

Fraunhofer-Institut für Bauphysik IBP

Forschung, Entwicklung,
Demonstration und Beratung auf
den Gebieten der Bauphysik

Zulassung neuer Baustoffe,
Bauteile und Bauarten

Bauaufsichtlich anerkannte Stelle für
Prüfung, Überwachung und Zertifizierung

Institutsleitung

Prof. Dr. Philip Leistner

IBP-Bericht UHS-006/2023

Entwicklung eines Modells zur Bewertung der Umwelteigenschaften üblicher Putze und Mörtel

Durchgeführt im Auftrag des
VDPM – Verband für Dämmsysteme,
Putz und Mörtel e. V.
Reinhardtstraße 14
10117 Berlin

Der Bericht umfasst:
80 Seiten Text
7 Tabellen
15 Abbildungen

Pablo A. Vega García
Regina Schwerd
Christian Scherer

Valley, 23. Februar 2023

Auszugsweise Veröffentlichung nur mit
schriftlicher Genehmigung des Fraun-
hofer-Instituts für Bauphysik gestattet.

Abteilungsleiter

Bearbeiter

Dr.-Ing. Christian Scherer

Dr.-Ing. Pablo A. Vega-Garcia

Inhalt

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Projektpartner | 4 |
| 2 | Bearbeitung und Publikationen | 5 |
| 3 | Zusammenfassung | 7 |
| 3.1 | Mineralische Putze und Mörtel | 8 |
| 3.2 | Pastöse Putze | 8 |
| 3.3 | Gesamtmodell | 9 |
| 4 | Abkürzungsverzeichnis | 11 |
| 5 | Ausgangssituation und Fragestellung | 13 |
| 5.1 | Ausgangssituation | 13 |
| 5.2 | Anforderungen und Vorschriften | 15 |
| 5.3 | Stand des Wissens | 18 |
| 5.3.1 | Wasserhaushalt von Fassadenoberflächen | 18 |
| 5.3.2 | Freisetzung von Stoffen aus Bauprodukten | 19 |
| 5.3.3 | Freisetzung anorganischer Stoffe | 21 |
| 5.3.4 | Freisetzung organischer Stoffe | 22 |
| 5.3.5 | Modelle für die Stofffreisetzung aus Gebäuden und Bauprodukten | 25 |
| 5.3.6 | Modelle für den Stofftransport bis zum Ort der Beurteilung | 26 |
| 5.4 | Datenbasis für das Forschungsvorhaben | 29 |
| 5.5 | Fragestellung | 30 |
| 6 | Projekthalt und Methodik | 32 |
| 6.1 | Level 1 - Fassadenwasserabflussmodell | 32 |
| 6.2 | Level 2 – Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransporte an Fassaden | 34 |
| 6.3 | Level 3 - Sickerwasserprognose | 36 |
| 6.4 | Einfluss der Fassadenausrichtung auf die Auslaugung von Bioziden | 38 |
| 6.5 | Sickerwasserprognose für Biozide (Level 3) | 40 |
| 7 | Ergebnisse und Diskussion | 45 |
| 7.1 | Level 1 – Fassadenwasserabflussmodell | 45 |
| 7.2 | Level 2 - Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransport an Fassaden | 49 |

| | | |
|-----------|--|-----------|
| 7.3 | Level 3 – Sickerwasserprognose | 51 |
| 7.4 | Einfluss der Fassadenausrichtung auf die Auslaugung von Bioziden | 53 |
| 7.5 | Sickerwasserprognose für Biozide (Level 3) | 57 |
| 8 | Schlussfolgerungen | 63 |
| 8.1 | Betrachtung mineralisch gebundener Putze und Mörtel | 64 |
| 8.2 | Betrachtung pastöser Putze | 65 |
| 8.3 | Ausblick | 67 |
| 9 | Abbildungsverzeichnis | 70 |
| 10 | Tabellenverzeichnis | 71 |
| 11 | Literatur | 72 |

1 Projektpartner

| | |
|---|---|
| Verband für Dämmsysteme, Putz und Mörtel e. V. (VDPM) | Reinhardtstraße 14 10117 Berlin |
| Brillux GmbH & Co. KG | Weseler Straße 401 48163 Münster |
| DAW SE | Roßdörfer Straße 50 64372 Ober-Ramstadt |
| Baumit GmbH | Reckenberg 12 87541 Bad Hindelang |
| DEUTSCHE ROCKWOOL GmbH & Co. KG | Rockwool Straße 37-41 45966 Gladbeck |
| Deutsches Lackinstitut GmbH | Mainzer Landstraße 55 60329 Frankfurt |
| Fels Vertriebs und Service GmbH & Co. KG | Geheimrat-Ebert-Straße 12 38640 Goslar |
| HECK Wall Systems GmbH | Thölauer Straße 25 95615 Marktredwitz |
| IMCD Deutschland GmbH & Co. KG | Konrad-Adenauer-Ufer 41-45 50668 Köln |
| Knauf Gips KG | Am Bahnhof 7 97346 Iphofen |
| Sievert Baustoffe GmbH & Co. KG | Mühlenschweg 6 49090 Osnabrück |
| Saint-Gobain Weber GmbH | Schanzenstraße 84 40549 Düsseldorf |
| Sto SE & Co. KGaA | Ehrenbachstraße 1 79780 Stühlingen |
| Thor GmbH | Landwehrstraße 1 67346 Speyer |
| Wacker Chemie AG | Johannes-Hess-Straße 24 84489 Burghausen Hanns-Seidl-Platz 4 81737 München |
| VDZ Technology GmbH | Toulouser Allee 71 40476 Düsseldorf |

2 Bearbeitung und Publikationen

Die inhaltliche Bearbeitung der Aufgabenstellung wurde im Rahmen eines Dissertationsvorhabens maßgeblich durch Herrn Dr. Pablo Vega-Garcia durchgeführt (Development of a model to assess the environmental properties of common outdoor plasters and mortars. Dissertation, Technische Universität München, 2022). Die wissenschaftliche Betreuung der Dissertation oblag Frau Prof. Brigitte Helmreich (Lehrstuhl für Siedlungswasserwirtschaft, TUM School of Engineering and Design, Technische Universität München). Des Weiteren waren Frau Prof. Anya Vollpracht als Zweitgutachterin (Institut für Bauforschung und Lehrstuhl für Baustoffkunde, RWTH Aachen University) und Herr Prof. Klaus Sedlbauer als Drittgutachter (Lehrstuhl für Bauphysik, TUM School of Engineering and Design, Technische Universität München) beteiligt.

Zusätzlich wurde das Forschungsvorhaben durch eine aus Industrievertretern (Verband für Dämmsysteme, Putz und Mörtel e. V. (VDPM), Sto SE & Co. KGaA, Saint-Gobain Weber GmbH, Dr. Robert-Murjahn-Institut GmbH) bestehende Betreuergruppe begleitet. Die Betreuergruppe brachte dabei ihre Expertise zu produkt- und anwendungsspezifischen Aspekten mit ein.

Die Inhalte und Ergebnisse des Forschungsvorhabens wurden in folgenden Publikationen der Fachöffentlichkeit zur Verfügung gestellt:

- Level 1: Fassadenwasserabflussmodell für mineralisch gebundene Fassadenbeschichtungen
Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Scherer, C., Schwitalla, C., Helmreich, B. (2020): Development of a model for stormwater runoff prediction on vertical test panels coated with plasters and mortars. *Water* 12, 2593; doi.org/10.3390/w12092593
- Level 2: Modell für Auslaugprozesse und Stofftransport auf mineralisch gebundenen Fassadenbeschichtungen
Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Schwitalla, C., Johann, S., Scherer, C., Helmreich, B. (2021): Leaching prediction for vertical test panels coated with plaster and mortars exposed under real conditions by a PHREEQC leaching model. *Chemosphere*. 280, 130657 doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.130657
- Level 3: Sickerwasserprognose für freigesetzte anorganische Stoffe
Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Johann, S., Helmreich, B. (2022): Groundwater risk assessment of leached inorganic substances from façades coated with plasters and mortars. *Chemosphere*. 287 (3), 132176. doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132176.
- Einfluss der Fassadenausrichtung auf die Freisetzung von Bioziden aus pastösen Putzen
Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Scherer, C., Schwitalla, C., Johann, S., Rommel, S.H., Helmreich, B. (2020): Influence of façade orientation on the

leaching of biocides from building façades covered with mortars and plasters. *Science of The Total Environment*. 734, 139465.
doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139465

- Level 3: Sickerwasserprognose für aus pastösen Putzen freigesetzte Biozide
Vega-Garcia, P., Lok, C. S. C., Marhoon, A., Schwerd, R., Johann, S.; Helmreich, B. (2022): Modelling the environmental fate and behavior of biocides used in façades covered with mortars and plasters and their transformation products. *Building and Environment*. 216 108991.
doi.org/10.1016/j.buildenv.2022.108991

- Überblick über das dreistufige Modell mit Schwerpunkt auf mineralischen Putzen und Mörteln
Vega Garcia, P.; Schwerd, R.; Helmreich, B. (2022): Entwicklung eines Modells zur Bewertung der Umwelteigenschaften üblicher Putze und Mörtel. *Bauphysik* 44, H. 5, S. 247–254.
<https://doi.org/10.1002/bapi.202200025>

3 Zusammenfassung

Die Freisetzung von Stoffen aus Bauprodukten bei Kontakt mit Regenwasser impliziert nicht zwangsweise eine negative Auswirkung auf die Umwelt, da nicht jeder Stoff ein umweltgefährdendes Potenzial aufweist. Die vorhandene Studienlage zeigt, dass die Freisetzung von Stoffen aus Fassadenbeschichtungen von vielen Faktoren beeinflusst wird. Einerseits gibt es große Unterschiede zwischen den Auslaugungsmechanismen von anorganischen und organischen Stoffen. Andererseits ist die Freisetzung aber auch innerhalb einer Stoffgruppe und von Rezeptur zu Rezeptur sehr unterschiedlich.

Das übergeordnete Ziel des Forschungsvorhabens war die Entwicklung eines Modells zur Bewertung der Umwelteigenschaften von üblichen Außenputzen und -mörteln. Die Betrachtung sollte dabei durchgängig vom jeweiligen Bauprodukt aus erfolgen, d.h. spezifische Produktparameter sollten Eingang in die Modellierung finden. Das angestrebte Modell zur Bewertung der Umwelteigenschaften soll es zukünftig ermöglichen, die potenziellen Umweltwirkungen für konkrete Bauprodukte durch Berechnung und ohne aufwändige praktische Versuchsreihen zu bewerten. Als Datenbasis für die Modellentwicklung dienten Ergebnisse aus vorangegangenen, umfangreichen Forschungsvorhaben.

Darauf aufbauend wurde ein dreistufiges Modell entwickelt. Die einzelnen Modell-Stufen (Level) bauen aufeinander auf: Die Ergebnisse eines vorherigen Levels dienen als Eingabeparameter für das folgende Level.

- Level 1: Dieses Teilmodell berechnet die Wassermenge, die während des Regenereignisses von der Fassade aufgenommen wird, abprallt, abläuft oder als Film darauf verbleibt. Die Quantifizierung der Abflussmenge in diesen Modellen hängt von der Schlagregenverteilung, von den Klimadaten eines Standorts und den charakteristischen Eigenschaften eines Bauprodukts ab. Die berechneten Parameter sind u. a. Abflussvolumen und laminare Fließrate. Diese Parameter werden anschließend als Eingangsparameter für die nächste Modellstufe (Level 2) benötigt.
- Level 2: Mit diesem Teilmodell wird die Auslaugung von anorganischen Stoffen aus Fassaden abgebildet. Der Fokus liegt auf der Auslaugung von Schwermetallen und Spurenelementen aus mineralischen Putzen und Mörteln. Zunächst wurden die Auslaugungsmechanismen definiert sowie anschließend der Stofftransport in der Beschichtung und der Übertritt der Stoffe ins ablaufende Wasser berechnet.
- Level 3: In der dritten Modellstufe wird eine Sickerwasserprognose durchgeführt. Diese Bewertung zeigt, ob die aus mineralischen Putzen und Mörteln ausgelaugten Stoffe ein Gefährdungspotenzial für Boden und Grundwasser darstellen oder nicht.

3.1 Mineralische Putze und Mörtel

Für das erste Teilmodell (Level 1) wurden bestehende Modellierungsmethoden für die Vorhersage des Regenwasserabflusses von mit mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln versehenen Oberflächen für einen definierten Ort und Zeitraum angepasst. Der Feuchtigkeitsgehalt hängt im Wesentlichen vom auftretenden Schlagregen und den Materialeigenschaften ab. Es wurde beobachtet, dass höhere Abflussmengen und Fließgeschwindigkeiten eher bei Materialien mit einer geringeren kapillaren Absorptionskapazität auftreten.

In das zweite Teilmodell (Level 2) fließen die physikalischen Eigenschaften eines Putzes oder Mörtels, die einen großen Einfluss auf das Freisetzungsverhalten haben, mit ein. Je geringer z. B. die Dicke und Sorptionsfähigkeit eines Materials ist, desto größer ist der Stoffaustrag an ausgelaugten Stoffen. Es zeigte sich, dass die relevanten ausgelaugten Substanzen aus Putzen und Mörteln unter realen Wetterbedingungen Sulfat, Calcium, Chrom, Vanadium und Blei sind.

Im letzten Teilmodell (Level 3) erfolgt die Bewertung der freigesetzten Stoffe mittels einer Sickerwasserprognose. Aufgrund der auftretenden Stoffkonzentrationen wurden Vanadium, Chrom und Blei als relevante Substanzen identifiziert, die grundsätzlich in Fassadenabflüssen von mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln auftreten können. Weitere anorganische Stoffe, die in den Fassadenabflüssen auftreten, geben weniger Anlass zur Besorgnis, da ihre Konzentrationen im Ablaufwasser deutlich unter den GFS liegen oder sie nicht bei jedem Regenereignis ausgewaschen werden, bzw. sie in der Umwelt ubiquitär vorkommen (z. B. Zink). Nach Anwendung der Grundannahmen der Sickerwasserprognose und den dort definierten Transportszenarien zeigte sich, dass Chrom der einzige Stoff ist, der die Verwendung einiger der mineralisch gebundenen Materialien einschränken könnte. Dies galt allerdings nur für den „ungünstigen“ und für die meisten Fassaden unrealistischen Fall mit Grundwasserständen nahe (0,1-1 m) der technischen Konstruktion. In den verbleibenden Szenarien erfüllen alle drei relevanten Stoffe für alle untersuchten Materialien die Anforderungen, so dass sie ohne Einschränkungen verwendet werden könnten. Andere Stoffe in relevanten Konzentrationen wurden aus den Rezepturen nicht freigesetzt, sodass keine GFS-Überschreitungen am Ort der Beurteilung zu erwarten sind.

3.2 Pastöse Putze

Pastöse Fassadenbeschichtungen können Biozide enthalten, die durch auftretendes Regenwasser freigesetzt werden können. Zusätzlich zu sich ständig ändernden Witterungseinflüssen während der Anwendungsdauer wird eine mathematische Betrachtung von Freisetzungs- und Transportvorgängen dadurch erschwert, dass die Substanzkonzentrationen bereits in der Matrix zeitlich veränderlich sind und Transformationsprodukte gebildet werden. Deshalb können die für die Freisetzung anorganischer Stoffe aus mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln entwickelten Teilmodelle aus Level 1 und 2 nicht ohne Weiter-

res auf pastöse Putze angewendet werden. Für pastöse Produkte kann das Level-1-Modell aber grundsätzlich adaptiert werden, da die Verfahren zur Bestimmung der Abflussmenge von Fassaden mit denen für mineralische Produkte identisch sind. Voraussetzung für eine Weiterentwicklung des Level-2-Modells sind noch detaillierte experimentelle Daten, alternativ ist ein Rückgriff auf andere, bereits beschriebene Modelle zu prüfen.

Die Ergebnisse einer Korrelationsanalyse bestätigten die Vermutung, dass der Hauptparameter, der die Auslaugung von Bioziden beeinflusst, der Schlagregen ist.

Mittels der Methodik der Sickerwasserprognose (Level 3) wurde der Stofftransport der Biozide Carbendazim (CD), Diuron (DR), n-Octylisothiazolinon (OIT) und Terbutryn (TB) sowie 10 ihrer Transformationsprodukte innerhalb eines ungesättigten Bodenkompartmentes während der Versickerung bis zum Erreichen eines definierten Orts der Beurteilung modelliert, um die Relevanz für die Grundwasserkontamination zu bewerten.

Wenn das betrachtete Bodenkompartment keine Oberbodenschicht mit hohen organischen Anteilen enthält, kann insgesamt festgestellt werden, dass die durch Modellierung ermittelten Biozidkonzentration am Ort der Beurteilung (OdB), mit Ausnahme von OIT, die Geringfügigkeitsschwellen-Werte (GFS, [LAWA 2016]) überschreiten. Bezieht man eine Oberbodenschicht mit höheren organischen Anteilen in die Modellierung mit ein, lagen alle Biozide mit Ausnahme von Diuron unterhalb der GFS. Insofern stellen Versickerungsflächen mit einer Oberbodenschicht mit hohen organischen Anteilen eine geeignete Maßnahme zur Vor-Ort-Behandlung von Fassadenablaufwässern dar. Die Ergebnisse zeigen auch, dass durch eine Verdünnung der Ablaufwässer, z. B. durch Einbeziehung von Dachablaufwässern, die am OdB auftretenden Konzentrationen abgesenkt werden können.

3.3 Gesamtmodell

Das dreistufige Modell ermöglicht die Simulation der Umweltauswirkungen für mineralisch gebundene Putze und Mörtel. Dazu müssen verschiedene Materialeigenschaften eines beliebigen Produkts und die Wetterdaten eines beliebigen Ortes in Level 1 eingegeben werden. Die Ergebnisse durchlaufen dann Level 2 mit Hilfe der Produktrezeptur. Level 3 liefert eine „Konformitätsaussage“, inwieweit das Bauprodukt für eine bestimmte Einbausituation anwendbar ist.

In vorangegangenen Forschungsprojekten wurde bereits eine Vielzahl von Produkten einschließlich Worst-Case-Rezepturen untersucht. Aufgrund der Ergebnisse dieser Studien und der Ergebnisse des oben beschriebenen Modells ist zu erwarten, dass für keinen der mineralisch gebundenen Putze oder Mörtel bei üblichen Anwendungsfällen Grenzkonzentrationen am Ort der Beurteilung überschritten werden. Es ist zu klären, ob unter diesen Umständen überhaupt eine Regulierung erforderlich ist. Mögliche Szenarien sind ein nationaler, ggf. produktbezogener oder ein EU-weiter, eher allgemeiner Ansatz. In diesem Fall

muss generell entschieden werden, ob die Ergebnisse von standardisierten Laborverfahren oder simulierte Ergebnisse aus dem dreistufigen Modell verwendet werden. Als vereinfachter Ansatz und aufgrund der bereits vorliegenden Daten (z. B. aus dem Laborverfahren nach DIN CEN/TS 16637-2) zu einem breiten Spektrum an Rezepturen lässt sich schlussfolgern, dass, wenn die Labordaten eines neuen Produktes innerhalb der bekannten Spannweite an Werten liegen, auch für dieses neue Produkt keine negativen Auswirkungen auf die Umwelt zu erwarten sind.

Für pastöse Putze und Biozide ist ein solches Vorgehen noch nicht möglich, da die Vorgehensweise zu Level 1 und Level 2 noch nicht abschließend geklärt ist, und da derzeit noch kein endgültiger Konsens darüber besteht, welche Szenarien, Eingangsparameter etc. für die Sickerwasserprognose (Level 3) verwendet werden sollen. So ist derzeit z. B. nur für Diuron ein medienenschutzbasierter Einbauwert (ME) für die Anwendung der Szenarien der Sickerwasserprognose definiert. Gleichzeitig werden die in pastösen Putzen eingesetzten Stoffe bereits über das Biozidrecht geregelt und sind entsprechend für diesen Einsatzzweck zugelassen. Eine Doppelregulierung zusätzlich über das Bauproduktenrecht ist nicht zielführend.

Umwelteinflüsse führen mit der Zeit zu einer Änderung der Materialeigenschaften. Davon sind sowohl die chemischen Prozesse in der porösen Matrix als auch der Stofftransport an der Fassadenoberfläche betroffen. Diesen Sachverhalt deckt das Modell nicht ab. Diese Alterungsprozesse müssen identifiziert und ihr Einfluss quantifiziert werden, damit sie im Anschluss in die Modellierung mit eingebunden werden können.

4 Abkürzungsverzeichnis

| | |
|------------------|---|
| ABuG | Anforderungen an bauliche Anlagen bezüglich der Auswirkungen auf Boden und Gewässer (ABuG), Anhang 10 der MVV TB |
| abZ | Allgemeine bauaufsichtliche Zulassung |
| ADP | Engl.: Antecedent dry period, Trockenperiode |
| BauPVO | Bauproduktenverordnung, auch EU-BauPVO |
| C _{org} | Gehalt an organischem Kohlenstoff |
| CD | Carbendazim |
| CFD | Engl.: Computational Fluid Dynamics, numerische Strömungssimulation |
| CWFT | Engl.: Contact Water Film Thickness, maximal mögliches Volumen |
| DIBt | Deutsches Institut für Bautechnik |
| DSLt | Engl.: Horizontal dynamic surface leaching test, Horizontale dynamische Oberflächenauslaugprüfung |
| DR | Diuron |
| DT ₅₀ | Engl.: Dissipation time, Halbwertszeit |
| DWA | Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall |
| EC | Engl.: Electrical Conductivity, Elektrische Leitfähigkeit |
| ESDAC | European Soil Data Center |
| EU | Europäische Union |
| EUGH | Europäischer Gerichtshof |
| FMM | Engl.: Facing masonry mortar, Vormauermörtel |
| GFS | Geringfügigkeitsschwelle |
| JRC | Joint Research Centre |
| K _{oc} | Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient, Sorptionskoeffizient für organischen Kohlenstoff im Boden |
| K _{sl} | Massentransferkoeffizient |
| LAWA | Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser |
| ME | Medienschutzbasierter Einbauwert |
| MVV TB | Musterverwaltungsvorschrift Technische Baubestimmungen |
| OdB | Ort der Beurteilung |
| OIT | Octylisothiazolinon |
| P | Engl.: Precipitation, Gesamtniederschlagsmenge |
| PC | Engl.: Parent Compound, organische Ausgangsverbindung |
| PNEC | Engl.: Predicted no effect concentration, prognostizierte Konzentration eines in der Regel umweltgefährlichen Stoffes, bis zu der sich keine Auswirkungen auf die Umwelt zeigen |

| | |
|-------|--|
| PSMBP | Pflanzenschutzmittel und Biozidprodukte einschließlich Abbauprodukte |
| RD | Engl.: Rain duration, Regendauer |
| RI | Engl.: Rain intensity, Regenintensität |
| RV | Engl.: Runoff volume, Fassadenabflussvolumen |
| T | Lufttemperatur bei Niederschlag |
| TB | Terbutryn |
| TP | Transformationsprodukt |
| UV | UV-Strahlung |
| WDR | Engl.: Wind driven rain, Schlagregen |
| WS | Engl.: Wind speed, Windgeschwindigkeit bei Niederschlag |

5 Ausgangssituation und Fragestellung

5.1 Ausgangssituation

Die inzwischen obsoletere europäische Bauproduktenrichtlinie [EU 1988] und die aktuelle europäische Bauproduktenverordnung [EU 2011] wurden erlassen, um den grenzüberschreitenden Handel mit Bauprodukten innerhalb der EU zu erleichtern, Handelshemmnisse abzubauen und Mehrfachprüfungen von Bauprodukten zu vermeiden [EU 1985]. Dieses Ziel soll durch die Einführung mandatiertes harmonisierter Produktnormen erreicht werden, entsprechend derer die Bauprodukthersteller Leistungserklärungen für ihre Produkte abgeben und ihr Produkt mit dem CE-Kennzeichen versehen. Die Leistungserklärung soll sämtliche Anforderungen an ein Bauprodukt adressieren, die von den Mitgliedsstaaten bei der EU für ein Bauprodukt notifiziert wurden. Ist dies der Fall, kann die Verwendbarkeit eines Bauprodukts in den Mitgliedsländern bewertet werden, ohne dass eine zusätzliche Prüfung nötig ist. Deshalb werden mandatierte horizontale Prüfnormen erarbeitet, anhand derer die Leistungen der Bauprodukte zu prüfen sind. Die so ermittelten Werte werden von allen Mitgliedsstaaten anerkannt. Die Leistungsanforderungen an die Bauprodukte legen die einzelnen Mitgliedsstaaten selbst fest. Sie können sich von Mitgliedsstaat zu Mitgliedsstaat unterscheiden.

Anhang I der europäischen Bauproduktenverordnung (EU-BauPVO, Verordnung [EU] Nr. 305/2011 vom 9. März 2011, in Kraft seit 1. Juli 2013 [EU 2011]) listet sieben Anforderungen auf, die an Bauwerke oder Teile davon gestellt werden:

- Mechanische Festigkeit und Standsicherheit
- Brandschutz
- Hygiene, Gesundheit und Umweltschutz
- Sicherheit und Barrierefreiheit bei der Nutzung
- Schallschutz
- Energieeinsparung und Wärmeschutz
- Nachhaltige Nutzung der natürlichen Ressourcen

Anforderung Nr. 3 [EU 2011] wird wie folgt konkretisiert: „Das Bauwerk muss derart entworfen und ausgeführt sein, dass es während seines gesamten Lebenszyklus weder die Hygiene noch die Gesundheit und Sicherheit von Arbeitnehmern, Bewohnern oder Anwohnern gefährdet und sich über seine gesamte Lebensdauer hinweg weder bei Errichtung noch bei Nutzung oder Abriss insbesondere durch folgende Einflüsse übermäßig stark auf die Umweltqualität oder das Klima auswirkt:

- a. Freisetzung giftiger Gase;
- b. Emission von gefährlichen Stoffen, flüchtigen organischen Verbindungen, Treibhausgasen oder gefährlichen Partikeln in die Innen- oder Außenluft;
- c. Emission gefährlicher Strahlen;
- d. Freisetzung gefährlicher Stoffe in Grundwasser, Meeresgewässer, Oberflächengewässer oder Boden;
- e. Freisetzung gefährlicher Stoffe in das Trinkwasser oder von Stoffen, die sich auf andere Weise negativ auf das Trinkwasser auswirken;
- f. unsachgemäße Ableitung von Abwasser, Emission von Abgasen oder unsachgemäße Beseitigung von festem oder flüssigem Abfall;
- g. Feuchtigkeit in Teilen des Bauwerks und auf Oberflächen im Bauwerk.“

Aus den Anforderungen an Bauwerke oder Bauwerksteile lassen sich Anforderungen an Bauprodukte ableiten.

Für die Untersuchung der Umwelteigenschaften von Bauprodukten im Kontakt mit Boden und Grundwasser entwickelte CEN/TC351 WG1 basierend auf dem Mandat M/366 der EU-Kommission zwei Auslaugverfahren [DIN CEN/TS 16637-1 bis -3]. CEN/TC 351 WG5 erarbeitet die Prüfverfahren für die Gehaltsbestimmung von ausgewählten organischen und anorganischen Stoffen in Eluaten, Extraktions- und Aufschlusslösungen. Das für eine Bauproduktgruppe anzuwendende Auslaugverfahren wird gemäß den Vorgaben der DIN CEN/TS 16637-1 ausgewählt. Für monolithische, flächige oder plattenförmige Bauprodukte wird die dynamische Oberflächenauslaugprüfung (DSL) [DIN CEN/TS 16637-2] angewandt. Beim DSLT werden die Probekörper 64 Tage lang in Wasser getaucht (Langzeittauchversuch). In vorgegebenen Abständen wird das Wasser gewechselt. Während des Wasserwechsels sind keine Trocknungsphasen vorgesehen. Die Belastung der Probekörper beim DSLT entspricht bei Putzen und Mörteln nicht der Realität. An der Fassade sind Bauprodukte einzelnen diskreten Regenereignissen ausgesetzt. Das auftreffende Regenwasser induziert dabei die Stofffreisetzung.

Der realen Beanspruchung von Fassadenbeschichtungen kommt der intermittierende Tauchversuch nach DIN EN 16105 näher. DIN EN 16105 ist jedoch keine mandatierte horizontale Prüfnorm unter Mandat M/366.

Standardisierte Prüfverfahren sollen unter festgelegten und kontrollierten Prüfbedingungen reproduzierbare Ergebnisse liefern. Die Nachbildung des Verhaltens der Bauprodukte unter realen Anwendungsbedingungen im Labor ist nicht das primäre Ziel von Prüfnormen. Vielmehr dienen sie dazu, Bauprodukte hinsichtlich ihrer Stofffreisetzung vergleichbar zu machen. Eine Bewertung der

Umweltauswirkungen der freigesetzten Stoffe ist in Prüfnormen nicht enthalten.

