, Th. Wollenhaupt, S. Frenzel, K. Praussa, A. Hagemann, A. Springer (2006): Verhalten und Vorkommen von Arzneimittelrückständen (unveröff. Präsentation der NASRI-Arbeitsgruppe „Drugs“).
- Heberer, Th., Massmann, G., Fanck, B., Taute, T., Dünnbier, U., (2008): Behaviour and redox sensitivity of pharmaceutical residues during bank filtration - Field-site investigations of antimicrobial residues - *Chemosphere*, 73, 451-460.
- Hesser, F. (2001): Trinkwasser aus Grundwasserleitern. *TU Contact* Nr. 8, Juni 2001, S. 38-41 (Universität Clausthal-Zellerfeld), <http://www.tu-clausthal.de/presse/tucontact/2001/Juni/tuc1/23.pdf>.
- Hinkle, S.R., Weick, R.J., Johnson, J.M., Cahill, J.D., Smith, S.G., Rich, B.J. (2005): Organic Wastewater Compounds, Pharmaceuticals, and Coliphage in Ground Water Receiving Discharge from Onsite Wastewater Treatment Systems near La Pine, Oregon: Occurrence and Implications for Transport. U.S. Geological Survey; URL: http://pubs.usgs.gov/sir/2005/5055/pdf/sir2005-5055_ver1.1.pdf.
- Hiscock, K.M., Grischek, T. (2002): Attenuation of groundwater pollution by bank filtration. *J. Hydrol.* 266, 139-144, Elsevier.
- HLUG (2005): Arzneimittelbericht Südhessen 1996-2000 - Hydrologie in Hessen. Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie.
- Hölting B., (1984): Hydrogeologie 2. Auflage.- Enke-Verlag, Stuttgart.
- Hölting, B., Coldewey, W.G. (2009): Hydrogeologie 7. Auflage.- Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg.
- Horner, C., Holzbecher, E., Nützman, G. (2007): A coupled transport and reaction model for long column experiments simulating bank filtration. *Hydrol. Process.* 21, 1015-1025.
- Huber, M. M., Canonica, S., Park, G.-Y. und von Gunten, U. (2003): Oxidation of pharmaceuticals during ozonation and advanced oxidation processes, *Environmental Science & Technology* (37), Nr. 5, S. 1016-1024.
- Hund-Göschel, S., Schäfer, W., Böttcher, K., Ries, J., Bender, K. (2007): Simulation des Nitrattransports im Grundwassereinzugsgebiet Mannheim-Rheinau. *Grundwasser* 12, 37-47.
- HYDOR (2004): Hydrologische Berechnungen zum Nachweis des Grundwasserdargebotes für die Wasserwerke Tegel, Spandau, Tiefwerder, Kladow und Beelitzhof der Berliner Wasserbetriebe.- Gutachten im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin (unveröff.).
- HYDOR (2007): Hydrologische Berechnungen zum Nachweis des Grundwasserdargebotes für die Wasserwerke Friedrichshagen, Altglienicke, Johannisthal, Wuhlheide Kaulsdorf und Buch der Berliner Wasserbetriebe.- Gutachten im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin (unveröff.).
- HYDROGEOCHEM:http://www.scisoftware.com/environmental_software/detailed_description.php?products_id=44#intro.
- HYDRUS: http://www.pc-progress.cz/Fr_Hydrus.htm.
- Jaeger, R., Liedl, R. (2000): Prognose der Sorptionskinetik organischer Schadstoffe in heterogenem Aquifermaterial. *Grundwasser* 5, 57-66.
- Jekel, M. (2006): NASRI 3, Organic Substances in Bank filtration and Groundwater Recharge-Process Studies (unveröff.).
- Jekel, M. & Th. Heberer (2006): NASRI 3, Occurrence and fate of drug residues and related polar contaminants during bank filtration and artificial recharge (unveröff.).
- Jones, A. H., Voulvoulis, N. und Lester, J. N. (2004): Potential ecological and human risks associated with the presence of pharmaceutically active compounds in the aquatic environment. *Critical Reviews in Toxicology* 34, Nr. 4, S. 335-350.
- Karickhoff, S.W., Brown, D.S. & Scott, T.A. (1979): Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments.- *Wat. Res.* 13, S. 241-248, Amsterdam.
- Kelly, B.P., Rydlund, P.H. (2006) Water-Quality Changes Caused by Riverbank Filtration between the Missouri River and Three Pumping Wells of the Independence, Missouri, Well Field 2003-05; U.S. Geological Survey. URL: <http://pubs.usgs.gov/sir/2006/5174/pdf/sir2006-5174.pdf>.
- Keutz, E. von & Jekat, F.-W. (1998): Toxikologische Untersuchungen im Rahmen der Zulassung von Human-Arzneimitteln.- In: Hessische Landesanstalt für Umwelt (Hrsg.): Arzneimittel in Gewässern - Risiko für Mensch, Tier und Umwelt?- S. 65-69, Tagungsber. Fachtag. 1998, Wiesbaden.

- Kim, S-B., Corapcioglu, M.Y. (2002): Contaminant transport in riverbank filtration in the presence of dissolved organic matter and bacteria: a kinetic approach. *J. Hydrol.* 266, 269-283.
- Knacker, T. & Römbke, J. (2000): Ecotoxicological Evaluation of pharmaceuticals.- In: Keith, L.H., Needham, L.L. & Jones-Lepp, T.L. (Hrsg.): Issues in the analysis of environmental endocrine disruptors.- *Proc. ACS Symp.* 40 (1), S. 123-125, Washington, D.C.
- KOMPMOD: Universität Hannover, http://eco.wiz.uni-kassel.de/model_db/mdb/kompmod.html Yingping, He, 1994
- Koschorreck, J. (2005): Umweltsicherheit von Arzneimitteln - ein lange unterschätztes Problem. Kommentar des Umweltbundesamtes Berlin zum Diskussionspapier CPMP/SWP 4447/00.
- Kreuzinger, N., Clara, M., Strenn, B., Vogel, B. (2004): Investigation on the behaviour of selected pharmaceuticals in the groundwater after infiltration of treated wastewater. *Water Sci. Tech.* 50, 221-228, IWA Publishing.
- Kuhlmann, B. (1997): Verhalten von organischen Spurenstoffen bei der Uferfiltration und der Untergrundpassage unter wechselnden Redoxbedingungen. Veröffentlichungen des Instituts für Wasserforschung GmbH Dortmund und der Dortmunder Energie- und Wasserversorgung GmbH, Bd. 53.
- Kühn, W.; Müller, U. (Editor) (2006): Exportorientierte F&E auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung Teil I: Trinkwasser. Band 2. Leitfaden. Technologiezentrum Wasser Karlsruhe, ISBN 3-00-015478-7.
- KWB (2006): Natural and Artificial Systems for Recharge and Infiltration.- Kompetenzzentrum Wasser Berlin, Final Report, funded by Berliner Wasserbetriebe und Veolia Wasser, unveröff.
- Lam, M. W., Young, C. J., Brain, R. A., Johnson, D. J., Hanson, M. A., Wilson, C. J., Richards, S. M., Solomon, K. R. und Mabury, S. A. (2004): Aquatic persistence of eight pharmaceuticals in a microcosm study. *Environmental Toxicology and Chemistry* 23, Nr. 6, S. 1431-1440.
- Lege, T., Kolditz, O., Zielke, W., (1996): Handbuch zur Erkundung des Untergrundes von Deponien und Altlasten: Strömungs- und Transportmodellierung: Bd 2; 418 S., Springer, Berlin.
- Lenk, S., Remmler, F., Skark, C., Schulte-Ebbert, U. (2006): Technische Konzepte und abgestimmte Betriebsweisen zur optimalen Anpassung der Uferfiltration an lokale Randbedingungen - Abschlußbericht zum Teilprojekt B1 im BMBF-Forschungsvorhaben Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung Teil 1: Trinkwasser. Institut für Wasserforschung GmbH Dortmund.
- Letzel, M., Kaul, U., Forstner, S., Schüssler, W., Metzner, G., Knopp, D., Letzel, Th. (2007): Arzneimittel im Gewässer - Bilanzierung der Belastung am Beispiel des Schmerzmittels Diclofenac. <http://www.oekochemie.tu-bs.de/ak-umweltchemie/mblatt/2007/b1h107.pdf>.
- Lewandowski, J., Leitschuh, S. & Koß, V. (1997): Schadstoffe im Boden: Eine Einführung in Analytik und Bewertung.- 339 S., (Springer) Berlin.
- LFU Baden-Württemberg (2002): Pharmaka und Hormone in der aquatischen Umwelt. Projekt-Nr. U33-00.01. Teilprojekt: Vorkommen von Pharmaka und Hormonen in Grund-, Oberflächenwässern und Böden in Baden-Württemberg. Projektleiter: Brauch, H.-J., Bearbeiter: Gabriel, S., Hüther-Windbiel, U., Leclerc, N., Mallat, E., Metzinger, M., Sacher, F., Stretz, A., Wenz, M.; LFU Baden-Württemberg und DVGW-Technologiezentrum Wasser, Karlsruhe. 01.06.2000-30.06.2002.
- LFU Bayern (2004): Arzneimittel in der Umwelt. LFW F+E Vorhaben 2000-2002. Kennnummer 73e04010049 Schlussbericht. Materialien Nr. 114 (August 2004).
- LFUG Sachsen (2001): Materialien zur Altlastenbehandlung 2001 - Simulation von Schadstoffreaktionen in Altlasten (ohne Berücksichtigung der Grundwasserströmung außerhalb der Altlast). Artikel-Nr. L III-2/19; URL: http://www.umwelt.sachsen.de/de/wu/umwelt/lfug/lfug-internet/salfaweb/salfaweb-nt/salfaweb-nt/print/mza1_01.pdf.
- LFUG Sachsen (2005): Arzneimittelwirkstoffe in Abwassereinleitungen und Gewässern in Sachsen. URL: http://www.umwelt.sachsen.de/de/wu/umwelt/lfug/lfug-internet/documents/Arzneimittel_Bericht.pdf.
- Lindquist, N., Tuhkanen, T. und Kronberg, L. (2005): Occurance of acidic pharmaceuticals in raw and treated sewages and in receiving waters. *Water Research*, Nr. 39, S. 2219-2228.
- Löffler, D., Römbke, J., Meller, M. und Ternes, T. A. (2005): Environmental fate of pharmaceuticals in water/sediment systems. *Environmental Science & Technology*, Nr. 39, S. 5209-5218.
- LUA Brandenburg (1999): Humanarzneimittel in der Umwelt - Erhebung von Humanarzneimittelmengen im Land Brandenburg 1999. Landesumweltamt Brandenburg Band 25, Potsdam.
- Mandle, R.J. (2002): Groundwater Modelling Guidance. Michigan Department of Environmental Quality; URL: <http://www.deq.state.mi.us/documents/deq-wd-gwguidance.pdf>.
- Marschke, M., C. Schlinke, K. Wichmann (2005): Einfluss von Randbedingungen auf die nutzbare Reinigungsleistung einer optimierten Uferfiltration. Abschlussbericht BMBF-Projekt 02WT0275 (Teilprojekt B5 im BMBF-Projektverbund: Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung, Teil 1: Trinkwasser).
- Massmann, G., Dünbier, U., Heberer, Th., Taute, T., (2008): Behaviour and redox sensitivity of pharmaceutical residues during bank filtration - Investigation of residues of phenazone-type analgesics - *Chemosphere*, 71, 1476-1485.
- Massmann, G., Heberer, T., Grützmaker, G., Dünbier, U., Knappe, A., Meyer, H., Mechlinski, A., Pekdeger, A. (2007a): Trinkwassergewinnung in urbanen Räumen - Erkenntnisse zur Uferfiltration in Berlin. *Grundwasser* 12, 232-245, Springer Verlag, Heidelberg.
- Massmann, G., Sültenfuß, J., Dünbier, U., Knappe, A., Taute, T., Pekdeger, A. (2007b): Investigation of groundwater residence times during bank filtration in Berlin: a multi-tracer approach. *Hydrol. Process* 22 (6), 788-801.

- Massmann, G., Nogeitzig, A., Taute, T., Pekdeger, A. (2008): Seasonal and spatial distribution of redox zones during lake bank filtration in Berlin, Germany. *Environmental Geology* 54, S.53-65.
- Masters, R. W., Verstraeten, I. M. und Heberer, T. (2004): Fate and transport of pharmaceuticals and endocrine disrupting compounds during ground water recharge. *Ground Water Monitoring&Remediation* 24, Nr. 2, 54-57.
- Matamoros, V., Garcia, J. und Bayona, J. M. (2005): Behavior of selected pharmaceuticals in subsurface flow constructed wetlands: A pilot-scale study. *Environmental Science & Technology* (39), S. 5449-5454.
- Mattheß, G. & Pekdeger, A. (1985): Survival and transport of pathogenic bacteria and viruses in ground water.- In: Ward, C.H., Giger, W. & McCarty, P.L. (Hrsg.): *Ground water quality*.- S. 472-482, (Wiley) New York.
- Mattheß, G. & Ubell, K. (1983): *Allgemeine Hydrogeologie*. - Lehrbuch der Hydrogeologie 1, 438 S., (Bornträger) Berlin - Stuttgart.
- Mattheß, G. (1994): *Die Beschaffenheit des Grundwassers*. - Lehrbuch der Hydrogeologie 2, 499 S., (Bornträger) Berlin - Stuttgart.
- Mattheß, G., Bedbur, E., Dunkelberg, H., Haberer, K., Hurle, K., Frimmel, F.H., Kurz, R., Klotz, D., Müller-Wegener, U., Pekdeger, A., Pestemer, W., & Scheunert, I. (1997): *Transport- und Abbauverhalten von Pflanzenschutzmitteln im Sicker- und Grundwasser*.- Schr. R. Ver. Wasser-, Boden- u. Lufthyg. 100, 439 S., (Fischer) Stuttgart, Jena, New York.
- Mersmann, P. (2003): *Transport- und Sorptionsverhalten der Arzneimittelwirkstoffe Carbamazepin, Clofibrinsäure, Diclofenac, Ibuprofen und Propyphenazon in der wassergesättigten und -ungesättigten Zone*. Diss. TU Berlin; URL: http://edocs.tu-berlin.de/diss/2003/mersmann_petra.pdf.
- Mersmann, P., Scheytt, T., Heberer, T. (2002): Säulenversuche zum Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen in der wassergesättigten Zone. *Acta hydrochim. hydrobiol.* 30, 275-284, Wiley-VCH, Weinheim.
- MIKE SHE: <http://www.dhigroup.com/Software/WaterResources/MIKESHE.aspx>.
- MODTECH: http://www.scisoftware.com/environmental_software/detailed_description.php?products_id=212.
- MT3D/MT3DMS: USGS Programm, The ECOSIM groundwater quality models.
- OECD, Organization for Economic Co-operation and Development (1995): *OECD Guideline for the testing of chemicals 107 - Partition Coefficient (n-octanol/water): Shake Flask Method*, Paris.
- OECD, Organization for Economic Co-operation and Development (1992): *OECD Guideline for the testing of chemicals 302 A, B, C: Inherent Biodegradability*, Paris.
- OECD, Organization for Economic Co-operation and Development (1992): *OECD Guideline 301 A-F: Ready Biodegradability*, Paris.
- OECD, Organization for Economic Co-operation and Development (2002): *OECD Guideline for the testing of chemicals 308 - Aerobic and Anaerobic Transformation in Aquatic Sediment Systems*. Paris.
- OECD, Organization for Economic Co-operation and Development (2000): *OECD Guideline for the testing of chemicals 106 - Adsorption/Desorption Using a Batch Equilibrium Method*. Paris.
- Oppel, J., Broll, G., Löffler, D., Meller, M., Römbke, J., Ternes; Th. (2004): Leaching behaviour of pharmaceuticals in soil-testing-systems: a part of an environmental risk assessment for groundwater protection. *Science of the Total Environment* 328, S. 265-273.
- Packer, J. L., Werner, J. J., Latch, D. E., McNeill, K. und Arnold, W. A. (2003): Photochemical fate of pharmaceuticals in the environment: Naproxen, diclofenac, clofibrin acid and ibuprofen. *Aquatic Sciences* 65, S. 342-351.
- Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J. (1999), *User's guide to PHREEQC (Version2)*. A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259, 310 p.
- Paxeus, N. (2004): Removal of selected non-steroidal anti-inflammatory drugs (NSAIDs), gemfibrozil, carbamazepine, β -blockers, trimethoprim and triclosan in conventional wastewater treatment plants in five EU countries and their discharge to the aquatic environment. *Water Science and Technology* 50, Nr. 5, S. 253-260.
- Pekdeger A. (2006): *NASRI 1 - Hydrogeological-hydrogeochemical processes during bank filtration and ground water recharge using a multitracer approach (unveröff.)*.
- PHREEQC: http://wwwbrr.cr.usgs.gov/projects/GWC_coupled/phreeqc/index.html .
- PMWIN: http://www.ifu.ethz.ch/publications/software/pmwin/index_EN .
- Prechtel, A., Bitterlich, S., Radu, F., Knabner, P. (2006): *Natural Attenuation: hohe Anforderungen an die Modellsimulation*. Teilprojekt 6 des BayFoNA: Modellierung. *Grundwasser* 11, 217-225.
- Preuß, G., Willme, U., Zullei-Seibert, N. (2001): Verhalten ausgewählter Arzneimittel bei der künstlichen Grundwasseranreicherung - Eliminierung und Effekte auf die mikrobielle Besiedlung. *Acta hydrochim. hydrobiol.* 29, 269-277.
- Preuß, G., Zullei-Seibert, N. (2002): Eliminierungsverhalten von Isoproturon, Bentazon und Sulfonylharnstoffen bei der künstlichen Grundwasseranreicherung. *Energie Wasser Praxis*, 53 (11), 44-45.
- Ray, C., Schubert, J., Linsky, R. & Melin, G. (2002): *Introduction*.- In: Ray, C., Melin, G. & Linsky, R. (Eds.): *Riverbank Filtration - Improving Source-Water Quality*, 175-228, Kluwer Dordrecht.
- Reddersen, K. (2004): *Das Verhalten von Arzneimittelrückständen im Wasserkreislauf Berlins*. Diss. TU Berlin; URL: http://edocs.tu-berlin.de/diss/2004/reddersen_kirsten.pdf.
- RIBASIM Vers. 6.3: <http://www.wldelft.nl/rnd/intro/topic/ribasim-63/index.html>.
- Richardson, M.L. & Bowron, J.M. (1985): *The fate of pharmaceutical chemicals in the aquatic environment*. Review.- *J. Pharm. Pharmacol.* 37, S. 1-12, Amsterdam.

