## Hydrotoxikologie

# Entwicklung einer experimentellen Methodik zur Charakterisierung und Bewertung kohäsiver schadstoffbehafteter fluvialer Sedimente

Von der Fakultät für Bauingenieurwesen der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen zur Erlangung des akademischen Grades einer Doktorin der Ingenieurwissenschaften genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Catrina Cofalla aus Düsseldorf

Berichter:

Universitätsprofessor Dr.-Ing. Holger Schüttrumpf Universitätsprofessor Dr. rer.nat. Henner Hollert Universitätsprofessor Dr.-Ing. habil. Boris Lehmann Tag der mündlichen Prüfung: 19. Dezember 2014

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Universitätsbibliothek online verfügbar

Es ist nicht genug, zu wissen, man muss auch anwenden. Es ist nicht genug, zu wollen, man muss auch tun.

Johann Wolfgang von Goethe, Wilhelm Meisters Wanderjahre, Aus Makariens Archiv (1829)

Für meine Mutter Ebba Katrin Cofalla

## Kurzfassung

Bei Hochwasserereignissen und Unterhaltungsmaßnahmen ist mit Erosion und Resuspension abgelagerter Sedimente im Gewässer und auf Vorländern zu rechnen. Weisen diese in die Wassersäule transportierten Sedimente eine Schadstoffbelastung auf, kann es zu einer signifikanten Schädigung der aquatischen Umwelt kommen. Hier ist die Erosion und die Resuspension von kohäsiven Sedimenten zu nennen, da sie die Eigenschaft besitzen können Schadstoffe zu binden. Dabei entscheidet besonders die Sedimentzusammensetzung welche Schadstoffklasse (z. B. Schwermetalle, organische Schadstoffe) hauptsächlich gebunden wird. Bei der Beschreibung und Bewertung von Gewässerabschnitten mit den genannten Eigenschaften (nachfolgend: Betrachtungsraum) werden Aspekte der Hydrodynamik, Rheologie und Ökotoxikologie berücksichtigt, die den beiden Fachgebieten Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) zugeordnet sind. Es wird deutlich, dass es sich um eine interdisziplinäre Fragestellung handelt, die mit herkömmlichen Methoden nicht beantwortet werden kann. Daher wird in dieser Arbeit die interdisziplinäre Methodik der Hydrotoxikologie vorgestellt, die durch die experimentelle Verknüpfung der Fachgebiete etablierte Methoden anpasst und neu zusammenfügt, um eine ganzheitliche Betrachtungsweise zu ermöglichen.

Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der Schadstoffe durch aquatische Organismen (z. B. Fische) hängen von einer Vielzahl unterschiedlicher Parameter ab. Deren Relevanz sowie resultierende Prozesse und Wechselwirkungen sind derzeit nicht vollständig bekannt und verstanden, so dass eine analytische Beschreibung nicht möglich ist. Beteiligte Parameter sind beispielsweise der Sedimenttyp, die Schadstoffkonzentration, das aquatische Ökosystem und die variablen Umweltbedingungen. Um die Relevanz der beteiligten Parameter zu identifizieren, ist es unabdingbar, einen abgegrenzten Betrachtungsraum zu definieren und zu untersuchen. Die identifizierten Parameter werden zur allgemeinen Vergleichbarkeit festen Parametergruppen zugeteilt. Die fünf definierten Parametergruppen lauten: *Sedimenttypen, Organismen, Hydrodynamik, Schadstoffgruppen* und *Umweltbedingungen*.

Die hydrotoxikologische Methodik beginnt mit einer theoretischen Beschreibung des ausgesuchten Betrachtungsraums, um die beteiligten Parameter für eine anschließende Bewertung zu definieren. Für eine Identifikation der Prozesse und Wechselwirkungen während der Erosion/Resuspension ist eine experimentelle Realisierung notwendig. Die Hydrotoxikologie konzentriert sich dabei auf die Berücksichtigung der relevanten Parameter sowie deren messtechnische Erfassung zur anschließenden quantitativen Beschreibung der resultierenden Prozesse und Wechselwirkungen im Betrachtungsraum. Die Umsetzung erfolgt dabei in einem Kreisgerinne, das einen speziellen Versuchsstand zur Untersuchung kohäsiver Sedimente darstellt und hier mit einer messtechnischen Anpassung an die hydrotoxikologischen Randbedingungen betrieben wurde. Dazu gehört unter anderem die permanente Luftzufuhr für exponierte aquatische Organismen, eine Anlage zur pH-Wert-Regulierung sowie eine Messzelle zur Erfassung aquatischer Umweltbedingungen.

Um die Relevanz der Parameter sowie die damit verbundenen Prozesse und Wechselwirkungen bewerten zu können, muss eine Auswertung der erfassten Daten unter monodisziplinären (aufgeteilt nach den beiden Fachgebieten) und interdisziplinären (Kopplung der Fachgebiete) erfolgen. Die Umsetzung der Hydrotoxikologie zeigte mit der Durchführung erfolgreicher Experimente, dass eine Charakterisierung und Bewertung kohäsiver, schadstoffbelasteter und fluvialer Sedimente möglich ist.

# Inhaltsverzeichnis

At	bildu	ngsverz	əichnisxii
Та	belle	nverzeic	hnisxx
1	E	Einleitun	g 1
	1.1	Motivat	ion, Veranlassung und eigener Beitrag1
	1.2	Probler	nstellung und Zielsetzung4
	1.3	Inhaltlio	cher Aufbau der Arbeit5
2	C	Grundlag	en und Stand der Forschung
	2.1	Bedeut	ung schadstoffbehafteter Sedimente und ausgewählter Parameter9
	2.2	Beschr	eibung des kohäsiven Sedimenttransports12
		2.2.1	Grundlagen und Prozesse des kohäsiven Sedimenttransports 12
		2.2.2	Charakterisierung kohäsiver Natursedimente12
		2.2.3	Entstehung von kohäsiven Sedimentschichten (Konsolidierung) 16
		2.2.4	Erosionsprozesse kohäsiver natürlicher Sedimente 19
	2.3	Beschr	eibung der verwendeten Schadstoffgruppen24
		2.3.1	Einordnung und Eingrenzung der Schadstoffgruppen24
		2.3.2	Schwermetalle am Beispiel Kupfer25
		2.3.3	Organische Schadstoffe am Beispiel polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK)28
		2.3.4	Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit ausgesuchter Schadstoffgruppen
	2.4	Beschr	eibung der ausgewählten physikalisch-chemischen Parameter
		2.4.1	Übersicht umweltrelevanter physikalisch-chemischer Parameter 33
		2.4.2	pH-Wert und Redoxpotential
		2.4.3	Elektrische Leitfähigkeit und Wasserhärte
		2.4.4	Gelöster Sauerstoffgehalt

		2.4.5	Wassertemperatur	
	2.5	Beschr	eibung der ökotoxikologischer Parameter	38
		2.5.1	Allgemeine Einführung in das Fachgebiet Ökotoxikologie	38
		2.5.2	Grundlagen zum Stoffwechsel aufgenommener Fremdstoffe	42
		2.5.3	Ausgewählte Biomarker	43
	2.6	Schlus	sbetrachtung	48
3	Ν	Jeue h	wdrotovikologische Methodik zur Charakterisierung und Be	wertung
0	k	kohäsive	er schadstoffbehafteter fluvialer Sedimente	
	3.1	Umsetz	zung der hydrotoxikologischen Methodik	51
	3.2	Instrum	nente der Hydrotoxikologie	52
		3.2.1	Definition der hydrotoxikologischen Methodik	52
		3.2.2	Kombination und Umsetzung der interdisziplinären Fragestellun	g 52
		3.2.3	Abgrenzung des Betrachtungsbereichs für die experimentelle	
			Umsetzung	55
	3.3	Vorstel	lung des Versuchsaufbaus	56
		3.3.1	Kurzvorstellung alternativer Versuchsstände mit dem Schwerpur	nkt – –
			Schadstoffinteraktion	
		3.3.2	Schlussfolgerung nach Vorstellung alternativer Versuchsstände	
		3.3.3	Das Kreisgerinne als Versuchsstand in der Hydrotoxikologie	
	0.4	3.3.4	Fazit zur Vorstellung des Versuchsaufbaus	
	3.4		cht der Machbarkeitsstudie	
		3.4.1	Allgemeine Ziele der Machbarkeitsstudie	
	о г	3.4.2 Üle anais	Ergebnisverwertung der Machbarkeitsstudie	
	3.5		Cht der Hauptstudie	
		3.5.1	Einfunrung in die Hauptstudie	
		3.5.2	Versuchsprogramm	
		3.5.3	Vorstellung der verwendeten Sedimente	
		3.5.4		
	2.6	3.5.5 Dialaua	Fazit zum experimentenen Aufbau der nydrotoxikologischen me	
	3.6	DISKUS	sion der zu erwartenden Modellerfekte	
4	E	Ergebnis	se und Interpretation der hydrotoxikologischen Untersuchungen	83
	4.1	Vorben	nerkung	83
	4.2	Sedime	entologische Auswertung	83
		4.2.1	Qualitative Beschreibung der grundlegenden Erosion	83
		4.2.2	Qualitative Beschreibung und Interpretation der Erosionstypen u	- bnu
			prozesse	86
		4.2.3	Zusammenfassung der qualitativen Beschreibung der Erosionst	ypen 90
		4.2.4	Analyse und Entwicklung der Erosionsraten	91
		4.2.5	Kurzvorstellung der Resuspension bei gleichzeitiger Tierexpositi	ion 93
		4.2.6	Fazit zur sedimentologischen Auswertung	100

	4.3	Ökotoxikologische Auswertung				
		4.3.1	Vorbemerkung	101		
		4.3.2	Auswertungsschwerpunkt - Schwermetallbelastung mit Kupfer	102		
		4.3.3	Auswertungsschwerpunkt – organische Belastung mit prioritären			
			polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen	107		
		4.3.4	Fazit zur ökotoxikologischen Auswertung	113		
	4.4	Hydroto	oxikologische Auswertung	114		
		4.4.1	Ziele und Verfahren der hydrotoxikologischen Auswertung	114		
		4.4.2	Monodisziplinäre Betrachtung der grundlegenden Zusammenhänge Fachgebiete (Schritt 1)	der 116		
		4.4.3	Interdisziplinäre Betrachtung der erweiterten Zusammenhänge der Hydrotoxikologie (Schritt 2)	128		
		4.4.4	Hydrotoxikologisches Ergebnis (Schritt 3)	133		
	4.5	Fazit de	er gesamten Auswertung im Rahmen hydrotoxikologischer Experimen	te135		
_	_	_				
5	Z	usamme	enfassung und Ausblick	.139		
	5.1	Zusamr	nenfassung	139		
	5.2	Weitere	ntwicklungspotential im Gebiet der Hydrotoxikologie	142		
		5.2.1	Allgemeine Erweiterungen	142		
		5.2.2	Erweiterungen im Fachgebiet Ingenieurwissenschaften – Wasserbau und Wasserwirtschaft	ı 143		
		5.2.3	Erweiterungen im Fachgebiet Biologie – Ökotoxikologie	144		
		5.2.4	Beispiele zur Erweiterung der Hydrotoxikologie	145		
6	L	iteraturv.	erzeichnis	.148		
А	F	ließgesc	chwindigkeiten und Sohlschubspannungen im Kreisgerinne	.160		
	A.1	Die Strö	omungserzeugung im Kreisgerinne	160		
	A.2	Quantifi	izierung der Sohlschubspannung	161		
		A.2.1	Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe h = 175 mm	162		
		A.2.2	Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe h = 325 mm	163		
_	,	/	and the second state of th	105		
в	V	orstellur	ng der verwendeten Natursedimente	.165		
	B.1	Naturse	diment 1 – Rhein Ehrenbreitstein	165		
	B.2	Naturse	diment 2 – Mosel Palzem (Stadtbredimus)	167		
С	C	Grafische	a Darstellung der Konsolidierung	.168		
D	k	Kalibrieru	ng der Lichtintensität anhand von Schwebstoffdaten	.170		
Е	le	dentifikat	tion von Ausreißern der aufgezeichneten Daten für alle Experimente	.173		
	E.1 Vorstellung der verwendeten Methode zur Bestimmung und grafischen Darstellung der Ausreißeridentifikation					
	E.2 Identifikation von Ausreißern für die Experimente der Gruppe B 173					

	E.2.1	Ausreißeridentifikation für den pH-Wert	173
	E.2.2	Ausreißeridentifikation für das Redoxpotential	175
	E.2.3	Ausreißeridentifikation für den gelösten organischen Anteil DOC	176
	E.2.4	Ausreißeridentifikation für den gesamten organischen Anteil TOC	177
	E.2.5	Ausreißeridentifikation für die elektrische Leitfähigkeit	178
	E.2.6	Ausreißeridentifikation für die Wasserhärte	178
E.3	Identifik	ation für die Experimente der Gruppe C	179
	E.3.1	Ausreißeridentifikation für den pH-Wert	179
	E.3.2	Ausreißeridentifikation für das Redoxpotential	180
	E.3.3	Ausreißeridentifikation für den gelösten organischen Anteil DOC	181
	E.3.4	Ausreißeridentifikation für den gesamten organischen Anteil TOC $\ldots$	182
	E.3.5	Ausreißeridentifikation für die elektrische Leitfähigkeit	183
	E.3.6	Ausreißeridentifikation für die Wasserhärte	184

# Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1:	Darstellung der beteiligten Parameter ohne bekannten funktionalen Zusammenhang
	zwischen den Parametern und den resultierenden Prozessen
Abbildung 2-1:	Abstrahierter Betrachtungsraum eines Flusssystems während der Erosion
	schadstoffbehafteter Sedimente und deren Wechselwirkungen mit aquatischen
	Organismen und bekannten Umweltbedingungen; EL: elektrische Leitfähigkeit10
Abbildung 2-2:	Schematische Darstellung des Kreislaufs der Transportprozesse kohäsiver Sedimente
	(verändert nach MEHTA ET AL. (1982))12
Abbildung 2-3:	Basiskristallstruktur häufig vertretener Tonminerale: Tetraedrische Struktur (oben) als
	Einzelpartikel (a) und im Schichtenverbund (b) und oktraedrische Struktur (unten) als
	Einzelpartikel (c) und im Schichtenverbund (d) (MITCHELL & SOGA, 2005)14
Abbildung 2-4:	Wasser-Partikel-Grenzschicht und zugehörige Prozesse (verändert nach ROTH (1991)
	und MITCHELL & SOGA (2005)), (a) Aufbau der diffusen Doppelschicht, (b) Transport
	und Konzentration der Ionen an der Partikelgrenze und (c) Kräfteverteilung in
	Abhängigkeit des Abstands zwischen Ionen und Partikel15
Abbildung 2-5:	Veränderung der Partikelvernetzung im Verlauf der Konsolidierung: (a) loser Verbund
	von Aggregatgruppen, (b) Umstrukturierte Aggregatgruppen während der primären
	Konsolidierung, (c) abgelagertes Sediment mit abgebauten Porenwasserdruck (verändert
	nach PARTHENIADES (1965))
Abbildung 2-6:	Entwicklung des Porenüberdrucks und der Setzungen infolge konstanter Auflast aus
	Eigengewicht über die Zeit (verändert nach LANG ET AL. (2011))17
Abbildung 2-7:	Qualitative Darstellung der Entwicklung der Schichtmächtigkeit über die Zeit mit den
	Bereichen der primären und sekundären Konsolidierung
Abbildung 2-8:	Qualitativer Verlauf der Dichte eines abgelagerten (Sohltyp I) und eines homogenen
	(Sohltyp II) kohäsiven Sediments über die Schichttiefe z, (verändert nach MEHTA &
	PARTHENIADES (1982))

Abbildung 2-9	Darstellung der Flocken- (a) und Massenerosion (b) (verändert nach MEHTA (1991)), (c)
	zeigt den beobachteten Prozess der Flockenerosion im Experiment
Abbildung 2-10:	Entwicklung der Erosionsrate in Abhängigkeit des vorliegenden Sohltyps: (a) Sohltyp I,
	(b) Sohltyp II
Abbildung 2-11:	Qualitative Verteilung ausgewählter Schadstoffgruppen in Sedimentkernen in Bezug
	zum historischen Aufkommen (verändert nach FÖRSTNER (1989))24
Abbildung 2-12:	Speziierung von Kupfer in Abhängigkeit des vorherrschenden pH-Werts26
Abbildung 2-13:	Kupfereintrag in Gewässer in Abhängigkeit von Jahren und Ursprung (UBA, 2010)27
Abbildung 2-14:	Natürliche und anthropogene Quellen für Schwermetallbelastung in aquatischen
	Lebensräumen (verändert nach FOSTER & CHARLESWORTH (1996))28
Abbildung 2-15:	Struktur des Benzol-Rings (MORTIMER, 2010)
Abbildung 2-16:	Relative Verteilung der Eintragspfade für PAKs in Gewässer (GÖTZ ET AL., 2009)29
Abbildung 2-17:	Die 16 prioritär eingestuften PAKs nach EPA und WHO (TUVIKENE, 1995)
Abbildung 2-18:	Verlauf der Oberflächenladung im Verhältnis zum pH-Wert verschiedener Minerale
	(STUMM, 1992)
Abbildung 2-19:	Entwicklung des pH-Werts und des Redoxpotentials während einer Resuspension
	(verändert nach CALMANO ET AL. (1993)) und im Rahmen der in dieser Arbeit
	vorgestellten Experimente (Bsp. Experiment B5)
Abbildung 2-20:	Reaktionen auf Stressoren auf unterschiedlichen ökologischen Ebenen in Bezug zur
	ökologischen Relevanz (GESTEL & BRUMMELEN, 1996)
Abbildung 2-21:	Zeitliche Entwicklung der Schadwirkungen auf unterschiedlichen Organismusebenen
	unter Angabe des Bereichs der typischen Biomarker41
Abbildung 2-22:	Dosis-Wirkungsdiagramm für verschiedene Wirkmechanismen von Biomarkern - links:
	die beiden prinzipiellen Grundverläufe von Biomarkerantworten bei zunehmender
	Schadstoffkonzentration; rechts: Schematische Verläufe von Biomarkerantworten bei
	unterschiedlichen Sensitivitäten (abnehmende Sensitivität von 1 bis 5)42
Abbildung 2-23:	Biotransformation von aufgenommenen Fremdstoffen in zwei Phasen am Beispiel
	Pyren (verändert nach FENT (2007))
Abbildung 2-24:	Mechanismus der CYP1A-Freisetzung nach Exposition gegenüber polyzyklischen
	aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs)
Abbildung 2-25:	Induktion von Mikrokernen als genotoxische Schäden in Folge einer
-	Schadstoffexposition (HOOFTMAN & DE RAAT, 1982; AL-SABTI & METCALFE, 1995) 47
Abbildung 2-26:	Hydrotoxikologie - Verknüpfung der beiden Fachgebiete Ingenieurwissenschaften
_	(Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) unter
	Berücksichtigung von fünf Parametergruppen
Abbildung 3-1:	Die fünf Parametergruppen und die individuell umgesetzten Parameter am Kreisgerinne
_	des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University53

Abbildung 3-2:	Theoretischer Ablauf der hydrotoxikologischen Methodik in drei Schritten:
	(1) Realisierung, (2) Verknüpfung und (3) Bewertung
Abbildung 3-3:	Versuchsaufbau des Mehrkammersystems von CALMANO ET AL. (1988)57
Abbildung 3-4:	Versuchsaufbau eines Versuchskastens von insgesamt acht Einheiten nach ATKINSON
	ET AL. (2007)
Abbildung 3-5:	Versuchsaufbau des "Particle Entrainment Simulators" entwickelt von TSAI & LICK
	(1986) und verwendet von CANTWELL ET AL. (2002)
Abbildung 3-6:	Das Kreisgerinne in der Klimakammer am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft
	der RWTH Aachen University
Abbildung 3-7:	Funktionsprinzip zur Verdeutlichung der Messung der Lichtintensität als Maß für die
	Trübung62
Abbildung 3-8:	Aufbau der Messtechnik am Kreisgerinne
Abbildung 3-9:	links: Regenbogenforellen im Kreisgerinne während eines Klarwasserversuchs bei einer
	Wassertiefe von h = 175 mm, rechts: Hälterungseinrichtung für die Regenbogenforellen
	am Institut für Umweltforschung der RWTH Aachen University
Abbildung 3-10:	Aufbau und Zusammensetzung des Aufbaus der hydrotoxikologischen Methodik und
	der durchgeführten Experimente
Abbildung 3-11:	Zusammensetzung des verwendeten Kunstsediments nach OECD-Richtlinie 218
	(OECD, 2004)
Abbildung 3-12:	Belastungsverlauf für die Vorexperimente, die im Rahmen der Machbarkeitsstudie zur
	Entwicklung der hydrotoxikologischen Methodik verwendet wurde; durchgezogener
	Kurvenverlauf für Vorexperimente ohne Tierexposition; gestrichelter Kurvenverlauf für
	Vorexperimente mit Tierexposition
Abbildung 3-13:	Darstellung der Entmischung des OECD-Sediments im Verlauf der Vorexperimente im
	Rahmen der Machbarkeitsstudie nach Abschluss der Erosionsphase70
Abbildung 3-14:	Übersicht der durchgeführten hydrotoxikologischen Experimente aus beiden Studien.73
Abbildung 3-15:	links: Eingesetzter Van-Veen-Greifer zur Sedimentgewinnung an der Mosel, rechts:
	Lagerung der Natursedimente im Kühlraum74
Abbildung 3-16:	links und mittig: Zylinder mit vorbereiteter Suspension zur Durchführung der
	Schlämmanalyse, rechts: Aräometer zur Messung der Dichte e' der hergestellten
	Suspension75
Abbildung 3-17:	Verwendetes UHCM zur Messung der Dichteänderung der Sedimentschicht während
	der Konsolidierungsphase
Abbildung 3-18:	Siebrückstand für d > 6,3 mm, der nicht ins Kreisgerinne eingebracht wird; hier:
	Sediment aus dem Rhein77
Abbildung 3-19:	Zeitliche Entwicklung der Sohlschubspannung (in rot) und die zugehörigen Phasen im
	Verlauf der hydrotoxikologischen Experimente78

Abbildung 4-1:	Verlauf der berechneten Schwebstoffkonzentrationen $SPM_b$ (kontinuierlicher Verlauf)
	und die dazugehörigen gemessenen Schwebstoffkonzentrationen (gefüllte Messpunkte)
	während der gesamten Erosionsphase bei gleichzeitiger Angabe der wirkenden
	Sohlschubspannung für alle Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)85
Abbildung 4-2:	Verlauf der Schwebstoffkonzentrationen in Abhängigkeit der Sohlschubspannung zum
	Ende einer jeden Belastungsstufe für alle Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)86
Abbildung 4-3:	Darstellung der Flockenerosionsgrenze als 10 %-Wert der gemittelten maximalen
	Anfangswerte der auftretenden Erosionsraten für die Experimente ohne Tierexposition
	(Gruppe B)
Abbildung 4-4	Darstellung der Erosionsraten am Stufenende aller Experimente ohne Tierexposition
	(Gruppe B)
Abbildung 4-5:	Darstellung der Erosionstiefe aller Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B) am
	Ende einer jeden Belastungsstufe
Abbildung 4-6:	Exposition der Versuchstiere im Kreisgerinne mit resultierender
-	Schwebstoffkonzentration
Abbildung 4-7:	Verlauf des gelösten Sauerstoffgehalts in [mg/l] für das Experiment C5
Abbildung 4-8:	Verlauf der berechneten Schwebstoffkonzentration (kontinuierliche Linien) für die
-	Experimente der Gruppe C bei gleichzeitiger Tierexposition; zusätzlich sind die
	diskreten Messwerte der gewonnen Schwebstoffproben eingetragen (ungefüllte Punkte)96
Abbildung 4-9:	Darstellung der Flockenerosionsgrenze als 10 %-Wert der gemittelten maximalen
-	Anfangswerte der auftretenden Erosionsraten für Experimente mit Tierexposition
	(Gruppe C)
Abbildung 4-10:	Nachweis der Unterschreitung der Flockenerosionsgrenzen am Ende jeder
	Belastungsstufe für Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)97
Abbildung 4-11:	Darstellung des Einflussfaktors Fisch EF <sub>Fisch</sub> als prozentuale Reduzierung der
-	Schwebstoffkonzentration SPM <sub>C</sub> in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung 99
Abbildung 4-12:	Darstellung der reduzierten Schwebstoffkonzentration für Experimente der Gruppe C
	im Vergleich mit den Daten für Experimente der Gruppe B99
Abbildung 4-13:	Verlauf der reduzierten Schwebstoffkonzentration nach Einführung des Einflussfaktors
-	EF <sub>Fisch</sub> für die Experimente der Gruppe C bei gleichzeitiger Tierexposition100
Abbildung 4-14:	Zeitlicher Verlauf der Kupferkonzentration im Schwebstoff für die experimentellen
	Gruppen B und C (verändert nach SCHAFFRATH (2012))103
Abbildung 4-15:	Zeitlicher Verlauf der Kupferkonzentration in der Wasserphase während der
0	Erosionsphase für die Experimente der Gruppe B und C (verändert nach SCHAFFRATH
	(2012))
Abbildung 4-16:	Metallothioneinkonzentration gegeben in [µg MT/mg Gesamtprotein] in der Leber im
0	Bezug zur gesamten Proteinkonzentration für die vier ausgewerteten Tiergruppen aus
	Hälterung und den Experimenten D1, C1 und C2 (verändert nach SCHAFFRATH (2012))106

Abbildung 4-17:	Kupferkonzentration in [ $\mu$ g/kg] an den Kiemen der exponierten Fische aus der
	Hälterung und den Experimenten D1, C1 und C2 (verändert nach SCHAFFRATH (2012))107
Abbildung 4-18:	Prozentuale Verteilung der 16 EPA-PAKs fraktioniert nach der Anzahl der Ringe
	(verändert nach HERRMANN (2013))108
Abbildung 4-19:	Verlauf der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht analysierter
	Experimente (verändert nach HERRMANN (2013))110
Abbildung 4-20:	Darstellung der EROD-Aktivität in [pmol mg-1 min-1] für die Experimente der Gruppe
	C in Bezug zur Hälterung und dem Klarwasserexperiment D1111
Abbildung 4-21:	Entwicklung der Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle in Abhängigkeit der
	veränderten Belastung für exponierte Regenbogenforellen112
Abbildung 4-22:	Mikrokernrate in [‰] für die Experimente mit exponierten Regenbogenforellen
	(Gruppe C) im Vergleich mit Ergebnissen aus der Hälterung und dem
	Klarwasserexperiment D1
Abbildung 4-23:	Dreischrittiger Aufbau der hydrotoxikologischen Auswertungsmethode115
Abbildung 4-24:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Sohlschubspannung und der
	Schwebstoffkonzentration bei Experimenten der Gruppe B (graue Regressionskurve)
	und C (schwarze Regressionskurve)116
Abbildung 4-25:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration
	und dem Redoxpotential bei Experimenten der Gruppe B und C118
Abbildung 4-26:	Gesamter Verlauf des pH-Werts für die Experimente der Gruppe B (links) und Gruppe
	C (rechts) inklusive Extremwerten
Abbildung 4-27:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration
	und dem pH-Wert für Experimente der Gruppe B (links) und Gruppe C (rechts)120
Abbildung 4-28:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Wasserhärte [mg CaO] und
	der elektrischen Leitfähigkeit EL [mS/m]122
Abbildung 4-29:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration
	[g/l] und der Wasserhärte [mg CaO] für Experimente der Gruppen B und C122
Abbildung 4-30:	Zeitlicher Verlauf des Sauerstoffgehalts DO [mg/l] für die Erosionsphase der
	Experimente der Gruppen B und C123
Abbildung 4-31:	Darstellung des Zusammenhangs zwischen pH-Wert und Redoxpotential für die
	Experimente der Gruppen B und C127
Abbildung 4-32:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration
	und der Kupferkonzentration im Schwebstoff bei Experimenten der Gruppen B (links)
	und C (rechts) mit den dazugehörigen Trends129
Abbildung 4-33:	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration
	und der Kupferkonzentration in der Wasserphase bei Experimenten der Gruppen B
	und C mit den zugehörigen Trends130

Abbildung 4-34:	Entwicklung der summierten PAK-Konzentration im Schwebstoff in Abhängigkeit der
-	Schwebstoffkonzentration für die Experimente der Gruppen B und C mit den
	zugehörigen Trends
Abbildung 4-35:	Entwicklung der Kupferkonzentration im Schwebstoff in Abhängigkeit des pH-Werts
0	für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends für B1, B2 und
	C1
Abbildung 4-36:	Entwicklung der Kupferkonzentration in der Wasserphase in Abhängigkeit des pH-
0	Werts für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends für B1
	und C1
Abbildung 4-37:	Entwicklung der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht in
ribblidding + 57.	Abhängigkeit des pH-Werts für die Experimente der Gruppen B und C mit den
	Zugehörigen Trendentwicklungen
Abbildung 5 1	Darstellung der beteiligten Persmeter mit fühltigen Zusammenhang zwischen den
Abbildung 5-1.	Darstendig der beteinigten Parameter nit funktionalem Zusammennang zwischen den
	Parametern
Abbildung A-1:	Ausbildung der Sekundärwirbel, wenn beide Gerinne und Deckel gegensinnig rotieren
	(1); Idealisierte Kraftverteilung der Sekundärwirbel aus Druck- und Tangentialanteil
	(oben) und kombiniert (unten), wenn nur der Deckel dreht (2) und wenn nur das
	Gerinne dreht (3), nach SPORK (1997)161
Abbildung A-2:	Funktionaler Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und Sohlschubspannung bei
-	einer Wassertiefe von $h_1 = 175$ mm und einem Drehzahlverhältnis von Deckel zu
	Gerinne von DV = -1,60
Abbildung A-3:	Funktionaler Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und Sohlschubspannung bei
0	einer Wassertiefe von $h_2 = 325$ mm und einem Drehzahlverhältnis von Deckel zu
	Gerinne von $DV = -2.00$
Abbildung B-1:	Grafisches Erzebnis der Korngrößenbestimmung durch Sedimentation für das
1100114411912 11	Sediment aus dem Rhein hei Kohlenz-Ehrenbreitstein 166
Abbildung B-2.	Grafisches Ergebnis der Korngrößenbestimmung durch Sedimentation für das
Roblictung D 2.	Sediment aus der Mosel aus der Staustufe Palzem
Abbildung C 1	Änderung der Sedimentkonzentration in der Sedimentschicht infolge der
Abbildung C-1.	Eisenkenselidiemen über drei Tess em Benniel der Messnesition 1.25 em über der
	Eigenkonsondierung über drei Tage am Bespiel der Messposition 1,25 cm über der
	Sonie
Abbildung C-2:	Verlauf der Sedimentkonzentration nach Abschluss der Konsolidierungsphase über eine
–	Sedimentschicht von 40 mm
Abbildung D-1:	Gratische Darstellung der Regressionsgleichungen für die durchgeführten Experimente
	der Gruppe B172
Abbildung D-2:	Grafische Darstellung der Regressionsgleichungen für die durchgeführten Experimente
	der Gruppe C172

Abbildungs	verzeichnis
1100maango	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

Abbildung E-1:	Häufigkeitsverteilung (links) der pH-Werte aller Experimente der Gruppe B und der
	dazugehörige Boxplot (rechts)174
Abbildung E-2:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Redoxpotentiale aller Experimente der
	Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)175
Abbildung E-3:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen DOC-Werte aller Experimente der
	Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)176
Abbildung E-4:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen TOC-Werte aller Experimente der Gruppe
	B und der dazugehörige Boxplot (rechts)177
Abbildung E-5:	Darstellung des Verlaufs der elektrischen Leitfähigkeit über die Sohlschubspannung für
	die Experimente der Gruppe B178
Abbildung E-6:	Häufigkeitsverteilung (links) der ermittelten Wasserhärte für die Experimente B1, B4
	und B5 sowie der dazugehörige Boxplot (rechts)179
Abbildung E-7:	Häufigkeitsverteilung (links) der pH-Werte aller Experimente der Gruppe C und der
	dazugehöriger Boxplot mit Extremwerten (rechts)180
Abbildung E-8:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Redoxpotentiale aller Experimente der
	Gruppe C und der dazugehöriger Boxplot (rechts)
Abbildung E-9:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen DOC-Werte aller Experimente der
	Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)
Abbildung E-10:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen TOC-Werte aller Experimente der Gruppe
	C und der dazugehörige Boxplot (rechts)
Abbildung E-11:	Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Werte der elektrischen Leitfähigkeit aller
	Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)
Abbildung E-12:	Häufigkeitsverteilung (links) der ermittelten Wasserhärte aller Experimente der Gruppe
	C und der dazugehörige Boxplot (rechts)185

# Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1:Einteilung der beobachteten Erosion nach Erosionstyp und Erosio		
	Abhängigkeit des vorliegenden Sohltyps	21
Tabelle 3-1:	Aufstellung der signifikanten Stärken und Schwächen der kombinierten Fachgeb	viete54
Tabelle 3-2:	Individuelle Kriterien zur Durchführung erfolgreicher hydrotoxikologischer	
	Experimente im Kreisgerinne am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft d	ler
	RWTH Aachen University	56
Tabelle 3-3:	Auflistung der im Rahmen der Machbarkeitsstudie durchgeführten Vorexperime	nte68
Tabelle 4-1:	Parameterzusammensetzung des Experiments B1	
Tabelle 4-2:	Parameterzusammensetzung des Experiments B2	
Tabelle 4-3:	Parameterzusammensetzung des Experiments B3	
Tabelle 4-4:	Parameterzusammensetzung des Experiments B4	
Tabelle 4-5:	Parameterzusammensetzung des Experiments B5	
Tabelle 4-6:	Angabe der mittleren Schwebstoffkonzentration und dazugehörigen	
	Standardabweichung für die erste Belastungsstufe mit $\tau_1 = 0,05 \text{ N/m}^2$ für Exper	imente
	mit Tierexposition (Gruppe C)	95
Tabelle 4-7:	Regressionsfunktionen zur Berechnung der prozentualen Reduzierung der	
	Schwebstoffkonzentration infolge exponierter Regenbogenforellen im Kreisgerin	nne für
	Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)	98
Tabelle 4-8:	Berücksichtigte Proben der durchgeführten Experimente im jeweiligen	
	Auswertungsschwerpunkt im Rahmen der chemischen und ökotoxikologischen	
	Analytik; es liegen Ergebnisse für die Bereiche vor, die mit einem x gekennzeich	net
	sind	101
Tabelle 4-9:	Änderung der Cu-Konzentration in der Wasserphase am Anfang und Ende der	
	Erosionsphase für die Experimente der Gruppen B und C	103

Tabelle 4-10:	Mittlere Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht gegeben in [mg] Cu je [kg]
	trockenes Sediment und der Wasserphase gegeben in [µg] je Liter104
Tabelle 4-11:	PAK-Konzentrationen in Sedimentproben, gegeben in [mg] je [kg] Trockengewicht
	(TG), für alle 16 EPA-PAKs und als Summenkonzentrationen; für das Experiment B1
	sind keine Sedimentdaten vorhanden107
Tabelle 4-12:	Änderung der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht am Anfang
	und Ende der Erosionsphase109
Tabelle 4-13:	Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die
	beiden jeweiligen Parameter Schwebstoffkonzentration und Sohlschubspannung117
Tabelle 4-14:	Regressionsfunktionen zur Berechnung der kontinuierlichen Schwebstoffkonzentration
	in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung aufgeteilt nach den experimentellen
	Gruppen B und C117
Tabelle 4-15:	Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die
	beiden Parameter Schwebstoffkonzentration und Redoxpotential119
Tabelle 4-16:	Schwellenwerte der Schwebstoffkonzentration für Experimente der Gruppe B120
Tabelle 4-17:	Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppe B für die beiden
	Parameter Schwebstoffkonzentration und pH-Wert
Tabelle 4-18:	Übersicht der Kupferkonzentrationen in Schwebstoff- und Wasserproben sowie in den
	beiden gemessenen Biomarkern für Schwermetallbelastung125
Tabelle 4-19:	Übersicht der summierten PAK-Konzentrationen in Schwebstoffproben sowie in den
	drei exemplarisch angegebenen Biomarkern für organische Belastung
Tabelle 4-20:	Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die
	beiden Umweltparameter pH-Wert und Redoxpotential127
Tabelle 4-21:	Aufstellung der Hauptaussagen nach monodisziplinärer Auswertung der
	hydrotoxikologischen Experimente ( <b>1</b> : positives Ergebnis, <b>*</b> : negatives Ergebnis, <b>O</b> :
	neutrales Ergebnis)
Tabelle 4-22:	Aufstellung der Hauptaussagen nach interdisziplinärer Auswertung der
	hydrotoxikologischen Experimente ( <b>1</b> : positives Ergebnis, <b>*</b> : negatives Ergebnis, <b>O</b> :
	neutrales Ergebnis)134
Tabelle 4-23:	Parameterkombination für die monodisziplinäre Auswertung im Rahmen der
	dreischrittigen hydrotoxikologischen Auswertung der durchgeführten Experimente136
Tabelle 4-24:	Parameterkombination für die interdisziplinäre Auswertung im Rahmen der
	dreischrittigen hydrotoxikologischen Auswertung der durchgeführten Experimente137
Tabelle B-1:	Charakteristische Korndurchmesser und deren Massenanteil für das Natursediment aus
	dem Rhein166
Tabelle C-1:	Zugehörige Messwerte der Sedimentkonzentration nach Abschluss der
	Konsolidierungsphase169

Tabelle D-1:	Verwendete Regressionstypen zur Bestimmung des funktionalen Zusammenhangs
	zwischen Schwebstoffkonzentration und gemessener Lichtintensität170
Tabelle D-2:	Aufstellung der Regressionsgleichung für die durchgeführten Experimente der Gruppen
	B und C171
Tabelle E-1:	Deskriptive Statistik für die pH-Werte der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe B (ohne Experiment B3)174
Tabelle E-2:	Deskriptive Statistik für das Redoxpotential der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe B175
Tabelle E-3:	Deskriptive Statistik für die DOC-Werte der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe B176
Tabelle E-4:	Deskriptive Statistik für die TOC-Werte der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe B177
Tabelle E-5:	Deskriptive Statistik für die Werte der Wasserhärte der zusammengefassten
	Experimente der Gruppe B178
Tabelle E-6:	Deskriptive Statistik für die pH-Werte der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe C179
Tabelle E-7:	Deskriptive Statistik für das Redoxpotential der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe C
Tabelle E-8:	Deskriptive Statistik für die DOC-Werte der zusammengefassten Experimente der
	Gruppe C
Tabelle E-9: De	skriptive Statistik für die TOC-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe C182
Tabelle E-10:	Deskriptive Statistik für die Werte der elektrischen Leitfähigkeit EL der
	zusammengefassten Experimente der Gruppe C183
Tabelle E-11:	Deskriptive Statistik für die Werte der Wasserhärte der zusammengefassten
	Experimente der Gruppe C185

### 1 Einleitung

#### 1.1 Motivation, Veranlassung und eigener Beitrag

Auswirkungen des globalen Klimawandels auf den hydrologischen Kreislauf in Europa lassen sich an verschiedenen Entwicklungen beobachten (ARNELL, 1999; FREI ET AL., 2000). Die Trends der Niederschlagsmengen für das 20. Jahrhundert haben für Nordeuropa eine Zunahme von 10 -40 % gezeigt. So weisen auch die Klimaszenarien für das 21. Jahrhundert eine Zunahme der Niederschlagsmengen in diesem Gebiet auf (PARRY ET AL., 2007). Es ist daher anzunehmen, dass auch Hochwasserereignisse an Häufigkeit und Intensität zunehmen werden (MILLY ET AL., 2002). Auch können sich durch den globalen Wandel saisonale Veränderungen (z.B. Reduzierung des Durchflusses im Sommer oder Zunahme der Winterhochwasser) ergeben (MIDDELKOOP & KWADIJK, 2001). Mit der Zunahme der Häufigkeit und Intensität von Hochwasserereignissen ändert somit auch der Geschiebe- und Sedimenttransport in Flusssystemen.

So zeigen Untersuchungen von OETKEN ET AL. (2005) zum Jahrhunderthochwasser an der Elbe im Jahr 2002, dass es zu Umverteilungen der Schadstoffe im gesamten Gewässersystem kam, was nachhaltige Einflüsse auf die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der vorkommenden Schadstoffe hat. Es konnte gezeigt werden, dass die Toxizität von "Hot Spots" reduziert wird, jedoch gering belastete Bereiche stärker belastet werden. Weiterhin zeigte die Analyse der Sedimente, dass es durch das Hochwasserereignis zu einer Homogenisierung der Korngrößenverteilung kommt, was die Verteilung der Schadstoffe erklärt. Es wird angenommen, dass das Prinzip der Homogenisierung in Folge extremer Hochwasserereignisse in Einzugsgebieten größerer Flüsse, die durch unterschiedlich stark belastete Gebiete geprägt werden, auf andere Systeme übertragbar ist. Diese Annahme wird gestützt durch Untersuchungen an der Oder (Wolska et al., 1999 in OETKEN ET AL. (2005)). So führen auch anthropogene Einflüsse wie Baggerungen im Rahmen von Unterhaltungsmaßnahmen zu einer Resuspension von Sedimenten. Diese haben im Gegensatz zu Hochwasserereignissen keinen Einfluss auf das gesamte Einzugsgebiet, jedoch sollten auch lokale Auswirkungen nicht unbeachtete bleiben (CANTWELL ET AL., 2008), wenn ökotoxikologische Auswirkungen für ganzheitliche Sedimentmanagementstrategien identifiziert werden sollen.

Im Rahmen der Beurteilung der ansteigenden Erosionsmengen liegt das Hauptaugenmerk auf den Auswirkungen erodierter Feinstsedimente (Tone, Schluffe, organische Materialen etc.), da diese die Fähigkeit besitzen, Schadstoffe verschiedener Gruppen (Schwermetalle, organische Schadstoffe etc.) zu binden (FUKUDA & LICK, 1980). Somit stellen diese Sedimenttypen im Gewässersystem sowohl eine Senke in Folge Deposition als auch eine Quelle aufgrund von Erosionsereignissen für sedimentgebundene Schadstoffe dar (FLEMMING & TREVORS, 1989; FÖRSTNER, 1989; SMIT ET AL., 2008). Besonders Regionen mit hoher Industriedichte und kommunalen Abwässern leiten erhöhte Konzentrationen an Schadstoffen in Gewässer ein, deren Folgen für die Gewässerqualität und Persistenz im System nicht bekannt sind (AL-SABTI & METCALFE, 1995). Die Resuspension von kohäsiven Sedimenten aus industriell geprägten Regionen stellt damit eine Gefährdung für die Qualität und die Güte des aquatischen Ökosystems sowie die Gesundheit des Menschen (Trinkwassergewinnung, Freizeitnutzung von Gewässern) im gesamten Einzugsgebiet dar (OWENS, 2005).

Wie erwähnt, erfolgt der Eintrag der Schadstoffe (Xenobiotika) in die aquatische Umwelt hauptsächlich durch anthropogene Quellen. Große Mengen organischer Schadstoffe wie polychlorierte Biphenyle (PCB), aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK), polychlorierte Dibenzodioxine (PCDD) und weitere Stoffe wurden hauptsächlich im 20. Jahrhundert produziert und in die Umwelt über Luft und Abwasser eingetragen (GÖTZ ET AL., 2009). Der Eintrag von PAKs kann zum Beispiel infolge unvollständiger Verbrennungsprozesse entstehen. Bereits seit den frühen 1960er Jahren ist bekannt, dass die Freisetzung von bioverfügbaren Xenobiotika negative Effekte und Auswirkungen für das aquatische und terrestrische Ökosystem zur Folge haben. Resultierend aus den genannten Anhaftungen der Schadstoffe an Partikel kommt es bei Sedimentation in strömungsberuhigten Bereichen zu einer Reduzierung der bioverfügbaren gebundenen Xenobiotika, wodurch die ökotoxikologischen Auswirkungen auf das aquatische Ökosystem vermindert werden (VAN DER OOST ET AL., 2003).

Schadstoffe können jedoch nicht nur durch den Erosions- und Transportprozess in die Wassersäule gelangen, sondern werden auch durch Änderungen der physikalisch-chemischen Umwelteigenschaften freigesetzt (SALOMONS ET AL., 1987). Beispielsweise zeigt sich eine erhöhte Freisetzung von Schwermetallen und damit einhergehend eine Änderung der Bioverfügbarkeit bei variierenden pH-Niveaus. CALMANO ET AL.(1992) zeigen in ihren Untersuchungen, dass die Freisetzung der untersuchten Schwermetalle mit sinkendem pH-Wert zunimmt und somit auch der bioverfügbare Anteil der Schwermetalle in der Wassersäule steigt. Gleichzeitig ist immer eine Änderung des Redoxpotentials zu beobachten, da es aufgrund der Erosion zu Oxidations- und Reduktionsreaktionen kommt. Mit der Änderung der Umweltbedingungen werden die Bindungskräfte zwischen Partikel und Schadstoff beeinflusst und können vermindert werden. Als Folge lösen sich die Schadstoffe von den Sedimentpartikeln und die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit steigt. Besonders Altsedimente können eine erhöhte Schadstoffkonzentration aufweisen und damit eine sekundäre Schadstoffquelle darstellen (CAPPUYNS ET AL., 2006). Art und Menge der Schadstoffe im jeweilig untersuchten Sediment hängen von der geogenen Zusammensetzung des Gesteins (z.B. natürliches Vorkommen an Schwermetallen) und der ansässigen Industrie sowie der Besiedlungsdichte im Einzugsgebiet ab.

Es ist schon seit vielen Jahren bekannt, dass Schadstoffe verschiedenster Gruppen (Pestizide, Schwermetalle, Radioisotope etc.) gebunden an kohäsive Sedimente in limnischen Gewässersystemen transportiert werden (FÖRSTNER, 1989). Daher kann die Charakterisierung des kohäsiven und schadstoffbehafteten Sedimenttransports nicht häufig genug thematisiert werden (HAYTER &

MEHTA, 1986). Resuspendierte schadstoffbehaftete Sedimente mindern daher nicht nur die Wasserqualität, vielmehr können die Schadstoffe in gelöster und gebundener Form eine Gefährdung für aquatische Organismen darstellen (HOLLERT ET AL., 1998; HOLLERT, 2001). Die ökologischen und ökotoxikologischen Auswirkungen der Resuspension von Schadstoffen während extremer hydrodynamischer Ereignisse (z.B. Hochwasser, Baggerung) müssen daher unter ganzheitlichen Bewertungskriterien betrachtet und dringend im Sedimentmanagement berücksichtigt werden (PIANC WG 100, 2009; PIANC WG 104, 2009). Daher sollte das Ziel verfolgt werden, integrative Methoden zu entwickeln, die viele relevante dynamische Prozesse bei der Erosion und dem Transport schadstoffbehafteter Sedimente berücksichtigen und die Folgen für aquatische Organismen quantifizieren können (KEITER ET AL., 2006). Dabei ist es zielführend, eine Kombination von hydrodynamischen und ökotoxikologischen Methoden in einem gemeinsamen experimentellen Ansatz zu verknüpfen.

Die Entwicklung experimenteller Ansätze und Methoden ist auch im Zeitalter wachsender hydrodynamisch-numerischer Simulationen ein zielführender Weg, um Wechselwirkungen zwischen unterschiedlich beeinflussten und wirkenden Parametern zu identifizieren, zu verstehen und gezielt zu verändern. Dabei helfen experimentelle Methoden, Wissensgrundlagen zu schaffen und Prozesse umfassend zu beschreiben. Denn erst durch das Grundlagenverständnis und die damit verbundene Beschreibung der Prozesse entsteht die Möglichkeit, alleinstehende oder hybride hydrodynamisch-numerische Modelle aufzubauen, so dass auch großräumigere Betrachtungen des Ausgangsproblems abgebildet, analysiert und bewertet werden können (Abbildung 1-1).