Stand Mitte 2022 fehlen noch zahlreiche Mandate für harmonisierte Bauproduktnormen, andere Mandate sind z. T. fehlerhaft, adressieren nicht alle Anforderungen der EU-BauPVO oder haben notifizierte Anforderungen der Mitgliedländer nicht berücksichtigt. Zum Teil sind Produkte mit CE-Kennzeichnung, die auf fehlerhaften Normen basieren und keine Leistungserklärung hinsichtlich der Anforderung Nr. 3 der EU-BauPVO beinhalten, im Markt. In der Bundesrepublik Deutschland wurde dieser Mangel dadurch behoben, dass national mit einer Allgemeinen Bauaufsichtlichen Zulassung (abZ) nachgeregelt wurde. In seinem Urteil C-100/14 stellte der EUGH fest, „dass in Bauregellisten des DIBt enthaltene technische Zusatzanforderungen an bereits europäisch harmonisierte Bauprodukte unzulässige Handelshindernisse darstellten“ [DIBt 2014]. Daraufhin wurde die Musterverwaltungsvorschrift Technische Baubedingungen (MVV TB) erlassen, die von den Bundesländern in die Landesbauordnungen übernommen werden musste. Anforderungen hinsichtlich Gesundheits- und Umweltschutz aus der Bauregelliste bzw. aus den Grundsätzen zur Bewertung der Auswirkungen von Bauprodukten auf Boden und Grundwasser [DIBt 2011] wurden in die MVV TB übernommen. In Anhang 10 der MVV TB sind die Anforderungen an bauliche Anlagen bezüglich der Auswirkungen auf Boden und Gewässer (ABuG) enthalten [DIBt 2021].

5.2 Anforderungen und Vorschriften

Hersteller von Bauprodukten, die in den Geltungsbereich mandatiertes Produktnormen fallen, müssen für die CE-Kennzeichnung Angaben zu ihrer Leistung (Leistungserklärung) machen. Produktmerkmale, die sich aus der unter der Bauproduktenverordnung harmonisierten technischen Spezifikation ergeben, müssen im Rahmen der CE-Kennzeichnung auf der Produktverpackung deklariert werden. Dazu gehören gemäß Anforderung Nr. 3 (Hygiene-, Gesundheits- und Umweltschutz) der Bauproduktenverordnung auch Aussagen zum Umweltverhalten von Bauprodukten im Kontakt mit Wasser, sofern die harmonisierte technische Spezifikation dies vorsieht. Der Grund für die Bewertung der Auswaschbarkeit mit Wasser liegt im Schutz der Umweltkompartimente Wasser und Boden. Stoffe, die durch Auswaschung aus den Bauprodukten freigesetzt werden, dürfen nicht zu einer Verschlechterung des Zustands von Böden und Gewässern führen. Daraus folgt, dass bei der Entwicklung eines Bewertungskonzeptes für freigesetzte Stoffkollektive die unterschiedlichen hoheitlichen Regelungen zum Schutz von Boden und Gewässern berücksichtigt werden müssen. Bei der Modellierung müssen auch Ansätze berücksichtigt werden, die bereits für andere Anwendungsbereiche entwickelt wurden; beispielsweise ist zu prüfen, inwieweit Ansätze aus der Sickerwasserprognose für die Bewertung von Abflusswasser aus der Gebäudehülle herangezogen werden können.

Der Schutz der natürlichen Lebensgrundlagen ist eine wichtige politische Aufgabe. Sowohl der EU- als auch der nationale Gesetzgeber erlässt Vorschriften zur Begrenzung schädlicher Einflüsse auf die Umweltkompartimente Wasser

und Boden. Auf europäischer Ebene sind hier die Wasserrahmenrichtlinie [EU 2000] und die Grundwasserrichtlinie [EU 2006-A] zu nennen, ergänzt durch Produktverordnungen wie die Biozidprodukte- und Pflanzenschutzmittelverordnung [EU 2011] und die REACH-Verordnung [EU 2006-B].

Die Umsetzung der Wasserrahmenrichtlinie (2000/60/EG) [EU 2000] soll zu einer Verbesserung der Wasserqualität von Grund- und Oberflächengewässern sowie Hoheits- und Meeresgewässern führen. Ziel ist es, eine nachhaltige Wassernutzung und den langfristigen Schutz vorhandener Ressourcen zu fördern. Bis spätestens 2027 sollen Flüsse, Seen, Übergangsgewässer, Küstengewässer und Grundwasser in einem „guten Zustand“ sein. Aus diesem Grund wurde eine begrenzte Anzahl chemischer Stoffe aufgrund ihrer weiten Verbreitung und hohen Konzentrationen in Flüssen, Seen und Küstengewässern als besonders besorgniserregend eingestuft. Ihr Eintrag in die aquatische Umwelt sollte dauerhaft reduziert werden. Diese Stoffe werden als prioritäre Stoffe bezeichnet. Für eine Untergruppe prioritärer Stoffe, für die prioritären gefährlichen Stoffe, gelten aufgrund ihrer Neigung zur Bioakkumulation, ihrer Persistenz in der Umwelt und ihrer Toxizität strengere Umweltziele. Insbesondere sollten prioritäre Gefahrstoffe so weit wie möglich eliminiert werden (Einleitungsbegründung, Satz 27 in EU 2000), damit die Konzentrationen natürlich vorkommender prioritärer Gefahrstoffe nahe an den Hintergrundwerten liegen. Die Europäische Grundwasserrichtlinie [EU 2006-A] enthält eine Mindestliste (Anhang II, Teil B) von Parametern, für die nationale Schwellenwerte festzulegen sind. Diese Werte sind definiert als das Konzentrationsniveau für einen Stoff, bei dem das Grundwasser nicht wesentlich verändert wird. Diese Mindestliste umfasst: Arsen, Cadmium, Blei, Quecksilber, Ammonium, Chlorid und Sulfat als Indikator für den Eintrag von Salzen, die die elektrische Leitfähigkeit beeinflussen. Die prioritären und prioritär gefährlichen Stoffe sind in der Richtlinie 2008/105/EG [EU 2008] aufgeführt. Dazu gehören auch Stoffe, die üblicherweise in Anstrichfarben und Beschichtungen verwendet werden oder wurden oder die grundsätzlich aus mineralischen Putzen und Mörteln freigesetzt werden können.

Im Jahr 2006 veröffentlichte die Europäische Kommission den Vorschlag für eine Richtlinie zur Schaffung eines Rahmens für den Bodenschutz [EU 2006-C]. Der Richtlinienentwurf umfasst unter anderem: Maßnahmen zur Begrenzung des Eintrags gefährlicher Stoffe in den Boden, um die Anreicherung bestimmter Stoffe im Boden zu vermeiden, die die Bodenfunktionen beeinträchtigen und eine Gefahr für die menschliche Gesundheit und die Umwelt darstellen [EU 2006-C, S. 6]. Diese Richtlinie wurde trotz langer Verhandlungen nicht angenommen und von der Europäischen Kommission im Jahr 2014 zurückgezogen.

Der rechtliche Rahmen zum Schutz von Boden und Grundwasser umfasst in Deutschland die in den einzelnen Mitgliedsstaaten unmittelbar anwendbaren Verordnungen der EU sowie die in nationale Regelungen umzusetzenden EU-Richtlinien. So wurde die Wasserrahmenrichtlinie [EU 2000] durch die Novellierung des Wasserhaushaltsgesetzes im Jahr 2000 [EU 2000] und die Wassergesetze der Länder in nationales Recht übernommen.

Weitere nationale Vorschriften sind

1. für das Schutzgut Boden:
 - a. das Bundes-Bodenschutzgesetz [BBodSchG 1998]
 - b. die Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung [BBodSchV 1999] (Eine Neufassung tritt am 01.08.2023 als Teil der MantelV in Kraft.),
2. für das Schutzgut Wasser:
 - a. das Wasserhaushaltsgesetz [WHG 2009],
 - b. die Grundwasserverordnung [GrwV 2010],
 - c. Oberflächengewässerverordnung [OGewV 2011],
 - d. die Trinkwasserverordnung [TrinkwV 2016]
3. und medienübergreifend:
 - a. die Deponieverordnung [DepV 2009]
 - b. das Kreislaufwirtschaftsgesetz [KrWG 2012] und
 - c. die Ersatzbaustoffverordnung [MantelV 2021]

Für die Bewertung des Bereichs Boden-Grundwasser im Anwendungsrahmen des BBodSchG und der BBodSchV ist eine sogenannte Sickerwasserprognose durchzuführen. Anhand der im Rahmen von Laboruntersuchungen gewonnenen Ergebnisse werden Prüfwerte berechnet, die mit den Geringfügigkeitsschwellenwerten (GFS-Werte) verglichen werden können. Die entsprechenden Berechnungen können mit dem öffentlich zugänglichen EXCEL-Programm ALTEX-1D [ALTEX 2010] durchgeführt werden, das als theoretische Grundlage die Stofftransportgleichung von Van Genuchten [Van Genuchten 1982] verwendet.

Die Geringfügigkeitsschwellenwerte (GFS-Werte) (Tabelle 1) werden von der Bund-Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser abgeleitet und werden derzeit zur Bewertung der lokalen Grundwasserbelastung herangezogen [LAWA 2016]. In Tabelle 1 sind die GFS-Werte für ausgewählte organische und anorganische Stoffe zusammengestellt. Die GFS-Werte sind konzentrationsbasierte Werte, die aus öko- und humantoxikologischen Daten abgeleitet wurden. Sie sind definiert als die Konzentrationen, die keine signifikante Veränderung des chemischen Zustands des Grundwassers bewirken oder einen „No-Effect-Level“ aufweisen [LAWA 2016]. Nach dem „Vorsorgeprinzip“ sind die GFS-Werte keine Qualitätsziele oder Zielkonzentrationen für das Grundwasser. Die GFS-Werte sollen

eine Unterscheidung ermöglichen, ob eine räumlich begrenzte Veränderung der chemischen Zusammensetzung des Grundwassers anthropogenen Ursprungs als geringfügig oder als Grundwasserverunreinigung (Grundwasserschaden) einzustufen ist. „Sie bildet die Grenze zwischen einer geringfügigen Veränderung der chemischen Zusammensetzung des Grundwassers und einer schädlichen Belastung“ [LAWA 2016]. Das beabsichtigte Ziel der GFS-Werte ist nicht nur, das Grundwasser in einem Zustand zu erhalten, in dem es weiterhin als Trinkwasser für den menschlichen Gebrauch verwendet werden kann, sondern auch sicherzustellen, dass das aquatische Ökosystem im Grundwasser funktioniert und die Artenvielfalt erhalten bleibt.

Tabelle 1:
Geringfügigkeitsschwellenwerte (GFS-Werte) [LAWA 2016], mit PSMBP = „Pflanzenschutzmittel und Biozidprodukte einschließlich Abbauprodukte“.

| Element/Ion | GFS-Werte [$\mu\text{g/L}$] |
|-------------------|-------------------------------|
| B | 180 |
| V | 4 |
| Cr | 3,4 |
| Co | 2 |
| Ni | 7 |
| Cu | 5,4 |
| Zn | 60 |
| As | 3,2 |
| Se | 3 |
| Mo | 35 |
| Cd | 0,3 |
| Sb | 5 |
| Ba | 175 |
| Tl | 0,1 |
| Pb | 0,2 |
| Fluorid | 1,2 |
| Chlorid | 250 mg/L |
| Sulfat | 250 mg/L |
| PSMBP gesamt | 0,5 |
| PSMBP Einzelstoff | 0,1 |

5.3 Stand des Wissens

5.3.1 Wasserhaushalt von Fassadenoberflächen

Bei Gebäuden mit Dachüberstand trifft Regenwasser nur dann auf die Fassade, wenn zum Regenereignis eine starke Luftbewegung hinzukommt (Schlagregen). Sowohl im Geschoßwohnungs- und Gewerbebau als auch bei Einfamilien-, Doppel- und Reihenhäusern ist in den letzten Jahren ein Trend hin zum

Flachdach ohne Dachüberstand erkennbar. Die energetische Sanierung von Bestandsgebäuden mit Wärmedämm-Verbundsystemen kann ebenfalls den Dachüberstand reduzieren und verringert damit dessen Schutzwirkung vor Schlagregen. Die sich häufenden Extremwetterlagen mit hohen Windgeschwindigkeiten und hohen Niederschlagsmengen führen zu einer stärkeren Schlagregen-Belastung der Fassaden. Das vermehrte Auftreffen von Schlagregen auf die Fassade kann einerseits zu hygrothermischen Problemen und andererseits zu einer stärkeren Auswaschung von Inhaltsstoffen aus der Fassade führen.

Viele Studien der letzten Jahrzehnte konzentrierten sich auf die Vorhersage des Auftreffens von Schlagregen auf Gebäudefassaden. Die verwendeten Modelle nutzen halbempirische Formeln [DIN EN ISO 15927-3] und numerische Simulationen mit Computational Fluid Dynamics (CFD). Eine Zusammenfassung dieser Methoden findet sich in Blocken et al. [Blocken 2012].

Von besonderem Interesse ist der Oberflächenabfluss, der nach der Wassersättigung des Fassadenmaterials auftritt, da die Auswaschung durch die Wasserverfügbarkeit an der Oberfläche sowie die Transportprozesse innerhalb der Materialien gesteuert wird [Schoknecht 2016].

5.3.2 Freisetzung von Stoffen aus Bauprodukten

In den letzten 15 bis 20 Jahren wurden an repräsentativen Materialien vieler Baustoffgruppen verschiedenste Untersuchungen zur Auslaugung von Inhaltsstoffen durchgeführt. Während anfangs die Haltbarkeit und Qualitätserhaltung des Bauprodukts im Vordergrund standen, rückten im Laufe der Jahre die möglichen Auswirkungen der freigesetzten Inhaltsstoffe auf die Umwelt in den Mittelpunkt des Interesses. Da Mörteln und Putzen komplexe Rezepturen zugrunde liegen und die Produkte – je nach Verwendungszweck – aus einer Vielzahl von Komponenten bestehen, können verschiedenste Inhaltsstoffe auf der Außenfläche von Gebäuden prinzipiell durch Feuchtigkeit mobilisiert und durch abfließendes Regenwasser aus der Fassade ausgewaschen werden.

Nach Schießl et al. [Schießl 1995] sind an der Auslaugung aus mineralischen Baustoffen folgende Transportvorgänge beteiligt:

1. Ist die Fassadenoberfläche zu Beginn des Regenereignisses trocken, dringt das Regenwasser durch kapillares Saugen in den Baustoff ein. Dabei können in den oberflächennahen Zonen auskristallisierte, wasserlösliche Verbindungen in das Innere des Baustoffs transportiert werden.
2. Gleichzeitig werden auch Substanzen von der Oberfläche abgewaschen.

3. Nur bei längerem Regen kommt es zu einer Auslaugung von Stoffen durch Diffusionsvorgänge (Konzentrationsgradient aus dem Inneren des Baustoffes zur Oberfläche).
4. Nach Beendigung des Regenereignisses trocknet der Baustoff wieder aus. Solange das Wasser aus dem Inneren des Bauteils an die Oberfläche gelangt, werden auch Stoffe transportiert. Nach dem Wasserverlust kristallisieren sie dann in oberflächennahen Zonen aus.

Verschiedene Studien nennen unterschiedliche Parameter, die die Auswaschung von berechneten Baumaterialien bei zufälligen Regenereignissen beeinflussen. Diese Parameter beziehen sich auf:

1. Substanzspezifische Eigenschaften: Die Stofffreisetzung hängt von den physikalischen und chemischen Eigenschaften einer Substanz und des Baustoffes ab, insbesondere von der Löslichkeit bestimmter Stoffe, die pH-abhängig sein kann [Garrabrants 2002; Nebel 2010; Scherer 2013; Vollpracht 2010]. Für benetzte Bauteile bei zufälligen Regenereignissen ist der pH-Wert des Materials entscheidend, nicht das Ablaufwasser [Schoknecht 2009].
2. Wechselwirkung mit anderen Stoffen: Die verschiedenen, in einem Baustoff enthaltenen Stoffe können interagieren, was zu einer Verminderung, aber auch zu einer Erhöhung der Freisetzung führen kann. Der Gehalt an sich ist nicht entscheidend für die Freisetzung von Stoffen [Hecht 2005; Schiopu 2007; Schoknecht 2009].
3. Umwelteinflüsse und Alterungsvorgänge: Nass-Trocken-Stress, Temperaturwechsel und Kontakt mit der Gasphase können eine Baustoffmatrix im Laufe der Zeit verändern; beispielsweise durch Karbonatisierung, was zu sinkenden pH-Werten führt. Dies beeinflusst die langfristige Auslaugung [Garrabrants 2002; Hecht 2005; Van Gerven 2004].

In Deutschland [DAfStb 2020] und in den Niederlanden [NEN 7375] liegen etablierte Verfahren zur Untersuchung von Bauprodukten im direkten Grundwasserkontakt vor, die die Datengrundlage für behördliche Entscheidungen liefern. Auf europäischer Ebene wurde auf Basis des Mandats M/366 der Europäischen Kommission [DIN CEN/TS 16637-1 bis -3] horizontale Prüfnormen für die Auslaugung von Bauprodukten entwickelt. CEN/TC 139 WG10 veröffentlichte bereits im Jahr 2011 eine nicht mandatierte europäische Norm [DIN EN 16105] zur Prüfung des Auslaugungsverhaltens von pastösen Beschichtungen. Alle diese Standards beschreiben nur die Herstellung des Eluats, nicht aber die Analyse der ausgelaugten Bestandteile im Eluat. CEN/TC 351 WG5 erarbeitet im Rahmen des Mandats M/366 Extraktions-, Aufschluss- und Analysenverfahren für organische und anorganische Inhaltsstoffe von Bauprodukten und Bauprodukteluaten. Um unnötige Mehrfachnormungen zu vermeiden wird dabei auf bestehende und für andere Regelungsbereiche (z. B. Abfälle, Lebensmittel,

Wasser) entwickelte Normen zurückgegriffen. Bestehende Normen werden auf ihre Anwendbarkeit geprüft und ggf. für den neuen Einsatzzweck angepasst.

5.3.3 Freisetzung anorganischer Stoffe

Anorganische Stoffe können je nach verwendetem Baustoff bei ständigem oder zeitweiligem Kontakt mit Wasser in Form von (Schwermetall- oder Spurenelement-) Salzen ausgewaschen werden. Die alleinige Kenntnis der Rezeptur eines Baustoffs reicht dabei nicht aus, um die Auswaschung vorherzusagen. In der Literatur werden die Schwermetalle Chrom, Nickel, Kupfer, Zink und Vanadium als mögliche Emissionen aus mineralisch gebundenen Fassadenputzen und -beschichtungen genannt [Clara 2014; Dijkstra 2005; Gasperi 2014; Persson 2001; Scherer 2013; Schioppa 2007; Vollpracht 2010; Weiler 2019; Weiler 2020-A; Weiler 2020-B; Wicke 2016; Wicke 2022]. Eine Studie in Berlin zeigte, dass die Einleitung von städtischen Regenwasserabflüssen in Flüsse die Konzentration einiger dieser Stoffe um den Faktor 10 erhöhen kann [Wicke 2022].

Bei Bauprodukten, die direkt im Grundwasser eingebaut werden, z. B. Beton, wurde ein nationales Bewertungskonzept für die Umwelteigenschaften auf Basis des „Standtests“ (56-tägiger Langzeitauslaugungstest nach den damals gültigen Richtlinien des Deutschen Ausschusses für Stahlbeton DAfStb ([Hohberg 2003], aktuelle Fassung [DAfStb 2020]) veröffentlicht. Nach der Veröffentlichung revidierter GFS-Werte im Jahr 2004 wurde dieses Bewertungskonzept von Brameshuber et al. [Brameshuber 2004] aktualisiert (siehe auch [DIBt 2011]). Dieses Konzept sieht Auslaugversuche für unterschiedliche Materialien in unterschiedlichen Anwendungsszenarien vor. Das DIBt-Konzept galt für erdberührte Bauteile, nicht für berechnete Bauteile wie Fassaden und Dächer [DIBt 2011; Vollpracht 2010 und Weiler 2019]. Ein ähnliches Testverfahren, das Eingangsdaten für ein anderes Bewertungssystem liefert, existiert in den Niederlanden [NEN 7375]. Im Rahmen der Arbeiten des CEN/TC 351 WG1 zur Schaffung von horizontalen Prüfverfahren, die einheitliche Daten zur Bewertung der Umweltverträglichkeit von Bauprodukten liefern, wurde der europäische Auslaugungstest [DIN CEN/TS 16637-2], der eine Synthese aus deutschem und niederländischem Testverfahren darstellt, hinsichtlich seiner Robustheit validiert [Rickert 2011]. Dieses Laborverfahren schreibt kein festes Verhältnis von Volumen zu Oberfläche oder die Geometrie der Probekörper vor. Diese Details müssen jeweils spezifisch für unterschiedliche Bauprodukt-Gruppen durch die dafür zuständigen „Technischen Komitees“ auf Produktebene ausgearbeitet und in den Normungsprozess eingebracht werden.

Stofffreisetzungen aus intermittierend bewässerten Fassaden sind aufgrund der permanenten Nass-Trocken-Belastung, die ein abweichendes Auslaugungsverhalten der Materialien hervorruft, schwer vorhersehbar und damit auch schwer abzuschätzen [Hecht 2005 und Schoknecht 2009]. Während der Trockenperioden stellt sich ein schneller Kapillartransport ein, wodurch die Verfügbarkeit von Substanzen für die Auswaschung und deren Auswaschung beim nächsten effektiven Regenereignis erhöht wird [Hecht 2005]. Auch Stoffeigenschaften, Kontaktzeit des Materials mit Wasser und die auf die Fassaden aufgetragene

Regenwassermenge beeinflussen die Menge der freigesetzten Stoffe [Weiler 2020-A]. Die Freisetzungsmuster können von denen abweichen wie sie bei dauerbenetzten Bauteilen beobachtet werden [Scherer 2013 und Weiler 2020-A]. Weiler et al. [Weiler 2020-B] formulierten die Notwendigkeit, die relevanten Einflussfaktoren auf die Auswaschung durch intermittierenden Wasserkontakt und andere Umweltfaktoren auf das jeweilige Material zu ermitteln und zu verifizieren, um durch den Einsatz zeitsparender Prüfverfahren eine breitere Datenbasis zu erhalten und sinnvolle Freisetzungsgrenzen zu definieren.

5.3.4 Freisetzung organischer Stoffe

Aus organisch gebundenen Fassadenbeschichtungen können ebenfalls Stoffe freigesetzt werden, die potenziell umweltschädlich sein und eine Gefahr für die Umweltkompartimente (z. B. ungesättigte Böden, Grund- und/oder Oberflächengewässer) darstellen können. So konnten in Fassadenabflüssen in Feldversuchen sowie im Labormaßstab organische Substanzen wie nicht umgesetzte Monomere, Zusatzstoffe, Verunreinigungen, Abbauprodukte und Biozide nachgewiesen werden [z. B. Bollmann 2016; Burkhardt 2007; Burkhardt 2011; Burkhardt 2012; Schoknecht 2009; Schoknecht 2016; Schwerd 2011; Schwerd 2015; Styszko 2016; Uhlig 2019; Wangler 2012; Wicke 2022; Wittmer 2011-A]. Eine genaue Zuordnung der ausgelaugten Stoffe zu ihren Quellen ist bei einer Quartiersbetrachtung schwierig. Dennoch können durch den Vergleich von Proben aus verschiedenen Einzugsgebieten mögliche Quellen identifiziert werden. In Ablaufwässern werden oft Stoffkonzentrationen gemessen, die mit einem einzelnen Bauprodukt und dessen verbauter Fläche nicht erklärt werden können. Da identische Substanzen oft in unterschiedlichen Bauprodukten eingesetzt werden, ist eine sichere Zuordnung von Kontamination zu Bauprodukt meist nicht möglich [Weiler 2020-A].

Wicke et al. [Wicke 2016] zeigten am Beispiel Berlin, dass je nach untersuchtem Einzugsgebiet unterschiedlichste Stoffe im Regenwasserabfluss vorkommen, und zwar teilweise in erheblichen Konzentrationen und Austragsmengen. Direkt mit Bauprodukten in Verbindung gebracht und als relevant angesehen wurden die Biozide Carbendazim (CD), Diuron (DR) und Terbutyn (TB) [Wicke 2022].

Die maximalen Biozidkonzentration im Regenwasserabfluss von Fassadenbeschichtungen sind in der frühen Lebensdauer der Beschichtungen tendenziell höher und erreichen später relativ konstante Konzentrationsniveaus, im Allgemeinen im Bereich von Hunderten von $\mu\text{g/L}$ bis mg/L [Burkhardt 2009; Burkhardt 2012; Bollmann 2014].

Im Laufe der Jahre verlagerte sich das Hauptinteresse der Forschung von der Dauerhaftigkeit eines Bauprodukts (z. B. der Schutzwirkung eines Biozids) hin zu seiner Umweltverträglichkeit [Breuer 2012; Schwerd 2011; Schwerd 2017]. Es wurde festgestellt, dass nur ein geringer Anteil (max. 13 %) der ursprünglich eingesetzten Biozide (z. B. Diuron (DR), Octylisothiazolinon (OIT), Carbendazim

(CD) und Terbutryn (TB)) innerhalb ersten 18 Monate der Nutzung durch Regenwasserabfluss der Fassadenbeschichtungen ausgelaugt werden [Schwerd 2017]. Die maximalen Konzentrationen im Abflusswasser wurden zu Beginn der Freibewitterung gemessen. Burkhardt et al. [Burkhardt 2009] zeigten Biozidkonzentration von 40 µg/L bis 7000 µg/L im Fassadenabfluss bei neu errichteten Gebäudefassaden. Nach aktuellem Stand der Technik wird der Eintrag von Bioziden aus Fassaden reduziert, indem die Wirkstoffe in Mikrokapseln eingeschlossen werden [Burkhardt 2011; Schwerd 2015].

Die Bilanzierung der eingesetzten Wirkstoffmengen, der durch Regen freigesetzten Mengen und der Restgehalte in den Beschichtungen weist teilweise große Bilanzlücken auf, was auf weitere parallel zur Auswaschung ablaufende Mechanismen hindeutet [Schwerd 2011, Schoknecht 2016; Bester 2022]. Die Auswaschung von Bioziden aus Fassadenbeschichtungen hängt nicht nur von der Verfügbarkeit von Wasser ab, sondern wird auch durch Transportprozesse innerhalb der Materialien und die Stabilität der beobachteten Stoffe gesteuert [Schoknecht 2016]. Der Auslaugungsmechanismus läuft wie folgt ab:

1. Wasser, das an der Fassadenoberfläche adsorbiert wird, wird in tiefere Schichten transportiert.
2. Biozide werden aus Partikeln oder Mikrokapseln gelöst.
3. Biozide werden durch Diffusion (getrieben durch Konzentrationsgradienten, abhängig von der Temperatur usw.) transportiert.
4. Einige Biozide werden durch Photolyse oder Hydrolyse abgebaut, was zu einer Verringerung einiger Biozidkonzentration führt.
5. Biozide gelangen in das Wasser an der Oberfläche der Beschichtung, wo Verdunstung auftritt und Wasseraufnahme stattfindet [Blocken 2012; Schoknecht 2009; Styszko 2016; Uhlig 2019].

Wangler et al. [Wangler 2012] wiesen nach, dass eine Temperaturerhöhung zu einer erhöhten Emissionsrate führt. Zudem können Temperatur und UV-Bestrahlung organische Substanzen durch Transformations- und Abbauprozesse beeinflussen [Bollmann 2016 und 2017; Schoknecht 2009]. So wurde die Bildung von Transformationsprodukten unter UV-Einfluss als Schlüsselmechanismus für den Wirkstoff TB identifiziert und die Bilanzlücke geschlossen [Bollmann 2016].

Uhlig et al. [Uhlig 2019] argumentierten, dass die Biozid-Freisetzung durch die, zu einem bestimmten Zeitpunkt, verfügbare Biozidmenge bestimmt wird. Anhand der Steigung der logarithmischen Emissionskurve kann demnach der zugrundeliegende Freisetzungsmechanismus abgeleitet werden. Knickpunkte in der Steigung dienen dabei zur Abgrenzung von Phasen, innerhalb derer ein bestimmter Mechanismus als limitierender Faktor für die Freisetzung wirkt.

Linke et al. [Linke 2021] untersuchten die Auswaschung von Bioziden (Diuron, OIT und Terbutryn), die in Fassadenbeschichtungen verwendet werden, um einzelne Quellen und Eintragspfade in einem kleinräumigen Stadtgebiet zu identifizieren. Innerhalb der Monitoringquellen wurden Abflussproben von Fassaden, Regenwasserleitungen, Entwässerungs- und Regenwasserversickerungsanlagen analysiert. Die in den Proben gefundenen Biozidkonzentration lagen mit bis zu 0,04 µg/L für Terbutryn und 0,17 µg/L für Diuron über dem jeweiligen PNEC-Wert für Oberflächengewässer von 0,034 µg/L für Terbutryn bzw. 0,02 µg/L für Diuron. Dies lässt jedoch noch keinen Rückschluss auf die tatsächlichen Konzentrationen nach Einleitung dieser Ablaufwässer in Oberflächengewässer zu. OIT wurde nicht festgestellt.

Biozide in messbaren Konzentrationen wurden in Fassadenabflüssen, Abflüssen von Dachfallrohren, Abflussrohren und Sickermulden gefunden und identifiziert. Bork et al. [Bork 2021] untersuchten die Mobilität von Bioziden in Versickerungsanlagen, indem sie den Einfluss molekularer, chemischer und struktureller Eigenschaften eines Bodenkompiments analysierten. Es wurde festgestellt, dass sich diese Eigenschaften im Laufe der Zeit verändern und damit möglicherweise auch die Relevanz bevorzugter Strömungspfade, z. B. aufgrund laufender biologischer Aktivität. Die Studie zeigte, dass sich die Rückhaltung von Spurenelementen und Bioziden trotz ähnlicher Bodentextur und chemischen Eigenschaften zwischen den Versickerungsanlagen deutlich unterschied, was auf die Zunahme der Makroporenzahl im Zusammenhang mit der biologischen Aktivität und der Alterung der Versickerungsanlagen zurückzuführen ist.