- Roberts, P.H., Thomas, K. V. (2006): The occurrence of selected pharmaceuticals in wastewater effluent and surface waters of the lower Tyne catchment. *Sci. Total Environ.* 356, 143-153.
- Rügner, H., Kleinedam, S., Grathwohl P. (1997): Sorptionsverhalten organischer Schadstoffe in heterogenem Aquifermaterial am Beispiel des Phenanthrens. *Grundwasser* 2, 133-138.
- Sacher, F., Brauch, H.-J. (2004): Emerging contaminants - Welche Stoffe sind relevant für die Wasserversorgung? *AWBR-Jahresbericht 2003* 35, 145-160.
- Sacher, F., Brauch, H.-J., Kühn, W. (2005): Iod-haltige Röntgenkontrastmittel in der Umwelt - Preis des medizinischen Fortschritts? *gwa* 85 (10), 787-795.
- Sacher, F., Gabriel, S., Metzinger, M., Stretz, A., Wenz, M., Lange, F. Th., Brauch, H.-J., Blankenhorn, I. (2002): Arzneimittelwirkstoffe im Grundwasser - Ergebnisse eines Monitoring-Programms in Baden-Württemberg. *Vom Wasser* 99, 183-196.
- Sacher, F., Lochow, E., Bethmann, D., Brauch, H.J. (1998): Vorkommen von Arzneimittelwirkstoffen in Oberflächengewässern, *Vom Wasser*, 90, S. 233-243.
- Sacher, F., Metzinger, M., Brauch, H.-J. (2001): Arzneimittelwirkstoffe im Rhein. *Umwelt Focus* 5, 39-41.
- Salomon, M. (2005): Arzneimittel in der aquatischen Umwelt. *Zeitung für Umweltchemie und Ökotoxikologie* (17), Nr. 1, S. 50-53.
- Scheytt, T. (2002): Arzneimittel im Grundwasser - Eintrag, Abbau und Transport. - Habilitationsschrift, 148 S., Technische Universität Berlin, Berlin.
- Scheytt, T., Mersmann, P., Lindstädt, R. und Heberer, T. (2005): Determination of sorption coefficients of pharmaceutically active substances carbamazepine, diclofenac, and ibuprofen in sandy sediments. *Chemosphere* (60), Nr. 2, S. 245-253. Elsevier.
- Scheytt, T., Grams, S., Rejman-Rasinski, E., Heberer, Th. & Stan, H.-J. (2001): Pharmaceuticals in groundwater: Clofibric acid beneath sewage farms south of Berlin, Germany.- In: Daughton, C.G. & Jones-Lepp, T.L (eds.): *Pharmaceuticals and personal care products in the environment - Scientific and regulatory issues.- ACS Symposium Series 791*, 84-99, ACS/Oxford University Press.
- Scheytt, T., Mersmann P., Leidig, M., Pekdeger, A., Heberer, T. (2004): Transport of Pharmaceutically Active Compounds in Saturated Laboratory Columns. *Ground Water* (42), Nr. 5, S. 767-773, Westerville, OH.
- Scheytt, T., Mersmann, P. und Heberer, T. (2006): Mobility of pharmaceuticals carbamazepine, diclofenac, ibuprofen, and propyphenazone in miscible-displacement experiments. *Journal of Contaminant Hydrology* (83), Nr. 1-2, S. 53-69, Elsevier.
- Scheytt, T., Mersmann, P., Lindstädt, R. und Heberer, T. (2005): 1-octanol/water partition coefficients of 5 pharmaceuticals from human medical care: Carbamazepine, clofibric acid, diclofenac, ibuprofen, and propyphenazone. *Water Air and Soil Pollution* (165), Nr. 1-3, S. 3-11, Springer.
- Scheytt, T., Mersmann, P., Rejman-Rasinski, E. & These, A. (2007): Tracing pharmaceuticals in the unsaturated zone.- *Journal of Soils and Sediments* 7 (2), 75-84, ecomed publishers.
- Schmidt, C.K. (2005): Datenbank zum Verhalten organischer Spurenstoffe bei der Uferfiltration. DVGW-Technologiezentrum Wasser (TZW), Abteilung Analytik. URL: http://hikwww1.fzk.de/ptwte/w/Export/Daten/Z_Materialien/Datenbank_Uferfiltration_Spurenstoffe.pdf
- Schmidt, C.K. (2006): Natürliche Barrieren und Effektivität der Ufer- und Langsamsandfiltration zur Entfernung organischer Spurenstoffe. *Veröffentlichungen aus dem Technologiezentrum Wasser* 30, 39-58.
- Schmidt, C.K., (2005b): Charakteristika und Bewertung des Selbstreinigungspotentials natürlicher Aufbereitungssysteme im Hinblick auf anthropogene Spurenstoffe. *Veröffentlichungen aus dem Technologiezentrum Wasser Karlsruhe* 28, 113-128.
- Schmidt, C.K., Lange, F.T., Brauch H.-J. (2006a): Ermittlung der potenziellen Reinigungsleistung der Uferfiltration hinsichtlich der Eliminierung organischer Schadstoffe unter standortspezifischen Randbedingungen. Abschlussbericht BMBF-Projekt 02WT0280 (Teilprojekt B6 im BMBF-Projektverbund: Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung, Teil 1: Trinkwasser).
- Schmidt, C.K., Lange, F.T., Brauch, H.-J. (2006b): Assessing the impact of local boundary conditions on the fate of organic micropollutants during underground passage. In Gimbel et al.: *Recent Progress in Slow Sand and Alternative Biofiltration Processes*, IWA Publishing 561-569.
- Schmidt, C.K., Lange, F.T., Brauch, H.-J., Kühn, W. (2003): Experiences with riverbank filtration and infiltration in Germany. *Proceedings International Symposium on Artificial Recharge of Groundwater*. Daejeon, Korea, 115 - 141; URL: <http://www.tzw.de/pdf/bankfiltration.pdf>.
- Schmidt, R., R. Brockmeyer (2002): Vorkommen und Verhalten von Expektorantien, Analgetika, Xylometazolin und deren Metaboliten in Gewässern und bei der Uferfiltration. *Vom Wasser* 98, 37-54.
- Schöttler, U., Zullei-Seibert, N., Remmler, F. (2004): Gewinnung und Aufbereitung von Trinkwasser aus Oberflächenwasser mit Verfahren der „künstlichen Grundwasseranreicherung“ - Stand der Technik. *Ruhrgütebericht*, Hrsg. Ruhrverband, AWWR, Essen, 127-130.
- Schubert, J. (2002): Hydraulic aspects of riverbank filtration - field studies. *J. Hydrol.* 266, 145-161.
- Schulte-Ebbert, U. (2004): Künstliche Grundwasseranreicherung und Untergrundpassage. *Lehr- und Handbuch der Wasserversorgung*, 6, Hrsg. DVGW Oldenburg Industrie-Verlag München, 403-439.
- Schwarzenbach, R.P. & Giger, W. (1985): Behaviour and fate of halogenated hydrocarbons in groundwater.- In: Ward, C.H., Giger, W. & McCarty, P.L. (Hrsg.): *Ground Water Quality*.- S. 446-471, (Wiley) New York.

- Sheets, R.A., Darner, R.A., Whitteberry, B.L. (2002): Lag times of bank filtration at a well field, Cincinnati, Ohio, USA. *J. Hydrol.* 266, 162-174.
- SOLUTRANS. 3-D-Transportmodell: <http://www.fittsgeosolutions.com/solutran.htm>.
- SPRING® 2D/3D: <http://www.delta-h.de/software/spring/index.htm>.
- SRU - Sachverständigenrat für Umweltfragen (2007): Arzneimittel in der Umwelt. http://umwelt-rat.de/03stellung/download03/stellung/Stellung_Arzneimittel_in_der_Umwelt_2007.pdf.
- Stamatelatos, K., Frouda, C., Fountoulakis, M.S., Drillia, P., Kornaros, M., Lyberatos, G. (2003): Pharmaceuticals and health care products in wastewater effluents: the example of carbamazepine. *Water Sci. Tech. Water Supply* 3, 131-137.
- Stan, Th. Heberer, M. Linkerhägner (1994): Vorkommen von Clofibrinsäure im aquatischen System - Führt die therapeutische Anwendung zu einer Belastung von Oberflächen-, Grund- und Trinkwasser? - *Vom Wasser* 83, S. 57-68.
- Statistisches Bundesamt (2006): Öffentliche Wasserversorgung und Abwasserbeseitigung, Fachserie 19 Reihe 2.1-2004.-Wiesbaden;URL:<https://www-ec.destatis.de/csp/shop/sfg/bpm.html.cms.cBroker.cls?cmspath=struktur,vollanzeige.csp&ID=1019073>.
- Strauch, G., Bittkau, A., Schlosser, D., Petzold, H., Sbjeschni, A. (2005): Assessment of river bank and water protection area pollution along the Elbe and Mulde river after the flood event in August 2002. *Acta Hydroch. Hydrob.* 33(5), 418-429.
- Strauch, G., Christoph, G., Gläser, H.R., Gläser, W., Krauss, G., Wichmann, G., Möder, M., Schirmer, K., Schlosser, D., Trettin, R., Wennrich, R. (2003): Anthropogenic effects on urban water System - application of indicators. *Schriftenreihe Dt. Geol. Ges. e.V.*, H. 26, S. 82.
- Strenn, B., Clara, M., Gans, O. und Kreuzinger, N. (2004): Carbamazepine, diclofenac, ibuprofen and bezafibrate - investigations on the behaviour of selected pharmaceuticals during wastewater treatment. *Water Science and Technology* 50, Nr. 5, S. 269-276.
- Stuer-Lauridsen, F., Birkved, M., Hansen, L.P., Holten Lützhof, H.-C. & Halling-Sorensen, B. (2000): Environmental risk assessment of human pharmaceuticals in Denmark after normal therapeutic use.- In: Jorgensen, S.E. & Halling-Sorensen, B. (Hrsg.): *Drugs in the environment.- Chemosphere* 40 (2000), S. 759-765, Oxford.
- Stumm, W. & Morgan, J.J. (1996): *Aquatic chemistry.- 1022 S.*, (Wiley) New York.
- SVFlux2D/3D: http://www.scisoftware.com/environmental_software/product_info.php?_id=97&sessid=98de2d96244bd37ba870b820cabbf326 products
- Taxe-Wuersch, A., De Alencastro, L. F., Grandjean, D. und Tarradellas, J. (2005): Occurrence of several acidic drugs in sewage treatment plants in Switzerland and risk assessment. *Water Research*, Nr. 39, S. 1761-1772.
- Ternes, Th. A., Meisenheimer, M., McDowell, D., Sacher, F., Brauch, H.-J., Haist-Gulde, B., Preuss, G., Willme, U., Zullei-Seibert, N. (2002): Removal of pharmaceuticals during drinking water treatment. *Environ. Sci. & Technol.* 36, 3855-3863.
- Tixier, C., Singer, H. P., Oellers, S. und Müller, S. R. (2003): Occurance and fate of carbamazepine, clofibric acid, diclofenac, ibuprofen, ketoprofen and naproxen in surface waters. *Environmental Science & Technology* (37), Nr. 6, S. 1061-1068.
- Trepel, M., Kluge, W. (2002): Eignung von Modellen für die Umsetzung der EU-Wasserrahmenrichtlinie in Schleswig-Holstein - Endbericht. *Ökologie-Zentrum, Christian-Albrechts-Universität Kiel*; URL: <http://www.ecology.uni-kiel.de/~michael/wrr/report/wrrmod.pdf>.
- TRIWACO: <http://www.triwaco.com/>.
- UBA Österreich (2006): Carbamazepin und Koffein - Potenzielle Screeningparameter für Verunreinigungen des Grundwassers durch kommunales Abwasser? Umweltbundesamt Österreich REP-0061; URL: <http://www.umweltbundesamt.at/fileadmin/site/publikationen/REP0061.pdf>.
- Umweltbundesamt UBA (1996): *Umweltprobleme durch Arzneimittel - Literaturstudie.- Umweltbundesamt Texte* 60/96, 340 S., (UBA) Berlin.
- Umweltbundesamt UBA (2005): *Arzneimittel in der Umwelt - Zu Risiken und Nebenwirkungen fragen Sie das Umweltbundesamt.* URL: <http://www.umweltbundesamt.de/publikationen/fpdf-l/2976.pdf>.
- VFA Verband Forschender Arzneimittelhersteller (2006): *Arzneistoffe in der Umwelt.* http://www.vfa.de/download/SAVE/de/presse/positionen/pos_arzneistoffeumwelt.html/pos_arzneistoffeumwelt.pdf.
- Vieno, N. M., Tuhkanen, T. und Kronberg, L. (2005): Seasonal variation in the occurrence of pharmaceuticals in effluents from a sewage treatment plant and in the recipient water. *Environmental Science & Technology* (39), Nr. 21, S. 8220-8226.
- Visual MODFLOW 4.2: http://www.visual-modflow.com/vmf/product_info.php?products_id=75.
- Vogel, J.R., Verstraeten, I.M., Coplen, T.B., Furlong, E.T., Meyer, M.T., Barber, L.B. (2005): Occurrence of Selected Pharmaceutical and Non-Pharmaceutical Compounds and Stable Hydrogen and Oxygen Isotope Ratios in a Riverbank Filtration Study, Platte River, Nebraska, 2001 to 2003. U.S. Geological Survey; Volume 1: URL: http://pubs.usgs.gov/ds/2005/117/pdf/ds117_front.pdf, Volume 2: U.S. Geological Survey, Data Series 141, 92 p., Anhang: URL: http://pubs.usgs.gov/ds/2005/117/pdf/ds117_supp.pdf.
- Wett, B., Jarosch, H., Ingerle, K. (2002): Flood induced infiltration affecting a bank filtrate well at the River Enns, Austria. *J. Hydrol.* 266, 222-234.