Abbildung 1-1: Darstellung der beteiligten Parameter ohne bekannten funktionalen Zusammenhang zwischen den Parametern und den resultierenden Prozessen

BLACK ET AL. (2002) formulieren die fehlende Verbindung von Biologie und Ingenieurwissenschaften auf dem Gebiet des kohäsiven Sedimenttransports. Obwohl die fachliche Verbindung auch weiteren Autoren als Lücke im Aufbau des Prozessverständnisses des schadstoffbehafteten Sedimenttransports bewusst ist, wurden bisher kaum Anstrengungen unternommen, dieser Wissenslücke vollkommen interdisziplinär im Labor zu begegnen. Im Jahr 2008 entstanden im Rahmen einer Machbarkeitsstudie die ersten Experimente zur Umsetzung und dem anschließenden systematischen Aufbau der hydrotoxikologischen Methodik an der RWTH Aachen University. Auch weitere aktuelle Veröffentlichungen weisen darauf hin, dass nur durch eine interdisziplinäre Verbindung verschiedener passender Methoden eine Beurteilung schadstoffbelasteter Sediment in unserer Umwelt möglich wird (PALLER & KNOX, 2013). Mit der hier vorgestellten Arbeit soll überprüft werden, ob eine experimentelle Verknüpfung der Fachgebiete Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) als ein zielführender Weg zur Bewertung und Charakterisierung schadstoffbehafteter Sedimente im Rahmen von integrierten und interdisziplinären Sedimentmanagementplänen genutzt werden kann.

#### 1.2 Problemstellung und Zielsetzung

Ausgehend von der vorangegangenen Motivation wird ein Betrachtungsraum in einem Gewässersystem, in dem sich erodierbare und schadstoffbelastete Sedimente, Organismen und ein aquatisches Umweltsystem befinden, isoliert mit dem Ziel betrachtet eine ganzheitliche Aussage zu Risiken schadstoffbelasteter Sediment und einem nachhaltigen Sedimentmanagement zu entwickeln. Dabei können bestimmte Parameter besonders im Fokus stehen, da sie einen zentralen Einfluss auf Erosionsstabilität, Schadstofffreisetzung oder Bioverfügbarkeit für die Organismen haben. Mögliche Parameter in diesem Zusammenhang können zum Beispiel der pH-Wert, die am Sediment anhaftende Schadstoffkonzentration oder die wirkende Sohlschubspannung sein. Durch ein Erosionsereignis ändern sich die vorliegenden Parameter im Betrachtungsraum und somit werden Prozesse und Wechselwirkungen aktiviert.

Der Betrachtungsraum stellt dabei einen definierten Abschnitt eines Gewässersystems dar, der hinsichtlich rheologischer, ökotoxikologischer und hydrodynamischer Gesichtspunkte beschrieben und bewertet werden soll. Dabei lassen sich die Gesichtspunkte den beiden Fachgebieten Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) zuordnen. Fasst man die beiden Fachgebiete zusammen, kann daher von einer Beschreibung und Bewertung unter hydrotoxikologischen Gesichtspunkten gesprochen werden. Ein wichtiger Schritt zur Beschreibung und Bewertung des definierten Betrachtungsraums ist die Identifikation relevanter Parameter. Erst eine theoretische Aufstellung beteiligter Parameter und deren experimentelle Erfassung kann die Entwicklung einer Rangordnung hinsichtlich der Relevanz der Parameter im Betrachtungsraum erlauben.

Forschungsfrage 1

Gibt es relevante Parameter zur hydrotoxikologischen Beschreibung und Bewertung des Betrachtungsraums?

Experimentelle Methoden stellen ein grundsätzliches Werkzeug zur Abbildung von Parametern im gewählten Betrachtungsraum dar. In Abhängigkeit der Fragestellung lassen sich skalierte und konkrete Modell aufbauen. Für das übergeordnete Ziel der Beschreibung und Bewertung eines Betrachtungsraums unter hydrotoxikologischen Gesichtspunkten ist der Aufbau eines konkreten Modells von Vorteil, um allgemeingültige Zusammenhänge untersuchen zu können. Hierbei lassen sich Maßstabseffekte vermeiden und Modelleffekte gut abgrenzen, da konkrete Modelle die Möglichkeit bieten einzelne Parameter und Randbedingungen situativ ähnlich der Natur einzustellen. Zur Verknüpfung der beiden Fachgebiete sind die etablierten Methoden in ihrer ursprünglichen Form nicht anwendbar und bedürfen einer Anpassung und Optimierung hinsichtlich der Abbildung der Parameter und deren messtechnischer Erfassung.

Forschungsfrage 2

Können die relevanten Parameter mit Hilfe der hydrotoxikologischen Methodik experimentell abgebildet und erfasst werden?

Bei der experimentellen Umsetzung der theoretischen Verknüpfung der beiden Fachgebiete ist ein Verfahren in drei Schritten anzustreben, um Optimierungs- und Anpassungspotentiale zu nutzen. Dabei wird stets das Ziel verfolgt, die natürlichen Prozesse während der Erosion von schadstoffbelasteten Sedimenten zu erfassen. Es wird die Annahme getroffen, dass nicht alle Prozesse bei der Beurteilung der ökotoxikologischen Auswirkungen die gleiche Signifikanz aufweisen. Erst durch die Isolation einzelner Parameter kann der Einfluss eines jeden individuell identifiziert werden.

Forschungsfrage 3

Lassen sich hydrotoxikologisch signifikante Prozesse zur Beschreibung und Bewertung kritisch belasteter Betrachtungsräume mit der Hydrotoxikologie identifizieren?

Bei der positiven Bearbeitung der drei aufgestellten Fragestellungen ist der Aufbau der neuartigen interdisziplinären und experimentellen Methode "Hydrotoxikologie" erfolgreich realisiert.

#### 1.3 Inhaltlicher Aufbau der Arbeit

Nach der Beschreibung der konkreten Fragestellung in Kapitel 1.2 ist die vorliegende Arbeit das Ergebnis einer experimentellen Neuentwicklung im Bereich der interdisziplinären Tätigkeitsfelder des Bauingenieurwesens. Dabei stützt sich die experimentelle Umsetzung auf eine vertiefte Grundlagenbildung im Bereich des kohäsiven Sedimenttransports. Die Grundlagen und der aktuelle Stand der Forschung zum schadstoffbelasteten Sedimenttransport und dessen ökotoxikologische Auswirkungen werden in Kapitel 1 umfassend aufbereitet und dabei den unterschiedlichen Disziplinen zugeordnet. Weiterhin gehört die Vorstellung der Schadstoffgruppen und eingesetzten Organismen und Biomarker zur umfassenden Beschreibung aller relevanten Parameter.

Da diese Arbeit hauptsächlich dem Bereich des Wasserbaus und Wasserwirtschaft zugeordnet werden kann, folgt in Kapitel 2.2 die Charakterisierung des kohäsiven Sedimenttransports. Hier werden die grundsätzlichen Zusammenhänge und Prozesse des Sedimenttransports und im Besonderen der Erosion beschrieben. Eingegangen wird auf die Konsolidierung kohäsiver Natursedimente. Da es zwischen natürlicher und labortechnischer Ablagerung zu Unterschieden kommt, ist es notwendig diese zu kennen und zu berücksichtigen. Ein weiterer wichtiger Bereich ist der Aufbau eines Sedimentbetts, an das während dieser Experimente hohe Ansprüche gestellt werden mussten (vgl. Kapitel 2.2.3). Die Beschreibung der Erosionsprozesse beschränkt sich im Detail auf die in den Experimenten erwarteten und angetroffenen Erosionsprozesse und die damit verbundenen Erosionswiderstände und -raten (vgl. Kapitel 2.2.4).

Nach der Beschreibung der ingenieurtechnisch wichtigen Parameter folgt die Beschreibung und Charakterisierung der Schadstoffgruppen (vgl. Kapitel 2.3) und deren Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit (vgl. Kapitel 2.3.4). Für den Anwendungsfall und die Validierung der Methode kam Kupfer als Stellvertreter der Schwermetalle zum Einsatz (vgl. Kapitel 2.3.2). Weiterhin wurde ein Natursediment mit einer starken PAK-Belastung (polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe) ausgesucht. Die Auswertung konzentrierte sich auf die 16 prioritären EPA-PAKs (vgl. Kapitel 2.3.3).

Die Auswirkungen der Umweltparameter, die sowohl den Bereich der Rheologie als Teilbereich des Wasserbauingenieurwesens als auch die Ökotoxikologie als Teilbereich der Biologie und Chemie beeinflussen, werden anschließend vorgestellt. Dabei werden die folgenden Parameter im Detail behandelt: pH-Wert, Redoxpotential, elektrische Leitfähigkeit, Wasserhärte, gelöster Sau-

erstoffgehalt und Wassertemperatur (vgl. Kapitel 2.4). Im Fokus der Beschreibung stehen die Auswirkungen der jeweiligen Parameter auf die Änderung des Erosionsverhaltens, der Schadstofffreisetzung und der damit verbundenen Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit.

Anschließend folgt die Vorstellung der ökotoxikologischen Parameter (vgl. Kapitel 2.5). Zu Beginn wird das Fachgebiet der Ökotoxikologie und die grundlegenden Begriffe und die Kernaufgaben der Disziplin vorgestellt (vgl. Kapitel 2.5.1). Welche Stoffwechselprozesse nach der Exposition der Organismen gegenüber den schadstoffbehafteten Sedimenten von Bedeutung sind, wird getrennt dargestellt (vgl. Kapitel 2.5.2). Die ausgewählten Biomarker sind dabei speziell auf die eingesetzte Schadstoffgruppe abgestimmt, um die Ergebnisse mit Erwartungswerten aus bestehenden Datenbanken zu vergleich und einzuordnen (vgl. Kapitel 2.5.3).

Das zentrale Element der experimentellen Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik stellt der Versuchsstand am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University dar. Die genaue Beschreibung der eingesetzten Instrumente der entwickelten hydrotoxikologischen Methodik werden in Kapitel 0 vorgestellt, beginnend mit der Definition der interdisziplinären Methodik und der erfolgten Abgrenzung für den in dieser Arbeit behandelten Betrachtungsraum (vgl. Kapitel 3.2). Wichtig ist dabei, den Unterschied zu bereits bestehenden Systemen zu zeigen und die Vorteile des Kreisgerinnes gegenüber diesen herauszuarbeiten (vgl. Kapitel 3.3.1). Eine Vorstellung des Versuchstands zusammen mit der ausgewählten Messtechnik folgt bevor die beiden Untersuchungsreihen (Machbarkeitsstudie und Hauptstudie) vorgestellt werden (vgl. Kapitel 3.3.3).

Die Vorstellung der Machbarkeitsstudie, die zeitlich vor den Hauptexperimenten durchgeführt wurde, gibt einen Überblick über die Anpassungs- und Optimierungsphasen, die notwendig waren, um die hydrotoxikologische Methode erfolgreich aufzubauen und zu validieren (vgl. Kapitel 3.4). Es wird ein Überblick gegeben, welche anfänglichen Parameter gewählt wurden und ob eine Änderung auf Basis der Vorexperimente erfolgen musste.

Die Ergebnisverwertung der Machbarkeitsstudie bildet die Grundlage für den Aufbau der optimierten Hauptexperimente (vgl. Kapitel 3.5). Dazu gehört die Beschreibung notwendiger Vorbereitungen außerhalb des Kreisgerinnes zum Aufbau und zur Charakterisierung einer gestörten Schicht aus natürlichem Sediment, der dazugehörigen Messtechnik und eine Übersicht der durchgeführten Experimente mit dem dazugehörigen Verlauf der Sohlschubspannung (vgl. Kapitel 3.4). Das Kapitel 3 schließt mit einer Diskussion der auftretenden Modelleffekte und deren Einfluss auf die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf natürliche Betrachtungsräume (vgl. Kapitel 3.6).

Mit Hilfe der vorangegangenen Beschreibungen kann in Kapitel 1 die Auswertung und Interpretation der Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen dargestellt werden. Dabei ist dieses Kapitel in verschiedene Bereiche gegliedert. Es beginnt eine klassische Charakterisierung des Sedimenttransports auf Basis der anerkannten Verfahren (vgl. Kapitel 4.2). Dafür wird mit einer Regressionsanalyse zur Umrechnung der Trübungswerte in Schwebstofffrachten begonnen, bevor Schwellenwerte der Erosion, Erosionsraten und -tiefen bestimmt werden.

An die Auswertung des Sedimentverhaltens schließt sich die ökotoxikologische Auswertung an. Diese untergliedert sich in die Vorstellung der Biomarkeranalysen und die chemische Analytik der gewonnen Proben aus den Experimenten (vgl. Kapitel 4.3). Weiterhin werden die Ergebnisse nach den beiden untersuchten Schadstoffgruppen getrennt betrachtet. Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurden am Institut für Umweltforschung der RWTH Aachen University im Rahmen von studentischen Abschlussarbeiten erarbeitet (Markus Brinkmann M.Sc., Henning Herrmann M.Sc., Hannah Schaffrath B.Sc.). Hier werden nur exemplarisch einige Ergebnisse gezeigt und erläutert. Die detaillierten Auswertungen und Interpretationen finden sich in den angebenden Arbeiten.

Der dritte Abschnitt der Auswertung konzentriert sich auf die gekoppelte Betrachtung der erfassten Parameter (vgl. Kapitel 4.4). Ziel ist die Identifizierung von Wechselwirkungen und Abhängigkeiten der Parameter untereinander. Berücksichtigt werden dabei alle fünf Parametergruppen. Die hydrotoxikologische Auswertung erfolgt dabei in drei Schritten, so dass die Prozesse und Wechselwirkungen systematisch identifiziert und zugeordnet werden können (vgl. Kapitel 4.4.1). So wird mit einer monodisziplinären Betrachtung der Parameter begonnen und anschließend eine interdisziplinäre Verknüpfung der Parameter durchgeführt. Dieses Kapitel schließt mit einer Bewertung der bisher erhobenen Daten und schafft Anreize welche Daten noch detaillierter betrachtet werden sollten, um die neue Methodik weiter zu entwickeln (vgl. Kapitel 4.5).

Die hydrotoxikologische Methodik stellt zum momentanen Zeitpunkt einen alternativen Weg zur umfassenden Beschreibung schadstoffbehafteter Sedimente dar. Da dies der erste Schritt in Richtung einer integrativen Sedimentbewertung auf Labormaßstabsebene ist, werden einige Parameter (z. B. Ausschöpfung der maximal möglichen Sohlbelastung) in einem reduzierten Umfang berücksichtigt. Weiterhin konnte nur eine stark begrenzte Anzahl an natürlichen Sedimenten und Schadstoffen betrachtet werden. Aus diesem Umstand ergeben sich eine Vielzahl von detaillierten Fragestellungen, die zum einen die Optimierung der hydrotoxikologischen Methode betreffen und zum anderen die Änderung und Anpassung der berücksichtigten Parametergruppen. Diese unterschiedlichen Fragstellungen und der resultierende Forschungsbedarf werden gesondert dargestellt (vgl. Kapitel 1).

Die Methode und die dazugehörige Anwendungstauglichkeit werden abschließend zusammenfassend dargestellt. In diesem Zusammenhang werden auch die Kernaussagen der gewonnen experimentellen Ergebnisse abschließend erläutert. Auf dieser Grundlage kann dann die Notwendigkeit der hydrotoxikologischen Methode abschließend als notwendig erachtet sowie die weitere Verfolgung und Optimierung der hydrotoxikologischen Methode als positiv bewertet werden.

## 2 Grundlagen und Stand der Forschung

### 2.1 Bedeutung schadstoffbehafteter Sedimente und ausgewählter Parameter

Zur detaillierten Betrachtung des Transports und Verbleibs kohäsiver schadstoffbehafteter Sedimente bei gleichzeitiger ökotoxikologischer Beurteilung ist es notwendig, beeinflussende Parameter und resultierende Prozesse zu definieren und voneinander abzugrenzen. Dabei ist es wichtig, Parameter unterschiedlicher Bereiche und Disziplinen in die Betrachtung mit einzubeziehen, um ein ganzheitliches Bild der Wechselwirkungen zwischen Sediment, Wasser, Schadstoff und Organismus während der Erosion aufbauen zu können.

Die betrachteten Parameter kommen aus den Bereichen Rheologie, Hydrodynamik, Ökotoxikologie, Schadstoffbewertung und Hydrochemie. Die Beschreibung der Parameter und Prozesse kann in fünf Parametergruppen (*Sedimente, Hydrodynamik, Schadstoffe, Organismen und Umweltbedingungen*) untergliedert werden, die den Sediment- und Schadstofftransport nach der Erosion beeinflussen bzw. davon beeinflusst werden. Die Beschreibung der nachfolgenden Parameter und deren Wechselwirkungen bezieht sich ausschließlich auf limnische Gewässersysteme (Abbildung 2-1).



Abbildung 2-1: Abstrahierter Betrachtungsraum eines Flusssystems während der Erosion schadstoffbehafteter Sedimente und deren Wechselwirkungen mit aquatischen Organismen und bekannten Umweltbedingungen; EL: elektrische Leitfähigkeit

Die Wechselwirkungen zwischen suspendierten und abgelagerten Sedimenten, Schadstoffen und dem Umgebungswasser werden durch eine Vielzahl unterschiedlicher physikalisch-chemischer Parameter beeinflusst. Zur Bestimmung der Wechselwirkungen ist eine umfangreiche Charakterisierung des Sediments hinsichtlich der Zusammensetzung, des mineralogischen Aufbaus und der Korngrößenverteilung notwendig (BRYAN, 1992; MITCHENER & TORFS, 1996; BLACK ET AL., 2002). Korngröße und -form gehören bei der Beurteilung eines kohäsiven Sediments zu den Hauptfaktoren, denn erst im Bereich von 0,1 µm bis 50 µm (Ton und Schluff, (HOFMANN ET AL., 2003)) treten kohäsive Eigenschaften auf (MEHTA, 1989), die für die Anhaftung der Schadstoffe verschiedener Gruppen verantwortlich sind. Es gilt dabei, je kleiner die vorkommenden Korngrößen sind desto höher ist die Konzentration anhaftender Schadstoffe (FOSTER & CHARLES-WORTH, 1996). Kohäsive Sedimente wie Tonpartikel besitzen einen derartigen Aufbau, dass es zu unterschiedlichen Ladungszuständen auf der Partikeloberfläche kommt, so dass daraus resultierend andere Partikel abgestoßen oder angezogen werden (MITCHELL & SOGA, 2005). Die Ladungszustände sind zum Teil abhängig von den variierenden Eigenschaften des Umgebungswassers und stellen damit einen wesentlichen Faktor für die wirkende Bindungskraft zwischen Sedimentpartikeln untereinander und anwesenden Schadstoffen dar (CALMANO ET AL., 1992; CANT- WELL ET AL., 2002). Eine weitere elementare Fraktion stellt der Anteil der organischen Materialen im Sediment dar. Diese Gruppe kann durch eine hohe Anhaftungsrate für organische Schadstoffe (z. B. PAK) charakterisiert werden (HO ET AL., 2002).

Neben den Stoffeigenschaften nehmen aber auch mechanische Einflüsse wie beispielsweise die Erosion schadstoffbelasteter Sedimente eine elementare Rolle bei der Verteilung und Änderung der Biozugänglichkeit und Bioverfügbarkeit anwesender Schadstoffe im betrachteten System ein. So gilt es, die erosiven Eigenschaften und den anschließenden Transport in der Wassersäule zu charakterisieren und die entscheidenden Prozesse zu identifizieren, um Aussagen bezüglich der ökotoxikologischen Auswirkungen treffen zu können (vgl. Kapitel 2.2.4).

Diese Studie konzentriert sich auf ausgewählte Schadstoffe, die der Liste der prioritären Stoffe zugeordnet werden können. Die potentielle Gefährdung, die von diesen Stoffen ausgeht, kann erst durch gezielte Isolation der Stoffe und deren resultierende Kombination ermittelt werden, bevor komplexe Kombinationen natürlicher Schadstoffbelastungen eingeordnet werden können. Da jedoch die Komplexität der Naturprobe eine Identifizierung der Grundprozesse ausschließt, sollte zu Beginn von Experimenten die zu untersuchende Schadstoffkonzentration auf Kerngruppen begrenzt sein, wie beispielsweise prioritäre organische Schadstoffe und Schwermetalle. Diese Gruppen weisen aber unterschiedlichste Verbindungen und Komplexe auf, daher müssen Beispiele und Stellvertreter der Gruppen im Vorfeld der Studie ausgesucht und charakterisiert werden (vgl. Kapitel 2.3).

Die Betrachtung der physikalisch-chemischen Parameter ist wichtig in Bezug auf die ausgewählten Sedimente und Schadstoffe. Denn mit der Änderung dieser Parameter kann es zu einer Freisetzung oder Bindung der Schadstoffe an Sedimentpartikel kommen, die über die Bioverfügbarkeit und die ökotoxikologischen Auswirkungen entscheidet (vgl. Kapitel 2.4). Daher ist es notwendig, bei einer getrennten Betrachtung der wirkenden Parameter die Wechselwirkungen nicht zu vernachlässigen. Weiterhin können die physikalisch-chemischen Parameter Einfluss auf das Bindungsverhalten der Sedimentpartikel untereinander haben, was zu einer Zu- oder Abnahme des Erosionswiderstandes führen kann und das Transportverhalten von Sedimenten entscheidend beeinflusst (GERBERSDORF ET AL., 2005).

Da jegliche Änderungen des aquatischen Betrachtungsraums Auswirkungen auf die dort lebenden Organismen haben, muss geklärt werden, ob diese Auswirkungen negativ sind oder nicht. Durch den Einsatz von *in-vivo*-Methoden kann mit Hilfe der Analyse von Biomarkern die Exposition gegenüber schadstoffbelasteten Sedimenten nachgewiesen sowie deren Effekte in den Organismen beschrieben werden (vgl. Kapitel 2.5).

### 2.2 Beschreibung des kohäsiven Sedimenttransports

### 2.2.1 Grundlagen und Prozesse des kohäsiven Sedimenttransports

Nachfolgend werden im Speziellen die Transportprozesse fluvialer Sedimente betrachtet und detailliert vorgestellt. Die Grundprozesse des Transportverhaltens kohäsiver Sedimente lassen sich in die folgenden Teilprozesse gliedern: Deposition, Konsolidierung, Re-Entrainment, Erosion und Schwebstofftransport (MEHTA ET AL., 1982) (Abbildung 2-2). Für diese Prozesse und Mechanismen lassen sich jedoch keine allgemeingültige Aussagen formulieren (PARTHENIADES, 1965) vergleichbar den Formeln für kohäsionsloses Material zum Beispiel nach SHIELDS (1936).

Beschreibt man den Kreislauf eines Sedimentpartikels, kann mit der Deposition aus der fließenden Welle begonnen werden. Aufgrund sinkender Fließgeschwindigkeiten oder von Flockungsprozessen kann es zu Absinkprozessen kommen. Berühren die Partikel die Sohle spricht man von einer stationären Suspension, die keinen Widerstand gegenüber einwirkender Sohlschubspannung zeigt, so dass bei einer Wiederbelastung ein Re-Entrainment beobachtet werden kann. Kommt es jedoch zu einer Verfestigung der abgelagerten Partikel, spricht man von Konsolidierung. Die Entstehung einer konsolidierten Sedimentschicht und deren Charakteristika werden im folgenden Kapitel genauer erläutert. Je nachdem welche Sedimentschicht sich ausgebildet hat, können unterschiedliche Erosionsprozesse beobachtet werden, wenn bei wirkender Sohlbelastung der Erosionswiderstand der Schicht überschritten wird.



Abbildung 2-2: Schematische Darstellung des Kreislaufs der Transportprozesse kohäsiver Sedimente (verändert nach MEHTA ET AL. (1982))

### 2.2.2 Charakterisierung kohäsiver Natursedimente

Die Anwesenheit von Sedimenten die entweder sohlnah als Geschiebe, als Schwebstoff in der Wassersäule mit der Strömung oder als Schwimmstoff an der Gewässeroberfläche transportiert werden, stellen natürliche Bestandteile eines Flusses dar (VAN RIJN, 1984). Sedimente lassen sich nach unterschiedlichen Kriterien (z. B. Korngrößenunterschiede, Kornform, Materialzusammensetzung etc.) einteilen. Diese Kriterien sind für das Sedimentverhalten und die damit einhergehende Art des Transports (Schwebstoff-, Geschiebe- oder Schwimmstofftransport) im Gewässersystem mitverantwortlich. Eine weit verbreitete Grenze zur Trennung kohäsiver und kohäsionsloser Sedimente liegt bei einer Korngröße von d = 0,063 mm. Dabei spricht man bei kohäsivem Sediment (Definition 1) von Schluff, wenn Korngrößen zwischen 0,063 und 0,002 mm vorliegen. Wenn die Partikel kleiner als 0,002 mm sind, werden sie den Tonen zugeordnet (MITCHELL & SOGA, 2005).

Definition 1 für kohäsives Sediment

Kohäsive Sedimente zeichnen sich durch die Eigenschaft aus, dass das Eigengewicht der Partikel vernachlässigt werden kann (RAUDKIVI & HUTCHINSON, 1974) und die Oberflächenladungen sämtliche Transportprozesse durch partikuläre Interaktionen beeinflusst. Die Art der Interaktionen und deren Intensität werden beeinflusst durch den Chemismus des Umgebungswassers.

Bei der Untersuchung natürlicher Sedimente ist eine scharfe Trennung zwischen kohäsivem und kohäsionslosem Sediment nicht möglich. Kohäsionslose Materialien wie Sande oder Kiese werden im Gegensatz zu kohäsivem Material vorwiegend an der Gewässersohle transportiert (Definition 2) und sind häufig kugelförmig, so dass die Festlegung der Korngröße praktisch besser umsetzbar und bestimmbar ist. Wohingegen Partikel der kohäsiven Fraktion eine plattige oder nadelige Form aufweisen. Da diese Kornform eine eindeutige Aussage über die Korngröße nicht zulässt, wurde der äquivalente Korndurchmesser entwickelt. Diese Größe wird definiert über die gleiche Sinkgeschwindigkeit eines realen und eines idealisierten kugelförmigen Sedimentpartikels mit gleicher Materialbeschaffenheit und hilft, so die betrachtete Sedimentprobe den einzelnen Kornklassen zu zuordnen (ZANKE, 2013).

Definition 2 für kohäsionsloses Sediment

Das Verhalten kohäsionslosen Sediments (Sand, Kies etc.) wird hauptsächlich durch die Korngröße, die Kornform, die Oberflächenbeschaffenheit und die Größenverteilung beeinflusst (MITCHELL & SOGA, 2005; BERLAMONT ET AL., 1993b). Der Erosionswiderstand ist damit allein von der Gravitationskraft abhängig (ARIATHURAI & ARULANA-NDAN, 1978).

Bei natürlichen Sedimenten, die aus unterschiedlichen Korngrößen und Materialen zusammengesetzt sind, lässt sich keine eindeutig Grenze zwischen kohäsivem oder kohäsionslosem Sedimentverhalten ziehen. So zeigen frühere Untersuchungen von MITCHENER & TORFS (1996) bereits ab Ton-/Schluffgehalten von 3 bis 15 % Erosionsprozesse, die typisch für kohäsive Sedimente sind. Untersuchungen mit naturnahen Mischproben zeigten für einen Tonanteil von 10 % den Übergang von kohäsivem zu nicht kohäsivem Verhalten. Auch Untersuchungen von SPORK (1997) bestätigten kohäsive Eigenschaften eines Sedimentgemisches ab 5 - 10 % Tongehalt.

Dabei zeichnet sich kohäsives Sedimentverhalten dadurch aus, dass die Oberflächeneigenschaften der Sedimentpartikel das Transportverhalten durch interpartikuläre Interaktionen beeinflussten.

Verantwortlich dafür ist der schichtartige Aufbau der Partikel in Form von tetraedrischen (Silizium, Abbildung 2-3 (a) und (b)) und oktaedrischen (Aluminium, Magnesium, Abbildung 2-3 (c) und (d)) Kristallgittern. Bei der tetraedrischen Form lagern sich vier Anionen (z. B. Sauerstoffatome) um den Kern an, wohingegen bei der oktraedrischen Form sechs Anionen (z. B. Hydroxide) den Kern umschließen. Die Form der Anlagerung ergibt sich aus der Kristallstruktur der Zentralionen. Dabei ist der Kern immer ein positiv geladenes Zentralkation, so dass sich für die Kanten eine negative Ladung einstellt (ROTH, 1991). Zur Erreichung elektrischer Neutralität können bei tetraedrischen Schichten die Sauerstoffmoleküle auch durch Hydroxide ersetzt werden. Eine Mischung der beiden mineralischen Aufbauten ist grundsätzlich möglich, so ist z. B. Kaolinit ein klassisches 1:1-Mineral, das heißt, die beiden Grundschichten wechseln sich immer ab (MITCHELL & SOGA, 2005).



Abbildung 2-3: Basiskristallstruktur häufig vertretener Tonminerale: Tetraedrische Struktur (oben) als Einzelpartikel (a) und im Schichtenverbund (b) und oktraedrische Struktur (unten) als Einzelpartikel (c) und im Schichtenverbund (d) (MITCHELL & SOGA, 2005)

Nicht allein der chemische Aufbau der Tonminerale mit den resultierenden Ladungsdifferenzen ist für die Kohäsion verantwortlich, sondern vielmehr die Interaktion zwischen Ton und Wasser, die zusammen ein Elektrolytsystem bilden. Folglich kommt es mit anderen Partikeln im Betrachtungsraum zu Anziehungs- bzw. Abstoßungseffekten, wodurch Aggregate gebildet und auch weitere Partikel wie Schadstoffe angelagert werden können (FUKUDA & LICK, 1980). An die negativ geladene Oberfläche der Tonminerale lagern sich hydratisierte Kationen aus dem Wasser an (Abbildung 2-4 (b)). Sie bilden zum einen eine starre Schicht, die sogenannte Sternschicht (ROTH, 1991), direkt an der Oberfläche des Tonpartikels und zum anderen eine Hülle mit beweglichen Kationen um den Kristall. Insgesamt wird damit die negative Ladung ausgeglichen. Die Hülle wird als diffuse Doppelschicht bezeichnet und kann in Dicke und Ausprägung in Abhängigkeit von der Stärke des Elektrolytsystems variieren (Abbildung 2-4 (a)). Dies ist abhängig von der Art und der Anzahl der beweglichen Ionen im Wasser (ROTH, 1991). Sämtliche Bindungsprozesse werden vom Abstand der Partikel zu einander gekennzeichnet. So wechseln sich An- und Abstoßungskräfte mit wachsendem Partikelabstand ab und gehen gegen null, wenn der Abstand zwischen interagierenden Partikeln zu groß wird und die Kräfte zwischen den Partikeln nicht mehr wirken (Abbildung 2-4 (c)). Der Hauptmechanismus der Aggregatbildung stellt jedoch die Partikelkollision dar und nicht die Ladungsintensität der Partikeloberfläche (LEUSSEN, 1988). Die La-
dungsintensität der Partikeloberfläche ist jedoch für die Schadstoffanhaftung ein entscheidender Parameter der stark mit den Umweltbedingungen variiert.



Abbildung 2-4: Wasser-Partikel-Grenzschicht und zugehörige Prozesse (verändert nach ROTH (1991) und MITCHELL & SOGA (2005)), (a) Aufbau der diffusen Doppelschicht, (b) Transport und Konzentration der Ionen an der Partikelgrenze und (c) Kräfteverteilung in Abhängigkeit des Abstands zwischen Ionen und Partikel

Die Kohäsion der Partikel wird beeinflusst durch Umweltbedingungen wie den pH-Wert oder die elektrischen Leitfähigkeit (EL). Beide Parameter stellen ein Maß für die Anwesenheit von geladenen Teilchen im Wasser dar. Die detaillierte Vorstellung und Wirkung relevanter Umweltparameter erfolgt in Kapitel 2.4. Untersuchungen an Flusssystemen, wie beispielsweise dem Rhein im Jahre 1975, zeigten, dass die Flokkulation als Aggregatbildung infolge anwesender Ionen eine untergeordnete Rolle spielt und in diesen Bereichen vernachlässigt werden kann (LEUSSEN, 1988).

Durch die Vielzahl der beeinflussenden Parameter ist es zu empfehlen, natürliche Sedimente (Definition 3) in Grundlagenuntersuchungen mit einzubeziehen. Auf diesem Weg kann gewährleistet werden, dass viele der auftretenden Prozesse und Wechselwirkungen mitabgebildet und messtechnisch erfasst werden. Erst die systematische Nutzung natürlicher Sedimente erlaubt den Aufbau von Datengrundlagen, die zukünftig die analytische Beschreibung des Sedimenttransports in seiner Komplexität unter Einbeziehung der maßgeblichen Wechselwirkungen im betrachteten Kontrollvolumen und der ökotoxikologischen Folgen ermöglicht.

#### Definition 3 für natürliches Sediment

Natürliche Sedimente bestehen aus einer Vielzahl unterschiedlicher Bestandteile, die in abgelagerter Form ein komplexes Gefüge bilden und sich somit der Erosionswiderstand und folgende Transportprozesse individuell ausbilden. Die Bestandteile sind alle mineralischen, organischen und anorganischen Partikel sämtlicher Größenordnungen.

## 2.2.3 Entstehung von kohäsiven Sedimentschichten (Konsolidierung)

### a) Phasen der Konsolidierung

Kommt es durch Absinkprozesse einzelner Partikel und Partikelgruppen zu einer Deposition so bildet sich an der Gewässersohle ein Sedimentbett ohne Erosionswiderstand (stationäre Suspension, Kapitel 2.2.1). Neben der mechanischen Konsolidierung des Sedimentbetts führen auch chemische und biologische Faktoren zu einer weiteren Verfestigung (Definition4). Als Beispiel sei hier die Aktivität von Bakterien und Mikroalgen genannt, die durch den Aufbau eines Biofilms (EPS: Extrazelluläre Polymere Substanzen) den Erosionswiderstand deutlich anheben können (THOM ET AL., 2012; GERBERSDORF ET AL., 2007; QUARESMA ET AL., 2004; PROCHNOW ET AL., 1999). Die chemischen und biologischen Prozesse werden hier im Detail nicht beschrieben.

Definition 4 für Konsolidierung

Der Begriff der Konsolidierung beinhaltet physikalische, chemische und biologische Prozesse, die gemeinsam dazu führen, dass eine abgelagerte Sedimentschicht sich über einen betrachteten Zeitraum verdichtet und sich entsprechend der Erosionswiderstand ändert.

Durch das Eigengewicht der Partikel werden interpartikuläre Bindungen aufgebrochen und die Partikelstruktur verfeinert sich (TORFS ET AL., 1996). Die Form der abgelagerten Aggregate und deren Umstrukturierung infolge des Eigengewichts haben einen entscheidenden Einfluss auf die späteren Erosionseigenschaften des Sedimentbetts (LEUSSEN, 1988). Es folgt eine dichtere Lagerung bis hin zu dem Stadium, in dem der gesamte Porenraum durch Partikel ausgefüllt und die Permeabilität reduziert ist (BERLAMONT ET AL. (1993), Abbildung 2-5). Während dieses Prozesses bilden sedimentierende Partikel eine immer widerstandsfähiger werdende Sedimentschicht gegen äußeren Kräfteangriff (MEHTA, 1989). Zeitliche Angaben zu den Prozessabläufen sind nicht möglich, da bisher nicht abschließend geklärt werden konnte, welche Prozesse wann stattfinden und wann bzw. ob sie enden.



Abbildung 2-5: Veränderung der Partikelvernetzung im Verlauf der Konsolidierung: (a) loser Verbund von Aggregatgruppen, (b) Umstrukturierte Aggregatgruppen während der primären Konsolidierung, (c) abgelagertes Sediment mit abgebauten Porenwasserdruck (verändert nach PARTHENIADES (1965))

Die Konsolidierung kohäsiver Sedimente lässt sich in zwei Phasen unterteilen. Nach MEHTA (1989) setzt die primäre Konsolidierung mit Beginn der frisch abgelagerten Aggregatgruppen ein, da das Eigengewicht als totale Spannung  $\Delta \sigma$  eine effektive Spannung  $\Delta \sigma$ ' im Korngerüst zur Folge hat und sich somit ein Porenüberdruck  $\Delta u$  einstellt (Abbildung 2-6). Beim Abbau des Porenüberdrucks entweicht Porenwasser in die Wassersäule. Die Lagerungsdichte der Partikel erhöht sich mit abnehmendem Wassergehalt und den daraus resultierenden Setzungen des Sedimentbetts, wobei sich der Erosionswiderstand erhöht. Die Aggregatgröße nimmt dabei mit zunehmender Konsolidierungszeit ab (PARCHURE, 1984), da die Aggregate an den Scherflächen getrennt und zusammengedrückt werden. Die primäre Konsolidierung ist abgeschlossen, wenn der gesamte Porenwasserdruck in der Sedimentschicht abgebaut ist.



Abbildung 2-6: Entwicklung des Porenüberdrucks und der Setzungen infolge konstanter Auflast aus Eigengewicht über die Zeit (verändert nach LANG ET AL. (2011))

Schon während der ersten Phase beginnt die sekundäre Konsolidierung, die die plastische Verformung der Sedimentschicht als Folge der konstanten Auflast beinhaltet. Die sekundäre Konsolidierung kann mehrere Wochen und Monate andauern. Im Gegensatz zur primären Konsolidierung findet bei der sekundären Konsolidierung keine signifikante Änderung der Sedimentmächtigkeit h mehr statt (PARCHURE, 1984, Abbildung 2-7). Mit andauernder Konsolidierungsdauer (KUIJPER, 1993) und Schichttiefe (HAAG ET AL., 2001) steigt jedoch die Dichte der abgelagerten Sedimentpartikel weiter. Je höher die Sedimentdichte einer Sedimentschicht ist, desto höher ist auch die kritische Sohlschubspannung, die erreicht werden muss, um die betrachtete Sedimentschicht zu erodieren.



Abbildung 2-7: Qualitative Darstellung der Entwicklung der Schichtmächtigkeit über die Zeit mit den Bereichen der primären und sekundären Konsolidierung

### b) Konsolidierung unter Laborbedingungen

Sedimentschichten, die unter Laborbedingungen konsolidieren, weisen meistens einen geringeren Erosionswiderstand im Vergleich zu natürlich abgelagerten Sedimenten auf (BERLAMONT ET AL., 1993b), da sekundäre Konsolidierungsprozesse nicht nachgebildet werden können. Aus der Literatur lässt sich entnehmen, dass die primäre Konsolidierungsphase nach zwei Tagen (MEHTA ET AL., 1982) bis zwei Wochen (PARCHURE & MEHTA, 1985) abgeschlossen ist. Ergebnisse von SCHWEIM (2005) haben gezeigt, dass die Konsolidierung unter Laborbedingungen nach drei Tagen abgeschlossen ist, so dass ein konstanter Verlauf der Sedimentdichte über die Zeit an einem expliziten Messpunkt in der Sedimentschicht zu beobachten ist.

Neben der Zeit sollten auch die Umgebungsbedingungen bei Konsolidierungsversuchen gleich sein, um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu garantieren. Um den Einfluss physikalischchemischer und biologischer Parameter so gering wie möglich zu halten, sollten Konsolidierungsversuche kühl und dunkel ablaufen (CANTWELL & BURGESS, 2004). Die Konsolidierung kann mit Hilfe vertikaler Dichteprofile dargestellt werden (BERLAMONT ET AL., 1993a; BERLA-MONT ET AL., 1993b; SCHWEIM, 2005, Anhang C).

### c) Aufbau unterschiedlicher Sedimentbetten

Zur vollständigen Charakterisierung des kohäsiven Sedimenttransports ist es wichtig, den inneren Aufbau der betrachteten Sedimentschicht zu kennen, um bereits im Vorfeld das mögliche Erosionsverhalten abschätzen zu können. Die Entstehungsart und Lagerung der Sedimentschicht ist in diesem Zusammenhang ein charakteristischer Aspekt. Dabei gilt es, zwischen homogen aufgebauten und abgelagerten Sedimentschichten zu unterscheiden, da die beiden Sohltypen bei der Erosion ein unterschiedliches Verhalten aufweisen.

Lagert sich das Sediment in einem schichtweisen Aufbau zu einer Sedimentschicht ab, spricht man von einer abgelagerten Sedimentschicht des Sohltyps I (englische Terminologie: deposit bed oder stratified bed). Während des Absinkprozesses sortieren sich die Partikel und Aggregatgruppen derart, dass die dichteren Partikel und Aggregatgruppen zuerst sinken, gefolgt von den weniger dichteren und leichteren. Dieser Prozess resultiert auch in einer höheren messbaren Dichte im unteren Bereich einer Sedimentschle (PARCHURE, 1984). Charakteristisch für diesen Sohltyp sind die zunehmende Sedimentdichte über die Schichtliefe und die damit einhergehende Änderung der kohäsiven Eigenschaften über die Schichtdicke (Abbildung 2-8). Für den Erosionsprozess lässt sich daher aussagen, dass der Erosionswiderstand mit zunehmender Sedimentdichte über die Schichtdicke ansteigt.

Homogene Sedimentschichten, die unter dem Begriff Sohltyp II (uniform bed) geführt werden, haben einen einheitlichen Dichteaufbau im Gegensatz zu abgelagerten Sedimentschichten (SAN-FORD & MAA, 2001). Homogene Sedimentschichten gelten als vollständig konsolidiert und weisen einen deutlich geringeren Wassergehalt auf als Sohlen des Typs I. Diese Sedimentschichten zeigen keine tiefenvariable Änderung der Sedimentdichte (MEHTA ET AL. (1982), Abbildung 2-8). Somit kann auch von einem konstanten Erosionswiderstand ausgegangen werden. So kann gefolgert werden, dass es auch zu einem konstanten Erosionsverhalten bei Überschreitung des Erosionswiderstandes kommt.



Abbildung 2-8: Qualitativer Verlauf der Dichte eines abgelagerten (Sohltyp I) und eines homogenen (Sohltyp II) kohäsiven Sediments über die Schichttiefe z, (verändert nach MEHTA & PARTHENIADES (1982)).

### 2.2.4 Erosionsprozesse kohäsiver natürlicher Sedimente

### a) Erosionswiderstand

Erosion ist zu beobachten, wenn aufgrund der Überschreitung der kritischen Sohlschubspannung einzelne Partikel oder gesamte Aggregatgruppen aus der Sedimentschicht gelöst werden und in der Wassersäule als Schwebstoff transportiert werden (PARTHENIADES, 1965; MEHTA ET AL., 1982; MEHTA & PARTHENIADES, 1982; ARIATHURAI & ARULANANDAN, 1978). Ab dieser wirkenden Sohlschubspannung ist der Erosionswiderstand der Sedimentschicht überschritten, was bedeutet, dass der interpartikuläre Zusammenhang der Sedimentpartikel der angreifenden Spannung nicht mehr widerstehen kann und zerbricht. Der Grenzwert des Erosionswiderstandes, ausgedrückt mit Hilfe der kritischen Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$ , ist erreicht bzw. überschritten, wenn das Sedimentbett einer wirkenden Sohlschubspannung  $\tau_i$  ausgesetzt ist, bei der es gerade beginnt, sich zu bewegen (THORN & PARSON, 1980; AMOS ET AL., 1992). Zu diesem Zeitpunkt gilt, dass die kritische Sohlschubspannung der wirkenden Sohlschubspannung gleichzusetzten ist. Die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  stellt somit ein Maß für die Sohlstabilität dar und es gilt, dass bei  $\tau_i \geq \tau_{cr}$  die Erosion der betrachteten Sedimentschicht beobachtet werden kann.

Bei Sohltyp I gilt, dass ab einer kritischen Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  das Sediment solange erodiert wird, bis eine tieferliegende Schicht erreicht ist, die der angreifenden Spannung widerstehen kann, da sie eine höhere Dichte aufgrund der Konsolidierungsprozesse hat. Die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  ist also direkt proportional zur Sedimentdichte der abgelagerten Sedimentschicht (PARTHENIADES, 1965). Die Entwicklung der Erosion kann mit Hilfe der Erosionsrate  $\varepsilon$  zahlenmäßig erfasst werden (vgl. Kapitel 2.2.4 c), die abhängig ist von der wirkenden Sohlschubspannung  $\tau_i$  und dem vorliegenden Sohltyp.

Eine weitere Kenngröße zur Beschreibung des Erosionsverlaufes ist die Identifizierung der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$ , die bei Überschreitung das Versagen der gesamten Sedimentschicht zur Folge hat. Die charakteristische Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  kennzeichnet den Erosionswiderstand der gesamten Schicht im Betrachtungsraum. Bei konstanter Einwirkung der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  wird das betrachtete Sedimentbett komplett erodiert, da es keine tieferliegende widerstandsfähigere Sedimentschicht mehr gibt. Ein vergleichbares Erosionsverhalten zeigt sich bei Sedimentbetten des Sohltyps II. Wird bei diesem Sohltyp die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  überschritten, stellt sich eine konstante Erosionsrate während der gesamten Einwirkzeit ein. Es folgt, dass bei Sohltyp II die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$ mit der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  gleichzusetzten ist.

Der Erosionswiderstand wird bei kohäsiven Sedimenten durch eine Vielzahl unterschiedlicher Faktoren beeinflusst. Dazu gehören neben den beschriebenen physikalischen Konsolidierungsprozessen auch die Änderung der Sedimentdichte durch Mikroorganismen (z. B. EPS) und Kohäsion der Partikel (PROCHNOW ET AL., 1999; QUARESMA ET AL., 2004; GERBERSDORF ET AL., 2011). Weiterhin beeinflusst die Art und Menge der Ton- bzw. Schlufffraktion, die chemische Zusammensetzung der ausgesuchten Sedimentprobe. Temperaturverhältnisse, organischer Anteil und Alterungsprozesse können den Erosionswiderstand beeinflussen (ARIATHURAI & ARULANA-NDAN, 1978). Weitere Parameter, die das kohäsive Sedimentbett bezogen auf Erosion und anschließenden Transport ändern, sind elektro- und biochemische Eigenschaften im Betrachtungsraum, Wassergehalt, Scherfestigkeit sowie elastische und plastische Eigenschaften (BLACK ET AL., 2002). Bisher lassen sich diese Eigenschaften nicht gemeingültig mathematisch formulieren, so dass zur Bestimmung der kritischen Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  kohäsiver Sedimente nach wie vor experimentelle Untersuchungen durchgeführt werden müssen und eine Charakterisierung jedes Sediments notwendig ist.

#### b) Erosionsprozesse

Die Erosion kohäsiver Sedimente kann unterschiedlichen Erosionstypen und -prozessen (Tabelle 2-1) zugeordnet werden, die in Abhängigkeit des Sohltyps, der angreifenden Kräfte, des Erosionswiderstands und der vorherrschenden Umweltbedingungen auftreten können.

Sohltyp	Erosionstyp	Erosionsart
Sohltyp I	Oberflächenerosion	Flockenerosion Massenerosion
Sohltyp I/II	Tiefenerosion	Flockenerosion Massenerosion

 

 Tabelle 2-1:
 Einteilung der beobachteten Erosion nach Erosionstyp und Erosionsart in Abhängigkeit des vorliegenden Sohltyps

Die Gruppierung der Erosionstypen hilft, die beobachtete Erosion in Abhängigkeit der bestimmten Erosionsraten zu unterteilen. Der Erosionstyp der Oberflächenerosion kann bei abgelagerten Sedimentschichten (Sohltyp I) beobachtet werden. Die dabei auftretende Erosion läuft nicht konstant ab und variiert mit fortschreitender Erosionstiefe. Der zweite Erosionstyp der Tiefenerosion kann hingegen bei Sedimentschichten des Sohltyps II beobachtet werden. Wird bei diesem Sohltyp der Erosionswiderstand überschritten, kommt es zu einer konstanten Erosion bei konstanter Belastung. Die Erosion variiert somit nicht über die Tiefe. Weiterhin kann Tiefenerosion auch bei Überschreitung der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  des Sohltyps I beobachtet werden.