Paijens et al. [Paijens 2019] berichten, dass Biozide in der aquatischen Umwelt immer noch schlecht überwacht und reguliert werden, obwohl sie in städtischen Gebieten weit verbreitet sind. Weitere Studien zur vollständigen Risikobewertung von Biozidkonzentration in Gewässern wurden auch in einem gemeinsamen Workshop des NORMAN-Netzwerks und des Umweltbundesamts empfohlen [Pohl 2015]. Schoknecht et al. [Schoknecht 2022] entwickelten ein Zielkonzept, das es erlaubt, Erkenntnisse über Emissionsquellen, Auslaugungsprozesse, Transportwege und Auswirkungen auf die aufnehmenden Kompartimente zu integrieren, um als Grundlage für eine Umweltrisikobewertung von Bauprodukten zu dienen. Obwohl biozid wirksame Substanzen umfassend erforscht sind, ist das Umweltverhalten ihrer Transformationsprodukte bisher immer noch nicht gut verstanden und obwohl es zahlreiche Veröffentlichungen zur Überwachung neu auftretender Kontaminanten gibt, befasst sich die Mehrheit nicht mit der Regulierung von Transformationsprodukten von Ausgangsverbindungen [Lambropoulou 2014]. Gleichzeitig können diese Transformationsprodukte sehr flüchtig und toxisch sein. Transformationsprodukte, die biologisch aktiv und resistent gegen biologischen Abbau sind, gelten in diesem Zusammenhang als besonders besorgniserregend [Picó 2015].

5.3.5 Modelle für die Stofffreisetzung aus Gebäuden und Bauprodukten

Anorganische Substanzen

Die Freisetzung von Schwermetallen, Spurenelementen und Anionen aus Beton wird durch das von Schioppa et al. [Schioppa 2009] und Tiruta-Barna [Tiruta-Barna 2008] vorgestellte Modell abgebildet. Darin sind chemische Reaktionen und Transportvorgänge derart gekoppelt, dass sie die Stofffreisetzung aus einem zementbasierten Bauprodukt bei Wasserkontakt unter Freilandbedingungen beschreiben. Die Grundannahme besteht darin, dass ein monolithischer Probekörper im Laborversuch grundsätzlich den gleichen Mechanismen hinsichtlich der Auslaugung unterliegt, wie ein Bauprodukt im Freiland in realen Anwendungssituationen mit unterschiedlichen Expositions- und Auswaschungsszenarien. Die unterschiedlichen Szenarien, wie Eintauchen in stehendes oder fließendes Grund- oder Oberflächenwasser bei Fundamenten, als auch Oberflächenwasserabfluss (Regen) von Baumaterialien, sind dabei Spezialfälle des Grundszenarios.

Im Fokus standen zunächst Betonpflastersteine. Das Modell wurde mit Laborergebnissen kalibriert. Die Validierung erfolgte anschließend in einem iterativen Prozess, bei dem die simulierten Daten mit experimentell erhaltenen Freilandergebnissen abgeglichen und die Simulation bis zu einer möglichst guten Übereinstimmung optimiert wurde. Als Eingangsparameter werden u. a. die Regenwasserbilanz und die CO₂-Aufnahme aus der Atmosphäre berücksichtigt. Die betrachteten Mechanismen beinhalten chemische Reaktionen und Diffusion im (monolithischen) Bauprodukt, den Massentransfer zwischen fester und flüssiger Phase, Gasabsorption und Konvektion im Eluent. Das zur Modellierung und Simulation des Auslaugungsverhaltens verwendete numerische Tool war PHREEQC [Parkhurst 1995 und PHREEQC 2013], gekoppelt mit der thermodynamischen Datenbank des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) [Schioppa 2009 und Tiruta Barna 2008].

Organische Substanzen

Es existieren einige Modelle für die Simulation der Stofffreisetzung aus Fassaden unter realen Umweltbedingungen [z. B. Burkhardt 2018; Coutu 2012; Jungnickel 2004; Styszko 2018; Walser 2008; Wangler 2012; Wittmer 2011b; Uhlig 2019]. Die meisten dieser Modelle, zum Beispiel das von Burkhardt et al. [Burkhardt 2018] vorgestellte Modell mit der Software COMLEAM, konzentrieren sich auf die Auslaugung von Bioziden und nicht auf Schwermetalle, Spurenelemente oder Anionen. Die Modelle ermitteln anhand vordefinierter Emissionsfunktionen die ausgelaugte Stoffmenge mithilfe verschiedener Eingabeparameter (z. B. Materialart, Stoffeigenschaften, Fassadengeometrie, Witterungseinflüsse). Wenn die simulierten Materialien nicht in der Datenbank verfügbar sind, neu sind oder sich noch in der Entwicklung befinden, ist der Benutzer auf die vordefinierten Emissionsfunktionen beschränkt, die diese Programme (z. B. COMLEAM und LeachXS) anbieten, oder er muss eigene Funktionen aus experimentellen Studien ableiten.

Zur Vorhersage von Emissionswerten im Rahmen einer Risikobewertung von Biozidprodukten ist eine adäquate Modellierung von Emissionsprozessen unter Betrachtung der stattfindenden Mechanismen erforderlich [Uhlig 2019]. Die Autoren haben verschiedene Kriterien vorgeschlagen, um zu bestimmen, welcher Mechanismus den Auslaugungsprozess zu einem bestimmten Zeitpunkt steuert, indem sie die Steigung von Emissionskurven analysieren [Schoknecht 2016 und Uhlig 2019]. Eine Vielzahl von Parametern, z. B. Temperatur, relative Luftfeuchte und Globalstrahlung, wurde in diese Modellierungsansätze aufgenommen, um einen neuen Rahmen für die Interpretation und Modellierung von Biozid-Emissionskurven im Freien bereitzustellen. Tietje et al. wendeten verschiedene mathematische Funktionen an, um Emissionskurven für die Freisetzung von TB aus Fassadenputzen auf der Grundlage von experimentellen Daten aus Feldversuchen anzupassen. Dabei werden verschiedene physikalisch-chemische Prozesse wie Diffusion und Desorption mit einbezogen [Tietje 2018]. Styszko et al. entwickelten ein diffusionsbasiertes Transportmodell, das die Umverteilung von Bioziden in Putzen während Trockenperioden berücksichtigt [Styszko 2018]. Die Ergebnisse dieses Modells liegen im Bereich der Ergebnisse, die in Labortests erhalten wurden. Wangler et al. wendeten ein diffusionsbasiertes Modell für Putze an, die in ständigem Kontakt mit Wasser standen und für Versuche, die Trockenperioden beinhalteten [Wangler 2012]. Das Modell beinhaltet keine Prozesse wie Temperaturänderungen und Biozidabbau. Wittmer et al. gehen in ihrem „Four-Box Modell“ davon aus, dass die Biozidauslaugung aus Fassaden durch schnelle und langsame Diffusionsprozesse bestimmt wird. Dieses Modell wurde auf Auslaugungsdaten aus der zyklischen Exposition von Probekörpern in einer Bewitterungskammer angewendet [Wittmer 2011-B].

5.3.6 Modelle für den Stofftransport bis zum Ort der Beurteilung

Sickerwasserprognose

Das Kreislaufwirtschaftsgesetz (KrWG) fördert den Einsatz ausgewählter mineralischer Ersatzbaustoffe, die vorgegebene Anforderungen hinsichtlich der Materialqualität erfüllen, in definierten Einbauweisen (aus Anwendungstabellen). Diese richten sich nach dem höchsten zu erwartenden Grundwasserstand und den darunterliegenden Böden. Es ist keine Zustimmung im Einzelfall nach wasserrechtlichen Anforderungen einzuholen (Vereinfachung des umweltrechtlichen Genehmigungsverfahrens). Für den vereinfachten Ansatz kommt eine Sickerwasserprognose zum Einsatz.

Eine Sickerwasserprognose ist ein Konzept zur Identifizierung geeigneter Anwendungsszenarien für mineralische Werkstoffe in verschiedenen technischen Bauwerken und dauerhaften Anwendungen. Die Sickerwasserprognose konzentriert sich auf die Bewertung der Stoffauswaschung aus verschiedenen Materialien und den reaktiven Transport im ungesättigten Boden in Richtung Grundwasserspiegel [Oberacker 2002].

Der Transport von Verbindungen innerhalb eines Bodenkompartmentes umfasst dabei eine Vielzahl von Mechanismen wie Konvektion, Diffusion, Dispersion, lineare Gleichgewichtsadsorption und Produktion und Zerfall nullter oder erster Ordnung [Van Genuchten 1982]. Das Modell von Van Genuchten stellt eine eindimensionale konvektiv-dispersive Transportgleichung für gelöste Stoffe dar und geht von einer Produktion nullter Ordnung und einem Zerfall erster Ordnung von Ausgangsverbindungen im stationären Fluss aus.

Der Bewertungsprozess selbst erfolgt in Form einer vereinfachten Risikobewertung durch Vergleich von Stoffkonzentrationen („Quellterm“) mit „medienschutzbasierte Einbauwerten“ (ME). Die hierzu verwendeten Stoffkonzentrationen werden üblicherweise mittels standardisierter Laborverfahren, z. B. Säulenperkolations-tests, mit verschiedenen Vertretern einer Produktgruppe erhalten und die jeweils aktuell verfügbare Datengrundlage einer statistischen Auswertung unterzogen.

Die medienschutzbasierten Einbauwerte werden stoff- und anwendungsspezifisch mittels eines „Transportterms“ abgeleitet [Susset 2011 und Susset 2018] und sind zulässige Höchstkonzentrationen eines Stoffes im Sickerwasser am Ort der Beurteilung, üblicherweise dem Übergangsbereich von der wasserungesättigten zur wassergesättigten Bodenzone. Ziel der ME ist der Schutz von Boden und Grundwasser unter Berücksichtigung technischer Randbedingungen und politischer Konventionen. In sie fließen auch die hydraulischen Eigenschaften von Bau- und Untergründen bzw. eventuelle natürliche Hintergrundwerte mit ein. Um die Anwendung der Sickerwasserprognose zu vereinfachen, wurde eine begrenzte Anzahl von Bodenszenarien eingeführt. Es handelt sich dabei um sandige Böden mit moderatem Rückhalte- und Abbauvermögen sowie lehmige, schluffige und tonige Böden mit höherem Rückhalte- und Abbauvermögen. Diese beiden Bodenkategorien bilden laut statistischen Auswertungen von Beyer et al. [Beyer 2007; Beyer 2008] und Grathwohl et al. [Grathwohl 2006] die wichtigsten Bodeneinheiten in Deutschland ab. Die statistische Auswertung umfasste grundlegende Bodenparameter (z. B. Mächtigkeit der Bodeneinheiten, Tongehalte, pH-Werte, Gesamtgehalt an organischem Kohlenstoff und hydraulische Eigenschaften). 90 % der Böden in Deutschland weisen demnach die angenommene Rückhalte- und/oder Abbaueigenschaften für die ausgewählten zwei Bodenszenarien auf. Für diese beiden „günstigen Fälle“ wird der Ort der Beurteilung in 1 m Tiefe angenommen, der Grundwasserspiegel muss dabei dauerhaft mind. einen Meter unter der Sohle des technischen Bauwerks liegen. Zusätzlich wird noch ein bodenunabhängiger „ungünstiger Fall“ definiert, bei dem sich der Grundwasserspiegel in einem geringeren Abstand zwischen 0,1 und 1 m unterhalb der Sohle des Bauwerks befindet. Im Ergebnis resultieren für jede Einbauweise und die drei verschiedenen Untergrundkonstellationen für jeden Parameter unterschiedliche ME [Susset 2018].

Während die Auswaschung biozider Substanzen (PC) aus Fassadenbeschichtungen umfassend untersucht wurde (s. Kapitel 5.3.4), ist weder ihr Weg in das Grundwasser während der Versickerung noch das Umweltverhalten ihrer Transformationsprodukte (TP) gut verstanden. Diese Transformationsprodukte sind

von besonderem Interesse, da sie mobil, toxisch, biologisch aktiv und resistent gegen biologischen Abbau sein können [Lambropoulou 2014; Picó 2015]. Zur Akkumulation, Verteilung und zum Transport von Bioziden aus Fassadenbeschichtungen in Böden liegen derzeit keine aussagekräftigen Daten vor. Darüber hinaus werden aus den Baumaterialien ausgewaschene Biozide das ganze Jahr über unregelmäßig und unkontrolliert in den gebäudenahen Bereich übertragen [Reiß 2021], oft verdünnt durch Regenwasser oder andere Abflüsse. Die für das Verhalten bei der Bodenpassage maßgeblichen Parameter sind die Sorption und Desorption von Bioziden im Boden sowie der biologische Abbau [Reiß 2021]. Die für die Berechnung des Verhaltens von Bioziden und ihren Transformationsprodukten in Bodenkompartmenten relevanten Faktoren umfassen den Sorptionskoeffizienten für organischen Kohlenstoff im Boden (K_{oc}) und die Halbwertszeiten der Transformationsprodukte (DT_{50}) im Boden.

Die Sickerwasserprognose ist bislang nur für Diuron anwendbar, denn hier wurden bereits die zugehörigen ME abgeleitet. Für weitere Biozide, wie Terbutryn und OIT, und v. a. auch die Transformationsprodukte, bestehen teilweise noch Datenlücken für notwendige stoffliche Eingangsparameter wie die Halbwertszeit (DT_{50}) oder den Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizienten (K_{oc}) oder diese werden in der Literatur mit großen Schwankungsbreiten angegeben. Die Bestimmung dieser Parameter für die Durchführung der Transportsimulation ist somit von großer Bedeutung.

FOCUS PELMO

Für die Simulation des Verhaltens und des Transports von landwirtschaftlich genutzten Pestiziden im Boden ins Grundwasser stehen verschiedene Softwarepakete, im Wesentlichen für die Zulassung von Pestiziden (z. B. FOCUS PELMO), zur Verfügung. FOCUS ist die Abkürzung für „FORum for Coordination of pesticide fate models and their USE“. Die Simulationsprogramme der FOCUS-Reihe können beim European Soil Data Center (ESDAC), einer Einrichtung des Joint Research Centre (JRC) der Europäischen Kommission [JRC 2022], bezogen werden. Sie wurden kritisiert, weil sie das Risiko für die Umwelt unterschätzen würden [Knäbel 2014 und Knäbel 2016]. Darüber hinaus wurde FOCUS Pelmo hauptsächlich für den Einsatz von Pestiziden auf landwirtschaftlichen Flächen entwickelt, bildet also im Wesentlichen einen einmaligen, aber dafür großflächigen Eintrag ab.

PELMO ist ein eindimensionales Simulationsmodell, das die vertikale Bewegung von Pestiziden im Boden durch chromatographische Ausbreitung beschreibt. PELMO verwendet für seine Simulationen eine Wasserströmung („tipping bucket approach“) mit einem variablen Zeitschritt für alle hydrologischen Prozesse. In der FOCUS-Version werden Abfluss oder Vorzugsströmung nicht berücksichtigt. Der Pestizidtransport wird basierend auf der Konvektions-Dispersions-Gleichung berechnet. Der Abbau im Boden erfolgt nach erster Ordnung. Die Geschwindigkeitskonstanten werden jedoch für Tiefe, Bodenfeuchtigkeit und Bodentemperatur korrigiert. Die Sorption an den Boden wird basierend auf der Freundlich-Gleichung simuliert. Zusätzlich kann die kinetische Sorption mit

dem Streck-Modell berücksichtigt werden. Es ist möglich, nicht nur das Schicksal der Ausgangsverbindung, sondern das Schicksal von bis zu acht Transformationsprodukten zu simulieren. Die hierfür notwendigen Eingangsparameter K_{oc} und DT_{50} werden über verschiedene Ansätze rechnerisch abgeleitet.

PELMO ist für den Biozidtransport durch städtische Böden nur begrenzt anwendbar, da die Szenarien speziell implementiert wurden, um den Pestizideinsatz bei häufig vorkommenden Kulturpflanzen in ganz Europa darzustellen. Oberflächen und Bodentypen, die üblicherweise in städtischen Gebieten vorkommen, sind nicht vorgesehen. Darüber hinaus konzentrieren sich die in seiner Datenbank angegebenen Stoffe auf Pestizide und nicht auf Biozide, die üblicherweise in Bauprodukten verwendet werden, und die auf Gebäudefassaden und -dächern zu finden sind. Aufgrund dieser Eigenschaften des Programms ist die Verwendung für städtische Szenarien begrenzt.

5.4 Datenbasis für das Forschungsvorhaben

Um die Freisetzung relevanter Stoffe aus Putzen und Mörteln zu analysieren, wurden am Fraunhofer IBP über einen Zeitraum von mehr als 10 Jahren systematische und umfangreiche Untersuchungen an einer Vielzahl von Putz- und Mörtelrezepturen, die potenziell umweltrelevante Stoffe wie Schwermetalle, Spurenelemente und Biozide enthielten, durchgeführt. Die Untersuchungen umfassten sowohl die Exposition von Probekörpern im Freiland als auch Auslauexperimente unter reproduzierbaren Laborbedingungen.

Im Rahmen des Forschungsvorhabens „Umwelteigenschaften mineralischer Mörtel“ (2005 – 2009) wurde die Freisetzung anorganischer Inhaltsstoffe (Schwermetalle und Spurenelemente, anorganische Anionen) aus Fassadenbaustoffen im Kontakt mit Regenwasser umfassend untersucht (s. z. B. [Scherer 2013]). Verwendet wurden Worst-Case-Rezepturen, die auf dem Markt nicht erhältlich sind und einen maximalen Anteil an potenziell umweltschädlichen Bestandteilen enthielten. Am ibac der RWTH Aachen wurden ausgewählte Rezepturen aus diesem Forschungsprojekt zudem einem Berechnungsversuch im Labor und dem Standtest nach DAfStb unterzogen [Brameshuber 2009; Nebel 2010].

Für das Forschungsprojekt „Umwelteigenschaften mineralischer Mörtel und pastöser Produkte“ (2012 – 2017) wurde der Ansatz weiterentwickelt. Für dieses Projekt wurden nur einlagige Probekörper untersucht, um die Stofffreisetzung einzelnen Produkten zuordnen zu können. Das Forschungsprogramm umfasste:

- mineralische Mörtel und Putze und pastöse Putze,
- Laborprüfungen nach DIN EN 16105 und DIN CEN/TS 16637-2,
- einen 18-monatigen Freilandversuch mit vertikalen Probekörpern mit einer Fläche von je 0,5 m²,

- Freilandversuche mit Versuchshäusern mit Wärmedämm-Verbundsystemen auf Basis eines mineralischen Systems und expandiertem Polystyrol (EPS) zur Untersuchung des Einflusses der Himmelsrichtung,
- detaillierte Erfassung und Auswertung meteorologischer Daten, insbesondere der Starkregenbelastung und deren Abhängigkeit von der Himmelsrichtung,
- und Bestimmung der Abflussmengen, Summenparametern wie pH-Wert und elektrischer Leitfähigkeit sowie anorganischen (Schwermetalle, Anionen) und organischen Substanzen (Biozide) in den Eluaten.

5.5 Fragestellung

Die Freisetzung von Stoffen aus Bauprodukten bei Kontakt mit Regenwasser impliziert nicht zwangsweise eine negative Auswirkung auf die Umwelt, da nicht jeder Stoff ein umweltgefährdendes Potenzial aufweist. Die Bewertung des Auslaugverhaltens von Putzen und Mörteln im Fall einer berechneten Fassade ist jedoch bisher nicht möglich, da es kein Übertragungsmodell gibt, mit dessen Hilfe von den Ergebnissen von Auslaugversuchen auf die tatsächliche Beeinträchtigung von Boden und Grundwasser geschlossen werden kann. Anforderungen gibt es bisher nur in allgemeiner Form, z. B. in den „Anforderungen an bauliche Anlagen bezüglich der Auswirkungen auf Boden und Gewässer“ (ABuG) des DIBt.

Die vorhandene Studienlage zeigt, dass die Freisetzung von Stoffen aus Fassadenbeschichtungen von vielen Faktoren beeinflusst wird. Das komplexe Zusammenspiel dieser Faktoren ist noch nicht abschließend geklärt. Einerseits gibt es große Unterschiede zwischen den Auslaugungsmechanismen von anorganischen und organischen Stoffen. Andererseits ist die Freisetzung aber auch innerhalb einer Stoffgruppe und von Rezeptur zu Rezeptur sehr unterschiedlich.

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsvorhabens sollten daher verschiedene Fragestellungen bearbeitet werden:

- Welche Freisetzungsmechanismen herrschen in üblichen, an Fassaden eingesetzten Putzen und Mörteln vor?
- Wie können die unter Realbedingungen an einer mit einem bestimmten Produkt beschichteten Fassade anfallenden und für Auslaugprozesse zur Verfügung stehenden Wassermengen rechnerisch abgebildet werden?
- Ist eine Modellierung der stattfindenden Stofffreisetzung nicht nur durch mathematische Funktionen, sondern unter Einbeziehung der chemischen und physikalischen Lösungs- und Transportprozesse möglich?
- Wie lassen sich Transportvorgänge in den Umweltkompartimenten Boden und Grundwasser abbilden?

- Wie kann eine Bewertung möglicher Stoffeinträge am Ort der Beurteilung vorgenommen werden?

Das übergeordnete Ziel war die Entwicklung eines Modells zur Bewertung der Umwelteigenschaften von üblichen Außenputzen und -mörteln. Die Betrachtung sollte dabei durchgängig vom jeweiligen Bauprodukt aus erfolgen, d.h. spezifische Produktparameter sollten Eingang in die Modellierung finden. Zusätzlich war zu prüfen, ob ggf. bereits existierende (Teil-) Konzepte bzw. Modellierungsansätze für den beschriebenen Anwendungsfall angepasst bzw. weiterentwickelt werden können.

Das angestrebte Modell zur Bewertung der Umwelteigenschaften soll es zukünftig ermöglichen, die potenziellen Umweltwirkungen für konkrete Bauprodukte durch Berechnung und ohne aufwändige praktischen Versuchsreihen zu bewerten. Auf Basis der Simulationsergebnisse können Behörden einen eventuell nötigen Regulierungsbedarf ableiten oder die Hersteller die Umweltverträglichkeit ihrer Produkte belegen. Falls nötig, können für bestimmte Materialien eingeschränkte Anwendungsbereiche definiert werden. Zudem werden Hersteller in die Lage versetzt, ggf. kritische Rezepturbestandteile durch Alternativen zu substituieren.

6 Projektinhalt und Methodik

Um das Verhalten von an Fassadenbeschichtungen eingesetzten Putzen und Mörteln unter realen Anwendungsbedingungen abzubilden, können eine Vielzahl von (sich zusätzlich noch zeitlich veränderlichen) Parametern messtechnisch erfasst werden:

- Meteorologische Parameter, z. B. Niederschlag, Regendauer, Windrichtung, Windgeschwindigkeit, relative Feuchte, Lufttemperatur, solare Einstrahlung
- Bauteilparameter, z. B. berechnete Oberfläche, Himmelsrichtung, Schichtdicke
- Produktparameter, z. B. Sorptionskapazität, Rauigkeit, mineralogische Zusammensetzung, Diffusionskoeffizient
- Ablaufparameter, z. B. Abflussvolumina, Art der freigesetzten Stoffe, Stoffkonzentrationen, Summenparameter (z. B. pH-Werte)

Diese messtechnisch erfassbaren Parameter dienen als Grundlage für die rechnerische Ermittlung von resultierenden Stoffkonzentrationen am Ort der Beurteilung. In den Prozess fließen verschiedene Modellannahmen für die Durchführung der Transportbetrachtung ein. Erst im Anschluss kann eine Bewertung der Umwelteigenschaften eines Produkts erfolgen.

6.1 Level 1 - Fassadenwasserabflussmodell

Ein Fassadenwasserabflussmodell wurde entwickelt, um die Wassermenge zu bestimmen, die während eines zufälligen Regenereignisses mit der Fassade in Kontakt kommt. Das Modell berechnet die Wassermenge, die während des Regenereignisses aufgenommen wird, von der Fassade abprallt, abläuft oder als Film darauf verbleibt. Die Quantifizierung der Abflussmenge in diesen Modellen hängt von der Schlagregenverteilung nach Blocken et al. [Blocken 2012], von den Klimadaten eines Standorts und den charakteristischen Eigenschaften eines Bauprodukts ab.

Um die Regenwassermenge zu simulieren, die auf eine Fassade auftrifft, im Material absorbiert wird und dann abfließt, wurde ein Gitternetz über die Modelloberfläche gelegt. Probekörper-Oberflächen mit einer Größe von 0,5 m × 1,0 m wurden dazu in Elemente mit einer Fläche von 10 mm × 10 mm aufgeteilt. Sobald die auftreffende Schlagregenmenge (WDR) die Sorptionskapazität des Materials übersteigt, bildet sich ein Wasserfilm auf der Oberfläche. Ab einer bestimmten Dicke des Wasserfilms übersteigen die Gravitationskräfte die zwischen dem auftreffenden Wasser und der Materialoberfläche entstehenden Spannungskräfte. Dieser Prozess lässt den Wasserfilm nach unten fließen

und es entstehen Ablaufspuren. Je nach Strömungsgeschwindigkeit, die von der Durchflussmenge abhängig ist, sind diese Ablaufspuren geradlinig oder mäandrierend. Um eine einzelne Ablaufspur auf einer Probekörperoberfläche zu simulieren, wird ihre Größe proportional zur Breite des Gitterelements festgelegt. Der Fließweg innerhalb eines Gitterelements wird durch die Fließrate und eine zufällig zugeordnete Rauheitsverteilung bestimmt [Le Grand-Piteira 2006].

Die Größenverteilung der auftreffenden Regentropfen wird durch die horizontale Niederschlagsintensität definiert, die man aus Wetterdaten erhält. Diese Verteilung erzeugt zufällige Regentropfen mit zufälligen Durchmessern in Übereinstimmung mit der im untersuchten Gebiet vorherrschenden mittleren Größe. Ein zufälliger Tropfen trifft in jeder Berechnungsschleife, die durch einen bestimmten Zeitintervall definiert ist, auf ein zufälliges Gitterelement. Jedes Mal, wenn ein Regentropfen auf die Probekörperoberfläche trifft, spritzt ein Teil davon ab. Das restliche Volumen wird teilweise absorbiert, der Rest bildet einen Film im entsprechenden Gitterelement. Wenn eine bestimmte Schichtdicke erreicht ist, fließt das Wasser nach unten ab oder verbleibt als Film im Gitterelement, bis sich weiteres Wasser ansammelt. Die heruntergeflossene Wassermenge wird dann zum darunterliegenden Gitterelement transportiert. Die Strömung folgt dem Gitterelement mit der geringsten Rauigkeit, die durch die Rauigkeitsverteilung (durch zufällige Zuordnung von Rauigkeitskoeffizienten zu jedem Gitterelement) gegeben ist. Nachdem das überwiegende Volumen nach unten geflossen ist, bleibt ein Spurenvolumen im jeweiligen Gitterelement zurück. Wenn das angeströmte Gitterelement bereits das maximal mögliche Volumen (CWFT) erreicht hat, so läuft das Abflussvolumen weiter nach unten ab und hinterlässt in jedem der Gitterelemente erneut ein Spurenvolumen. Die Abflussmenge stoppt in einem Gitterelement, das noch nicht das CWFT erreicht hat. Es wird absorbiert oder verbleibt dort, je nach Zustand des Gitterelements, bis sich weiteres Wasser ansammelt und die Möglichkeit hat, nach unten zu fließen. Letztendlich ist die Abflussmenge definiert als die Abflussmenge, die bis zum Grund des Gitters geflossen ist und die Ebene verlässt. Dieser Prozess wird für jedes einzelne Gitterelement innerhalb jeder Berechnungsschleife berechnet. Danach wird durch die Zeit zwischen jedem auftreffenden Regentropfen ein neuer Zeitschritt definiert, und die nächste Berechnung beginnt.

Um die Ergebnisse zwischen dem Modell und den im Freilandversuch ermittelten Abflussmengen vergleichen zu können, wurden reale Wetterparameter (Regenintensität, Temperatur, Regendauer, Windrichtung) aus den Untersuchungen des Fraunhofer IBP (Forschungsprojekt „Umwelteigenschaften mineralischer Mörtel und pastöser Produkte“ siehe Abschnitt 4.4) verwendet. Als Eingangsparameter werden Wetterdaten wie Regenintensität, Temperatur, Regendauer, Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Regentropfengröße und Materialeigenschaften wie Sorptionskapazität, zufällige Rauigkeit, Abprall und Fassadengeometrie verwendet.

Die technischen Details und die vollständige Entwicklungsmethode des Modells sind [Vega-Garcia 2020-B] beschrieben.

6.2 Level 2 – Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransporte an Fassaden

Mit diesem Teilmodell wird die Auslaugung von anorganischen Stoffen aus Fassaden abgebildet. Der Fokus liegt auf der Auslaugung von Schwermetallen und Spurenelementen aus mineralischen Putzen und Mörteln. Zunächst wurden die Auslaugungsmechanismen definiert und anschließend der Stofftransport in der Beschichtung nach Schioppa [Schioppa 2009] und Tiruta-Barna [Tiruta-Barna 2008] berechnet. Dazu wird das System in zwei Kompartimente unterteilt. Das erste Kompartiment ist die "poröse Matrix" (Material), das zweite ist das "Auslaugungskompartiment" (Oberfläche des Materials in Kontakt mit dem Eluent (Bild 1)). Anschließend wird das Programm PHREEQC [PHREEQC 2013] verwendet, um alle chemischen Prozesse zu modellieren und die Berechnung der kinetischen Reaktionen und Speziation der Elemente in den einzelnen Kompartimenten zu vereinfachen.