- Weyer, P., Riley, D.: Endocrine Disruptors and Pharmaceuticals in Drinking Water. 116 S.; AWWA Research Foundation; American Water Works Association, 2001.
- WHI (2005): Visual Modflow, The Industry Standard für 3D Groundwater Flow and contaminat Transport Modeling.- Waterloo Hydrogeologic, User's Manual, Waterloo, Ontario.
- Wiegel, S., Aulinger, A., Brockmeyer, R., Harms, H., Löffler, J., Reincke, H., Schmidt, R., Stachel, B., von Tumpling, W. und Wanke, A. (2004): Pharmaceuticals in the river Elbe and its tributaries. *Chemosphere* 57, Nr. 2, S. 107-126.
- Wiese, B.U. (2006): Spatially and temporally scaled inverse hydraulic modelling, multi tracer transport modelling and interaction with geochemical processes at a highly transient bank filtration site. Diss. HU Berlin; URL: <http://edoc.hu-berlin.de/dissertationen/wiese-bernd-ulrich-2006-12-20/PDF/wiese.pdf>
- Willme, U., Gatzemann, U., Zullei-Seibert, N. (1999): Vorkommen von ausgewählten Arzneimittelwirkstoffen und hormonellen Substanzen in der Ruhr und deren Verhalten bei einer natürlichen Trinkwassergewinnung; in: Übersicht der Forschungsarbeiten 1998 - 2000. Institut für Wasserforschung GmbH Dortmund, S. 43-45.
- Worch, E., Grischek, T., Börnick, H., Eppinger, P. (2002): Laboratory tests for simulating attenuation processes of aromatic amines in riverbank filtration. *J. Hydrol.* 266, 259-268.
- Zaadnoordijk, W.J., Van Der Wal, B. (2002): Parameterization of density distribution in groundwater: Evaluation in TRIWACO-Model of Schouwen. 17th Salt Water Intrusion Meeting, Delft, The Netherlands, 6-10 May 2002.
- Ziegler, D. (2001): Untersuchungen zur nachhaltigen Wirkung der Uferfiltration im Wasserkreislauf Berlins. Diss. TU Berlin.
- Zimmerman, M.J. (2005): Occurrence of Organic Wastewater Contaminants, Pharmaceuticals, and Personal Care Products in Selected Water Supplies, Cape Cod, Massachusetts, June 2004. U.S. Geological Survey; URL: http://pubs.usgs.gov/of/2005/1206/pdf/ofr2005_1206.pdf.
- Zippel, M. (2006): Modellgestützte Bilanzierung der unterirdischen Wasserressourcen Berlins - die Grundwassersituation im weiteren Einzugsgebiet des Müggelsees.- Diss. FU Berlin; URL: <http://www.diss.fu-berlin.de/2006/668>.
- Zok, S. (1998): Stellen Arzneimittel in Gewässern ein Problem für Mensch und Umwelt dar?- In: Hessische Landesanstalt für Umwelt (Hrsg.): Arzneimittel in Gewässern - Risiko für Mensch, Tier und Umwelt?- Tagungsber. Fachtag. 1998, S. 17-19, Wiesbaden.
- Zühlke, S. (2004): Verhalten von Phenazonderivaten, Carbamazepin und estrogenen Steroiden während verschiedener Verfahren der Wasseraufbereitung. Diss. TU Berlin; URL: http://edocs.tu-berlin.de/diss/2004/zuehlke_sebastian.pdf.
- Zullei-Seibert, N., Skark, C. (2002): Gehalte an Pharmaka, Hormonen und endokrin wirksamen Substanzen in Klärschlamm, Kompost und Wirtschaftsdünger. In: KTBL Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e. V. (Hrsg.). Landwirtschaftliche Verwertung von Klärschlamm, Gülle und anderen Düngern unter Berücksichtigung des Umwelt- und Verbraucherschutzes. BMU/BMVEL Wissenschaftliche Anhörung, 25.-26.10.2001, Bonn. KTBL-Schrift 404, Landwirtschaftsverlag, Münster, 105-116.
- Zullei-Seibert, N., Willme, U., Gatzemann, U., Preuß, G. (2001): Arzneimittelwirkstoffe und hormonelle Substanzen in der mittleren Ruhr - Vorkommen und Verhalten bei der künstlichen Grundwasseranreicherung. In Ruhrverband and AWWR-Arbeitsgemeinschaft der Wasserwerke an der Ruhr (Hrsg.), Ruhrwassergüte 2000: Essen, Eigenverlag, p. 111-114.
- Zwiener, C. und Frimmel, F. H. (2003): Short-term tests with a pilot sewage plant and biofilm reactors fort he biological degradation of the pharmaceutical compounds clofibric acid, ibuprofen and diclofenac. *Science of the Total Environment* 309, Nr. 1-3, S. 201-211.

Parameter für Standorte mit Uferfiltration der im BMBF Projekt (Lenk et al. 2006) dokumentierten Standorte und Standortgruppen. Die betrachteten Uferfiltratstandorte weisen Uferfiltratanteile >50% auf.

Anlage 1.1 Beschreibung der in Standortgruppe 1 zusammengefassten Wassergewinnungsanlagen

FS	Ressource	Grundwassererschließung	Uferabstand Fa. Verweilzeit UF v_a UF	Fördermenge [1.000 m ³ /a]	spezifische Uferbelastung [m ³ /s*km]	Mächtigkeit, k_r -Wert [m/s] GWL	Hydrogeologie GWL
2	Stausee	keine WG	keine WG	keine WG	k.A.	5-6 m; $1 \cdot 10^{-1}$ - $3 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse (S, G)
21	Fluss	Vfbr.	50 m; 4,5 d; 11 m/d	k.A.	k.A.	5 m; $3,8 \cdot 10^{-3}$	kalkalpine Schotter
25	gestauter Fluss	Vfbr.; Hfbr.	100 m; 25 d; 3-5 m/d	2.500	k.A.	10-13 m; $1-2 \cdot 10^{-2}$	Niederterrassenschotter
27	Fluss	Vfbr.; Hbr.	350-900 m; 400-900 d; 1 m/d	8.720	0,10	15-25 m; $5,7 \cdot 10^{-4}$	PorenGWL (S, G)
29	Fluss	Vfbr.	150 m	4.510	0,05	$1 \cdot 10^{-3}$	PorenGWL (S, G)
30	Fluss	Hfbr.	500 m	k.A.	k.A.	12 m	PorenGWL (G)
31	Fluss	Vfbr.; Hbr.; Sl.	50 m; 1-2 d; 50-65 m/d	15.000	k.A.	6 m; $2 \cdot 10^{-2}$	Niederterrasse (G, X)
k.A.		= keine Angaben	Sl.	= Sickerleitung	S	= Sand	
FS		= Fallstudie	WG	= Wassergewinnung	G	= Kies	
Vfbr.		= Vertikalfilterbrunnen	UF	= Uferfiltrat	X	= Stein, Block	
Hfbr.		= Horizontalfilterbrunnen	GWL	= Grundwasserleiter			
Hbr.		= Heberbrunnen	Fa.	= Fassung			

Anlage 1.2 Beschreibung der in Standortgruppe 2 zusammengefassten Wassergewinnungsanlagen

FS	Ressource	Grundwassererschließung	Uferabstand Fa. Verweilzeit UF v_a UF	Fördermenge [1.000 m ³ /a]	spezifische Uferbelastung [m ³ /s*km]	Mächtigkeit, k_r -Wert [m/s] GWL	Hydrogeologie GWL
3	Fluss	Hfbr.	850 m; 1-11 m/d	1.750	k.A.	11-18 m; $0,9-8 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse (G, s; Basis-konglomerat)
5	Fluss	Vfbr.; Hfbr.	100 m; 20 d; 5 m/d	4.300-6.300	0,28	10 m; $0,5-1 \cdot 10^{-2}$	Niederterrassenschotter
6	Fluss	Vfbr.; Hfbr.	700-800 m	1.600	k.A.	12 m; $5 \cdot 10^{-4}-2 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse (S, G)
9	Fluss	Vfbr.	180 m; 40-45 d	k.A.	k.A.	5-14 m; $1 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse (S, G)
11	Fluss	Hfbr.	200-300 m	10.900	k.A.	22 m; $4 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse
12	Fluss	Vfbr.	50-60 m; 40 d; 0,7-5 m/d	k.A.	k.A.	20 m; $3 \cdot 10^{-3}$	Niederterrasse (G, s, teilweise x)
13	Fluss	Vfbr.	170 m	9.200	k.A.	15 m; $1 \cdot 10^{-2}-2 \cdot 10^{-3}$	Mittel- / Niederterrasse (S, G)
14	Fluss	Vfbr.; Hbr	20 m; 2-2,5 d; 10 m/d	10.000	0,19	13-18 m; $1 \cdot 10^{-3}-5 \cdot 10^{-2}$	Mittel- / Niederterrasse
15	Fluss	Vfbr.	200-450 m; 100-120 d; 1-3,5 m/d	15.000-42.000	0,30	20-30 m; $5 \cdot 10^{-3}$	Nieder- / Inselterrasse (S, G)
23	Fluss	Vfbr.	600 m; 365-730d	12.700	k.A.	25-30 m	Nieder- / Inselterrasse (S, G)
26	Speicherbecken	Vfbr.	10-200 m	1.280	0,05	10-30 m; $2-8 \cdot 10^{-4}$	PorenGWL (S, G)

k.A.	= keine Angaben	Sl.	= Sickerleitung	S	= Sand
FS	= Fallstudie	WG	= Wassergewinnung	G	= Kies
Vfbr.	= Vertikalfilterbrunnen	UF	= Uferfiltrat	X	= Stein, Block
Hfbr.	= Horizontalfilterbrunnen	GWL	= Grundwasserleiter		
Hbr.	= Heberbrunnen	Fa.	= Fassung		

Anlage 1.3 Beschreibung der in Standortgruppe 2 zusammengefassten Wassergewinnungsanlagen

F S	Ressource	Grundwassererschließung	Uferabstand Fa. Verweilzeit UF v_a UF	Fördermenge [1.000 m ³ /a]	spezifische Uferbelastung [m ³ /s*km]	Mächtigkeit, k_r -Wert [m/s] GWL	Hydrogeologie GWL
4	Fluss	Vfbr.	250-300 m; 60-200 d	45.000	0,16	55 m; $6 \cdot 10^{-4}$ - $2 \cdot 10^{-3}$	Altmoräne, holozäne Schotter (S, G)
10	See	Vfbr.; Hfbr.	120 m; 180 d	50.300	k.A.	30 m; $2,8 \cdot 10^{-4}$	Saale- und Weichselkaltzeit (S, G)
16	Fluss	k.A.	1200-2200 m	32.850	k.A.	48 m; $8 \cdot 10^{-4}$ - $1 \cdot 10^{-3}$	glazifluviatile Sande; holozäne Kiese
17	Fluss	k.A.	50-70 m; 50 d	131	0,01	11-22m; $2 \cdot 10^{-3}$	pleistozäne Schotter (S, G)
18	Fluss	keine WG	keine WG	k.A.	k.A.	20-50 m; $1 \cdot 10^{-3}$ - $1 \cdot 10^{-4}$	glazifluviatile Sande und Kiese
24	See	Vfbr.	100-700 m; 50-1100 d	3.000	0,10	30 m; $1 \cdot 10^{-5}$ - $1 \cdot 10^{-3}$	PorenGWL (S)
k.A.		= keine Angaben	Sl.	= Sickerleitung	S	= Sand	
FS		= Fallstudie	WG	= Wassergewinnung	G	= Kies	
Vfbr.		= Vertikalfilterbrunnen	UF	= Uferfiltrat	X	= Stein, Block	
Hfbr.		= Horizontalfilterbrunnen	GWL	= Grundwasserleiter			
Hbr.		= Heberbrunnen	Fa.	= Fassung			

Anlage 1.4 Ausgangsdatensatz aller untersuchten Standorte mit Uferfiltration

Lfd. Nr.	Ressource / Gewässer	kf-Wert [m/s]	Bemerkung Wert	Mächtigkeit GWL [m]	Bemerkung Wert
1	Neckar / gestauter Fluss	0,01000	arithm. Mittel	4,0	arithm. Mittel
2	Ruhr / Stausee Hengsen	0,01100	arithm. Mittel	5,5	arithm. Mittel
3	Rhein / Fluss	0,00440	arithm. Mittel	14,5	arithm. Mittel
4	Elbe / Fluss	0,00060	mS-Schicht	55,0	arithm. Mittel
5	Rhein / Fluss	0,00750	arithm. Mittel	10,0	arithm. Mittel
6	Rhein / Fluss	0,00125	arithm. Mittel	12,0	
7	Rhein / Fluss	0,00040	arithm. Mittel	70,0	arithm. Mittel
8	Glatt / Fluss	0,00100	arithm. Mittel	22,5	arithm. Mittel
9	Rhein / Fluss	0,00100	arithm. Mittel	9,5	arithm. Mittel
10	Tegeler See	0,00050	arithm. Mittel	30,0	entnommen aus Abb.
11	Rhein / Fluss	0,00400		22,0	entnommen aus Abb.
12	Rhein / Fluss	0,00300	arithm. Mittel	20,0	entnommen aus Abb.
13	Rhein / Fluss	0,01200	arithm. Mittel	15,0	arithm. Mittel
14	Rhein / Fluss	0,00550	arithm. Mittel	15,5	arithm. Mittel
15	Rhein / Fluss	0,00525	arithm. Mittel	22,5	arithm. Mittel
16	Elbe / Fluss	0,00080	mS-Schicht	47,5	arithm. Mittel
17	Elbe / Fluss	0,00200	arithm. Mittel	16,0	arithm. Mittel
18	Oder / Fluss	0,00055	arithm. Mittel	25,0	arithm. Mittel
19	Havel / seenartiger Fluss	0,00025	arithm. Mittel	55,0	arithm. Mittel
20	Elbe / Fluss	0,00170	arithm. Mittel	12,0	arithm. Mittel
21	Enns / Fluss	0,00380	arithm. Mittel	5,0	
22	Müggelsee	0,00275	Geolog. Karte Berlin	35,0	arithm. Mittel
23	Rhein / Fluss	0,00600		27,5	arithm. Mittel
24	Jungfersee (Havel)	0,00010	arithm. Mittel	30,0	circa-Angabe
25	Donau / gestauter Fluss	0,02000	arithm. Mittel	11,5	arithm. Mittel
26	Speicherbecken	0,00050	arithm. Mittel	20,0	arithm. Mittel
27	Buckau / Fluss	0,00057	arithm. Mittel	20,0	arithm. Mittel
28	Mulde / Fluss	0,00140	arithm. Mittel	10,0	arithm. Mittel
29	Sieg / Fluss	0,00100	arithm. Mittel		keine Angaben
30	Lech / Fluss	0,00080	arithm. Mittel	12,0	arithm. Mittel
31	Ruhr / Fluss	0,02000	arithm. Mittel	6,0	arithm. Mittel
32	Lot / Fluss		keine Angaben	5,0	
33	Aare / Fluss		keine Angaben		keine Angaben
x-quer		0,0042		21,4677	
Median		0,0017		16,0000	
Maximum		0,0200		70,0000	
Minimum		0,0001		4,0000	
s		0,0053		16,2691	

Anlage 1.5 Eliminationsleistung für einzelne Wasserinhaltsstoffe an den einzelnen Fallstudien

Fallstudie	Länge UP [m]	Verweilzeit [d]
1	1,5	6,25
1	8,0	10,53
1	16,0	11,20
1	20,0	11,90
2	3,0	5,00
2	38,0	7,00
2	93,0	8,00
3		
4	3,0	2,50
4	63,0	60,00
4	230,0	100,00
5	100,0	20,00

Anlage 1: Parameter für Standorte mit Uferfiltration nach Lenk et al. (2006)

8	2,5	1,80
8	5,0	2,80
8	7,0	2,92
8	9,0	3,75
8	26,0	7,90
8	120,0	50,00
9	180,0	42,00
10	6,0	36,59
10	10,0	60,98
10	30,0	182,93
10	65,0	210,00
11	48,0	
11	120,0	
12	90,5	32,00
12	113,2	40,00
13	14,0	5,83
13	39,0	16,25
14	18,0	1,80
14	22,0	2,20
15	55,0	16,82
15	130,0	39,76
15	310,0	94,80
17	3,0	2,00
17	15,0	10,00
17	38,0	25,33
17	75,0	50,00
18	3,0	
18	8,0	
18	98,0	
20	50,0	
21	0,2	0,01
21	1,0	0,09
21	6,0	0,54
21	18,0	1,62
22	2,5	6,25
22	9,5	23,75
22	19,0	26,91
23	20,0	60,00
23	130,0	90,00
23	290,0	133,60
24	20,0	10,00
24	100,0	50,00
25	100,0	25,00
26	105,0	
29	150,0	
31	50,0	1,00
32	12,5	3,10
32	24,2	6,10
32	48,3	12,10
32	72,5	18,10
32	170,0	43,00
33	4,0	21,00
33	7,5	23,08
33	13,0	28,00
33	23,0	46,00
n	66	58

Zusammenstellung der nach HYDOR (2004 & 2007) für Berlin vorliegenden Kenntnisse zu den Geometrien der Wasserfassungen. Dargestellt sind für die einzelnen Wasserwerksgalerien die minimalen (Br ab von) und maximalen (Br ab bis) Abstände zwischen den Brunnen, die minimalen (Ufer ab von) und maximalen (Ufer ab bis) Ufer-Brunnen-Abstände und die minimalen (Fiuk von) und maximalen (Fiuk bis) Tiefen der Filterunterkanten (m u.GOK) sowie jeweils deren Median. Farblich hinterlegt sind jeweils noch einmal die Statistiken für die Gesamtstandorte (Ausnahme Flehe). Alle Entfernungsangaben liegen in Metern vor.