Bei eintretender Erosion muss neben der Unterscheidung des Erosionstyps auch zwischen den beiden Erosionsarten Flocken- und Massenerosion unterschieden werden, die je nach wirkender Sohlschubspannung  $\tau_i$  auftreten (Abbildung 2-9). Ist die wirkende Sohlschubspannung  $\tau_i$  kleiner als die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$ , kann es trotzdem an Schwachstellen des Sedimentbetts zur Erosion einzelner Partikel und kleiner Aggregatgruppen kommen (PARTHENIADES, 1965; MEHTA ET AL., 1982). In der Literatur finden sich unterschiedliche Begriffe für den beschriebenen Prozess. So beschreiben PARTHENIADES (1965), MEHTA & PARTHENIADES (1982), SPORK (1997) und SCHWEIM (2005) diese Erosionsart als Flockenerosion. Der Prozess der Flockenerosion ist unabhängig vom Sohltyp und kann grundsätzlich beobachtet werden wenn  $\tau_i < \tau_{cr}$  bzw.  $\tau_i$  $< \tau_{char}$ . Überschreitet die wirkende Sohlschubspannung  $\tau_i$  jedoch die kritische Sohlschubspannung  $\tau_{cr}$  eines abgelagerten Sedimentbettes, werden ganze Aggregatgruppen aus dem Sedimentbett erodiert; es kommt zur Massenerosion bis zur nächsten stabileren Sedimentschicht, die der angreifenden Sohlschubspannung widerstehen kann (MEHTA, 1991). Dies hat zur Folge, dass der Erosionsprozess nicht konstant verläuft, sondern einen Gleichgewichtszustand zwischen Sedimentation und Erosion einzelner Flocken oder kleiner Aggregatgruppen erreicht. Diese Entwicklung der Erosion kann der Oberflächenerosion zugeordnet werden. Dabei läuft der Prozess solange ab, wie die wirkende Sohlschubspannung unterhalb der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  liegt und der Erosionswiderstand mit der Tiefe des Sedimentbetts zunimmt.



Abbildung 2-9 Darstellung der Flocken- (a) und Massenerosion (b) (verändert nach MEHTA (1991)), (c) zeigt den beobachteten Prozess der Flockenerosion im Experiment

Liegt im Gegensatz dazu ein homogenes Sedimentbett (Sohltyp II) vor, das keine tiefenvariable Zunahme des Erosionswiderstands aufweist, kann bei wirkenden Sohlschubspannungen  $\tau_i$  größer der charakteristischen Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  Tiefenerosion beobachtet werden. Bei der Tiefenerosion verläuft der Erosionsprozess der Massenerosion während der gesamten Einwirkzeit konstant bis die gesamte Schicht erodiert ist (MEHTA, 1991) bzw. die Einwirkung stoppt oder die Intensität abnimmt. Der gleiche Mechanismus findet sich auch bei Sedimentbetten des Sohltyps II, wenn die charakteristische Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  überschritten wird. In beiden Fällen gibt es keine widerstandsfähige Sedimentschicht mehr, die den Erosionsprozess verlangsamt oder gänzlich stoppt. Wird jedoch direkt zu Beginn der Einwirkung die charakteristische Sohlschubspannung  $\tau_{char}$  überschritten, verläuft die Erosionsrate  $\varepsilon$  der Tiefenerosion nicht konstant, da zuerst das geschichtete Bett, das einer Widerstandsverteilung unterliegt, erodiert wird, bevor die homogene Schicht erreicht wird.

### c) Erosionsrate

Der Verlauf der Erosion kann mit Hilfe der Erosionsrate  $\varepsilon$  dargestellt werden. Dabei beschreibt die Erosionsrate  $\varepsilon$  das Verhältnis der erodierten Sedimentmasse M in [kg] zum Produkt aus betrachteter Sohlfläche A in [m<sup>2</sup>] und Einwirkzeit t in [s]. Weiterhin ist die Erosionsrate von der wirkenden Sohlschubspannung  $\tau_i$  abhängig. Für abgelagerte Sedimentbetten gilt, dass mit fortschreitender Erosion bei einer konstant wirkenden Sohlschubspannung  $\tau_i$  die Erosionsrate abnimmt bis die nächste widerstandsfähigere Sedimentschicht erreicht wird, da immer weniger erodierbares Material zur Verfügung steht. Die Erosionsrate ist dann wieder gleich null, wenn sich ein Gleichgewicht zwischen einzelnen sedimentierenden Flocken und erodierten Flocken oder Aggregatgruppen einstellt (PARTHENIADES, 1965; MEHTA & PARTHENIADES, 1982, Abbildung 2-10 (a)). Für homogene Sedimentschichten ergibt sich nach einem sprunghaften Anstieg der

Erosionsrate und Überschreitung der charakteristischen Sohlschubspannung ein konstanter Verlauf der Erosionsrate, wenn die Einwirkung konstant anhält (Abbildung 2-10 (b)).



Abbildung 2-10: Entwicklung der Erosionsrate in Abhängigkeit des vorliegenden Sohltyps: (a) Sohltyp I, (b) Sohltyp II

Die Entwicklung des Erosionsverhaltens kann mit Hilfe der Berechnung der Erosionsrate  $\varepsilon$  analytisch dargestellt werden. Dabei lässt sich die Erosionsrate als Änderung der Schwebstoffkonzentration über die Einwirkzeit beschreiben (Gl. 2.1). Die Anwendung dieser Gleichung benötigt immer das Vorhandensein von Daten aus durchgeführten Erosionsversuchen.

$$\epsilon(t) = h \cdot \frac{dC(t)}{dt}$$
(2.1)  

$$\epsilon = Erosionsrate \qquad [g/m^2s]$$
  

$$h = Schichttiefe \qquad [m]$$
  

$$C = Schwebstoffkonzentration \qquad [g/m^3]$$
  

$$t = Einwirkzeit \qquad [s]$$

Der Verlauf der Erosionsrate lässt sich auf Basis empirischer Daten in mathematischen Modellen beschreiben. Dabei müssen die Modelle zwischen Oberflächen- und Tiefenerosion unterscheiden. Die Modelle für die Tiefenerosion sind dabei einfacher aufgebaut, da sie die tiefenabhängige Änderung des Erosionswiderstandes bzw. der Dichteverteilung des abgelagerten Sediments nicht berücksichtigen müssen, wie es bei Modellen zur Darstellung der Oberflächenerosion notwendig ist. Da im Rahmen dieser Studie nur Sedimentschichten mit einer tiefenvariablen kritischen Sohlschubspannung erodiert wurden, werden die Modelle zur Bestimmung der Tiefenerosion nicht vorgestellt. Eine umfangreiche Aufstellung der Modelle findet sich in der Arbeit von SCHWEIM (2005).

# 2.3 Beschreibung der verwendeten Schadstoffgruppen

## 2.3.1 Einordnung und Eingrenzung der Schadstoffgruppen

Die Bestimmung der ökotoxikologischen Relevanz und Risiken kohäsiver Sedimente setzt voraus, dass Substanzen, von denen eine toxische Wirkung zu erwarten ist, im Betrachtungsraum vorhanden sind. Ob diese Schadstoffe bioverfügbar sind, beziehungsweise welche Bedingungen erfüllt sein müssen, damit eine Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit (Definition 6 und Definition 7) vorhanden ist oder unterbunden wird, ist abhängig vom Sediment- und Schwebstofftyp, dem organischen Anteil sowie den physikalisch-chemischen Umweltbedingungen.

Das Bewusstsein für die Folgen des Schadstoffeintrags in die Gewässersysteme, stieg mit den ersten Untersuchungen zum Verbleib und Transport schadstoffbehafteter Sedimente. So lassen sich ab den 1960er Jahren vermehrt Studien zu genannten Prozessen finden. Besonders die Entnahme und Auswertung von Sedimentkernen hilft, die historische Entwicklung der Schadstoffe im Betrachtungsraum nachzuvollziehen. So zeigt MÜLLER (1981) in seiner als Beispiel herangezogenen Studie anhand gewonnener Sedimentkerne, dass besonders in den 1965er Jahren die Konzentration durch den Eintrag von Schadstoffen ihren Höhepunkt erreichte. Ergebnisse dieser Untersuchungen finden sich in FÖRSTNER ET AL. (1989), hier exemplarisch dargestellt für die zwei Schadstoffgruppen: polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) und die Gruppe der Schwermetalle (Abbildung 2-11). Außerdem ermöglicht die Auswertung der Sedimentkerne auch die Identifikation der natürlichen Hintergrundkonzentrationen, die für die Definition von Schwellenwerten eine hohe Relevanz haben und für eine erfolgreiche Umsetzung der europäischen Wasserrahmenrichtlinie (EU, 2000) höchste Priorität besitzen.



Abbildung 2-11: Qualitative Verteilung ausgewählter Schadstoffgruppen in Sedimentkernen in Bezug zum historischen Aufkommen (verändert nach FÖRSTNER (1989))

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei Schadstoffgruppen (PAKs und Schwermetalle am Beispiel Kupfer) betrachtet und die Sediment- und Schwebstoffproben dahingehend analysiert. Dabei wurden zum einen die natürlichen Belastungen der Sedimente hinsichtlich der ausgesuchten Schadstoffkonzentrationen analysiert. Zum anderen wurden vor den eigentlichen hydrotoxikologischen Experimenten Schadstoffe dem Sediment zugegeben (*Dotierung*), so dass eine bekannte Schadstoffkonzentration vorlag, deren Änderung im Verlauf des Experiments untersucht werden konnte. Neben der chemischen Analyse der Sedimente und Schwebstoffe ist den Erosionsversuchen in dieser Studie auch eine umfangreiche Biomarkeranalyse nach Tierexposition angeschlossen.

Nachfolgend werden nur die beiden für die Arbeit interessierenden Schadstoffgruppen und ihre variierende Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit im aquatischen Ökosystem übersichtlich dargestellt.

## 2.3.2 Schwermetalle am Beispiel Kupfer

Schwermetalle umfassen eine Gruppe Metalle, die bestimmte vergleichbare Eigenschaften aufweisen. Die Zusammenstellung nach DUFFUS (2002) zeigt, dass je nach herangezogener Literaturquelle diese Eigenschaften wie Dichte, Atomgewicht oder Ordnungszahl stark schwanken und sich folglich unterschiedliche Schwermetallgruppen bilden lassen. In dieser Arbeit wird die Definition nach FENT (2007) verwendet, so dass sich damit eine eindeutige Schwermetallgruppe identifizieren lässt.

Definition 5 für den Begriff der Schwermetalle

Schwermetalle sind Metalle mit einer Dichte von  $\varrho > 6,0$  g/cm<sup>3</sup> (FENT, 2007).

Schwermetalle kommen in Fließgewässern in unterschiedlichen Formen vor. Dabei binden diese häufig an Eisen- und Manganoxide, Tonpartikel sowie organisches Material an (FLEMMING & TREVORS, 1989; CANTWELL ET AL., 2008). Die Zusammensetzung des Sediment ist daher ent-scheidend für die tatsächliche Toxizität bei gleicher Schadstoffkonzentration im Betrachtungsraum (DI TORO ET AL., 1990). Die absolute Adsorption der freien Metallionen an organische und anorganische Teilchen reguliert die verfügbare Konzentration im Betrachtungsraum, so dass es bei der Sedimentation zu einer deutlichen Reduzierung des Kupfers aus der Wassersäule kommt. Dabei kann von einer negativen Korrelation der Kupferkonzentration mit der anwesenden Größe der Sedimentpartikel gesprochen werden (KÖCK, 1996).

FAIRBROTHER ET AL. (2007) geben fünf Aspekte an, die bei der Betrachtung von Schwermetallen berücksichtigt werden sollten: (1) Schwermetalle kommen natürlich in der Umwelt vor, (2) sie werden gemischt oder als Mischungen eingetragen, (3) sie können essentielle Schwermetalle für Organismen sein, (4) Verbleib und Transport werden durch Umweltbedingungen beeinflusst, (5) je nach Speziierung ändert sich die Toxizität der Schwermetalle.

Liegt Kupfer in gelöster Form vor, können sich unterschiedliche Erscheinungsformen, sogenannten Spezies, bilden. Die Erscheinungsform ist ein entscheidender Faktor bei der Bestimmung der Toxizität. Die Speziierung (Erscheinungsform) beschreibt die unterschiedlichen Bindungsformen, die ein Übergangsmetall eingehen kann. Die Speziierung reicht von gelösten Formen, Festkörperbindungen über Komplexierung mit Liganden bis hin zu Spezies mit verschiedenen Redoxzuständen (HÖLL & NIESSNER, 2010). Die Speziierung wird dabei beeinflusst von den herrschenden Umweltbedingungen wie pH-Wert, Korngrößenverteilung, Wassergehalt, Redoxpotential, organischer Anteil und weitere (FAIRBROTHER ET AL., 2007). Diese gegenseitigen Wechselwirkungen machen deutlich, dass für jeden Betrachtungsraum eine individuelle Betrachtung der Schwermetallsituation und die resultierende Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit durchgeführt werden muss (PIZZOL ET AL., 2001).

Kupfer ist für biologische Systeme in gelöster Form verfügbar. Es gehört zu den lebensnotwendigen Schwermetallen, zeigt jedoch in erhöhten Konzentrationen toxische Auswirkungen bis zu letalen Effekten. So zeigen FLEMMING & TREVORS (1989) in ihrer Zusammenstellung eine Studie von HUDSON ET AL. (1979), bei der es bei Salmoniden bereits ab 5  $\mu$ g/l zu subletalen Effekten (Störungen im Bereich Wachstum, Verhalten und Reproduktion) kommt und sich letale Effekte bei Konzentrationen zwischen 30-6000  $\mu$ g/l nachweisen lassen. Der hohe Schwankungsbereich zeigt eine hohe Variabilität der Ökotoxizität in Abhängigkeit der Umweltbedingungen. So lässt sich jedoch ableiten, dass nicht die Gesamtmetallkonzentration von Bedeutung ist, sondern die gelösten und freien Metallionen, die für aquatische Organismen daher die höchste Toxizität darstellen (KÖCK, 1996).

Die Erscheinungsform und die damit verbundene Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit von Kupfer kann im aquatischen System stark schwanken und ist dabei direkt abhängig von pH-Wert, Redoxpotential, Wasserhärte, Sedimenttyp und organischem Anteil (FLEMMING & TREVORS (1989), vgl. Kapitel 2.4). HOWARTH & SPRAGUE (1978) konnten in ihren Untersuchungen zeigen, dass Cu<sup>2+</sup> und [CuOH]<sup>+</sup> die hauptsächlich toxischen Spezies darstellen. Wobei Untersuchungen gezeigt haben, dass von Cu<sup>2+</sup> die größte toxische Wirkung ausgeht. Die Wasserqualität beeinflusst dabei nachhaltig die Toxizität und die Erscheinungsform des Kupfers im Betrachtungsraum. Grundsätzlich kann der Zusammenhang hergestellt werden, dass die Toxizität des Kupfers bei niedrigen pH-Bedingungen sinkt, wenn die Wasserhärte ebenfalls reduziert ist (WAIWOOD & BEAMISH, 1978). Daraus lässt sich ableiten, dass die Kupfertoxizität mit der Wasserhärte negativ korreliert (KÖCK, 1996). Weiterhin gilt, dass die Komplexierung des Kupfers mit dem pH-Wert positiv korreliert (Abbildung 2-12). Neben den beeinflussenden physikalisch-chemischen Parametern im Betrachtungsraum spielen aber auch die aquatischen Organismen und deren physische Konstitution eine entscheiden Rolle bei der Beurteilung der Toxizität (KÖCK, 1996).



Abbildung 2-12: Speziierung von Kupfer in Abhängigkeit des vorherrschenden pH-Werts

Neben dem Verdünnungsprozess im Betrachtungsraum nehmen auch die Bindungsformen eine entscheidende Rolle bei der Änderung der Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit in Folge von pH-Schwankungen ein. Dabei verhält sich die Absorptionsrate der vorliegenden Kupferkonzentration von beispielsweise Kupfer an Ton- und organische Partikel direkt proportional zum pH-Wert und erreicht das Maximum bei pH 7,0 (FLEMMING & TREVORS, 1989). Dabei bestimmen der pH-Wert und das Redoxpotential Eh-Wert in welcher Form vorliegendes Kupfer gebunden wird und somit auch die Mobilität und die damit einhergehende Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit (vgl. Kapitel 2.3.2 und 2.3.4). In der Regel gilt, dass die Mobilität mit abnehmendem pH-Wert steigt (CALMANO & FÖRSTNER, 1993). So zeigten FLEMMING & TREVORS (1989) in ihren Versuchen, dass bei einem pH-Wert von kleiner pH 6,0 die höchste Mobilität erreicht werden konnte. Jedoch zeigten CALMANO ET AL. (1993), dass selbst bei einem pH-Wert von 2,5 nur 30 % des eingelagerten Kupfers gelöst werden konnte, wenn ein hoher organischer Anteil vorliegt, da mit diesen Partikeln die stabilste Bindungsform aufgebaut werden kann.

In der europäischen Wasserrahmenrichtlinie (EU, 2000) wurde daher für die nationale Umsetzung ein maximaler Grenzwert von 160 mg/kg Kupfer in der Schwebstofffracht festgelegt (UBA, 2012), der zur Zielerreichung nicht überschritten werden sollte. Studien des Umweltbundesamtes zeigen einen Rückgang des Kupfereintrags in deutsche Gewässer besonders im Bereich der Industrieeinleiter und kommunaler Kläranlagen (Abbildung 2-13). Da der Eintrag der Schwermetalle häufig aus diffusen Quellen stammt (Abbildung 2-14), bleibt es auch nach der Definition von Grenzwerten notwendig, Verbleib, Transport und Wirkung in Gewässersystemen zu untersuchen, um ein Überschreiten der Grenzwerte zu erkennen und zu verhindern.



Abbildung 2-13: Kupfereintrag in Gewässer in Abhängigkeit von Jahren und Ursprung (UBA, 2010)



Abbildung 2-14: Natürliche und anthropogene Quellen für Schwermetallbelastung in aquatischen Lebensräumen (verändert nach FOSTER & CHARLESWORTH (1996))

Bei der Angabe der Belastungskonzentration in einem Betrachtungsraum ist es wichtig, darauf zu achten, welche Konzentrationen angegeben werden. So ergibt sich ein erheblicher Unterschied, ob nur die gelösten Anteile betrachtet werden oder eine Gesamtkonzentration angegeben wird. Die Angabe der gelösten Konzentration in der Wasserphase fasst dabei die unterschiedlichen Speziierungen des Metalls zusammen (FENT, 2007). Besonders im Hinblick auf die bioverfügbare Konzentration ist die Bestimmung einzelner Konzentrationen (gelöst, gebunden und gesamt) von Vorteil und notwendig, da insbesondere die gelösten Spezies des Kupfers für die Toxizität der Schwermetalle verantwortlich sind.

## 2.3.3 Organische Schadstoffe am Beispiel polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK)

Aromatische Kohlenwasserstoffe sind ringförmig aufgebaute, planare, aromatische Verbindungen. Dabei stellt Benzol  $C_6H_6$ , das aus einem einzigen Ring besteht, die einfachste aromatische Verbindung dar. Der einzelne Ring baut sich auf aus sechs Kohlenstoff-Atomen, die alle den gleichen Bindungswinkel von 120° aufweisen (Abbildung 2-15). Alle aromatischen Kohlenwasserstoffe, die mindestens zwei Ringe aufweisen werden als polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) bezeichnet.



Abbildung 2-15: Struktur des Benzol-Rings (MORTIMER, 2010)

Der Eintrag von PAKs in die Umwelt erfolgt durch natürliche (z. B. biogeochemische Umwandlung, Waldbrände etc.) und anthropogene Prozesse (z. B. unvollständige Verbrennung fossiler Energieträger). Diffuse Quellen stellen somit die Hauptemittenten für eine PAK-Belastung aquatischer Lebensräume dar. PAKs können auf drei Wegen entstehen. Zum einen bei der thermischen Zersetzung (Pyrolyse) organischer Materialien unter hohen Temperaturen von ca. 700°C, zum anderen bei Verbrennungsvorgängen mit geringer Temperatur (ca. 150°C) und durch direkte Biosynthese durch Mikroorganismen und Pflanzen (TUVIKENE, 1995). Aufgrund der Entstehungsprozesse gelangen PAKs hauptsächlich über atmosphärische Deposition in unsere Gewässer. Weitere hauptsächliche Herkunftsquellen führen den Gewässern die PAKs indirekt zu wie beispielsweise der Oberflächenabfluss urbaner Flächen, Kläranlagen und Erosion (Abbildung 2-16).



Abbildung 2-16: Relative Verteilung der Eintragspfade für PAKs in Gewässer (GÖTZ ET AL., 2009)

Die Gruppe der PAKs beinhaltet eine Vielzahl einzelner Substanzen, die als persistente Schadstoffe zu klassifizieren sind (DOUBEN, 2003) und aufgrund ihrer Kanzerogenität zu den relevanten Umweltschadstoffen zählen (TUVIKENE, 1995). Persistente Schadstoffe weisen eine hohe Langlebigkeit auf und stehen somit dem betrachteten Ökosystem lange zu Verfügung (FENT, 2007). Die toxische Wirkung der PAKs entsteht häufig erst durch die Stoffwechselprozesse im Organismus. Bei der stofflichen Umwandlung der aufgenommenen PAKs, die in ihrer Ausgangsform nicht toxisch sind, kommt es durch Einführung funktioneller Gruppen (z. B. OH-Gruppen) zu einer Bioaktivierung, so dass aus den aufgenommenen Xenobiotika durch Stoffwechselprozesse ein toxisches Produkt (Metabolit) entsteht (vgl. Kapitel 2.5.2). Die umgewandelten Produkte der PAKs können kanzerogene und mutagene Charakteristika aufweisen (LATIMER & ZHENG, 2003).

Die genannten stofflichen Eigenschaften führen zu einer starken Verbreitung in der Umwelt (Luft, Staub, Sedimente). Im Gegensatz zu einer Vielzahl anderer persistenter Schadstoffe werden PAKs jedoch durch den Metabolismus aquatischer Mikroorganismen abgebaut, so dass sich das Vorkommen reduziert. Die Belastung der Gewässer und der Sedimente resultiert aus der Deposition der belasteten Partikel. Aufgrund der hohen Lipophilie liegen PAKs hauptsächlich in gebundener Form an organischen Bestandteilen der Sediment- und Schwebstofffraktion vor. Daraus folgt, dass bei PAK-belastetem Sediment das überstehende Wasser meist eine geringe Belastung aufweist (BURGESS ET AL., 2003). Die starke Bindung der PAKs an organische Bestandteile hat weiterhin zur Folge, dass sie eine geringe Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit in abgelagerten Sedimentschichten aufweisen (NEFF ET AL., 2005).

Die Umweltbehörde der Vereinigten Staaten von Amerika EPA (Environmental Protection Agency) und die Weltgesundheitsorganisation WHO haben unter der Vielzahl der vorkommenden PAKs, 16 als prioritäre Schadstoffe klassifiziert (Abbildung 2-17). Diese Gruppe ist auch in nationalen Gesetzen und Richtlinien in Deutschland verankert und es ist folglich notwendig, Schwellenwerte zu erarbeiten. Von allen aufgelisteten PAKs geht eine ähnliche Gefahr für aquatische Organismen aus, wobei die Kanzerogenität von vier-, fünf- und sechsring-PAK am höchsten ist (TUVIKENE, 1995; BOJES & POPE, 2007).



Abbildung 2-17: Die 16 prioritär eingestuften PAKs nach EPA und WHO (TUVIKENE, 1995)

## 2.3.4 Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit ausgesuchter Schadstoffgruppen

Die Begriffe Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit nehmen eine zentrale Rolle bei der Bewertung des Risikos schadstoffbehafteter Sedimente und deren Erosion ein. Der Begriff Bioverfügbarkeit stammt ursprünglich aus dem Fachgebiet der Pharmakologie (Definition 6). Lange wurde ausschließlich die Bioverfügbarkeit als maßgebliches Kriterium bei der Anwesenheit von Schadstoffen im Betrachtungsraum verwendet. Besonders bei der Übertragung von Laborexperimenten auf natürliche Betrachtungsräume ist zu berücksichtigen, dass die Komplexität der anwesenden Parameter und die daraus resultierenden Prozesse die Aufnahmefähigkeit des interessierenden Schadstoffs ändern und meist erheblich zunehmen. So lassen sich abiotische und biotische Parameter identifizieren, welche die Ökotoxizität beeinflussen. Zu den abiotischen Parametern beispielsweise zählen der pH-Wert, die Ionenstärke des Wassers, Sauerstoffgehalt und Temperatur. Zu den biotischen Parametern können das Lebensstadium, das Alter und die Größe des Testorganismus sowie der Ernährungszustand gezählt werden (FENT, 2007).

Definition 6 für den Begriff der Bioverfügbarkeit

Die Bioverfügbarkeit beschreibt die Aufnahmefähigkeit eines Stoffs, der in wirksamer Form zur Verfügung steht durch einen Organismus.

So lässt sich der Begriff der Bioverfügbarkeit nach PALLER & KNOX (2013) als ein dynamischer Prozess verstehen, der sich in die drei hauptsächlichen Schritte Verfügbarkeit, Substanzaufnahme

und Verstoffwechselungsmöglichkeiten untergliedern lässt. Zur Bewertung der Ökotoxizität reicht es daher nicht aus, ausschließlich auf die Anwesenheit und potentielle Verfügbarkeit eines Schadstoffs einzugehen, sondern auch dessen Zugänglichkeit und Aufnahmewahrscheinlichkeit durch Organismen zu beachten. Daher bietet es sich an, den Begriff der Bioverfügbarkeit durch den der Biozugänglichkeit (Definition 7) zu erweitern (SEMPLE ET AL., 2004).

Definition 7 für den Begriff der Biozugänglichkeit

Die Biozugänglichkeit beschreibt die Anwesenheit eines Stoffs, der in wirksamer Form zur Verfügung steht und aufgenommen werden kann, im Bewegungsraum eines Organismus.

Die Bioverfügbarkeit von Kupfer steigt, je mehr Schadstoffpartikel aus der festen Phase gelöst werden und in der Wasserphase transportiert werden (CANTWELL ET AL., 2002). Die Sedimentzusammensetzung und der Erosionswiderstand der betroffenen Sedimentschicht spielen eine entscheidende Rolle bei der Bestimmung der Bioverfügbarkeit (SIMPSON ET AL., 1998). Die Bioakkumulation der betrachteten Schwermetalle ist abhängig von der Korngrößenverteilung (LUOMA, 1989) und steigt mit zunehmendem Anteil von Ton im Sediment (FÖRSTNER, 1982; HONEYMAN & SANTSCHI, 1988). Weiterhin zeigten ATKINSON ET AL. (2007) in ihren Untersuchungen, dass Schwermetalle bei der Erosion in Folge physikalischer Einwirkungen eher gelöst werden als bei biologischer Einwirkung (Bioturbation). Folglich ist die Verteilung der Belastung im Einzugsgebiet abhängig von Sedimenttransportprozessen, die räumlich und saisonal schwanken. So folgern auch FOSTER & CHARLESWORTH (1996), dass die folgenden Parameter Verbleib und Transport der Schwermetallbelastung maßgeblich beeinflussen: Korngrößenverteilung, Mischungsprozesse mit unbelasteten Sedimenten und Deposition in Überflutungsflächen, Seen und Ästuaren.

Neben den mechanischen und physikalischen Einwirkungen, die zu einer Resuspension der belasteten Sedimente führen, sind aber auch die damit einhergehenden Änderungen der Umweltbedingungen verantwortlich für die Freisetzung der Schadstoffpartikel und infolgedessen einer Zunahme der Bioverfügbarkeit. Eine Vielzahl von Untersuchungen haben gezeigt, dass besonders Änderungen des pH-Werts und des Redoxpotentials (vgl. Kapitel 2.4.2) die Bindungsstärke zwischen Schadstoff und Partikel bestimmen (FÖRSTNER ET AL., 1989; MEADOR, 1991). Weiterhin beeinflusst die Oxidation des Sediments im Rahmen der Erosion das Bindungsverhalten maßgeblich und muss bei der Beurteilung der Bioverfügbarkeit zum Beispiel durch die Erfassung des Redoxpotentials berücksichtigt werden (CALMANO ET AL., 1993).

Um die Freisetzung von PAKs zu bestimmen, werden wie auch bei den Schwermetallen die Wasserphase, erodierte Partikel und die bestehende Sohle analysiert (LATIMER ET AL., 1999). Ebenfalls ist die Freisetzung abhängig von den Erosionseigenschaften des Sediments und somit auch von der Sedimentzusammensetzung und dem Konsolidierungsgrad (LAVELLE & DAVIS, 1987). Die Anhaftung der PAK an hauptsächlich organische Bestandteile führt zu einer Abnahme der Bioverfügbarkeit mit steigendem Anteil der organischen Fraktion.

# 2.4 Beschreibung der ausgewählten physikalisch-chemischen Parameter

## 2.4.1 Übersicht umweltrelevanter physikalisch-chemischer Parameter

Die Umweltbedingungen sind eine weitere relevante Parametergruppe, um die Freisetzung und damit einhergehende mögliche Zunahme der Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit partikelgebundener Schadstoffe zu verstehen und den hiermit verbundenen Risiken entgegen zu wirken. Weiterhin können die Umweltbedingungen den Erosions- und Transportprozess sowie partikuläre Interaktionen kohäsiver Sedimente beeinflussen. Die durchgeführte Studie konzentriert sich auf die Messung von: pH-Wert, Redoxpotential, gelöstem Sauerstoff, elektrischer Leitfähigkeit (EL), Wasserhärte und Wassertemperatur. Weiterhin erfolgt eine Ermittlung der Wasserhärte anhand der zeitlich diskret gewonnenen Schwebstoff-Wasser-Proben. Nachfolgend werden die Parameter definiert und deren Bedeutung und Auswirkungen für den schadstoffbehafteten Sedimenttransport vorgestellt und erläutert.

## 2.4.2 pH-Wert und Redoxpotential

Aufgrund der starken wechselseitigen Beeinflussung von pH-Wert und Redoxpotential wird eine gemeinsame Beschreibung der Auswirkungen auf Sedimentstabilität und -verhalten sowie dessen Auswirkungen auf das Schadstoffverhalten vorgenommen. Dabei findet sich für den pH-Wert die klassische Definition:

Definition 8 für den pH-Wert

Der pH-Wert ist der negative dekadische Logarithmus der  $H_3O+$ -Ionenkonzentration in wässriger Lösung. Daher wird eine hohe  $H_3O+$ -Konzentration (niedrige OH<sup>-</sup>-Ionenkonzentration) durch einen niedrigen pH-Wert ausgedrückt und man spricht von einer sauren Lösung. Bei einer niedrigen  $H_3O+$ -Konzentration (hohe OH<sup>-</sup>-Ionenkonzentration) ergibt sich ein hoher pH-Wert, entsprechend handelt es sich um eine basische Lösung (MORTIMER, 2010).

Auf den Oberflächen kohäsiver Partikel finden sich Ladungen, die in Abhängigkeit des pH-Werts unterschiedlich stark ausgebildet sind (vgl. Abbildung 2-4 in Kapitel 2.2.2) und über die kohäsiven Eigenschaften der Partikel entscheiden. Änderungen des pH-Werts hin zu basischen Verhältnissen führen zu einer Abnahme der Oxonium-Ionen als protonierte Wassermoleküle H<sub>3</sub>O<sup>+</sup> (RAUDKIVI, 1990; STUMM, 1992). Dieser Prozess hat eine abnehmende Ladungsintensität zur Folge, so dass die Kohäsion der Partikel untereinander steigt und Flockungsprozesse möglich werden. Dabei können negative Oberflächenladungen der Partikel im Betrachtungsraum entstehen (Abbildung 2-18). Ein gegensätzliches Verhalten ist zu beobachten, wenn das System sauer wird und der pH-Wert unter 7,0 fällt. Dann kommt es zu einer Zunahme der H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>-Teilchen mit einer folglich hohen OH-Konzentration, die dazu führt, dass die Kohäsion sinkt und zuvor zusammengeschlossene Aggregate und Flocken wieder zerfallen und sich auflösen können. Die sinkende Kohäsion zeigt sich auch in positiven Oberflächenladungen (Abbildung 2-18).



Abbildung 2-18: Verlauf der Oberflächenladung im Verhältnis zum pH-Wert verschiedener Minerale (STUMM, 1992)

Durch die Ladungen bilden Partikel nicht nur untereinander Aggregate, sondern können auch Schadstoffe an sich binden und die verfügbare Schadstoffkonzentration im Betrachtungsraum temporär senken. Mit der Änderung der Ladungszustände ändert sich die Bindungskraft der einzelnen Partikel untereinander und gebundene Schadstoffe können sich wieder lösen und in die Wassersäule gelangen, wodurch die Bioverfügbarkeit und die Biozugänglichkeit der Schadstoffe steigen kann (CAMPBELL & STOKES, 1985).

Insbesondere pH-Werte geringer als pH 6,0 können eine erhöhte Freisetzung von Schwermetallen zur Folge haben (ATKINSON ET AL., 2007). Dieses Verhalten wurde bei Sedimenten, die mit Schwermetallen belastet sind, von verschiedenen Autoren beobachtet und messtechnisch erfasst (CAMPBELL & STOKES, 1985; SALOMONS ET AL., 1987; CALMANO ET AL., 1993; ZOUMIS ET AL., 2001; CANTWELL ET AL., 2002). Dabei muss bei natürlichen Betrachtungsräumen davon ausgegangen werden, dass lokale Bereiche mit deutlich abgesenkten pH-Werten zwischen 5,5 und 6,0 durch Strömungseinflüsse verdünnt werden. Dieser Verdünnungsprozess hat eine Reduzierung der schädlichen Wirkung für die aquatischen Organismen zur Folge und kann aufgrund begrenzter Wasservolumina bei Laborexperimenten nicht beobachtet werden (ATKINSON ET AL., 2007).

Neben dem pH-Wert sollte unbedingt das Redoxpotential Eh-Wert bei Experimenten zur Bewertung schadstoffbehafteter Sedimente berücksichtigt werden. Diese Messgröße hilft, Aussagen über Oxidations- und Reduktionsprozesse in Folge von Sauerstoffzufuhr bzw. -entzug zu formulieren. Die oxidativen Bedingungen ändern sich im Sedimentbett durch Ablagerung (meist Sauerstoffentzug in den tiefen Sedimentschichten) oder Erosion (meist Sauerstoffzufuhr). Dabei beschreiben hohe bzw. positive Redoxpotentiale überwiegend oxidierende Prozesse; im Gegensatz dazu beschreiben negative Redoxpotentiale vorwiegend reduzierender Verhältnisse. Das Redoxpotential gibt die Stärke der Oxidations- und Reduktionsreaktionen innerhalb der Messlösung (hier: Wasser-Sediment-Gemisch) an (KOSCHKE ET AL., 2009). Die Redoxreaktion ist eine chemische Reaktion bei der zwei Stoffe Elektronen austauschen. Dabei laufen die Halbreaktionen Oxidation und Reduktion gleichzeitig ab. Als Maß für den Elektronenaustausch wird das elektrische Potential in Millivolt [mV] angegeben (MORTIMER, 2010).

Bei der Oxidation kommt es durch den Entzug von Elektronen zu einer Erhöhung der Oxidationszahl. Das oxidierende Molekül selbst wird bei diesem Prozess reduziert. Gegensätzlich lässt sich der Prozess der Reduktion beschreiben. Hier werden Elektronen zugeführt, wodurch sich die Oxidationszahl verringert und das Molekül oxidiert wird. Weder eine Oxidation noch eine Reduktion können für sich alleine auftreten (MORTIMER, 2010). Das Redoxpotential ist abhängig von der Temperatur, dem pH-Wert und dem herrschenden Druck. Die Änderung des Redoxpotentials beeinflusst in natürlichen Systemen die Verteilung und Stabilität der vorkommenden Partikel (KÖLLING, 2000). Der pH-Wert ändert sich mit den Redoxreaktionen, wenn aufgrund von Erosion des betrachteten Sedimentbetts eine Sauerstoffanreicherung der Partikel stattfindet. Der Einfluss des Drucks wird vernachlässigt, da alle Experimente unter Freispiegelbedingungen und atmosphärischen Druckverhältnissen stattfinden.

In natürlichen Gewässern befinden sich eine Vielzahl unterschiedlicher Oxidations- und Reduktionsmittel. Bei der Messung des Redoxpotentials spricht man daher in diesem Fall von einem gemischten Redoxpotential, was von der stärksten Reaktion maßgeblich beeinflusst wird (SCHURING, 2000). So führt die Oxidierung resuspendierter anoxisch gelagerter Sedimente zu einer positiven Änderung des Redoxpotentials (EGGLETON & THOMAS, 2004). Unter anoxischen Bedingungen werden Schwermetalle gut gebunden und die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit ist gering (FÖRSTNER ET AL., 1989; CALMANO ET AL., 1992). Mit der Oxidation von anoxisch gelagerten Sedimenten ändert sich das Bindungsverhältnis zwischen Partikel und Schwermetall und es kann zu einer Freisetzung von Schwermetallen kommen, wodurch die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit steigt (CALMANO ET AL., 1993).

Anhand eigener Untersuchungen zeigen CALMANO ET AL. (1992), dass sich zuvor anoxisch gelagerte Sedimente durch den mit der Resuspension eingetragenen Sauerstoff verändern. Mit der Oxidation des Sediments steigt die mikrobielle Aktivität, das Redoxpotential steigt vom negativen in den positiven Bereich (bis +500 mV möglich) und der pH-Wert im Sediment sinkt (vgl. Abbildung 2-19). Die Anhebung des Redoxpotentials und die Reduzierung des pH-Werts resultierend aus einer Resuspension haben eine Freisetzung der sedimentgebundenen Schadstoffe zur Folge (CALMANO ET AL., 1993; EGGLETON & THOMAS, 2004).



Abbildung 2-19: Entwicklung des pH-Werts und des Redoxpotentials während einer Resuspension (verändert nach CALMANO ET AL. (1993)) und im Rahmen der in dieser Arbeit vorgestellten Experimente (Bsp. Experiment B5)

### 2.4.3 Elektrische Leitfähigkeit und Wasserhärte

Im Gegensatz zur permanenten Ladung der kohäsiven Partikel ändert sich die variable Ladung der Partikel mit der elektrischen Leitfähigkeit (EL, Definition 10). Es gilt daher, dass mit steigender EL die Stärke der variablen Ladung zunimmt, wodurch auch die elektrische Anziehungskraft der Partikel (inkl. Schadstoffe) untereinander wächst (HILLEBRAND, 2008). Die EL gewinnt an Einfluss, je kleiner die Partikel der betrachteten Sedimentprobe sind. Denn es gilt, dass je kleiner die Partikel sind, desto größer ist die Partikeloberfläche und die damit einhergehende Ladungsänderung (RAUDKIVI & HUTCHINSON, 1974). Folglich kann angenommen werden, dass sich die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit von Schadstoffen und der Transport belasteter Sedimente mit der EL ändert.

Definition 10 für die elektrische Leitfähigkeit

Die elektrische Leitfähigkeit (EL) gibt die Fähigkeit eines Stoffes an, elektrischen Strom zu leiten. Sie wird in der SI-Einheit [S/m] angegeben. Die Leitfähigkeit ist abhängig von der Anwesenheit sämtlicher gelöster freier Ionen und steigt bei zunehmender Konzentration im Wasser.

Bereits geringe Änderungen der EL sind ausreichend, um dispergierte Partikel koagulieren zu lassen (HAYTER & MEHTA, 1986). Daher ist mit zunehmendem Salzgehalt ein zunehmender Erosionswiderstand festzustellen (GULARTE ET AL., 1980). Dieses Verhalten bestätigt die Theorie der stärker werdenden Doppelschicht, die mit zunehmendem Salzgehalt an Intensität zunimmt und somit die interpartikulären Kräfte anwachsen lässt (vgl. Abbildung 2-4 in Kapitel 2.2.2). Hinzukommend muss bei der Bestimmung der EL die Temperatur beachtet werden, da bei steigenden Temperaturen mehr Stoffe im Wasser gelöst werden und somit die EL ansteigt. Dieser Effekt lässt sich daher eher im unteren EL-Bereich beobachten, so dass hier bei Laborexperimenten Temperaturschwankungen vermieden werden sollten (RAUDKIVI & HUTCHINSON, 1974). Die Auswirkungen der EL rücken in den Fokus, wenn Sedimente unter marinen Umweltbedingungen untersucht werden. Jedoch zeigten ATKINSON ET AL. (2007), dass der Verdünnungseffekt durch Süßwassereintrag zu vernachlässigen ist und keine Änderung der Schadstofffreisetzung quantitativ erfasst werden konnte. FÖRSTNER (1989) beschreibt die Effekte infolge Änderung des Salzgehaltes als weniger bedeutend im Gegensatz zu den beschriebenen Auswirkungen infolge der Versauerung eines Betrachtungsraums.

Als weiteres Maß zur Messung ausgewählter gelöster Ionen, kann die Gesamtwasserhärte bestimmt werden. Sie berücksichtigt die Gesamtheit der gelösten zweiwertigen Erdalkalielemente in der Wasserprobe. Eine direkte Beziehung zwischen der Gesamtwasserhärte und der EL ist nicht möglich, da die zugrunde liegenden Ausgangsstoffe nicht übereinstimmen. Eine steigende Wasserhärte, gemessen in [mg CaO/l], hat eine steigende Anzahl freier zweiwertiger Ionen in der Wasserphase zur Folge. Jedoch kann die einseitige Aussage getroffen werden, dass bei einer ansteigenden Wasserhärte auch die EL ansteigt. Eine ansteigende EL muss daher nicht zwangsläufig einen Anstieg der Wasserhärte zur Folge haben. Untersuchungen von HOWARTH & SPRAGUE (1978) konnten zeigen, dass bei zunehmender Wasserhärte die Toxizität bei vorliegender Kupferbelastung zunimmt. In weiterführenden Untersuchungen bestätigten WAIWOOD & BEAMISH (1978), dass die Toxizität von Kupfer bei niedriger Wasserhärte geringer ausfällt und sich dieser Effekt bei hohen pH-Bedingungen verstärkt.

## 2.4.4 Gelöster Sauerstoffgehalt

Bisher lassen sich keine ausreichenden Aussagen über die Auswirkungen des Sauerstoffgehalts auf die Interaktionen zwischen Sediment und Schadstoff treffen. Es gibt nur wenige durchgeführte experimentelle Studien die einen Zusammenhang zwischen Schwermetallfreisetzung und gelöstem Sauerstoffgehalt (DO, dissolved oxygen) untersucht haben. ATKINSON ET AL. (2007) variierten den gelösten Sauerstoffgehalt bei einem konstanten pH-Wert von pH 8 sowie konstanten Salinitätsbedingungen und quantifizierten die Freisetzung von Schwermetallen (Cd, Cu, Pb, Zn, Fe und Mn) in die Wasserphase. Die Ergebnisse für Kupfer zeigten eine erhöhte Freisetzung bei geringen (3 mg/l) bis mittleren (6 mg/l) Sauerstoffgehalten und eine deutliche Reduzierung der Freisetzung bei Sauerstoffgehalten um 8 mg/l. Grundsätzlich gilt, dass Schadstoffe, die unter oxischen Sedimentbedingungen gelagert sind, leichter freigesetzt werden können als solche, die unter anoxischen Bedingungen gelagert sind (SALOMONS ET AL., 1987). FÖRSTNER ET AL. (1989) zeigten in ihren Untersuchungen gleiche Effekte und bestätigen damit die Aussage, dass es unter anoxischen Bedingungen zu nahezu keiner Freisetzung von Schwermetallen kommt und somit die ökotoxikologischen Risiken gering sind.

Es ist jedoch bekannt, dass mit der Resuspension belasteter kohäsiver Sedimente der Sauerstoffgehalt im Wasser infolge von Oxidationsprozessen, der Freisetzung von Nährstoffen und dem Wachstum von Organismen sinkt (siehe Redoxpotential). Im Rahmen des hier vorgestellten Projekts wird der Sauerstoffgehalt als Index für die Wassergüteparameter, die die Testorganismen als lebensnotwendige Bedingung fordern, gemessen. Forderungen der OECD-Richtlinie 305 (OECD, 2012) besagen, dass bei Tierexposition ein Sauerstoffgehalt von mindestens 60 % der Sättigung nicht unterschritten werden darf.

## 2.4.5 Wassertemperatur

Die Temperatur beeinflusst die Bindungskräfte durch ihre Auswirkungen auf die molekularen Bewegungen der einzelnen Partikel. Weiterhin hat eine ansteigende Temperatur Einfluss auf physiologische Aktivitäten, biochemische Reaktionen und molekulare Bewegungen sowie Membranaustauschprozesse (OZOH, 1992). Dabei nimmt mit steigender Temperatur die Kohäsion ab, weil die Eigenbewegungen der Partikel steigen und sich die Viskosität der Sedimentschicht reduziert (RAUDKIVI & HUTCHINSON, 1974; GULARTE ET AL., 1980). Dies hat Auswirkungen auf die Schadstofffreisetzung und den Erosionswiderstand (ARIATHURAI & ARULANANDAN, 1978). Für den Bereich der natürlichen Temperaturschwankungen gilt nach aktuellem Wissensstand, dass Keine maßgeblichen Änderungen des Transportverhaltens zu erwarten sind (KRIER, 1983; PAR-CHURE & MEHTA, 1985; SPORK, 1997). Untersuchungen von RAUDKIVI & HUTCHINSON (1974) zeigten, dass sich eine temperaturabhängige Änderung der Erosionsraten ergibt, wenn die EL zunimmt. Da in dem hier gezeigtem Projekt Trinkwasser aus dem kommunalen Versorgungsnetz zum Einsatz kommt, ist es wichtig, die Temperatur in den durchgeführten Experimenten konstant zu halten. Jedoch ist der Einfluss der Temperatur als nachrangig einzustufen im Vergleich zu den starken Einflüssen aus pH-Anderung oder Kornzusammensetzung und Kornverteilung im Betrachtungsraum.

Eine Temperaturerhöhung hat zur Folge, dass die Reaktionsgeschwindigkeiten schneller ablaufen. Allerdings ist diese gesteigerte Geschwindigkeit nicht in jedem Fall direkt proportional zu einer steigenden Toxizität. Denn auch weitere Parameter wie zum Beispiel die Salinität haben einen entscheidenden Einfluss auf die Änderung der Toxizität für aquatische Organismen (OZ-OH, 1992). BAT ET AL. (2000) zeigten in ihren Untersuchungen im Frischwasserregime, dass eine Temperaturerhöhung eine Zunahme der akuten Toxizität von Schwermetallen zur Folge hat.

# 2.5 Beschreibung der ökotoxikologischer Parameter

### 2.5.1 Allgemeine Einführung in das Fachgebiet Ökotoxikologie

Zur umfassenden Beschreibung der Auswirkungen schadstoffbehafteter Sedimente ist es notwendig neben der Identifizierung des Erosionspotentials der ausgewählten Sedimente und der damit einhergehenden Umlagerung und Freisetzung von Schadstoffen, auch die resultierenden Risiken und Folgen für das Ökosystem besser zu charakterisieren und zu verstehen. Dafür werden etablierte Methoden aus dem Bereich der Ökotoxikologie (Definition 11) vorgestellt und zusammen mit den Methoden des Wasserbauingenieurwesens kombiniert.

Definition 11 für den Begriff der Ökotoxikologie

Die multidisziplinäre Lehre der Auswirkungen und Interaktionen präsenter Chemikalien auf unterschiedlichen biologischen Ebenen, das heißt vom Molekül bis zum Ökosystem. Die Schadwirkungen werden im Zusammenhang mit dem Schicksal der Chemikalien in der belebten Umwelt betrachtet (KÖHLER & TRIEBSKORN, 2004; FENT, 2007).

39

Die Beschreibung der ökotoxikologischen Wirkung erfolgt dabei immer unter Berücksichtigung der physikalisch-chemischen Eigenschaften, der Bioverfügbarkeit sowie der Aktivität und Dosis des Stoffes. Die hohe Variabilität natürlicher Prozesse und deren Folgen machen es notwendig, dass in der Ökotoxikologie immer mehrere Testmethoden zur Beurteilung angewendet werden. Der historische Weg zur ökotoxikologischen Bewertung schadstoffbehafteter Sedimente hat mit der chemischen Analytik und dem reinen Nachweis der Anwesenheit von Schadstoffen in Gewässern und Sedimenten begonnen. Die Messung der anwesenden Schadstoffe im Betrachtungsraum erlaubt dabei jedoch keine Rückschlüsse auf mögliche ökotoxikologische Auswirkungen (KAMMANN ET AL., 2012). Biotests ergänzen heute die Bewertung schadstoffbehafteter Sedimente und zeigen auf unterschiedlichen Ebenen von Mortalität, erbgutverändernden, endokrinen und pathologischen Effekte bis hin zu Populationsänderungen ihre Auswirkungen (HOLLERT ET AL., 2009). Dabei ist es möglich, unterschiedliche Organisationsebenen zu betrachten, die sich in ökologischer Relevanz, Sensitivität und Reaktionsgeschwindigkeit unterscheiden (Abbildung 2-20). Dabei sind strukturelle Änderungen auf der Ebene der Ökosysteme mit der höchsten Relevanz zu belegen. Diese Änderungen können jedoch zu einem viel früheren Zeitpunkt bereits auf der Ebene der Zellen und Organellen identifiziert werden, was in kürzeren Belastungszeiten und reduzierten Reaktionsgeschwindigkeiten resultiert.