Zur Modellierung von Auslaugungsversuchen im Freiland mit wechselnden Niederschlags- und Trocknungsperioden werden zwei Szenarien definiert. Das erste Szenario ist das „effiziente Regenereignis“. In diesem Szenario läuft Regenwasser bei einem Regenereignis über die Oberfläche ab und kann aufgefangen werden. Die Bedingungen lassen keinen Stoffaustausch zu, ermöglichen aber den Transport eines Stoffes über die Fassade. Das zweite Szenario ist die „Dauer zwischen zwei Regenereignissen“ (Bild 2). Hier werden die physikalisch-chemischen Prozesse und die Diffusion innerhalb der gesättigten, porösen Materialkompartimente während der Trocknungszeiten berücksichtigt.

Basierend auf dem Freilandversuch und den oben abgebildeten Szenarien wurde das PHREEQC-Modell für die Auslaugungsversuche im Freiland an 47 „effiziente Regenereignis“-Szenarien und 47 „Dauer zwischen Regenereignissen“-Szenarien angepasst, die den oben erwähnten 18-monatigen Freilandversuchen entsprechen (s. Kapitel 5.4). Zeitintervalle wurden entsprechend der Regendauer für das erste Szenario und den vorausgehenden Trockenperioden (ADP) für das zweite Szenario festgelegt. Die Dauer jedes Szenarios wurde aus den Ergebnissen des „Level 1“-Modells rechnerisch ermittelt.

Die verschiedenen Stoffaustauschströme wurden berechnet. Zur Simulation dieser Prozesse im ersten Szenario wurden Abflussmengen und Abflussraten ($Q \neq 0$), für das zweite Szenario ADP und das absorbierte Wasservolumen aus dem Level 1-Modell verwendet (Bild 2). Die von PHREEQC verwendete Methode, um die Kinetik erster Ordnung mit dem Transport des Sickerwassers zu assimilieren, ist der Runge-Kutta-Algorithmus. Die Karbonatisierungsrate durch CO_2 wird ebenfalls durch das Modell abgebildet. Der verwendete Massentransferkoeffizient k_{SL} von $3,3 \times 10^{-4}$ wurde ermittelt, indem das Modell mit pH-Werten, die im Freilandversuch erhalten wurden, angepasst wurde. Die Validierung der rechnerisch erhaltenen Ergebnisse (Konzentrationen und pH-Werte der Ablaufwässer) erfolgte anschließend durch Vergleich mit den Ergebnissen aus den Freilandversuchen.

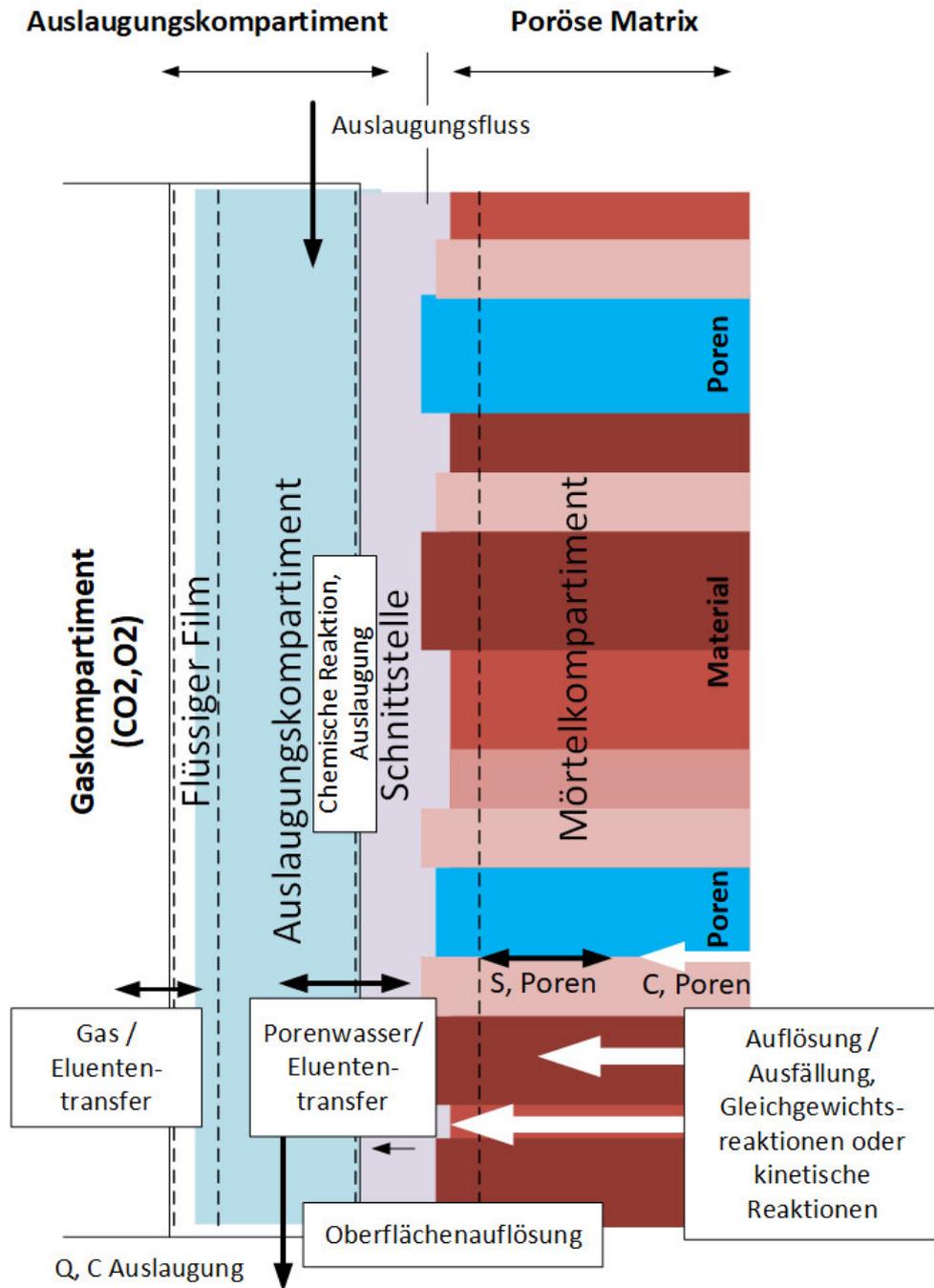


Bild 1:
Kompartimente und Mechanismen nach Schioppa und Tiruta-Barna [Schioppa 2009 und Tiruta-Barna 2008] zur Modellierung der Auslaugung von anorganischen Stoffen aus Putz- und Mörtelfassaden. Dabei bedeutet S die Porenkonzentration im ungelösten, festen Zustand und C die Porenkonzentration im Porenwasser. Q ist der Fluss, und $C_{\text{Auslaugung}}(t)$ die Konzentration zu einem bestimmten Zeitpunkt t.

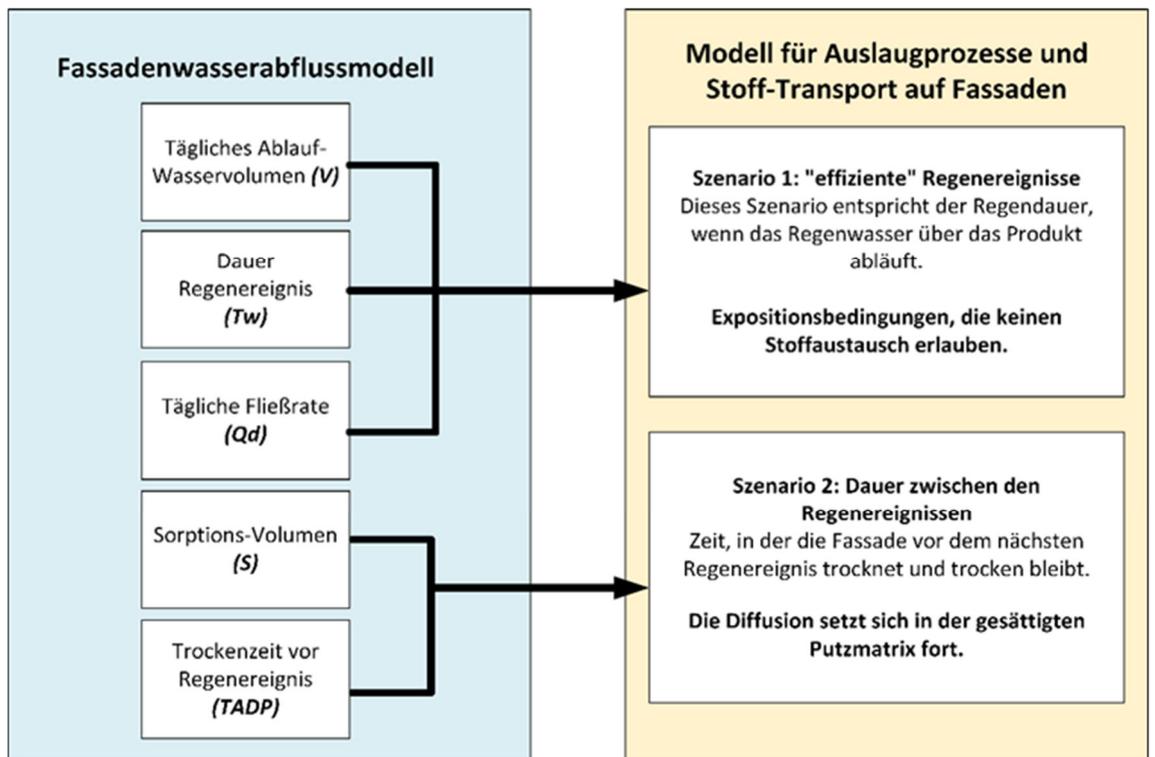


Bild 2:
Kopplung des Fassadenwasserabflussmodells (Level 1) mit dem Modell für Auslaugprozesse und Stoff-Transport auf Fassaden (Level 2).

Die technischen Details und die vollständige Entwicklungsmethode des Modells wurden in [Vega-Garcia 2021-A] veröffentlicht.

6.3 Level 3 - Sickerwasserprognose

Die Sickerwasserprognose ist ein prozessbasiertes Konzept für den Einsatz mineralischer Werkstoffe in verschiedenen technischen Konstruktionen und dauerhaften Anwendungen. Aufgrund der Einfachheit des Vergleichs von simulierten Abflusskonzentrationen mit den in umfangreichen Vorarbeiten erarbeiteten, detaillierten ME-Tabellen [Susset 2011 und Susset 2018] und der bereits vorhandenen Akzeptanz der Methodik wurde die Sickerwasserprognose ausgewählt, um schließlich die Umweltwirkungen eines mineralischen Putzes oder Mörtels bewerten zu können.

Mittels der Sickerwasserprognose [Susset 2011] wurde eine Umweltbewertung von aus der Fassade ausgelaugten Stoffen („Quellterm“) entwickelt. Diese Bewertung zeigt, ob die aus mineralischen Putzen und Mörteln ausgelaugten Stoffe ein Gefährdungspotenzial für Boden und Grundwasser darstellen oder nicht.

Folgende Schritte wurden durchgeführt:

1. Zunächst sind relevante Stoffe für mineralische Putze und Mörtel anhand der Eluatkonzentrationen des Level 2-Modells unter Berücksichtigung der „Geringfügigkeitsschwelle“ (GFS) zu identifizieren. In Deutschland sollten die freigesetzten Stoffkonzentrationen die von der Länderarbeitsgemeinschaft Wasser [LAWA 2016] angegebene GFS „am Ort der Beurteilung“ (1 m unter der Oberfläche der technischen Anlage bzw. am Übergang von der ungesättigten Transportzone ins Grundwasser) nicht überschreiten (Bild 3). Aus Level 2 resultierende Stoffkonzentrationen, die bereits direkt unterhalb der Fassade kleiner als die GFS sind, werden als nicht relevant angesehen und daher von weiteren Betrachtungen ausgeschlossen.
2. Die relevanten Stoffe und deren errechnete Konzentrationen (Referenzgröße: 47 Regenereignisse innerhalb von 18 Monaten) für die mineralischen Putze und Mörtel werden einer statistischen Auswertung unterzogen. Diese statistische Auswertung führt zu den Minimal-, Maximal-, Durchschnitts-, Median-, 70. Perzentil-, 80. Perzentil- und 90. Perzentilwerten der in Level 2 erhaltenen Konzentrationen.
3. Als letzter Schritt werden die Ergebnisse der statistischen Auswertung für jeden der simulierten Putze und Mörtel mit den medienschutzbasierten Einbauwerten (ME) der ausgewählten bautechnischen Anwendung der verschiedenen Szenarien verglichen. Gemäß [Susset 2011 und Susset 2018] ist die Verwendung eines Materials für eine bestimmte Anwendung in technischen Bauwerken uneingeschränkt zulässig, wenn das 90. Perzentil der Konzentrationswerte aller relevanten Stoffe alle abgeleiteten MEs für die entsprechende Anwendung nicht überschreitet.

Für mit mineralischen Putzen und Mörteln beschichtete Fassaden muss also vor „Schritt 3“ eine bautechnische Anwendung für die Sickerwasserprognose ausgewählt werden, um die zugehörigen ME anwenden zu können. Derzeit wird das Szenario „Fassade“ noch nicht in den Anwendungen der Sickerwasserprognose aufgeführt [Susset 2018]. Daher wurde alternativ die „technische Anwendung Nr. 13“ ausgewählt. Diese technische Anwendung umfasst ursprünglich folgende Fälle: Deck- und Tragschichten ohne Bindemittel, Bodenverbesserungsflächen, Bodenverfestigungszonen, Unterbauten bis 1 m Dicke ab Planum und Baugruben und Rohrgräben unter der Deckschicht. Sie ist vergleichbar mit einem offenen Kiesparkplatz ohne Vegetation. Die Eigenschaften der grundwasserüberdeckenden Schicht nach der gewählten Anwendung sind jedoch wegen ihrer hohen Sickerwasserrate (859 mm/a) hydrologisch am empfindlichsten, was eine konservative Betrachtung von Fassadenabflüssen zulässt [Susset 2018]

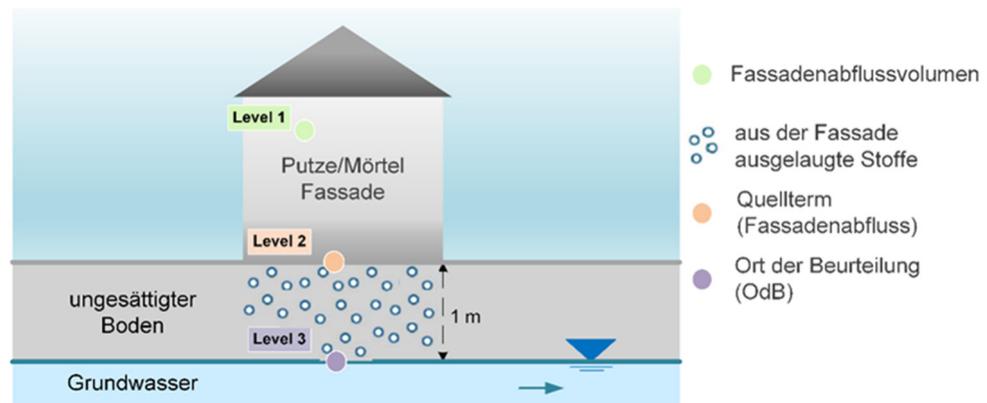


Bild 3:
 Quellterm (ausgelaugte Stoffe im Fassadenabfluss), ungesättigte Transportzone und Ort der Beurteilung, an dem die GFS nicht überschritten werden sollen (Vega-Garcia 2021-B).

Die technischen Details und die vollständige Entwicklungsmethode des Modells wurden in [Vega-Garcia 2021-B] veröffentlicht.

6.4 Einfluss der Fassadenausrichtung auf die Auslaugung von Bioziden

Die ersten beiden Teilmodelle aus Level 1 und Level 2 ermöglichen die Berechnung der Freisetzung relevanter anorganischer Substanzen aus mineralisch gebundenen Mörteln und Putzen. Um auch die Modellierung des Umweltverhaltens von Bioziden in Angriff nehmen zu können, wurden Daten aus früheren Untersuchungen zur Freisetzung von Bioziden aus Fassadenbeschichtungen (Kapitel 5.4) aufbereitet. Im Fokus stand v.a. der Einfluss der Ausrichtung von Fassaden auf das Freisetzungsverhalten der Biozide.

Ausgewertet wurden die Ergebnisse der 18-monatigen Feldversuche mit Modelhäusern mit zwei unterschiedlichen Putzzusammensetzungen und unterschiedlichen Bioziden, deren Fassaden nach den vier Himmelsrichtungen (Nord, Ost, Süd und West) ausgerichtet waren.

Die Zusammensetzung der Putze war wie folgt:

- Haus 1: 12 % Dispersionspolymer, 3 % Weißpigment, 4 % Marmor-korn, 27 % Marmormehl, 40 % Dolomitkorn, 3 % Flammschutzmittel, 2 % Koaleszenzmittel und 9 % Wasser.
- Haus 2: 14 % Dispersionspolymer, 3 % Weißpigment, 40 % Marmor-körnung, 31 % Marmormehl, 3 % Flammschutzmittel, 2 % Koaleszenzmittel und 7 % Wasser.

An den Fassaden resultierten somit Biozidkonzentration von 140 bis 1000 mg Wirkstoff (Biozid) pro Kilogramm Putz.

Es ergaben sich für Haus 1 mit den unverkapselt eingesetzten Bioziden Octylisothiazolinon (OIT), Diuron (DR) und Carbendazim (CD) Anfangsgehalte von 140 mg/kg, 1000 mg/kg und 450 mg/kg, bei Haus 2 mit den verkapselten Bioziden OIT, Terbutryn (TB) und Zinkpyrithion (ZnPT) Anfangsgehalte von 225 mg/kg, 400 mg/kg und 225 mg/kg. Der Wirkstoff ZnPT wurde nicht analysiert. Die Putze wurden jeweils mit einer Schichtstärke von 3 mm aufgetragen.

Eine Korrelationsanalyse zwischen den Wetterdaten und den beobachteten Biozidemissionen wurde durchgeführt, um die Zusammenhänge zwischen den verschiedenen Wetterparametern und der Menge an ausgewaschenen Bioziden zu untersuchen. Für diese Korrelationsanalyse wurden folgende Daten einbezogen: Fassadenabflussvolumina (RV), Schlagregen (WDR), Temperatur bei Niederschlag (T), Windgeschwindigkeit bei Niederschlag (WS), Windrichtung bei Niederschlag (WD), Regenintensität (RI), Regendauer (RD), Gesamtniederschlagsmenge (P), vorhergehende Trockenperiode (ADP) vor dem Hauptregeneignis, mittlere UV-Strahlung (UV) während ADP, mittlere Sonneneinstrahlung (SR) während ADP, pH-Wert, elektrische Leitfähigkeit (EC), Gesamtgehalt an organischem Kohlenstoff (TOC) der einzelnen Abflussproben und die in den Abflusswässern ermittelten Konzentrationen und flächenbezogenen Austräge an Terbutryn (TB), Diuron (DR), n-Octylisothiazolinon (OIT) und Carbendazim (CD).

Die Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman wurden aufgrund der hohen Robustheit gegenüber Ausreißern berechnet. Spearman-Korrelationen und Heatmaps wurden mit Spyder (Open-Source-Paket, das die Programmiersprache Python verwendet) Version 3.3.6 durchgeführt [Spyder 2022]. Heatmaps wurden verwendet, um die Ergebnisse der Korrelationsanalyse graphisch darzustellen. Die Stärke der Korrelationskoeffizienten nach Spearman wurde wie folgt definiert:

- 0,00 – 0,19: sehr schwach
- 0,20 – 0,39: schwach
- 0,40 – 0,59: moderat
- 0,60 – 0,79: stark
- 0,80 – 1,00: sehr stark [Kendall 1970].

Um die statistische Signifikanz der Korrelationsanalyse anzugeben, wurde der P-Wert zwischen den Variablen verwendet, um die Wahrscheinlichkeit zu bestimmen, dass eine Korrelation zufällig auftrat. Eine hohe statistische Signifikanz von $P \leq 0,05$ zeigt an, dass die in der Korrelationsanalyse verwendeten Daten eine perfekte Zufallsstichprobe sind. Eine große statistische Signifikanz von $P \geq 0,05$ zeigt an, dass die Daten eine schwache Stichprobe sind, und schließlich bedeutet eine statistische Signifikanz von $P > 0,5$, dass die Daten als

Stichprobe nicht geeignet sind [Biau 2010]. Das gewählte Signifikanzniveau der Analyse war $P = 0,05$.

Die technischen Details und die vollständige Entwicklungsmethode des Modells wurden in [Vega-Garcia 2020-A] veröffentlicht.

6.5 Sickerwasserprognose für Biozide (Level 3)

Der Stofftransport der Biozide Carbendazim (CD), Diuron (DR), n-Octylisothiazolinon (OIT) und Terbutryn (TB) sowie 10 ihrer Transformationsprodukte wurde innerhalb eines ungesättigten Bodenkompartmentes während der Versickerung bis zum Erreichen eines definierten Orts der Beurteilung modelliert, um die Relevanz für die Grundwasserkontamination zu bewerten. Aufgrund eines Mangels an Informationen und experimentellen Daten zu einigen Stoffparametern der TP wurde eine Untersuchung bezüglich der beiden Hauptparameter K_{oc} und DT_{50} mit Hilfe des EPI (Estimation Program Interface) Suite™ Package [US EPA 2012] durchgeführt. Für DT_{50} wurden die Ergebnisse von BIOWIN4 mit verschiedenen Methoden interpretiert und mit Daten der International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) [IUPAC 2022] verglichen. Eine tabellarische Beschreibung der wichtigsten Parameter der Biozide und der Transformationsprodukte findet sich in Tabelle 2 und Tabelle 3.

Bei den Transformationsprodukten (Tabelle 3) wurden für die weiteren Berechnungen die nach der MCI-Methode (EPI Suite™, Molecular Connectivity Index) ermittelten K_{oc} - Werte verwendet, da diese Methode über einen längeren Zeitraum angewendet wird und robuster ist [US EPA 2012]. Für DT_{50} wurden für die TP von Diuron die in der IUPAC-Datenbank verfügbaren Werte verwendet [IUPAC 2022]. Für die TP der weiteren Biozide wurden die Werte nach [Arnot 2005] verwendet, die die höchsten ermittelten Werte und damit den konservativsten Ansatz hinsichtlich der Persistenz darstellen.

Tabelle 2:
Physikalisch-chemische Kennwerte von Bioziden (Übersicht nach [Paijens 2019]).

| Biozid CAS-Nummer | Gruppe | molare Masse (g/mol) | log K _{ow} ^g | Wasser- löslichkeit ^g (mg/L) | PNEC ^h (ng/L) | DT ₅₀ (Tage) | log K _{oc} |
|--|-----------------------|----------------------------|----------------------------------|---|-----------------------------|----------------------------|----------------------|
| Carbendazim (CD) 10605-21-7 | Carbamate | 191,2 | 1,55 | 3112 | 34 | 180 ^a | 2,6 ^c |
| Diuron (DR) 330-54-1 | Phenylharn- stoffe | 233,1 | 2,67 | 102 | 20 | 135 ^f | 2,6 ^{c, d} |
| Octylisothiazolinon (OIT) 26530-20-1 | Isothiazolinone | 213,3 | 2,61 | 309 | 13 | 9,3 ^b | 2,25 ^e |
| Terbutryn (TB) 886-50-0 | Triazine | 241,4 | 3,77 | 42 | 34 | 231 ^b | 2,85 ^{c, d} |

a: [IPCS 2021]
b: [Bollmann 2017]
c: [Wick 2011]
d: [Liu 1995]
e: [ECHA 2006]
f: [Klein 1997]
g: [Bester 2014]
h: [Burkhardt 2009]

Tabelle 3:
Physikalisch-chemische Eigenschaften von Transformationsprodukten: Molare Masse, Oktanol-Wasser-Verteilungskoeffizient (Log K_{ow}), Wasserlöslichkeit, Halbwertszeiten und Sorptionskoeffizient von organischem Kohlenstoff im Boden Koeffizient (K_{oc}). Die Werte von DT₅₀ und K_{oc}, die für die weiteren Berechnungen verwendet wurden, sind in der Tabelle fett gedruckt dargestellt.

| Biozid | Transformationsprodukt (TP) | molare Masse (g/mol) | Wasserlöslichkeit (mg/L) ^g | Log K _{ow} ^f | DT ₅₀ (Tage) | log K _{oc} |
|------------------|--|----------------------|---------------------------------------|----------------------------------|--|---|
| Carbendazim (CD) | 2-aminobenzimidazol C ₇ H ₇ N ₃ | 133,2 | 14900 | 0,91 | 8 ^a , 12,6 ^d , 21,4^b | 1,3^e , 1,8 ^f |
| Diuron (DR) | DCPMU 1-(3,4-dichlorophenyl)-3-methylurea C ₈ H ₈ Cl ₂ N ₂ O | 219,0 | 490 | 2,94 | 127^c | 2,1^e , 2,5 ^f , 2,9 ^g |
| | DCPU 1-(3,4-dichlorophenyl) urea C ₇ H ₆ Cl ₂ N ₂ O | 205,0 | 940 | 2,65 | 33,4^c | 2,3^e , 2,4 ^f , 2,8 ^g |
| | DCA 3,4-dichloroanilin C ₆ H ₅ Cl ₂ N | 162,0 | 580 | 2,69 | 7,7^c | 2^e , 2,3 ^g , 2,4 ^f |
| OIT | Octylamin C ₁₁ H ₁₉ NOS | 130,2 | 27 | 3,7 | 1 ^a , 3 ^d , 5^b | 2,5 ^f , 2,7^e |
| | Octylmalonamidsäure C ₁₁ H ₂₁ NO ₃ | 216,2 | 720 | 2,0 | 1 ^a , 1,1 ^d , 1,2^b | 1,2 ^f , 1,5^e |
| Terbutryn (TB) | Desbutyl-2-hydroxyterbutryn C ₈ H ₁₅ N ₅ O | 155,1 | 174 | 2,7 | 20,1 ^d , 36,4^b | 1,5 ^f , 1,7^e |
| | 2-hydroxy-terbutryn C ₉ H ₁₇ N ₅ O | 212,2 | 906 | 1,5 | 15 ^a , 39,9 ^d , 80^b | 2,4^e , 2,8 ^f |
| | Desethyl-terbutryn (M1) C ₈ H ₁₅ N ₅ S | 213,3 | 174 | 2,7 | 15 ^a , 45,3 ^d , 92,4^b | 2,3 ^f , 2,4^e |
| | Terbutryn sulfoxid C ₁₀ H ₁₉ N ₅ OS | 258,1 | 7 | 4,1 | 17 ^a , 57 ^d , > 120^b | 1,8^e , 3,1 ^f |

a: [US EPA 2012] (EPI Suite™), b: [Arnot 2005], c: [IUPAC 2022],

d: [Fenner 2009]

e: [US EPA 2012] (EPI Suite™, Molecular Connectivity Index (MCI))

f: [US EPA 2012] (EPI Suite™, log K_{ow} method)

g: [EFSA 2011]

Grundlage für die Modellentwicklung waren die Stofftransportgleichung von van Genuchten und die Grundannahmen aus der Sickerwasserprognose gemäß [Susset 2011 und 2018]. Die Verzögerung, die Anreicherung und der Abbau von Bioziden wird innerhalb des ungesättigten Bodens bis zum Erreichen des Orts der Beurteilung berücksichtigt. Der Ort der Beurteilung (OdB) wird dabei als Übertrittspunkt zum Grundwasser in 1 m Tiefe unter der Erdoberfläche angenommen. Als Bezugsmaßstäbe werden die Geringfügigkeitsschwellenwerte (GFS) verwendet [LAWA 2016] (s.a. Bild 3). ME wurden für biozide Wirkstoffe und ihre Transformationsprodukte, außer für Diuron, bislang nicht abgeleitet.

Um den Einfluss der Sickerwassermenge und der Quelltermkonzentration in der Simulation zu vergleichen, wurden zwei Szenarien mit unterschiedlichen kumulierten Sickerwasservolumina und somit unterschiedlichen resultierenden Eingangskonzentrationen betrachtet (Tabelle 4):

- Szenario A bestand aus dem Fassadenabfluss, dem Normalregen-Abfluss von den Hausrändern (Fläche der Hausränder: 6 m², Breite des Randstreifens: 0,5 m) und dem Dachablauf (Dachfläche: 9 m²).
- Szenario B beinhaltet nur den Fassadenabfluss und den Normalregen-Randabfluss von den Hausrändern (Fläche der Hausränder: 6 m², Breite des Randstreifens: 0,5 m).

Tabelle 4:
Biozidkonzentration und Wassermengen für die Szenarien A und B.

| Haus | Biozid | Kum. Biozid Austrag [mg/m ²] | Kumuliertes Sickerwasservolumen | | Biozidkonzentration | |
|------|--------|--|---------------------------------|----------------|---------------------|-------------------|
| | | | Szenario A [L] | Szenario B [L] | Szenario A [µg/L] | Szenario B [µg/L] |
| 1 | CD | 66,6 | 20,16 | 9,36 | 23,7 | 51,5 |
| | OIT | 22,2 | | | 7,9 | 17 |
| | DR | 313 | | | 112 | 240 |
| 2 | TB | 16,8 | 20,14 | 9,34 | 5,6 | 12,4 |
| | OIT | 60,8 | | | 21,6 | 47,2 |

Für die Modellierung des Transports in ungesättigten Bodenkompartmenten wurden zunächst die beiden Standardbodentypen aus der Sickerwasserprognose [Susset 2018] verglichen, nämlich Sandboden mit „mäßiger Rückhaltevermögen“ und lehmiger, schluffiger, toniger Boden mit „hohem Rückhaltevermögen“; beide mit einem Gehalt an organischem Kohlenstoff (C_{org}) von 0,1 % und mit natürlichen Abbauprozessen.