Werk	Galerie	Br ab von	Br ab bis	Median	Ufer ab von	Ufer ab bis	Median	Fiuk von	Fiuk bis	Fiuk Median
Friedrichshagen	E	40	90	60	60	140	100	30	40	35
Friedrichshagen	D	35	60	45	5	45	8	30	40	35
Friedrichshagen	B	25	100	50	100	550	200	30	40	35
Friedrichshagen	F	50	150	100	90	220	150	20	50	30
Friedrichshagen	M	100	160	130	100	120	110	20	35	25
Friedrichshagen	L	50	180	100	200	280	230	20	45	25
Friedrichshagen	K	40	160	100	90	230	150	20	25	23
Friedrichshagen	I	30	250	100	100	250	150	15	60	25
Friedrichshagen	G	80	100	80	80	160	130	20	25	23
Friedrichshagen	H	95	135	100	90	140	100	20	25	23
Tegel	Ost	25	60	40	20	50	40	50	60	55
Tegel	West	45	80	60	30	300	100	30	50	40
Tegel	Saatwinkel	40	90	60	120	320	220	35	45	40
Tegel	Baumwerder	50	75	60	5	25	10	35	40	38
Tegel	Süd	50	75	55	10	70	30	30	45	40
Tegel	Nord	50	120	80	5	120	20	35	50	40
Tiefwerder	Nord	40	60	50	100	400	200	30	45	35
Tiefwerder	Süd	25	200	50	10	100	30	25	45	35
Tiefwerder	Rupenhorn	80	120	90	10	10	10	60	100	85
Tiefwerder	Schildhorn	70	150	80	5	40	20	55	90	75
Beelitzhof	Lieper Bucht	60	160	80	10	30	20	70	80	75
Beelitzhof	Lindwerder	50	150	60	5	70	30	30	80	70
Beelitzhof	Gr. Fenster	50	200	60	10	30	20	30	75	50
Beelitzhof	Beelitzhof	80	80	80	30	40	35	45	80	70
Beelitzhof	Wannsee	60	130	80	30	450	100	65	90	80
Kladow	Kladow	50	90	70	30	70	40	30	80	40
Kladow	Breitehorn	60	90	80	200	250	220	75	90	85
Berlin	Minimum	25	60	40	5	10	8	15	25	23
Berlin	Maximum	100	250	130	200	550	230	75	100	85
Berlin	Median	50	120	80	30	120	100	30	50	40
Berlin	Mittelwert	53	123	74	57	167	92	35	57	46
Flehe	Heber	20	20	20	40	40	40	20	25	22
DD Tolkewitz	Heber I	15	75	20	80	150	100	10	11	11
DD Tolkewitz	Heber II	20	100	50	70	180	120	10	11	11
DD Tolkewitz	Heber III	10	20	12	80	90	85	10	11	11
DD Tolkewitz	Minimum	10	20	12	70	90	85	10	11	11
DD Tolkewitz	Maximum	20	100	50	80	180	120	10	11	11
DD Tolkewitz	Median	15	75	20	80	150	100	10	11	11
DD Tolkewitz	Mittelwert	15	65	27	77	140	102	10	11	11
Torgau-Ost	I	70	80	80	330	330	330	45	50	48
Torgau-Ost	II	80	80	80	330	330	330	45	50	48
Torgau-Ost	III	80	80	80	240	300	290	45	50	48
Torgau-Ost	IV	80	80	80	300	300	300	45	50	48
Torgau-Ost	V	80	80	80	300	300	300	45	50	48
Torgau-Ost	VI	70	120	100	250	450	300	45	50	48
Torgau-Ost	VII	90	100	90	200	250	220	45	50	48
Torgau-Ost	VIII	80	110	90	250	340	300	45	50	48
Torgau-Ost	Minimum	70	80	80	200	250	220	45	50	48
Torgau-Ost	Maximum	90	120	100	330	450	330	45	50	48
Torgau-Ost	Median	80	80	80	275	315	300	45	50	48
Torgau-Ost	Mittelwert	79	91	85	275	325	296	45	50	48

Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI Datenbank [ng/l]

Datum	Standort	DICLOFNAC	CLOFIBRIN	PROPYPHEN	AMDOPH	CAR_ZEPIN	PRIMIDON	INDOMETAC	BEZAFIBRAT	BENTAZONE	MECOPROP
15.05.02	Mst14	0	10	0	100	285	95	0	0	25	15
15.05.02	Mst16			10	95	295	95			25	20
15.05.02	Mst17	30	15	60	95	245	105			30	
15.05.02	Mst18	40	30	75	85	170	135	-30	-20	30	
15.05.02	Wannsee	50	85	95	105	215	105	-30	60	50	
16.05.02	Tegeler See	15	50	90	185	245	90		50		20
16.05.02	Mst19	20	30	875	915	215	285			15	20
16.05.02	Mst20	15	20	110	265	125	160			20	20
16.05.02	Mst21	5	10	50	265	270	155				
16.05.02	Brunnen04	5	55	135	970	55	100	0	-20	0	25
16.05.02	Brunnen06	5	50	120	830	75	125				25
17.05.02	Mst22		15		110						25
11.06.02	Mst19	25	45	765	770	130	120			10	20
11.06.02	Mst20	10	20	155	410	185	70			10	10
11.06.02	Mst21	10	10	40	210	235	65			10	5
11.06.02	Mst22		10		120		5				20
11.06.02	Tegeler See	5	75	165	265	270	50		-20	30	5
12.06.02	Mst14	50		60	130	525	110			45	60
12.06.02	Mst16	10	60	10	125	485	105			55	30
12.06.02	Mst17	50	70	50	150	445	125			65	60
12.06.02	Mst18	45	75	70	135	270	135		20	60	55
12.06.02	Wannsee	20	90	50	80	335	115	-30	55	20	20
14.06.02	Brunnen04	10	75	220	1125	35	45			5	25
14.06.02	Brunnen06	10	65	150	900	65	50			5	25
14.06.02	Brunnen02	5	125	5	220	30	40			40	25
14.06.02	Brunnen03	10	150	45	435	20	60			40	40
09.07.02	Mst19	5	50	760	710	240	120			10	10
09.07.02	Mst20	5	20	295	755	345	90			10	10
09.07.02	Mst21	5		95	185	440	55			10	10
09.07.02	Mst22	-10		5	85	5	5				-10
09.07.02	Brunnen04		200	105	420	100	50			5	10
09.07.02	Brunnen06			360	1380	95	50			5	10
10.07.02	Mst14	10	-10	80	175	565	45			10	5
10.07.02	Mst16	20	-10	95	180	610	40			10	10
10.07.02	Mst17	35	5	135	130	595	50			15	10
10.07.02	Mst18	40	10	195	145	370	55		20	10	-10
10.07.02	Brunnen02		175	10	275	20	5				5
10.07.02	Brunnen03		5	270	1080	45	80			5	5
10.07.02	Wannsee	10	40	350	150	495	50	-30	65	10	15
11.07.02	Tegeler See	5	30	155	300	510	50		25	10	10
20.08.02	Mst23				75	5	10				
20.08.02	Mst24				60	235	20				
20.08.02	Mst25				115	430	20				
20.08.02	Mst26			5	180	535	20				
20.08.02	Mst27				420	505	40				
20.08.02	Mst28			50	290	520	40				
20.08.02	Mst29			150	540	485	45			15	
20.08.02	Tegeler See		20	340	445	300	40		-20	15	15
21.08.02	Mst14			45	150	285	40			10	5
21.08.02	Mst16		5	85	165					10	10
21.08.02	Mst17	20		110	170	345	35			15	15
21.08.02	Brunnen02	5	70	70	615	5					
21.08.02	Brunnen03	5	245	100	560	30	10				5
21.08.02	Wannsee	15	70	105	155	325	30	-30	-20	15	35
22.08.02	Mst19	20	50	1855	1540	135	60			10	15
22.08.02	Mst20	10	10	710	935	165	45				5
22.08.02	Mst21	5		200	460	180	35				5
22.08.02	Mst22		-10	10	320	5	-10				10
22.08.02	Brunnen04	5	45	265	1490	50	25				5
22.08.02	Brunnen06	5	30	160	1050	115					5
23.09.02	Mst24			10	140	180	25			15	
23.09.02	Mst25			25	265	430	35			15	
23.09.02	Mst26		20	40	305	485	35			15	
23.09.02	Mst27			20	320	440	35			15	
23.09.02	Mst28			25	300	420	40			20	
23.09.02	Mst29			195	480	330	40			20	
23.09.02	Tegeler See	20	25	235	485	260	40			25	15
25.09.02	Mst14	30	15	105	430	300	25			15	35
25.09.02	Mst16	20	20	185	425	305	40			40	
25.09.02	Mst17	20	35	180	295	295	35			35	15
25.09.02	Mst18	15	15	100	250	240	50			5	
25.09.02	Brunnen02		100	20	99,5	5					
25.09.02	Brunnen03	10	80	70	610	25	15				
25.09.02	Wannsee	25	45	165	320	325	45	-30			10
26.09.02	Mst19	25	15	680	900	200	40			20	15
26.09.02	Mst20	15	10	350	785	200	35			20	10
26.09.02	Mst21	10	15	190	535	165	30			20	15
26.09.02	Mst22		25		835						
26.09.02	Brunnen04	40	30	570	2140	30	25			15	15
26.09.02	Brunnen06	25	20	160	955	65	20			10	15
22.10.02	Mst23			50	90						
22.10.02	Mst24			40	115	190	20			30	

Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI Datenbank [ng/l]

Datum	Standort	DICLOFNAC	CLOFIBRIN	PROPYPHEN	AMDOPH	CAR_ZEPIN	PRIMIDON	INDOMETAC	BEZAFIBRAT	BENTAZONE	MECOPROP
22.10.02	Mst25			50	210	520	30				15
22.10.02	Mst26			175	240	485	20				15
22.10.02	Mst27	30		90	250	450	35				45
22.10.02	Mst28				125	315	25				10
22.10.02	Mst29	10	5	155	375	285	30				15
22.10.02	Tegeler See	35	25	385	450	360	45				10
23.10.02	Mst14	20		35	65	210	30				15
23.10.02	Mst16	40		55	90	240	20				65
23.10.02	Mst17	15	5	65	55	265	20				15
23.10.02	Mst18	25	10	75	69,5	250	30				15
23.10.02	Brunnen02		95	35	200	25				5	10
23.10.02	Brunnen03	5	135	35	215	25	10				10
23.10.02	Wannsee	35	35	115,25	205	280	20				45
24.10.02	Mst22		-10	15	255						15
24.10.02	Mst21	15	10	215	365	165	35				15
24.10.02	Mst19	20	10	750	710	235	45				15
24.10.02	Mst20	10	-10	480	460	290	45				15
24.10.02	Brunnen04	160	20	335	2480						35
24.10.02	Brunnen06	155	-10	295	1185						40
20.05.03	Wannsee	85	45	40	230	340	110	0	30	0	0
20.05.03	Mst16	0	20	25	260	755	105	0	0	0	20
20.05.03	Mst01	60	145	485	940	155	125	0	0	0	15
20.05.03	Mst02	50	240	445	1575	105	110	0	55	20	30
20.05.03	Mst08	0	35	35	5	0	0	0	0	0	10
20.05.03	Mst09	0	65	55	55	0	0	0	0	0	10
20.05.03	Brunnen02	0	105	40	265	60	50	0	0	0	10
22.05.03	Mst05	0	55	45	90	200	90	0	0	0	20
22.05.03	Mst03										
22.05.03	Mst04	40	185	535	910	110	140	0	0	0	20
22.05.03	Mst06	45	135	460	700	55	150	0	0	0	20
22.05.03	Mst07	0	40	50	60	80	70	0	0	0	20
22.05.03	Mst10	35	45	45	95	280	65	0	30	15	15
22.05.03	Mst11	0	30	65	150	370	50	0	0	0	30
22.05.03	Brunnen01	20	105	135	300	0	70	0	45	15	25
17.06.03	Mst01	65	270	250	1215	60	95	0	40	20	20
17.06.03	Mst02	25	0	55	85	45	110	35	0	30	0
17.06.03	Mst08	0	0	40	25	15	20	0	0	0	10
17.06.03	Mst09	0	5	20	25	0	0	0	0	0	0
17.06.03	Mst16	85	10	115	125	0	0	0	0	0	30
17.06.03	Brunnen02	55	245	50	285	15	35	0	0	0	20
17.06.03	Wannsee	115	50	215	195	285	135	0	105	30	50
18.06.03	Brunnen01	20	130	160	490	30	35	0	0	0	0
19.06.03	Mst05	65	0	15	110	190	40	0	0	0	20
19.06.03	Mst03										
19.06.03	Mst04	35	385	325	1770	20	75	0	0	0	5
19.06.03	Mst06	90	205	260	545	5	70	0	0	0	25
19.06.03	Mst07	15	0	0	100	115	25	0	0	0	5
19.06.03	Mst10	120	5	50	135	270	75	0	0	0	10
19.06.03	Mst11	15	0	15	175	380	50	0	0	0	10
22.07.03	Wannsee	55	120	185	200	395	115	0	0	0	25
22.07.03	Mst16	45	10	165	80	240	65	0	0	0	0
22.07.03	Mst01	35	250	325	895	75	105	0	0	0	0
22.07.03	Mst02	55	240	200	880	90	100	0	0	0	20
22.07.03	Mst08	45	10	5	15	0	0	0	0	0	0
22.07.03	Mst09	40	50	40	90	10	0	0	0	0	0
22.07.03	Brunnen02	35	120	40	235	15	5	0	0	0	0
24.07.03	Mst05	20	20	55	90	210	20	0	0	0	0
24.07.03	Mst03	80	5	145	540	170	30	0	0	0	0
24.07.03	Mst04	75	15	250	375	35	50	0	0	0	20
24.07.03	Mst06	80	10	230	615	20	40	0	0	0	0
24.07.03	Mst07	15	0	5	60	180	50	0	0	0	0
24.07.03	Mst10	150	10	70	265	385	40	0	0	0	25
24.07.03	Mst11	70	5	85	165	460	45	0	0	0	0
24.07.03	Brunnen01	60	25	100	905	60	85	0	0	0	0
19.08.03	Wannsee	30	50	205	365	540	110	0	0	0	0
19.08.03	Mst16	0	15	85	105	265	105	0	15	5	15
19.08.03	Mst01										
19.08.03	Mst02										
19.08.03	Mst08										
19.08.03	Mst09										
19.08.03	Brunnen02										
21.08.03	Mst05					285	45				
21.08.03	Mst03	30	55	350	1015	195	85	0	0	0	0
21.08.03	Mst04	25	75	295	515	10	100	0	0	0	0
21.08.03	Mst06	40	130	230	585	0	110	0	0	0	0
21.08.03	Mst07	0	0	10	110	280	80	0	0	0	0
21.08.03	Mst10	95	15	175	305	550	120	0	0	0	0
21.08.03	Mst11	15	10	40	240	545	100	0	0	0	0
21.08.03	Brunnen01	65	160	165	380	65	50	30	0	0	0
22.09.03	Wannsee	40	40	80	275	505	120	0	0	0	0
22.09.03	Mst16	50	10	195	275	255	115	0	0	0	0
22.09.03	Mst14	25	5	50	195	260	100	0	0	0	0

Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI Datenbank [ng/l]

Datum	Standort	DICLOFNAC	CLOFIBRIN	PROPYPHEN	AMDOPH	CAR_ZEPIN	PRIMIDON	INDOMETAC	BEZAFIBRAT	BENTAZONE	MECOPROP
22.09.03	Mst01	30	120	290	1790	60	100	0	0	0	15
22.09.03	Mst05	10	5	40	220	280	90	0	0	10	0
22.09.03	Mst03	25	45	540	1725	155	115	0	0	0	15
22.09.03	Mst07	0	0	35	135	340	110	0	0	0	0
22.09.03	Mst10	40	10	75	240	430	95	0	0	0	15
22.09.03	Mst11	0	5	30	270	405	120	0	0	0	0
24.09.03	Mst09	0	10	20	135	5	5	0	0	0	0
24.09.03	Brunnen01	20	80	200	590	75	55	0	0	0	0
24.09.03	Mst06	30	105	275	1435	0	105	0	0	0	15
24.09.03	Mst04	30	75	345	1125	30	115	0	0	0	0
24.09.03	Mst08	0	5	0	10	15	10	0	0	0	0
24.09.03	Brunnen02	0	105	15	370	0	10	0	0	0	0
24.09.03	Mst02	20	195	290	1735	15	110	0	0	0	0
21.10.03	Wannsee	85	50	95	205	480	135	5	20	15	20
21.10.03	Mst16	40	15	170	180				5	15	10
21.10.03	Mst01										
21.10.03	Mst02	45	150	310	2260	45	225	0	0	0	15
21.10.03	Mst08	10		10	10	5	0				
21.10.03	Mst09	40	10	30	80	20	15	0	0	0	5
21.10.03	Brunnen02	50	120	40	450	30	35	0	0	5	0
23.10.03	Mst05	20	0	20	135	290	85	0	0	10	
23.10.03	Mst03	60	50	290	1120	120	240	0	0	0	10
23.10.03	Mst04	40	90	325	1085	40	90		15	5	10
23.10.03	Mst06	30	50	285	660	5	70		15	5	10
23.10.03	Mst07	25	5	10	130					10	
23.10.03	Mst10	35	15	70	170	310	95		5	15	10
23.10.03	Mst11	40	5	25	230	165	115	0	0	0	5
23.10.03	Brunnen01	70	70	130	450	65	125	0	0	0	15
18.11.03	Wannsee	70	50	60	220	395	200	10	30	10	20
18.11.03	Mst16	55	0	235	260	300	100	0	0	0	0
18.11.03	Mst01	0	110	290	1290	85	105	0	10	5	10
18.11.03	Mst02	20	225	290	990	90	90	0	10	-5	0
18.11.03	Mst08	0	0	0	150	30	20	0	0	0	0
18.11.03	Mst09	0	0	0	0	50	20	0	0	0	0
18.11.03	Brunnen02	0	125	15	265	40	25	0	0	0	0
20.11.03	Mst05	10	0	20	105	230	0	0	0	0	0
20.11.03	Mst03	25	70	375	810	205	90	0	20	5	10
20.11.03	Mst04	40	80	450	530	85	125	0	20	5	10
20.11.03	Mst06	25	15	490	1010	65	95	0	0	0	0
20.11.03	Mst07	40	25	370	1120	440	90	0	20	10	5
20.11.03	Mst10	5	0	15	125	360	115	0	0	0	0
20.11.03	Mst11	5	0	15	125	255	115	10	0	5	0
20.11.03	Brunnen01	0	70	160	360	95	65	0	10	5	5
09.12.03	Wannsee	125	75	100	190	525	125	10	50	10	20
09.12.03	Mst16										
09.12.03	Mst01										
09.12.03	Mst02										
09.12.03	Mst08	0	0	10	130	20	0	0	0	0	0
09.12.03	Mst09	0	0	0	0	20	10	0	0	0	0
09.12.03	Brunnen02										
11.12.03	Mst05	0	0	25	85	470	110	0	0	10	0
11.12.03	Mst03										
11.12.03	Mst04	30	25	355	400	50	115	0	20	-5	10
11.12.03	Mst06	35	340	605	1470	65	95	0	30	-5	5
11.12.03	Mst07	0	0	15	145	620	100	0	20	-5	0
11.12.03	Mst10	0	0	60	130	390	115	5	10	5	15
11.12.03	Mst11	0	20	10	180	290	140	0	0	-5	0
11.12.03	Brunnen01	20	130	110	305	60	50	0	0	0	0
19.01.04	Mst29	50	10	10	145	670	95			25	
19.01.04	Mst28	155	20	15	240	560	140	10	35	30	10
19.01.04	Mst26	20			130	675	60	10		20	
19.01.04	Mst30				195	445	120	5		5	
19.01.04	Mst31	20	5	65	360	165	130				
19.01.04	Mst32	15	5	10	260	325	230				
21.01.04	Mst19	30	5	75	270	270	160		15	10	
21.01.04	Mst20			25	300	285	135				
21.01.04	Mst22				190		10				
21.01.04	Mst33		115	15	5455		60				10
21.01.04	Brunnen05	15	25	165	1470	115	75			10	
22.01.04	Mst05				95	400	130				
22.01.04	Mst03	45		165	220	180	120			10	
22.01.04	Mst04	45		350	270	45	125		-20	10	5
22.01.04	Mst06	30	155	455	1660	40	80		20	15	10
22.01.04	Mst07				120	575	120				
22.01.04	Mst10	30	30	35	120	230	105			10	10
22.01.04	Brunnen01	30	35	125	315	80	85				5
16.02.04	Mst29	45	15		220	525	100				
16.02.04	Mst28	145	45		290	630	140	10	15		10
16.02.04	Mst26	40	35		95	550	95	10			
16.02.04	Mst30		20		220	455	130				
16.02.04	Mst31	25	20	60	380	155	160				5
16.02.04	Mst32				215	360	140				

Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI Datenbank [ng/l]

Datum	Standort	DICLOFNAC	CLOFIBRIN	PROPYPHEN	AMDOPH	CAR_ZEPIN	PRIMIDON	INDOMETAC	BEZAFIBRAT	BENTAZONE	MECOPROP
16.02.04	Tegeler See	240	35	50	295	555	105	10	40		
17.02.04	Wannsee	35	75	110	50	25	110			15	25
17.02.04	Mst02	20	165	185	1365	80	115				5
17.02.04	Mst09	10	80		765	30	15				
17.02.04	Brunnen02	10	130		330	30	10		5		
18.02.04	Mst19	45	20	45	265	250	95				
18.02.04	Mst20	5	10	5	265	235	110				
18.02.04	Mst21	10	5	30	360	250	130				
18.02.04	Mst22		45		170						20
18.02.04	Mst33		155	40	6535						15
19.02.04	Mst06	30	60	315	850	30	115		20		
19.02.04	Mst07				90	415	85		-20		
15.03.04	Mst29	90	40	15	180	500	130		25		10
15.03.04	Mst28	100	70		190	615	170	15			15
15.03.04	Mst26	60	45		105	600	95	10			5
15.03.04	Mst30		15		165	375	120				
15.03.04	Mst31	45	35	75	300	120	135				
15.03.04	Mst32				105	275	75				
15.03.04	Tegeler See	300	75	95	250	695	150	25	140		25
16.03.04	Wannsee	100	65	20	105	285	90	10	35		
16.03.04	Mst16	40	15	15	110	185	85				
16.03.04	Mst02	45	90	145	425	65	95				
16.03.04	Mst08				270						
16.03.04	Mst09		95		535		5				
16.03.04	Brunnen02		145	10	270		10				
16.03.04	Mst13		10			130	75				
16.03.04	Mst15										
17.03.04	Mst19	40	30	40	195	310	95				5
17.03.04	Mst20	5	25	5	170	220	110				
17.03.04	Mst21	35	20	20	185	265	180				
17.03.04	Mst22		5		170	15	50				10
17.03.04	Mst33		235	50	6885		60				
17.03.04	Brunnen05	30	35	115	1010	65	65				
18.03.04	Mst12										
18.03.04	Mst05				45	195	90			15	
18.03.04	Mst04	45	170	400	1400	35	115			15	
18.03.04	Mst06	50	170	350	800	10	115		-20	10	10
18.03.04	Mst07				65	345	95				
18.03.04	Mst11		15		80	265	90				
18.03.04	Brunnen01	10	85	25	310	65	55		-20	10	
19.04.04	Mst28	75	45		290	1000	440	5			
19.04.04	Mst30		30		200	510	300				
19.04.04	Mst31		30	15	195	185	230				
19.04.04	Mst32	10			165	375	195				
20.04.04	Mst01	50	70	240	690	90	235		25	15	5
20.04.04	Mst02	5	125	150	635	65	220			15	
20.04.04	Brunnen02		140	25	370	15	40				
21.04.04	Mst19		25	40	230	305	270				
21.04.04	Mst20		10	25	185	300	230				
21.04.04	Mst21		10	5	150	280	270				
21.04.04	Mst22				145						
21.04.04	Mst33		190	50	7840		105				10
21.04.04	Brunnen05		30	130	1515	80	190				5
22.04.04	Mst05				100	215	175				
22.04.04	Mst03			30	125	95	200				
22.04.04	Mst06	10	90	225	575		245		30	15	10
22.04.04	Mst10	40	25	15	125				-20		
22.04.04	Mst11				125	340	215				
22.04.04	Brunnen01	5	65	195	345	85	135				
25.05.04	Mst30	5	25	65	225	440	355				
25.05.04	Mst31	5		15	160	190	270				
25.05.04	Mst32	30		10	80	295	210	10			
25.05.04	Mst19	35	5	50	165	225	270				
25.05.04	Mst20			1075	195	235	230				
25.05.04	Mst22	10		160	230		5				
25.05.04	Brunnen05		30	180	1365	65	185				15
26.05.04	Mst21	15		30	215	210	230				
26.05.04	Mst33		230	70	8320	10	125				15
26.05.04	Tegeler See	70	35	210	390	620	265	20	55		5
26.05.04	Wannsee	30	50	140	715	270	200	-20	20		15
26.05.04	Mst10	55	15	40	175	430	240		10	15	10
26.05.04	Mst11				190	215	250				5
27.05.04	Mst05			5	115	185	200				
27.05.04	Mst03		20	70	240	90	215				5
27.05.04	Mst06	25	80	550	615	25	245		20		15
27.05.04	Mst07			5	110	155	200				
27.05.04	Mst09		40	625	730	20	25				5
27.05.04	Brunnen01		75	145	435	70	140		-20		
22.06.04	Mst30	40	10	10	205	505	370				
22.06.04	Mst31	5	15	20	180	195	315				
22.06.04	Mst32				115	290	205				5
22.06.04	Mst19	30	25	45	250	285	385				

Anlage 3: Messwerte zu den Konzentrationen von Arzneimittelwirkstoffen - NASRI Datenbank [ng/l]

Datum	Standort	DICLOFNAC	CLOFIBRIN	PROPYPHEN	AMDOPH	CAR_ZEPIN	PRIMIDON	INDOMETAC	BEZAFIBRAT	BENTAZONE	MECOPROP
22.06.04	Mst20	5	5	10	195	275	365				
22.06.04	Mst22		5	10	250	15					
22.06.04	Brunnen05	10	30	60	1225	65	135				10
23.06.04	Mst21	5	5	25	180	185	315				
23.06.04	Mst33		215	85	7600		185				15
23.06.04	Tegeler See	60	40	120	285	755	480	5	40		5
23.06.04	Brunnen01	5	80	145	370	70	115		20		5
23.06.04	Mst10	90	15	30	125	295	210		-20	5	10
23.06.04	Mst11	10	15	10	125	445	195			10	
24.06.04	Mst05				90	205	155				
24.06.04	Mst03	10	50	120	580	100	165			10	5
24.06.04	Mst06	45	75	350	385	35	195		20	15	10
24.06.04	Mst07	5			85	140	160				
24.06.04	Mst09		50	5	370	30	25				10
10.08.04	Mst30	25	10	30	295	465	310				
10.08.04	Mst31		20	50	225	155	250				
10.08.04	Mst32				185	330	220				
10.08.04	Mst19	25	15	100	330	340	275				
10.08.04	Mst20	10		15	275	330	255				
10.08.04	Mst22		10		205		15				
10.08.04	Brunnen05		25	100	830	70	150				15
11.08.04	Mst21			15	210	290	270				
11.08.04	Mst33		140	100	4150		175				15
11.08.04	Tegeler See	15	50	100	420	625	220		20		
11.08.04	Brunnen01		90	170	425	55	110		-20		
11.08.04	Mst10	35		65	160	345	185		-20		
11.08.04	Mst11			30	215	455	170				
12.08.04	Mst05			20	70	220	155				
12.08.04	Mst03		10	60	190	125	180				
12.08.04	Mst06		80	150	395	15	190		20		
12.08.04	Mst07			20	110	185	145				
12.08.04	Mst09		25	25	220	10	20				
12.08.04	Wannsee		50	90	200	365	145		20		

Anlage 4: Daten für pharmazeutische Wirkstoffe am Standort Rhein

Standorte	Wirkstoff [ng/l]			rote Zahlen: < reporting limit											
	Carbamazepin														
	18.06.03	20.06.03	25.06.03	30.06.03	09.07.03	14.07.03	18.07.03	23.07.03	28.07.03	01.08.03	06.08.03	11.08.03	15.08.03	20.08.03	
Rhein	36	36	87	97	140	130	180	190	200	200	110	160	97	110	
Mst3			130		150			170			190			120	
Mst2			150		150			220			170			110	
Mst1			100		160			200			150			130	
	Diclofenac														
	18.06.03	20.06.03	25.06.03	30.06.03	09.07.03	14.07.03	18.07.03	23.07.03	28.07.03	01.08.03	06.08.03	11.08.03	15.08.03	20.08.03	
Rhein	40	29	59	68	110	83	77	77	75	75	82	46	39	23	
Mst3			2		2			2			2			2	
Mst2			2		2			2			2			2	
Mst1			2		2			2			2			2	
	Bezafibrat														
	18.06.03	20.06.03	25.06.03	30.06.03	09.07.03	14.07.03	18.07.03	23.07.03	28.07.03	01.08.03	06.08.03	11.08.03	15.08.03	20.08.03	
Rhein	9	8	8	16	28	25	20	14	5	17	2	3	2	22	
Mst3			2		2			2			2			2	
Mst2			2		2			2			2			2	
Mst1			2		2			2			2			2	
	Iopamidol														
	18.06.03	20.06.03	25.06.03	30.06.03	09.07.03	14.07.03	18.07.03	23.07.03	28.07.03	01.08.03	06.08.03	11.08.03	15.08.03	20.08.03	
Rhein	290	270	240	340	390	540	570	350	92	480	550	330	440	320	
Mst3			210		240			120			260			110	
Mst2			210		220			140			180			78	
Mst1			170		180			87			290			32	
	Amidotrizoesäure														
	18.06.03	20.06.03	25.06.03	30.06.03	09.07.03	14.07.03	18.07.03	23.07.03	28.07.03	01.08.03	06.08.03	11.08.03	15.08.03	20.08.03	
Rhein	260	170	220	220	220	200	270	360	82	320	330	390	540	500	
Mst3			230		250			290			310			460	
Mst2			250		200			180			300			410	
Mst1			250		190			220			320			370	

Anlage 5 Versuchsfeld Elbe: Daten für pharmazeutische Wirkstoffe und Röntgenkontrastmittel

	Elbe (n = 5)			Messstelle X1 (n = 5)				Messstelle Y1 (n = 5)				Messstelle Z1 (n = 5)				Messstelle Z2 (n = 5)				Brunnen (n = 4)			
	Min	Max	Med	Min	Max	Med	η [%]	Min	Max	Med	η [%]	Min	Max	Med	η [%]	Min	Max	Med	η [%]	Min	Max	Med	η [%]
Bezafibrat [ng/L]	5,3	510	19	< 2	< 2	< 2	> 98	< 2	< 2	< 2	> 98	< 2	< 2	< 2	> 98	< 2	< 2	< 2	> 98	< 2	< 2	< 2	> 98
Carbamazepin [ng/L]	61	340	93	38	210	120	33	47	140	67	54	50	120	88	51	48	200	61	44	33	86	41	70
Clofibrinsäure [ng/L]	< 2	2,4	< 2	< 2	< 2	< 2	> 7	< 2	< 2	< 2	> 7	< 2	< 2	< 2	> 7	< 2	< 2	< 2	> 7	< 2	< 2	< 2	> 7
Diclofenac [ng/L]	37	130	42	< 2	< 2	< 2	> 97	< 2	< 2	< 2	> 97	< 2	< 2	< 2	> 97	< 2	< 2	< 2	> 97	< 2	< 2	< 2	> 97
Ibuprofen [ng/L]	14	110	25	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96
Indomethacin [ng/L]	< 2	11	9,1	< 2	3,0	< 2	> 73	< 2	< 2	< 2	> 75	< 2	< 2	< 2	> 75	< 2	< 2	< 2	> 75	< 2	< 2	< 2	> 75
Naproxen [ng/L]	< 2	14	< 2	< 2	< 2	< 2	> 66	< 2	< 2	< 2	> 66	< 2	< 2	< 2	> 66	< 2	< 2	< 2	> 66	< 2	< 2	< 2	> 66
Pentoxifyllin [ng/L]	5,3	180	17	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96
Clarithromycin [ng/L]	6,7	22	11	< 3	< 3	< 3	> 75	< 3	< 3	< 3	> 75	< 3	< 3	< 3	> 75	< 3	< 3	< 3	> 75	< 3	< 3	< 3	> 75
Dehydrato-Erythromycin [ng/L]	3,6	21	8	< 3	< 3	< 3	> 70	< 3	< 3	< 3	> 70	< 3	< 3	< 3	> 70	< 3	< 3	< 3	> 70	< 3	< 3	< 3	> 70
Sulfamethoxazol [ng/L]	13	31	21	3	38	8,6	29	< 2	6,8	5,5	> 80	< 2	7,2	< 2	> 86	< 2	< 2	< 2	> 91	< 2	< 2	< 2	> 91
Clindamycin [ng/L]	4,7	19	7	< 3	< 3	< 3	> 67	< 3	< 3	< 3	> 67	< 3	< 3	< 3	> 67	< 3	< 3	< 3	> 67	< 3	< 3	< 3	> 67
Trimethoprim [ng/L]	3,4	10	5,3	< 1	< 1	< 1	> 83	< 1	< 1	< 1	> 83	< 1	< 1	< 1	> 83	< 1	< 1	< 1	> 83	< 1	< 1	< 1	> 83
Atenolol [ng/L]	4,5	34	9,2	< 2	< 2	< 2	> 85	< 2	< 2	< 2	> 85	< 2	< 2	< 2	> 85	< 2	< 2	< 2	> 85	< 2	< 2	< 2	> 85
Metoprolol [ng/L]	4,3	60	14	< 2	3,4	< 2	> 88	< 2	2,7	< 2	> 89	< 2	< 2	< 2	> 90	< 2	< 2	< 2	> 90	< 2	< 2	< 2	> 90
Bisoprolol [ng/L]	< 2	4,7	2,1	< 2	< 2	< 2	> 32	< 2	< 2	< 2	> 32	< 2	< 2	< 2	> 32	< 2	< 2	< 2	> 32	< 2	< 2	< 2	> 32
Sotalol [ng/L]	7,3	32	12	< 2	5,0	< 2	> 82	< 2	< 2	< 2	> 87	< 2	< 2	< 2	> 87	< 2	< 2	< 2	> 87	< 2	< 2	< 2	> 87
Iopamidol [ng/L]	9,3	34	26	< 2	14	7,2	72	2,2	12	3,4	78	< 2	12	2,7	82	< 2	6,9	2,2	84	< 2	3,4	< 2	> 90
Iopromid [ng/L]	46	61	53	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96	< 2	< 2	< 2	> 96
Iomeprol [ng/L]	43	83	75	< 3	< 3	< 3	> 96	< 3	< 3	< 3	> 96	< 3	< 3	< 3	> 96	< 3	< 3	< 3	> 96	< 3	< 3	< 3	> 96
Iohexol [ng/L]	32	380	47	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98
Amidotrizoesäure [ng/L]	58	190	91	34	88	70	39	18	93	71	37	< 2	150	110	11	9	86	37	57	< 2	49	33	72
Ioxitalaminsäure [ng/L]	74	140	93	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98	< 3	< 3	< 3	> 98