Abbildung 2-20: Reaktionen auf Stressoren auf unterschiedlichen ökologischen Ebenen in Bezug zur ökologischen Relevanz (GESTEL & BRUMMELEN, 1996)

Bei der Auswahl der Biotest stehen ebenfalls unterschiedliche Ansätze zur Verfügung. Die klassischen Testverfahren mit Bakterien und Invertebraten sind den reinen Toxizitätstest zu zuordnen. *In-vivo*-Tests mit Vertebraten weisen bei einer hohen Reproduktionsschwierigkeit auch ethische Probleme auf, so dass sich in der letzten Zeit die Entwicklung auf *in-vitro*-Test konzentriert hat. Weiterhin wurden Testverfahren mit Fischeiern und frühen Entwicklungsstadien von Fischen entwickelt. Dabei wurde auch der Sedimentkontakttest systematisch aufgebaut, der keine Trennung mehr von Sediment, Schadstoff und Porenwasser vorsieht, sondern die tatsächliche Bioverfügbarkeit anwesender Schadstoffe wiedergeben kann. Ziel aller verwendeten Testmethoden sollte eine prospektive Bewertung der schadstoffbehafteten Sedimente sein, um Handlungsanweisungen treffen und Risiken und Folgen bewerten zu können (HOLLERT ET AL., 2009). Beispielweise im Bereich der Pestizidanwendung helfen prospektive Methoden, die Pestizidzusammensetzung und die Wirkstoffkonzentration zu minimieren. Zur umfassenden Charakterisierung ist eine Kombination verschiedener Testmethoden notwendig, um die unterschiedlichen Reaktionen, Sensitivitäten und Geschwindigkeiten zu berücksichtigen (KÖHLER & TRIEBSKORN, 2004). Zahlreiche Untersuchungen zeigten in den vergangen Jahrzehnten, dass Fische als Indikatoren für Umweltbelastungen geeignet sind (HOOFTMAN & DE RAAT, 1982). Nach der Exposition gegenüber Schadstoffen können auf tiefen Organisationsebenen (z. B. Zellen, Molekülen) Hinweise auf Toxizität, Überlebenschancen und Mortalitätsraten ausgesuchter Schadstoffe identifiziert werden. Die gewonnen Ergebnisse sollen zukünftig helfen, Risikoabschätzungen für die spezielle Kombination aus Sediment und Schadstoff zu formulieren.

Da die Ergebnisse meist eine natürlich hohe Varianz aufgrund der Verwendung lebender Organismen aufweisen, ist es besonders wichtig, die Messmethoden in fest definierten Biotests zu vereinheitlichen. Nur durch eine einheitliche und konstante Durchführung der Analysemethoden kann eine Vergleichbarkeit der verschiedenen Testergebnisse erreicht werden. Dabei spielen die folgenden Parameter zur Erreichung reproduzierbarer Ergebnisse eine wichtige Rolle: gleiche Genome, Alter der Testorganismen, Ernährungsstadium, standardisierte Test- und Kulturbedingungen. Die Beurteilung von Aufnahme und Schädigung der exponierten Organismen durch bioverfügbare Schadstoffe erfolgt mit Hilfe von Biomarkern (Definition 12). Diese Indikatoren können zum Beispiel Genprodukte sein und sind somit ein Produkt der stressbedingten Reaktion im Organismus (FENT, 2007).

Definition 12 für den Begriff Biomarker

Biomarker sind Indikatoren zur Identifizierung von Schadeffekten auf Ebenen unterhalb des Individuums, die im Organismus oder in seinen Ausscheidungsprodukten gemessen werden. Die Schadeffekte sind Resultate bedingt durch die Anwesenheit und Aufnahme von Xenobiotika im Organismus innerhalb des Betrachtungsraums.

Biomarker können auf unterschiedlichen Ebenen bestimmt werden, wobei mit zunehmender Sensitivität und Reaktionsgeschwindigkeit die ökologische Relevanz im gesamten System sinkt. Neben den Biomarkern, die unterhalb der Organismusebene gemessen werden, können auch Bioindikatoren oder ökologische Indikatoren helfen, die Auswirkungen von Schadstoffen im Betrachtungsraum zu bewerten. Bioindikatoren stellen die Organismusebene dar und helfen damit Umweltbedingungen zu bewerten, beispielsweise hinsichtlich des physiologischen Grades. Eine größere Ebene stellen die ökologischen Indikatoren, die die Auswirkungen auf ein Ökosystem oder eine Population beschreiben, dar. Unabhängig von der Wahl der betrachteten Ebene gilt, dass die resultierenden Effekte immer erst nach der Exposition und der möglichen Schädigung identifiziert werden können und somit nur eine retrospektive Analyse möglich ist (GESTEL & BRUMMELEN, 1996). Bei der praktischen Umsetzung zur Beurteilung und Charakterisierung nativer schadstoffbelasteter Sedimente hat sich gezeigt, dass aufgrund hoher Reaktionsgeschwindigkeiten und Sensitivitäten Zellen und Organellen gut geeignete Biomarker sind (Abbildung 2-21).



Abbildung 2-21: Zeitliche Entwicklung der Schadwirkungen auf unterschiedlichen Organismusebenen unter Angabe des Bereichs der typischen Biomarker

Neben der Entscheidung auf welcher ökologischen Ebene die Exposition der Organismen gegenüber toxischen Substanzen bewertet werden soll, gilt es, verschiedene geeignete Biomarker zu wählen, die zum einen die Exposition im Allgemeinen identifizieren (Expositionsbiomarker) und zum anderen solche, die die Effekte und Folgen für den exponierten Organismus anzeigen und somit eine Bewertung des Schadstoffs erlauben (Effektbiomarker). Die Ergebnisse der Expositionsbiomarker sagen dabei lediglich aus, dass der Organismus gegenüber einer bestimmten Substanz exponiert war und es zu einer Aufnahme der Substanz gekommen ist. Aussagen zu schädigenden Folgen für den Organismus sind mit diesen Biomarkern nicht möglich. Im Gegensatz dazu erlauben Effektbiomarker die Auswertung über den Gesundheitszustand des exponierten Organismus infolge der Aufnahme der Substanz (KÖHLER & TRIEBSKORN, 2004). Für beide Biomarkertypen gilt, dass sie immer die Reaktion auf alle verfügbaren Stressoren (Schadstoffe, pH-Situation, Temperaturverhältnisse, Sauerstoffangebot etc.) während der Exposition anzeigen und nicht singulär auf einen spezifischen Stoff ansprechen. Daher wird versucht im Vorfeld der Exposition Biomarker auszuwählen, die bei dem ausgesuchten Schadstoff ein gewisses gewünschtes Ergebnis anzeigen, so dass eine detaillierte Charakterisierung der Auswirkungen infolge der Exposition möglich ist. Dabei sollten bereits in Voruntersuchungen die Dosis der zu analysierenden Schadstoffe und die erwartete Biomarkerantwort aufeinander abgestimmt werden (Abbildung 2-22). So kann vermieden werden, dass im erwarteten Verlauf einer Sättigungskurve die Konzentrationen nicht zu hoch sind und keine differenzierte Aussage mehr möglich ist, da es beispielweise zum Zellsterben kommt (Sättigungskurve). Ebenfalls ist darauf zu achten, dass Konzentrationen nicht überschritten werden und der Organismus keine weiteren Abwehrmechanismen mehr anwenden kann, so dass die Reaktion rückläufig ist (Optimumskurve). Um Umweltrisikobewertungen (environmental risk assessment, ERA) weiter voranzutreiben und Strategiepläne entwickeln zu können (VAN DER OOST ET AL., 2003), ist es sinnvoll, bereits etablierte Biomarker zu verwenden und verfügbare Datenmengen zu erweitern. Weiterhin helfen etablierte Biomarker, die eigenen erzielten Ergebnisse einzuordnen und somit Fehler oder Besonderheiten schneller zu erkennen.



Abbildung 2-22: Dosis-Wirkungsdiagramm für verschiedene Wirkmechanismen von Biomarkern - links: die beiden prinzipiellen Grundverläufe von Biomarkerantworten bei zunehmender Schadstoffkonzentration; rechts: Schematische Verläufe von Biomarkerantworten bei unterschiedlichen Sensitivitäten (abnehmende Sensitivität von 1 bis 5)

## 2.5.2 Grundlagen zum Stoffwechsel aufgenommener Fremdstoffe

Die Biotransformation (Fremdstoffwechsel) ist einer von mehreren Stoffwechsel-Mechanismen, die in einem Organismus ablaufen. Die beiden hauptsächlich auftretenden Folgen der Biotransformation sind die Detoxifikation und die Bioaktivierung von Schadstoffen. Bei der Detoxifikation werden lipophile Fremdstoffe in wasserlösliche Produkte (Metabolite) umgewandelt, um anschließend über Niere, Urin, Leber und Galle ausgeschieden werden zu können (TUVIKENE, 1995). Bei der Bioaktivierung kommt es im Verlauf der Umwandlungsprozesse zu einer derartigen Änderung des aufgenommen Schadstoffs, dass anschließend negative Auswirkungen (z. B. Kanzerogenität, genotoxische Effekte) für den Organismus zu erwarten sind.

Die Biotransformation kann in zwei Phasen gegliedert werden: die Funktionalisierungsreaktion (Phase I) und die Konjugationsreaktion (Phase II) (Abbildung 2-23). Durch Phase I-Reaktionen werden Fremdstoffe derart umgewandelt, dass sie anschließend entweder wasserlöslich sind oder in einem weiteren Schritt in Phase II zu Konjugaten verändert werden, um ausgeschieden werden zu können. Durch Biotransformation werden die meisten Fremdstoffe entgiftet, jedoch kann bei einigen Stoffen auch eine Bioaktivierung stattfinden, so dass das Metabolit toxischer für den Organismus ist als der zuvor aufgenommene Fremdstoff (z. B. einige PAKs wie Benzo[*a*]pyren). Die metabolisierten Stoffe werden über drei Hauptwege ausgeschieden. Dazu gehören die Gallenflüssigkeit über die Haut, Leber und Galle sowie der Urin über die Niere (TUVIKENE, 1995). Dabei sind konjugierte Metabolite (Produkte nach Phase II) am häufigsten in der Leber zu finden. So zeigten einige Studien eine erhöhte Konzentration an metabolisierten PAKs nach Aktivierung in der Leber (TUVIKENE, 1995).

In der Phase I können Reaktionen der Oxidation, Reduktion und Hydrolyse ablaufen, um funktionelle Gruppen (z. B. OH-Gruppen) an die aufgenommen Fremdstoffe anzufügen (VAN DER OOST ET AL., 2003). Dabei laufen die meisten dieser Reaktionen mit Hilfe von Enzymen in der Leber ab (FENT, 2007). Eine der bedeutendsten Phase I-Reaktionen ist die Oxidation als Folge der PAK-Aufnahme, die durch Cytochrom P450 Monooxygenasen katalysiert wird. Besonders wichtig bei der Umwandlung aromatischer Kohlenwasserstoffe ist das Cytochrom P450 1A -CYP1A (GOKSØYR & FÖRLIN, 1992). In Phase II werden mit Hilfe von Enzymen (z. B. Sulfotransferase, UDP-Glucuronosyltransferase) und zugeführter Energie neue Moleküle gebildet, die eine höhere Wasserlöslichkeit aufweisen (FENT, 2007). Auch in der zweiten Phase kann es zu einer Bioaktivierung bestimmter Stoffe kommen, so dass das umgewandelte Produkt eine höhere toxische Wirkung auf den Organismus hat als die aufgenommene Substanz selbst (HAYES & PULFORD, 1995).



Abbildung 2-23: Biotransformation von aufgenommenen Fremdstoffen in zwei Phasen am Beispiel Pyren (verändert nach FENT (2007))

Für die Bewertung der aufgenommenen Schadstoffe im Rahmen dieser Arbeit werden Biomarker ausgewählt, die Produkte der beiden vorgestellten Phase der Biotransformation darstellen. Die Aktivität der Ethoxyresorufin-O-deethylase (EROD) repräsentiert ein Phase I-Produkt, wohingegen die Aktivität der Glutathion-S-Transferase (GST) einem Prozess der Phase II repräsentiert. Weitere Marker, die im Verlauf des Metabolismus aufgenommener Schadstoffe entstehen können, wurden ebenfalls zur intensiveren Analyse der ausgewählten Schadstoffe betrachtet. Dazu gehört die Bestimmung der PAK-Metabolite in der Galle, die Auswertung der Mikrokernrate als DNA-Folgeschaden der Schadstoffaufnahme und die Lipidperoxidation, die als Indikator für oxidativen Stress im Organismus herangezogen wurde.

### 2.5.3 Ausgewählte Biomarker

## a) Aktivität der Ethoxyresorufin-O-deethylase (EROD)

Die Messung der EROD-Aktivität wird einem Oxidationsprozess der Phase I im Rahmen der Biotransformation zugeordnet. Mit Hilfe der EROD-Aktivität kann die Aktivität der CYP1A- Proteine gezeigt werden, die als Nachweis für die Aufnahme von PAKs und deren Metabolismus verwendet werden, da diese als Aryl-Hydrocarbon-Rezeptor-Agonisten (AhR-Agonisten) wirken (PARKINSON ET AL., 2001, Abbildung 2-24). Die EROD-Aktivitäten sind frühzeitig detektierbar, sowohl *in vivo* als auch *in vitro*, da die Enzymaktivierung schnell abläuft. Folglich ist die EROD-Aktivität als sensitiver Expositionsbiomarker anerkannt. Die Messung dieses Biomarkers erfolgt auf der Organismusebene der Moleküle (KAMMANN ET AL., 2012).



Abbildung 2-24: Mechanismus der CYP1A-Freisetzung nach Exposition gegenüber polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs)

Da diese Enzyme vorwiegend im (glatten) endoplasmatischen Reticulum der Leber vorkommen (FENT, 2007), wird zum Nachweis der EROD-Aktivität Zellgewebe der Leber analysiert. Zur Quantifizierung der EROD-Aktivität wird fluorometrisch das umgewandelte Endprodukt Resorufin gemessen, das sich nach der oxidativen Deethylierung des künstlichen Substrats 7-Ethoxyresorufin ergibt (WÖLZ ET AL., 2008).

Bei einer positiven EROD-Aktivität muss nicht zwangsläufig mit toxischen Stoffwechselprodukten gerechnet werden. Jedoch führen die Effekte zu biochemischer und physiologischer Homöostase, die Auswirkungen auf höheren biologischen Organisationsebenen haben kann. Die Auswirkungen können sehr vielseitig sein und zum Beispiel Effekte auf die Reproduktion haben, oxidativen Stress auslösen, kanzerogene Folgen haben oder zu Mortalität führten (WHYTE ET AL., 2000; SZKLARZ & PAULSEN, 2002). Weitere Folgen der Enzymfreisetzung ist ein gesteigerter Metabolismus, der entweder einer Bioaktivierung der aufgenommen Schadstoffe oder eine effiziente Entgiftung der selbigen zur Folge haben kann. Ein direkter Zusammenhang zwischen der EROD-Aktivität und den toxischen Auswirkungen aufgrund der CYP1A-Freisetzung kann derzeitig nicht nachgewiesen werden (WHYTE ET AL., 2000).

### b) Messung der PAK-Metabolite in der Galle

Biotransformationsprodukte von aufgenommenen PAKs helfen, die Aufnahme dieser Xenobiotika in Organismen nachzuweisen. Da aufgenommene PAKs schnell metabolisiert werden, ist eine direkte Messung der Schadstoffe im Tier nicht aussagekräftig genug (LEE ET AL., 1972). Jedoch bietet sich eine indirekte Möglichkeit zum Nachweis der Schadstoffaufnahme, bei der die in der Gallenblase abgegebenen PAK-Metabolite der Leber quantifiziert werden. Das Ergebnis dieser Analyse hilft, die Aufnahme eines Stoffes zu bestätigen und die Wege im Verlauf der Biotransformation nachzuvollziehen (VAN DER OOST ET AL., 2003). Somit ist diese Methode, die in der Molekülebene angesiedelt ist, als Expositionsbiomarker zu klassifizieren, da Aussagen über ökotoxikologische Auswirkungen und Risiken nicht getroffen werden können (KAMMANN ET AL., 2014).

Die in der Leber gebildeten PAK-Metabolite werden in die Gallenblase abgeben. Daher ist die Güte dieses Biomarkers neben der vorliegenden PAK-Konzentration ebenfalls stark vom Ernährungszustand der Fische abhängig. Die Gallenflüssigkeit wird während der Nahrungsaufnahme in den Darm abgeben, so dass die Konzentration der Metabolite sinkt. In Zeiten ohne Nahrungsangebot verbleibt die Gallenflüssigkeit in der Blase, so dass sich PAK-Metabolite anreichern können (RICHARDSON ET AL., 2004). Um den Ernährungszustand der Tiere einzuschätzen, kann der grüne Farbstoff Biliverdin der Galle bestimmt und zur Einordnung der Ergebnisse verwendet werden. Dabei kann die Aussage getroffen werden, dass je dunkler die Färbung der Gallenflüssigkeit ist, desto länger liegt die letzte Nahrungsaufnahme zurück (MCCORMICK & PODOLIAK, 1984).

Die Quantifizierung der PAK-Metabolite kann als Summenwert aller vorkommenden Metabolite oder als Einzelwert ausgewählter Metabolite angegeben werden. Zur Messung der Konzentration wird ausgenutzt, dass die Stoffe fluoreszieren. Bei der Messung der Einzelmetabolite wird meist das stark fluoreszierende Umwandlungsprodukt 1-Hydroxypyren ausgewählt, da es bis zu 76 % der gesamten PAK-Metabolite in der Galle ausmacht (VAN DER OOST ET AL., 2003; KAMMANN, 2007). Der ursprüngliche Ausgangsstoff Pyren ist ein weit verbreitetes PAK, das in vielen schadstoffbelasteten Sedimenten in hoher Konzentration vorliegt und bei Erosion der belasteten Sedimentschicht eine hohe Bioverfügbarkeit aufweist (RUDDOCK ET AL., 2003; NAGEL ET AL., 2012).

### c) Aktivität der Glutathion-S-Transferase (GST)

Auch Aktivitäten der Phase II im Rahmen der Biotransformation werden durch aufgenommene Fremdstoffe (Xenobiotika) induziert. Die Verwendung der Phase II-Reaktionen als Indikator für die Schadstoffaufnahme ist noch nicht weit verbreitet, so dass ein erhöhter Forschungsbedarf besteht (TUVIKENE, 1995). Bei den Phase II-Reaktionen werden Konjugate an Phase I-Metabolite oder direkt an Fremdstoffe mit polaren, endogenen Liganden angebunden, um die Wasserlöslichkeit zu erhöhen und damit den Ausscheidungsprozess zu fördern. Durch diese Prozesse wird die aufgenommene Substanz weiter detoxifiziert (HAYES & PULFORD, 1995).

Neben der Glucuronidierung bei der durch die membrangebundene UDGP-Glucuronosyltransferase polare wasserlösliche Endprodukte entstehen, ist die Konjugation mittels Glutathion-S-Transferase (GST) mit Glutathionen (GSH) für elektrophile Verbindungen einer der wichtigsten Umwandlungsprozesse (FENT, 2007). GST sind eine multifunktionale Enzymgruppe, die sich hauptsächlich im Zytosol der Leberzellen findet (TUVIKENE, 1995). Die essentielle Aufgabe der GST ist beispielsweise die Regulierung des interzellulären Transports. Weiterhin helfen diese Umwandlungsprozesse beispielsweise beim Abbau oxidativer Schäden (VAN DER OOST ET AL., 2003).

### d) Lipidperoxidation und oxidativer Stress

Neben den Stoffwechselprodukten und deren Enzymaktivität kann es während des Metabolismus von Xenobiotika auch zur übermäßigen Freisetzung von freien Radikalen und reaktiven Sauerstoffspezies (ROS) kommen, die der Organismus durch die Bildung von Antioxidantien nicht mehr abwehren kann (GUTTERIDGE, 1995). Dieser Prozess führt zu zellulären Schäden und wird als Lipidperoxidation bezeichnet, die als Kettenreaktion abläuft, wenn sie nicht durch körpereigene Antioxidantien gestoppt werden kann. Im Verlauf der Lipidperoxidation entziehen freie Radikale Lipiden Elektronen (Oxidationsprozess), so dass Lipid-Radikale entstehen, die den Prozess weiter antreiben. Die daraus folgenden zellulären Schäden werden als oxidativer Stress bezeichnet (VALAVANIDIS ET AL., 2006).

VAN DER OOST ET AL. (2003) geben an, dass durch unterschiedliche Untersuchungen ein positiver Zusammenhang zwischen Schadstoffexposition von Fischen und einem folgenden Anstieg des oxidativen Stresses dargestellt werden kann. Um den oxidativen Stress als Biomarker verwenden zu können, erfolgt die Auswertung hinsichtlich der Enzymaktivität der Antioxidantien im Rahmen der Detoxifizierung. Zu dieser Enzymgruppe gehören Katalase (CAT) und Superoxid-Dismutase (SOD) (VAN DER OOST ET AL., 2003). Zu den nicht enzymatischen Antioxidantien gehört unter anderem Glutathion (GSH). Als Biomarker für oxidativen Stress kann aber auch die Lipidperoxidation selbst quantifiziert werden, indem das Abbauprodukt Malondialdehyd (MDA) analysiert wird. Das Abbauprodukt MDA wird mit Hilfe von Thiobarbitursäure (TBA) sichtbar gemacht, so dass die farbigen Komplexe photometrisch bestimmt werden können. Letzt genanntes Vorgehen wird auch im Rahmen der vorgestellten Methode verwendet und kann der Gruppe der Effektbiomarker zugeordnet werden.

#### e) Induktion von Mikrokernen

Dieser visuell bestimmbare Effektbiomarker beschreibt sehr deutlich die genotoxischen Auswirkungen durch die Aufnahme von Xenobiotika. Mit Hilfe der Zählung von Mikrokernen kann die Intensität von DNA-Schäden durch Chromosomenbrüche bei der Mitose beurteilt werden (Abbildung 2-25). Als Folge dieser Chromosomenbrüche kann es zur Bildung von Mikrokernen in der Tochterzelle des Hauptkerns kommen (SCHMID, 1975). Diese Methode stellt damit einen Endpunkt für Schäden auf chromosaler Ebene dar und ist ein Indikator für chronische genotoxische Schäden, beispielsweise die nachhaltige Schädigung der Reproduktion bis hin zum Aussterben bestimmter Spezies (TERRADAS ET AL., 2010). Vorteil der Methode ist die Anwendbarkeit für verschiedene Schadstoffe in aquatischen Systemen (HOOFTMAN & DE RAAT, 1982; BOETTCHER ET AL., 2010). Dabei ist eine Anwendung im Labor und bei *in-situ*-Monitoringstudien möglich (AL-SABTI & METCALFE, 1995; REIFFERSCHEID ET AL., 012008; DIN EN ISO 21427-2, 2009).



Abbildung 2-25: Induktion von Mikrokernen als genotoxische Schäden in Folge einer Schadstoffexposition (HOOFTMAN & DE RAAT, 1982; AL-SABTI & METCALFE, 1995)

Die Bestimmung der Mikrokerne erfolgte als *in vivo* Untersuchung, so dass nach Ende der Expositionsphase das Blut der Testorganismen entnommen werden kann. Der angefertigte Blutanstrich wird anschließend angefärbt bevor die Zählung der Mikrokerne erfolgen kann. Im Blut findet sich meist eine besonders hohe Konzentration an Mikrokernen in uniformer Gestalt (HOOFTMAN & DE RAAT, 1982). Die absolut gezählten Mikrokerne in 4000 roten Blutkörperchen (Erythrozyten) werden auf 1000 Zellen bezogen, so dass die Mikrokernrate in [‰] angegeben wird.

### f) Bestimmung der Metallothioneinenkonzentrationen

Metallothioneine (MT) sind Proteine, die die Fähigkeit besitzen, Schwermetalle (Cadmium, Zink, Kupfer, Blei etc.) zu binden (KÄGI & SCHAEFFER, 1988). MT nehmen eine wichtige Rolle bei der Regulierung von Stoffwechselprozessen im Rahmen von essentiellen Spurenelementen (z. B. Kupfer) ein (BREMNER & BEATTIE, 1990). Schon früh wurden dem MT-Protein neben der homöostatischen Regulierung der Metallkonzentration weitere Aufgaben zugeordnet, die bis heute in Fachkreisen diskutiert werden und erhöhten Forschungsbedarf formulieren lassen (KÄGI, 1991; VALLEE, 1995). Dazu gehört die Detoxifizierung aufgenommener Schwermetalle (z. B. Cadmium), Einlagerung/Speicherung von Spurenelementen und der interzellulare Transport der Spurenelemente (LEY ET AL., 1983). Die Speicherung der Spurenelemente und Schwermetalle setzt eine Pufferkapazität der MT voraus. Diese Eigenschaft unterstützt die Detoxifizierung aufgenommener Schwermetalle (BREMNER & BEATTIE, 1990). Durch die Fähigkeit der Bindung von Schwermetallen bietet sich die Quantifizierung der MT-Konzentration als Biomarker an (ROESI-JADI, 1992). Diese Bindungseigenschaften reduzieren somit die verfügbaren schädlichen Schwermetalle im Organismus. Bei einer Sättigung der MT kann es zu zytotoxischen Effekten kommen (BREMNER & BEATTIE, 1990). Die Bestimmung der MT-Konzentration wird den spezifischen Biomarkern zugeordnet, da bei Bestimmung dieser eine eindeutige Zuordnung zu einer Schwermetallbelastung möglich ist (MONSERRAT ET AL., 2007). Untersuchungen haben gezeigt, dass die Annahme gültig ist, dass die MT-Konzentration bei gleichzeitiger Zunahme bioverfügbarer Metalle im Betrachtungsraum ansteigt (MONSERRAT ET AL., 2007).

Trotz der Verankerung der Quantifizierung der MT-Konzentration als Biomarker in verschiedenen Richtlinien (BFG, 1999; OSPAR, 2008), besteht Diskussions- und Forschungsbedarf hinsichtlich der biologischen Funktion und Aufgabe der MT (KÄGI & SCHAEFFER, 1988; AMIARD ET AL., 2006; BOETTCHER ET AL., 2010). Die Messung der MT-Konzentration findet dabei meistens in der Leber statt, da sich hier die höchsten Konzentrationen finden lassen (BREMNER & BEAT-TIE, 1990; KÄGI, 1991). Weiterhin sollte auch der Effekt der Wechselwirkung zwischen Umweltfaktoren (z.B. Salinität) und Speziierung der vorkommenden Metalle und Spurenelemente analysiert werden. Der Zusammenhang zwischen der MT-Konzentration und der Salinität wurde bereits identifiziert. Jedoch fehlen bisher detaillierte Untersuchungen, um diesen Zusammenhang für ein Biomonitoring praxistauglich auszuarbeiten (MONSERRAT ET AL., 2007). Bei der Verwendung dieses Biomarkers ist darauf zu achten, dass neben den Umweltbedingungen auch unterschiedliche Spezies, Alter, Geschlecht und Geschlechtsreife einen entscheidenden Einfluss auf die Ausschüttung des MT nehmen und die Ergebnisse beeinflussen (AMIARD ET AL., 2006). In einer weiteren Studie von OLSSON & HAUX (1985) konnte gezeigt werden, dass MT auch zum Nachweis aufgenommener Schwermetalle in Regenbogenforellen (vgl. Kapitel 3.3.3 c) Einsatz von ausgewählten aquatischen Organismen) geeignet ist.

## 2.6 Schlussbetrachtung

Die Vorstellung der verfügbaren Literatur zeigt, dass die Beschreibung des aquatischen Ökosystems während der Erosion schadstoffbehafteter kohäsiver Sedimente umfangreich ist. Für die Vorstellung des aktuellen Wissensstands sind hier vier Bereiche gewählt worden (vgl. Kapitel 2.2, 2.3, 2.4 und 2.5). Für die betroffenen Fachgebiete (z. B. Wasserbau & Wasserwirtschaft, Ökotoxikologie) sind detaillierte Untersuchungen und Studien (Labor- und in-situ-Messungen) durchgeführt worden, die die Grundprozesse beschreiben. Jedoch muss darauf hingewiesen werden, dass die identifizierten Parameter (z. B. elektrische Leitfähigkeit), die zur Bewertung der Erosion notwendig sind, bisher nur isoliert untersucht worden sind. Eine Verknüpfung der unterschiedlichen Prozesse hat bisher nur in einem stark eingeschränkten Umfang in kleinmaßstäblichen Aufbauten stattgefunden. Weiterhin fehlte in vielen Studien die Motivation ein naturnahes Testsystem aufzubauen, das versucht unter Einhaltung von Laborstandards die natürliche Komplexität der vielen Parameter nachzuempfinden, um einer Übertragbarkeit zwischen Laborversuchen und in-situ-Messungen zukünftig näher zu kommen (vgl. Kapitel 3.3.1 - Kurzvorstellung alternativer Versuchsstände). Auch wenn dieses Ziel nur in einem stark eingeschränkten Rahmen auf Labormaßstabsebene möglich ist, sollte bei der Bearbeitung dieses Themas die Natur nicht unberücksichtigt bleiben, um die Wechselwirkungen ganzheitlich zu verstehen und nachbilden zu können. Dabei sollte die Übertragbarkeit der Laboruntersuchungen auf natürliche Bedingungen stets berücksichtigt werden und die maßgeblichen Parameter entsprechend bewertet werden.

Der aktuelle Stand der Forschung zeigt, dass die Parameter bislang ausschließlich einzeln betrachtete worden sind. So findet sich eine Vielzahl unterschiedlicher Studien, die sich mit dem Transportverhalten kohäsiver Natursedimente beschäftigen. Bisher wurde hierbei jedoch die mögliche Kontamination mit Schadstoffen nicht weiter beachtet und somit auch nicht die ökotoxikologischen Auswirkungen infolge Erosion. Erste Untersuchungen finden sich bei der Kopplung von Erosionsprozessen und sich damit einhergehend ändernden Umweltbedingungen (hauptsächlich pH-Wert und Redoxpotential). Auch auf Seiten des Fachgebiets Ökotoxikologie erfolgten die bisherigen Studien ohne eine Kopplung mit den Ingenieurwissenschaften, sodass wichtige Einflussfaktoren wie zum Beispiel die Sohlschubspannung nicht berücksichtigt werden konnten.

Jedoch zeigt die Darstellung der Grundlagen, dass Wechselwirkungen zwischen den vorgestellten Parametern zu erwarten sind. So ist anzunehmen, dass die Güte der Ergebnisse steigt, wenn eine gekoppelte und interdisziplinäre Betrachtung der Parameter erfolgt. Um in Zukunft Aussagen im Rahmen eines Managements von schadstoffbelasteten Sedimenten treffen zu können, ist es notwendig, die zentralen Parameter zu identifizieren und deren Interaktionen umfassend beschreiben zu können. Dafür ist es in einem ersten Schritt wichtig, Untersuchungen auf Laborebene durchzuführen, um die interagierenden Grundprozesse nachvollziehen zu können, bevor mit Hilfe von Natursedimenten die Komplexität der experimentellen Methodik erhöht werden kann (PALLER & KNOX, 2013). Als letzter Schritt wird der Weg in Richtung *in-situ*-Messungen gesehen.

In diesem Zusammenhang wird die hydrotoxikologische Methodik entwickelt und aufgebaut, um sich diesem Ziel zu nähern. Im Rahmen dieser experimentellen Methodik wird erstmals eine Kombination aller vorgestellten Parameter in einem Versuchsstand vorgenommen (Abbildung 2-26). Dies erlaubt die Interaktion der Parameter untereinander und resultiert in einem natürlicheren Erosionsverhalten und somit auch in aussagekräftigeren Ergebnissen bezüglich der ökotoxikologischen Auswirkungen schadstoffbelasteter Sedimente.



Abbildung 2-26: Hydrotoxikologie - Verknüpfung der beiden Fachgebiete Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) unter Berücksichtigung von fünf Parametergruppen
# 3 Neue hydrotoxikologische Methodik zur Charakterisierung und Bewertung kohäsiver schadstoffbehafteter fluvialer Sedimente

# 3.1 Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik

Im Anschluss an die Betrachtung der Grundlagen zum kohäsiven Sedimenttransport sowie der Beschreibung der auftretenden Wechselwirkungen und Prozesse zwischen kohäsiven Natursedimenten, ausgesuchten Schadstoffgruppen, Umweltbedingungen dargestellt als physikalischchemische Parameter und aquatischen Organismen in Kombination mit ökotoxikologischen Auswirkungen (z. B. Quantifizierung mit Hilfe von Biomarkern) folgt die detaillierte Beschreibung der experimentellen Umsetzung und die dabei entwickelte Methodik der Hydrotoxikologie. Die bisher nicht vollständig erfassten Zusammenhänge und Prozesse zwischen den genannten Parametern erfordern den Aufbau und die Durchführung von experimentellen Laboruntersuchungen, die eine Verknüpfung der Fachgebiete Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) ermöglichen.

Die umfangreiche Betrachtung und gezielte Isolation einzelner Einflussparameter im Versuchsstand fördert das Gesamtverständnis natürlicher Prozesse, die in Folge von Erosion bzw. Resuspension kohäsiver schadstoffbehafteter Sedimente auftreten. Die Realisierung der Laboruntersuchungen erfolgt nach Abstraktion natürlicher Randbedingungen im Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University. Das nachfolgende Kapitel beschreibt nach der Definition der neu aufgebauten Methodik die notwendigen Vorarbeiten und Voruntersuchungen, die für die erfolgreiche Durchführung der Experimente erforderlich sind. Die genannten Vorarbeiten und Voruntersuchungen beinhalten eine Sedimentcharakterisierung hinsichtlich der Korngrößenverteilung und die Bestimmung der Konsolidierung als Funktion der Sedimentdichte über die Sedimentmächtigkeit. Die Beschreibung des angepassten Versuchsstands konzentriert sich auf die Vorstellung der Strömungsprozesse, der Sohlschubspannungsverteilung und deren Optimierung. Die experimentelle Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik besteht dabei aus einer Machbarkeitsstudie, um Versuchsstand und experimentelle Möglichkeiten auf Tauglichkeit und Optimierung zu untersuchen. Die Hauptstudie konzentriert sich anschließend auf die Vertiefung des Prozessverständnisses und die Wechselwirkungen der ausgewählten relevanten Parameter in Bezug auf die Erosion schadstoffbehafteter Sedimente.

# 3.2 Instrumente der Hydrotoxikologie

# 3.2.1 Definition der hydrotoxikologischen Methodik

Wie bereits in den vorangegangenen Kapiteln ausführlich erläutert, fehlt für die integrative Bewertung und Risikoabschätzung schadstoffbehafteter kohäsiver Sedimente im Fall von Erosion bzw. Resuspension ein etabliertes und praxisrelevantes Werkzeug. Die bisherige Vorgehensweise beschränkt sich auf eine monodisziplinäre Beurteilung, bei der die Bewertung der Erosionswahrscheinlichkeit getrennt von den damit einhergehenden Folgen für die aquatischen Organismen in Bezug auf Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der freigesetzten Schadstoffe erfolgt. Die Kopplung der beiden unterschiedlichen Fachgebiete ermöglicht den Aufbau einer neuen Expertise im Bereich des integrativen Sedimentmanagements und dem neu eingeführten Forschungsgebiet der Hydrotoxikologie unter Anwendung der hydrotoxikologischen Methodik (Definition 13), welche einen experimentellen Weg beschreitet.

Definition 13 für die hydrotoxikologische Methodik

Die hydrotoxikologische Methodik beinhaltet die experimentelle Verknüpfung der beiden Fachgebiete "Wasserbau und Wasserwirtschaft" sowie "Ökotoxikologie". Zur Abschätzung der sedimentologischen und ökotoxikologischen Risiken in Folge von Resuspensionsereignissen wird dabei eine umfassenden Analyse der Sedimentdynamik, der Bioverfügbarkeit der vorkommenden Schadstoffgruppen sowie die Erfassung sämtlicher relevanter Wechselwirkungen im betrachteten Gesamtsystem durchgeführt.

# 3.2.2 Kombination und Umsetzung der interdisziplinären Fragestellung

Der Aufbau der interdisziplinären Methodik erfordert die Kombination von fünf unterschiedlichen Parametergruppen aus den beiden Fachgebieten Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie), wobei jede Gruppe individuelle Randbedingungen fordert, um die Wechselwirkungen mit den anderen Parametern so umfassend wie möglich zu realisieren und zu beschreiben (z. B. konstante Temperaturverhältnisse, gleichförmige Strömungsbedingungen etc.). Die Vielzahl der berücksichtigten Parameter macht die Einführung von Abstraktion und Kompromissen unabdingbar. Die jeweiligen Stärken und Schwächen der betroffenen Fachgebiete zeigen deutlich die gute Vereinbarkeit und gegenseitige Ergänzung der Expertisen für eine experimentelle Umsetzung der Fragestellung (Tabelle 3-1). Eine hydrodynamisch-numerische Betrachtung der interdisziplinären Fragestellung auf Basis des momentanen Wissensstands wird nicht als zielführend angeschen, daher wird eine experimentelle Umsetzung in einem bereits bestehenden Versuchsstand am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University realisiert. Die Verwendung eines bereits bestehenden Versuchsstandes erlaubt die Erweiterung klassischer Methoden auf Basis bereits bestehender Erfahrungen und Expertisen vorangegangener Studien (SPORK, 1997; PROCHNOW ET AL., 1999; SCHWEIM, 2005).

Die hydrotoxikologische Methodik beinhaltet die folgenden fünf bereits angekündigten Parametergruppen: Sedimenttypen, Organismen, Hydrodynamik, Schadstoffgruppen und Umweltbedingungen (Abbildung 3-1). Jede dieser fünf Gruppen beinhaltet unterschiedliche Parameter, die im Rahmen der methodischen Entwicklung der neuen integrativen Experimente berücksichtigt und abgebildet werden müssen. Die experimentelle Umsetzung erlaubt es, die Anzahl der ausgewählten Parameter je Gruppe beliebig zu erweitern oder zu reduzieren und somit auf jeden Betrachtungsraum individuell anzupassen. Die Auswahl und unter Umständen auch gezielte Isolation der Parameter beeinflusst maßgeblich die resultierenden Wechselwirkungen und Prozesse im Betrachtungsraum.



Abbildung 3-1: Die fünf Parametergruppen und die individuell umgesetzten Parameter am Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University

Bei der Zusammenführung der unterschiedlichen Parametergruppen stand eine naturnahe Umsetzung bei gleichzeitiger Realisierung konstanter und einheitlicher Laborbedingungen zur Gewährleistung der Reproduzierbarkeit der Experimente im Vordergrund. Daher hat die Verwendung natürlicher Materialien einen hohen Stellenwert, so dass Natursedimente mit unterschiedlicher Zusammensetzung (z. B. Kornverteilung, Schadstoffbelastung, Baggerort, Gewässertyp etc.) zum Einsatz kommen. Die Bewertung und Formulierung der Risiken, die von erodierten, kohäsiven und schadstoffbehafteten Sedimenten ausgehen, sind nur möglich, wenn eine umfangreiche und detaillierte Analyse des Transportverhaltens durchgeführt werden kann. Somit stellt das bestehende Kreisgerinne die zentrale Versuchseinrichtung zur erfolgreichen Durchführung der hydrotoxikologischen Methodik, die die detaillierte Charakterisierung der ausgesuchten kohäsiven Sedimenttypen erlaubt, dar. Die Auswertung des Erosionsverhaltens der Sedimente gehört zum ingenieurtechnischen Fachgebiet der entwickelten Methodik. Weiterhin zählen die Bestimmung und Optimierung der Strömungsverhältnisse und die damit einhergehende Optimierung der Sohlschubspannungsverhältnisse im sohlnahen Bereich zu dieser Disziplin.

Das Fachgebiet der Ökotoxikologie beinhaltet neben der Auswahl der Schadstoffgruppen (vgl. Kapitel 2.3) auch die chemische Analytik der gewonnen Schwebstoff- und Sedimentproben. Weiterhin fällt in dieses Fachgebiet die Exposition der ausgewählten Organismen gegenüber den Natursedimenten. Die angeschlossene Analyse der Biomarker (vgl. Kapitel 2.5.3) ermöglicht Aussagen bezüglich Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der Schadstoffe im Verlauf von Erosionsereignissen und die Aussage über ökotoxikologische Auswirkungen im Organismus durch die Auslösung genotoxischer, kanzerogener oder mutagener Effekte als Folge von Stoffwechselprozessen. Die Aufnahme der Schadstoffe erfolgt aus der Suspension, die durch die Generierung einer Strömung und einer daraus resultierenden Erosion entsteht. Damit stellt dieses Vorgehen einen gänzlich neuen Ansatz im Bereich der Ökotoxikologie dar, die bisher lediglich auf etablierte Methoden ohne Strömung im kleinskaligen Maßstab zurückgreift.

Eine Parametergruppe, die beiden Fachgebieten zugeordnet werden kann, ist die der Umweltbedingungen, die während der Erosionsphase im Experiment kontinuierlich aufgezeichnet werden. Die Änderung der Umweltparameter im Verlauf der Experimente wird im Fachgebiet der Ingenieurwissenschaften mit der Entwicklung des Schwebstoffgehalts in der Wassersäule verglichen. Weiterhin lässt die Änderung oder die gesteuerte Variation der Umweltbedingungen Rückschlüsse auf die Änderung der Bioverfügbarkeit zu.

	Stärken	Schwächen						
Ingenieurwissenschaften - Wasserbau und Wasserwirtschaft								
	Erfahrungen im Bereich Hydrodynamik	Keine Aussage über Verbleib und Trans- port von Schadstoffen möglich						
	Expertise im Bereich Morphodynamik	Keine Aussage zur Bioverfügbarkeit von Schadstoffen						
	Erfahrungen im Bereich des wasserbauli- chen Versuchswesens	Biosphäre und Organsimen werden nicht berücksichtigt						
	Versuchsstand und Messtechnik zur Durchführung von Erosionsversuchen mit kohäsivem Sediment vorhanden							
Biologie - Ökotoxikologie								
	Identifizierung relevanter Umweltparame- ter (z. B. Untergrenze des gelösten Sauer- stoffgehalts)	Physikalische Bewegung fehlt						
	Erfahrung im Bereich chemische Analytik von Schwebstoffproben	Etablierte Methoden zur Sedimentbewer- tung berücksichtigen nicht den Strö- mungseinfluss						
	Auswertung ausgesuchter Biomarker zur Bewertung ökotoxikologischer Risiken	Erfahrung im Bereich großskaliger La- borversuche fehlt						
	Erfahrungen im Umgang mit aquatischen Organismen	Bewertung von Varianzen und experi- mentell bedingten Ungenauigkeiten aus großmaßstäblichen Versuchen						

Tabelle 3-1: Aufstellung der signifikanten Stärken und Schwächen der kombinierten Fachgebiete

Die Durchführung und die sich daraus ableitenden Erkenntnisse der hydrotoxikologischen Experimente erfolgt dabei in drei Schritten (Abbildung 3-2): (1) *Realisierung,* (2) *Verknüpfung* und (3) *Bewertung.* In Schritt 1 werden die tatsächlichen Experimente zur Datenerhebung durchgeführt. Hier kann es aufgrund unterschiedlicher Randbedingungen (z. B. Anforderungen an ein intaktes Sedimentbett) der beiden Fachgebiete zu einer getrennten Ausführung der Experimente kommen (z. B. getrennte Experimente mit und ohne Fischexposition). Der zweite Schritt beinhaltet die Identifizierung und Definition geeigneter Schnittmengen auf Grundlage der gewonnen Daten und Messergebnisse. Mit Hilfe dieser Schnittmengen ist es möglich, in Schritt 3 eine Beurteilung der Sedimente und der Schadstoffe unter natürlichen Erosionserscheinungen vorzunehmen.



Abbildung 3-2: Theoretischer Ablauf der hydrotoxikologischen Methodik in drei Schritten: (1) Realisierung, (2) Verknüpfung und (3) Bewertung

#### 3.2.3 Abgrenzung des Betrachtungsbereichs für die experimentelle Umsetzung

Im Rahmen der durchgeführten Experimente zur Validierung der neu aufgebauten hydrotoxikologische Methodik wurden im Vorfeld Randbedingungen festgelegt (z. B. konstante Temperaturverhältnisse, gleichförmige Strömungsverhältnisse) und ein definiertes Untersuchungsprogramm erstellt. In der vorliegenden Arbeit konzentrieren sich die Untersuchungen ausschließlich auf die Charakterisierung der unterschiedlichen Erosionsprozesse zweier kohäsiver Natursedimente. Die dazu verwendeten Sedimente stammen ausschließlich aus Binnengewässern. Das erste Sediment wurde in Koblenz-Ehrenbreitstein aus dem Rhein entnommen (Entnahmeposition: Fluss-km 591 bei +50° 21' 12" N, +7° 36' 27" E, Entnahmedatum: April 2011). Das zweite Sediment stammt aus der Staustufe Palzem an der Mosel (Entnahmeposition: Staustufe Palzem, Stadtbredimus, Luxemburg bei +49° 33' 54" N, +6° 22' 8" E, Entnahmedatum: Juni 2012). Auf die Verwendung mariner Sedimente wurde in dieser Studie verzichtet. Aufbau und Durchführung zeitlich lang andauernder Experimente unter marinen Bedingungen erfordern ein hohes Maß an Erfahrung zur Einstellung der Wasserqualität und des Salzgehalts. Weiterhin sind die Anforderungen an die Hälterung geeigneter Organismen wesentlich aufwendiger und erfordern ebenfalls viel Erfahrung. Da es sich in diesem Projekt um die erstmalige experimentelle Umsetzung der interdisziplinären Fragestellung zum integrativen Sedimentbewertungsansatz handelt, haben sich die ausführenden Fachgebiete auf bestehende Erfahrungen und Expertisen gestützt, die vorrangig im Bereich der

Betrachtung limnischer Gewässersysteme liegen. Der entwickelte Ansatz schließt eine grundsätzliche Übertragbarkeit auf marine Bedingungen nicht aus und die beteiligten Institute empfehlen auch in weiteren Schritten, Anstrengungen bei der Durchführung von Experimenten unter marinen Bedingungen zu unternehmen.

Zur Abschätzung des Einflusses von Schadstoffen wurde eine Mischung polyzyklischer aromatischer Kohlenstoffe (PAKs) als Vertreter organischer Schadstoffe sowie Kupfersulfat für die Gruppe der Schwermetalle in den Experimenten verwendet (vgl. Kapitel 2.5). Zur Quantifizierung der wirkenden Parameter aus der Parametergruppe Umweltbedingungen, die in Kapitel 2 erläutert wurden, sind geeignete Messsonden am Kreisgerinne installiert.

Die Experimente dienen der Überprüfung und Validierung der neu aufgebauten hydrotoxikologischen Methodik. Dabei konzentrieren sich die Ergebnisauswertung auf die Identifikation und Bewertung erfolgreicher Experimente (Tabelle 3-2). Die gewählten Kriterien richten sich nach den Anforderungen des hier verwendeten Versuchsaufbaus. Dabei sind die Kriterien grundsätzlich gültig, jedoch kann sich die Größenordnung je nach Versuchsstand und Parameterauswahl ändern. Die Zusammenstellung der speziellen Kriterien wurde im Verlauf der Experimente aufgestellt und erweitert. Während der Durchführung der Experimente erfolgte eine kontinuierliche Anpassung des Versuchsstandes und der eingesetzten Messtechnik, um die Randbedingungen bestmöglich abzubilden. Insgesamt konnten elf von zwölf Experimenten erfolgreich durchgeführt werden.