In der Praxis erfolgt die Versickerung jedoch häufig über eine Oberbodenschicht. DWA-A 138-1 fordert für die Ableitung kontaminierter Ablaufwässer mit überwiegend gelösten Stoffen eine Oberbodenschicht von 30 cm [DWA 2020]. Zusätzlich wurde daher ein drittes Szenario (Szenario C) mit einer 30 cm dicken Deckschicht mit einem Gehalt an organischem Kohlenstoff C_{org} von 2 % über den beiden Standardbodentypen (je 70 cm) berechnet, um z. B. die Auswirkungen der bewachsenen Bodenzone von Versickerungsmulden als Behandlungsmaßnahmen für das Ablaufwasser von Fassaden aufzuzeigen.

Die technischen Details und die vollständige Entwicklungsmethode des Modells wurden in [Vega-Garcia 2022-A] veröffentlicht.

7 Ergebnisse und Diskussion

7.1 Level 1 – Fassadenwasserabflussmodell

Mit dem Fassadenabflussmodell wurde ein Zeitraum von 315 Tagen modelliert. Diese Anzahl an Tagen entspricht dem Zeitraum des Freilandversuchs, bei dem 47 Ablaufwasser-Proben gesammelt wurden, die den Hauptregenereignissen entsprechen. Als Eingangsparameter in das Modell dienten Wetterdaten wie Regenintensität, Temperatur, Regendauer, Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Regentropfengröße und Materialeigenschaften wie Sorptionskapazität, zufällige Rauigkeit, Abprall und Fassadengeometrie. Zur Validierung des Modells wurden die berechneten Ergebnisse mit den experimentell ermittelten Abflussprobenvolumina aus Freilandversuchen verglichen [Vega-Garcia 2020-B].

Für den Vormauermörtel (FMM, exemplarisch) betrug die in den Freilandversuchen nach 315 Tagen ermittelte kumulierte Abflussmenge 65,3 Liter, während das Fassadenabflussmodell für dasselbe Material 63,1 Liter als kumuliertes Abflussergebnis ergab. Der Tag mit dem höchsten gesammelten Abfluss von 8,8 L war der 24. Oktober 2014 (Tag 268). Das Modell ergab für diesen Tag das maximale Ablaufvolumen von 10,1 Liter (Bild 4).

Der Unterschied zwischen dem experimentell erhaltenen und dem modellierten Abflussvolumen kann auf mehrere Faktoren zurückgeführt werden. So ist ein „Abprall“ von auftreffenden Tropfen von der Oberfläche nur schwer rechnerisch abzubilden. Ein weiterer möglicher Grund ist, dass das Modell Verdampfungsprozesse nicht berücksichtigt: obwohl sich die relative Luftfeuchte während Regenereignissen 100 % nähert, ist es möglich, dass eine gewisse Wassermenge während und nach dem Regenereignis verdunstet ist [Blocken 2012].

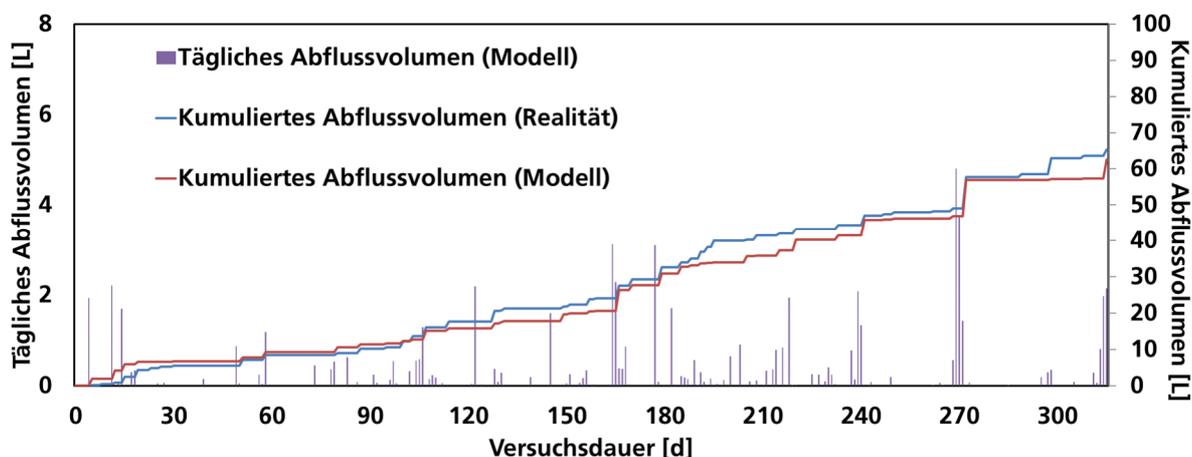


Bild 4:
Gegenüberstellung von rechnerisch ermittelten und experimentell erhaltenen Abflussvolumina am Beispiel eines Vormauermörtels [Vega-Garcia, 2020-B].

Die in Level 1 berechneten Parameter sind Abflussvolumen, Regendauer und laminare Fließrate. Diese Parameter werden anschließend als Eingangsparameter für das „Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransporte an Fassaden“ (Level 2) benötigt (Tabelle 5).

Tabelle 5:

Ergebnisse des Fassadenwasserabflussmodells, die als Eingabeparameter in das Modell für Auslaugungsprozesse und Materialtransport an Fassaden verwendet werden (exemplarisch für Vormauermörtel FMM).

| Abflussszenario | | | | |
|------------------------|----------------------------------|-----------------------------|----------------------|---------------------------------------|
| Ereignis [Ifd. Nr.] | Erstes Szenario: „Regenereignis“ | | | Zweites Szenario: „Trockenperiode“ |
| | Zeit [h] | Abfluss- volumen [mL] | Fließ- rate[mL/s] | Zeit [h] |
| 1 | 1,2 | 250 | 4,93E-01 | 96 |
| 2 | 1,9 | 200 | 6,52E-03 | 24 |
| 3 | 4,0 | 430 | 1,95E-01 | 24 |
| 4 | 6,6 | 1520 | 4,31E-02 | 24 |
| 5 | 6,6 | 1900 | 1,16E-01 | 48 |
| 6 | 0,4 | 520 | 2,82E-01 | 72 |
| 7 | 3,0 | 400 | 1,40E-02 | 48 |
| 8 | 2,3 | 280 | 1,23E-02 | 24 |
| 9 | 3,6 | 1680 | 4,39E-02 | 432 |
| 10 | 12,2 | 1260 | 2,54E-02 | 120 |
| 11 | 3,5 | 540 | 9,67E-02 | 768 |
| 12 | 9,5 | 1180 | 4,10E-02 | 96 |
| 13 | 2,6 | 420 | 1,66E-02 | 144 |
| 14 | 6,2 | 1560 | 5,36E-02 | 24 |
| 15 | 4,9 | 1520 | 1,03E-01 | 24 |

| Abflussszenario | | | | |
|-----------------------|----------------------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------------------------|
| Ereignis [fd. Nr.] | Erstes Szenario: „Regenereignis“ | | | Zweites Szenario: „Trockenperiode“ |
| | Zeit [h] | Abfluss- volumen [mL] | Fließrate [mL/s] | Zeit [h] |
| 16 | 6,5 | 2460 | 6,26E-02 | 24 |
| 17 | 12,8 | 1580 | 1,75E-02 | 24 |
| 18 | 14,1 | 2860 | 2,32E-02 | 192 |
| 19 | 1,2 | 200 | 1,06E-01 | 24 |
| 20 | 3,0 | 540 | 2,97E-02 | 24 |
| 21 | 5,6 | 580 | 1,40E-02 | 312 |
| 22 | 9,8 | 1460 | 4,25E-02 | 72 |
| 23 | 3,9 | 240 | 1,63E-02 | 48 |
| 24 | 17,2 | 3560 | 6,84E-02 | 24 |
| 25 | 3,9 | 1680 | 5,45E-02 | 96 |
| 26 | 12,5 | 3300 | 4,09E-02 | 24 |
| 27 | 7,2 | 1320 | 4,26E-02 | 168 |
| 28 | 5,1 | 1060 | 2,16E-02 | 72 |
| 29 | 6,7 | 1960 | 1,25E-01 | 24 |
| 30 | 3,0 | 1360 | 8,76E-03 | 24 |
| 31 | 0,8 | 1700 | 6,79E-01 | 24 |
| 32 | 15,3 | 280 | 1,77E-02 | 24 |
| 33 | 4,2 | 1240 | 6,88E-02 | 24 |
| 34 | 7,3 | 520 | 2,62E-02 | 48 |
| 35 | 9,8 | 1260 | 2,55E-02 | 24 |
| 36 | 8,5 | 1060 | 1,83E+03 | 24 |
| 37 | 9,9 | 2720 | 1,52E-01 | 24 |
| 38 | 2,8 | 420 | 3,21E-02 | 24 |

| Abflussszenario | | | | |
|------------------------|----------------------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------------------------|
| Ereignis [Ifd. Nr.] | Erstes Szenario: „Regenereignis“ | | | Zweites Szenario: „Trockenperiode“ |
| | Zeit [h] | Abfluss- volumen [mL] | Fließrate [mL/s] | Zeit [h] |
| 39 | 6,8 | 440 | 1,49E-02 | 24 |
| 40 | 1,5 | 340 | 3,69E-02 | 96 |
| 41 | 4,7 | 720 | 4,27E-02 | 288 |
| 42 | 31,2 | 8780 | 1,10E-01 | 48 |
| 43 | 5,9 | 780 | 5,90E-03 | 24 |
| 44 | 5,9 | 780 | 5,90E-03 | 264 |
| 45 | 12,7 | 4420 | 2,08E-02 | 240 |
| 46 | 9,6 | 700 | 5,79-E03 | 144 |
| 47 | 12,1 | 1700 | 7,10-E02 | 96 |

Die Einschränkungen des Modells hängen größtenteils mit der permanenten Veränderung der Wetterdaten in der Realität gegenüber den im Modell getroffenen Annahmen (z. B. Oberflächentemperatur bei 20 °C) zusammen. Es ist möglich, dass diese Art von Annahmen die Berechnung der Abflussmengen beeinflusst und zu unterschätzten oder überschätzten Ergebnissen für bestimmte simulierte Regenereignisse führt. Simulierte Werte bei bestimmten Regenereignissen können überschätzt werden, da Trocknung oder Verdunstung nicht in das Modell aufgenommen wurden. Bei sehr schwachen Regenereignissen können diese Prozesse einen sehr wichtigen Einfluss haben und sich in der Simulation der ersten Regenereignisse bemerkbar machen, die durch sehr schwache Niederschläge gekennzeichnet waren. Eine weitere Einschränkung des Modells besteht darin, dass für alle Rezepturen das gleiche Verfahren verwendet wurde, um die Rauigkeit der Oberfläche zu bestimmen. Die in den Feldversuchen verwendeten Materialien zeigten je nach Korngröße des Zuschlags physikalische Unterschiede in ihren Oberflächen. Die Strömungsbildung ist unterschiedlich, je nachdem, ob die Oberfläche mehr oder weniger rau ist. Damit wird es komplexer, die Strömung und auch das Abflussmuster zu simulieren.

7.2 Level 2 - Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransport an Fassaden

Für die Berechnungen in Level 2 werden die Ergebnisse des Fassadenwasserabflussmodells (Level 1) zwei Szenarien zugeordnet: den effizienten Regenereignissen (erstes Szenario) und den Trockenperioden zwischen zwei Regenereignissen (zweites Szenario).

Für die Freilandversuche gab es 47 „effiziente Regenereignis“-Szenarien (erstes Szenario) und 47 „Zeit zwischen Regenereignissen“-Szenarien (zweites Szenario). Das kürzeste „erste Szenario“ war 0,4 h lang, das längste 31,2 h. Das kürzeste „zweite Szenario“ war 24 h lang und das längste 768 h (Tabelle 5). Das erste Szenario entspricht 6,7 % der gesamten Expositionszeit, das zweite 93,7 % der Expositionszeit der Probekörper. Die Frostperioden wurden im Modell nicht berücksichtigt. Die vollständige Wasserbilanz findet sich an anderer Stelle [Vega-Garcia 2020-A und 2020-B]. Der pH-Wert von Regenwasser ohne Kontakt zu den Probekörper-Oberflächen lag zwischen 4,7 und 7,4.

Die experimentellen und die Simulationsergebnisse sind in Bild 5 exemplarisch für FMM dargestellt. Die mittleren pH-Werte, die während des Freilandversuchs für FMM erhalten wurden, betragen 8,3.

Für den FMM wurden aufgrund ihrer hohen Austräge Chrom (Cr), Vanadium (V), Blei (Pb) und Sulfat (SO_4^{2-}) als relevant identifiziert. Nach Schioppa [Schioppa 2009] wird bei neutralen pH-Werten die Sulfat-Freisetzung durch Gips und damit indirekt durch die Ca-Freisetzung kontrolliert. Die Freisetzung von Cr, Pb und V in den Freilandversuchen wurde dagegen durch Celestit, Portlandit, Calcit, Anhydrit, Cr-Ettringit und Vanadiumoxid gesteuert. Diese Phasen finden sich häufig im Zementstein von mineralischen Putzen und Mörteln und wurden anhand der spezifischen Rezepturen für jedes Material identifiziert. Die Vorgehensweise zur Identifizierung der einzelnen mineralogischen Phasen in den Putz- und Mörtelrezepturen ist in [Vega-Garcia 2021-A] beschrieben.

Die modellierten Ergebnisse wurden anschließend mit experimentellen Ergebnissen aus den Freilandversuchen verglichen. Anhand der Beispiele mit Chrom (Cr), Vanadium (V), Blei (Pb) und Sulfat (SO_4^{2-}) für Vormauermörtel zeigt Bild 5, dass es möglich ist die Stofffreisetzung von Putzen und Mörtel mit dem entwickelten Modell zu berechnen.

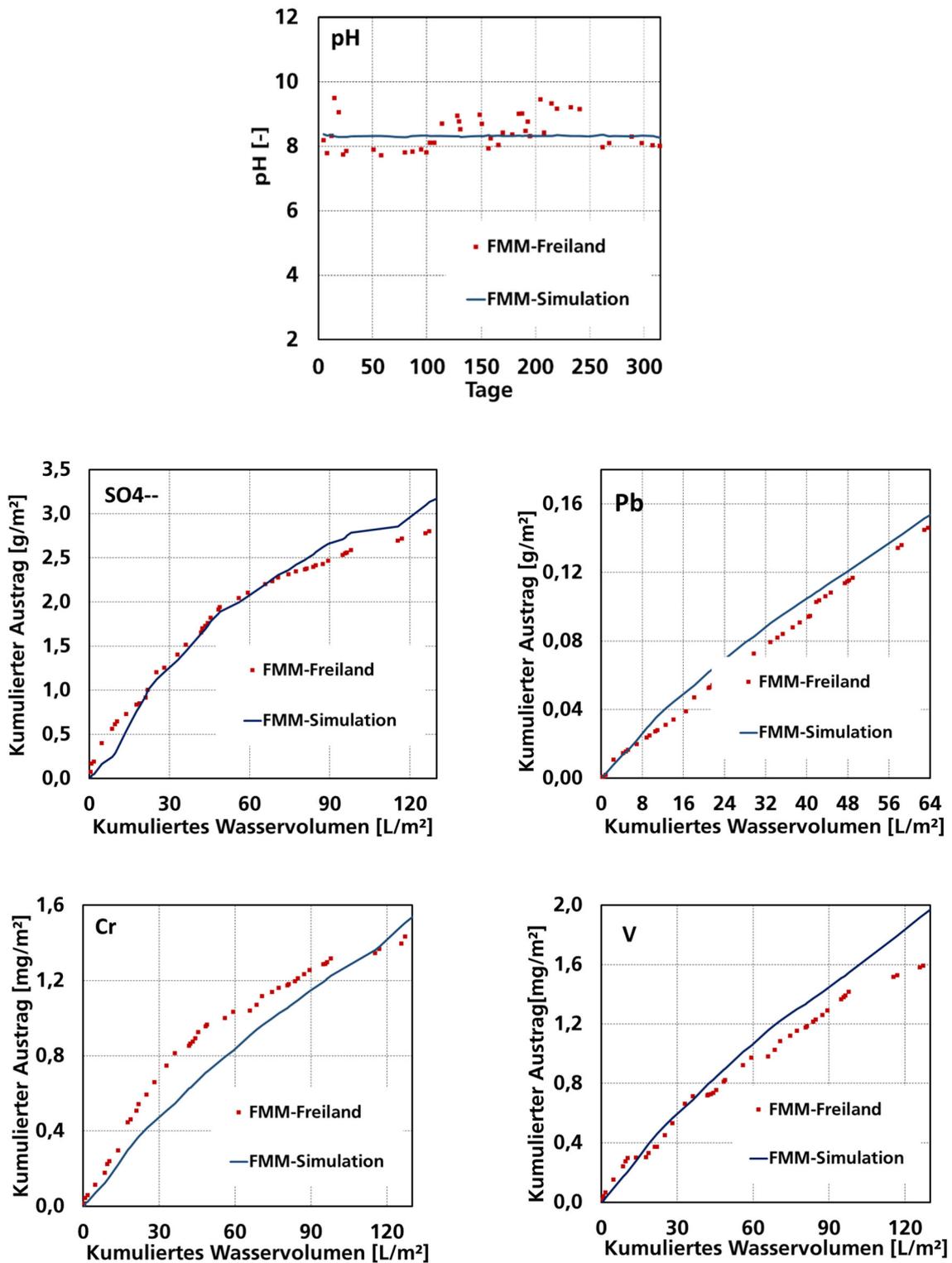
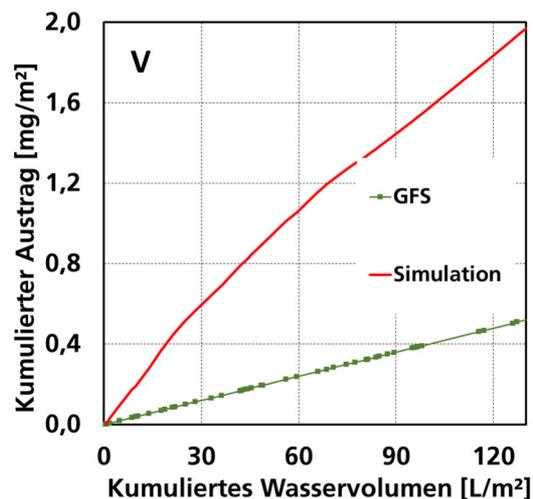


Bild 5:
 Vergleich von experimentellen Daten aus der Freibewitterung und rechnerisch erhaltenen Ergebnissen aus Level 2: pH- Wert, Chrom (Cr), Vanadium (V), Blei (Pb) und Sulfat (SO₄²⁻) am Beispiel Vormauermörtel (FMM).

Die Verdunstung von Wasser in den Poren oder an der Oberfläche, die die chemischen Prozesse beeinflussen könnte, die in der porösen Matrix des Materials und an der Materialoberfläche stattfinden, berücksichtigt dieses Modell derzeit nicht. Auch ein Einfluss von Verdunstungsprozessen auf den Stofftransport ist zu erwarten.

7.3 Level 3 – Sickerwasserprognose

Mit den durch das Level 2-Modell erhaltenen Konzentrationen wurde der erste Schritt der Sickerwasserprognose durchgeführt. Als Ergebnis des Vergleichs zwischen den simulierten Auslaugkonzentrationen und den GFS werden Vanadium (V), Chrom (Cr) und Blei (Pb) als relevante Stoffe für weitere Betrachtungen angesehen. Diese Stoffe weisen Konzentrationen auf, die an der Unterkante der Fassade über den GFS liegen. Eine Gefährdung für den chemischen Zustand des Grundwassers am Ort der Beurteilung kann daher nicht ausgeschlossen werden. Nur diese Stoffe werden den nächsten Schritten der Sickerwasserprognose unterzogen (Bild 6).



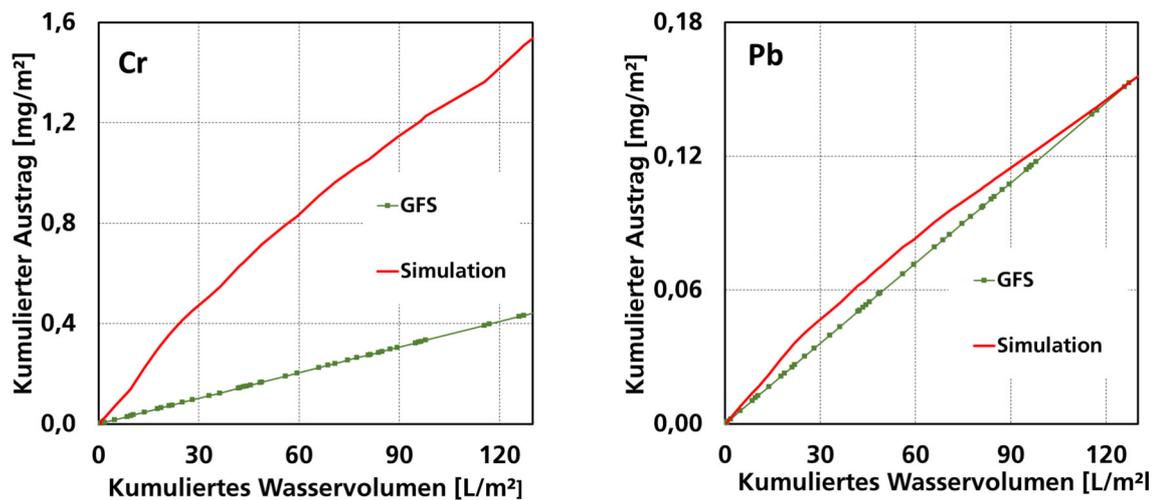


Bild 6:

Vergleich des rechnerisch ermittelten kumulierten Austrags für Vormauermörtel (FMM, exemplarisch) mit dem „zulässigen“ theoretischen GFS-Austrag an der Unterkante der Probekörper.

Im zweiten Schritt wurden die identifizierten relevanten Stoffe einer statistischen Auswertung unterzogen. Beim Vormauermörtel (exemplarisch) ergaben sich z. B. als Maximalwerte im Beobachtungszeitraum für Cr 29,4 µg/L, für Vanadium 23,8 µg/L und für Pb 2,2 µg/L (Tabelle 6).

Im letzten Schritt wurden die gewählten medienschutzbasierte Einbauwerte (ME) der Szenarien der gewählten Anwendung (Kapitel 6.3) und die Werte aus der statistischen Auswertung verglichen, um die Umweltauswirkung von mineralischen Putzen und Mörteln abschätzen zu können. Die Ergebnisse für den Vormauermörtel sind in Tabelle 6 zusammengestellt.

Aus den vorgestellten Ergebnissen lässt sich schließen, dass Cr der einzige Stoff mit 90. Perzentilwerten über den medienschutzbasierten Einbauwerten ist, der den Einsatz des Vormauermörtels FMM für die Anwendung im (für die meisten gängigen Fassaden unrealistischen) „ungünstigen Fall“ mit Grundwasserständen nahe (0,1 - 1 m) der technischen Konstruktion nicht zulassen würde. In den verbleibenden Szenarien (Sandboden sowie lehmige, schluffige und tonige Böden) erfüllen alle drei relevanten Stoffe die Anforderungen gemäß den gewählten Rahmenbedingungen.

Dieses Ergebnis ist auch auf die anderen untersuchten mineralischen Putze und Mörtel übertragbar: es wurden keine weiteren Stoffe in relevanten Konzentrationen aus den Rezepturen freigesetzt. Die Konzentrationen an relevanten Stoffen liegen zudem überwiegend unter dem hier dargestellten exemplarischen Fall, sodass keine Überschreitungen am Ort der Beurteilung zu erwarten sind.

Tabelle 6:

Bewertung mittels Sickerwasserprognose durch Vergleich von simulierten Auslaugkonzentrationen und medianschutzbasierten Einbauwerten (ME) für Vormauermörtel (FMM, exemplarisch). Rote Zellen: statistische Werte liegen über ihren jeweiligen ME. Grüne Zellen: 90. Perzentilwerte liegen unterhalb der ME und deuten darauf hin, dass der Einsatz eines Baustoffes für eine technische Anwendung zulässig ist.

| | Ungünstiger Fall, höchster zu erwartender Grundwasserstand nahe (0,1-1m) unter der technischen Konstruktion | | | Sand | | | Lehm/Schluff/Ton | | |
|----------------------|---|-----------|-------------|-------------|------------|-------------|------------------|------------|------------|
| | V | Cr | Pb | V | Cr | Pb | V | Cr | Pb |
| | ME bzw. simulierte Auslaugkonzentrationen [$\mu\text{g/L}$] | | | | | | | | |
| ME | 30 | 15 | 34,5 | 53,9 | 151 | 91,3 | 452 | 284 | 252 |
| Minimum | 1,9 | 5,8 | 10 | 1,9 | 5,8 | 10 | 1,9 | 5,8 | 10 |
| Maximum | 23,8 | 29,4 | 2,2 | 23,8 | 29,4 | 2,2 | 23,8 | 29,4 | 2,2 |
| Mittelwert | 15,2 | 13,9 | 1,3 | 15,2 | 13,9 | 1,3 | 15,2 | 13,9 | 1,3 |
| Median | 13,9 | 11,6 | 1,0 | 13,9 | 11,6 | 1,0 | 13,9 | 11,6 | 1,0 |
| 70. Perzentil | 16,6 | 14,6 | 1,2 | 16,6 | 14,6 | 1,2 | 16,6 | 14,6 | 1,2 |
| 80. Perzentil | 18,8 | 17,7 | 1,7 | 18,8 | 17,7 | 1,7 | 18,8 | 17,7 | 1,7 |
| 90. Perzentil | 21,6 | 23 | 2 | 21,6 | 23 | 2 | 21,6 | 23 | 2 |

7.4 Einfluss der Fassadenausrichtung auf die Auslaugung von Bioziden

Die Ergebnisse der Analyse der Regenereignisse zeigen, dass die Fassadenorientierung eine wichtige Rolle bei der Auswaschung von Bioziden spielt. Die Biozidausträge im Abflusswasser hängen von der Ausrichtung der Fassaden zur vorherrschenden Windrichtung ab. Im Abfluss der der vorherrschenden Witterungsrichtung (West) zugewandten Fassaden wurden hohe kumulierte Wirkstoffausträge von Diuron (149 mg/m^2), Carbendazim (44 mg/m^2), Terbutryn (9 mg/m^2) und Octylisothiazolinon (OIT) (32 mg/m^2) festgestellt (Bild 7). Die höchsten Konzentrationen von Diuron (3 mg/L) und OIT ($0,7 \text{ mg/L}$) wurden hingegen im Abfluss von Fassaden mit geringeren Abflussvolumina (Nord) beobachtet (Bild 8).

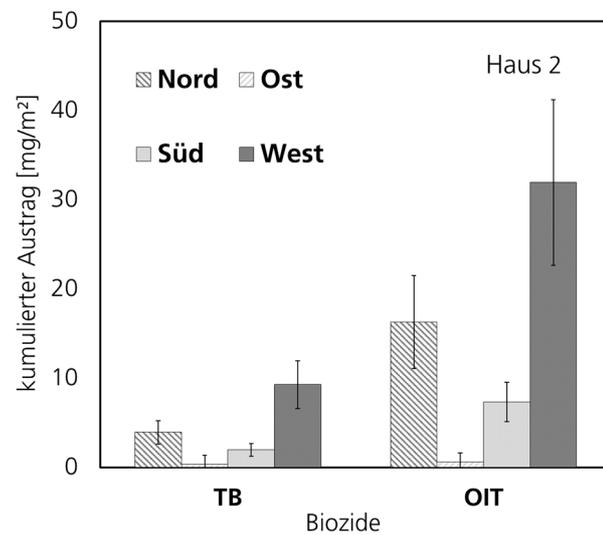
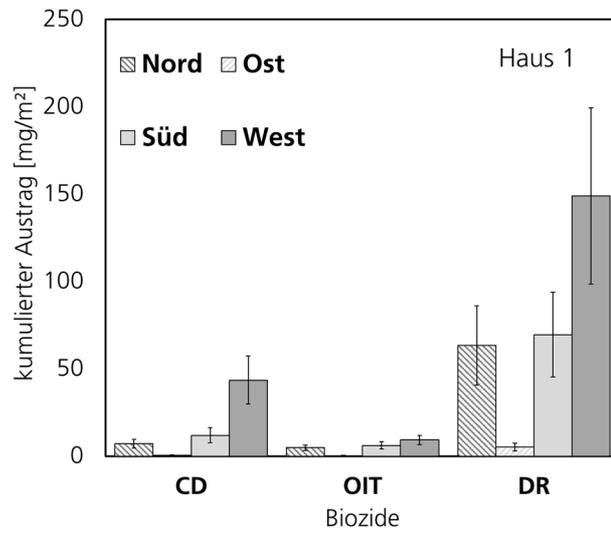


Bild 7:
Himmelsrichtungsabhängiger, kumulierter Wirkstoffaustrag von Fassaden nach 18 Monaten Bewitterung.