Anlage 6: Kennwerte zum Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen nach Literaturangaben

Stoff	log K _{ow} (log P _{ow})	pK _a	K _d [l/kg]	log K _D	K _F [l/kg]	K _{oc} [l/kg]	log K _{oc}	Abbaurrate 1. Ordnung [h ⁻¹]	Abbaurrate 1. Ordnung [d ⁻¹]	Retardations- faktor R
Carbama- zepin	2,45 ^{2,1,6,} 2,25 ^{11,7}	14 ⁷ ; 7 ⁶	1,3 / 1,2 / 1,3 / 2,6 ⁵ ; 5,3 / 1,43 / 0,21 ⁷		0,13 - 5,34 ⁷	3,5 – 155 ⁵ ; 83 ⁵ ;	2,0 - 3,42 ⁷	0,006 ¹⁵	0,144	1,84 ¹⁵ 2,80 ¹⁶
Primidon	0,91 ² 0,73 ¹⁰									
Dichlofenac	4,51 ⁴ ; 4,02 ⁷ ; 1,13 ² ; 1,56(Diclofen ac-Natrium) ² 4,6 ^{12,7} ; 4,51 ⁷ ; 1,56 ¹ ;	4,16 ⁷	0,55 / 1,87 / 4,66 ⁷		0,57 - 7,31 ⁷		0,78 ² ; 2,45 - 3,74 ⁷	0,37 ¹⁵	8,88	4,80 ¹⁵ 2,6 ¹⁶
Ibuprofen	3,97 ^{6,7} ; 3,7 ³ ; 3,5 ^{8,7} ; 3,5 - 4,5 ² ;	4,52 ⁷ ; 4,31 ⁶ ; 5,7 ⁸	0,18 - 1,69 ⁷		0,21 - 0,83 ⁷		4,06 ² ; 2,14 - 2,21 ⁷	0,95 ¹⁵	22,8	3,00 ¹⁵ 4,00 ¹⁶
Propyphena- zon	1,94 ⁴ ; 2,05 ^{2,13} ; 1,7 ³ 2,32 ¹⁴							0,86 ¹⁵	20,64	2,51 ¹⁵ 2,0 ¹⁶
Phenazon	0,38 ⁴ ; 0,23 ² ; 0,46 ¹³	1,5 ²								
Bezafibrat	4,2 ² ; 4,65 ¹² 4,25 ¹⁰									

Anlage 6: Kennwerte zum Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen nach Literaturangaben

Stoff	log K _{ow} (log P _{ow})	pK _a	K _d [l/kg]	log K _D	K _F [l/kg]	K _{oc} [l/kg]	log K _{oc}	Abbaurrate 1. Ordnung [h ⁻¹]	Abbaurrate 1. Ordnung [d ⁻¹]	Retardations- faktor R
Sulfame- thoxazol	0,89 ^{12,10} ; 0,48 ⁹		114 – 400 ³ ; 256 ± 169 ³							
Röntgen- kontrastmittel										
• Iodixanol	-3,8 ²									
• Lysinami- dotrizoat	-1,6 ²									

- 1 Cleuvers M. (2003): Aquatic ecotoxicity of pharmaceuticals including the assessment of combination effects. In: Toxicology Letters, 142 : 185-194
- 2 Hanisch B., Abbas B., Kratz W. (2002b): Ökotoxikologische Bewertung von Humanarzneimitteln in aquatischen Ökosystemen. Studien und Tagungsberichte. Landesumweltamt Brandenburg (Hrsg.), Band 39, Frankfurt (Oder)
- 3 Hanisch B., Abbas B., Kratz W., Schürmann G. (2004): Humanarzneimittel im aquatischen Ökosystem. In: UWSF - Zeitschrift für Umweltchemie und Ökotoxikologie, 16 (4) : 223-238
- 4 Huschek G., Kregel D. (2003): Mengenermittlung und Systematisierung von Arzneimittelwirkstoffen im Rahmen der Umweltprüfung von Human- und Tierarzneimitteln gemäß § 28 AMG. In: Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit; Forschungsbericht 200 67 401, Umweltbundesamt (Hrsg.)
- 5 Löffler D., Römbke J., Meller M., Ternes T. A. (2005): Environmental fate of pharmaceuticals in water / sediment systems. In: Environmental Science and Technology, 39 : 5209-5218
- 6 Matamoros V., Garcia J., Bayona J. M. (2005): Behaviour of selected pharmaceuticals in subsurface flow constructed wetlands: A pilot-scale study. In: Environmental Science and Technology, 39 : 5449-5454
- 7 Scheytt T., Mersmann P., Lindstädte R., Heberer T. (2005): Determination of sorption coefficients of pharmaceutically active substances carbamazepine, diclofenac, and ibuprofen, in sandy sediments. In: Chemosphere, 60 : 245-253

- 8 Stuer-Lauridsen F., Birkved M., Hansen L. P., Holten Lützhöft H.-C., Halling-Sørensen B. (2000): Environmental risk assessment of human pharmaceuticals in Denmark after normal therapeutic use. In: Chemosphere, 40 : 783-793
- 9 Snyder S. A., Westerhoff P., Yoon Y., Sedlak D. L. (2003): Pharmaceuticals, personal care products, and endocrine disruptors in water: Implications for the water industry. In: Environmental Engineering Science, 20 (5) : 449-469
- 10 Syracuse Science Center (2000): Database of experimental octanol-water partition coefficients (Log P).- Homepage <http://syrrres.com>
- 11 Ternes T. A., Römbke J. (2005): Behaviour of selected human and veterinary pharmaceuticals in aquatic compartments and soil. In: Umweltbundesamt (Hrsg.), Texte 05/05, Förderkennzeichen 299 67 401/01, Berlin
- 12 von Gunten U. (2005): Verminderung der Konzentration von Spurenstoffen. In: gwa, Wasser, 1 : 53-59
- 13 Wiegel S., Harms H., Stachel B., Brockmeyer R., Schmidt R., Aulinger A., von Tuempling W. (2003): Arzneistoffe in Elbe und Saale. In: Arbeitsgemeinschaft für die Reinhaltung der Elbe (Hrsg.)
- 14 Holm , J.V., Rügge, K., Bjerg, P.L. & Christensen, T. H. (1995): Occurrence and distribution of pharmaceutical organic compounds in the groundwater downgradient of a landfill (Grindsted, Denmark).- Environ. Sci. Technol. 29 (5). 1415- 1420, Washington D.C.
- 15 Scheytt, T. (2006): Mobility of pharmaceuticals carbamazepine, diclofenac, ibuprofen, and propyphenazone in miscible- displacement experiments. In: Journal of Contaminant Hydrology 83 (2006) 53-69
- 16 Mersmann, P., Scheytt, T., Heberer, T. (2002): Säulenversuche zum Transportverhalten von Arzneimittelwirkstoffen in der wassergesättigten Zone

Anlage 7: Ergebnisse der Grundwasserströmungsmodellierung (Datenmatrix)

Filter m u.GOK	_300: Ufer-Brunnen-Abstand [m]				H: GW-Höhe am Brunnen [m]			Fehler	T: Fließzeit [d]		A: Absenkung am Brunnen[m]			A+H=95m		Fehler	Q [m3]	Kf [m/s]	
	T_300	H_100	A_100	T_100	H_50	A_50	T_50		H_25	A_25	T_25	Fehler	H_5	A_5	T_5		Entnahme	Kf-Wert	
80-90	X			X	94,9	0,1	53		94,91	0,09	44		94,91	0,09	39		5000	0,01	
80-90	X			X	94,96	0,04	132		94,96	0,04	108		94,97	0,03	97		2000	0,01	
80-90	X			X	94,98	0,02	266		94,98	0,02	217		94,98	0,02	195		1000	0,01	
80-90	X			X	94,98	0,02	353		94,99	0,01	291		94,99	0,01	260		750	0,01	
80-90	X			X	94,99	0,01	531		94,99	0,01	433		94,99	0,01	390		500	0,01	
80-90	X			X	94,99	0,01	1060		95	0	858	1,89	95	0	786	2,57	250	0,01	
80-90	X			X	94,87	0,13	53		94,89	0,11	44		94,9	0,1	39		5000	0,005	
80-90	X			X	94,95	0,05	132		94,96	0,04	108		94,96	0,04	97		2000	0,005	
80-90	X			X	94,97	0,03	264		94,98	0,02	216		94,98	0,02	193		1000	0,005	
80-90	X			X	94,98	0,02	352		94,98	0,02	288		94,99	0,01	258		750	0,005	
80-90	X			X	94,99	0,01	528		94,99	0,01	433		94,99	0,01	388	0,76	500	0,005	
80-90	X			X	94,99	0,01	1060	0,87	94,99	0,01	865		95	0	773		250	0,005	
80-90	X			X	94,84	0,16	53		94,86	0,14	43		94,89	0,11	39		5000	0,003	
80-90	X			X	94,94	0,06	132		94,95	0,05	108		94,96	0,04	96		2000	0,003	
80-90	X			X	94,97	0,03	263		94,97	0,03	216		94,98	0,02	192		1000	0,003	
80-90	X			X	94,98	0,02	351		94,98	0,02	287		94,98	0,02	256		750	0,003	
80-90	X			X	94,98	0,02	528		94,99	0,01	431		94,99	0,01	384		500	0,003	
80-90	X			X	94,99	0,01	1054		94,99	0,01	864		94,99	0,01	771		250	0,003	
80-90	X	94,57	0,43	80	94,68	0,32	52		94,75	0,25	43		94,83	0,17	38		5000	0,001	
80-90	X	94,83	0,17	199	94,87	0,13	131		94,9	0,1	107		94,93	0,07	95		2000	0,001	
80-90	X	94,91	0,09	398	94,94	0,06	262		94,95	0,05	214		94,97	0,03	191		1000	0,001	
80-90	X	94,94	0,06	531	94,95	0,05	350		94,96	0,04	285		94,97	0,03	254		750	0,001	
80-90	X	94,96	0,04	796	94,97	0,03	526		94,98	0,02	428		94,98	0,02	381		500	0,001	
80-90	X	94,98	0,02	1593	94,98	0,02	1052		94,99	0,01	858	1,01	94,99	0,01	762		250	0,001	
80-90	X	94,21	0,79	79	94,45	0,55	52		94,58	0,42	43		94,74	0,26	38		5000	0,0005	
80-90	X	94,69	0,31	198	94,78	0,22	131		94,83	0,17	107		94,9	0,1	95		2000	0,0005	
80-90	X	94,84	0,16	396	94,89	0,11	262		94,92	0,08	213		94,95	0,05	190		1000	0,0005	
80-90	X	94,88	0,12	528	94,92	0,08	350		94,94	0,06	284		94,96	0,04	253		750	0,0005	
80-90	X	94,92	0,08	792	94,95	0,05	524		94,96	0,04	427		94,97	0,03	380		500	0,0005	
80-90	X	94,96	0,04	1586	94,97	0,03	1049		94,98	0,02	855		94,99	0,01	760		250	0,0005	
80-90	X	91,26	3,74	77	92,51	2,49	52		93,23	1,77	43		94,08	0,92	38		5000	0,0001	
80-90	X	93,55	1,45	195	94,02	0,98	129		94,31	0,69	107		94,64	0,36	95		2000	0,0001	
80-90	X	94,28	0,72	391	94,52	0,48	259		94,66	0,34	214		94,82	0,18	191		1000	0,0001	
80-90	X	94,46	0,54	522	94,64	0,36	346		94,74	0,26	285		94,86	0,14	254		750	0,0001	
80-90	X	94,64	0,36	783	94,76	0,24	519		94,82	0,18	428		94,91	0,09	381		500	0,0001	
80-90	X	94,82	0,18	1568	94,88	0,12	1040		94,92	0,08	860	0,96	94,95	0,05	763		250	0,0001	
X: In der Realität nicht verwirklicht								Bilanzfehler: ab 0,5%								Bilanzfehler: größer 2%			

Anlage 7: Ergebnisse der Grundwasserströmungsmodellierung (Datenmatrix)

Filter m u.GOK	_300: Ufer-Brunnen-Abstand [m]			H: GW-Höhe am Brunnen [m]				T: Fließzeit [d]		A: Absenkung am Brunnen[m]				A+H=95m	Q [m3]	Kf [m/s]		
	A_1000	T_1000	Fehler	A_500	T_500	A_300	T_300	A_100	T_100	A_50	T_50	A_25	T_25	A_5	T_5	Entnahme	Kf-Wert	
10-20	1,6	164		0,89	80	0,62	45	0,35	11	0,29	4	0,25	1	0,22	0,1	5000	0,01	
10-20	0,62	422		0,35	203	0,24	114	0,14	28	0,11	10	0,1	4	0,09	0,3	2000	0,01	
10-20	0,3	854		0,17	408	0,12	230	0,07	55	0,06	20	0,05	7	0,04	0,7	1000	0,01	
10-20	0,23	1140		0,13	545	0,09	307	0,05	73	0,04	26	0,04	8	0,03	0,9	750	0,01	
10-20	0,15	1719		0,09	819	0,06	460	0,03	110	0,03	39	0,02	13	0,02	1	500	0,01	
10-20	0,07	3455	0,97	0,04	1642	0,03	922	0,02	219	0,01	77	0,01	25	0,01	2	250	0,01	
10-20	3,37	156		1,77	78	1,19	45	0,64	11	0,5	4	0,42	1	0,35	0,1	5000	0,005	
10-20	1,23	415		0,68	201	0,46	114	0,25	27	0,2	10	0,17	3	0,14	0,3	2000	0,005	
10-20	0,6	845		0,33	406	0,23	229	0,12	54	0,1	19	0,08	6	0,07	0,7	1000	0,005	
10-20	0,45	1132		0,25	543	0,17	306	0,09	72	0,07	25	0,06	8	0,05	0,9	750	0,005	
10-20	0,3	1707		0,17	816	0,11	460	0,06	109	0,05	38	0,04	12	0,03	1	500	0,005	
10-20	0,15	3437	0,54	0,08	1638	0,06	920	0,03	218	0,02	76	0,02	25	0,02	2	250	0,005	
10-20	6,79	144		3,08	76	2	44	1,03	11	0,79	4	0,65	1	0,51	0,1	5000	0,003	
10-20	2,1	404		1,12	199	0,76	113	0,4	27	0,31	9	0,25	3	0,2	0,3	2000	0,003	
10-20	1	835		0,55	404	0,37	228	0,2	54	0,15	19	0,13	6	0,1	0,7	1000	0,003	
10-20	0,74	1122		0,41	540	0,28	304	0,15	72	0,11	25	0,09	8	0,08	0,9	750	0,003	
10-20	0,49	1696		0,27	814	0,18	458	0,1	108	0,08	37	0,06	12	0,05	1	500	0,003	
10-20	0,24	3420		0,13	1635	0,09	918	0,05	216	0,04	74	0,03	24	0,02	2	250	0,003	
10-20	***			6,09	145	4,84	85	3,39	10	2,42	4	1,9	1	1,33	0,1	5000	0,001	
10-20	4,13	758		3,77	186	2,38	108	1,17	26	0,87	9	0,7	3	0,5	0,3	2000	0,001	
10-20	3,28	782		1,69	392	1,12	224	0,57	53	0,43	18	0,34	6	0,25	0,7	1000	0,001	
10-20	2,36	1070		1,25	528	0,83	300	0,42	71	0,32	24	0,26	8	0,18	0,9	750	0,001	
10-20	1,52	1644		0,8	801	0,55	453	0,28	106	0,21	36	0,17	12	0,12	1	500	0,001	
10-20	0,74	3367		0,4	1621	0,27	913	0,14	213	0,1	71	0,08	24	0,06	2	250	0,001	
10-20	***			***		10,44	79	6,76	20	5,95	7	1,28	2	2,59	0,1	5000	0,0005	
10-20	9,04	692		5,17	367	6,65	102	2,5	25	1,81	8	1,41	3	0,94	0,3	2000	0,0005	
10-20	4,12	1518		3,74	372	2,36	217	1,15	52	0,85	17	0,67	6	0,46	0,7	1000	0,0005	
10-20	5,71	986		2,64	509	1,71	293	0,85	69	0,63	23	0,5	8	0,34	0,9	750	0,0005	
10-20	3,27	1564		1,68	783	1,11	447	0,56	104	0,42	35	0,33	12	0,22	1	500	0,0005	
10-20	1,51	3289		0,81	1602	0,54	905	0,28	210	0,21	69	0,16	23	0,11	2	250	0,0005	
10-20	***			***		***		***		***		***		***		5000	0,0001	
10-20	***			***		***		***		***		***		1,24	0,9	2000	0,0001	
10-20	***			***		10,32	395	6,67	100	5,89	33	5,4	10	2,27	0,7	1000	0,0001	
10-20	***			10,81	888	7,47	542	4,98	135	3,67	21	2,83	7	1,64	0,9	750	0,0001	
10-20	***			6,51	1437	4,74	854	3,24	98	2,28	32	1,73	10	1,04	1	500	0,0001	
10-20	5,18	5983		5,43	1452	3,03	855	1,44	202	1,05	65	0,81	21	0,5	2	250	0,0001	
				***	Filter trocken		10,44	Filter zur Hälfte trocken				5,71	Filter z.T. trocken					