 

 Tabelle 3-2:
 Individuelle Kriterien zur Durchführung erfolgreicher hydrotoxikologischer Experimente im Kreisgerinne am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University

Mindestlaufzeit je Experiment	3,5 Tage von 7 Tagen
Akzeptabler Wasserverlust	30 % (entspricht ca. 255 l)
Mind. Sauerstoffgehalt bezogen auf Sättigung (OECD, 2012)	60 %
Konstante Temperatur	14 - 15°C
Maximale Mortalitätsrate	10 – 20 % (bei n = 10 Tiere)

# 3.3 Vorstellung des Versuchsaufbaus

# 3.3.1 Kurzvorstellung alternativer Versuchsstände mit dem Schwerpunkt Schadstoffinteraktion

In der Literatur finden sich unterschiedliche experimentelle Ansätze, die schwerpunktmäßig Wechselwirkungen und Prozesse zwischen Sediment, Schadstoffen und Wasser betrachten, analysieren und erklären. Dabei legen die verschiedenen Versuchskonzepte ihren Untersuchungsfokus unterschiedlich (z. B. Auswirkung schwankender Umweltbedingungen, Quantifizierung freigesetzter Schwermetalle etc.). Nachfolgend werden drei experimentelle Konzepte von CALMANO ET AL., (1988), CANTWELL ET AL. (2002) und ATKINSON ET AL. (2007) vorgestellt. Dabei gilt für alle drei Konzepte, dass eine natürliche Strömung, die zur Erosion der belasteten Sedimentschichten führt, nicht abgebildet wird. Die exemplarischen Versuchseinrichtungen bieten nicht die Möglichkeit, einen natürlichen Erosionsprozess nachzubilden, da sie keine Strömungsgenerierung realisieren. In diesen Versuchseinrichtungen wird jeweils eine Schwebstoff-Wasser-Suspension hergestellt, dabei werden die Schwebstoffe durch Umwälzung der Suspension in Schwebe gehalten (z. B. Magnetrührer). Experimentelle Versuchsstände, die sich auf die Untersuchung und Beschreibung des kohäsiven Sedimenttransports konzentrieren werden hier nicht im Detail vorgestellt, da die verwendete Versuchseinrichtung in früheren Untersuchungen bereits als geeignet für Experimente dieser Art eingestuft worden ist.

Die Experimente, die CALMANO ET AL. (1988) durchgeführt haben, konzentrieren sich auf die Identifikation und Interaktion schadstoffbehafteter Sedimente (meist Vertreter aus der Gruppe der Schwermetalle) unter marinen Wasserbedingungen und schwankenden Umweltbedingungen (pH-Wert, Redoxpotential). Das System besteht aus einer Hauptkammer im Zentrum. Konzentrisch sechs Nebenkammern angeordnet sind (Abbildung 3-3). Dabei wird in der Hauptkammer das ausgewählte schwermetallbelastete Sediment eingebracht und in Suspension gehalten. In den sechs Nebenkammern können Modellsedimente oder Algen exponiert werden. Auch in diesen Kammern wird die Suspension durch Magnetrührer konstant gehalten und die Umweltbedingungen (pH-Wert, Redoxpotential) kontinuierlich aufgezeichnet und ggf. auf Sollwerte geregelt. Die Kammern sind über Membrane (Dicke 45 µm) miteinander verbunden, so dass das Sorptionsund Desorptionsverhalten der eingesetzten Schadstoffe mit Hilfe von Proben aus der Hauptkammer und den Nebenkammern quantifiziert werden kann. Auszüge der Arbeiten sind in Kapitel 2.4.2 zusammengestellt und erläutert.



Abbildung 3-3: Versuchsaufbau des Mehrkammersystems von CALMANO ET AL. (1988)

Der experimentelle Aufbau der Versuchseinrichtung von ATKINSON ET AL. (2007) beinhaltet acht baugleiche Versuchskästen. Ziel der Versuche ist die Quantifizierung freigesetzter Schwermetalle in der Wasserphase (Abbildung 3-4). Die parallele Durchführung der Experimente erlaubt einen Vergleich der Ergebnisse, da diese unter den gleichen Versuchsbedingungen erhoben werden konnten. Die Kästen weisen jeweils eine Abmessung von 30 cm x 30 cm und eine Höhe von 8 cm auf. In jedem Versuchskasten befindet sich in einer Ecke ein oben geöffneter 100 mlKunststoffbehälter, dessen Oberkante sich an der Grenzfläche zwischen Sediment- und Wasserschicht befindet. Mit Hilfe eines Magnetrührers wird das Wasser im Kasten in Bewegung gesetzt und eine Suspension durch das Aufwirbeln von Sedimentpartikeln erzeugt. Von der Suspension werden in regelmäßigen Abständen Proben entnommen. Ein Belüftungssystem hilft, einen konstanten Sauerstoffgehalt im Versuchskasten zu erhalten. Während der gesamten Versuchsphase werden die folgenden Parameter erfasst: pH-Wert, Redoxpotential, gelöster Sauerstoffgehalt und Temperatur.



Abbildung 3-4: Versuchsaufbau eines Versuchskastens von insgesamt acht Einheiten nach ATKINSON ET AL. (2007)

CANTWELL ET AL. (2002) verwendeten bei ihren Experimenten zur Quantifizierung der Schwermetallfreisetzung den "Particle Entrainment Simulator", der von TSAI & LICK im Jahr 1986 entwickelt wurde (Abbildung 3-5). Der Versuchsstand besteht aus einem Zylinder mit einem inneren Durchmesser von 12,70 cm. In diesem Zylinder wird eine Sedimentschicht mit einer Mächtigkeit von 3 cm eingebracht. Diese Sedimentschicht besteht dabei aus einem *in-situ* gewonnen Sedimentkern. Somit bietet dieser Versuchsaufbau die Möglichkeit, ungestörte Sedimentproben zu untersuchen. Nachdem das Sediment in den Zylinder eingebracht ist, wird die Sohle mit Salzwasser überdeckt, ohne dass es zu einer Resuspension kommt. Durch die vertikale Bewegung eines Gitters mit einer Amplitude von 2,54 cm wird die Sedimentsohle resuspendiert. Die Entwicklung der Wasserparameter (pH-Wert, Redoxpotential und gelöster Sauerstoffgehalt) werden kontinuierlich gemessen.



Abbildung 3-5: Versuchsaufbau des "Particle Entrainment Simulators" entwickelt von TSAI & LICK (1986) und verwendet von CANTWELL ET AL. (2002)

Ähnlich den vorgestellten Versuchsständen erzeugen auch weitere Aufbauten, die in der Literatur zu finden sind, die Resuspension nicht durch die Generierung einer Strömung, sondern durch die Bewegung in die Wassersäule eingebrachter Mischer (z. B. Magnetrührer, oszillierende Gitter (GRANT ET AL., 2013), Propeller (CHANDLER, 2012) etc.).

# 3.3.2 Schlussfolgerung nach Vorstellung alternativer Versuchsstände

Die exemplarische Vorstellung möglicher alternativer Versuchsstände zur experimentellen Untersuchung zeigt die Vielzahl an Möglichkeiten zur Quantifizierung und zur Vertiefung des Prozessverständnisses der relevanten Parameter im Sediment-Schadstoff-Wasser-System. Ziel der Hydrotoxikologie ist der Aufbau eines möglichst ganzheitlichen Versuchstandes, der relevante Einflussparameter berücksichtigen kann. Die vorgestellten alternativen Versuchsstände bieten dabei gut zu untersuchende und regulierbare Kontrollvolumina. Die Ergebnisse der Studien zeigen weiterhin, dass eine Reproduzierbarkeit gegeben ist. Um jedoch naturnahe und ganzheitliche Experimente durchführen zu können, fehlen den vorgestellten Versuchsständen notwendige Kriterien wie der Aufbau einer gleichförmigen Strömung mit ausreichender Kraft zur Aufbringung der Sohlschubspannung zur Generierung einer Erosion. Weiterhin ist die Exposition von größeren Organismen nicht möglich.

Durch die Verwendung eines Kreisgerinnes als Versuchsstand können natürliche Erosionsprozesse simuliert werden. Die Strömung wird durch die Drehung der einzelnen Bauteile (vgl. Kapitel 3.3.3) generiert, so dass natürliche Prozesse des kohäsiven Sedimenttransports wie zum Beispiel Flockungen nicht durch den Einsatz von Rührern oder Pumpen zerstört werden. Die Generierung der Strömung erfolgt lediglich über die Nutzung der Adhäsionskräfte zwischen Deckel und Wasseroberfläche und bleibt damit weitestgehend ungestört. Das Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University im Speziellen bietet ein großes Wasservolumen von bis zu maximal 1633 l, so dass sich auch Änderungen der Wasserqualität entwickeln können und ein ausreichend großes Beprobungsvolumen zur Verfügung steht. Die Erfassung der Wasserqualitätsparameter (z. B. pH-Wert und Redoxpotential) wird mit Hilfe eines externen Durchlaufsystems erfasst, so dass auch hier die Strömung im Kreisgerinne weitestgehend ungestört bleibt. Um saisonale Schwankungen zu vermeiden, befindet sich der Versuchsstand in einer Klimakammer, die auf mindestens 14°C gekühlt und konstant gehalten werden kann.

Ein weiterer essentieller Vorteil bei der Nutzung des Kreisgerinnes stellt die gleichzeitige Exposition von Organismen im Versuchsstand dar. Dies ist bei allen bisher vorgestellten Versuchsständen nicht möglich und schließt eine Durchführung der interdisziplinären Methodik der Hydrotoxikologie vollkommen aus. Das Kreisgerinne stellt daher eine flexible Einrichtung dar, die auch bei der Verfolgung unterschiedlicher Ziele aufgrund der gleichbleibenden Randbedingungen die Möglichkeit bietet, Daten aus verschiedenen Fachgebieten mit einander zu kombinieren und auszuwerten.

#### 3.3.3 Das Kreisgerinne als Versuchsstand in der Hydrotoxikologie

#### a) Aufbau und Funktionsweise des ausgewählten Versuchsstandes

Die hydrotoxikologischen Experimente zum schadstoffbehafteten Sedimenttransport werden in einem speziell konzipierten Versuchsstand, dem Kreisgerinne (Abbildung 3-6), durchgeführt. Ursprünglich ist dieser Versuchsstand für die Untersuchung von Transportprozessen kohäsiver Sedimente entwickelt worden und konnte nach einer Anpassung an die Randbedingungen der Hydrotoxikologie weiter verwendet werden. Das Kreisgerinne mit seinen beiden ringförmigen Hauptkomponenten Gerinne und Deckel hat einen mittleren Durchmesser von 3,25 m bei einer Gerinnebreite von 0,25 m. Es können Experimente mit unterschiedlichen Wassertiefen durchgeführt werden, wobei die maximale Wassertiefe  $h_{max} = 500$  mm beträgt. Das ringförmig, drehbar gelagerte Gerinne besteht aus gebogenen Vierkantrohren mit acht eingesetzten Glasscheiben. Die Glasscheiben erlauben die Beobachtung von Transportprozessen und den Einsatz berührungsloser Messmethoden (z. B. Laser Doppler Velocimetrie LDV). Ein koaxial aufgehängter, ebenfalls drehbar gelagerter Deckel aus Plexiglas, der von oben auf die Wasseroberfläche im Gerinne aufgesetzt wird, vervollständigt das Kernelement des Versuchsstandes. Der Deckel kann individuell über acht Gewindestangen eingestellt werden und gibt somit die Wassertiefe vor.

Die Hauptströmung wird durch die Drehung des Deckels erzeugt, da dieser eine schnellere Rotation erfährt als das Gerinne. Aus der Strömungsgenerierung resultiert eine auftretende Sohlschubspannung an der Grenzfläche zwischen Wasser und Sedimentbett. Aufgrund der Kreisform entstehen Sekundärströmungen. Um deren Einfluss zu reduzieren, da der kohäsive Schwebstofftransport beeinflusst werden könnte, dreht sich das Gerinne entgegen dem Deckel auf der gleichen Rotationsachse. Eine genaue Beschreibung der Strömungserzeugung befindet sich im Anhang A dieser Arbeit. Bei der Charakterisierung der Transportprozesse von Sedimenten ist die maßgebliche Größe die Sohlschubspannung, die sich allerdings messtechnisch nicht explizit erfassen lässt. Die sohlnahe Messung der Geschwindigkeitsverteilung mittels LDV erlaubt über die Anwendung des logarithmischen Wandgesetzes die Berechnung der wirkenden Sohlschubspannungen (Anhang A).



Abbildung 3-6: Das Kreisgerinne in der Klimakammer am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University

Bei der Charakterisierung des Transportverhaltens kohäsiver Sedimente ist die Einhaltung konstanter Umweltbedingungen wichtig, um die Vergleichbarkeit der einzelnen Experimente zu gewährleisten. Um saisonalen Schwankungen entgegenzuwirken, steht das Kreisgerinne in einer Klimakammer, die mit zwei Kälteanlagen und einer künstlichen Luftbefeuchtung ausgestattet ist. In der Klimakammer lassen sich Temperaturen im Bereich von 14°C bis 24°C bei einer maximalen relativen Luftfeuchtigkeit von bis zu 95 % realisieren. Die kontinuierliche Überwachung der Umweltbedingungen im Kreisgerinne erfolgt über die Installation geeigneter Messtechnik (Abbildung 3-8).

Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus des Kreisgerinnes und der Klimakammer findet sich in SPORK ET AL. (1995) und SPORK (1997), der im Rahmen seiner Dissertation das Kreisgerinne konzipiert, konstruiert und aufgebaut hat. Zur Durchführung der hydrotoxikologischen Experimente sind eine Reihe von Erweiterungen hinsichtlich der Messtechnik (z. B. Überwachung der Umweltbedingungen) und dem genehmigten Einsatz von aquatischen Organismen realisiert worden.

# b) Verwendete Messtechnik

Die experimentelle Verknüpfung der beiden Fachgebiete stellt auch an den Bereich der Messund Regeltechnik eine große Herausforderung dar. Die Ökotoxikologie soll das Forschungsgebiet der Hochwasserfolgenbewertung bereichern und durch die Bildung einer interdisziplinären Forschungsgruppe dabei helfen, die Einflüsse von Sedimentdynamik und Sedimentqualität in Hinblick auf die Schadstoffwirksamkeit auf aquatische Organismen zu erkennen und zu bewerten. Deshalb ist bei der Auswahl der zu messenden Parameter auf Relevanz für den Betrachtungsraum und Eignung am Versuchsstand zu achten. Die Implementierung der zusätzlichen Messtechnik zeigte in den ersten Experimenten eine erfolgreiche Umsetzung der Erweiterung auf die interdisziplinäre Fragestellung ohne aquatische Organismen. Die Messung der Parameter (pH-Wert, Redoxpotential, gelöster Sauerstoffgehalt, Temperatur und elektrische Leitfähigkeit), die in Kapitel 2 vorgestellt sind, erfolgt außerhalb des Kreisgerinnes, um die Strömung durch das Eintauchen von mehreren Messsonden nicht mehr als notwendig zu stören. Über Bohrungen durch die Außenwand werden Entnahmeröhrchen mit einem Innendurchmesser von 3,3 mm in das Kreisgerinnes eingebracht über die die Wasser-Sediment-Suspension entnommen wird (Abbildung 3-8). Diese Suspension wird durch Schläuche zur Messzelle gefördert und anschließend wieder in das Kreisgerinne zurück gepumpt. Es werden Schlauchpumpen (Masterflex Easy-Load 7518-00) verwendet, damit die Pumpenmechanik und die Suspension nicht direkt in Kontakt treten und mögliche Schädigungen wie Abrasionserscheinungen vermieden werden. Weiterhin eignen sich Schlauchpumpen zur Förderung der Suspension, da die Zwangsförderung einer möglichen Verstopfung vorbeugt. In der Messzelle können unterschiedliche Messsonden eingebaut werden, so dass eine permanente Umströmung der Sonden und folglich eine Echtzeitmessung der Suspension realisiert ist. Die ständige Umströmung der Messsonden ist bei einer korrekten Datenerfassung unumgänglich (DIN 5814, 2010).

Es stehen drei Messanschlüsse in unterschiedlichen Höhen zur Verfügung. Die untere (50 mm über Sohle) und obere (141 mm über Sohle) Bohrung werden für die Erfassung der sedimentologischen Basisparameter verwendet. Dazu gehört die kontinuierliche Erfassung der Lichtintensität in der Wassersäule mit Hilfe von Durchlichtsensoren (Abbildung 3-7). Die Lichtintensität, gemessen in Hertz [Hz], wird durch die Suspension aufgenommen und stellt ein Maß für die Trübung dar. Um die Trübung kalibrieren zu können, werden Proben mit Hilfe des Probennehmers aus dem jeweiligen Kreislauf (unterer oder oberer Messanschluss) zu diskreten Zeitpunkten entnommen und anschließend gravimetrisch ausgewertet (vgl. Kapitel 4.2). Nach Abschluss der Experimente ist es über die aufgezeichneten Zeiten der Probenentnahme und Trübungsmessung möglich, die Daten zuzuordnen und die angeschlossene Auswertung durchzuführen, so dass eine kontinuierliche Entwicklung der Schwebstoffkonzentration in der Wassersäule angegeben werden kann.



Abbildung 3-7: Funktionsprinzip zur Verdeutlichung der Messung der Lichtintensität als Maß für die Trübung

Der mittlere Anschluss (90 mm über der Sohle) versorgt die Messzelle zur Erfassung der physikalisch-chemischen Parameter. Die erfassten Daten werden kontinuierlich aufgezeichnet, um die Umweltbedingungen auch im Hinblick auf die Exposition der aquatischen Organismen permanent überwachen zu können. Die Erfassung der Parameter erfolgt mit einem Multiparameterlogger der Firma Ahlborn (Almemo 2690-8), das über eine serielle RS-232-Schnittstelle in das Steuersystem des Kreisgerinnes eingebunden ist. In der Messzelle werden die folgenden Parameter erfasst: pH-Wert (SenTix), gelöster Sauerstoffgehalt (FYA640O2, Ahlborn), elektrische Leitfähigkeit (FYA641LFP1, Ahlborn) und Redoxpotential (FY96RXEK, Ahlborn). Ein Temperaturfühler zur Erfassung der Wassertemperatur ist in der Sauerstoffsonde integriert. Während der Experimente wird Luft in das Wasser eingebracht. Der Sauerstoffgehalt des Wassers erreicht dabei ca. 8,3 mg/l bei einer Wassertemperatur von ca. 14,75°C.



Abbildung 3-8: Aufbau der Messtechnik am Kreisgerinne

Neben der klassischen Erfassung der notwendigen Parameter wurde eine pH-Regelung zur Absenkung des nativen pH-Werts am Versuchsstand installiert. Die Mimik besteht aus einer CO<sub>2</sub>-Gasflasche und einer handelsüblichen pH-Wert-Regeleinheit. Dabei wird ein gewünschter pH-Wert an der Regeleinheit eingestellt und das Ventil an der Gasfalsche solange geöffnet bis der gewünschte Wert im Kreisgerinne erreicht wird. Die Regelung des pH-Werts kann je nach experimentellem Ziel dazu geschaltet werden und bleibt außer Betrieb auf dem Kreisgerinne, wenn eine Regelung nicht erwünscht ist. Die Regelabweichung beträgt dabei pH 0,1.

# c) Einsatz von ausgewählten aquatischen Organismen

Regenbogenforellen (*Oncorhynchus mykiss*) werden als ein Stellvertreter für aquatische Organismen im Kreisgerinne gegenüber Sedimenten und Schadstoffen exponiert (Abbildung 3-9 links), um die Toxizität, die Bioverfügbarkeit und die Biozugänglichkeit der partikelgebundenen Schadstoffe zu erfassen. Regenbogenforellen sind Repräsentanten schnell fließender, sauerstoffreicher Fließgewässer. Ursprünglich stammen sie aus Nordamerika und wurden um 1880 in deutsche Gewässer eingeführt. Die hier eingesetzten Regenbogenforellen stammen aus einer kommerziellen Fischhälterung (Mohnen Aquaculture, Stolberg). Zur Anpassung an die Laborbedingungen wurden die Fische in der eigenen Hälterungseinrichtung für mindestens zwei Monate akklimatisiert (Abbildung 3-9 rechts), bevor sie im Kreisgerinne den schadstoffbehafteten Sedimenten ausgesetzt werden konnten. Für jedes Experiment mit aquatischen Organismen wurden zehn Regenbogenforellen im Kreisgerinne exponiert. Dabei hatten die Forellen ein Gewicht von 110  $\pm$  34 g bei einer Körpergröße von 194  $\pm$  20 mm erreicht (BRINKMANN ET AL., 2010). Die Versuche wurden unter Einhaltung des Tierschutzgesetzes (BUNDESMINISTERIUM DER JUSTIZ UND FÜR VERBRAUCHERSCHUTZ, 2006) und der Genehmigungsnummer 8.87-50.10.35.08.225 durchgeführt.



Abbildung 3-9: links: Regenbogenforellen im Kreisgerinne während eines Klarwasserversuchs bei einer Wassertiefe von h = 175 mm, rechts: Hälterungseinrichtung für die Regenbogenforellen am Institut für Umweltforschung der RWTH Aachen University

Um die Anforderungen der Regenbogenforellen zu erfüllen, wurden Maßnahmen zur Gewährleistung der Lebenserhaltung getroffen. Dazu gehören die Erweiterung der Klimatechnik der gesamten Klimakammer, in der das Kreisgerinne untergebracht ist, und die Optimierung der Luftzufuhr ins Kreisgerinne während der Exposition (Erosionsphase). Eine Fütterung der Organismen während der Erosionsphase gehört dabei nicht zu diesen Maßnahmen. Die Auswahl der Biomarker fordert das Vorhandensein von Gallenflüssigkeit, welche bei der Nahrungsaufnahme ausgeschüttet werden würde und somit einer anschließenden Analyse nicht mehr zur Verfügung stehen würde.

Mit Hilfe von Klarwasserversuchen konnte gezeigt werden, dass die Fische ein normales Schwimmverhalten im Kreisgerinne zeigen (COFALLA, 2011). Dieses zeichnet sich durch die Ausrichtung der Fische entgegen der Hauptströmung ab der rheotaktischen Geschwindigkeit aus (COFALLA, 2008). Die rheotaktische Geschwindigkeit ist abhängig von der Fischart, dem Alter und der Körpergröße, so dass eine allgemeine Aussage zum Schwimmverhalten nicht möglich ist. Wird die Geschwindigkeit unterschritten, können die Fische diese nicht mehr wahrnehmen und folglich ist eine Orientierung im Gewässer nicht mehr möglich.

Die Regenbogenforellen werden nach der Exposition genutzt, um verschiedene Effekt- und Expositionsbiomarker (vgl. Kapitel 2.5) zu untersuchen. Der Vorteil bei der Verwendung von Fischen als Testorganismen liegt in der ähnlichen Reaktion auf Schadstoffe wie sie Säugetiere und Menschen zeigen würden. Somit ist hier die Möglichkeit gegeben, potentielle Schädigungen von verschiedenen Schadstoffgruppen zu identifizieren und auf andere Lebensformen zu übertragen (AL-SABTI & METCALFE, 1995). Der ausgesuchte Testorganismus eignet sich aufgrund seiner Körpergröße gut, um verschiedene Biomarker zu untersuchen, da er ausreichend Probenmaterial bietet. Die Kombination mit den Erkenntnissen aus den Erosions- und Schwebstofftransportexperimenten hilft, die Schadstoffaufnahme der Tiere zu definieren. Jedoch kann nicht zwischen unterschiedlichen Aufnahmepfaden (Kiemen, Haut etc.) unterscheiden werden.

# 3.3.4 Fazit zur Vorstellung des Versuchsaufbaus

Der finale experimentelle Aufbau, der vorangehend beschrieben ist, basiert auf der erfolgreichen Durchführung einer Machbarkeits- und anschließenden Hauptstudie ausgehend von dem theoretischen Konzept, dass die übergeordnete Motivation enthält (Abbildung 3-10). Nach der Beschreibung der Motivation (vgl. Kapitel 3.1 und 3.2) konnte eine Parametrisierung erfolgen, die die grundlegenden experimentellen Rahmenbedingungen festlegte. Dazu gehörten als grundlegende Voraussetzung die Wahl des Versuchsstands und der geeigneten aquatischen Organismen. Die Machbarkeitsstudie konzentriert sich auf die grundsätzliche Eignung des gewählten Versuchsstands und die Identifizierung der Optimierungspotentiale und deren Umsetzung für anschließende Experimente. Hinzukommend wurden erste relevante Parameter definiert und weitere im Rahmen der Vorexperimente in die Liste mitaufgenommen. Die gewonnen Erkenntnisse halfen die Hauptstudie detailliert aufzubauen und die Schwachstellen der Machbarkeitsstudie auszubessern. Es konnten weitere Parameter aufgenommen werden und die Anzahl der exponierten Fische von 15 auf zehn reduziert werden.



Abbildung 3-10: Aufbau und Zusammensetzung des Aufbaus der hydrotoxikologischen Methodik und der durchgeführten Experimente

Nachfolgend werden in den Kapitel 3.4 und 3.5 die Machbarkeits- und Hauptstudie im Detail vorgestellt. Die Stärken und Schwächen werden dargestellt und die anschließenden Optimierungsmöglichkeiten vorgestellt.

# 3.4 Übersicht der Machbarkeitsstudie

# 3.4.1 Allgemeine Ziele der Machbarkeitsstudie

Durch die Motivation das Sedimentmanagement und die Hochwasserfolgenbewertung interdisziplinär und experimentell zu bearbeiten und den Wissensstand zu erweitern, bestand die Forderung die Leitgedanken mit Hilfe einer Machbarkeitsstudie durchzuführen. Dabei verfolgt die Machbarkeitsstudie das Ziel, die Eignung des ausgewählten Versuchsstands und die damit einhergehende Kombination der Fachgebiete zu prüfen und die Machbarkeit nachzuweisen. Weiterhin gilt es zu prüfen, ob ein Einsatz der Regenbogenforellen im Kreisgerinne überhaupt möglich ist und diese bei der mehrtägigen experimentellen Dauer ein unauffälliges Schwimmverhalten zeigen. Die Machbarkeitsstudie beinhaltete die erste experimentelle Umsetzung der Leitgedanken, die unter dem Begriff Vorexperimente zusammengefasst werden. Die Vorexperimente vereinen dabei schon die beiden Fachgebiete und berücksichtigen verschiedene Parameter der fünf Parametergruppen. Im Bereich der Umweltbedingungen werden dabei der pH-Wert, das Redoxpotential, der gelöste Sauerstoff und die Wassertemperatur kontinuierlich aufgezeichnet.

Die Auswertung einer Machbarkeitsstudie mit Vorexperimenten bietet die Möglichkeit, mögliche Schwachstellen zu identifizieren und zu beheben sowie Optimierungspotentiale mit geeigneten Methoden anzupassen und ggf. zu erweitern. So stellt das diskutierte Ergebnis der Machbarkeitsstudie das optimierte Ausführungskonzept der anschließend aufgebauten und durchgeführten Hauptexperimente dar.

Den fünf vorgestellten Parametergruppen wurden im Rahmen der Machbarkeitsstudie weniger Einzelparameter zugeteilt bzw. es wurde eine sehr hohe Abstrahierung vorgenommen, um natürliche Einflüsse möglichst gering zu halten. Somit konnte gewährleistet werden, dass die Auswirkungen des gewählten Versuchsstandes und die Ausführungsprozedur selbst bewertet werden konnten.

Allgemein kann festgehalten werden, dass die Isolation einzelner Parameter (z. B. Experimente mit und ohne Schadstoffzugabe oder Änderung der pH-Bedingungen) eine geeignete Methode zur Identifizierung von grundlegenden Wechselwirkungen und Prozessen zwischen den verschiedenen Parametern (z. B. Entwicklung der elektrischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit der Änderung des Schwebstoffgehalts) darstellt und eine experimentelle Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik grundsätzlich möglich und zielführend ist. Die Machbarkeitsstudie trug maßgeblich dazu bei, dass die hier durchgeführten Hauptexperimente optimal vorbereitet und sämtliche Randbedingungen nach einer Optimierungsphase eingehalten werden konnten.

# a) Charakterisierung des Sediments

Im Rahmen der Machbarkeitsstudie kam künstliches Sediment entsprechend der OECD-Richtlinie 218 (OECD, 2004) zum Einsatz. Durch die Verwendung dieses Sediments konnten mögliche Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen betrachteten Parametern, wie es bei natürlichen Sedimenten zu erwarten ist, reduziert werden. Weiterhin waren die Zusammensetzung und der Grad der Kontaminierung bekannt und ermöglichten somit eine genaue Bilanzierung der Stoffe im Kreisgerinne. Hinzukommend bietet künstliches Sediment den Vorteil, dass Messergebnisse reproduziert werden können. Schwankungen in der Zusammensetzung, wie sie bei natürlichen Sedimenten vorkommen, können bei diesen Sedimenten umgangen werden (COFALLA ET AL., 2011).

Neben den ingenieurtechnischen Anforderungen an das Sediment, eignet sich das OECD-Sediment sehr gut für ökotoxikologische Experimente als Kontrollsediment. Die künstliche Zusammensetzung erlaubt die Annahme eines unbelasteten Sediments. Somit kann das Kontrollsediment als Negativkontrolle bei der ökotoxikologischen Bewertung künstlicher und natürlicher Sedimente mit schwacher bis starker Schadstoffbelastung herangezogen werden (FEILER ET AL., 2005a; FEILER ET AL., 2005b; HÖSS ET AL., 2010).

Da bereits zum Aufbau der Machbarkeitsstudie das Ziel verfolgt wurde, die hydrotoxikologische Methode auf natürliche Betrachtungsräume übertragen und anwenden zu können, bestand die Anforderung, ein naturnahes Sediment in den Vorexperimenten zu verwenden. Die Einzelbestandteile des Sediments setzten sich aus Torf, Kaolinit und Quarzsand zusammen (Abbildung 3-11). Zur Einstellung eines neutralen pH-Werts im Sediment wird Calciumcarbonat CaCo<sub>3</sub> zu-

gegeben. Durch die Zugabe von Wasser soll nach Abschluss der Sedimentherstellung ein dreißigprozentiger Wassergehalt bezogen auf die Trockenmasse vorliegen. Für die Sedimentherstellung muss ein aufwendiger Mischungsvorgang beachtet werden. Daher hat besonders die Lagerungszeit des Sediments bis zum Einbau in das Kreisgerinne große Auswirkungen auf die Sedimenteigenschaften (MITCHENER & TORFS, 1996). Es wurde eine Zunahme des Erosionswiderstandes aufgrund biologischer Aktivität festgestellt, wenn die Lagerung nicht korrekt erfolgte. Daher wurde anschließend immer nur die Sedimentmenge hergestellt, die auch im Kreisgerinne eingebaut wurde.



Abbildung 3-11: Zusammensetzung des verwendeten Kunstsediments nach OECD-Richtlinie 218 (OECD, 2004)

Im Kreisgerinne ist eine Schichtdicke des Sediments von ca. 4 cm gewünscht, so dass während der Erosionsphase ausreichend Sediment zur Verfügung steht. Für jedes Vorexperiment wurden 175 kg Sediment hergestellt, um diese Schichtdicke zu erreichen. Da natürliche Konsolidierungszeiten im Kreisgerinne nicht erreicht werden können, wurde die Konsolidierungszeit nach SCHWEIM (2005) und PARCHURE & MEHTA (1985) auf drei Tage festgelegt. Auf die Durchführung separater Konsolidierungsversuche wurde im Rahmen der Machbarkeitsstudie verzichtet, da der Nachweis der Machbarkeit der experimentellen Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik im Vordergrund stand und nicht die detaillierte Beschreibung des Erosionsverhaltens des künstlichen Sediments.

# b) Durchgeführte Vorexperimente und Belastungsverlauf

Für die Prüfung des theoretischen Konzepts der hydrotoxikologischen Methodik im Kreisgerinne (vgl. Kapitel 3.3) des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University wurden insgesamt fünf Vorexperimente im Rahmen der Machbarkeitsstudie durchgeführt. Das Versuchsprogramm gliedert sich in einen sedimentologischen (Gruppe A) und einen ökotoxikologischen (Gruppe D) Schwerpunkt (Tabelle 3-3). Zur Prüfung der Messtechnik und des halbautomatischen Probenentnahmesystems wurden zwei Experimente ohne Tierexposition durchgeführt. Weiterhin erlauben die Experimente der Gruppe A eine grobe sedimentologische Analyse des künstlichen Sediments, so dass die Probenentnahme und die Erfassung sedimentologischer Parameter für die Hauptstudie angepasst werden konnte.

Während der Vorexperimente, die der Gruppe D zugeordnet werden konnten, wurden Regenbogenforellen unterschiedlichen Stressoren ausgesetzt und die Belastung mit jedem Experiment gesteigert. Begonnen wurde mit einem Experiment nur mit Leitungswasser ohne Sediment und Schadstoff. Anschließend wurden die Tiere dem unbelasteten OECD-Sediment ausgesetzt bevor das dritte Experiment mit belastetem Sediment und exponierten Organismen durchgeführt wurde. Als Schadstoffbelastung wurde das OECD-Sediment mit einem Mix aus unterschiedlichen PAKs belastet. Die Mischung setzte sich aus den folgenden Einzelsubstanzen zusammen: Phenanthren (5,0 mg/kg), Pyren (4,1 mg/kg), Benzo[*a*]pyren (8,3 mg/kg) und Chrysen (3,3 mg/kg) (COFALLA ET AL., 2011).

Gruppe	Schwerpunkt	Sedimenttyp	Tiereinsatz	Schadstoffeinsatz
А	Sedimentologisch	OECD-Sediment	Keine Exposition	mit und ohne zugegebe- nen PAKs
D	Ökotoxikologisch	Trinkwasser	Exposition von 15 Regenbogenforellen	

Tabelle 3-3: Auflistung der im Rahmen der Machbarkeitsstudie durchgeführten Vorexperimente

Die gesamte Dauer eines Experiments wurde auf acht Tage festgelegt, davon sind drei Tage der Konsolidierungs- und fünf Tage der Erosionsphase zuzuordnen. Die Änderung der wirkenden Sohlschubspannung während der Erosionsphase erfolgte kontinuierlich und gliederte sich in einen ansteigenden und einen absteigenden Belastungsbereich (Abbildung 3-12). Der Verlauf der Kurve wurde in Anlehnung an die allgemeine Form einer Hochwasserwelle nach DIN 4049-3 (1994) entwickelt und an die Randbedingungen, die im Kreisgerinne vorherrschen, angepasst. So folgte die experimentelle Umsetzung der sich ändernden Sohlbelastung nicht durch einen zunehmenden Durchfluss im Versuchsstand, sondern durch eine sich steigernde Umdrehung des Kreisgerinnes, was eine Steigerung der Fließgeschwindigkeit bewirkt und folglich in eine gesteigerten Sohlbelastung resultiert. Zur Ermittlung der maximalen Sohlschubspannung der folgenden Hauptexperimente mit Tierexposition bei einer maximalen Sohlschubspannung von  $\tau = 0,30 \text{ N/m}^2$  durchgeführt.



Abbildung 3-12: Belastungsverlauf für die Vorexperimente, die im Rahmen der Machbarkeitsstudie zur Entwicklung der hydrotoxikologischen Methodik verwendet wurde; durchgezogener Kurvenverlauf für Vorexperimente ohne Tierexposition; gestrichelter Kurvenverlauf für Vorexperimente mit Tierexposition

# 3.4.2 Ergebnisverwertung der Machbarkeitsstudie

# a) Änderung des Sedimenttyps

Die Machbarkeitsstudie zeigte, dass die Herstellung des ausgesuchten OECD-Sediments sehr aufwendig ist und für die Verwendung im Kreisgerinne als ungeeignet eingestuft wurde. Die Herstellungsprozedur ist nicht ausgelegt für die Mengen von 175 kg, die im Rahmen der hydrotoxikologischen Methodik benötigt werden, um Experimente erfolgreich durchführen zu können.

Hinzukommend zeigte sich im Verlauf der Erosionsphase eine starke Entmischung der Sedimentbestandteile (Abbildung 3-13). Der Sandanteil wurde dabei ausschließlich an der Sohle transportiert. Als Folge der Zentrifugalkräfte, die durch die Drehung des Kreisgerinnes entstehen, lagerte sich der Sand an der Außenwandung an, so dass eine von außen nach innen abnehmender Sedimentmächtigkeit zu beobachten war. Es ist daher anzunehmen, dass die Sohlschubspannung nicht mehr gleichmäßig über die Gerinnebreite verteilt war. Diese nicht quantifizierbare Verschiebung der Sohlschubspannungsverteilung kann bei einer detaillierten Charakterisierung der Erosionsprozesse kohäsiver Sedimente nicht akzeptiert werden.



Abbildung 3-13: Darstellung der Entmischung des OECD-Sediments im Verlauf der Vorexperimente im Rahmen der Machbarkeitsstudie nach Abschluss der Erosionsphase

Für die anschließenden Hauptexperimente, die der weiteren Optimierung und Validierung der hydrotoxikologischen Methodik dienten, wurde das Sediment nach OECD-Richtlinie 218 (OECD, 2004) nicht weiter verwendet. Die Ergebnisse zeigten, dass es zielführend ist Natursedimente zu verwenden, die einen geringen Sandgehalt aufweisen, so dass ein kohäsives Erosionsverhalten angenommen werden kann (COFALLA, 2011).

#### b) Änderung der Schadstoffzugabe und Schadstoffgruppen

Mit Hilfe der Vorexperimente konnten im Fachgebiet der Ökotoxikologie die ausgewählten Biomarker getestet und ggf. angepasst werden. Dafür wurden drei Vorexperimente mit unterschiedlichen Belastungsbedingungen mit exponierten aquatischen Organismen durchgeführt. Hierbei konzentrierten sich die Biomarker ausschließlich auf die Aufnahme und Effektuntersuchung von organischen Belastungen. Die Ergebnisse waren positiv und konnten für die Aufstellung der Hauptexperimente weiterverwendet werden. Die Ergebnisse sind in BRINKMANN ET AL. (2010) zusammenfassend dargestellt.

Jedoch wurde in der Machbarkeitsstudie eine aufwendige Schadstoffzugabe der PAKs mit einer Vorbereitungszeit von über sieben Tagen durchgeführt, bevor ein Einbau des belasteten Sediments im Kreisgerinne möglich war. Diese Methode wurde bei der Vorbereitung der Hauptexperimente nicht weiter verfolgt. Zur Verbindung der Laborexperimente mit natürlichen Bedingungen wurde ähnlich wie bei der Parametergruppe *Sediment* von den künstlichen Bedingungen Abstand genommen und eine natürliche Belastung favorisiert. Die Durchführung der Vorexperimente erlaubte die Annahme, dass der Einsatz bereits schadstoffbelasteter Natursedimente mit einer hauptsächlichen organischen Belastung im Kreisgerinne umsetzbar ist. Dabei stand die Wahl eines Sediments mit hauptsächlicher PAKs-Belastung im Vordergrund.

Neben organischen Schadstoffen sollte für die Hauptexperimente die Schadstoffgruppe der Schwermetalle am Beispiel von Kupfer mit betrachtet werden. Da eine singuläre starke Kupferbelastung in Natursedimenten schwierig auffindbar ist, wurde der moderat belastete Sedimenttyp der Hauptexperimente nachträglich mit Kupfersulfat belastet. Da Kupfer für den Menschen als sehr gering toxisch einzustufen ist und in keinem Vergleich zur Toxizität für aquatische Organismen steht, wurde die nachträgliche Belastung mit Kupfersulfat der ausgewählten Natursedimente als Kompromisslösung realisiert.

#### c) Anpassung des Belastungsverlaufs

Die Motivation, eine experimentelle Methode zur Charakterisierung und Bewertung schadstoffbelasteter Natursedimente aufzubauen, war der Anlass eine abstrahierte jedoch natürliche Erosion im Kreisgerinne zu erzeugen. So entstand eine kontinuierlich steigende und nach dem Scheitel wieder abfallende Belastungskurve (Abbildung 3-12). Die Ergebnisse zeigten auch die zu erwartende Schwebstoffzunahme im steigenden Ast der Kurve und eine sinkende Schwebstoffkonzentration im abfallenden Ast der Belastungskurve. Jedoch konnte aufgrund der zeitlich inkonstanten Sohlschubspannungen keine genaue Zuordnung der Erosionsprozesse erfolgen.

Für den Verlauf der Belastung in den Hauptexperimenten wurde daher wieder auf einen klassisch stufig ansteigenden Sohlschubspannungsverlauf zurückgegriffen, wie er bei der Charakterisierung kohäsiver Sediment üblich ist (vgl. Kapitel 2.2 und Abbildung 3-19). Hinzukommend wurde eine sinkende Sohlschubspannung nicht weiter betrachtet, da sich die Fragestellung auf die Erosion schadstoffbelasteter Sedimente konzentriert (COFALLA, 2011). Nachdem in der Machbarkeitsstudie zwei verschiedene maximale Sohlschubspannung non  $\tau_{max} = 0,40 \text{ N/m}^2$  für beide Hauptgruppen festgelegt (vgl. Abbildung 3-14).

# 3.5 Übersicht der Hauptstudie

# 3.5.1 Einführung in die Hauptstudie

Nach der erfolgreichen Durchführung der Machbarkeitsstudie und der daraus abgeleiteten Ergebnisverwertung konnte eine Hauptstudie zur Validierung der hydrotoxikologischen Methodik konnte aufgestellt werden. Vor dem Einsatz der natürlichen Sedimente konnte mit Hilfe der Machbarkeitsstudie die aufgebaute Messtechnik ohne Einflüsse der natürlichen Sedimente auf ihre Tauglichkeit geprüft und Optimierungsmaßnahmen entwickeltwerden (COFALLA, 2011). Eine detaillierte Auswertung der Experimente aus den Gruppen A und D wird im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgestellt, sie findet sich in den folgenden Publikationen: WÖLZ ET AL. (2009), COFALLA ET AL. (2010), BRINKMANN ET AL. (2010), COFALLA (2011) und COFALLA ET AL. (2012).

Die angepasste und angewendete Versuchsmimik ist bereits in Kapitel 3.3.3 und 3.3.4 umfassend vorgestellt. So werden anschließend lediglich das Versuchsprogramm, die verwendeten natürlichen Sedimente und der Belastungsverlauf beschrieben.

# 3.5.2 Versuchsprogramm

Das Versuchsprogramm gliedert sich in zwei Hauptgruppen von Experimenten, um den Einfluss und die Interaktionen einzelner Parameter der fünf Parametergruppen (vgl. Kapitel 3.2) zu identifizieren. Die erste Hauptgruppe beinhaltet ausschließlich sedimentologische Experimente (Gruppe A und B) und die zweite Hauptgruppe Experimente mit ökotoxikologischem Schwerpunkt durch die Exposition der aquatischen Organismen (Gruppe C und D). In beiden Hauptgruppen wurden die gleichen Parameter isoliert oder variiert (Abbildung 3-14). Weiterhin gilt, dass die Experimente, die der Gruppen A und D zugeordnet sind, mit künstlichem OECD-Sediment und die Experimente der Gruppen B und C mit natürlichen Sedimenten durchgeführt worden sind. Bei den Experimenten der Gruppen B und C mit den Nummern 1-3 wird ausschließlich Rheinsediment verwendet. In Experimenten, mit den zugeordneten Nummern B.4 und C.4, wird auch Moselsediment im Kreisgerinne verwendet, zuerst in einem Mischungsverhältnis von 1:1 in Kombination mit dem bereits bekannten Rheinsediment und abschließend 100 % Moselsediment in den Experimenten B.5 und C.5. Weiterhin werden die Schadstoffgruppen in den beiden Untergruppen B und C variiert. In den Nummern 2 und 3 wird zweiwertiges Kupfersulfat während der Mischphase zugegeben. Als letzter Parameter wird der pH-Wert verändert. So kann sich in den Nummern 1, 2, 4 und 5 der pH-Wert im Gegensatz zu Experimenten der Nummer 3, in denen der pH-Wert während der gesamten Erosionsphase auf pH 6,5 abgesenkt wird, nativ einstellen. Durch die gekoppelte Auswertung der erfassten Daten kann von hydrotoxikologischen Experimenten gesprochen werden.

		Gruppe	Nr.	Sedimenttyp/ Herkunft	Schad- stoffe	pH- Wert. Reduz.	Farbcode
	Sedimentologischer Schwerpunkt	A <sup>(*)</sup>	1	künstlich/ Kaolinit	nativ	-	-
			2	künstlich/ OECD 218	nativ	-	-
			3	künstlich/ OECD 218	PAKs	-	_
		B <sup>(#)</sup>	1	natürlich/ Rhein	nativ	-	•
nte			2	natürlich/ Rhein	Cu	-	•
rime			3	natürlich/ Rhein	Cu	6,5	•
Expe			4	natürlich/ Rhein/Mosel	nativ	-	•
che (			5	natürlich/ Mosel	nativ	-	•
ogis	Ökotoxikologischer Schwerpunkt	C <sup>(#)</sup>	1	natürlich/ Rhein	nativ	-	
xikol			2	natürlich/ Rhein	Cu	-	
droto			3	natürlich/ Rhein	Cu	6,5	
Hyo			4	natürlich/ Rhein/Mosel	nativ	-	
			5	natürlich/ Mosel	nativ	-	
		D <sup>(*)</sup>	1	-	_	-	-
			2	künstlich/ OECD 218	nativ	-	-
			3	künstlich/ OECD 218	PAKs	-	-
(*) Mac für G Belas für G Tiere (#) Hau Für G	chbarl ruppe stung: ruppe pro E uptexp	keitsstudie A und D: sverlauf: τ D: Experiment perimente B und C	e <sub>max</sub> = t∶ n = ∶	0,40 N/m², kontinuierlich = 15	e Änderu	ng /	_
Belas für G	stung: ruppe	sverlauf: τ e C: Experiment		0,40 N/m², stufige Ände = 10	rung	-	

Abbildung 3-14: Übersicht der durchgeführten hydrotoxikologischen Experimente aus beiden Studien

# 3.5.3 Vorstellung der verwendeten Sedimente

#### a) Transport und Lagerung natürlicher Sedimente aus Rhein und Mosel

Die verwendeten natürlichen Sedimente wurden im Rhein (Entnahmeposition: Fluss-km 591 bei +50°21' 12" N, +7°36' 27" E, Entnahmedatum: April 2011) und in der Mosel (Entnahmeposition: Staustufe Palzem, Stadtbredimus, Luxemburg bei +49°33' 54" N, +6°22' 8" E, Entnahmedatum: Juni 2012) entnommen. Die Entnahme der Sedimente an beiden Gewässern erfolgte mit Hilfe eines Schiffs und Baggern. Wenn möglich wurde die Baggerung mit einem Bodengreifer nach Van Veen durchgeführt (Abbildung 3-15 links). Der Transport erfolgte in Kunststofffässern mit einem Fassungsvolumen von 80 l. Da natürliche Sedimente biologisch aktiv sind (BLACK ET AL., 2002), ist die Lagerung der Sedimente von besonderer Wichtigkeit. Um die biologischen Aktivitäten weitestgehend zu reduzieren, erfolgte die Aufbewahrung bei 4°C in einem Kühlraum (Abbildung 3-15 rechts). Des Weiteren ist das Sediment gegen Licht-, Wärme- und Stoßeinwirkungen zu schützen (DIN 38414, 1987). Die verwendeten Sedimentproben stellen gestörte Proben dar, die auf Grund des großen Probenvolumens auch eine gewisse Inhomogenität aufweisen. Zur Quantifizierung der Inhomogenität wird anschließend eine Korngrößenanalyse durchgeführt.