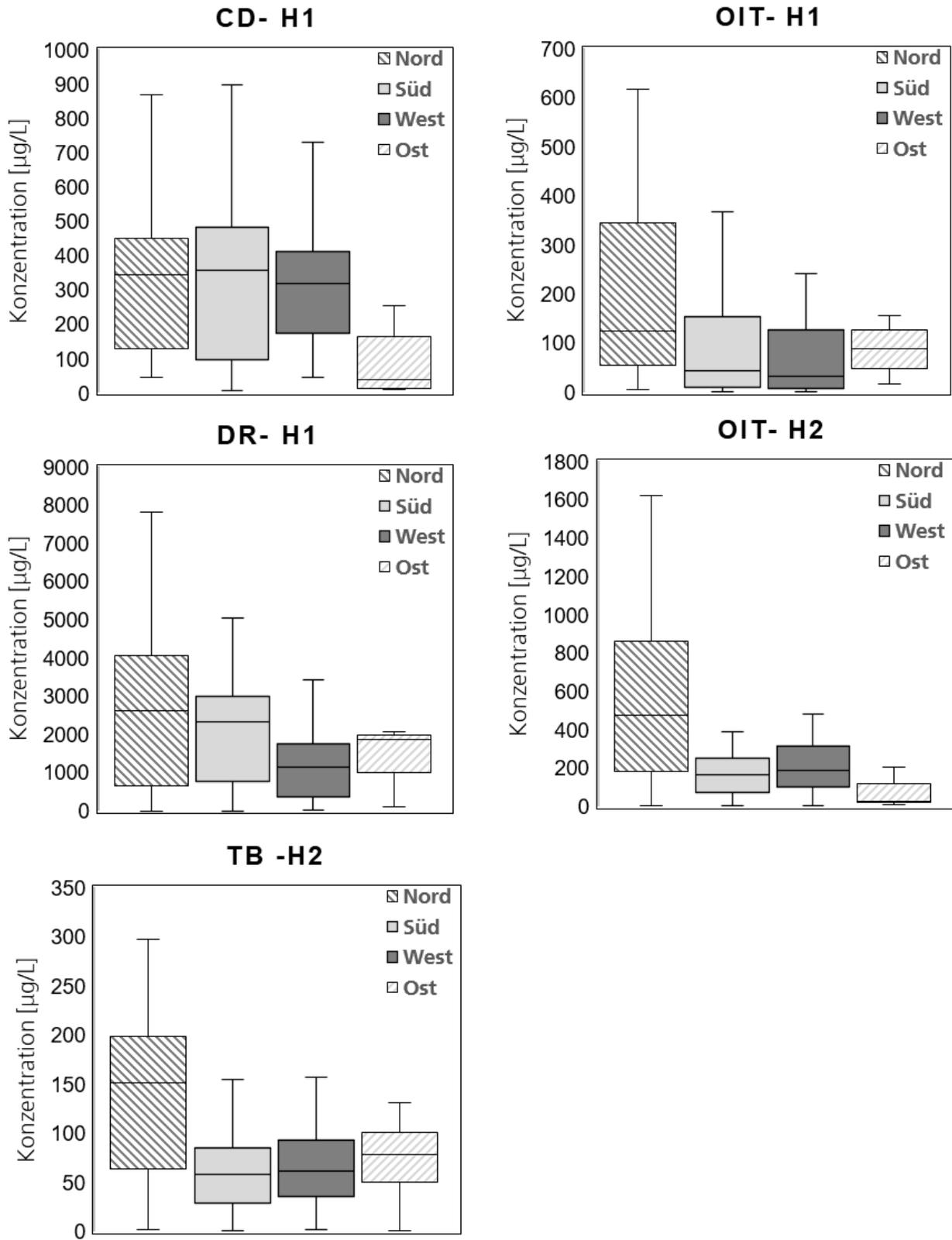


Bild 8:
 Biozidkonzentration im Abfluss von Haus 1 (H1) und Haus 2 (H2) für jede der Fassadenausrichtungen.

Die Spearman-Korrelationsanalyse für die Westfassaden beider Häuser ist in Bild 9 und Bild 10 dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass die Biozidemissionen für die beiden Häuser durch Abflussvolumina und Schlagregen (RV bzw. WDR) bestimmt werden. Obwohl die beobachteten Parameter, die die Emissionen kontrollieren, für alle Fassaden gleich sind, unterscheiden sich die Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman für die einzelnen Fassaden und betragen z. B. $r_s = 0,61$ für die Westfassade bzw. $r_s = 0,95$ für die Ostfassade von Haus 1. Dieser Unterschied in den Korrelationskoeffizienten kann auf die statistische Signifikanz der Korrelationen zurückgeführt werden, die mit der Anzahl der Proben zusammenhängt, die für jede der Fassaden erhalten wurden. Wetterparameter während und vor dem Regenereignis wie Regenintensität, Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Gesamtniederschlag, Temperatur und UV-Einstrahlung haben keinen signifikanten Einfluss, wenn sie als isolierte Parameter korreliert werden. Somit konnte die Korrelationsanalyse die komplexen Wechselwirkungen dieser Wetterparameter mit Einfluss auf die Emissionsprozesse der Biozide nicht abbilden.

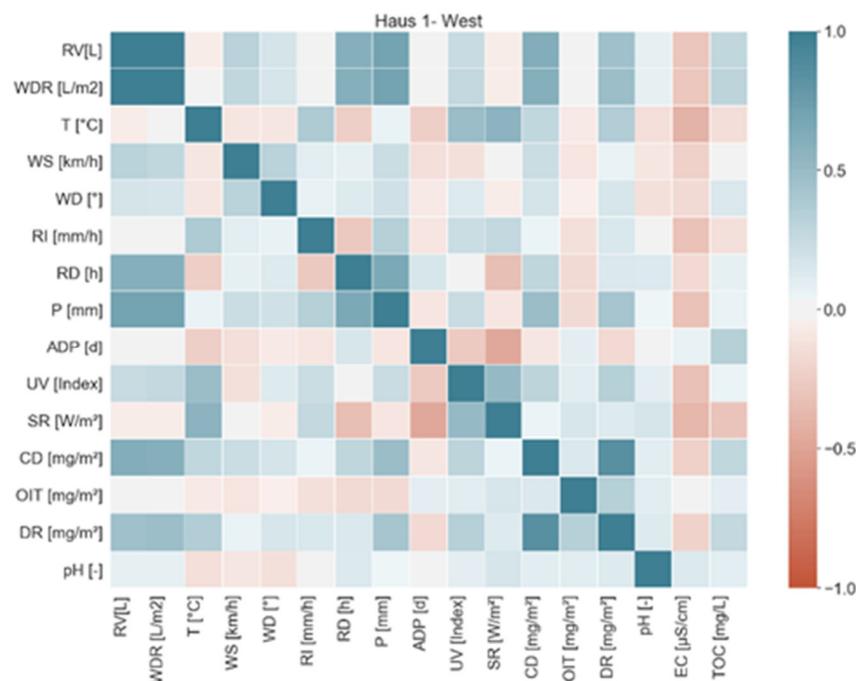


Bild 9:

Heatmap der Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman zwischen Wetterparametern und Biozidaustrag im Abfluss der Westfassaden von Haus 1. Die dunkelste blaue Farbe bezieht sich auf die stärkste positive Korrelation, die dunkelste rote Farbe bezieht sich auf eine negative Korrelation und weiß bedeutet eine Nicht-Beziehung zwischen den betrachteten Wetterparametern.

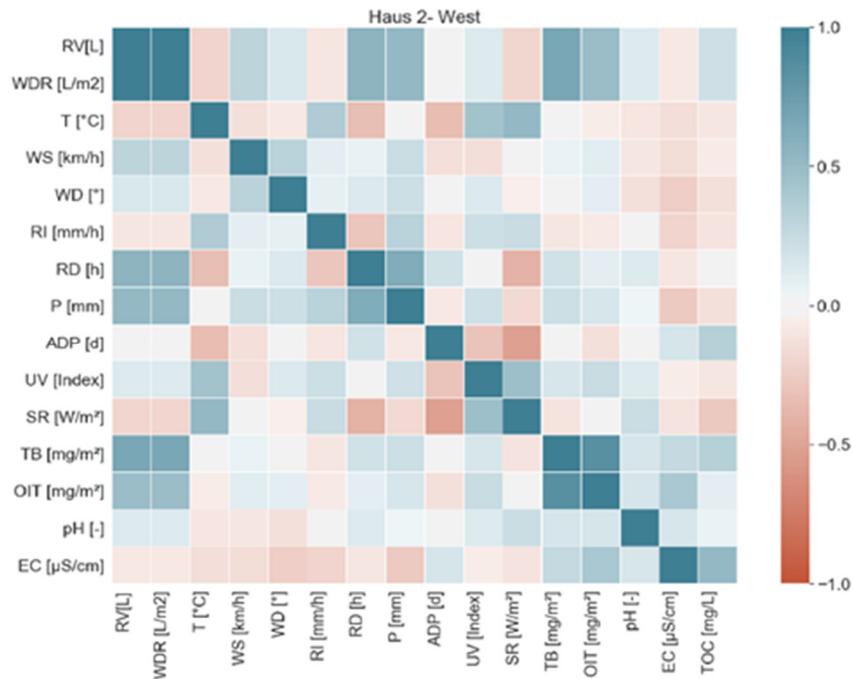


Bild 10: Heatmap der Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman zwischen Wetterparametern und Biozidaustrag im Abfluss der Westfassaden von Haus 2. Die dunkelste blaue Farbe bezieht sich auf die stärkste positive Korrelation, die dunkelste rote Farbe bezieht sich auf eine negative Korrelation und weiß bedeutet eine Nicht-Beziehung zwischen den betrachteten Wetterparametern.

7.5 Sickerwasserprognose für Biozide (Level 3)

Bild 11 zeigt die simulierten Konzentrationen der Biozide am OdB in sandigen Böden und lehmigen/schluffigen/tonigen Böden unter Berücksichtigung eines Zeitraums von einem Jahr für die Abflussszenarien A und B. Direkt vergleichbar, da in den Beschichtungen beider Häuser vorhanden, ist der Wirkstoff OIT. Die Eingangskonzentration bei Haus 2 bei verkapselt eingesetzten Wirkstoffen war höher als in Haus 1 (mit unverkapselt eingesetzten Wirkstoffen), was sich auch in den errechneten Konzentrationen am OdB widerspiegelt.

Bei Haus 1 erreichte Diuron die höchste errechnete Konzentration am OdB, gefolgt von Carbendazim und OIT. Nach einem Jahr waren bei beiden Häusern nur für das Ablaufszenario B noch Wirkstoffe am OdB ermittelbar. Beim Vergleich der beiden unterschiedlichen Bodentypen waren die Spitzen bei lehmigen/schluffigen/tonigen Böden generell niedriger und bei breiterer Basis nach rechts verschoben, traten also später auf als bei Annahme sandiger Böden.

Die unterschiedlichen Ergebnisse der Szenarien A und B mit Dachabfluss und ohne Dachabfluss zeigen, dass die Unterschiede der berechneten maximalen Konzentrationen am OdB sowie die Zeit bis zum Erreichen dieser Konzentrationen von den Quelltermkonzentrationen und der Sickerwasserrate abhängig sind. Höhere Konzentrationen wurden am OdB für das Szenario B (Quellterm

mit höheren Konzentrationen) festgestellt. Gleichzeitig dauert es auch für dieses Szenario aufgrund der geringeren Sickerwasserrate länger, bis die maximale PC-Konzentration beim OdB erreicht wird. Dieses Verhalten zeigte sich für Diuron, Terbutryn und Carbendazim in beiden Häusern und beiden Böden. Die Entwicklung der OIT-Konzentration wird durch seine höhere Abbaurrate beeinflusst: das meiste OIT wird abgebaut, bevor es den Ort der Beurteilung erreichen kann.

Bild 12 veranschaulicht die Modellierungsergebnisse von Szenario C, bei dem der Gehalt an organischem Kohlenstoff (C_{org}) für die ersten 30 cm (Oberboden) des 1 m tiefen Bodenkompartmentes 2 % beträgt. Diuron erreichte eine maximale Konzentration am OdB von 5,95 µg/L aus Haus 1 im sandigen Boden mit der kumulierten Sickerwassermenge und Quelltermkonzentration von Szenario B. Für den lehmigen/schluffigen/tonigen Boden erreichte es dagegen eine maximale Konzentration von 4,37 µg/L.

Bei Terbutryn lag die maximale simulierte Konzentration am OdB im Sandboden und im lehmigen/schluffigen/tonigen Boden mit der kumulierten Sickerwassermenge und Quelltermkonzentration von Szenario B bei 0,19 µg/L und 0,16 µg/L.

Es ist ersichtlich, dass aufgrund des höheren Gehalts an organischem Kohlenstoff in der Deckschicht in Szenario C die gefundenen Maximalkonzentrationen am OdB um einen Faktor von fast 10 abnehmen, wenn man die Ergebnisse mit denen in Szenario B vergleicht. Eine Schicht mit einem höheren Gehalt an organischem Kohlenstoff verringert also die am OdB gefundene maximale Konzentration erheblich. Gründe dafür sind eine stärkere Sorption und der Abbau der Biozide innerhalb der ersten 30 cm des Transportwegs.

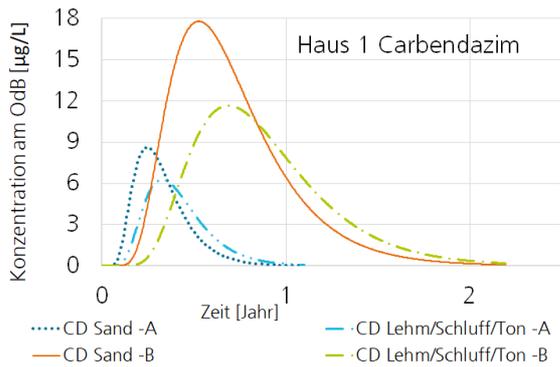
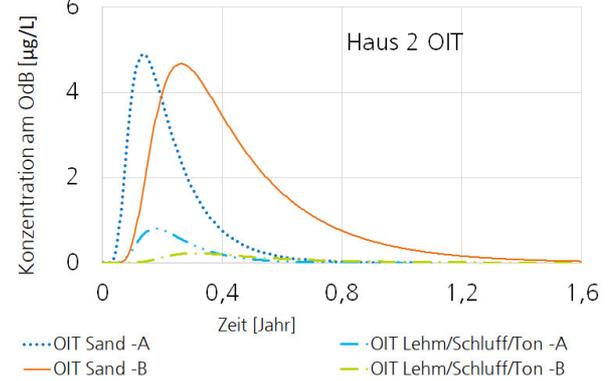
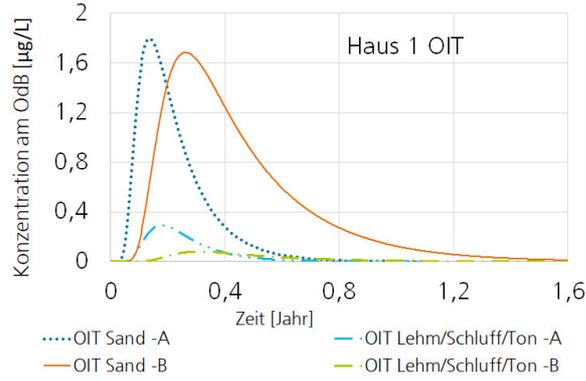
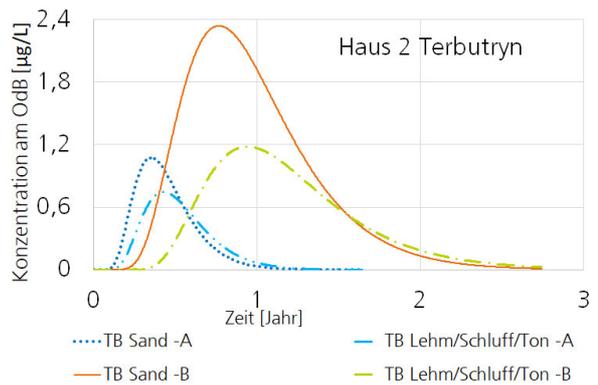
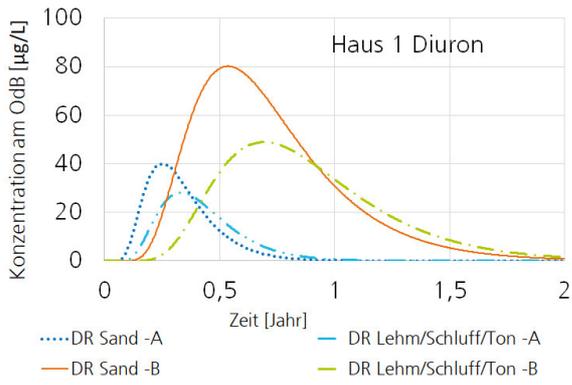


Bild 11:
 Modellierte Biozidkonzentration am OdB für Haus 1 und Haus 2 in sandigem Boden und lehmig/schluffig/tonigem Boden für die Szenarien A und B.

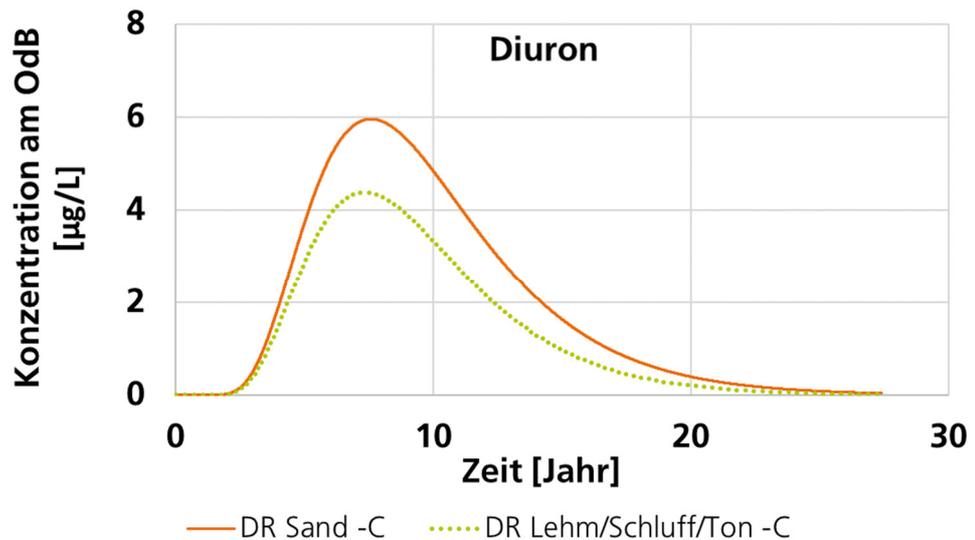
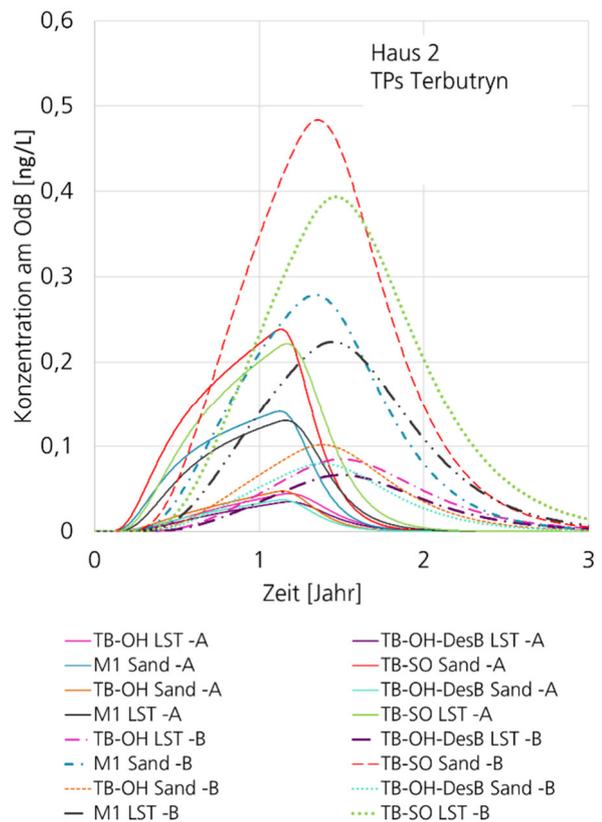
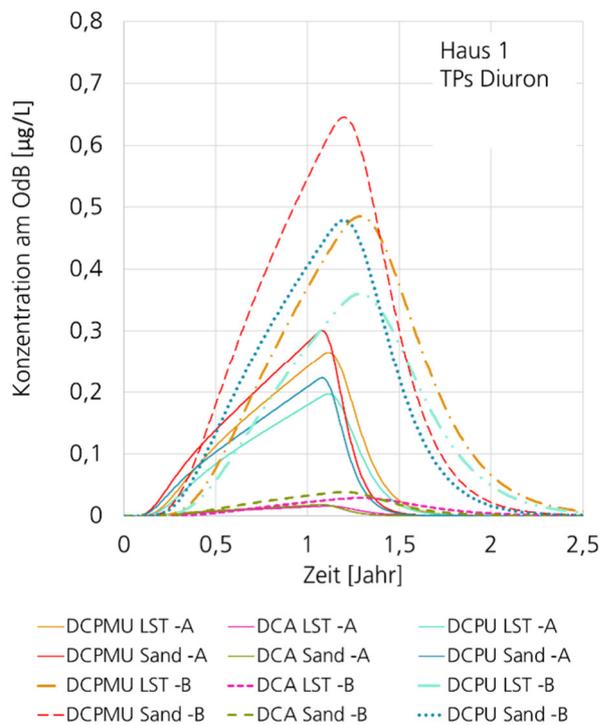
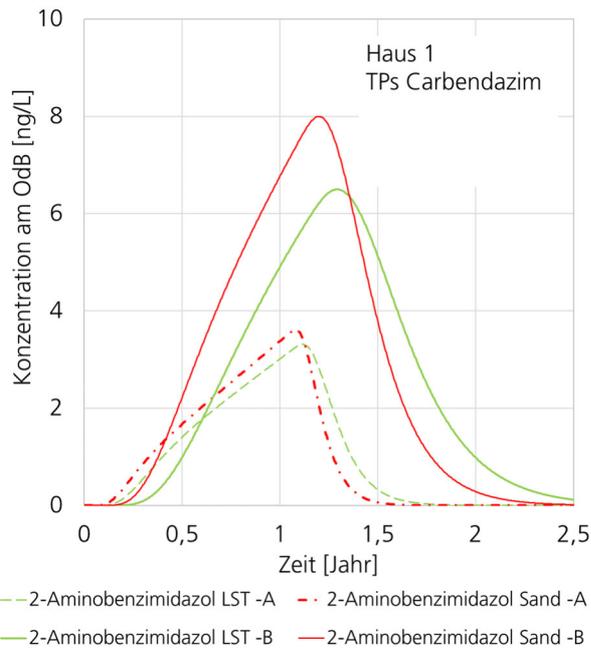


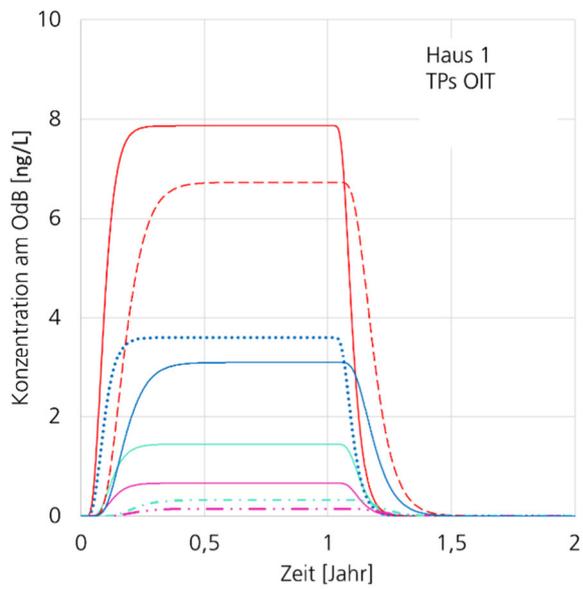
Bild 12:

Modellierte Diuronkonzentrationen am OdB für Haus 1 in sandigem Boden und lehmig/schluffig/tonigem Boden für Szenario C.

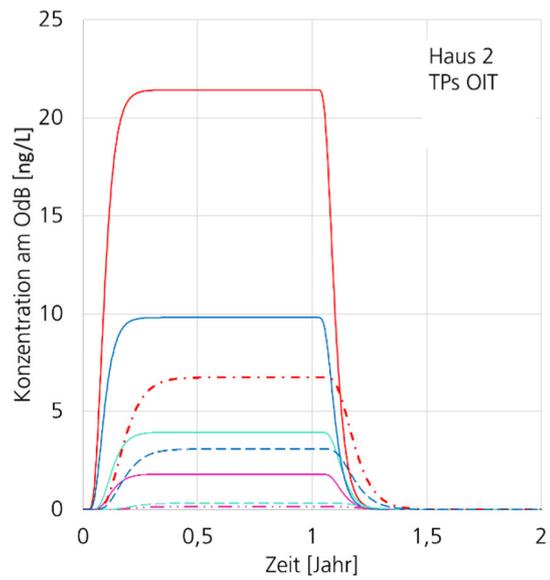
Die simulierten Konzentrationen der Transformationsprodukte am OdB für die beiden Häuser und die verschiedenen Abfluss- und Bodenszenarien sind in Bild 13 zu sehen. Alle Transformationsprodukte hatten niedrigere Konzentrationen im Vergleich zu den Eingangskonzentrationen ihrer Ausgangsverbindungen.

Transformationsprodukte sind häufig polarer als ihre Ausgangsverbindungen. Sie weisen dadurch einerseits eine erhöhte Wasserlöslichkeit, andererseits aber auch eine verstärkte Affinität zur Bindung an polare Bodenkomponenten auf. Die Transformationsprodukte waren in lehmigen/schluffigen/tonigen Böden aufgrund des höheren Rückhaltevermögens persistenter. Es ist zu beobachten, dass sie tendenziell später am OdB eintreffen, gleichzeitig aber länger auf einem nachweisbaren Konzentrationsniveau im System verbleiben und nach längerer Zeit wieder austreten als ihre Ausgangsverbindungen. Außerdem erreichten die Transformationsprodukte in lehmigen/schluffigen/tonigen Böden niedrigere Maximalkonzentration als in sandigen Böden. Der Grund dafür liegt in einem niedrigeren Retardationsfaktor des lehmigen/schluffigen/tonigen Bodens. Stoffe haben hier eine längere Transportzeit, unterliegen dadurch einem stärkeren Abbau und führen zu geringeren Konzentrationen am OdB.





— Octylmalonamidsäure LST -A — Octylamin LST -A
 — Octylamin Sand -A ··· Octylmalonamidsäure Sand -A
 — Octylmalonamidsäure LST -B - - - Octylamin LST -B
 — Octylamin Sand -B — Octylmalonamidsäure Sand -B



— Octylamin Sand -A — Octylmalonamidsäure LST -A
 — Octylamin LST -A — Octylmalonamidsäure Sand -A
 — Octylmalonamidsäure LST -B - - - Octylamin LST -B
 — Octylamin Sand -B — Octylmalonamidsäure Sand -B

Bild 13:
 Modellierte Konzentrationen der Transformationsprodukte am Ort der Beurteilung für Haus 1 und Haus 2 im Sandbodenszenario („Sand“) und lehmigen/schluffigen/tonigen Boden („LST“) für die Szenarien A und B.

8 Schlussfolgerungen

Das entwickelte dreistufige Modell ist ein geeignetes Werkzeug, um die Umwelteigenschaften üblicher Putze und -mörtel zu bewerten. Die einzelnen Modell-Stufen bauen aufeinander auf: Die Ergebnisse eines vorherigen Levels dienen als Eingabeparameter für das folgende Level. Der Aufbau und die erforderlichen Eingabeparameter für jede Stufe sind in Bild 14 und Bild 15 dargestellt.

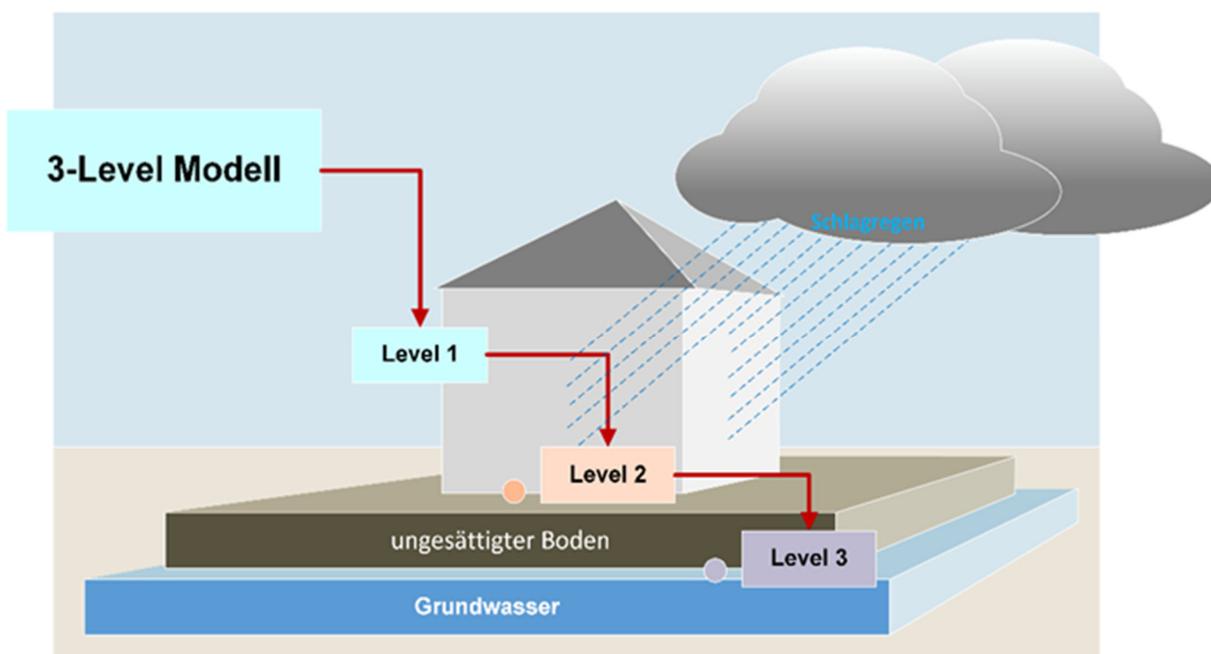


Bild 14:
Dreistufiger Modellaufbau.