Anlage 7: Ergebnisse der Grundwasserströmungsmodellierung (Datenmatrix)

Filter m u.GOK	_300: Ufer-Brunnen-Abstand [m]			H: GW-Höhe am Brunnen [m]				T: Fließzeit [d]			A: Absenkung am Brunnen[m]					A+H=95m			Q [m3]	Kf [m/s]
	A_1000	T_1000	Fehler	A_500	T_500	Fehler	A_300	T_300	Fehler	A_100	T_100	A_50	T_50	A_25	T_25	A_5	T_5	Entnahme	Kf-Wert	
10-15	2,59	102		1,37	52		0,94	30		0,51	8	0,41	3	0,36	0,7	0,3	0,07	5000	0,01	
10-15	0,94	276		0,52	134		0,36	76		0,2	19	0,16	6	0,14	2	0,12	0,2	2000	0,01	
10-15	0,46	563		0,26	272		0,18	153		0,1	37	0,08	13	0,07	4	0,06	0,4	1000	0,01	
10-15	0,34	755		0,19	363		0,13	204		0,08	49	0,06	17	0,05	5	0,04	0,5	750	0,01	
10-15	0,23	1139		0,13	546		0,09	308		0,05	74	0,04	25	0,03	8	0,03	0,7	500	0,01	
10-15	0,11	2296	0,89	0,06	1097	0,54	0,04	618	0,55	0,02	148	0,02	50	0,02	16	0,01	2	250	0,01	
10-15	7,5	88		2,95	49		1,9	29		0,98	7	0,76	3	0,64	0,7	0,51	0,07	5000	0,005	
10-15	1,96	264		1,05	132		0,71	75		0,38	18	0,29	6	0,25	2	0,2	0,2	2000	0,005	
10-15	0,92	551		0,51	269		0,35	152		0,19	36	0,15	12	0,12	4	0,1	0,4	1000	0,005	
10-15	0,68	743		0,38	360		0,26	204		0,14	49	0,11	16	0,09	5	0,07	0,5	750	0,005	
10-15	0,45	1127		0,25	543		0,17	306		0,09	73	0,07	25	0,06	8	0,05	0,7	500	0,005	
10-15	0,22	2276		0,12	1092		0,09	615		0,05	147	0,04	49	0,03	16	0,02	2	250	0,005	
10-15	***			7,01	45		3,5	28		1,65	7	1,25	3	1,02	0,7	0,78	0,07	5000	0,003	
10-15	3,61	246		1,8	128		1,19	74		0,61	18	0,47	6	0,39	2	0,3	0,2	2000	0,003	
10-15	1,59	536		0,85	265		0,57	151		0,3	36	0,23	12	0,19	4	0,15	0,4	1000	0,003	
10-15	1,16	728		0,63	356		0,43	202		0,22	48	0,17	16	0,14	5	0,11	0,5	750	0,003	
10-15	0,76	1112		0,41	539		0,28	305		0,15	73	0,12	24	0,1	8	0,07	0,7	500	0,003	
10-15	0,37	2262		0,2	1088		0,14	613		0,07	146	0,06	49	0,05	16	0,04	2	250	0,003	
10-15	***			***			***			***		***		3,22	0,7	2,25	0,07	5000	0,001	
10-15	***			***			4,44	68		1,94	17	1,43	6	1,14	2	0,79	0,2	2000	0,001	
10-15	7,24	445		2,85	246		1,82	145		0,9	35	0,68	12	0,55	4	0,38	0,4	1000	0,001	
10-15	4,23	643		2,02	338		1,32	196		0,67	47	0,5	16	0,41	5	0,29	0,5	750	0,001	
10-15	2,49	1031		1,29	521		0,86	299		0,44	71	0,33	24	0,27	8	0,19	0,7	500	0,001	
10-15	1,15	2184		0,62	1069		0,42	607		0,22	144	0,16	48	0,13	15	0,09	2	250	0,001	
10-15	***			***			***			***		***		***		***		5000	0,0005	
10-15	***			***			***			***		3,22	5	2,47	2	1,56	0,2	2000	0,0005	
10-15	***			***			4,41	135		1,91	34	1,4	12	1,1	4	0,73	0,4	1000	0,0005	
10-15	***			5,6	308		2,93	187		1,38	46	1,02	16	0,81	5	0,54	0,5	750	0,0005	
10-15	7,19	892		2,84	493		1,8	289		0,89	70	0,67	23	0,53	8	0,35	0,7	500	0,0005	
10-15	2,49	2064		1,28	1042		0,85	597		0,43	141	0,33	47	0,26	15	0,17	2	250	0,0005	
10-15	***			***			***			***		***		***		***		5000	0,0001	
10-15	***			***			***			***		***		***		***		2000	0,0001	
10-15	***			***			***			***		***		***		***		1000	0,0001	
10-15	***			***			***			***		***		***		***		750	0,0001	
10-15	***			***			***			***		***		2,99	7	1,77	0,7	500	0,0001	
10-15	***			***			***		2,45	133	1,76	44	1,35	14	0,81	2	250	0,0001		

Filter trocken

5,6 Filter z.T. trocken

SiMBaFi

Simulation Model Bank Filtration

Calculation of predicted concentrations of pharmaceutical compounds in groundwater at bank filtration sites

Manual

The screenshot displays the 'Data Input and Evaluation : Formular' window. It is divided into several sections:

- Input data:** Fields for PEC surface water (10,00 ng/L), Koc (900 mL/g), Percentage of bank filtrate (100%), Kd (2,4 mL/g), and DT 50 (100 d).
- Calculated concentrations at default flow times:** Three input fields for flow times of 0,15 d (9,87 ng/L), 5 d (6,41 ng/L), and 110 d (0,00 ng/L), with a 'Calculate' button.
- Control buttons:** A row of buttons including 'Delete all calculation results', navigation arrows, 'Add new operation', 'Standard report', and a refresh icon.
- Additional information:** A 'Comment' text area containing 'jhfdgrgdfergfdbfghmjhkuoi', and fields for 'Institution' (UBA) and 'Author' (xyz).
- User-defined calculations:** A yellow section with a 'New user-defined calculation' button and a 'Report including user-defined calculations' button. It contains two sub-sections:
 - Calculation with manual flow time input:** A 'Calculation using a manual flow time' button, 'Flow time' (25,00 d), 'Concentration at entered flowtime' (1,09 ng/L), and 'Calculate'/'Delete result' buttons.
 - Calculation with queried flow time:** A 'Calculation using a queried flow time' button, 'Calculate'/'Delete result' buttons, and four numbered input fields: 1. Screened interval (80-90 m bgl), 2. Extraction rate (2000 m3/d), 3. kf (0,003 m/s), 4. Surface water to well distance (m).

Application development:
Investigators:

Dipl. Geogr. Klaus Duscher
Dr. Stephan Hannappel (HYDOR Consult GmbH)
Dr. Matthias Zippel (HYDOR Consult GmbH)
PD Dr. Traugott Scheytt (Technische Universität Berlin)
Dipl. Geol. Beate Müller (Technische Universität Berlin)



Funded by:

Umweltbundesamt



Content

1. Objectives and Background	186
1.1 Overview and Purpose	186
1.2 Calculation Routines	187
2 Technical Information	188
2.1 Application Platform	188
2.2 Installing SiMBaFi	189
3 User Interface and Functionality	189
3.1 Main Form “Data Input and Evaluation”	189
3.1.1 Layout.....	189
3.1.2 Data Input.....	189
3.1.2.1 Header	189
3.1.2.2 Operation.....	190
3.1.2.3 Input Data (compound data).....	190
3.1.2.4 Additional Information.....	190
3.1.3 Calculation at Default Flow Times	191
3.1.4 Button Bar	191
3.1.5 Extended Calculation Options.....	192
3.1.5.1 Calculation with manual Flow Time Input	192
3.1.5.2 Calculation with queried Flow Time.....	192
3.1.6 Data Exchange.....	193
3.1.7 Routines to check Data Integrity	193
3.2 Reports	194
3.3 Software Information and Manual	194
4 License	194
5 Appendix	195

1. Objectives and Background

1.1 Overview and Purpose

The program SiMBaFi serves as a tool to calculate the predicted environmental concentrations (PEC) of pharmaceutical compounds in groundwater at bank filtration sites. Based on the predicted environmental concentration of a pharmaceutical compound in the surface water the concentration in groundwater is calculated using two kinds of information:

- Physical and chemical properties of the compound;
- Flow time between shore line and groundwater well.

The user has to enter the compound properties (K_d , DT_{50} and K_{oc}), which are used afterwards to calculate transport parameters.

The flow time of groundwater at a bank filtration site is specified by four variables

1. screened interval,
2. hydraulic conductivity of the aquifer (k_f),
3. extraction rate at the groundwater well and
4. distance between groundwater well and shore line (entry point of surface water).

Based on intensive research on all major German bank filtration sites values for these four variables were identified which represent all sites in Germany. A groundwater model was generated using the program code MODFLOW and groundwater flow velocities were calculated for each and every site.

Statistical analysis on groundwater flow time was performed for all data sets and three cases were chosen to represent 5, 20 and 50 percentile of observed values at German bank filtration sites (see table 1).

Table 1: Default flow times and model variables

Parameter	Case 1	Case 2	Case 3
Hydraulic conductivity (k_f) [m/s]	0,02	0,007	0,002
Extraction rate [m ³ /d]	3000	2000	1000
Surface water to well distance [m]	10	30	100
Screened interval [meter below ground level (m. bgl.)]	5-10	10-20	20-30
Calculated flow time [d]	0,15	5	110

However, groundwater flow time between the shore line (entry point of surface water) and the groundwater well may be entered manually, in case this information is provided.

Finally, groundwater flow time can be derived from a query of the groundwater model results in the database of SiMBaFi using values for every single of the four variables from bank filtration sites to retrieve individual groundwater flow times.

For brief information about calculation factors and methods see the manual appendix.

1.2 Calculation Routines

The calculation of the predicted environmental concentration in groundwater (PEC_{GW}) is performed in six steps, which are described below.

1. Step: Input of K_{oc}

The K_{oc} serves as a threshold value and an input is optional. The calculation with a $K_{oc} > 10,000$ L/kg is not feasible following the EMEA guideline (EMEA, 2006), as substances with an average $K_{oc} > 10,000$ L/kg are regarded immobile.

2. Step: Calculation of retardation

The retardation is calculated applying the following equation:

$$R_f = 1 + \frac{(1-n)}{n} \rho_s \cdot K_d$$

with

R_f	retardation factor [-]
n	porosity [-]
ρ_s	solid density [g/cm ³]
K_d	sorption isotherm [ml/g]

The porosity was set to a default value of 0.35 which is typical for an aquifer composed of sand and gravel. The solid density was set to a default value of 2.65 g/cm³, representing characteristic density for quartz as the main component of porous aquifer systems.

3. Step: Calculation of compound transport velocity

The retarded velocity of the compound is calculated with the following equation:

$$v_{compound} = \frac{v_{GW}}{R_f}$$

$v_{compound}$	flow velocity of compound [m/d]
R_f	retardation factor [-]
v_{GW}	flow velocity of groundwater [m/d]

4. Step: Calculation of transport time for the compound

The transport time for the compound for the distance between shore line and production well is calculated using the equation:

$$t_{compound} = \frac{x}{v_{compound}}$$

$t_{compound}$	flow time for the compound [d]
x	distance between surface water and well [m]

V_{compound} flow velocity of compound [m/d]

Remark: The calculation routine of SiMBaFi combines the equation of step 3 and step 4 to:

$$t_{\text{compound}} = t_{\text{gw}} \cdot R_f$$

with

t_{gw} groundwater flow time

As the distance between surface water and production well is fixed no flow velocities have to be calculated.

5. Step: Calculation of elimination

The (biological) degradation of the compounds during their transport from the surface water to the production well is calculated with an exponential equation:

$$c = c_0 \cdot e^{-\lambda t_{\text{compound}}}$$

c concentration at production well [ng/L]

c_0 initial concentration [ng/L]

λ decay constant [1/d]

t_{compound} transport time for the compound [d]

with

$$\lambda = \frac{\ln 2}{DT_{50}}$$

λ decay constant [1/d]

DT_{50} disappearance time of 50 % of the compound; here used as half-life time of the compound [d]

6. Step: Dilution

The program offers the possibility of manually choosing the percentage of bank filtrate at the production well. The resulting PEC_{GW} is calculated with the equation:

$$PEC_{\text{GW}} = c \cdot \left(\frac{bf}{100} \right)$$

PEC_{GW} predicted environmental concentration in groundwater [ng/L]

c concentration at production well [ng/L]

bf : percentage of bank filtrate in groundwater at production well [-]

2 Technical Information

2.1 Application Platform

SiMBaFi is a Microsoft Access[®] application. Therefore, implementation of MS Access[®] in the version 2002 or higher is required to run the program. The software was tested exclusively under the operating system Windows XP[®].

The application is delivered as an mde-file. Users are not able to read the source code or open forms and reports. Because the database window of MS Access® is hidden, it is also not possible to open database tables or queries.

2.2 Installing SiMBaFi

To install the application, simply copy the database file `simbafi_version.mde`, the icon `simbafi.bmp` and this manual to any directory of a network drive or of the computer hard disk with a free memory space of at least 75 MB. Then create a link to the file `simbafi_version.mde` on your desktop. To execute the program double click on the filename in a file manager (Explorer, Commander,...) or on the icon on your desktop.

It is not required to login as a computer administrator to install or run the program. It is however necessary to have writing permission for the directory which contains the application file.

3 User Interface and Functionality

Most functions, like entering and displaying data are concentrated in one main form. This main form contains buttons to start two kinds of reports and a further form to show the specifications of the software.

Starting the application will open the main form, which then moves to a new and empty dataset. If the main form is closed, the application will quit.

3.1 Main Form “Data Input and Evaluation”

3.1.1 Layout

The main form is divided into two parts with different colors. The blue area comprises all fields to enter data, the buttons to navigate between datasets and to calculate concentrations at default flow times.

The yellow and red colored section offers two optional calculation routines based on either a computed and/or a manually entered groundwater flow time.

All fields of the main form including calculation results are saved in a single database table. See section 3.1.6 for error messages.

3.1.2 Data Input

The colored fields in the main form are mandatory fields. These fields are either to identify a dataset or to run a calculation. If you decide to delete a dataset while entering data, you have to complete the mandatory fields in the header and the operation section first. Otherwise an error message pops up.

The following description of the data fields corresponds to the graphical structure of the main form.

3.1.2.1 Header

The field *ID* in the header part assigns a unique number to every dataset and is filled automatically.

The field *Date* allows date format only.

SiMBaFi - Simulation Model Bank Filtration
Calculation of predicted concentrations of pharmaceutical compounds in groundwater at bank filtration sites

ID: Date:

3.1.2.2 Operation

The operation component gives some general information on the pharmaceutical substance and the calculation mode. The reference number for the operation can be entered.

Operation

Reference number: Calculation mode:

Pharmaceutical compound: Brand name:

All fields are list boxes. A list contains any text saved in this field. It is possible either to choose a text from a list or to enter a new text. This facilitates the handling of data input, but does not provide a search function. You will not retrieve a saved dataset by selecting a list item.

In addition to the fields *Pharmaceutical compound* and *Brand name* the input of a *Calculation mode* offers the possibility to calculate several concentrations of the same compound.

3.1.2.3 Input Data (compound data)

The data input to calculate the predicted groundwater concentration (see section 1.2) is performed in the section shown below.

Compound data

PEC surface water: ng/L Koc: mL/g Percentage of bank filtrate: %

Kd: mL/g DT 50: d

The value entered in the field K_{oc} serves as a threshold. In case of a $K_{oc} > 10,000$ mL/g no further calculations will be performed as the substance is regarded as not mobile and a message will pop up. The default value of the *Percentage of bank filtrate* is set to 100 %, but all *percentages* between 50% and 100% will be accepted.

3.1.2.4 Additional Information

In this part an additional comment as well as the names of the author and the responsible institution may be inserted.

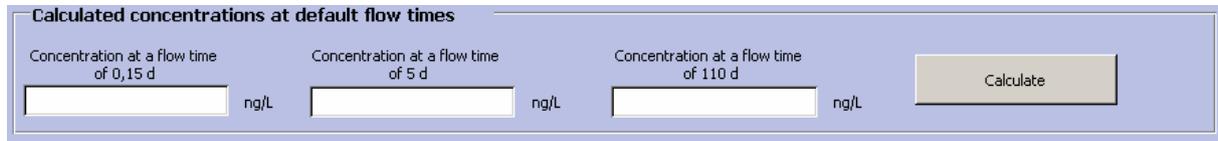
Additional informations

Comment:

Institution: Author:

3.1.3 Calculation at Default Flow Times

After completion of the mandatory fields the concentration of a pharmaceutical substance at default groundwater flow times of 0.15, 5 and 110 days is computed by clicking the button *Calculate*, which is shown in the screenshot below.



Calculated concentrations at default flow times

Concentration at a flow time of 0,15 d Concentration at a flow time of 5 d Concentration at a flow time of 110 d

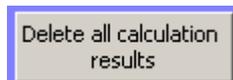
ng/L ng/L ng/L

The calculation will be carried out and the computed values are saved in the database and displayed in the main form. In case of an error message see section 3.1.6.