Abbildung 3-15: links: Eingesetzter Van-Veen-Greifer zur Sedimentgewinnung an der Mosel, rechts: Lagerung der Natursedimente im Kühlraum

#### b) Ermittlung der Korngrößenverteilung für die verwendeten Natursedimente

Zur Charakterisierung der gewonnenen Natursedimente wurden Korngrößenbestimmungen durch Sedimentation mit dem Verfahren nach DIN 18123 (2011) durchgeführt. Da die beiden Sedimentproben aus Rhein und Mosel auf mehrere Fässer verteilt gelagert wurden, und aufgrund der umfangreichen Sedimentprobe eine einheitliche Homogenisierung nicht realisierbar war, wurde jedem Fass eine Probe entnommen und analysiert. Dafür wurde das ausgewählte Fass mit Hilfe eines handelsüblichen Handmischers homogenisiert. Die gewonnene Sedimentprobe wurde geteilt und gewogen. Der erste Teil wurde zur Bestimmung des Wassergehalts bei 105°C in den Trockenschrank gestellt, bis die Trockenmasse einen konstanten Wert erreichte. Die hier durchgeführten Trocknungen zur Bestimmung des Wassergehalts wurden alle nach mindestens zwölf Stunden entnommen und nach einer Akklimatisierung von zwei Stunden gewogen (DIN ISO 11465, 1996; DIN EN 12880, 2001).

Der zweite Teil der Probe wurde zur Korngrößenbestimmung mit 350 ml entmineralisiertem Wasser zu einer Suspension aufgerührt. Der Suspension wurden 25 ml Antikoagulationsmittel (Natriumpyro-phosphat (Na<sub>4</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub> × 10 H<sub>2</sub>O) in einer Konzentration von 0,5 g je 1000 ml) zugegeben, um Flockungsprozesse der Sedimentpartikel zu verhindern. Die Norm DIN 18123 (2011) empfiehlt, die Suspension mehrere Stunden zu rühren, bevor diese in einen Standzylinder mit einem Volumen von 1000 cm<sup>3</sup> umgefüllt werden muss. Der Standzylinder wurde mit entmineralisiertem Wasser aufgefüllt, bis das Zielvolumen von 1000 cm<sup>3</sup> erreicht war. Nach ausreichender Durchmischung des Standzylinders durch schwenkende Bewegungen erfolgte die Messung der Dichte  $\varrho$ <sup>c</sup> der Suspension mit einem Aräometer in definierten Zeitabständen (30 s, 1 min, 2 min,

5 min, 15 min und 45 min und nach 2 h, 6 h und 24 h, vgl. Abbildung 3-16). Die gemessene Dichte *q*<sup>6</sup> konnte anschließend in Korngrößen [mm] und Massenanteile [%] umgerechnet werden (DIN 18123, 2011). Die dazugehörigen Kornverteilungskurven können Anhang B entnommen werden.



Abbildung 3-16: links und mittig: Zylinder mit vorbereiteter Suspension zur Durchführung der Schlämmanalyse, rechts: Aräometer zur Messung der Dichte q<sup>6</sup> der hergestellten Suspension

#### c) Konsolidierung der Natursedimente

Zur sedimentologischen Charakterisierung kohäsiver Sedimente gehört neben der Korngrößenverteilung und der Bestimmung des Transportverhaltens (z. B. Erosionswiderstand) auch immer die Messung der Konzentrationsverteilung über die Schichtmächtigkeit des abgelagerten Sediments. Diese Versuche wurden im Vorfeld der Erosionsversuche durchgeführt. Als Ergebnis erhält man neben der Dichteverteilung über die Sedimentschichtmächtigkeit auch die benötigte Sedimentmasse, um eine 40 mm mächtige Sedimentschicht im Kreisgerinne aufbauen zu können. Der Aufbau der Sedimentschicht sollte dabei immer der gleichen Methode folgen, um Auswirkungen der Umgebungsbedingungen (z. B. Temperaturverhältnisse) auf die abgelagerte Sedimentschicht zu vermeiden und somit die Güte der Vergleichbarkeit der unterschiedlichen Experimente zu erhalten und weiter zu steigern.

Da die Nutzung des Kreisgerinnes die Untersuchung ungestörter Sedimentproben ausschließt, können nur im Labor konsolidierte Sedimentschichten untersucht werden. Bei der Herstellung dieser Sedimentschichten können folglich nicht alle natürlichen Prozesse nachgebildet werden (vgl. Kapitel 2.2.3), so dass es bereits bei geringeren Sohlschubspannungen als unter natürlichen Bedingungen üblich zu Erosionsprozessen kommt. Beim "Upscaling" von Laboruntersuchungen mit kohäsivem Sediment auf den Naturmaßstab müssen daher immer Vergleichsuntersuchungen *in situ* durchgeführt werden, um den Einfluss von Modelleffekten abschätzen zu können.

Zur Messung der Konzentrationsänderungen in der Sedimentschicht wird ein Ultra High Concentration Meter (UHCM) eingesetzt (Abbildung 3-17). Dazu wird in Standzylindern mit einem Durchmesser von d = 10 cm außerhalb des Kreisgerinnes eine Sediment-Wasser-Suspension angesetzt und für sieben Tage sich selbst überlassen. Am Ende der Konsolidierungsphase hat sich ein Sedimentbett am Zylinderboden ausgebildet. Das Messprinzip beruht auf der Messung der Spannung in Volt [V] in der Sedimentschicht bei zunehmender Konsolidierung, also der Kompaktion des Sedimentgerüsts über die Zeit. Dafür wird eine Sonde mit zwei Signaleinheiten, die einen konstanten Abstand zueinander haben, in die Sedimentschicht eingebracht. Die Signaleinheiten senden und empfangen Ultraschallsignale. Mit zunehmender Sedimentdichte kommt es zu einer Dämpfung der Ultraschallwellen und die ausgegebene Spannung steigt an. Es besteht ein linearer Zusammenhang zwischen der Spannungs- und der Dichteänderung.



Abbildung 3-17: Verwendetes UHCM zur Messung der Dichteänderung der Sedimentschicht während der Konsolidierungsphase

Weiterhin hilft die kontinuierlich gemessene Änderung der Sedimentkonzentration über die Zeit, das Ende der Eigengewichtskonsolidierung zu identifizieren. Die Ergebnisse zeigen, dass die Eigengewichtskonsolidierung nach drei Tagen abgeschlossen ist und keine Zunahme der Konzentration mehr aufgezeichnet wird (vgl. Anhang D). Die eingehaltene Konsolidierungszeit von sieben Tagen je Versuch ist damit ausreichend lang gewählt. Die Aufzeichnung der Dichteverteilung erlaubt die spätere Quantifizierung der Erosionstiefen und die Entwicklung der kritischen Sohlschubspannung über die Tiefe der Sedimentschicht mit Hilfe der ermittelten Entwicklung der Schwebstoffkonzentration in der Wassersäule (vgl. Kapitel 4).

#### d) Herstellung des Sedimentbetts im Kreisgerinne

Für den Aufbau der Sedimentschicht im Kreisgerinne werden etwa 90 kg feuchtes Sediment benötigt. Diese Massenangabe kann je nach Wassergehalt des gewählten Sedimentfasses um bis zu 11 % abweichen. Das entspricht etwa 1,5 Fässern, die für den Einbau im Kreisgerinne vorbereitet werden. Zur Bestimmung der genauen Massen wird am Vortag des Einbaus jeweils eine Sedimentprobe aus den beiden zufällig ausgewählten Fässern entnommen und der Wassergehalt mittels einer mindestens zwölfstündigen Trocknung der Probe bei 105°C bestimmt. Nach der erfolgreichen Trocknung der Proben kann die benötigte Masse an Sediment bestimmt und überschüssiges Sediment, welches nicht für den Einbau im Kreisgerinne benötigt wird, entfernt werden. Das verbleibende Sediment wird mit Leitungswasser verflüssigt, da auch im Kreisgerinne Leitungswasser benutzt wird, um die Wasserhöhe von 325 mm zu erreichen. Das Sediment wird soweit mit Wasser verflüssigt, bis sich die Suspension gut über ein Sieb mit einer Maschenweite von d = 6,3 mm gießen lässt. Die Siebung wird durchgeführt, um die groben Bestandteile vor dem Einbau zu entfernen und somit mögliche Schädigungen des Versuchsstands (Glasbruch) und der Messtechnik zu vermeiden (Abbildung 3-18).



Abbildung 3-18: Siebrückstand für d > 6,3 mm, der nicht ins Kreisgerinne eingebracht wird; hier: Sediment aus dem Rhein

Das verflüssigte und gesiebte Sediment kann anschließend in das Kreisgerinne gegeben werden. Nachdem für das Bett das benötigte Sediment in den Versuchsstand eingebracht ist, wird Leitungswasser bis zur gewünschten Wasserhöhe von h = 325 mm aufgefüllt. Ziel ist die Schaffung einer abgelagerten Sedimentschicht (vgl. Kapitel 2.2.3) als Folge der Deposition. Dafür werden Rührer in den Deckel des Kreisgerinnes eingesetzt und das Kreisgerinne für ca. 30 Minuten bei maximaler aufzubringender Sohlschubspannung von  $\tau_{max} = 0,80 \text{ N/m}^2$  gedreht. Anschließend kann sich das Sediment sieben Tage absetzen und konsolidieren, bevor die Erosionsphase beginnt.

#### 3.5.4 Belastungsverlauf

Jedes Experiment verläuft unabhängig von der gewählten Konfiguration der Parameter zeitlich gleich ab. Dabei besteht ein Experiment aus drei Phasen, die nachfolgend kurz beschrieben werden (Abbildung 3-19). Allgemein gilt, dass der Verlauf der Experimente eine starke Abstraktion sämtlicher Erosionsereignisse (z. B. Baggerung, Unterhaltungsmaßnahmen, Hochwasser) darstellt und somit eine Vergleichbarkeit und Bewertung ermöglicht wird. Nachdem Sediment und Wasser in das Kreisgerinne eingebracht sind, beginnt die Mischphase des jeweiligen Experiments. Um ein gleichmäßig abgelagertes Sedimentbett mit tiefenvariabler Dichte zu erhalten, wird die Suspension für ca. 30 Minuten bei maximaler Sohlschubspannung von  $\tau_{max} = 0,80 \text{ N/m}^2$  durchmischt. Um eine bessere Durchmischung zu erreichen, werden zusätzlich noch Rührstäbe am Deckel befestigt.

Nach der Durchmischung der Suspension werden die Rührstäbe aus dem Kreisgerinne entnommen und die Konsolidierungsphase beginnt. Über einen Zeitraum von sieben Tagen setzt sich das Sediment ab, bis die Konsolidierung durch das Eigengewicht abgeschlossen ist (vgl. Kapitel 2.2.3). Weiterhin führt die siebentägige Konsolidierungszeit zu einer Stabilisierung der Schadstoff-Partikelbindung. Das eigentliche Experiment folgt in der letzten Phase, der Erosionsphase. Die Auswahl der maximalen Sohlschubspannung und die Höhe der Stufenwechsel ergeben sich aus Literaturangaben (vgl. Kapitel 2.2), den bereits am Kreisgerinne durchgeführten Studien von SPORK (1997) und SCHWEIM (2005) und der durchgeführten Machbarkeitstudie. Dabei wird über sieben Tage die Sohlschubspannung von  $\tau_1 = 0,05 \text{ N/m}^2$  bis auf  $\tau_8 = 0,40 \text{ N/m}^2$  in acht Stufen erhöht. Die Sohlschubspannung wird bei einem Stufenwechsel um  $\Delta \tau = 0,05 \text{ N/m}^2$  bei einer Stufendauer von  $t_i = 21$  Stunden erhöht. Damit hat die Erosionsphase ebenfalls eine Gesamtdauer von sieben Tagen (168 Stunden). Insgesamt umfasst ein Experiment eine Gesamtdauer von 336 Stunden.



Abbildung 3-19: Zeitliche Entwicklung der Sohlschubspannung (in rot) und die zugehörigen Phasen im Verlauf der hydrotoxikologischen Experimente

#### 3.5.5 Fazit zum experimentellen Aufbau der hydrotoxikologischen Methodik

Der systematische Verlauf der Experimente basiert auf den etablierten Experimenten nach MEHTA & PARTHENIADES (1982). Weiterhin wurde dieser Verlauf der Experimente auch in den Arbeiten von SPORK (1997) und SCHWEIM (2005) durchgeführt, so dass die Übertragbarkeit der bestehenden Erfahrungen, Handlungsabläufe und Ergebnisse auf die hier durchgeführten Experimente zulässig ist. Der Versuchsstand und die verfügbare Messtechnik bieten die Möglichkeit den gesamten Transportkreislauf kohäsiver Sediment zu untersuchen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde nur die Erosion untersucht, da während der Planung der Experimente die Erosion schadstoffbehafteter kohäsiver Sedimente als besonders kritisch hinsichtlich der ökotoxikologischen Risiken für aquatische Organismen identifiziert wurde. Daraus resultiert, dass die Strömung im Kreisgerinne optimiert wurde, so dass sie sich gleichmäßig über die Gerinnebreite verteilt und die durch die Rotation entstehenden Sekundärströmung möglichst eng an den Wandungen anliegen, so dass von einer gleichmäßigen Erosion ausgegangen werden kann.

Ferne wurde die Messtechnik umfangreich ausgebaut und umfasst nun auch Sonden zur Überwachung der Umweltbedingungen im Kreisgerinne während der gesamten Erosionsphase. Die dazu notwendige Messzelle mit den integrierten Messsonden wurde in einem Umlaufkreislauf außerhalb des Kreisgerinnes angebracht, um die Strömung nicht zu stören. Die Messaufnahme relevanter Umweltparameter ist notwendig, da Wechselwirkungen und Prozesse in Zusammenhang mit der Erosion und der Schadstofffreisetzung sowie -aufnahme zu erwarten sind.

Die erfolgreiche Exposition der aquatischen Organismen wurde durch eine kontinuierliche Luftzugabe unterstützt. In einem zeitlich vorgeschalteten Klarwasserexperiment wurde das Schwimmverhalten beobachtete und als normal eingestuft, so dass eine Exposition unter Belastung in Form von Sedimenten und Schadstoffen genehmigt wurde.

Die Auswahl der Experimente verfolgt das Ziel, unterschiedliche Parameter gezielt zu isolieren und auf diesem Weg die Machbarkeit der neuen Methodik sowie Wechselwirkungen und Prozesse der unterschiedlichen Parameter zu identifizieren und anschließend bewerten zu können.

#### 3.6 Diskussion der zu erwartenden Modelleffekte

Die Vorstellung der hydrotoxikologischen Methodik durchlief unterschiedliche Entwicklungsstadien, die zum Prozessverständnis der übergeordneten Fragestellung (vgl. Kapitel 1) und zur Optimierung der experimentellen Umsetzung beitrugen. Dabei wurde das formulierte Ziel der ganzheitlichen Sedimentbewertung nicht aus dem Fokus verloren, da es die bisher noch theoretische Basis der durchgeführten Experimente darstellt, die jedoch einige Optimierungs- und Abstrahierungsphasen durchlaufen mussten. Daher kann in dieser Arbeit der Weg gezeigt werden, wie die hydrotoxikologische Methodik aufgebaut wird. Die konsequente konzeptionelle Umsetzung der ersten erfolgreichen Experimente half, die Methodik in ersten Schritten zu validieren.

In einem ersten Schritt wurden unabhängig von der Komplexität und praktischen Umsetzbarkeit die fünf Parametergruppen (*Sedimenttyp*, *Organismus*, *Hydrodynamik*, *Schadstoffgruppe* und *Umweltbedin-gungen*; vgl. Abbildung 3-1) definiert, die in engem Zusammenhang mit den beteiligten Fachgebieten Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie) stehen. Dabei ist es notwendig, dass die Anforderungen der beiden Fachgebiete berücksichtigt werden, um die Vielzahl der angenommenen Prozesse und Wechselwirkungen mit dem höchstmöglichen Detaillierungsgrad zukünftig abbilden zu können.

Zur Gewährleistung der Reproduzierbarkeit und des Aufbaus konstanter Laborabläufe wurde eine Abstrahierung der Parameter und der damit zusammenhängenden experimentellen Umsetzung notwendig. Die ersten Experimente im Rahmen der Machbarkeitsstudie zeigen noch einen geringeren Bezug zur Natur, da hier künstliches Sediment nach der OECD-Richtlinie 218 (OECD, 2004) mit nachträglicher Zugabe von Schadstoffen zum Einsatz kam. Nur mit Hilfe dieser Vorexperimente und den daraus resultierenden Ergebnissen konnte nach einer Optimierungsphase, die die Messtechnik und die Peripherie des Kreisgerinnes betraf, mit den Hauptexperimente zeigen einen deutlich höheren Komplexitätsgrad, da der Einsatz zweier natürlicher Sedimentgruppen in Kombination mit künstlicher Schadstoffbelastung (hier: Kupfersulfat) als auch natürlicher Schadstoffbelastung (hier: hohe PAKs-Belastung) erfolgreich umgesetzt werden konnte. Dabei folgen die Experimente immer den gleichen drei Schritten: (1) Realisierung, (2) Verknüpfung und (3) Bewertung (vgl. Abbildung 3-2), die dem Projektbearbeiter die nötige Freiheit bieten, die geplanten Experimente individuell an die speziellen Anforderungen der fünf Parametergruppen im Betrachtungsraum anzupassen.

Zur Validierung der hydrotoxikologischen Methode wurde der Betrachtungsraum eingeschränkt. So wurden die ersten Experimente auf limnische Systeme beschränkt. Jedoch ist eine Erweiterung auf marine Bedingungen jederzeit möglich und benötigt nur eine vorgeschaltete Anpassungsphase zur Prüfung der Anforderungen an Versuchsstand und Messtechnik. Da diese Bedingungen im Rahmen der durchgeführten Hauptexperimente nicht getestet wurden, sollte weiterhin eine Validierungsphase durchgeführt werden, um die Güte der Ergebnisse und eine resultierende hydrotoxikologische Bewertung einordnen zu können und somit eine Übertragung auf natürliche Betrachtungsräume zu ermöglichen.

Neben den zahlreichen Vorteilen (vgl. Tabelle 3-1 in Kapitel 3.2 und Kapitel 3.3.1), die das Kreisgerinne als Versuchsstand für hydrotoxikologische Experimente bietet, treten Modelleffekte auf, die die Übertragbarkeit auf natürliche Betrachtungsräume einschränkt und Raum für Optimierungsphasen schafft. Im Bereich der Parametergruppe *Sediment* können Modelleffekte für die Konsolidierungsphase (vgl. Abbildung 3-19) identifiziert werden, da keine natürlichen Ablagerungszeiten erreicht werden und die sekundäre Konsolidierung sowie Alterungsprozesse mit gestörten Sedimentproben aus Baggerung im Labor nicht realisiert werden können. Daher kommt es in den durchgeführten Experimenten zu einem reduzierten Erosionswiderstand im Vergleich zu Beobachtungen in der Natur. Diese früher einsetzende Erosion beeinflusst somit auch die Freisetzung und Bioverfügbarkeit der eingesetzten Schadstoffe im Kreisgerinne.

Bei der Exposition der Testorganismen, die der Parametergruppe Organismus zugeordnet sind, zeigte sich im Verlauf der Erosionsphase eine stark erhöhte Schwebstofffracht aufgrund der Schwimmbewegungen in Kombination mit der begrenzten Wassertiefe. Dies führte zu Unterschieden im Bereich der Charakterisierung des Erosionsverhaltens der experimentellen Gruppen B und C (vgl. Abbildung 3-14). Daher waren die Fische einem weit höheren Schwebstoffgehalt ausgesetzt als bei der jeweiligen Sohlschubspannung üblich. Weiterhin können natürliche Verdünnungsraten, wie sie in Oberflächengewässern zu verzeichnen sind und folglich die biozugänglichen Schadstoffkonzentrationen nochmal reduzieren, mit dem gegebenen Aufbau des Kreisgerinnes momentan nicht realisiert werden und stellen eine weitere Übertragungsgrenze da, die mit einer geeigneten Optimierungsphase jedoch auch im Labormaßstab umgesetzt werden kann.

Das Kreisgerinne stellt einen speziellen Versuchsaufbau zur Charakterisierung des Transportverhaltens kohäsiver Sedimente dar. In diesem Versuchsstand ist es möglich, alle Teilprozesse des Transports einzeln zu untersuchen. Die erste Umsetzung der hydrotoxikologischen Methode hat sich ausschließlich auf die Erosion schadstoffbelasteter Natursedimente konzentriert. Validierungsmessungen konnten zeigen, dass die erzeugte Sohlschubspannung im Gerinne gleichverteilt über das gesamte Belastungsspektrum ( $\tau_8 = 0,40 \text{ N/m}^2$ ), das im Rahmen der Experimente abgedeckt wurde, ist und Sekundärströmungen durch die gegensinnige Rotation der Bauteile reduziert werden (vgl. Anhang A). Die *hydrodynamischen Verhältnisse* sind klar definiert und lassen sich zu jedem Zeitpunkt der Erosionsphase klar bestimmen. Natürliche Sohlschubspannungsbereiche können bis  $\tau_{max} = 0,80 \text{ N/m}^2$  im Kreisgerinne erreicht werden. Der ausgewählte Versuchsstand ist geeignet, grundlegende Mechanismen der Erosion kohäsiver Sedimente zu untersuchen und die Ergebnisse zu reproduzieren. Natürliche Turbulenzen und heterogene Sohlschubspannungsverteilungen können nicht realisiert werden. Weiterhin ist auch eine Charakterisierung der Sedimentationsprozesse kohäsiver Sedimente im Kreisgerinne möglich.

Eine weitere Übertragungsgrenze stellt die nachträgliche Belastung der Sedimente mit Schadstoffen dar. Die natürliche Varianz und damit einhergehende Alterungsprozesse der unterschiedlichen *Schadstoffgruppen* werden dabei nicht abgebildet. Jedoch stellt die Vielzahl der unterschiedlichen Schadstoffe in natürlichen Systemen momentan noch eine Bewertungsgrenze dar, da die Wechselwirkungen unbekannt sind und verstärkende und hemmende Prozesse in Bezug auf die Schadstofffreisetzung und -aufnahme derzeit nicht quantifiziert werden können. Wie bereits mehrfach in dieser Arbeit erwähnt, kann nur mit einer Abstrahierung und Isolierung den verschiedenen beeinflussenden Parametern begegnet werden, welches auch die limitierende Anzahl der Schadstoffe mit einbezieht. Hinzukommend können bei einer nachträglichen Schadstoffzugabe die auftretenden Alterungsprozesse (beispielsweise biologischer und chemischer Abbau der Schadstoffe, Bioakkumulation und Umlagerungsprozesse in der Sedimentschicht) nicht abgebildet werden, die die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der Schadstoffe beeinflussen können.

Die Erweiterung der Messtechnik zur Überwachung der Parametergruppe der Umweltbedingungen im Kreisgerinne lieferte zuverlässige Daten, die kontinuierlich aufgezeichnet werden konnten. Diese Forderung muss gewährleistet sein, um optimale Lebensbedingungen für die exponierten aquatischen Organismen zu schaffen und konstant zu halten. Die ausgewählten Parameter (pH-Wert, Redoxpotential, gelöster Sauerstoffgehalt, elektrische Leitfähigkeit, Wasserhärte und Wassertemperatur) gaben dabei einen guten Überblick über die Qualität des Wassers und dessen Änderungen im Verlauf der Erosionsphase. Eine Übertragung auf natürliche Systeme sollte möglich sein, bedarf jedoch einer Validierungsphase mit anschließenden Vergleichsmessungen im Labor und *in situ*.

Generell ist die Validierung der hydrotoxikologischen Methodik, die im Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University umgesetzte wurde, erfolgreich abgeschlossen. Die hydrotoxikologische Methodik wurde bewusst flexibel aufgebaut, um Anpassungen und Optimierungen für weitere natürliche Betrachtungsräume durchführen zu können. Diese Arbeit stellt daher nur eine erste Umsetzung dar und soll Anreize schaffen und Fragen aufwerfen, die in anschließenden Studien angegangen werden können, um die globale Fragestellung der interdisziplinären Sedimentbewertung mittels praktischer Methoden zu bearbeite und zukünftige Lösungen entwickeln zu können. Erste Optimierungsphasen und weiterführende Ideen zur hydrotoxikologischen Methodik finden sich detailliert in Kapitel 1.

# 4 Ergebnisse und Interpretation der hydrotoxikologischen Untersuchungen

# 4.1 Vorbemerkung

Die Auswertung der durchgeführten hydrotoxikologischen Experimente teilt sich in unterschiedliche Bereiche auf. Bei der folgenden sedimentologischen Auswertung (vgl. Kapitel 4.2) wird eine klassische Charakterisierung des Erosionsverhaltens der eingesetzten Natursedimente. Die Darstellung und Diskussion konzentriert sich auf die Beschreibung der Erosionsprozesse der Experimente der Gruppe B (Erosionsexperimente ohne Tierexposition) unterstützt durch die Verläufe der Erosionsraten und der kritischen Sohlschubspannungen je Sedimentcharge. Die Experimente der Gruppe C (Erosionsexperimente mit Tierexposition) werden in diesem Zusammenhang nicht detailliert betrachtet.

Anschließend werden ausgewählte Ergebnisse aus dem Fachgebiet der Ökotoxikologie vorgestellt. Dabei werden zum einen die chemische Analytik der gewonnen Wasser-, Schwebstoffsowie Sedimentproben und zum anderen die Biomarkeranalysen nach Tierexposition vorgestellt (vgl. Kapitel 4.2.6). Die gesamte Auswertung und Interpretation der ökotoxikologischen Schwerpunkte werden hier nicht vorgestellt. Es wird lediglich ein Überblick mit Verweisen zu den dazugehörigen Publikationen und sonstige Arbeiten gegeben. Abschließend werden die experimentellen Daten der beiden Fachdisziplinen korreliert (vgl. Kapitel 4.4), um die Zusammenhänge der unterschiedlichen Parametergruppen zu identifizieren und eine hydrotoxikologische Bewertung überhaupt erst zu ermöglichen.

# 4.2 Sedimentologische Auswertung

# 4.2.1 Qualitative Beschreibung der grundlegenden Erosion

Die Beschreibung der Erosionsverläufe der durchgeführten Experimente der Gruppe B unter individuellen wie vergleichenden Gesichtspunkten hilft, charakteristische Zeitpunkte und kritische Erosionsprozesse zu erkennen und diese anschließend zu interpretieren. Die Beschreibung erfolgt anhand Abbildung 4-1 mit dem Verlauf der Schwebstoffkonzentration über die gesamte Dauer der Erosionsphase in Kombination mit der wirkenden Sohlschubspannung zum jeweilig betrachteten Zeitpunkt des Experiments.

Der Verlauf der Schwebstoffkonzentrationen zeigt eine Zunahme für alle durchgeführten Experimente mit zunehmender Dauer der Erosionsphase. Weiterhin ist zu beobachten, dass nach fast jedem Belastungswechsels, der alle 21 Stunden stattfindet, eine sprunghafte Erhöhung der Schwebstoffkonzentration aufgezeichnet werden konnte, die anschließend in einem konstanten Verlauf der Schwebstoffkonzentration endet und sich folglich Gleichgewichtsbedingungen des Schwebstofftransports in der Wassersäule am Stufenende einstellen.

In den unteren Belastungsstufen bis ca.  $\tau_3 = 0,15 \text{ N/m}^2$  zeigen alle Experimente einen vergleichbaren Verlauf der Schwebstoffkonzentrationen, also eine ähnliche Entwicklung der Erosion in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung und Zeit. Dabei liegen die Schwebstoffkonzentrationen aller Experimente unter C = 1 g/l mit C<sub>min</sub> = 0,02 g/l für das Experiment B4 und C<sub>max</sub> = 0,67 g/l für das Experiment B5 (Abbildung 4-1). Ab der vierten Belastungsstufe  $\tau_4 = 0,20 \text{ N/m}^2$  laufen die Schwebstoffkonzentrationen auseinander, besonders deutlich zeigt sich diese Entwicklung bei Experiment B5 und folglich können den Experimenten individuelle Erosionsprozesse und Verläufe der Schwebstoffkonzentration zugeordnet werden. Die außerordentliche Entwicklung der Schwebstoffkonzentration in Experiment B5 wird detailliert in Kapitel 4.2.2 b beschrieben.



Abbildung 4-1: Verlauf der berechneten Schwebstoffkonzentrationen SPM<sub>b</sub> (kontinuierlicher Verlauf) und die dazugehörigen gemessenen Schwebstoffkonzentrationen (gefüllte Messpunkte) während der gesamten Erosionsphase bei gleichzeitiger Angabe der wirkenden Sohlschubspannung für alle Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)

Es folgt eine Beschreibung der einzelnen Experimente und deren zugehörigen Besonderheiten, die in der nachfolgenden detaillierten Analyse der Daten wieder aufgegriffen werden. Mit Hilfe der Interpretation des Verlaufs der Schwebstoffkonzentration können unterschiedliche Prozesse (z. B. Flockenerosion) aufgezeigt werden und kritische sowie charakteristische Größen bzw. Schwellenwerte (z. B. charakteristische Sohlschubspannung als Übergang zur Tiefenerosion; vgl. Kapitel 2.2.4) für die unterschiedlichen Experimente identifiziert werden.

Neben der zeitlichen Entwicklung der Schwebstoffkonzentration (Abbildung 4-1) erlaubt die Darstellung der berechneten Schwebstoffkonzentration am Stufenende, eine genauere Aussage über die vorliegenden Erosionstypen zu treffen (Abbildung 4-2). Durch die lineare Verbindung der Endzustände je Stufe können Gradienten bestimmt und bei deutlichen Gradientenänderungen charakteristische Schwellenwerte verdeutlicht werden. Mit Hilfe der Identifikation von Gradientenänderungen lassen sich Übergänge von Oberflächen- zu Tiefenerosion bestimmen. Weiterhin erlaubt die Betrachtung der Endzustände bei wechselnden Gradienten die Identifikation von lokalen Schwachstellen in der abgelagerten Sedimentschicht. Ein einfacher Gradientenwechsel kann beispielsweise für das Experiment B2 beim Übergang auf  $\tau_7 = 0.35$  N/m<sup>2</sup> aufgezeigt

werden. Im Verlauf des Experiments B5 ist ein doppelter Gradientenwechsel ersichtlich, der ein Hinweis auf eine Schwachstelle im Sedimentbett sein kann. Die beiden Wechsel vollziehen sich von Stufe 3 auf 4 sowie von Stufe 6 auf 7. Eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Experimente für Gruppe B mit direktem Bezug zu Abbildung 4-1 und Abbildung 4-2 wird im folgenden Kapitel 4.2.2 gegeben.



Abbildung 4-2: Verlauf der Schwebstoffkonzentrationen in Abhängigkeit der Sohlschubspannung zum Ende einer jeden Belastungsstufe für alle Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)

### 4.2.2 Qualitative Beschreibung und Interpretation der Erosionstypen und -prozesse

#### a) Beschreibung des Experiments B1

Tabelle 4-1: Parameterzusammensetzung des Experiments B1

B1 Rheinsediment Keine Schadstoffzugabe Keine Fischexposition Nativer pH-Wert

Das Sedimentbett wird über die vorgestellten acht Belastungsstufen schrittweise mit einer maximalen Schwebstoffkonzentration  $C_{max, B1} = 1,12 \text{ g/l}$  bei Abschluss der Erosionsphase nach 168 Stunden erodiert. Bei jeder Belastungsstufe kommt es zu Beginn zu einem sprunghaften Anstieg der Schwebstoffkonzentration bevor sich ein Gleichgewichtszustand einstellt (Abbildung 4-1).

Bei der Belastung der Sedimentschicht im Experiment B1 gibt es zwei nennenswerte Besonderheiten während der Belastungsstufen  $\tau_2 = 0,10 \text{ N/m}^2$  und  $\tau_6 = 0,30 \text{ N/m}^2$ . Bei beiden Stufen ist das gleiche Phänomen zu beobachten. Nach der generell auftretenden plötzlichen Zunahme der Schwebstoffkonzentration zu Beginn der Stufe mit Entwicklung hin zu einem konstanten Verlauf, kann nach einigen Stunden eine weitere spontane Zunahme der Schwebstoffkonzentration verzeichnet werden. Diese beiden Bereiche können Hinweise auf ein plötzliches Versagen einer Schwachstelle sein, die erst nach längerer Einwirkung der Sohlschubspannung erodiert wird. Durch die Verwendung natürlicher Sedimente können Unregelmäßigkeiten im Schichtaufbau und folglich im Erosionsverhalten auftreten.
Bei der Betrachtung der Entwicklung der Schwebstoffkonzentration dargestellt über die Sohlschubspannung ist eine gleichmäßige Zunahme der Konzentration mit einem konstanten Gradienten von 2,37 zu verzeichnen, so dass die anfängliche Schwebstoffkonzentration  $C_{1,B1} = 0,24 \text{ g/l}$  um den Faktor 5,18 auf  $C_{8,B1} = 1,11 \text{ g/l}$  zum Ende des Experiments ansteigt (Abbildung 4-2). Die stattfindende Erosion während der gesamten Erosionsphase kann der Oberflächenerosion zugeordnet werden. Die ausgewerteten Daten geben folglich keine Hinweise auf Prozesse der Tiefenerosion, so dass die charakteristische Sohlschubspannung dieser Sedimentschicht im Verlauf der Erosionsphase nicht erreicht werden konnte.

#### b) Beschreibung des Experiments B2

Tabelle 4-2:	Parameterzusammensetzung	des	Experiments	B2
1 00000 1 2.		1105	Deperments	102

B2 Rheinsediment Kupferzugabe Keine Fischexposition Nativer pH-Wert

Das mit Kupfersulfat belastete Sedimentbett wird über die acht Belastungsstufen schrittweise mit einer maximalen Schwebstoffkonzentration  $C_{max, B2} = 2,39$  g/l bei Abschluss der Erosionsphase nach 168 Stunden erodiert. Bei den ersten sechs Belastungsstufen kommt es zu Beginn zu einem sprunghaften Anstieg der Schwebstoffkonzentration bevor sich eine konstante Schwebstoffkonzentration einstellt. Während der siebten und achten Belastungsstufen kann ebenfalls ein sprunghafter Anstieg der Schwebstoffkonzentration aufgezeigt werden. Jedoch verläuft dieser im Gegensatz zu den vorherigen Stufen etwas über die Hälfte der Dauer der Belastungsstufen bevor sich anhand der Messdaten eine Beruhigung der Erosion einstellt (Abbildung 4-1). Am Ende der beiden letzten Belastungsstufen stellt sich eine konstante Schwebstoffkonzentration ein.

Bei der Betrachtung der Endzustände jeder Stufe (Abbildung 4-2) kann ein Gradientenwechsel von Stufe 6 auf 7 identifiziert werden, der auch über Stufe 8 konstant weiterverläuft. Ab diesem Punkt ändert sich der Verlauf der Schwebstoffkonzentration. Es kommt zu einer vermehrten Erosion. Der Gradientenwechsel könnte ein Hinweis auf den Wechsel des Erosionstyps darstellten.

#### c) Beschreibung des Experiments B3



B3	Rheinsediment	Kupferzugabe	Keine Fischexposition	pH-Wert 6,5
----	---------------	--------------	-----------------------	-------------

Das mit Kupfersulfat belastete Sedimentbett wird über die acht Belastungsstufen schrittweise mit einer maximalen Schwebstoffkonzentration  $C_{max, B3} = 2,37$  g/l bei Abschluss der Erosionsphase nach 168 Stunden erodiert. Während der gesamten Erosionsphase ist der pH-Wert auf konstant pH 6,5 abgesenkt gewesen. Bei jeder Belastungsstufe kommt es zu Beginn zu einem sprunghaften Anstieg der Schwebstoffkonzentration bevor sich eine konstante Konzentration einstellt. Dabei kann beobachtet werden, dass die Zunahme der Schwebstoffkonzentration mit jeder Steigerung der wirkenden Sohlschubspannung stärker ausfällt. Besonders deutlich zeigt sich dies beim Wechsel auf  $\tau_2$ ,  $\tau_3$ ,  $\tau_5$  und  $\tau_7$ . Bei diesen Belastungsstufen können Schwebstoffzunahmen von bis zu 100 % zur vorangegangenen Stufe bestimmt werden. Am Ende der sechsten Belastungsstufe  $\tau_6 = 0,30 \text{ N/m}^2$  kommt es zu einer Störung im Messkreislauf, so dass die nachfolgende starke Reduzierung der Schwebstoffkonzentration nicht in die Bewertung der Erosion dieses Sedimentbetts mit einbezogen wird.

Mit der letzten Belastungsstufe ändert sich das Erosionsverhalten des Sedimentbetts deutlich. Der zuvor beobachtete starke Anstieg der Schwebstoffkonzentrationen wiederholt sich nicht, vielmehr werden nur 0,27 g/l innerhalb der 21 Stunden erodiert. Im direkten Vergleich mit der siebten Stufe kommt dies einer Reduzierung der Erosion um ca. 40 % gleich. Dies deutet darauf hin, dass sich im Verlauf der Konsolidierungsphase eine widerstandsfähigere Schicht ausgebildet hat. Es ist folglich eine weitere Erhöhung der wirkenden Sohlschubspannung notwendig, um die Erosion dieses Sediments weiter zu interpretieren.

### d) Beschreibung des Experiments B4

#### Tabelle 4-4: Parameterzusammensetzung des Experiments B4

B4 Rheinsediment/ Keine Schadstoffzugabe Keine Fischexposition Nativer pH-Wert Moselsediment

Das Sedimentbett ist mit Sediment aus den Fließgewässern Rhein und Mosel mit einem Mischungsverhältnis von 1:1 aufgebaut. Für die erste Stufe konnte keine Erosion durch eine zunehmende Schwebstoffkonzentration erfasst werden. Erst ab der zweiten Belastungsstufe kommt es zu Erosionserscheinungen. Das Experiment endet mit einer maximalen Schwebstoffkonzentration von  $C_{max, B4} = 1,01$  g/l.

Die erste Besonderheit im Verlauf der Schwebstoffkonzentration kann während der vierten Belastungsstufe  $\tau_4 = 0,20 \text{ N/m}^2$  identifiziert werden. Hier erfolgt nach einer anfänglich allmählichen Erosion eine sprunghafte Zunahme der Schwebstoffkonzentration erst nach mehreren Stunden der Einwirkung (Abbildung 4-1). Dies deutet auf eine lokale Schwachstelle mit reduziertem Erosionswiderstand hin. Bestätigt wird diese Aussage durch einen Gradientenwechsel, der nach der Belastungsstufe wieder auf den anfänglichen Wert zurückgeht (Abbildung 4-2). Zeitlich betrachtete kann die Erosion vor und nach der beschriebenen Schwachstelle der Oberflächenerosion zugeordnet werden.

#### e) Beschreibung des Experiments B5

#### Tabelle 4-5: Parameterzusammensetzung des Experiments B5

B5 Moselsediment Keine Schadstoffzugabe Keine Fischexposition Nativer pH-Wert

Das Sedimentbett ist mit Sediment aus der Mosel aufgebaut. Für die ersten drei Belastungsstufen stellt sich nach anfänglicher Erosion ein konstanter Schwebstoffverlauf ein. Der geringe Gradient in Kombination mit dem Verlauf der Schwebstoffkonzentration erlaubt die Aussage, dass Oberflächenerosion vorliegt.

Mit Einsetzen der vierten Belastungsstufe  $\tau_4 = 0,20 \text{ N/m}^2$  kommt es zu einem sprunghaften Anstieg der Schwebstoffkonzentration, dabei kann eine vierfache Zunahme der Schwebstoffkonzentration aus den Trübungswerten berechnet werden, sodass sich ausgehend von C<sub>3</sub> = 0,67 g/l eine Konzentration von  $C_4 = 2,55$  g/l ergibt. Wie bereits im Experiment B4 beobachtet, muss es sich hier um eine lokale Schwachstelle im Bettaufbau handeln, da sich anschließend das gleiche Gradientenniveau einstellt und somit nicht von Tiefenerosion gesprochen werden kann. Die nachfolgenden zwei Belastungsstufen verlaufen ohne weitere Auffälligkeiten nach Prozessen der Oberflächenerosion.

Während der siebten Belastungsstufe  $\tau_7 = 0,35 \text{ N/m}^2$  kann wieder ein sprunghafter Anstieg der Konzentration nicht nur zu Beginn der Stufe beobachtete werden. Auch innerhalb der Stufe kommt es zu einer weiteren plötzlichen Änderung der Schwebstoffkonzentration. Jedoch geht die Erosion wieder zurück und am Ende der Belastungsstufe kann ein konstanter Verlauf gezeigt werden. Die achte Belastungsstufe  $\tau_8 = 0,40 \text{ N/m}^2$  endet mit einer kontinuierlich verlaufenden Schwebstoffkonzentration.

### f) Kombinierte Betrachtung der Experimente B1, B2 und B3

Aufgrund der Kombination der Parameter bietet sich eine kombinierte Betrachtung der Experimente B2 und B3 an. In beiden Experimenten erfolgte während der Einbauphase des Sedimentbetts eine Kupferzugabe. Der Unterschied bei der Durchführung der Experimente stellt der reduzierte pH-Wert auf pH 6,5 in Experiment B3 dar.

Bei einem qualitativen Vergleich der zeitlichen Verläufe der Schwebstoffkonzentrationen zeigt sich, dass in den ersten vier Belastungsstufen die Schwebstoffkonzentration in Experimente B2 höher liegt als in Experiment B3. Ab der fünften Belastungsstufe wird mehr Sediment in Experiment B3 erodiert, so dass die Schwebstoffkonzentrationen von Experiment B2 stets niedriger liegen. Mit der letzten Stufe gleichen sich die Werte an und die Experimente enden mit einer ähnlichen Schwebstoffkonzentration von 2,36 g/l für Experiment B3 und 2,53 g/l für Experiment B2. Die Erosion der beiden Sedimentbetten verläuft sehr ähnlich und es können keine deutlichen Unterschiede, die auf die Reduzierung des pH-Werts zurückgeführt werden können, identifiziert werden.

Bei einem Vergleich mit Experiment B1 wird jedoch ersichtlich, dass die beiden Experimente B2 und B3 ein anderes Erosionsverhalten und damit einen anders gearteten Verlauf der Schwebstoffkonzentration während der Erosionsphase zeigen. Die Erosion bei Experiment B1 verläuft konstant und bis zur fünften Belastungsstufe mit Schwebstoffkonzentrationswerten stets oberhalb von Experiment B2 und B3. In den oberen Belastungsstufen  $\tau_5$  bis  $\tau_8$  liegen die Schwebstoffkonzentrationen am Ende der Erosionsphase um den Faktor 2,27 für B1 auf B2 und den Faktor 2,13 für B1 auf B3 höher.

Die Ähnlichkeit der Experimente B2 und B3 in Zusammenhang mit den Unterschieden zu Experiment B1 führt zu der Annahme, dass die Zugabe des Kupfers das Erosionsverhalten (hier: Erosionswiderstand) nachhaltig verändert hat.

#### g) Kombinierte Betrachtung der Experimente B1, B4 und B5

Bei der kombinierten Betrachtung der drei Experimente B1, B4 und B5 gilt für die Parameterauswahl, dass sich die Sedimentzusammensetzung ändert. So besteht das Sediment in Experiment B1 ausschließlich aus Rheinsediment (B1). Bei Experiment B4 wird ein gemischtes Sedimentbett mit einem Mischungsverhältnis von 1:1 der Sedimente aus Rhein und Mosel hergestellt. Beim abschließenden Experiment B5 ist das abgelagerte Sedimentbett aus Moselsediment aufgebaut. Es ist davon auszugehen, dass sich mit der Zusammensetzung der Sedimentbetten die Erosionseigenschaften ändern.

Der Verlauf der Schwebstoffkonzentration zeigt, dass die Experimente mit reinen Sedimentzusammensetzungen (B1 und B5) einen geringeren Erosionswiderstand aufweisen als das Experiment B4 mit der gemischten Sedimentzusammensetzung. Das Sedimentbett infolge der kombinierten Sedimente zeigt eine höhere Erosionsstabilität. Eine detaillierte Analyse ist aufgrund der geringen Datenlage zum derzeitigen Wissensstand nicht möglich.

Hinzukommend lassen sich Gemeinsamkeiten bei den Experimenten mit Moselsediment finden. So ist bei beiden Experimenten ein sprunghafter Anstieg der Schwebstoffkonzentration bei Belastungsstufe  $\tau_4$  zu verzeichnen. So kann für Experiment B5 ein absoluter Schwebstoffanstieg von 1,88 g/l und für Experiment B4 einer von 0,43 g/l angegeben werden. Dies entspricht bei Experiment B5 einer 3,9-fachen Erhöhung der Schwebstofffracht. Für Experiment B4 kann diese Erhöhung mit einem Faktor von 7,3 angegeben werden. In den folgenden zwei Stufen  $\tau_5$  und  $\tau_6$  zeigt sich in beiden Experimenten, dass keine signifikante Erosion stattfindet. Dabei liegen die erodierten Schwebstoffmengen zwischen 0,01 g/l bis 0,09 g/l. Erst ab der siebten Stufe wird in beiden Experimenten wieder eine geringe Menge Sediment in Schwebe gebracht. Dabei liegen die erodierten Mengen zwischen 0,22 g/l bei Experiment B4 bis 0,71 g/l bei Experiment B5.

## 4.2.3 Zusammenfassung der qualitativen Beschreibung der Erosionstypen

Nach der individuellen und der gemeinsamen Betrachtung und Beschreibung der Erosion der Experimente, die der Gruppe B zugeordnet werden können, lassen sich zusammenfassend die folgenden Aussagen treffen:

- Eine Erosion der verwendeten natürlichen Sedimenttypen ist auch nach den umfangreichen Anpassungsarbeiten für die Hydrotoxikologie im Kreisgerinne grundsätzlich möglich und konnte erfolgreich durchgeführt werden.
- Die kritische Sohlschubspannung konnte über die Tiefe in jedem Experiment überschritten werden. Bei den Experimenten B2, B4 und B5 konnten lokale Schwachstellen identifiziert werden, durch eine sprunghafte Erhöhung der Schwebstoffkonzentration. Es wird angenommen, dass die charakteristische Sohlschubspannung in keinem Experimente überschritten wird.
- Weiterhin kann die Aussage getroffen werden, dass bei der Zugabe des Schwermetalls Kupfers und der gleichzeitigen Absenkung des pH-Werts auf 6,5 die Erosionsstabilität der gesamten Sedimentschicht geschwächt wird und es zu einer vermehrten Erosion infolge der einwirkenden Sohlschubspannung kommt. So erreichen die Schwebstoffkonzentrationen in Experiment B2 2,27-fach und in Experiment B3 2,13-fach höhere Werte im Vergleich mit Experiment B1.
- Für die beiden Sedimenttypen zeigen sich stark unterschiedliche maximal erreichte Schwebstoffkonzentrationen infolge der Erosion. Dabei wird das Sediment, das der Mosel entnommen wurde, tendenziell stärker erodiert, so dass die Schwebstoffdaten des Rheinsediments deutlich übertroffen werden. Dabei liegen die maximalen Schwebstoffkonzentrationen des Experiments B5 um den Faktor 5,94 höher im Vergleich mit Experiment B1.

#### 4.2.4 Analyse und Entwicklung der Erosionsraten

Die Bestimmung der Erosionsraten (Gleichung 2.1) hilft, Erosionstiefen und Erosionsart (Flockenerosion und Massenerosion) quantitativ zu bestimmen. Dafür muss ein Kriterium zur Unterscheidung zwischen Flocken- und Massenerosion definiert werden. Im Rahmen der Auswertung der hydrotoxikologischen Experimente wird das Kriterium nach SCHWEIM (2005) verwendet, da seine Auswertung und die resultierenden Ergebnisse im selben Versuchsstand gewonnen wurden und damit eine Vergleichbarkeit der auftretenden Sohlschubspannungen und der resultierenden Erosion gewährleistet ist. Das Kriterium zur Unterteilung der Erosionsarten wird zu 10 % der mittleren maximal auftretenden Erosionsraten zu Beginn einer jeden Belastungsstufe definiert (Abbildung 4-3). Im ersten Schritt wird die maximale Erosionsrate für jedes Experiment und jede Belastungsstufe ermittelt. Für die Experimente der Gruppe B ergeben sich 39 Werte. Aus diesen Werten wird der Mittelwert gebildet. Als letzter Schritt wird die Flockenerosionsgrenze als 10 %-Wert vom berechneten Mittelwert angegeben. Für die Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B) ergibt sich daher ein Wert von  $\varepsilon_f = 3,20 \cdot 10^{-5} \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ . Für alle berechneten Erosionsraten, die kleiner als der angegebene Schwellenwert sind, kann Flockenerosion angesetzt werden. Im Um-kehrschluss folgt für alle größeren Werte der Bereich der Massenerosion (vgl. Kapitel 2.2.4).