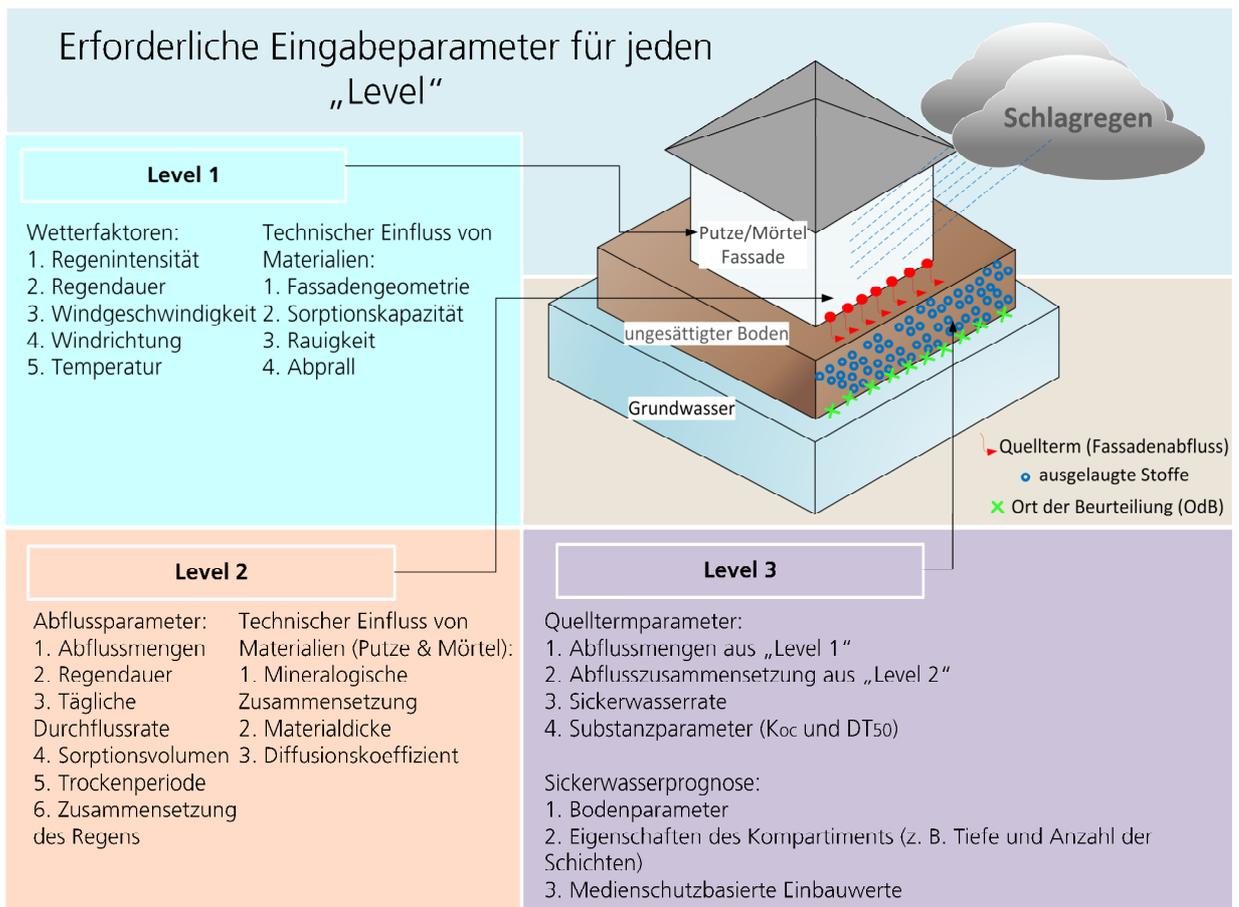


Bild 15:
Erforderliche Eingabeparameter.

8.1 Betrachtung mineralisch gebundener Putze und Mörtel

Das erste Teilmodell (Level 1) des dreistufigen Modells ist das „Fassadenwasserabflussmodell“. Für dieses Teilmodell wurden bestehende Modellierungsmethoden für die Vorhersage des Regenwasserabflusses von mit mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln versehenen Oberflächen für einen definierten Ort und Zeitraum angepasst. Zum einen können mit Hilfe des Simulationsprogramms die Regenlasten berechnet und visualisiert werden, zweitens kann jederzeit die Gesamtwasseraufnahme des Materials entsprechend des verwendeten Sorptionsmodells abgeschätzt und schließlich die Abflussmenge und Flussrate auf der Probekörperoberfläche bestimmt werden. Der Feuchtigkeitsgehalt hängt im Wesentlichen vom auftreffenden Schlagregen und den Materialeigenschaften ab. Es wurde beobachtet, dass höhere Abflussmengen und Fließgeschwindigkeiten eher bei Materialien mit einer geringeren kapillaren Absorptionskapazität auftreten. In die zukünftige Weiterentwicklung des Modells sollte eine Methode zur korrekten Beschreibung der Unterschiede zwischen den Rauigkeiten verschiedener Materialien einfließen. Auch eine vertiefte Erfassung der Einflüsse auf die Materialien durch Verdunstung auf der Materialoberfläche und

Materialalterung sind mit einzubeziehen. Auf diese Weise könnten Ungenauigkeiten, die z. B. derzeit noch bei der Betrachtung extremer Regenereignisse auftreten, reduziert werden.

Im „Modell für Auslaugungsprozesse und Stofftransport an Fassaden“ (Level 2) wurde ein bereits beschriebenes, mit PHREEQC entwickeltes Auslaugungsmodell für die Vorhersage der Stofffreisetzung aus mit Putz und Mörtel beschichteten Oberflächen weiterentwickelt. Die physikalischen Eigenschaften eines Putzes oder Mörtels haben dabei einen großen Einfluss auf das Freisetzungsverhalten. Je geringer z. B. die Dicke und Sorptionsfähigkeit eines Materials ist, desto größer ist der Stoffaustrag an ausgelaugten Stoffen. Es zeigte sich, dass die relevanten ausgelaugten Substanzen aus Putzen und Mörteln unter realen Wetterbedingungen Sulfat, Calcium, Chrom, Vanadium und Blei sind.

Im letzten Teilmodell (Level 3) erfolgt die Bewertung der freigesetzten Stoffe mittels einer Sickerwasserprognose. Aufgrund der auftretenden Stoffkonzentrationen wurden Vanadium, Chrom und Blei als relevante Substanzen identifiziert, die grundsätzlich in Fassadenabflüssen von mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln auftreten können. Weitere anorganische Stoffe, die in den Fassadenabflüssen auftreten, geben weniger Anlass zur Besorgnis, da ihre Konzentrationen im Ablaufwasser deutlich unter den GFS liegen oder sie nicht bei jedem Regenereignis ausgewaschen werden, bzw. sie in der Umwelt ubiquitär vorkommen (z. B. Zink). Nach Anwendung der Grundannahmen der Sickerwasserprognose und den dort definierten Transportszenarien zeigte sich, dass Chrom der einzige Stoff ist, der die Verwendung einiger der mineralisch gebundenen Materialien für den – für die meisten Fassaden unrealistischen – „ungünstigen Fall“ mit Grundwasserständen nahe (0,1-1 m) der technischen Konstruktion einschränken könnte. In den verbleibenden Szenarien erfüllen alle drei relevanten Stoffe für alle untersuchten Materialien die Anforderungen, so dass sie ohne Einschränkungen verwendet werden könnten. Es wurden zudem keine weiteren Stoffe in relevanten Konzentrationen aus den Rezepturen freigesetzt, sodass keine GFS-Überschreitungen am Ort der Beurteilung zu erwarten sind.

Einen Überblick über das Gesamtverfahren liefert [Vega-Garcia 2022-B].

8.2 Betrachtung pastöser Putze

Aus pastösen Fassadenbeschichtungen werden Biozide durch auftreffendes Regenwasser in relevanten Konzentrationen freigesetzt. Zusätzlich zu sich ständig ändernden Witterungseinflüssen während der Anwendungsdauer wird eine mathematische Betrachtung von Freisetzungs- und Transportvorgängen dadurch erschwert, dass die Substanzkonzentrationen bereits in der Matrix zeitlich veränderlich sind und wiederum sich ändernde Transformationsprodukte bilden. Aus diesem Grund können die für die Freisetzung anorganischer Stoffe aus mineralisch gebundenen Putzen und Mörteln entwickelten Teilmodelle aus Level 1 und 2 nicht ohne Weiteres auf pastöse Putze angewendet werden.

Für pastöse Putze kann das Level-1-Modell aber grundsätzlich adaptiert werden, da die Verfahren zur Bestimmung der Abflussmenge von Fassaden mit denen für mineralische Produkte identisch sind. Neben Eingangsparametern wie Fassadengeometrie und -ausrichtung sind dazu auch die materialspezifischen Parameter wie z. B. die Sorptionskapazität erforderlich, die durch die Hersteller bereitgestellt werden müssten.

Um die Entwicklung eines Level-2-Modells für pastöse Putze zu ermöglichen, sind systematische Feldversuche erforderlich, um die komplexen Freisetzungsmechanismen zu erfassen und anschließend rechnerisch darstellen zu können. Dabei steht zum einen eine detaillierte Erfassung der herrschenden Witterungsbedingungen im Fokus. Auf diese Weise kann zukünftig z. B. der Einfluss unvermittelter Temperaturänderungen auf Diffusions- und Freisetzungsprozesse besser beschrieben werden. Darüber hinaus werden die Ergebnisse benötigt, um die Freisetzung von Bioziden und ihre Transformation durch die Kombination von Temperatur und UV-Strahlung zu beschreiben. Die Analytik der Biozide und ihrer Transformationsprodukte sollte dabei nicht nur für die Ablaufwässer erfolgen, sondern – im Unterschied zu bisherigen Versuchen - auch engmaschig für die Fassadenbeschichtungen selbst. Ggfs. ist auch eine Weiterentwicklung bzw. Anpassung bereits beschriebener Modelle (z. B. Kapitel 5.3.5) möglich.

Für die Modellierung des Umweltverhaltens von Bioziden wurden Daten aus früheren Untersuchungen zur Freisetzung von Bioziden aus Fassadenbeschichtungen aufbereitet. Im Fokus stand v. a. der Einfluss der Ausrichtung von Fassaden auf das Freisetzungsverhalten der Biozide.

Die Ergebnisse einer Korrelationsanalyse bestätigten die Vermutung, dass der Hauptparameter, der die Auslaugung von Bioziden beeinflusst, der Schlagregen ist. Witterungseinflüsse während und vor dem Regenereignis wie Regenintensität, Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Gesamtniederschlag, Temperatur und UV-Einstrahlung haben als isolierte Parameter keinen signifikanten Einfluss, da sie die komplexen Wechselwirkungen, die die Emissionen beeinflussen, nicht abbilden. Erforderlich sind weitere Forschungsergebnisse zu den Abbauprozessen der in Fassadenbeschichtungen eingesetzten bioziden Wirkstoffe sowie Untersuchungen zu Alterungsprozessen in den Putzen unter Einfluss klimatischer Faktoren wie UV-Einstrahlung, da diese die Zusammensetzung organischer Substanzen und auch das Freisetzungsverhalten während der Anwendungsdauer eines Putzes beeinflussen können [Blocken 2012; Bollmann 2016; Bollmann 2017; Schoknecht 2009]. Sobald dies geschehen ist, kann man ein Level-2-Modell entwickeln (bzw. vorhandene Modelle modifizieren), welches es ermöglicht, die Auslaugung der in Fassadenbeschichtungen verwendeten Biozide bei zufälligen Regenereignissen vorherzusagen.

Der Einfluss der Ausrichtung von Fassaden auf das Freisetzungsverhalten der Biozide konnte gezeigt werden. Vor allem auf den Seiten mit geringerer Regenmenge waren die gefundenen Biozidkonzentration höher. Die Installation bauwerksnaher Vor-Ort-Behandlungsanlagen für biozidhaltige Fassadenabflüsse erscheint daher für alle Fassadenflächen sinnvoll. Dazu sind jedoch Konzepte

für die Dimensionierung im Hinblick auf die ja nach Windrichtung zu erwartende hydraulische Belastung erforderlich.

Die gesammelten Daten wurden auch als Quellterm für die Simulation des Umweltverhaltens der Biozide und ihrer Transformationsprodukte mittels der Sickerwasserprognose (Level 3) verwendet. Insgesamt kann festgestellt werden, dass die durch Modellierung ermittelten Biozidkonzentration am Ort der Beurteilung (OdB), mit Ausnahme von OIT, die Geringfügigkeitsschwellen-Werte überschreiten (GFS, [LAWA 2016]), wenn das betrachtete Bodenkompartment keine Oberbodenschicht mit hohen organischen Anteilen enthält. Bei Berücksichtigung einer Oberbodenschicht mit höheren organischen Anteilen lagen die modellierten Konzentrationen für alle Biozide mit Ausnahme von Diuron unterhalb der GFS. Insofern kann die Einführung von Versickerungsflächen mit einer Oberbodenschicht mit hohen organischen Anteilen als geeignete Maßnahme zur Vor-Ort-Behandlung für Fassadenablaufwässern in Betracht gezogen werden. Die Ergebnisse zeigen auch, dass durch eine Verdünnung der Ablaufwässer, z. B. durch Einbeziehung von Dachablaufwässern, die am OdB auftretenden Konzentrationen abgesenkt werden können. Hersteller von Fassadenbeschichtungen sollten zudem bevorzugt Biozide mit niedriger Halbwertszeit in ihren Rezepturen einsetzen, um deren Verweildauer in der Umwelt zu verringern. Bei den dargestellten Simulationsergebnissen kann zukünftig zudem eine größere Präzision erzielt werden, wenn noch mehr Kenntnis über die Transformationsprodukte der Biozide und v.a. zu ihren stoffspezifischen Parametern wie die Sorptionskoeffizienten für organischen Kohlenstoff im Boden (K_{oc}) und die Halbwertszeiten (DT_{50}) im Boden vorliegt.

8.3 Ausblick

Das dreistufige Modell ermöglicht die Simulation der Umweltauswirkungen für mineralisch gebundene Putze und Mörtel. Dazu müssen verschiedene Materialeigenschaften eines beliebigen Produkts und die Wetterdaten eines beliebigen Ortes in Level 1 eingegeben werden (siehe Bild 13). Die Ergebnisse durchlaufen dann Level 2 mit Hilfe der Produktrezeptur. Schließlich wird nach Level 3 eine „Konformitätsaussage“ erhalten, in der angegeben wird, ob das Bauprodukt für eine bestimmte Bausituation anwendbar ist.

Tabelle 7 zeigt eine Zusammenfassung des Standes der einzelnen Stufen des Modells für die beiden zu bewertenden Produkt- und Stoffgruppen.

Tabelle 7:
Stand der Modellentwicklung - Übersicht.

| Modellstufe | Mineralische Putze | Pastöse Putze |
|--|---|---|
| Relevante Parameter | V, Cr, Pb | Biozide (und ggf. ihre Transformationsprodukte) |
| Level 1: Fassadenwasserabfluss-Modell | Abgeschlossen (Kapitel 7.1) | Modell nutzbar Allerdings sind nicht alle Eingangsparameter verfügbar (Kapitel 8.2) |
| Level 2: Modell für Auslaugprozesse und Stofftransport auf Fassaden | Abgeschlossen (Kapitel 7.2) | Modell nicht anwendbar Alternative muss gefunden werden. Evtl. ist Weiterentwicklung bekannter Modelle möglich (Kapitel 8.2). |
| Level 3: Sickerwasserprognose | Alle notwendigen Materialeigenschaften sind verfügbar. Abgeschlossen (Kapitel 7.3) | SiWaPro nach Anpassungen anwendbar (Kapitel 7.5) Bewertungsszenario muss definiert werden. Stoffparameter müssen v. a. für einige der Transformationsprodukte geklärt werden. |

In vorangegangenen Forschungsprojekten wurden bereits eine Vielzahl von Produkten einschließlich Worst-Case-Rezepturen untersucht. Aufgrund der Ergebnisse dieser Studien und der Ergebnisse des oben beschriebenen Modells ist zu erwarten, dass für keinen der mineralisch gebundenen Putze oder Mörtel bei üblichen Anwendungsfällen Grenzkonzentrationen am Ort der Beurteilung überschritten werden. Es ist zu klären, ob unter diesen Umständen überhaupt eine Regulierung erforderlich ist. Mögliche Szenarien sind ein nationaler, ggf. produktbezogener oder ein EU-weiter, eher allgemeiner Ansatz. In diesem Fall muss generell entschieden werden, ob die Ergebnisse von standardisierten Laborverfahren oder simulierte Ergebnisse aus dem dreistufigen Modell verwendet werden. Als vereinfachter Ansatz und aufgrund der bereits vorliegenden Daten (z. B. aus dem Laborverfahren nach DIN CEN/TS 16637-2) zu einem breiten Spektrum an Rezepturen lässt sich schlussfolgern, dass, wenn die Labordaten eines neuen Produktes innerhalb der bekannten Spannbreite an Werten liegen, auch für dieses neue Produkt keine negativen Auswirkungen auf die Umwelt zu erwarten sind.

Für pastöse Putze und Biozide ist ein solches Vorgehen noch nicht möglich, da die Vorgehensweise zu Level 1 und Level 2 noch nicht abschließend geklärt ist, und da derzeit noch kein endgültiger Konsens darüber besteht, welche Szenarien, Eingangsparameter etc. für die Sickerwasserprognose (Level 3) verwendet werden sollen. So ist derzeit z. B. nur für Diuron ein ME (medienschutzbasierter Einbauwert) für die Anwendung der Szenarien der Sickerwasserprognose definiert. Gleichzeitig werden die in pastösen Putzen eingesetzten Stoffe bereits über das Biozidrecht geregelt und sind entsprechend für diesen Einsatzzweck zugelassen (allerdings nimmt die Diskussion, ob das Biozidrecht den Umweltschutz ausreichend berücksichtigt, zunehmend an Fahrt auf [Bester 2022]). Eine Doppelregulierung zusätzlich über das Bauproduktenrecht ist nicht zielführend.

Auch die zeitliche Veränderung (Alterung) eines Materials, der sowohl die chemischen Prozesse innerhalb der porösen Matrix des Materials als auch den Stofftransport an der Fassadenoberfläche beeinflussen könnte, ist im Modell nicht enthalten. Zunächst müssen diese Prozesse identifiziert und ihr Einfluss quantifiziert werden, um im Anschluss in die Modellierung mit eingebunden werden zu können.

9 Abbildungsverzeichnis

- Bild 1: Kompartimente und Mechanismen nach Schiopu und Tiruta-Barna [Schiopu 2009 und Tiruta-Barna 2008] zur Modellierung der Auslaugung von anorganischen Stoffen aus Putz- und Mörtelfassaden. Dabei bedeutet S die Porenkonzentration im ungelösten, festen Zustand und C die Porenkonzentration im Porenwasser. Q ist der Fluss, und $C_{\text{Auslaugung}}(t)$ die Konzentration zu einem bestimmten Zeitpunkt t . 35
- Bild 2: Kopplung des Fassadenwasserabflussmodells (Level 1) mit dem Modell für Auslaugprozesse und Stoff-Transport auf Fassaden (Level 2). 36
- Bild 3: Quellterm (ausgelaugte Stoffe im Fassadenabfluss), ungesättigte Transportzone und Ort der Beurteilung, an dem die GFS nicht überschritten werden sollen (Vega-Garcia 2021-B). 38
- Bild 4: Gegenüberstellung von rechnerisch ermittelten und experimentell erhaltenen Abflussvolumina am Beispiel eines Vormauermörtels [Vega-Garcia, 2020-B]. 45
- Bild 5: Vergleich von experimentellen Daten aus der Freibewitterung und rechnerisch erhaltenen Ergebnissen aus Level 2: pH- Wert, Chrom (Cr), Vanadium (V), Blei (Pb) und Sulfat (SO_4^{2-}) am Beispiel Vormauermörtel (FMM). 50
- Bild 6: Vergleich des rechnerisch ermittelten kumulierten Austrags für Vormauermörtel (FMM, exemplarisch) mit dem „zulässigen“ theoretischen GFS-Austrag an der Unterkante der Probekörper. 52
- Bild 7: Himmelsrichtungsabhängiger, kumulierter Wirkstoffaustrag von Fassaden nach 18 Monaten Bewitterung. 54
- Bild 8: Biozidkonzentration im Abfluss von Haus 1 (H1) und Haus 2 (H2) für jede der Fassadenausrichtungen. 55
- Bild 9: Heatmap der Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman zwischen Wetterparametern und Biozidaustrag im Abfluss der Westfassaden von Haus 1. Die dunkelste blaue Farbe bezieht sich auf die stärkste positive Korrelation, die dunkelste rote Farbe bezieht sich auf eine negative Korrelation und weiß bedeutet eine Nicht-Beziehung zwischen den betrachteten Wetterparametern. 56
- Bild 10: Heatmap der Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman zwischen Wetterparametern und Biozidaustrag im Abfluss der Westfassaden von Haus 2. Die dunkelste blaue Farbe bezieht sich auf die stärkste positive Korrelation, die dunkelste rote Farbe bezieht sich auf eine negative Korrelation und weiß bedeutet eine Nicht-Beziehung zwischen den betrachteten Wetterparametern. 57

| | |
|--|----|
| Bild 11: Modellierter Biozidkonzentration am OdB für Haus 1 und Haus 2 in sandigem Boden und lehmig/schluffig/tonigem Boden für die Szenarien A und B. | 59 |
| Bild 12: Modellierter Diuronkonzentrationen am OdB für Haus 1 in sandigem Boden und lehmig/schluffig/tonigem Boden für Szenario C. | 60 |
| Bild 13: Modellierter Konzentrationen der Transformationsprodukte am Ort der Beurteilung für Haus 1 und Haus 2 im Sandbodenszenario („Sand“) und lehmigen/schluffigen/tonigen Boden („LST“) für die Szenarien A und B. | 62 |
| Bild 14: Dreistufiger Modellaufbau. | 63 |
| Bild 15: Erforderliche Eingabeparameter. | 64 |

10 Tabellenverzeichnis

| | |
|---|----|
| Tabelle 1: Geringfügigkeitsschwellenwerte (GFS-Werte) [LAWA 2016], mit PSMBP = „Pflanzenschutzmittel und Biozidprodukte einschließlich Abbauprodukte“. | 18 |
| Tabelle 2: Physikalisch-chemische Kennwerte von Bioziden (Übersicht nach [Paijens 2019]). | 41 |
| Tabelle 3: Physikalisch-chemische Eigenschaften von Transformationsprodukten: Molare Masse, Oktanol-Wasser-Verteilungskoeffizient ($\log K_{ow}$), Wasserlöslichkeit, Halbwertszeiten und Sorptionskoeffizient von organischem Kohlenstoff im Boden Koeffizient (K_{oc}). Die Werte von DT_{50} und K_{oc} , die für die weiteren Berechnungen verwendet wurden, sind in der Tabelle fett gedruckt dargestellt. | 42 |
| Tabelle 4: Biozidkonzentration und Wassermengen für die Szenarien A und B. | 43 |
| Tabelle 5: Ergebnisse des Fassadenwasserabflussmodells, die als Eingabeparameter in das Modell für Auslaugungsprozesse und Materialtransport an Fassaden verwendet werden (exemplarisch für Vormauermörtel FMM). | 46 |
| Tabelle 6: Bewertung mittels Sickerwasserprognose durch Vergleich von simulierten Auslaugkonzentrationen und medienschutzbasierten Einbauwerten (ME) für Vormauermörtel (FMM, exemplarisch). Rote Zellen: statistische Werte liegen über ihren jeweiligen ME. Grüne Zellen: 90. Perzentilwerte liegen unterhalb der ME und deuten darauf hin, dass der Einsatz eines Baustoffes für eine technische Anwendung zulässig ist. | 53 |
| Tabelle 7: Stand der Modellentwicklung - Übersicht. | 68 |

11 Literatur

- [ALTEX 2010] ALTEX-1D: Berechnungsinstrument zur Sickerwasserprognose bei DU (Detailuntersuchungen). [online] Software, Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie (LBEG) Niedersachsen. Version 2.4 vom 9.2.2010. [Zugriff am: 10.11.2019]. Verfügbar unter: <http://www.lbeg.niedersachsen.de/ser-vlets/download?C=53203325&L=20>
- [Arnot 2005] Arnot, J., Gouin, T., Mackay, D. Practical methods for estimating environmental biodegradation rates. Canadian Environmental Modelling Network. *Transformation Products of Synthetic Chemicals in the Environment*. 2005. ISBN 978-3-540-88272-5.
- [BBodSchV 1999] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung vom 12. Juli 1999 (BGBl. I S. 1554), die zuletzt durch Artikel 126 der Verordnung vom 19. Juni 2020 (BGBl. I S. 1328) geändert worden ist*.
- [BBodSchG 1998] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Bundes-Bodenschutzgesetz vom 17. März 1998 (BGBl. I S. 502), das zuletzt durch Artikel 101 der Verordnung vom 9. Juli 2021 (BGBl. I S. 1474) geändert worden ist*, 9. Juli 2021.
- [Bester 2014] Bester, K., Vollertsen, J., Bollmann, U. Water driven leaching of biocides from paints and renders. Danish Ministry of the Environment. *Pesticide Research*, 2014, **156**. ISBN 978-87-93178-11-3.
- [Bester 2022] Bester, K. Overview on the existing knowledge on leaching of biocides from building materials. Aarhus University, DCE – Danish Centre for Environment and Energy – Scientific briefing no. 2022/23. 2022. [online, Zugriff am 27.01.2023]. Verfügbar unter: https://dce.au.dk/fileadmin/dce.au.dk/Udgivelser/Notater_2022/N2022_23.pdf
- [Beyer 2007] Beyer, C., Konrad, W., Rügner, H., Bauer, S., Park, C., Liedl, R., Grathwohl, P. Modellbasierte Sickerwasserprognose für die Verwertung von recycling- Baustoff in technischen Bauwerken (model-based prognosis of contaminant leaching for reuse of demolition waste in construction projects; in German). *Grundwasser*, 2007, 94–107.
- [Beyer 2008] Beyer, C., Konrad, W., Rügner, H., Bauer, S., Liedl, R., Grathwohl, P. Model based prediction of long-term leaching of contaminants from secondary materials in road constructions and noise protection dams. *Waste Management*, 2008, **29**, 839–850. DOI: 10.1016/j.wasman.2008.06.025
- [Biau 2010] Biau, D., Jolles, B., Porcher, R. P. Value and theory of hypothesis testing: and explanation for new researchers. *Clinical Orthopaedics and Related Research*. 2010, **463**, 885–892.
- [Blocken 2012] Blocken, B., Derome, D., Carmeliet, J. Rainwater runoff from building façades: A review. *Building and Environment*, 2012, **60** (2), 339-361. DOI: 10.1016/j.buildenv.2012.10.008
- [Bollmann 2014] Bollmann, U., Vollertsen, J., Carmeliet, J., Bester, K. Dynamics of biocide emissions from buildings in a suburban stormwater catchment - Concentrations, mass loads and emission processes. *Water Research*, 2014, **56**, 66-67. DOI: 10.1016/j.watres.2014.02.033
- [Bollmann 2016] Bollmann, U., Minelgaite, G., Schlüsener M., Ternes, T., Vollersten, J., Bester, K. Leaching of Terbutryn and its Photodegradation Products from Artificial Walls under Natural Weather Conditions. *Environmental Science and Technology*, 2016, **50**, 4289-4295. Print ISSN 0013-936X, Online ISSN 1520-5851. DOI: 10.1021/acs.est.5b05825
- [Bollmann 2017] Bollmann, U., Fernández-Calviño, D., Brandt, K.K., Storgaard, M.S., Sanderson, H., Bester, K. Biocide Runoff from Building Facades: Degradation

- Kinetics in Soil. *Environmental Science and Technology*, 2017, **51**, 3694-3702.
- [Brameshuber 2004] Brameshuber, W., Vollpracht, A. Modellrechnungen zur Untersuchung der Auswirkungen der neuen LAWA-Regelungen auf die Bewertung der Umweltverträglichkeit von Beton, 2004. Forschungsbericht Nr. F 909, Institut für Bauforschung der RWTH Aachen, Aachen 2004/2005.
- [Brameshuber 2009] Brameshuber, W., Vollpracht, A. Umweltverträglichkeit von mineralischen Baustoffen. *Mauerwerk*, 2009, **13** (4), 190-194. Print ISSN 1432-3427, Online ISSN 1437-1022. DOI: 10.1002/dama.200900429
- [Bork 2021] Bork, M., Lange, J., Graf-Rosenfellner, M., Hensen, B., Olsson, O., Hartung, T., Fernandez-Pascual, E., Lang, F. Urban storm water infiltration systems are not reliable sinks for biocides: evidence from column experiments. *Scientific Reports*, 2021, **11**, 7242. DOI: 10.1038/s41598-021-86387-9
- [Breuer 2012] Breuer, K., Hofbauer, W., Krueger, N., Mayer, F., Scherer, C., Schwerd, R., Sedlbauer, K. Wirksamkeit und Dauerhaftigkeit von Bioziden in Bautenbeschichtungen. *Bauphysik*, 2012, **34** (4), 170-182. DOI: 10.1002/bapi.201200021
- [Burkhardt 2007] Burkhardt, M., Kupper, T., Hean, S., Haag, R., Schmid, P., Kohler, M., Boller, M. Biocides used in building materials and their leaching behavior to sewer systems. *Wat. Science and Technology*, 2007, **56**, 63-67. DOI: 10.2166/wst.2007.807
- [Burkhardt 2009] Burkhardt, M., Junghans, M., Zuleeg, S., Schoknecht, U., Lamani, X., Bester, K., Vonbank, R., Simmler, H., Boller, M. Biozide in Gebäudefassaden – ökotoxikologische Effekte, Auswaschung und Belastungsabschätzung für Gewässer. *Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung*, 2009, **21**, 36-47. ISSN 2190-4715. DOI: 10.1007/s12302-008-0033-1
- [Burkhardt 2011] Burkhardt, M., Zuleeg, S., Vonbank, R., Schmid, P., Hean, S., Lamani, X., Bester, K., Boller, M. Leaching of additives from construction materials to urban storm water runoff. *Wat. Science and Technology*, 2011, **63**, 1974-1982. DOI: 10.2166/wst.2011.128
- [Burkhardt 2012] Burkhardt, M., Zuleeg, S., Vonbank, R., Bester, K., Carmeliet, J., Boller, M., Wangler, T. Leaching of Biocides from façades under natural weather conditions. *Environmental Science and Technology*, 2012, **46**, 5497-5503. DOI: 10.1021/es2040009
- [Burkhardt 2018] Burkhardt, M., Engelke, D., Gehrig, S.; Hochstrasser, F., Rohr, M., Tietje, O. Introduction and application of the software COMLEAM – Manual Version 1.0. HSR Hochschule für Technik Rapperswil, Schweiz, 2018.
- [Clara 2014] Clara, M., Ertl, T., Giselbrecht, G., Gruber, G., Hofer, T.F., Humer, F., Kretschmer, F., Kolla, L., Schoknecht, C., Weiß, S. SCHRUM—Spurenstoffemissionen aus Siedlungsgebieten und von Verkehrsflächen: Studie im Auftrag des Bundesministeriums für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft. Wien: BMLFUW, 2014.
- [Coutu 2012] Coutu, S., Rota, C., Rossi, L., Barry, D. Modelling city-scale façade leaching of biocide by rainfall. *Water Research*, 2012, **46**, 3525-3534. DOI: 10.1016/j.watres.2012.03.064
- [DAfStb 2020] DAfStb Freisetzung, Stoffe: 2020-06, *Bestimmung der Freisetzung umweltrelevanter Stoffe aus zementgebundenen Baustoffen in der dynamischen Oberflächenauslaugprüfung*, Technische Regel, Beuth Verlag, Berlin, 2020.