3.1.4 Button Bar

Button with darker blue background navigate and operate some further functions as a data backup.

The buttons are explained from left to right on the bar.



A click on this button deletes all (standard and user-defined) calculation results of the open dataset.



This button activates the search function of MS Access. Before starting this button, it is advised to click in the field with the searched item. Pressing the search button will then open a dialog box.

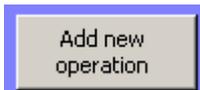
In the first list box the text or number to be searched for is entered. The field below shows the name of the field in the main form, which actually has the focus. Search takes place only in this field.

When using the replacement function it is important to notice, that after substituting a value the main form will automatically show the next dataset, in which the searched value is detected.

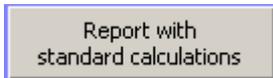


The buttons in the bar showing arrows enable the user to navigate between the datasets in the following sequence:

- first dataset
- previous dataset
- next dataset
- last dataset
- delete active dataset



To enter a new dataset press the button labeled *Add new operation*.



This button opens the report window showing the entered and the computed data at default flow times (see section 3.2).



A click on this button will close the application after opening a dialog box with the request for a confirmation to quit. It may take a short time to exit SiMBaFi, because a routine to compress the database size is activated.

3.1.5 Extended Calculation Options

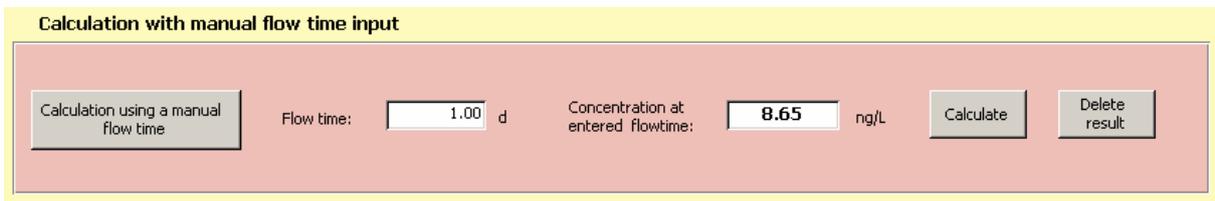
The calculation of pharmaceutical concentrations at variable flow times is carried out in the yellow colored area of the main form.

After a click on the button *New user-defined calculation* one further button in each one of the both red sectors will appear.

While moving between datasets only the fields with attached values will be visible. All other fields will be activated when data is inserted.

3.1.5.1 Calculation with manual Flow Time Input

A click on the button *Calculation using a manual flow time* in the upper red area, will activate an input box to enter a flow time of free choice. Activating the button *Calculate* on the right side opens another field displaying the computed concentration at the entered flow time. If the flow time field is already visible, the value can be changed and the calculation is carried out by clicking on the *Calculate* button again. If the values of flow time and concentration are cleared by the *Delete result* button, a new calculation has to be started by activating the button *Calculation using a manual flow time input* again.



3.1.5.2 Calculation with queried Flow Time

The calculation option in the lower red segment applies the results of groundwater modeling, which are queried from a table in the database. After pressing the button *Calculation using a queried flow time* four list boxes, which are numbered from left to right, will appear. The selectable entries in the list boxes derive from the above mentioned table, which does not contain flow time calculations for every combination of the four variables. Therefore the second list will show only those groundwater extraction rates, for which the table contains a calculation result in combination with the chosen depth of the screened interval. The

selection from the four list boxes must be proceeded from left to right (1. to 4.). Otherwise the list constraints are not applying and an error message may appear.

Calculation with queried flow time

Calculation using a queried flow time

Estimated flow time: d

Concentration at estimated flowtime: ng/L

1. Screened intervall: m bgl.

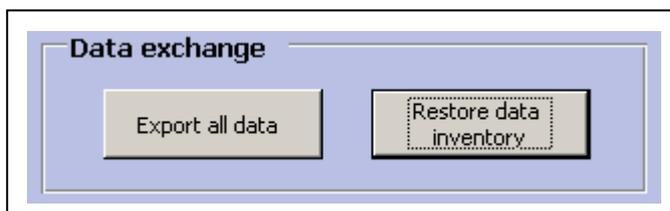
2. Extraction rate: m³/d

3. kf: m/s

4. Surface water-well distance: m

Pressing the *Calculate* button will open two fields, displaying the result of the flow time query and the corresponding calculated concentration. The *Delete* button operates in the same way as described in section 3.1.5.1.

3.1.6 Data Exchange



The data exchange section is relevant in terms of data security.

Table 2: Exported Table Columns

Exported Columns
ID
Reference number
Compound
Brand name
Calculation Mode
PECSW
KOC
Kd
DT50
Percentage bank filtrate
PECGW 0_15_d
PECGW 5_d
PECGW 110_d
Flow time manual
PECGW manual
Flow time query
PECGW query
Sreened intervall
Extraction rate
kf
Well bank dist
Comment
Author
Institution
Date

The *Export all data* button carry the saved database table in an **external** data file with the columns shown in table 2.

Users are advised to run this backup function regularly. Otherwise in case of file corruption all data are lost. After pressing the export button it is requested to choose a file format, a file name and a directory. For example, in Excel sheets up to 65.000 data sets can be stored.

To restore a former data inventory a previously exported table in format MS Excel must be saved under the name and the path c:\SIMBAFI\dataimp.xls. After pressing the button *Restore data inventory* a user is prompted to confirm the replacement of all data in the program SIMBAFI through the data from the external Excel file. It has to be emphasized, that all existing data in SIMBAFI will be deleted. For actualization reasons the application will close automatically after finishing the import routine. The imported data will be available with restarting the database.

3.1.7 Routines to check Data Integrity

Messages of the programmed routines are displayed in English language, whereas all messages activated by MS Access will appear in the language of the MS Access implementation. An error message of MS Access will for example be activated at any violation of field format restrictions (number, date, ..). An English error message appears in case of entering negative values in the numerical fields of compound properties.

If data in the sections header, operation and compound data of a saved dataset will be changed, the user is asked to confirm the deletion of all calculation results. This routine applies to the field K_{oc} only in case of an input value above 10,000 mL/g. Furthermore a K_{oc} value exceeding 10,000 mL/g will disable any calculation displaying a message box, that there is no compound transport under this condition.

If an invalid combination of values to query the flow time resulting from the groundwater modeling is chosen an error message will demand a change of data input.

Several routines of data actualization make sure, that entered data will be saved with operating any of the program functions (open report, new calculation, quit,...).

3.2 Reports

There are two report versions, which both represent the actual main form dataset. The standard report shows the concentrations at default flow times, whereas the extended report also includes user-defined calculation results. A report showing the present dataset in the main form is opened by pressing the button *Report with standard calculation* in the navigation bar or activating the button *Report including user-defined calculations*. The report design reflects the main form structure. Users are not able to change the general layout of both reports. But there is the possibility to export a report to a file and then modify the contents.

To print or export a report, first open it and then click with the right mouse button on the report. The appearing window provides an export and a print function as an MS Access standard. A standard report will only open, if concentrations at default flow times are computed. An extended report can be started after accomplishing at least one user defined calculation.

3.3 Software Information and Manual

On the right side of the main form header are two buttons. The *Info* button will open a window informing about number and publishing date of the executed application version as well as about participating and funding persons/institutions and the assigned project.

The *Manual* button will open the provided pdf-file of the manual. It has to be saved in the same directory as the file with the application database (e. g. SiMBaFi_V109.mde).

Otherwise the manual will not open using the *Manual* button.

The manual front page shows a screenshot of the Info form indicating the program version this manual refers to.

4 License

The distribution of this software is organized by the German UMWELTBUNDESAMT, which may charge a protection fee.

In case of any requests information is given also by HYDOR CONSULT GMBH, Berlin or the TECHNISCHE UNIVERSITAET BERLIN, DEPARTMENT OF APPLIED GEOSCIENCES, HYDROGEOLOGY GROUP.

5 Appendix

The program SiMBAFi includes three different possibilities of flow time input for calculation of the $PEC_{\text{Groundwater}}$ (PEC_{GW}). The standard application is based on three default flow times for groundwater flow from the surface water to the production well. These three groundwater flow times are 0.15, 5 and 110 days, representing the 5, 20 and 50 percentile of observed values at German bank filtration sites. All three default flow times are the result of a groundwater model approach and subsequent statistical evaluation of the modeling results.

The extended application includes the possibility of manually entering a residence time for groundwater flow from the surface water to the production well.

The third possibility is manually entering the parameter: screen interval, extraction rate, hydraulic conductivity (k_f) and distance between surface water and production well. Based on the results of the groundwater flow modeling a flow time for the specific case is displayed. Some combinations have resulted in falling dry of the well and are therefore not displayed. All combinations which produce unrealistic results are omitted.

The following figure shows a generalized schematic of a river bank filtration system.

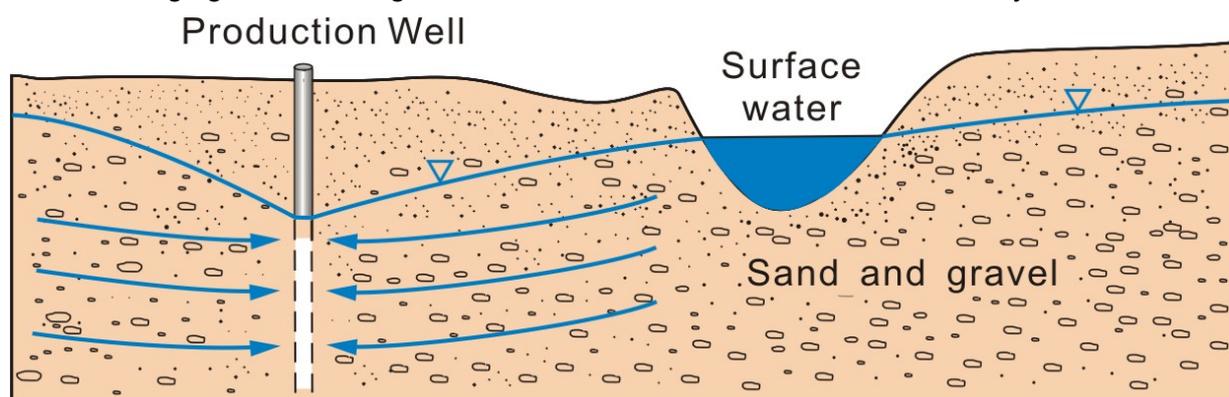


Figure 1: Schematic cross section of a river bank filtration system. The production well pumps groundwater from the aquifer which infiltrates from the surface water.

In addition to the flow time the user must enter a value for the sorption coefficient (K_d) and the disappearance time (DT_{50}). The input of K_{oc} is optional. With a $K_{oc} > 10,000$ L/kg a calculation of PEC_{GW} is not possible following the EMEA guideline, that substances with an average $K_{oc} > 10,000$ L/kg are regarded immobile (EMEA, 2006).

The determination of K_d , K_{oc} and DT_{50} is described in several OECD guidelines. The tests are performed under different laboratory conditions. The following parameters are significant factors for the laboratory tests: pH value, redox potential, temperature, sediment texture and natural organic matter content of the sediment. They have an important influence on the sorption and degradation behavior of the pharmaceutical compounds in groundwater. In the

following sections, the range of these parameters in groundwater is discussed and typical values for four German bank filtration sites are presented in table 3.

In general all laboratory tests for determination of sorption and/or degradation data should be performed under (water)saturated conditions in a water/sediment system which is in good accordance with aquifer conditions. The quality of data available for model input has a significant effect on the quality of the calculation result. For sorption coefficients and degradation rates correction factors for e.g. temperature can be applied.

pH value

The pH values in natural groundwater normally range between 5.5 and 8.0 (HÖLTING, 2009). In general groundwater originating from silicatic rock has a lower pH value than water from limestone aquifer. Exceptions are acid mine drainages with pH <5 and carbonate-rich groundwater with pH values >8 (MATTHEß, 1990). At bank filtration site pH values between 6.5 and 9.5 can be expected (TRINKWASSERVERORDNUNG, 2001). The pH values at four German bank filtration sites vary between 6.5 and 7.8 in a neutral range (see Table 3).

Aquifer material/ soil texture (clay content, natural organic matter (NOM) content)

The texture of an unconsolidated porous aquifer at bank filtration sites is in general sand and gravel with a varying content of silt and clay. The texture mostly depends on the deposition conditions, which can be marine, alluvial, fluvial, lacustrine or glacial. Furthermore the texture of the source material is important for the resulting aquifer composition (MATTHEß, 1990). Most bank filtration sites are located in alluvial aquifer systems along riverbanks. These aquifers consist of sediments ranging from sand, to sand and gravel, to large cobble and boulders (RAY ET AL. (EDS.), 2002).

The sorption capacity of aquifer material depends on the fraction of organic carbon in the sediment. Sorbents with a TOC content of < 0.1 % ($c_{org} < 0.001$ g/g) show a low sorption. The sorption in these sediments is defined by the specific surface and the texture of the minerals (SCHWARZENBACH & GIGER, 1985, MATTHEß, 1990). The organic carbon content at the four sample sites varies between 0 and 3.46 %.

Redox conditions

Within the aquifer the redox conditions can range between aerobic and anaerobic conditions. Aerobic conditions represent an oxygen influenced environment. Under anaerobic conditions no free or bounded oxygen is available for degradation and transformation processes (APPELO & POSTMA, 2005). At relatively short groundwater flow times of up to 10 days aerobic aquifer conditions can be expected at bank filtrations site since oxygen-rich surface

water infiltrates and reaches after a short transport time the production well. After such short residence times the oxygen dissolved in groundwater is not yet depleted.

Applying longer flow times for the PEC_{GW} calculation the oxygen in groundwater will be depleted by redox processes.

The degradation rates depend on the redox conditions occurring within the aquifer. Generally, for most compounds biodegradation under aerobic conditions is faster than biodegradation under anaerobic conditions (MATTHEß, 1990; LANGGUTH & VOIGT, 2004). This is also true for most pharmaceuticals for human medical care.

Groundwater temperature

The temperature of groundwater depends on the temperature of the infiltrating surface water. At low residence times and high infiltrating rates of surface water the temperature of the infiltrating water remains mostly unchanged. The infiltrating water has a strong effect on the groundwater temperature by decreasing and/or increasing it. Therefore at bank filtration sites the groundwater strongly reflects the temperature conditions of the infiltrating surface water (MATTHEß, 1990). The groundwater temperature at the four sample bank filtration sites ranges between 8.0 and 14.2°C.

The following table lists the discussed conditions at four German bank filtrations sites as examples.

Tab. 3: Characteristics of four German bank filtration sites

	Berlin – Tegeler See	Berlin - Wannsee	Flehe - Rhine	Torgau/Ost – Elbe
Aquifer material/ soil texture (clay content)	Fine to coarse grained middle sand	Fine to coarse grained middle sand	Sandy gravel (ECKERT & IRMSCHER, 2004)	Fine gravel to middle sand (GRISCHEK, 2003);
Natural organic matter content sediment	Organic carbon content 0.0-2.1 % (MASSMANN ET AL. 2007)	0.2-10 % (Massmann et al. 2008)	Total carbon content (TOC) ranges between 0.02 and 3.46 % (ECKERT, unpublished)	TOC ranges between 0.013 and 0.024 %; 100 - 200 mg/kg TOC aquifer material fraction < 2 mm (GRISCHEK, 2003)

Redox condition groundwater	Aerobic (upper aquifer) Anaerobic (lower aquifer) (unpublished LEIDIG, 2000)	Aerobic to anaerobic condition (MASSMANN ET AL. 2007)	Aerobic to denitrifying (SCHMIDT ET AL., 2004)	Denitrifying conditions (Anaerobic conditions) (GRISCHEK, 2003)
pH value groundwater	7.4 (mean value, NASRI, unpublished)		~7.2 – 7.8 (ECKERT & IRMSCHER, 2004)	6.5 – 7.4 (GRISCHEK, 2003)
Temperature groundwater [°C]	10.7 (mean value, NASRI, unpublished)	11.1 (mean value, NASRI, unpublished.)	13.3 – 14.2 (ECKERT, unpublished)	8.0 – 12.0 (GRISCHEK, 2003)

K_d and DT_{50} values derived from laboratory tests following OECD guidelines are difficult to apply to real bank filtration sites. However, if the laboratory tests for K_d and DT_{50} are performed under conditions as similar as possible to the natural aquifer system conditions these values come quite near to the natural system.

Only very few DT_{50} and K_d values for pharmaceutical substances from literature are determined in a water/sediment-system. In many cases the DT_{50} value was determined for surface water. These values are not suitable for groundwater since photo degradation can be an important degradation process in surface water but not in groundwater. Furthermore the determination of the K_d value in sewage sludge is not very well applicable for the calculation of retardation within an aquifer system. Sewage sludge shows a far higher TOC content than natural sediments.

Typical aquifer conditions are summarized and should be applied in the laboratory tests to study the behavior in groundwater at a bank filtration site:

- pH value water: 6.5 – 9.5;
- sediment material: sand to gravel with low TOC, silt and clay content;
- redox conditions: aerobic and anaerobic conditions;
- water temperature: 10 – 15°C.