Abbildung 4-3: Darstellung der Flockenerosionsgrenze als 10 %-Wert der gemittelten maximalen Anfangswerte der auftretenden Erosionsraten für die Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)

Die umfangreiche und aussagekräftige Analyse des Erosionsverhaltens kohäsiver Sedimente bedarf der Prüfung, ob die Belastungsdauer lang genug gewählt wurde, damit alle auftretenden Prozesse messtechnisch erfasst werden konnten. Die Stufenlänge ist daher so zu wählen, dass am Ende einer jeden Stufe keine Massenerosion mehr bestimmt werden kann und sich demzufolge eine konstante Schwebstoffkonzentration einstellt (vgl. Abbildung 4-1). Die Prüfung der genannten Bedingung erfolgt anhand der Mittelwertbildung aller Erosionsraten über die letzten zwei Stunden einer jeden Belastungsstufe. Die Mittelwerte der letzten zwei Stunden liegen in den durchgeführten Experimenten weit unter der bestimmten Flockenerosionsgrenze, so dass ein Gleichgewicht zwischen Sedimentation und Erosion in allen Experimenten ohne Tierexposition erreicht wird (Abbildung 4-4). Die Stufenlänge von 21 Stunden ist somit ausreichend lang gewählt, um mit den aufgezeichneten Daten eine zuverlässige Analyse des Erosionsverhaltens sicherzustellen.



Abbildung 4-4 Darstellung der Erosionsraten am Stufenende aller Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B)

Die berechneten Schwebstoffkonzentrationen in Kombination mit den Daten aus den Konsolidierungsversuchen erlauben die Bestimmung der Erosionstiefen der durchgeführten Experimente (Abbildung 4-5). Dabei wird die Änderung der Schichtdicke  $\Delta z_i$  aus dem Quotienten der Änderung der Schwebstoffkonzentration  $\Delta C_i$  und der Sedimentdichte  $\varrho$  in Abhängigkeit der Schichttiefe z berechnet. Anschließend wird der Quotient mit der resultierenden Wassertiefe h multipliziert (vgl. Gleichung 4.1).

$$\Delta z_i = \mathbf{h} \cdot \frac{\Delta C_i}{\rho(\mathbf{z})} \tag{4.1}$$

$\Delta z_i$	=	Änderung der Schichtdicke infolge Erosion	[m]
h	=	Wassertiefe	[m]
ΔC	=	Änderung der Schwebstoffkonzentration	$[g/m^3]$
$\rho(z)$	) =	Sedimentdichte an Position z <sub>i</sub>	$[g/m^3]$

Der Verlauf der Erosionstiefe erfolgt über die Zuordnung zu den acht Belastungsstufen. Dabei schwankt die Erosionstiefe zwischen  $h_{min, B4} = 4,85$  mm und  $h_{max, B5} = 11,59$  mm (Abbildung 4-5). Da die Erosionstiefe direkt abhängig ist von den berechneten Schwebstoffkonzentrationen, kann auch hier die plötzlich zunehmende Erosion bei den verschiedenen Experimenten (z. B. Experimente B4 und B5) nachvollzogen werden.



Abbildung 4-5: Darstellung der Erosionstiefe aller Experimente ohne Tierexposition (Gruppe B) am Ende einer jeden Belastungsstufe

### 4.2.5 Kurzvorstellung der Resuspension bei gleichzeitiger Tierexposition

#### a) Einführung in die Experimente der Gruppe C

Für die Experimente mit Tierexposition (Gruppe C) lassen sich keine klassischen Aussagen zur Charakterisierung des Erosions- und Transportverhaltens der abgelagerten Natursedimente formulieren, da aufgrund der Wassertiefe von h = 325 mm das Schwimmverhalten der exponierten Regenbogenforellen zu einer vermehrten Resuspension des abgelagerten Sedimentbetts geführt hat (Abbildung 4-6). Der Begriff der Erosion wird in diesem Zusammenhang vermieden, da der Einfluss der Tiere maßgebend ist und daher natürliche Erosionsprozesse in den Hintergrund treten und nicht klar von der Sedimentaufwirbelung (Resuspension) abgegrenzt werden können. So zeigen die maximalen Schwebstoffkonzentrationen für die Experimente der Gruppe C um den Faktor 6,48 bis 76,33 höhere Werte im Vergleich mit den Experimenten der Gruppe B ohne Tierexposition. Trotz der äußeren Einwirkung durch die Tiere lassen sich wiederholende Verläufe zur Entwicklung der Schwebstoffkonzentration unabhängig von der Größenordnung identifizieren, die wie bereits erwähnt nicht genutzt werden sollten, um kritische und charakteristische Sohlschubspannungen zu definieren und Aussagen über Erosionsprozesse wie Flocken- und Massenerosion sowie Wechsel von Oberflächen- zu Tiefenerosion zu treffen. Um die sedimentbedingten Prozesse grob darzustellen, wird im Anschluss an die Vorstellung der tatsächlichen Schwebstoffdaten der Einflussfaktor EF<sub>Fisch</sub> eingeführt und die Daten dahin gehend korrigiert, dass nur die reinen Prozesse infolge der Erosion dargestellt werden.



Abbildung 4-6: Exposition der Versuchstiere im Kreisgerinne mit resultierender Schwebstoffkonzentration

## b) Qualitative Vorstellung der Experimente C3 und C5

Für die anschließende Auswertung der Experimente der Gruppe C ist es notwendig zwei Experimente besonders hervorzuheben und dessen Besonderheiten mit Auswirkungen für die Auswertung zu beschreiben. Die beiden Experimente C3 und C5 mussten im Verlauf der Erosionsphase frühzeitig abgebrochen werden.

Ziel des Experiments C3 war die Erfassung der ökotoxikologischen Auswirkung nach Zugabe von Kupfersulfat bei einer gleichzeitigen Reduzierung des pH-Werts auf pH 6,5. Der Durchführung des Experiments lag die Annahme zugrunde, dass die Ökotoxizität im Vergleich zu Experiment C2 (Kupferzugabe, nativer pH) gesteigert werden kann. Die Kombination führte jedoch zu einer akuten Toxizität mit einer hundertprozentigen Mortalität der eingesetzten Versuchstiere drei Stunden nach dem Start der Erosionsphase. Diese Mortalitätsrate erfüllt nicht die aufgestellten Kriterien zur erfolgreichen Durchführung hydrotoxikologischer Experimente (Tabelle 3-2). Das Experiment wurde im Verlauf der Hauptstudie nicht wiederholt.

Im Experiment C5 wurde Sediment aus der Mosel ein das Kreisgerinne eingebracht und Versuchstiere exponiert. Die Resuspension des Sediments hatte eine hohe Sauerstoffzehrung zur Folge (Abbildung 4-7). Trotz zusätzlich installierter Luftzufuhr konnte keine zuverlässige Versorgung der exponierten Versuchstiere sichergestellt werden. Folglich wird ein Kriterium zur erfolgreichen Durchführung hydrotoxikologischer Experimente nicht erfüllt und führt zu einem Abbruch des Experiments nach 118 Stunden (Tabelle 3-2).



Abbildung 4-7: Verlauf des gelösten Sauerstoffgehalts in [mg/l] für das Experiment C5

## c) Quantitative Vorstellung der Experimente der Gruppe C

Generell gilt für alle aufgezeichneten und berechneten Schwebstoffdaten der Gruppe C, dass im Verlauf der Erosionsphase eine kontinuierliche Zunahme der Schwebstoffkonzentration stattfindet. Eine auffällige Besonderheit stellt die erste Belastungsstufe  $\tau_1 = 0,05 \text{ N/m}^2$  dar, auf der für die Experimente der Gruppe C keine eindeutige Zunahme der Schwebstoffkonzentration infolge Resuspension gezeigt werden kann. Auf dieser Belastungsstufe schwanken die berechneten Schwebstoffkonzentrationen um Mittelwerte, die für die durchgeführten Experimente in Tabelle 4-6 angegeben werden können.

Tabelle 4-6:	Angabe der mittleren Schwebstoffkonzentration und dazugehörigen Standardabweichung für die erste Be-
	lastungsstufe mit $\tau_1 = 0.05 \text{ N/m}^2$ für Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)

Nr.	Mittlere Schwebstoffkonzentration [g/l]	Standardabweichung [g/l]
C1	4,00	0,76
C2	8,44	0,51
C3	abgebrochen	
C4	1,67	0,30
C5	1,55	0,35

Nachfolgend kann gezeigt werden, dass ab einer Sohlschubspannung  $\tau \ge 0,10 \text{ N/m}^2$  zu Beginn einer jeden folgenden Belastungsstufe eine Erhöhung der Schwebstoffkonzentration verzeichnet werden kann (Abbildung 4-8). Dieser Anstieg der Schwebstoffkonzentration kann auf mögliche Erosionsprozesse hindeuten. Der Verlauf der Schwebstoffkonzentration während einer Belastungsstufe lässt aufgrund der genannten Überlagerung mit der Resuspension keine eindeutigen Rückschlüsse auf das Verhalten der Sedimente zu. So zeigt sich zum Ende einer jeden Belas-



tungsstufe kein Gleichgewichtszustand wie es bei den Experimenten der Gruppe B gezeigt werden konnte.

Abbildung 4-8: Verlauf der berechneten Schwebstoffkonzentration (kontinuierliche Linien) für die Experimente der Gruppe C bei gleichzeitiger Tierexposition; zusätzlich sind die diskreten Messwerte der gewonnen Schwebstoffproben eingetragen (ungefüllte Punkte)

Auf Basis der beschriebenen Verläufe der Schwebstoffkonzentrationen und der Überlagerung von Resuspension und Erosion kann unter Angabe von großen Unsicherheiten eine Flockenerosionsgrenze definiert werden (Abbildung 4-9). Das Kriterium zur Unterscheidung der Erosionsarten wird wie bereits bei den Experimenten der Gruppe B zu 10 % der mittleren maximal auftretenden Erosionsraten zu Beginn einer jeden Belastungsstufe definiert. Daraus ergibt sich eine Flockenerosionsgrenze von  $\varepsilon_f = 7,02 \, 10^{-3} \, \text{kg/m}^2$  s. Die Grenze liegt eine 10er-Potenz höher im Vergleich zu den Experimenten ohne Tierexposition (Gruppe B), so dass sich auch hier zeigen lässt, dass durch die Anwesenheit der Testorganismen mehr Sediment in Schwebe gebracht und transportiert wird. Mit Hilfe dieser Grenze ist eine grobe Angabe zum Erosionsverhalten des Sediments möglich. So kann gezeigt werden, dass am Ende einer jeden Belastungsstufe keine Massenerosion mehr vorliegt (Abbildung 4-10). Dies belegt, dass eine ausreichend lange Dauer für jede Belastungsstufe gewählt wurde, bevor eine Zunahme der Sohlschubspannung folgt.



Abbildung 4-9: Darstellung der Flockenerosionsgrenze als 10 %-Wert der gemittelten maximalen Anfangswerte der auftretenden Erosionsraten für Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)



Abbildung 4-10: Nachweis der Unterschreitung der Flockenerosionsgrenzen am Ende jeder Belastungsstufe für Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)

Weitere Aussagen zur Erosion sind mit der vorliegenden Datenlage nicht möglich. Die Berechnung der Erosionstiefe wird nicht durchgeführt, da die exponierten Tiere lokal das Sedimentbett zerstört haben, so dass sich an den Schadstellen eine verstärkte Erosion beobachten ließ, die nicht die ungestörten Erosionsprozesse wiedergibt.

#### d) Exposition von Testorganismen als Einflussfaktor EF<sub>Fisch</sub>

Die Vorstellung der Ergebnisse zum sedimentologischen Auswertungsschwerpunkt zeigt deutlich die Unterschiede zwischen den Gruppen B und C. Wird der Ansatz weiterverfolgt, dass die Tiere einen zusätzlichen Einfluss auf die Erosion nehmen, kann die Annahme aufgestellt werden, dass der Einflussfaktor Fisch  $EF_{Fisch}$  aus der vorhandenen Datenlage bestimmt werden kann. Dieser Einflussfaktor Fisch  $EF_{Fisch}$  ist als Modelleffekt zu deklarieren und besitzt nur in dem hier vorliegenden experimentellen Aufbau Gültigkeit. Durch diesen Modelleffekt ist eine direkte Übertrag-

barkeit ohne eine Anpassung und Einordnung der Ergebnisse auf andere Untersuchungssituationen nicht gegeben.

Die Reduzierung der Schwebstoffkonzentration für die Experimente C1, C2, C4 und C5 kann nicht über einem konstanten Faktor erfolgen. Mit zunehmender Sohlschubspannung ist eine prozentual größere Abweichung anzunehmen, die sich auch qualitativ in Abbildung 4-1 und Abbildung 4-8 nachvollziehen lässt. Der Einflussfaktor EF<sub>explizit</sub> auf Basis der expliziten Messwerte wird ausgedrückt durch das Verhältnis der Schwebstoffkonzentrationen in den Experimenten der Gruppe B und C zu gleichen Zeitpunkten (Gleichung 4.1). Bei einer Bestimmung der prozentualen Abweichung auf Grundlage der expliziten Messwerte ergibt sich eine relativ hohe Streuung der Daten (Abbildung 4-11, graue Datenpunkte).

$$EF_{explizit} = \frac{SPM_B}{SPM_C} 100\%$$

$$EF_{explizit} = Expliziter Einflussfaktor Fisch [-]$$

$$SPM_B = Schwerstoffkonzentration Gruppe B [g/l]$$

$$SPM_C = Schwerstoffkonzentration Gruppe C [g/l]$$

$$(4.2)$$

Zu Berechnung des Einflussfaktors Fisch  $EF_{Fisch}$  wird die prozentuale Änderung der Schwebstoffkonzentrationen der Experimente der Gruppe C in Bezug auf die Experimente der Gruppe B mit Hilfe der in Tabelle 4-14 angegebenen Regressionsfunktionen berechnet. Dafür werden die berechneten Werte erst klassiert bevor die Regressionsanalyse durchführt wird (Abbildung 4-11, blaue Datenpunkte). Als feste Randbedingung wird die geringste prozentuale Abweichung der Schwebstoffkonzentrationen mit 4 % angegeben.

Tabelle 4-7:	Regressionsfunktionen zur Berechnung der prozentualen Reduzierung der Schwebstoffkonzentration infolge exponierter Regenbogenforellen im Kreisgerinne für Experimente mit Tierexposition (Gruppe C)
	Regressionsfunktion
	$EF_{Fisch} = 4.0 - 7 \cdot \tau + 57 \cdot \tau^2$

Durch die Verwendung der Regressionsanalyse für die Ausgangsdaten konnte die Streuung der Daten konzentriert und gleichzeitig der grundlegende Trend und die Veränderung des Einflussfaktors beibehalten werden (Abbildung 4-11).



Abbildung 4-11: Darstellung des Einflussfaktors Fisch EF<sub>Fisch</sub> als prozentuale Reduzierung der Schwebstoffkonzentration SPM<sub>C</sub> in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung

Der Einflussfaktor Fisch  $EF_{Fisch}$  wird mit Hilfe der wirkenden Sohlschubspannung bestimmt und anschließend mit der kontinuierlichen Schwebstoffkonzentration verrechnet. Der daraus resultierende Zusammenhang ist nicht allgemeingültig zu verstehen, sondern als Modelleffekt, der in dieser Intensität ausschließlich im Kreisgerinne zu beobachten ist. Nach Anwendung des Einflussfaktors Fisch  $EF_{Fisch}$  liegen die Schwebstoffkonzentrationen SPM<sub>C</sub> für die Gruppe C im gleichen Konzentrationsbereich wie die Schwebstoffdaten für die Experimente der Gruppe B (Abbildung 4-12). Die Reduzierung der Schwebstoffkonzentrationen SPM<sub>C</sub> darf nicht bei der anschließenden Auswertung der Umweltparameter und ökotoxikologischen Daten verwendet werden, da das Sediment einen maßgeblichen Einfluss auf die Entwicklung und Ausprägung der Parameter in diesen Parametergruppen hat und die erhöhte Schwebstoffkonzentration daher nicht vernachlässigt werden kann.



Abbildung 4-12: Darstellung der reduzierten Schwebstoffkonzentration für Experimente der Gruppe C im Vergleich mit den Daten für Experimente der Gruppe B

Bei der Betrachtung des kontinuierlichen Verlaufs der reduzierten Schwebstoffkonzentrationen sind Prozesse infolge Erosion zu erkennen (Abbildung 4-13).



Abbildung 4-13: Verlauf der reduzierten Schwebstoffkonzentration nach Einführung des Einflussfaktors EF<sub>Fisch</sub> für die Experimente der Gruppe C bei gleichzeitiger Tierexposition

### 4.2.6 Fazit zur sedimentologischen Auswertung

Nach der Beschreibung der Erosion auf Basis der Beobachtung der Entwicklung der Schwebstoffkonzentrationen folgt die analytische Beschreibung der Erosion nach Bestimmung der Flockenerosionsgrenzen und der daraus abgeleiteten Berechnung der Erosionstiefen. Dabei konnte für die Experimente der Gruppe B eine Flockenerosionsgrenze von  $\varepsilon_f = 3,20 \cdot 10^{-5} \text{ kg/m}^2 \text{ s}$  bestimmt werden. Für die Experimente der Gruppe B lässt sich festhalten, dass die identifizierte Erosion im Bereich der Oberflächenerosion liegt. Zu keinem Zeitpunkt wurde die charakteristische Sohlschubspannung überschritten. Die Erosionstiefen schwanken zwischen einem minimalen Wert von  $h_{min, B4} = 4,85$  mm bis zu einer maximalen Erosionstiefe von  $h_{max, B5} = 11,59$  mm. Bei der kombinierten Betrachtung der Experimente B1, B2 und B3 kann festgestellt werden, dass die Zugabe von Kupfer als Vertreter für Schwermetallbelastung tendenziell eine Reduzierung des Erosionswiderstands zur Folge hat. Bei der gemeinsamen Auswertung der Experimente B1, B4 und B5 zeigt sich, dass das gemischte Sedimentbett die höchste Erosionsstabilität aufweist, was sich dadurch auszeichnet, dass die Schwebstoffkonzentrationen stets unterhalb der Werte der Experimente B1 und B5 liegen. Für die Experimente B4 und B5 konnte ein vergleichbares Erosionsverhalten bei den Belastungsstufen  $\tau_4$  bis  $\tau_7$  gezeigt werden. Zu Beginn der vierten Stufe kommt es zu einer signifikanten Erosion, in den kommenden beiden Stufen 5 und 6 findet hingegen eine zu vernachlässigende Erosion statt bevor mit Stufe 7 wieder eine große Menge Schwebstoff in die Wassersäule eingetragen wird.

Für die Experimente der Gruppe C kann zusammenfassend zur Aussage gebracht werden, dass die Testorganismen einen maßgeblichen Einfluss auf die Entwicklung der Schwebstoffkonzentration haben. So lässt sich eine angenäherte Flockenerosionsgrenze mit einem Wert von  $\varepsilon_f = 7,02 \ 10^{-3} \ \text{kg/m}^2$  s bestimmen. Dabei lassen sich die unterschiedlichen Größenordnungen mit Bezug zu den Experimenten der Gruppe B auf die Exposition der Testorganismen im Kreisgerinne zurückführen. So liegen die maximalen Schwebstoffkonzentrationen am Ende der Erosionsphase bei 10,29 g/l (C5) bis 21,75 g/l (C2). Eine grobe Abschätzung des Einflusses der Testorganismen auf die Entwicklung der Schwebstoffkonzentration ergab eine prozentuale Reduzierung der Schwebstoffdaten um 4,59 % bei  $\tau_1 = 0,05 \ \text{N/m}^2$  bis hin zu 10,36 % bei der maximalen Belastung von  $\tau_8 = 0,40 \ \text{N/m}^2$ .

# 4.3 Ökotoxikologische Auswertung

# 4.3.1 Vorbemerkung

Die Vorstellung und Beschreibung der ökotoxikologischen Ergebnisse beinhaltet zum einen die chemische Analytik der gewonnen Sedimentproben und zum anderen die Auswertung und Interpretation der Biomarkeranalyse aus den Experimenten mit Tierexposition (Gruppe C). Eine anschließende Verknüpfung der fachbereichsspezifischen Ergebnisse schließt Kapitel 1.

Die ökotoxikologische Auswertung verfolgte im Rahmen dieser Untersuchung zwei Schwerpunkte. Zum einen wurde die Auswirkung der Schwermetallbelastung am Beispiel von Kupfer untersucht. In diesem Fall wurde das Sediment aus dem Rhein nachträglich mit Kupfer dotiert und die Regenbogenforellen exponiert. Der zweite Schwerpunkt lag auf den ökotoxikologischen Auswirkungen organischer Belastungen am Beispiel der 16 EPA-PAKs. Dieses Ziel wurde durch die Baggerung des stark kontaminierten Sediments aus der Mosel umgesetzt. Die nachfolgende Tabelle 4-8 gibt die jeweiligen Experimente und die zugehörigen ausgewerteten Proben mit Bezug zu den beiden Auswertungsschwerpunkten wieder.

		0 0						
Auswertungsschwerpunkt <b>Kupfer</b> (Kapitel 4.3.2)			Auswertungs <b>PAK</b> (Kapite	sschwerpu el 4.3.3)	nkt			
Experiment	Chemische z folgenden ge Sediment	Analytik o ewonnen SPM	ler Proben: Wasser- phase	Biomarker- analyse:	Chemische A folgenden ge Sediment	Analytik de wonnen F SPM	er Proben: Wasser- phase	Biomarker- analyse:
B1	-	Х	X	-	-	Х	-	-
B2		Х	Х					
B3		Х	Х					
B4					Х	Х		

Tabelle 4-8:	Berücksichtigte Proben der durchgeführten Experimente im jeweiligen Auswertungsschwerpunkt im Rah-
	men der chemischen und ökotoxikologischen Analytik; es liegen Ergebnisse für die Bereiche vor, die mit ei-
	nem x gekennzeichnet sind.

	Auswertungsschwerpunkt <b>Kupfer</b> (Kapitel 4.3.2)			Auswertung <b>PAK</b> (Kapit	sschwerpu el 4.3.3)	inkt		
ent	Chemische Analytik der folgenden gewonnen Proben:		Biomarker- analyse:	Chemische A folgenden ge	Analytik de wonnen I	er Proben:	Biomarker- analyse:	
Experime	Sediment	SPM	Wasser- phase		Sediment	SPM	Wasser- phase	
В5					Х	Х		
C1		Х	Х	Х	Х	Х		Х
C2		Х	Х	Х				
C3			(X)					
C4					Х	Х		Х
C5					Х	Х		Х
D1				Х				Х

# 4.3.2 Auswertungsschwerpunkt - Schwermetallbelastung mit Kupfer

# a) Ausgewählte Darstellung der chemischen Sedimentanalytik

Neben der Analyse der Biomarker und der resultierenden möglichen Aussage zur Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit der Schwermetallbelastung wurde eine chemische Analyse der gewonnen Schwebstoff- und Wasserproben zur Bestimmung der Kupferkonzentration durchgeführt. Diese Ergebnisse helfen, die Freisetzung und den Verbleib des Kupfers während der Erosionsphase nachvollziehen zu können. Hier werden exemplarisch die Verläufe der Kupferkonzentration in den gewonnen Schwebstoffproben und der Wasserphase vorgestellt (Abbildung 4-14 und Abbildung 4-15).

Bereits unter qualitativen Gesichtspunkten sind Ähnlichkeiten der Verläufe der Schwebstofffrachten der dotierten und undotierten Experimente zu erkennen. So entwickeln sich die Cu-Werte der Experimente B1 und C1 (beide undotiert) und die Werte der Experimente B2 und B3 (beide mit Cu dotiert) jeweils im gleichen Konzentrationsbereich (Abbildung 4-14). Dabei steigen die Konzentrationswerte für Experimente B1 und C1 im Verlauf der Erosionsphase leicht an, bevor diese gegen Ende des jeweiligen Experiments wieder sinken. Die Konzentrationswerte für Experiment C2 (Cu-dotiert) liegen deutlich oberhalb der bereits genannten Experimente, da die Schwimmbewegung der Forellen in einer deutlich erhöhten Schwebstofffracht in der Wassersäule resultiert und somit auch die Konzentration der nachweisbaren Cu-Konzentration in den gewonnen Proben im direkten Vergleich mit Experiment B2, welches unter den gleichen Randbedingungen abgelaufen ist, ansteigt.



Abbildung 4-14: Zeitlicher Verlauf der Kupferkonzentration im Schwebstoff für die experimentellen Gruppen B und C (verändert nach SCHAFFRATH (2012))

Mit Hilfe der ausgewerteten Konzentrationen für Kupfer in der Wasserphase, kann die Freisetzung des Kupfers nachvollzogen und damit die Annahme für eine gesteigerte Bioverfügbarkeit des anwesenden Schwermetalls formuliert werden. Die Ergebnisse zeigen eine erhöhte Cu-Konzentration für die dotierten Sedimente im Vergleich mit den nativ eingesetzten Sedimentchargen (Abbildung 4-15). Für die Experimente B1, B3 und C2 konnte eine Zunahme der Cu-Konzentration in der Wasserphase im Verlauf der Erosionsphase gezeigt werden (Tabelle 4-9). Weiterhin ist für das Experiment C3 von einer hohen Cu-Konzentration in der Erosionsphase auszugehen, da sich bereits zu Beginn der Erosionsphase eine 1,78-fache Erhöhung der Konzentration von  $C_{C3-0} = 27,63 \,\mu g/l$  auf  $C_{C3-1} = 49,40 \,\mu g/l$  innerhalb einer sehr kurzen Zeitspanne (t = 10 min) zeigte, bevor der Versuch aufgrund hoher Mortalitätsraten abgebrochen wurde (Tabelle 4-9, letzte Zeile). Das Experiment C1 zeigt einen konstanten Verlauf der Cu-Konzentration, wobei der Anfangswert höher liegt und sich anschließend die Konzentrationswerte auf einen Mittelwert von 8,98±4,37  $\mu g/l$  einpendeln (Abbildung 4-15).

	Experimente aer Gruppen B und C	
Experi-	Beginn der Erosionsphase ( $t_0 = 0$ h)	Ende der Erosionsphase ( $t_1 = 168 h$ )
ment	Cu-Konzentration in der Wasserphase	Cu-Konzentration in der Wasserphase
	[µg/1]	[µg/1]
B1	19,50	22,40
B2	15,60	-

 Tabelle 4-9:
 Änderung der Cu-Konzentration in der Wasserphase am Anfang und Ende der Erosionsphase für die Experimente der Gruppen B und C

Experi- ment	Beginn der Erosionsphase (t <sub>0</sub> = 0 h) Cu-Konzentration in der Wasserphase [μg/l]	Ende der Erosionsphase (t <sub>1</sub> = 168 h) Cu-Konzentration in der Wasserphase [µg/l]
B3	50,70	149,00
C1	19,10	7,39
C2	53,60	129,00
C3	27,63	49,40 (t = 10 min)



Abbildung 4-15: Zeitlicher Verlauf der Kupferkonzentration in der Wasserphase während der Erosionsphase für die Experimente der Gruppe B und C (verändert nach SCHAFFRATH (2012))

Nach Auswertung der Zeitreihen zeigen sich bei der Mittelwertbetrachtung der Schwebstoff- und Wasserproben, dass je höher die Konzentration an Kupfer im Sediment ist, desto mehr Kupfer wird im Verlauf der Erosionsphase in die Wasserphase freigesetzt (Tabelle 4-10). Die Freisetzung steigt tendenziell mit zunehmender Schwebstofffracht, so dass diese sich nochmals in den Experimenten der Gruppe C steigert. Die durch die Exposition der Fische gesteigerte Sedimentfracht führt daher zu einem Modelleffekt im Rahmen der hier durchgeführten Experimente, da die tatsächliche Freisetzung bei klassischer Erosion niedrigere Werte zeigte und daher eine geringere Belastung für die exponierten Tiere angenommen werden kann.

 Tabelle 4-10:
 Mittlere Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht gegeben in [mg] Cu je [kg] trockenes Sediment und der Wasserphase gegeben in [µg] je Liter

Experiment	Mittlere Cu-Konzentration in der Schwebstofffracht [mg/kg]	Mittlere Cu-Konzentration in der Wasserphase [µg /l]
B1	$178,06 \pm 92,65$	$21,43 \pm 4,51$
B2	$1582,70 \pm 103,31$	$18,80 \pm 4,53$

Experiment	Mittlere Cu-Konzentration in der Schwebstofffracht [mg/kg]	Mittlere Cu-Konzentration in der Wasserphase [µg /l]
B3	$2011,98 \pm 1111,72$	$70,13 \pm 52,81$
C1	$157,33 \pm 25,98$	6,88 ± 1,74
C2	$2616,38 \pm 255,71$	83,61 ± 22,86
C3	-	36,25 (nur Anfangssituation)

### b) Darstellung der Biomarkeranalyse für Metallothioneinkonzentrationen in der Leber

Für die ökotoxikologische Bewertung der kupferbelasteten Sedimente erfolgte eine Exposition von Regenbogenforellen im Kreisgerinne. Zur Vergleichbarkeit der Ergebnisse erfolgen die Experimente der Gruppe C (mit Tierexposition) und B (ohne Tierexposition) unter den gleichen Randbedingungen. Die genaue Aufstellung und Kombination der Experimente kann dem Programm in Kapitel 3.5.2 entnommen werden. Für die Beurteilung und Bewertung der ökotoxikologischen Auswirkung der belasteten Sedimente werden vier unterschiedliche Fischgruppen aus den Experimenten D1, C1 und C2 sowie der Hälterung betrachtet, deren Leber nach der Exposition hinsichtlich der Metallothioneinkonzentrationen (MT-Konzentration) ausgewertet wird (vgl. Kapitel 2.5). Zur Identifikation der Hintergrundkonzentration erfolgt eine Bestimmung der Proteinkonzentrationen von Fischen aus der Hälterungseinrichtung. Die Einflüsse aus dem Kreisgerinne werden mit drei unterschiedlichen Experimenten (D1, C1 und C2) abgedeckt, deren Belastung je Experiment für die exponierten Fische zunimmt. Für alle vier Fischgruppen wurden jeweils zehn Tiere verwendet.

Ein Anstieg der MT-Konzentration in der Leber gilt als Indikator für eine Schwermetallbelastung. So wird auf Basis der gegenwärtigen Literatur angenommen, dass die MT-Konzentration von Experiment D1 beginnend über Experiment C1 steigt und bei Experiment C2 die höchsten messbaren Werte aufweist (Abbildung 4-16). Im Rahmen dieser Studie lagen die MT-Konzentrationen des Experiments D1 jedoch höher als die der Experimente C1 und C2, wobei das eingesetzte Sediment in Experiment C2 zusätzlich mit Kupfer dotiert war. Im Rahmen der Hauptstudie zur Validierung der Hydrotoxikologie zeigte die MT-Konzentration keine signifikanten Ergebnisse, um die ökotoxikologisch Auswirkung der Kupferbelastung nachzuweisen (Abbildung 4-16). Diese Studie konnte folglich die positive Anwendbarkeit der MT-Konzentration als Biomarker für Schwermetallbelastung nicht stützen, da die positive Kontrolle ausblieb. Im Rahmen der Ergebnisdiskussion wird eine Kombination verschiedener Biomarker als Lösung für zukünftige Experimente vorgeschlagen.



Abbildung 4-16: Metallothioneinkonzentration gegeben in [µg MT/mg Gesamtprotein] in der Leber im Bezug zur gesamten Proteinkonzentration für die vier ausgewerteten Tiergruppen aus Hälterung und den Experimenten D1, C1 und C2 (verändert nach SCHAFFRATH (2012))

#### c) Darstellung der Kupferbelastung in den Kiemen der exponierten Fischgruppen

Die gleiche Fischgruppe wurde verwendet, um die anhaftenden Kupferkonzentrationen an den Kiemen zu bestimmen, nachdem sich ein negatives Ergebnis für die gewählte Biomarkeranalyse ergeben hatte. Die Analyse konnte zeigen, dass die Kupferkonzentration an den Kiemen bei Exposition gegenüber kupferbelastetem Sediment deutlich ansteigt (Abbildung 4-17). Dieses Ergebnis lässt jedoch noch keine Rückschlüsse auf den Transport des Kupfers in den Organismus selbst zu und darüber, ob das Kupfer die Leber erreicht und dort metabolisiert wird. Dies zeigten die nicht signifikanten Ergebnisse der Bestimmung der MT-Konzentrationen. In weiteren Untersuchungen sollte weiter beobachtet werden, ob ein Zusammenhang zwischen geeigneten Biomarkern, die Rückschlüsse auf Aufnahme und Metabolisierung von Kupfer erlauben, und der Kupferkonzentration an den Kiemen hergestellt werden kann.



Abbildung 4-17: Kupferkonzentration in [µg/kg] an den Kiemen der exponierten Fische aus der Hälterung und den Experimenten D1, C1 und C2 (verändert nach SCHAFFRATH (2012))

# 4.3.3 Auswertungsschwerpunkt – organische Belastung mit prioritären polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen

## a) Ausgewählte Darstellung der chemischen Sedimentanalytik

Im Rahmen der chemischen Analytik wurden Sediment- und Schwebstoffproben untersucht und die Konzentrationen der 16 prioritären EPA-PAKs (vgl. Kapitel 2.3.3) bestimmt. Die Sedimentproben der Experimente B4, B5, C1, C4 und C5 zeigen alle einen Rückgang der Konzentrationen zwischen Start und Ende der Erosionsphase (Tabelle 4-11). Der geringste Abbaufaktor von 0,94 konnte in Experiment B5 aufgezeigt werden und die größten Faktoren von 0,21 bzw. 0,23 ließen sich für die Experimente B4 bzw. C5 bestimmen. Den prozentual höchsten Anteil bei Betrachtung der einzelnen PAKs stellen Fluoranthen (ca. 19,96 %), Pyren (ca. 13,90 %) und Ben-zo[*b*]fluoranthen (ca. 10,17 %).

Tabelle 4-11:	PAK-Konzentrationen in Sedimentproben, gegeben in [mg] je [kg] Trockengewicht (TG), für alle 16
	EPA-PAKs und als Summenkonzentrationen; für das Experiment B1 sind keine Sedimentdaten vor-
	handen.

	Exper	iment								
	<b>B</b> 4		<b>B</b> 5		C1		C4		C5	
EPA-PAK [mg/kg TG]	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de
Naphthalin	0,14	0,03	0,24	0,21	0,07	0,04	0,10	0,04	0,28	0,04
Acenaphthylen	1,10	0,17	2,00	2,00	0,16	0,08	0,52	0,39	2,80	0,71
Acenaphthen	0,62	0,11	2,00	1,70	0,03	0,02	0,33	0,13	1,90	0,25
Fluoren	1,20	0,19	<b>4,</b> 60	4,00	0,08	0,04	0,58	0,21	4,40	0,69
Phenanthren	2,60	0,48	12,00	9,80	0,50	0,27	1,40	1,00	7,70	1,40

	Exper	iment								
	<b>B</b> 4		<b>B</b> 5		C1		C4		C5	
EPA-PAK [mg/kg TG]	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de	Start	En- de
Anthracen	2,10	0,37	4,30	4,30	0,28	0,13	1,00	0,65	5,40	1,30
Fluoranthen	8,50	1,90	20,00	18,00	1,50	0,92	<b>4,</b> 70	2,10	22,00	<b>4,3</b> 0
Pyren	6,20	1,30	13,00	12,00	1,10	0,69	3,40	1,50	14,00	3,00
Chrysen	3,10	0,82	5,60	5,80	0,62	0,40	1,80	0,75	6,70	1,70
Benzo[a]anthracen	3,60	0,87	6,80	<b>6,</b> 70	0,62	0,40	2,00	0,87	7,90	1,90
Benzo[b]fluoranthen	4,00	0,92	7,30	7,30	1,00	0,70	2,50	1,20	8,30	2,30
Benzo[k]fluoranthen	1,50	0,35	2,60	2,70	0,32	0,22	0,89	0,44	3,00	0,81
Benzo[ <i>a</i> ]pyren	3,30	0,72	4,80	5,20	0,64	0,45	1,90	1,00	6,00	1,80
Benzo[ghi]perylen	1,70	0,41	2,90	3,00	0,45	0,30	1,10	0,80	3,40	0,94
Dibenzo[a,h]anthracen	0,48	0,11	0,84	0,88	0,14	0,09	0,31	0,21	0,98	0,28
Indeno[1,2,3-cd]pyren	1,70	0,40	3,00	3,10	0,43	0,31	1,10	0,78	3,50	0,97
Summe PAKs	41,84	9,15	91,98	86,69	7,94	5,05	23,63	12,07	98,26	22,39

Eine weitere Untersuchungsmethode ist die Einteilung der PAKs nach der Anzahl ihrer Ringe und deren Entwicklung zwischen Start und Ende der Erosionsphase. Dabei ergeben sich hier fünf Fraktionen mit zwei bis sechs Ringen (Abbildung 4-18). Die Analyse ergab, dass für alle fünf analysierten Experimente die prozentualen Anteile der 2-, 3- und 4-Ring PAKs sich am Ende gegenüber den Startwerten reduzieren. Im Gegensatz dazu kann für die PAKs mit 5 und 6 Ringen eine Zunahme gezeigt werden. Diese Ergebnisse werden hier nicht weiter im Detail vorgestellt und finden sich im Detail in der Arbeit von HERRMANN (2013).



Abbildung 4-18: Prozentuale Verteilung der 16 EPA-PAKs fraktioniert nach der Anzahl der Ringe (verändert nach HERRMANN (2013))

Im Gegensatz zu den Sedimentproben zeigt die Analyse der Schwebstoffproben generell eine Zunahme der gesamten PAK-Konzentrationen im Verlauf der Erosionsphase, wenn auch in unterschiedlichen Ausprägungen (Tabelle 4-12). Die zeitliche Entwicklung kann hier durch die Entnahme der Proben zu diskreten Zeitschritten detaillierter verfolgt und daher genauer beschrieben werden (Abbildung 4-19). Auch in der summierten Darstellung für die 16 EPA-PAKs wird deutlich, dass die Experimente mit Tierexposition im Vergleich eine höhere Konzentration in der Schwebstofffracht aufweisen als die Experimente der Gruppe B. Diese Ergebnisse decken sich mit der deutlich höheren resuspendierten Schwebstoffmenge als Folge der Tierexposition (vgl. Kapitel 4.2.5).

, in the second se			
Experiment	Beginn der Erosions- phase (t <sub>0</sub> = 0 h) Summierte PAK- Konzentration in der Schwebstofffracht [mg/kg TG]	Ende der Erosions- phase (t <sub>1</sub> = 168 h) Summierte PAK- Konzentration in der Schwebstofffracht [mg/kg TG]	Faktor der Änderung zwi- schen Anfangs- und Endwer- te für die summierte PAK- Konzentration in der Schweb- stofffracht [mg/kg TG]
B1	0,68	2,25	3,30
B4	0,99	7,62	7,70
B5	11,60	31,84	2,74
C1	5,40	5,43	1,00
C4	12,11	15,86	1,31
C5	37,15	63,05	1,70

 

 Tabelle 4-12:
 Änderung der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht am Anfang und Ende der Erosionsphase



Abbildung 4-19: Verlauf der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht analysierter Experimente (verändert nach HERRMANN (2013))

#### b) Darstellung der Biomarkeranalyse bei organischer Belastung mit prioritären PAKs

Für die ökotoxikologische Bewertung der schadstoffbelasteten Natursedimente erfolgte eine Exposition von Regenbogenforellen im Kreisgerinne, zusammengefasst in den Experimenten der Gruppen C und D. Um eine Vergleichbarkeit der gewonnen Ergebnisse zu gewährleisten, wurde der Ablauf dieser Experimente unter den gleichen Randbedingungen wie die Experimente ohne Tierexposition durchgeführt (Gruppe B). Die genaue Aufstellung und Kombination der Experimente kann dem aufgestellten Programm in Kapitel 3.5.2 entnommen werden. Für die Beurteilung und Bewertung der ökotoxikologischen Auswirkungen der belasteten Sedimente mit Schwerpunkt auf organischen Belastungen (hier: PAKs) werden fünf unterschiedliche Fischgruppen betrachtet, deren Leber, Galle und Blut nach der Exposition hinsichtlich der vorgestellten Biomarker ausgewertet werden (vgl. Kapitel 2.5). Zur Identifikation der Hintergrundkonzentration erfolgt eine Bestimmung der Biomarker von Fischen aus der Hälterungseinrichtung. Die ökotoxikologischen Auswirkungen während der Exposition im Kreisgerinne können durch drei unterschiedlichen Experimenten (C1, C4 und C5) formuliert werden, deren Belastung für die exponierten Fische zunimmt. Als Prozesskontrolle wird noch das Experiment mit Klarwasser (Experiment D1) hinzugezogen. Die Ergebnisse der Experimente der Gruppe C werden anschließend auf die Prozesskontrolle bezogen. Für alle untersuchten Fischgruppen wurden jeweils zehn Tiere verwendet. Als Vergleichsdaten im Rahmen der chemischen Analytik der Sedimentproben werden die Experimente B1, B4 und B5 in die Auswertung mit einbezogen.

Hier werden drei der insgesamt fünf ausgewerteten Biomarker beispielhaft vorgestellt. Im Verlauf der Biotransformation (Fremdstoffwechsel, vgl. Kapitel 2.5.2) lässt sich die Aktivität der Ethoxyresorufin-O-deethylase (EROD) bestimmen, die der Transformationsphase I im Stoffwechselprozess zugeordnet werden kann. Der zweite gewählte Biomarker stellt die Erfassung der Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle dar, die als Produkt der Metabolisierung aufgenommener PAKs einen Expositionsbiomarker vertreten. Als dritter Biomarker wird hier die Induktion an Mikrokernen in der Galle, als Vertreter der Effektbiomarker, vorgestellt. Dieser Biomarker hilft die erwarteten genotoxischen Effekte im Organismus aufgrund der Belastung zu quantifizieren. Die Ergebnisse zur Aktivität der Glutathion-S-Transferase (GST) und der Lipidperoxidation können (HERRMANN, 2013) und HUDJETZ ET AL. (2013) entnommen werden.

#### Analyse der EROD-Aktivität

Für die EROD-Aktivität konnte gezeigt werden, dass die Aktivität bei zunehmender Belastung steigt (Abbildung 4-20). Folglich liegen die Werte der Experimente C1, C4 und C5 signifikant über den Ergebnissen der Prozesskontrolle (Experiment D1). Es konnte kein deutlicher Unterschied zwischen den Experimenten C4 und C5 erfasst werden, obwohl die Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle für Experiment C5 eine deutliche Erhöhung gegenüber denen für Experiment C4 zeigen (Abbildung 4-21). Dieses Ergebnis lässt annehmen, dass in Experiment C5 eine höhere Bioverfügbarkeit der PAK vorhanden ist. Jedoch kann es aufgrund der hohen PAK-Konzentration im Sediment und deren Freisetzung durch die Erosion zu inhibitorischen Effekten kommen, so dass die EROD-Aktivität für Experiment C5 nicht weiter steigt. Allgemein konnte festgestellt werden, dass die EROD-Aktivität als sensitiver Biomarker im Rahmen der durchgeführten Experimente eingestuft werden kann (HUDJETZ ET AL., 2013; HERRMANN, 2013).



Abbildung 4-20: Darstellung der EROD-Aktivität in [pmol mg<sup>1</sup> min<sup>1</sup>] für die Experimente der Gruppe C in Bezug zur Hälterung und dem Klarwasserexperiment D1

## Analyse der PAK-Metabolite in der Gallenflüssigkeit

Neben der EROD-Aktivität ist weiterhin die Bestimmung der Konzentration der PAK-Metabolite ein verbreiteter Expositionsbiomarker. Die Bestimmung dieser Werte erfolgt durch die Gewinnung der Gallenflüssigkeit im Nachgang der Exposition der Fische gegenüber den belasteten Sedimenten. Die starke Abhängigkeit der Menge der Gallenflüssigkeit von der letzten Nahrungsaufnahme (vgl. Kapitel 2.5.3) wird durch die Tatsache deutlich, dass aufgrund der vortägigen Fütterung in der Hälterung in den entnommenen Regenbogenforellen keine Gallenflüssigkeit gewonnen werden konnte, so dass diese Werte als Vergleich fehlen (Abbildung 4-21).

Die Auswertung der Experimente mit Tierexposition zeigen signifikante Änderungen der Konzentrationen mit zunehmender Schadstoffbelastung. Beide Experimente, in denen das Sediment aus der Mosel zum Einsatz kam, zeigen eine signifikante Erhöhung gegenüber den Werten aus Experiment D1. Weiterhin zeigt Experiment C5 eine signifikante Erhöhung der Konzentrationen gegenüber Experiment C1 (HUDJETZ ET AL., 2013).

Die Experimente zeigen, dass bei zunehmender Belastung die Konzentration der PAK-Metabolite in den exponierten Regenbogenforellen anstieg. Dieses Ergebnis bestätigt den Zusammenhang, der auch bei *in-situ*-Messungen gefunden wurde, dass bei einer PAK-Belastung eine zunehmende Konzentration an PAK-Metaboliten in der Galle quantifiziert werden konnte (JOHNSON-RESTREPO ET AL., 2008). Weiterhin konnte im Vergleich mit den Ergebnissen aus der Machbarkeitsstudie belegt werden, dass die Verwendung gealterter kontaminierter Sedimente zu einer realistischeren Bioverfügbarkeit der PAKs infolge Erosion führt (BRINKMANN, 2009). Zusammenfassend kann die Aussage getroffen werden, dass sich die Quantifizierung der Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle als Expositionsbiomarker eignet und aussagekräftige Ergebnisse gewonnen werden konnten.



Abbildung 4-21: Entwicklung der Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle in Abhängigkeit der veränderten Belastung für exponierte Regenbogenforellen

#### Analyse der Mikrokernrate

Zur Bestimmung der Mikrokernrate wurden 4000 rote Blutkörperchen je Fisch ausgezählt. Die identifizierten Mikrokerne werden auf 1000 Zellen als Rate in [‰] angegeben. Die Ergebnisse zeigen eine Zunahme der Mikrokernrate mit steigender Belastung je Experiment. Jedoch liegt auch die Kontrollgruppe aus der Hälterung höher im Vergleich mit den Ergebnissen des Experiments D1 (Abbildung 4-22). Weiterhin konnte eine signifikante Steigerung der Mikrokernrate für Experiment C5 gegenüber Experiment D1 nachgewiesen werden. Die Mikrokernraten streuen bei den einzelnen Fischen für die Kontrollgruppe aus der Hälterung und den Experiment C1,

C4 und C5. Für eine verlässliche Aussage der Mikrokernrate sind die Schadstoffbelastung und die Expositionszeit maßgeblich verantwortlich. So ist mit einer Abnahme der Rate zu rechnen, wenn die Belastung abnimmt oder die Expositionszeit zu lang wird (HUDJETZ ET AL., 2013).

Die Ermittlung der Mikrokernrate als Effektbiomarker hat eine hohe ökologische Relevanz, da genotoxische Potentiale der untersuchten Sedimente aufgezeigt werden können, die einen erheblichen Einfluss auf die Population und das Ökosystem haben können. Dieser negative Effekt trifft für das Sediment aus der Mosel, entnommen an der Staustufe Palzem, zu.



Abbildung 4-22: Mikrokernrate in [‰] für die Experimente mit exponierten Regenbogenforellen (Gruppe C) im Vergleich mit Ergebnissen aus der Hälterung und dem Klarwasserexperiment D1

## 4.3.4 Fazit zur ökotoxikologischen Auswertung

Die Auswertung und Interpretation der gewonnenen Daten im Fachgebiet Ökotoxikologie kann in zwei Bereiche getrennt werden. Zum einen werden mit den gewonnenen Sediment-, Schwebstoff- und Wasserproben chemische Analysen durchgeführt. Zum anderen werden die ausgewählten Biomarker nach Exposition der Regenbogenforellen bestimmt. Die ökotoxikologische Betrachtung wird für die beiden Schadstoffgruppen Kupfer und PAKs getrennt durchgeführt.