- [DepV 2009] *Deponieverordnung vom 27. April 2009 (BGBl. I S. 900), die zuletzt durch Artikel 3 der Verordnung vom 9. Juli 2021 (BGBl. I S. 2598) geändert worden ist.*
- [DIBt 2011] Deutsches Institut für Bautechnik: Grundsätze zur Bewertung der Auswirkungen von Bauprodukten auf Boden und Grundwasser. Teile I und III in der Fassung vom Mai 2009, Teil II in der Fassung vom September 2011 DIBt Mitteilungen 40(4):116–134. DOI: 10.1002/dibt.200930029
- [DIBt 2014] Deutsches Institut für Bautechnik: EuGH verurteilt Deutschland wegen Handelshemmnissen bei Bauprodukten, Urteil vom 16.10.2014, Rs. C-100/13, Pressemitteilung vom 17.10.2014. [Zugriff am 31.01.2023] Verfügbar unter: https://www.dibt.de/fileadmin/dibt-website/Dokumente/Allgemein/EuGH-Urteil/EuGH-Urteil_Pressemitteilung_DIBt_DE_Oktober_2014.pdf
- [DIBt 2021] Deutsches Institut für Bautechnik: Muster-Verwaltungsvorschrift Technische Baubestimmungen. Ausgabe 2021/1 [online], 2021. [Zugriff am 26.1.2023] Verfügbar unter: https://www.dibt.de/fileadmin/dibt-website/Dokumente/Referat/P5/Technische_Bestimmungen/MVVTB_2021-1.pdf
- [DIN CEN/TS 16637-1] DIN CEN/TS 16637-1:2014-11, *Bauprodukte - Bewertung der Freisetzung von gefährlichen Stoffen - Teil 1: Leitfaden für die Festlegung von Auslaugprüfungen und zusätzlichen Prüfschritten..*
- [DIN CEN/TS 16637-2] DIN CEN/TS 16637-2:2014-11, *Bauprodukte - Bewertung der Freisetzung von gefährlichen Stoffen - Teil 2: Horizontale dynamische Oberflächenauslaugprüfung.*
- [DIN CEN/TS 16637-3] DIN CEN/TS 16637-3:2014-11, *Bauprodukte - Bewertung der Freisetzung von gefährlichen Stoffen - Teil 3: Horizontale Perkulationsprüfung im Aufwärtsstrom.*
- [DIN EN 16105] DIN EN 16105:2011-09, *Beschichtungsstoffe - Laborverfahren zur Bestimmung der Freisetzung von Substanzen aus Beschichtungen in intermittierendem Kontakt mit Wasser.*
- [Dijkstra 2005] Dijkstra, J., Van der Sloot, H., Spanka, G., Thilen, G. How to Judge Release of Dangerous Substances from Construction Products to Soil and Groundwater: CPD Topic 1. Soil and Groundwater Impact. ECN-C-05-045. Petten (NL): ECN, 2005.
- [DWA 2020] DWA-A 138-1. Anlagen zur Versickerung von Niederschlagswasser – Teil 1: Planung, Bau, Betrieb, Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall e. V., Hefen, Deutschland, 2020. ISBN 978-3-96862-018-3.
- [ECHA 2006] European Chemical Agency (ECHA). 3, 4-DICHLOROANILINE (3,4-DCA) Summary Assessment Report. 2006. [Zugriff am: 15.01.2021]. Verfügbar unter: <https://echa.europa.eu/>
- [EFSA 2011] European Food Safety Authority (EFSA). Conclusion on the peer review of the pesticide risk assessment of the active substance terbuthylazine. *EFSA Journal*, 2011, **9** (1), 1969. DOI:10.2903/j.efsa.2011.1969
- [EU 1985] EUROPÄISCHER RAT: Entschließung des Rates vom 7. Mai 1985 über eine neue Konzeption auf dem Gebiet der technischen Harmonisierung und der Normung (85/C 136/01), 4. Jun.1985.
- [EU 1988] EUROPÄISCHER RAT: *Richtlinie 89/106/EWG des Rates vom 21. Dezember 1988 zur Angleichung der Rechts- und Verwaltungsvorschriften der Mitgliedstaaten über Bauprodukte*, 11. Feb.1989.

- [EU 2000] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Richtlinie 2000/60/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 23. Oktober 2000 zur Schaffung eines Ordnungsrahmens für Maßnahmen der Gemeinschaft im Bereich der Wasserpolitik*, 22. Dez. 2000.
- [EU 2006-A] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Richtlinie 2006/118/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 12. Dezember 2006 zum Schutz des Grundwassers vor Verschmutzung und Verschlechterung*, 27. Dez. 2006.
- [EU 2006-B] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Verordnung (EG) Nr. 1907/2006 des europäischen Parlaments und des Rates vom 18. Dezember 2006 zur Registrierung, Bewertung, Zulassung und Beschränkung chemischer Stoffe (REACH), zur Schaffung einer Europäischen Agentur für chemische Stoffe, zur Änderung der Richtlinie 1999/45/EG und zur Aufhebung der Verordnung (EWG) Nr. 793/93 des Rates, der Verordnung (EG) Nr. 1488/94 der Kommission, der Richtlinie 76/769/EWG des Rates sowie der Richtlinien 91/155/EWG, 93/67/EWG, 93/105/EG und 2000/21/EG der Kommission*, 14. Okt.2020.
- [EU 2006-C] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Vorschlag für eine Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates zur Schaffung eines Ordnungsrahmens für den Bodenschutz und zur Änderung der Richtlinie 2004/35/EG vom 22.9.2006*, Vorschlag von der Europäischen Kommission zurückgezogen in 2014.
- [EU 2008] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Richtlinie 2008/105/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 16. Dezember 2008 über Umweltqualitätsnormen im Bereich der Wasserpolitik und zur Änderung und anschließenden Aufhebung der Richtlinien des Rates 82/176/EWG, 83/513/EWG, 84/156/EWG, 84/491/EWG und 86/280/EWG sowie zur Änderung der Richtlinie 2000/60/EG*, 24.12.2008.
- [EU 2011] EUROPÄISCHES PARLAMENT und RAT: *Verordnung (EU) Nr. 305/2011 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 9. März 2011 zur Festlegung harmonisierter Bedingungen für die Vermarktung von Bauprodukten und zur Aufhebung der Richtlinie 89/106/EWG des Rates*, 4. Apr. 2011.
- [Fenner 2009] Fenner, K., Schenker, U. and Scheringer, M. *Modelling Environmental Exposure to Transformation Products of Organic Chemicals. Transformation Products of Synthetic Chemicals in the Environment*. Berlin, Heidelberg: Springer, 2009. S. 121 -149. DOI: 10.1007/6982013
- [Gasperi 2014] Gasperi, J., Sebastian, C.,Ruban, V., Delamain, M., Percot, S., Wiest, L., Mirande, C., Caupos, E., Demare, D., Kessoo, M.D.K. *Micropollutants in urban stormwater: Occurrence, concentrations, and atmospheric contributions for a wide range of contaminants in three French catchments. Environmental Science and Pollutants Research*, 2014, **21**, 5267–5281. DOI: 10.1007/s11356-013-2396-0
- [Garrabrants 2002] Garrabrants, A., Sanchez, F., Gervais, C., Moszkowicz, P., Kosson, D. *The effect of storage in an inert atmosphere on the release of inorganic constituents during intermittent wetting of a cement-based material. Journal of Hazardous Materials*, 2002, **91**, 159–185. DOI: 10.1016/s0304-3894(01)00383-1
- [Grathwohl 2006] Grathwohl, P., Liedl, R., Beyer, C. Konrad, W., 2006. *Übertragung der Ergebnisse desBMBF – Förderschwerpunktes Sickerwasserprognose“ auf repräsentativeFallbeispiele (Förderkennzeichen 02WP0517)*. Abschlussbericht, Universität Tübingen, Deutschland.

- [GrwV 2010] *Grundwasserverordnung vom 9. November 2010 (BGBl. I S. 1513), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 4. Mai 2017 (BGBl. I S. 1044) geändert worden ist.*
- [Hecht 2005] Hecht, M. Quellstärke ausgewählter Betone in Kontakt mit Sickerwasser. *Beton Stahlbetonbau*, 2005, **100**, 85–88. DOI: 10.1002/best.200590306
- [IPCS 2021] International Programme on Chemical Safety (IPCS) [online], 2021. [Zugriff am: 28.02.2021]. Verfügbar unter: <http://www.inchem.org/documents/ehc/ehc/ehc149.htm>
- [IUPAC 2022] International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) [online, Zugriff am: 28.02.2021]. Verfügbar unter: <http://sitem.herts.ac.uk/aeru/iupac/index.htm>
- [Jungnickel 2004] Jungnickel, C., Ranke, J., Stock, F. Gewässerbelastung durch den Eintrag von Bioziden aus Dachfarben. Universität Bremen.
- [Hohberg 2003] Hohberg, I. *Charakterisierung, Modellierung und Bewertung des Auslaugungsverhaltens umweltrelevanter, anorganischer Stoffe aus zementgebundenen Baustoffen*. Berlin: Beuth-Verlag, 2003. ISBN 978-3-410-65742-2.
- [JRC 2022] Joint Research Centre - European Soil Data Centre: FOCUS Software zur Abschätzung des Verhaltens von Stoffen bei der Bodenpassage [online, Zugriff am: 18. Februar 2022]. Verfügbar unter: <http://esdac.jrc.ec.europa.eu/projects/ground-water>
- [Kendall 1970] Kendall, M. *Rank Correlation methods*. 4. Auflage. London: Griffin, 1970. ISBN 978-0-852-6419-96.
- [Klein 1997] Klein, M., Müller, M., Dust, M., Görlitz, G., Gottesbüren, B., Hassink, J., Kloskowski, R., Kubiak, R., Ressler, H., Schäfer, H., Stein B., Vereecken, H. Validation of the pesticide leaching model PELMO using lysimeter studies performed for registration, *Chemosphere*, 1997, **35** (11), 2563-2587. DOI: 10.1016/S0045-6535(97)00325-1
- [Knäbel 2014] Knäbel, A., Meyer, K., Rapp J., Schulz, R. Fungicide field concentrations exceed FOCUS surface water predictions: urgent need of model improvement. *Environmental Science and Technology*, 2014, **48**, 455–463. ISSN 0013-936X. DOI: 10.1021/es4048329
- [Knäbel 2016] Knäbel, A., Scheringer, M., Stehle, S., Schulz, R. Aquatic Exposure Predictions of Insecticide Field Concentrations Using a Multimedia Mass-Balance Model. *Environmental Science and Technology*, 2016, **50**, 3721–3728. ISSN 0013-936X. DOI: 10.1021/acs.est.5b05721
- [KrWG 2012] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Kreislaufwirtschaftsgesetz vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212), das zuletzt durch Artikel 20 des Gesetzes vom 10. August 2021 (BGBl. I S. 3436) geändert worden ist.*
- [Lambropoulou 2014] Lambropoulou, D., Nollet, N. *Transformation products of emerging contaminants in the environment: Analysis, processes, occurrence, effects and risks*. Chichester: Wiley, 2014. ISBN 978-1-118-33959-6.
- [LAWA 2016] Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA): *Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser*. Stuttgart, Deutschland, 2016.
- [Le Grand-Piteira 2006] Le Grand-Piteira, N., Daerr, A., Limat, L. Meandering Rivulets on a plan: a simple balance between inertia and capillarity. *Physical Review Letters*, 2006, **96**, S. 254503.
- [Linke 2021] Linke, F., Olsson, O., Preusser, F., Kümmerer, K., Schnarr, L., Bork, M., Lange, J. Sources and pathways of biocides and their transformation products in urban water infrastructure of a 2 ha urban district. *Hydrology and earth system sciences*, 2021, 4495-4512. DOI: 10.5194/hess-2021-143

- [Liu 1995] Liu, J., Qian, C., Hydrophobic Coefficients of S-triazines and Phenylurea Herbicides. *Chemosphere*, 1995, **31** (8), 3951-3959. doi:10.1016/0045-6535(95)00267-C
- [MantelV 2021] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Verordnung zur Einführung einer Ersatzbaustoffverordnung, zur Neufassung der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung und zur Änderung der Deponieverordnung und der Gewerbeabfallverordnung Bundesgesetzblatt Jahrgang 2021 Teil I Nr. 43*, ausgegeben zu Bonn am 16. Juli 2021.
- [Nebel 2010] Nebel, H., Scherer, C.R., Schwitalla, C., Schwerd, R., Vollpracht, A., Brameshuber, W. Leaching behaviour of renderings and mortars. In: PROCEEDINGS OF THE 8TH INTERNATIONAL MASONRY CONFERENCE, Hrsg. International Masonry Society IMS. 8th International Masonry Conference 4.-7. Juli 2010, Dresden 2010. pp. 1801 -1808, ISSN 978-3-000-31381-3, ISBN 3-000-31381-8.
- [NEN 7375] NEN 7375:2004, *Leaching characteristics - Determination of the leaching of inorganic components from moulded or monolithic materials with a diffusion test - Solid earthy and stony materials*.
- [Oberacker 2002] Oberacker, F., Eberle, S. BMBF-research-focus 'percolation water prognosis'-concept and current activities. *Journal of Soils and Sediments*, 2002, **2** (1), 24–28. DOI: 10.1007/BF02991247
- [OGewV 2011] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Oberflächengewässerverordnung vom 20. Juni 2016 (BGBl. I S. 1373), die zuletzt durch Artikel 2 Absatz 4 des Gesetzes vom 9. Dezember 2020 (BGBl. I S. 2873) geändert worden ist*.
- [Paijens 2019] Paijens, C., Bressy, A., Frère, B., Moilleron, R. Biocide emissions from building materials during wet weather: Identification of substances, mechanism of release and transfer to the aquatic environment. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, **27** (4), 3768-3791. DOI: 10.1007/s11356-019-06608-7
- [Parkhurst 1995] Parkhurst, D. User's guide to PHREEQC--A computer program for speciation, reaction-path, advective-transport, and inverse geochemical calculations. *U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations*. 1995, Report 95-4227, 143.
- [PHREEQC 2013] Parkhurst, D., Appelo, C. Description of input and examples for PHREEQC version 3—A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. *U.S. Geological Survey Techniques and Methods*, 2013, Bd. 6, Kap. A43, 497. DOI:10.3133/tm6A43
- [Persson 2001] Persson, D., Kucera, V. Release of Metals from Buildings, Constructions and Products during Atmospheric Exposure in Stockholm. *Water Air Soil Pollution*, 2001, **1**, 133–150. DOI: 10.1023/A:1017556105259
- [Picó 2015] Picó, Y., Barceló, D. Transformation products of emerging contaminants in the environment and high-resolution mass spectrometry: A new horizon. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2015, **407** (21), 6257-6273. DOI:10.1007/s00216-015-8739-6
- [Pohl 2015] Pohl, K., Dulio, V., Botta, F., Schwarzbauer, J., Rüdell, H. Environmental monitoring of biocides in Europe - compartment-specific strategies. Workshop Report, 25./26. Juni 2015, Berlin. DOI: 10.13140/RG.2.1.3014.5365
- [Reiß 2021] Reiß, F., Kiefer, N., Noll, M., Kalkhof, S. Application, release, ecotoxicological assessment of biocide in building materials and its soil microbial response. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2021, **224** (11), 112707. DOI: 10.1016/j.ecoenv.2021.112707

- [Rickert 2011] Rickert, J., Spanka, G., Nebel, H. Harmonisierung von Prüfmethode für den Vollzug der EG-Bauprodukten-Richtlinie. Validierung eines europäischen Auslaugtests für Bauprodukte. Umweltbundesamt, Texte 50/2011, Dessau-Roßlau, 2011, ISSN 1862-4804.
- [Scherer 2013] Scherer, C. *Umwelteigenschaften mineralischer Werkmörtel*. Stuttgart: Fraunhofer Verlag, 2013. Forschungsergebnisse aus der Bauphysik, 12. ISBN 978-3-8396-0470-0.
- [Schießl 1995] Schießl, P., Hohberg, I., Rankers, R. Umweltverträglichkeit von Baustoffen von Außenfassaden. Forschungsbericht Nr. F 425, Institut für Bauforschung der RWTH Aachen, Aachen 1995.
- [Schiopu 2007] Schiopu, N., Jayr, E., Méhu, J., Barna, L., Moszkowicz, P. Horizontal environmental assessment of building products in relation to the construction products directive (CPD). *Waste Management*, 2007, **27**, 1436–1443. DOI: 10.1016/j.wasman.2007.03.006
- [Schiopu 2009] Schiopu, N., Tiruta-Barna, L., Mehu, J., Moszkowicz, P. Modelling and simulation of concrete leaching under outdoor exposure conditions. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**, 1613–1630. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2008.11.027
- [Schoknecht 2009] Schoknecht, U., Gruycheva, J., Mathies, H., Bergmann, H., Burkhardt, M. Leaching of Biocides Used in Façade Coatings under Laboratory Test Conditions. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**, 9321-9328. ISSN 0013-936X. DOI: 10.1021/es901983z
- [Schoknecht 2016] Schoknecht, U., Mathies, H., Wegner, R., Uhlig, S., Baldauf, H., Colson, B. Emissions of material preservatives into the environment – realistic estimation of environmental risks through the improved characterization of the leaching of biocides from treated materials used outdoors. Umweltbundesamt, Texte 22/2016, Dessau-Roßlau, 2016. ISSN 1862-4804.
- [Schoknecht 2022] Schoknecht, U., Tietje, O., Borho, N., Burkhardt, M., Rohr, M., Vollpracht, A., Weiler, L. Environmental Impact of Construction Products on Aquatic Systems—Principles of an Integrated Source–Path–Target Concept. *Water*, 2022, **14** (2), 228. DOI: 10.3390/w14020228
- [Schwerd 2011] Schwerd, R. *Verweilverhalten Biozider Wirkstoffe in Aussenbeschichtungen im mehrjährigen Freilandversuch*. Stuttgart: Fraunhofer Verlag, 2011. Forschungsergebnisse aus der Bauphysik, 8. ISBN 978-3-8396-0289-8.
- [Schwerd 2015] Schwerd, R., Scherer, C., Breuer, K. Wirkstoff-Restgehalte verkapselter und freier Biozide in hydrophoben Fassadenbeschichtungen. *Bauphysik*, 2015, **37**. DOI: 308-314.10.1002/bapi.201510037. ISSN: 0083-6915
- [Schwerd 2017] Schwerd, R., Scherer, C., Schwitalla, C. Umwelteigenschaften mineralischer Werkmörtel und pastöser Produkte. *Vom Wasser*, 2017, **115**, 40–41.
- [Spyder 2022] Spyder, Version 3.3.6 [online, Zugriff am: 15.09.2019]. Verfügbar unter: <https://www.spyder-ide.org/>
- [Styszko 2016] Styszko, K., Kupiec, K. Determination of diffusion coefficients of biocides on their passage through organic resin-based renders. *Chemosphere*, 2016, **160**, 273-279. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2016.06.077
- [Styszko 2018] Styszko, K., Kupiec, K. The rate of biocide leaching from porous renders. *Chemical Engineering Research & Design*, 2018, **132**, 69-76. DOI: 10.1016/j.cherd.2017.12.047

- [Susset 2011] Susset, B., P. Grathwohl. Leaching standards for mineral recycling materials – A harmonized regulatory concept for the upcoming German Recycling Decree. *Waste Management*, 2011, **31** (2), 201-214. DOI: 10.1016/j.wasman.2010.08.017
- [Susset 2018] Susset, B., Maier, U., Finkel, M., Grathwohl, P. Weiterentwicklung von Kriterien zur Beurteilung des schadlosen und ordnungsgemäßen Einsatzes mineralischer Ersatzbaustoffe und Prüfung alternativer Wertevorschläge Texte 26/2018. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau 2018.
- [Tiruta-Barna 2008] Tiruta-Barna, L. Using PHREEQC for Modelling and Simulation of Dynamic Leaching Tests and Scenarios. *Journal of hazardous materials*, 2008, **157**, 525-33. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2008.01.028
- [Tietje 2018] Tietje, O., Burkhardt, M., Rohr, M., Borho, N., Schoknecht, U. Emissions- und Übertragungsfunktionen für die Modellierung der Auslaugung von Bauprodukten. UBA-Texte 28/2018. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau 2018.
- [TrinkwV 2016] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Trinkwasserverordnung in der Fassung der Bekanntmachung vom 10. März 2016 (BGBl. I S. 459), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 22. September 2021 (BGBl. I S. 4343) geändert worden ist.*
- [Uhlig 2019] Uhlig, S., Colson, B., Schoknecht, U. A mathematical approach for the analysis of data obtained from the monitoring of biocides leached from treated materials exposed to outdoor conditions. *Chemosphere*, 2019, **228**, 271-277. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2019.04.102
- [US EPA 2012] US EPA Sustainable Futures / Framework Manual 2012 EPA-748-B12-001. Estimating Physical / Chemical and Environmental Fate Properties with EPI Suite™ [online], 2012. [Zugriff am: 20.01.2021]. Verfügbar unter: <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-05/documents/05.pdf>
- [Van Genuchten 1982] Van Genuchten, M., Alves, W. Analytical Solutions of the One-Dimensional Convective-Dispersive Solute Transport Equation. *Technical Bulletins*, 1982, 157268, United States Department of Agriculture, Economic Research Service.
- [Van Gerven 2004] Van Gerven, T., van Baelen, D., Dutré, V., Vandecasteele, C. Influence of carbonation and carbonation methods on leaching of metals from mortars. *Cement and Concrete Research*, 2004, **234**, 149–156. DOI: 10.1016/S0008-8846(03)00255-2
- [Vega-Garcia 2020-A] Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Scherer, C., Schwitalla, C., Johann, S., Rommel, S.H., Helmreich, B. Influence of façade orientation on the leaching of biocides from building façades covered with mortars and plasters. *Science of the Total Environment*, 2020, **734**, 139465. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.139465
- [Vega-Garcia 2020-B] Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Scherer, C., Schwitalla, C., Helmreich, B. Development of a Model for Stormwater Runoff Prediction on Vertical Test Panels Coated with Plaster and Mortar. *Water*, 2020, **12** (9):2593. DOI: 10.3390/w12092593
- [Vega-Garcia 2021-A] Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Schwitalla, C., Johann, S., Scherer, C., Helmreich, B. Leaching prediction for vertical test panels coated with plaster and mortars exposed under actual conditions by a PHREEQC leaching model. *Chemosphere*, 2021, **280**, 130657. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2021.130657
- [Vega-Garcia 2021-B] Vega-Garcia, P., Schwerd, R., Johann, S., Helmreich, B. Groundwater Risk Assessment of Leached Inorganic Substances from Façades Coated with

- Plasters and Mortars. *Chemosphere*, 2021, **287**, 132176, DOI: 10.1016/j.chemosphere.2021.132176
- [Vega-Garcia 2022-A] Vega-Garcia, P., Lok, C. S. C., Marhoon, A., Schwerd, R., Johann, S.; Helmreich, B. Modelling the environmental fate and behavior of biocides used in façades covered with mortars and plasters and their transformation products. *Building and Environment*, 2022, **216**, 108991. doi.org/10.1016/j.buildenv.2022.108991
- [Vega-Garcia 2022-B] Vega Garcia, P., Schwerd, R., Helmreich, B. Entwicklung eines Modells zur Bewertung der Umwelteigenschaften üblicher Putze und Mörtel. *Bauphysik*, 2022, **44** (5), 247–254. DOI: 10.1002/bapi.202200025
- [Vollpracht 2010] Vollpracht, A., Brameshuber, W. Investigations on the leaching behaviour of irrigated construction elements. *Environmental Science and Pollution Research*, 2010, **17**, 1177–1182. DOI: 10.1007/s11356-009-0264-8
- [Walser 2008] Walser, A., Burkhardt, M., Zuleeg, S., Boller, M. Gewässerbelastung durch Biozide aus Gebäudefassaden. *Gas, Wasser, Abwasser GWA*, 2008, **8**, 639-647.
- [Wangler 2012] Wangler, T.P., Zuleeg, S. Vonbank, R., Bester, K., Boller, M., Carmeliet, J., Burkhardt, M. Laboratory scale studies of biocide leaching from façade coatings. *Building and Environment*, 2012, **54**, 186-173. DOI: 10.1016/j.buildenv.2012.02.021
- [Weiler 2019] Weiler, L., Vollpracht, A. Environmental compatibility of carbon reinforced concrete: Irrigated construction elements. *Key Engineering Materials*, 2019, **809**, 314–319. DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.809.314
- [Weiler 2020-A] Weiler, L., Vollpracht, A. Leaching of Carbon Reinforced Concrete—Part 1: Experimental Investigations. *Materials*, 2020, **13**, 4405. DOI: 10.3390/ma13194405
- [Weiler 2020-B] Weiler, L., Vollpracht, A. Leaching of Carbon Reinforced Concrete—Part 2: Discussion of Evaluation Concepts and Modelling. *Materials*, 2020, **13**, 4937. DOI: 10.3390/ma13214937
- [WHG 2009] DEUTSCHER BUNDESTAG: *Wasserhaushaltsgesetz vom 31. Juli 2009 (BGBl. I S. 2585), das durch Artikel 1 des Gesetzes vom 4. August 2016 (BGBl. I S. 1972) geändert worden ist*, 11. Apr. 2016.
- [Wick 2011] Wick, A., Marincas, O., Moldovan, Z., Ternes, T. Sorption of biocides, triazine and phenylurea herbicides, and UV-filters onto secondary sludge. *Water Research*, 2011, **45**, 3538-3652. doi.org/10.1016/j.watres.2011.04.014
- [Wicke 2016] Wicke, D., Matzinger, A., Rouault, P. Relevanz organischer Spurenstoffe im Regenwasserabfluss Berlins. Abschlussbericht. Berlin: Kompetenzzentrum Wasser, 2016. Verfügbar unter: http://www.kompetenzwasser.de/wpcontent/uploads/2017/11/abschlussbericht_ogre_final_rev2.pdf
- [Wicke 2022] Wicke, D. Tatis-Muvdi, R., Rouault, P., Zerball-van Baar, P., Dünnbier, U., Rohr, M., Burkhardt, M. Emissions from Building Materials—A Threat to the Environment? *Water*, 2022, **14** (3):303. DOI: 10.3390/w14030303
- [Wittmer 2011-A] Wittmer, I.K., Scheidegger, R., Bader, H.-P., Singer, H., Stamm, C. Loss rates of urban biocides can exceed those of agricultural pesticides. *Science of the Total Environment*, 2011, **409**, 920-932. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2010.11.031
- [Wittmer 2011-B] Wittmer, I., Scheidegger, R., Stamm, C., Gujer, W., Bader, H. Modelling biocide leaching from façades. *Water Research*, 2011, **45**, 3453-3260. DOI: 10.1016/j.watres.2011.04.003