Für den Auswertungsschwerpunkt Kupfer kann zusammengefasst werden, dass die unterschiedlichen Intensitäten der Belastung in Schwebstoff- und Wasserproben nachweisbar sind. Weiterhin lassen sich Änderungen der messbaren Konzentrationen im Verlauf der Erosionsphase darstellen. Bei der Auswertung der Biomarker kann für die Interpretation der ausgewählten MT-Konzentration leider keine belastbare Aussage getroffen werden. Da das Experiment C3 aufgrund der hundertprozentigen Mortalität bereits nach wenigen Stunden abgebrochen werden musste, kann nur eine Tendenz für die Auswirkung der zunehmenden Belastung für die Regenbogenforellen angenommen werden. Diese Tendenz kann nur auf Basis der bestimmten Kupferkonzentration, die an den Kiemen anhaftete, formuliert werden. So ist zu erkennen, dass mit zunehmenden Stressoren (Strömung, Sediment, Kupfer) die Kupferkonzentration an den Kiemen ansteigt. Es wird angenommen, dass dann auch die Aufnahme der Schadstoffe durch den Fisch gesteigert ist. Dieser Zusammenhang ist auf der momentanen Datenlage nicht belegbar und bedarf detaillierterer Experimente.

Für den Auswertungsschwerpunkt PAK-Belastung kann ebenfalls festgehalten werden, dass die zunehmende Belastung in den Experimenten nachweisbar ist und dass auch innerhalb der Erosionsphase eine Änderung der Parameter mit Hilfe der chemischen Analytik aufgezeigt werden konnte. Für alle betrachteten Experimente der Gruppen B und C steigt die summierte PAK-Belastung in den analysierten Schwebstoffproben an. Auch ist die erwartete Zunahme der summierten PAK-Konzentration im Zuge des schrittweisen Sedimentwechsels von Rhein- auf Moselsediment nachweisbar. Wasserproben wurden nicht ausgewertet, so dass eine mögliche Freisetzung infolge Erosion nicht bewertet werden kann. Die Biomarkeranalyse bestätigt, dass eine Schadstoffaufnahme stattfindet. Im Rahmen dieser Arbeit wird eine reduzierte Auswahl der gewählten Biomarker vorgestellt. Dabei werden die folgenden drei Biomarker beschrieben: EROD-Aktivität, PAK-Metabolite in der Galle und Mikrokernrate. Für alle drei Biomarker gilt, dass eine Zunahme der Belastung der aufgenommenen Schadstoffe gezeigt werden kann. Die ausgewählte Biomarkerbatterie wird für die Bewertung der Aufnahme von PAKs als geeignet eingestuft.

## 4.4 Hydrotoxikologische Auswertung

### 4.4.1 Ziele und Verfahren der hydrotoxikologischen Auswertung

Die Hydrotoxikologie bietet ein neues Forschungsfeld im Bereich der interdisziplinären Bewertung schadstoffbehafteter Sedimente. Die Bewertung konzentriert sich dabei auf Merkmale der Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) sowie der Biologie (Ökotoxikologie). Im erstgenannten Fachgebiet erfolgte eine klassische Auswertung hinsichtlich der Charakterisierung des Erosionsverhaltens, die bereits im vorangegangenen Kapitel 4.1 vorgestellt worden ist. Weiterhin kann eine Beurteilung der Gewässergüteparameter vorgenommen werden. Im zweitgenannten Fachgebiet wurden chemische Analysen der gewonnenen Sediment-, Schwebstoff- und Wasserproben sowie Biomarkeranalysen der exponierten Testorganismen durchgeführt, die im vorangegangenen Kapitel 4.2.6 anhand ausgewählter Ergebnisse kurz vorgestellt sind.

Die gekoppelte Auswertung verfolgt das Ziel, die beiden Fachgebiete gemeinsam auszuwerten und Prozesse der relevanten Parameter zu identifizieren. Zunächst wird dabei auf eine detaillierte Interpretation verzichtet und eine Überprüfung der erfolgreichen Experimente auf Basis statistischer Abhängigkeiten durchgeführt. Dabei müssen nicht alle Parameter in einer Abhängigkeit zueinander stehen. Die gekoppelte Auswertung erfolgt in zwei Schritten (Abbildung 4-23). Im ersten Schritt wird nachgewiesen, dass die durchgeführten Experimente monodisziplinär betrachtet als erfolgreich eingestuft werden können. Der Nachweis erfolgt dabei auf Basis von statistischen Signifikanzen, die zwischen zwei betrachteten Parametern erbracht werden kann. Dafür wird der Korrelationskoeffizient nach Pearson bestimmt. Dabei liegt der Koeffizient zwischen -1 und 1 und gibt damit Richtung sowie Stärke des Zusammenhangs an. Ein Wert von 0 gibt an, dass kein Zusammenhang zwischen den beiden Parametern besteht. In diesem Schritt der Auswertung folgt keine weitere Interpretation der verglichenen Parameter. Innerhalb dieses Arbeitsschrittes ist es möglich, unterschiedliche Parametergruppen zu kombinieren, jedoch sollten sie einem Fachgebiet zuzuordnen sein. So gehören die Parametergruppen *Sediment* und *Hydrodynamik* zum Fachgebiet der Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und die Parame tergruppen Schadstoffgruppe und Testorganismus werden dem Fachgebiet der Ökotoxikologie zugewiesen. Die Parametergruppe Umweltparameter kann beiden Gebieten zugesprochen werden. Zeigen sich bei der Auswertung statistische Signifikanzen innerhalb eines Fachgebiets kann von erfolgreichen Experimenten unter monodisziplinären Gesichtspunkten gesprochen werden.



Abbildung 4-23: Dreischrittiger Aufbau der hydrotoxikologischen Auswertungsmethode

Im zweiten Schritt werden die Fachgebiete und folglich auch alle fünf Parametergruppen interdisziplinär betrachtet. Die Nachweise der Wechselwirkungen und Abhängigkeiten der betrachteten Parameter erfolgt wieder über die Bestimmung der statistischen Signifikanz. Lassen sich Abhängigkeiten bestimmen, kann das betrachtete Experiment bzw. die gesamte Reihe der durchgeführten Experimente als erfolgreich unter hydrotoxikologischen Gesichtspunkten angesehen werden. Die Auswahl der gekoppelten Parameter erfolgt auf Basis des aktuellen Stands der Forschung in Kombination mit Beobachtungen und qualitativen Ergebnissen, die im Rahmen der hydrotoxikologischen Experimente gewonnen wurden. Hinzukommend kann die interdisziplinäre Kopplung in Abhängigkeit der verwendeten Sedimente und Schadstoffgruppen variiert werden. Folglich ist hier keine allgemein gültige Aussage zur Kopplung der Parameter möglich. Dieses Verfahren ergänzt den grundsätzlichen Aufbau der hydrotoxikologischen Methode, die das Ziel der variablen Untersuchung unterschiedlicher Parametergruppen unterstützt.

Im dritten und letzten Schritt werden die Ergebnisse der ersten beiden Schritte zusammengestellt und eine abschließende Bewertung des untersuchten Betrachtungsraums mit all seinen aufgetretenen Prozessen und Wechselwirkungen gegeben. Die Synthese der Ergebnisse soll eine Möglichkeit darstellen, das weitere Vorgehen und mögliche Handlungsanweisungen zu identifizieren.

Im Vorfeld der statistischen Analyse werden die Daten nach Methoden der deskriptiven Statistik untersucht und mögliche Extremwerte als Ausreißer definiert. Diese Ausreißer werden in der nachfolgenden Betrachtung und Interpretation der Datensätze nicht weiter berücksichtigt (vgl. Anhang D).

# 4.4.2 Monodisziplinäre Betrachtung der grundlegenden Zusammenhänge der Fachgebiete (Schritt 1)

# a) Darstellung erfolgreicher Experimente im Fachgebiet Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft)

Für das Fachgebiet der Ingenieurwissenschaften wurden insgesamt sechs Korrelationstests durchgeführt, um zu prüfen, ob die durchgeführten Experimente erfolgreich verlaufen sind. Dem Fachgebiet Ingenieurwissenschaften wurden die beiden Parametergruppen *Sediment* und *Hydrodynamik* fest zugeordnet. Als unabhängige Parametergruppe können die *Umweltparameter* auch in dieser Betrachtung mit berücksichtigt werden.

## Interaktion Schwebstoffkonzentration und Sohlschubspannung

Die grafische Darstellung der Schwebstoffkonzentration über die Sohlschubspannung lässt bereits eine Abhängigkeit der beiden Parameter annehmen. So lässt sich allgemein formulieren, dass mit zunehmender Sohlschubspannung auch die Schwebstoffkonzentration ansteigt (Abbildung 4-24). Dieser angenommene funktionale Zusammenhang kann für beide experimentellen Gruppen B und C formuliert werden. Diese Beobachtung wird durch die Literatur für abgelagerte Sedimentbetten gestützt (vgl. Kapitel 2.2 – Beschreibung des kohäsiven Sedimenttransports).



Abbildung 4-24: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Sohlschubspannung und der Schwebstoffkonzentration bei Experimenten der Gruppe B (graue Regressionskurve) und C (schwarze Regressionskurve)

Nach Bestimmung der Korrelationskoeffizienten nach Pearson zeigt sich für alle Experimente der Gruppen B und C eine signifikante positive Korrelation zwischen den beiden genannten Parametern (Tabelle 4-13), wodurch die Annahme bestätigt wird. Somit kann ein funktionaler Zusammenhang zwischen den beiden Parametern aufgestellt werden. Um allgemeingültige Aussagen ableiten zu können, werden die Daten in der jeweiligen Gruppe auch zusammengefasst ausgewertet. Auch die Korrelation bei der kumulativen Bestimmung der Daten ist gegeben. Aufgrund der nun gestiegenen Streuung der Daten liegen die Korrelationswerte unter den Werten der Einzelfallbetrachtung. Weiterführend werden auf Grundlage der hohen Korrelationskoeffizienten die Experimente nach Gruppen zusammengefasst betrachtet.

Experiment	Korrelationskoeffizient	Experiment	Korrelationskoeffizient
B1	0,983	C1	0,983
B2	0,720	C2	0,794
B3	0,892	C3	abgebrochen
B4	0,907	C4	0,974
B5	0,858	C5	0,995
Zusammengefasst	0,623	Zusammengefasst	0,883

 Tabelle 4-13:
 Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die beiden jeweiligen

 Parameter Schwebstoffkonzentration und Sohlschubspannung

Auf Grundlage der Korrelationsanalyse kann anschließend eine Regressionsfunktion gesucht werden, die die Entwicklung der Schwebstoffkonzentration in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung beschreibt. Der funktionale Zusammenhang für die Entwicklung der Schwebstoffkonzentration in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung getrennt nach den Gruppen lässt sich durch exponentielle Funktionen beschreiben (Tabelle 4-14). Die Funktionen fassen dabei die einzelnen Experimente der jeweiligen Gruppe zusammen. Der Verlauf der Regressionsfunktionen ist in Abbildung 4-24 dargestellt.

 Tabelle 4-14:
 Regressionsfunktionen zur Berechnung der kontinuierlichen Schwebstoffkonzentration in Abhängigkeit der wirkenden Sohlschubspannung aufgeteilt nach den experimentellen Gruppen B und C

Gruppe	Regressionsfunktion	Bestimmtheitsmaß r <sup>2</sup>
B (grau)	$SPM_B = 0,1 \cdot e^{(6,9 \cdot \tau)}$	0,56
C (schwarz)	$SPM_C = 2.5 \cdot e^{(5,8\cdot\tau)}$	0,65

#### Interaktion Schwebstoffkonzentration und Redoxpotential

Nachfolgend wird der statistische Zusammenhang zwischen der Schwebstoffkonzentration und dem Redoxpotential als ein Vertreter der Umweltparameter vorgestellt. Wie bereits in der Literatur gezeigt, kann das Redoxpotential infolge einer Zunahme der Schwebstoffkonzentration und der damit verbundenen Oxidationsprozesse lokal beeinflusst werden. Mit zunehmender Erosion, die durch den Anstieg der Schwebstoffkonzentration beschrieben wird, ist ein Anstieg des Redoxpotentials aufzuzeigen (Abbildung 4-25). Dabei ist zu beobachten, dass sich zwei Punktwolken in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration ergeben. Auf Grundlage der Abbildung kann die Annahme formuliert werden, dass mit zunehmender Schwebstoffkonzentration das Redoxpotential steigt. Diese Annahme gilt bei der getrennten Betrachtung der experimentellen Gruppen.



Abbildung 4-25: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration und dem Redoxpotential bei Experimenten der Gruppe B und C

Neben der qualitativen Beschreibung der Abhängigkeit der beiden Parameter (Schwebstoffkonzentration und Redoxpotential) bestätigt auch die Auswertung unter Anwendung der statistischen Methode nach Pearson, dass eine positive Korrelation der Parameter für die durchgeführten Experimente vorliegt (Tabelle 4-15). Für das Experiment B5 ergibt sich keine signifikante lineare Abhängigkeit zwischen den beiden Parametern. Die Besonderheit dieses Experiments zeigt sich bisher in allen Datenreihen und bedarf einer individuellen Betrachtung (Kapitel 4.2.3 e). Für die Experimente der Gruppe C ist das Ergebnis einheitlich und eine positive Korrelation kann für alle Experimente bestätigt werden.

Führt man alle Datenreihen getrennt nach den Gruppen zusammen und bestimmt den Korrelationskoeffizienten zeigt sich, dass für die Gruppe B eine verhältnismäßig schwache Korrelation gefunden wird. Dies lässt sich auf die Datenlage in Experiment B5 zurückführen. Eine gemeinsame Auswertung und Interpretation der Experimente ist bei der Kombination dieser Parameter daher nicht zielführend. Es sollte eine individuelle Betrachtung der Experimente bevorzugt werden. Für Experimente der Gruppe C ist eine gemeinsame Betrachtung und Interpretation der Daten zulässig. Die Korrelation der zusammengefassten Daten zeigt einen hohen Korrelationskoeffizienten (Tabelle 4-15).

Grundsätzlich kann die Aussage getroffen werden, dass die zunehmende Schwebstoffkonzentration infolge Erosion in einem Anstieg des Redoxpotentials resultiert. Der Einfluss der Sauerstoffzehrung des Sediments und der kontinuierlichen Belüftung während der Erosionsphase kann auf Basis der erhobenen Daten nicht angeben werden. Die aktuelle Datenlage lässt jedoch vermuten, dass aufgrund der stark erhöhten Schwebstoffkonzentration in Gruppe C auch eine erhöhte Sauerstoffzehrung zu verzeichnen wäre, so dass das Redoxpotential niedriger ausfällt als in Gruppe B.

Experiment	Korrelationskoeffizient	Experiment	Korrelationskoeffizient
B1	0,915	C1	0,963
B2	0,747	C2	0,763
B3	0,809	C3	abgebrochen
B4	0,905	C4	0,925
В5	0,452	C5	0,823
Zusammengefasst	0,404	Zusammengefasst	0,881

 Tabelle 4-15:
 Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die beiden Parameter

 Schwebstoffkonzentration und Redoxpotential

#### Interaktion Schwebstoffkonzentration und pH-Wert

Die Betrachtung der Entwicklung des pH-Werts in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration erlaubt die Annahme, dass der pH-Wert nach Überschreitung eines Schwellenwerts der Schwebstoffkonzentration mit zunehmender Schwebstoffkonzentration tendenziell abnimmt (Abbildung 4-27).



Abbildung 4-26: Gesamter Verlauf des pH-Werts für die Experimente der Gruppe B (links) und Gruppe C (rechts) inklusive Extremwerten

Diese Entwicklung des pH-Werts kann für jedes Experiment der Gruppe B beobachtet werden, wenn auch in unterschiedlichen Intensitäten und Größenordnungen, was auf die Zusammensetzung der weiteren Parameter (z. B. Schadstoffgruppe, Sedimentzusammensetzung etc.) zurückzuführen ist (Tabelle 4-16). Für die Gruppe B liegen die pH-Werte zwischen pH 7,8 und pH 8,24. Daraus ergibt sich eine Streubreite von  $\Delta pH = 0,56$  nach der Extremwertanalyse (Anhang D). In

Kombination mit den gesammelten Daten für die Experimente der Gruppe C wird die getroffene Annahme gestützt, da alle in dieser experimentellen Reihe aufgenommenen pH-Werte bei deutlich höheren Schwebstoffkonzentrationen in einem niedrigeren Bereich liegen als die pH-Werte für Experimente der Gruppe B. Es folgt, dass in Gruppe C die Streubreite nach der Extremwertanalyse (Anhang D) nur halb so groß ist wie in Gruppe B und einen pH-Bereich von  $\Delta pH = 0,27$  abdecken. Es ist zu erkennen, dass die Datenpunkte für den pH-Wert in einem engen Bereich zwischen pH 7,33 bis pH 7,60 bei gleichzeitig hohen Werten für die Schwebstoffkonzentration liegen, für die ein Bereich zwischen 5,90 g/l und 21,75 g/l angegeben werden kann. Eine kombinierte Annahme für die Gruppen B und C kann resultierend so formuliert werden, dass je höher die Schwebstoffkonzentration desto niedriger ist der gemessene pH-Wert der Suspension. Weiterhin kann postuliert werden, dass die Sensitivität des pH-Werts mit zunehmender Schwebstoffkonzentration abnimmt.

Tabelle 4-16: Schwellenwerte der Schwebstoffkonzentration für Experimente der Gruppe B

Experiment	Schwellenwert der Schwebstoffkonzent- ration [g/l]
B1	0,48
B2	0,29
B4	0,05
В5	0,49
Mittelwert	0,33

Zu Beginn eines jeden Experiments kann beobachtete werden, dass der pH-Wert in den ersten beiden Belastungsstufen kontinuierlich zunimmt bis der genannte Schwellenwert je Experiment erreicht wird (Abbildung 4-26). Bei der anschließenden Betrachtung werden daher die ersten beiden Belastungsstufen nach Überschreitung der genannten Schwellenwerte nicht weiter betrachtet.



Abbildung 4-27: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration und dem pH-Wert für Experimente der Gruppe B (links) und Gruppe C (rechts)

Die Korrelationsanalyse bestätigt die beschriebenen Beobachtungen der Entwicklung des pH-Werts und weist für alle betrachteten Experimente außer C2 eine negative signifikante Korrelation auf (Tabelle 4-17). Die Ergebnisse der Experimente für die Gruppe B können dabei nicht zusammenfassend wiedergegeben werden, da die Streubreite und die individuelle Entwicklung des pH-Werts stark mit den weiteren Randbedingungen und ausgewählten Parametern variieren. Für die aufgenommenen Daten der Gruppe C kann zusammenfassend dargestellt werden, dass bei hohen Schwebstoffkonzentrationen größer 5,00 g/l die Variation vorherrschender pH-Bedingungen stark reduziert ist. Dennoch kommt es tendenziell zu einer Reduzierung des pH-Werts in Abhängigkeit steigender Schwebstoffkonzentrationen. In beiden Gruppen kann die zuvor aufgestellte Annahme zur Entwicklung des pH-Werts in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration bestätigt werden.

<i></i>	1		
Experiment	Korrelationskoeffizient	Experiment	Korrelationskoeffizient
B1	-0,904	C1	-0,735
B2	-0,568	C2	0,358 (nicht signifikant)
B4	-0,901	C4	-0,939
B5	-0,775	C5	-0,996
Zusammengefasst	-0,175	Zusammengefasst	-0,614

 

 Tabelle 4-17:
 Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppe B für die beiden Parameter Schwebstoffkonzentration und pH-Wert

# Interaktion Schwebstoffkonzentration und Wasserhärte / elektrische Leitfähigkeit

Die Wasserhärte kann als verlässlicher Parameter für die Konzentration der freien zweiwertigen Ionen im Wasser herangezogen werden. Im Gegensatz dazu werden bei der Messung der elektrischen Leitfähigkeit alle Partikel erfasst, die zur gesamten freien Ladung im System beitragen. Es ist daher zu folgern, dass bei einer ansteigenden Wasserhärte über die Erosionsphase auch die gesamte elektrische Leitfähigkeit steigt (Abbildung 4-28). Es zeigt sich deutlich, dass sich ein linearer Zusammenhang zwischen den beiden genannten Parametern darstellen lässt, der diese Aussage stützt. Nachfolgende Zusammenhänge mit dem Schwebstoffgehalt werden nur noch auf die Wasserhärte bezogen.



Abbildung 4-28: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Wasserhärte [mg CaO] und der elektrischen Leitfähigkeit EL [mS/m]

Hinzukommend kann die Aussage getroffen werden, dass die Wasserhärte sich in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration ändert, wenn vermehrt Partikel in der Wassersäule vorhanden sind, die die Ladungsverhältnisse beeinflussen. Folglich kann es zu einer Änderung der Freisetzungsprozesse bei vorliegender Schwermetallbelastung kommen. Die grafische Darstellung dieses Zusammenhangs zeigt deutlich, dass die Wasserhärte im Verlauf der Erosionsphase steigt. Besonders bei sehr hohen Schwebstoffkonzentrationen, wie sie in den Experimenten der Gruppe C vorkommen, kann eine prozentuale Zunahme der Messwerte von bis zu 73 % (C1) angegeben werden. Bei den Experimenten der Gruppe B kann diese Entwicklung nicht beobachtet werden, dies kann auf die geringen Schwebstoffkonzentrationen von unter 5 g/l zurückgeführt werden (Abbildung 4-29).



Abbildung 4-29: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration [g/l] und der Wasserhärte [mg CaO] für Experimente der Gruppen B und C
#### Interaktion Schwebstoffkonzentration und DOC/TOC

Aussagen und Interpretationen zum gelösten und gesamten organischen Anteil (DOC und TOC) lassen sich aufgrund der geringen Datenlage nicht treffen. Es können keine zuverlässigen Korrelationsanalysen durchgeführt werden, die belastbare Aussagen über Tendenzen und Wechselwirkungen der beiden Parameter mit der Schwebstoffkonzentration oder weiteren Parametern erlauben.

#### Interaktion Schwebstoffgehalt und Sauerstoffgehalt

Weiterhin ist keine belastbare Aussage zur Entwicklung der Sauerstoffentwicklung im Versuchsstand möglich, da eine kontinuierliche Belüftung während der Erosionsphase installiert und aktiv war. Jedoch wurde beobachtet, dass in den Experimenten der Gruppe C durch die stark erhöhte Schwebstoffkonzentration die Sauerstoffzehrung stark gestiegen sein muss, da es nur mit großen Anstrengungen möglich war, den Sauerstoffgehalt über dem minimalen Grenzwert von 4 mg/l zu halten (Abbildung 4-30). Dabei wurden zusätzliche Belüftungseinheiten am Kreisgerinne angeschlossen. Grundsätzlich gilt, dass in allen Experimenten in der Erosionsphase der Grenzwert nur selten unterschritten wurde. Detaillierte Aussagen zu Sauerstoffzehrung, Einfluss der Schwebstoffkonzentration und weiteren Parametern können mit den zur Verfügung stehenden Daten nicht getroffen werden. Hier sollten vertiefende Arbeiten zum Einfluss des Sauerstoffgehalts auf Erosion, Schadstofffreisetzung und Schadstoffaufnahme angedacht werden.



Abbildung 4-30: Zeitlicher Verlauf des Sauerstoffgehalts DO [mg/l] für die Erosionsphase der Experimente der Gruppen B und C

#### Zusammenfassung der Auswertung zum Fachgebiet Ingenieurwissenschaft

Die Darstellung der monodisziplinären Kopplung ausgewählter Parameter bestätigt die erfolgreiche Durchführung der Experimente. Auch der Nachweis der Abhängigkeit mit der Parametergruppe Umweltparameter konnte erfolgreich geführt werden. Dabei konnte gezeigt werden, dass sich die aus der Literatur bekannten Wechselwirkungen und Interaktionen der ausgesuchten Parameter identifizieren lassen. Die Machbarkeit der interdisziplinären Experimente im Kreisgerinne ist somit realisierbar. Um eine abschließende Beurteilung der Experimente durchzuführen, muss im Fachgebiet Biologie (Ökotoxikologie) bestätigt werden, dass die Experimente erfolgreich waren, so dass die gesamte Reihe der Experimente die Kriterien der hydrotoxikologischen Methodik erfüllen.

#### b) Darstellung erfolgreicher Experimente im Fachgebiet Biologie (Ökotoxikologie)

Die Definition erfolgreicher Experimente im Fachgebiet Biologie (Ökotoxikologie) beinhaltet die chemische Analytik der Schwebstoffproben mit Fokus auf die Schadstoffkonzentrationen, einerseits für Kupfer und andererseits für die Summe der 16 EPA-PAKs. Des Weiteren wird bei der Biomarkeranalyse die Änderung der aufgenommenen Schadstoffe sowie deren möglicher Effekt bewertet; aufgeteilt nach den beiden Schadstoffgruppen in den Testorganismen. Im ersten Schritt der hydrotoxikologischen Auswertung bietet es sich an, die beiden Parametergruppen *Schadstoffgruppe* und *Testorganismus* kombiniert zu analysieren. Hier muss beachtet werden, dass keine zeitliche Variation im Verlauf der Experimente berücksichtigt werden kann, da die Tiere erst nach der siebentägigen Expositionszeit/Erosionsphase dem Kreisgerinne entnommen werden. Die Auswertung konzentriert sich daher auf die Darstellung der Endwerte nach Abschluss der Expositionszeit. Die Werte werden als Mittelwerte mit zugehöriger Standardabweichung für die ausgewählten Biomarker angegeben. Die Bestimmung und der resultierende zeitliche Verlauf der Schadstoffkonzentrationen in Sediment, Schwebstoff und Wasser erfolgt mit Hilfe der entnommenen Proben aus dem Kreisgerinne. Insgesamt wurden für dieses Fachgebiet fünf Korrelationen durchgeführt.

#### Auswirkungen der Schwermetallbelastung am Beispiel Kupfer

Die Auswahl geeigneter Parameter (z. B. MT-Konzentration) ist in Bezug auf die Bewertung der Experimente mit Kupferbelastung nur eingeschränkt möglich. Weiterhin liegen zu diesen Parametern keine konsistenten Werte in der Literatur vor und auch die Auswertung der Proben im Rahmen der hydrotoxikologischen Experimente zeigte keine eindeutigen Ergebnisse zur Einordnung der vorliegenden Belastung. Dies erlaubt keine vollständig belastbare Bewertung der Ergebnisse, sondern lediglich die Formulierung von Tendenzen und Optimierungsbereichen zur Erweiterung der Methodik, um Qualität und Quantität der Ergebnisse in nachfolgenden Experimenten zu steigern. Daher wird im Auswertungsschwerpunkt Kupfer auf eine statistische Analyse der aufgenommenen Parameter verzichtet. Wie bereits in Kapitel 4.2.6 gezeigt, lässt sich bei steigender Kupferkonzentration in Schwebstoff und Wasser die Annahme einer steigenden MT-Konzentration und Kupferkonzentration an den Kiemen), dass steigende Kupferkonzentrationen in Schwebstoff und Wasser eine gesteigerte Kupferkonzentration an den Kiemen zur Folge hat (Tabelle 4-18). Der Zusammenhang zwischen Schwebstoff- und Wasserten nicht angeben und bedarf zur

Bestätigung weitere Experimente unter Beachtung der hydrotoxikologischen Methode, um eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu garantieren.





Auswirkungen der organischen Schadstoffbelastung am Beispiel von 16 EPA-PAKs

Für die Experimente mit dem Schwerpunkt auf organischer Belastung vertreten durch PAKs lassen sich ebenfalls Tendenzen und mögliche Zusammenhänge aufzeigen. Auch bei der Betrachtung der zweiten Schadstoffgruppe ist die Datenlage allerdings noch zu gering, um belastbare statistische Test durchzuführen, die auf Zusammenhänge zwischen den einzelnen Parametern schließen lassen. Trotzdem kann die Aussage getroffen werden, dass die Werte der Biomarker mit zunehmender Belastung der Sedimente ansteigen (Tabelle 4-19).

Tabelle 4-19:Übersicht der summierten PAK-Konzentrationen in Schwebstoffproben sowie in den drei exemplarisch<br/>angegebenen Biomarkern für organische Belastung

		0 0		
Experiment	PAK-Konzentration im Schwebstoff [mg/kg Rückstand]	EROD-Aktivität [pmol mg <sup>.1</sup> min <sup>.1</sup> ]	PAK-Metabolite [µg 1-OHPYR ml <sup>-1</sup> ]	Mikrokernrate [‰]
Hälterung	0,0	0,23 ± 0,18	-	$0,52 \pm 0,37$
D1	0,0	0,78 ± 0,42	0,97 ± 0,38	0,35 ± 0,17
C1	$5,96 \pm 0,56$	11,6 ± 4,3	$46,5 \pm 7,3$	$0,57 \pm 0,37$



#### Zusammenfassung

Für beide untersuchten Schadstoffgruppen lässt sich eine erfolgreiche Durchführung und Ergebnisbewertung zeigen. Jedoch können die Daten noch nicht für eine umfassende Sedimentbewertung verwendet werden, da eine abschließende Validierung der Ergebnisse durch Reproduktionsexperimente nicht vorliegt. Hinzukommend lässt die geringe Datenlage bisher keine belastbare statistisch signifikante Auswertung zu. Die positiven Tendenzen der Ergebnisse zeigen, dass ein weiteres Verfolgen der hydrotoxikologischen Methodik notwendig ist. Dies führt zu einem vertieften Verständnis der identifizierten Einzelparameter in Bezug auf Schadstoffaufnahme und deren Intensität. Grundsätzlich gilt, dass der Ansatz der hydrotoxikologischen Methodik anwendbar ist.

#### c) Darstellung der Parametergruppe Umweltparameter erfolgreicher Experimente beider Fachgebiete

Wie bereits bei der monodisziplinären Betrachtung der hydrotoxikologischen Experimente hinsichtlich ingenieurwissenschaftlicher und ökotoxikologischer Betrachtungen kann auch bei der Darstellung der aufgezeichneten Umweltparameter eine Korrelation zwischen Einzelparametern nachgewiesen werden, die auf einen kausalen Zusammenhang schließen und Wechselwirkungen darstellen lassen. Da die Umweltparameter eine besondere Stellung einnehmen, indem sie keinem Fachgebiet eindeutig zugeordnet werden können und alle ausgewählten Parameter beeinflussen sowie auch eine gegenseitige Beeinflussung gegeben ist, erfolgt eine Korrelationsanalyse der Umweltparameter untereinander.

#### Entwicklung des Redoxpotentials in Abhängigkeit des pH-Werts

Bei der Betrachtung der statistischen Zusammenhänge zwischen dem Redoxpotential und dem pH-Wert werden die Experimente B3 und C3 nicht betrachtete (Abbildung 4-31), da bei dieser Konfiguration der pH-Wert konstant auf pH 6,5 abgesenkt wurde. Weiterhin liegen für das Experiment C3 keine Daten vor, da dieses nach einer kurzen Dauer von wenigen Stunden aufgrund einer hundertprozentigen Mortalitätsrate abgebrochen werden musste.

Wie bereits bei der Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration und dem pH-Wert gezeigt werden konnte, liegt der pH-Wert für die Experimente der Gruppe C niedriger als für die Gruppe B. Weiterhin ist bereits vorgestellt worden, dass das Redoxpotential für die Gruppe C etwas niedriger liegt als bei den Experimenten der Gruppe B, es jedoch zu großen Überschneidungsbereichen kommt. Die grafische Darstellung der Parameter Redoxpotential und pH-Wert zeigen zwei getrennte Bereiche mit Daten aufgeteilt nach den experimentellen Gruppen. Eine kombinierte Betrachtung der Gruppen ist nicht zielführend. Die Auswertung erfolgt einzeln für die Gruppen; jedoch werden die einzelnen Experimente zusammenfassend ausgewertet. Es werden folglich zwei Korrelationsanalysen durchgeführt, die jeweils eine negative Korrelation für die ausgewählten Parameter ergeben (Tabelle 4-20). Tendenziell kann damit die Aussage getroffen werden, dass das Redoxpotential mit ansteigendem pH-Wert sinkt.



Abbildung 4-31: Darstellung des Zusammenhangs zwischen pH-Wert und Redoxpotential für die Experimente der Gruppen B und C

 Tabelle 4-20:
 Korrelationskoeffizienten nach Pearson für Experimente der Gruppen B und C für die beiden Umweltparameter pH-Wert und Redoxpotential

Experiment	Korrelationskoeffizient
Gruppe B	-0,591
Gruppe C	-0,338

#### Entwicklung der Wasserhärte und der elektrischen Leitfähigkeit

Die elektrische Leitfähigkeit wird im Verlauf der Erosionsphase bei allen Experimenten kontinuierlich aufgezeichnet. Im Gegensatz dazu erfolgt die Messung der Wasserhärte nur anhand der gewonnen Schwebstoffproben zu diskreten Zeitpunkten. Anhand der aufgezeichneten Versuchszeit können die beiden Messgrößen zugeordnet werden. Eine Umrechnung der Messgrößen ist nicht möglich, da unterschiedliche Ionen bei der jeweiligen Bestimmung der Messdaten berücksichtigt werden. Bei der Messung der EL wird die Gesamtheit der gelösten Ionen im Wasser erfasst. Bei der Bestimmung der Gesamtwasserhärte werden alle zweiwertigen Ionen im Wasser erfasst. Der Zusammenhang und die damit zusammenhängende Interaktion mit dem Schwebstoffgehalt ist bereits in Kapitel 4.3.2 a) dargestellt.

#### Korrelation zwischen gelöstem Sauerstoffgehalt und dem Redoxpotential

Zur Einschätzung der Interaktion der Parameter Sauerstoffgehalt und Redoxpotential lässt sich mit der derzeitig aufgebauten Datenlage keine klare Aussage formulieren. Während der Erosionsphase wurde kontinuierlich Luft in das System geblasen. Weiterhin ist ein natürlicher Austausch an der Grenzfläche Wasser-Luft aufgrund des Deckels am Kreisgerinne nicht möglich. Die Sauerstoffzehrung durch die Erosion des Sediments war nicht Gegenstand der Untersuchungen, so dass keine Daten vorliegen. Für die Experimente der Gruppe B wurde immer ein gelöster Sauerstoffgehalt im Bereich der Sättigungsgrenze erreicht, daher kann eine mögliche Abhängigkeit der beiden Parameter hier nicht nachgewiesen werden. Im Gegensatz dazu zeigten sich bei den Experimenten der Gruppe C immer Sauerstoffwerte nahe der unteren Grenze für die Testorganismen. Jedoch lagen die Werte für das Redoxpotential im gleichen Bereich wie bei den Experimenten der Gruppe B.

#### 4.4.3 Interdisziplinäre Betrachtung der erweiterten Zusammenhänge der Hydrotoxikologie (Schritt 2)

Bei der interdisziplinären Betrachtung werden die Daten der fünf Parametergruppen über die Grenzen der Fachgebiete hinweg miteinander kombiniert. Die gewählten Kombinationen basieren dabei auf den gewonnenen Erkenntnissen während der Erosionsphase der Experimente. Es werden vorrangig Parameter der Gruppen *Sedimente, Schadstoffe* und *Umweltbedingungen* kombiniert. Die ausgewählten Kombinationen beruhen auf der vorangegangenen monodisziplinären Betrachtung der Parametergruppen, so dass die Parameter weiter betrachtet werden, von denen ein relevanter Einfluss auf die Prozesse und Wechselwirkungen im Betrachtungsraum zu erwarten ist. Eine Kombination mit den Ergebnissen der Parametergruppe *Organismen* kann in dieser Studie noch nicht vollständig erfolgen, da es nur Ergebnisse nach Abschluss der Erosionsphase gibt und damit keine zuverlässigen Aussagen der Erosionsphase auf Wechselwirkungen und Prozesse getroffen werden können. Insgesamt werden sechs Parameterkombinationen durchgeführt.

#### a) Kombination der Parametergruppen Sedimente und Schadstoffe

# Entwicklung der Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration

Begonnen wird mit der Betrachtung der Verteilung der Kupferkonzentration in den gewonnen Schwebstoffproben in Kombination mit der zeitlich dazugehörigen Schwebstoffkonzentration. Dabei entwickeln sich die Kupferkonzentrationen mit zunehmender Schwebstoffkonzentration nicht einheitlich. Für die Entwicklung der Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit von der Schwebstoffkonzentration infolge der Erosion lässt sich demnach mit den aktuellen Daten keine allgemein gültige Aussage treffen. Jedoch lassen sich einzelne Trends für die Entwicklung der Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht angeben (Abbildung 4-32, gestrichelte Trendverläufe). In den Experimenten B1 und C2 kommt es mit zunehmender Schwebstoffkonzentration zu einer Abnahme der Kupferkonzentration. Im Gegensatz dazu zeigt sich in Experiment B3 eine Zunahme der Kupferkonzentration. Dies kann auf den abgesenkten pH-Wert von pH 6,5 zurückgeführt werden. Für die Experimente B2 und C1 kann keine signifikante Änderung der Kupferkonzentration messtechnisch erfasst werden. Der Verlauf gestaltet sich nahezu konstant. Anschließende und detaillierte Experimente sind notwendig, um hier belastbare Aussage entwickeln zu können.



Abbildung 4-32: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration und der Kupferkonzentration im Schwebstoff bei Experimenten der Gruppen B (links) und C (rechts) mit den dazugehörigen Trends

#### Entwicklung der Kupferkonzentration in der Wasserphase in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration

Neben der Kupferkonzentration, die am Schwebstoff anhaftet, kommt es während der Erosionsphase auch zu Freisetzungsprozessen, so dass sich die Kupferkonzentration in der Wasserphase ebenfalls ändert (Abbildung 4-33). Wie der Aufbau der Experimente annehmen lässt, ist die Kupferkonzentration in den Experimenten B1 und C1 am geringsten und auch die resultierende Freisetzung im Verlauf der Erosion eher gering. Für Experiment C1 kann sogar von einem konstanten Verlauf der Konzentration während der gesamten Versuchszeit gesprochen werden.

Für Experiment B2 liegt nur ein Datenpunkt zu Beginn der Erosionsphase vor, so dass keine weiteren Aussagen bezüglich der Entwicklung getroffen werden können. Weiterhin bestätigt sich die Annahme, dass durch die Zugabe von Kupfer auch eine höhere Freisetzung in die Wasserphase resultiert und messbar ist, was sich deutlich in den Experimenten B3 und C2 zeigt und auch durch die ansteigenden Trends verdeutlicht dargestellt werden kann. Hinzukommend untermauert Experiment B3 die Aussage, dass es durch die Reduzierung des pH-Werts zu einer vermehrten Freisetzung von Kupfer kommt. Das Experiment B3 startet mit einer Anfangskonzentration von 50,7  $\mu$ g/l und schließt mit einem 2,93-fach höheren Wert von 149,0  $\mu$ g/l. Auch bestätigt die akute Toxizität mit der resultierenden hohen Mortalitätsrate in Experiment C3 die erhöhte Freisetzung an Kupfer in Kombination mit dem reduzierten pH-Wert von pH 6,5.



Abbildung 4-33: Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Schwebstoffkonzentration und der Kupferkonzentration in der Wasserphase bei Experimenten der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends

## Entwicklung der PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration

Bei der kombinierten Betrachtung der PAK-Konzentration im Schwebstoff und der zeitlich korrespondierenden Schwebstoffkonzentration zeigt sich ein relativ einheitliches Verhalten der Parameter für den Großteil der betrachteten Experimente. So lässt sich für alle Experimente außer C1 formulieren, dass die summierte PAK-Konzentration gemessen im Schwebstoff mit zunehmender Schwebstoffkonzentration ansteigt (Abbildung 4-34). Die Ausprägung steigt mit zunehmender Belastung des Sediments. Folglich ist der größte Gradient bei den Experimenten B5 und C5 zu erkennen, da in diesen beiden Experimenten das stark belastete Sediment aus der Mosel zum Einsatz kam. Im Gegensatz dazu sind die PAK-Konzentrationen für die Experimente B1 und C1 am geringsten, da hier das moderat belastete Sediment aus dem Rhein zum Einsatz kam.



Abbildung 4-34: Entwicklung der summierten PAK-Konzentration im Schwebstoff in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends

# Entwicklung der Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit des pH-Werts

Die Änderung des pH-Werts in Abhängigkeit der Schwebstoffkonzentration hat gezeigt, dass mit zunehmender Konzentration ein abnehmender pH-Wert zu erkennen ist. Ein Zusammenhang zwischen der Kupferkonzentration im Schwebstoff und dem pH-Wert kann mit den derzeitigen Daten nicht zuverlässig belegt werden. Für die beiden Experimente B1 und B2 kann die tendenzielle Aussage getroffen werden, dass die Kupferkonzentration am Schwebstoff mit abnehmenden pH-Wert sinkt (Abbildung 4-35). Weiterhin ist ein konstanter Verlauf für das Experiment C1 zu erkennen. Lediglich für das Experiment C2 kann keine Trendentwicklung für die beiden angegebenen Parameter angegeben werden. Eine allgemeingültige Aussage zum Zusammenhang der beiden Parameter für die durchgeführten Experimente ist derzeit nicht möglich.



Abbildung 4-35: Entwicklung der Kupferkonzentration im Schwebstoff in Abhängigkeit des pH-Werts für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends für B1, B2 und C1

#### Entwicklung der Kupferkonzentration in der Wasserphase in Abhängigkeit des pH-Werts

Die Kombination der Parameter Kupferkonzentration in der Wasserphase und pH-Wert zeigt für die unterschiedlichen Experimente der Gruppen B und C kein einheitliches Verhalten, was eine allgemeingültige Aussage zum Zusammenhang der beiden Parameter erlauben würde (Abbildung 4-36). Tendenziell gilt jedoch, dass die Konzentrationen in der Wasserphase in den Experimenten B1 und C1 grundsätzlich niedriger liegen als in den Experimenten B2, B3 und C2 und auch eine deutlich geringere Streubreite aufweisen.



Abbildung 4-36: Entwicklung der Kupferkonzentration in der Wasserphase in Abhängigkeit des pH-Werts für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trends für B1 und C1

Für die Betrachtung der Kupferkonzentration im Schwebstoff als auch in der Wasserphase bietet es sich an, die Entwicklung in Abhängigkeit der gemessenen Schwebstoffkonzentration infolge Erosion zu beurteilen. Zum Verständnis einer erhöhten Kupferfreisetzung in der Wasserphase sollte begleitend der pH-Wert aufgezeichnet werden.

# Entwicklung der PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit des pH-Werts

Für die Entwicklung der PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit des pH-Werts lässt sich ein tendenziell einheitliches Verhalten für alle Experimente der Gruppe B und C außer Experiment C1 formulieren. Es gilt, dass mit steigendem pH-Wert die summierte PAK-Konzentration im Schwebstoff abnimmt (Abbildung 4-37). Für das Experiment C1 ist keine maßgebliche Änderung der PAK-Konzentration messbar; ein konstanter Verlauf ist zu erkennen.

Ein Zusammenhang zwischen dem vorherrschenden pH-Wert und der PAK-Konzentration ist nach Literatur nicht gegeben (vgl. Kapitel 2.3.3). Es kann angenommen werden, dass hier kein kausaler Zusammenhang besteht, sondern dass die Änderung der PAK-Konzentration als Folge der Erosion zu verstehen ist, die wiederrum die Abnahme des pH-Werts zur Folge hat. Wie bei der Beurteilung der Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht und Wasserphase wird eine Gegenüberstellung mit den Daten der Schwebstoffkonzentration und des pH-Werts empfohlen.



Abbildung 4-37: Entwicklung der summierten PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht in Abhängigkeit des pH-Werts für die Experimente der Gruppen B und C mit den zugehörigen Trendentwicklungen

#### 4.4.4 Hydrotoxikologisches Ergebnis (Schritt 3)

Im dritten und letzten Schritt der hydrotoxikologischen Auswertungsmethodik wird eine Synthese aus Schritt 1 und 2 formuliert. Dazu werden die Hauptaussagen der bisherigen Auswertung getrennt nach Schritt 1 und 2 zusammengestellt (Tabelle 4-21 und Tabelle 4-22). Der begrenzte Umfang der Hauptstudie erlaubt keine umfassende Bewertung, gibt aber erste Hinweise und weist Optimierungspotential für weiterführende hydrotoxikologische Experimente auf.

Aufstellung der Hauptaussagen nach monodisziplinärer Auswertung der hydrotoxikologischen Experimen-*Tabelle* 4-21: te (**v**: positives Ergebnis, **\***: negatives Ergebnis, **O**: neutrales Ergebnis)

#### Monodisziplinäre Bewertung (Schritt 1)

Beide Sedimente werden erodiert, das heißt die kritische Sohlschubspannung wird immer überschritten.	✓
In keinem Experiment wird die charakteristische Sohlschubspannung überschritten.	✓
Das untersuchte Rheinsediment ist erosionsstabiler als Moselsediment.	✓
Tierexposition stärkt maßgeblich das natürliche Erosionsverhalten der Sedimentschicht.	×
Das untersuchte Rheinsediment hat eine geringere PAK-Belastung als Moselsediment.	✓
Die zum untersuchten Rheinsediment zugegebene Kupferbelastung ist nachweisbar.	$\checkmark$
Die natürliche PAK-Belastung des Moselsediments ist nachweisbar.	$\checkmark$
Die Zugabe des Schwermetalls Kupfer und eine gleichzeitige Absenkung des pH-Werts auf pH 6,5 reduzieren die Erosionsstabilität.	~
Ein einen Einfluge dem ett. Abereitenen ist nicht an dem isten	~

Monodisziplinäre Bewertung (Schritt 1)		
Der pH-Wert sinkt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.	✓	
Das Redoxpotential steigt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.	$\checkmark$	
Kein Zusammenhang zwischen der Schwebstoffkonzentration und DOC/TOC sowie dem Sauerstoffgehalt konnte nachgewiesen werden.	×	
Die Bestimmung der MT-Konzentration als Nachweis der Kupferaufnahme konnte nicht erfolgreich durchgeführt werden.	×	
Die Bestimmung der Kupferkonzentration an den Kiemen weist tendenziell positive Ergebnisse auf.	0	
Bei zunehmender Belastung steigt die EROD-Aktivität an. Die EROD-Aktivität kann als sensitiver Biomarker im Rahmen der Experimente eingestuft werden.	✓	
Bei zunehmender Belastung steigt die Konzentration der PAK-Metabolite in der Galle an. Dieser Expositionsbiomarker kann als geeignet eingestuft werden.	✓	
Bei zunehmender Belastung steigt die Mikrokernrate an. Die Mikrokernraten zeigen eine große Streubreite.	0	
Das Redoxpotential steigt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.	✓	
Der pH-Wert sinkt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration ab Überschreitung eines mittleren Schwellenwerts von 0,33 g/l.	✓	
Die Wasserhärte steigt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.	✓	
Es ist keine Aussage zum Zusammenhang zwischen der Schwebstoffkonzentration und DOC/ TOC möglich.	×	
Es ist keine Aussage zum Zusammenhang zwischen der Schwebstoffkonzentration und dem gelösten Sauerstoffgehalt möglich.	×	
Die Wasserhärte und die elektrische Leitfähigkeit sind positiv korreliert.	✓	
Der Zusammenhang zwischen dem Redoxpotential und dem gelösten Sauerstoffgehalt kann auf der momentanen Datengrundlage nicht hergestellt werden.	×	

 Tabelle 4-22:
 Aufstellung der Hauptaussagen nach interdisziplinärer Auswertung der hydrotoxikologischen Experimente

 (\*: positives Ergebnis, \*: negatives Ergebnis, O: neutrales Ergebnis)

#### Interdisziplinäre Bewertung (Schritt 2)

Die Kupferkonzentration in der Wasserphase steigt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.

#### Interdisziplinäre Bewertung (Schritt 2)

Für die Kupferkonzentration am Schwebstoff kann keine einheitliche Entwicklung in Folge der zunehmenden Schwebstoffkonzentration identifiziert werden.

Für die Kupferkonzentration am Schwebstoff kann keine einheitliche Entwicklung in Folge des pH-Werts identifiziert werden.

Für die Kupferkonzentration in der Wasserphase kann keine einheitliche Entwicklung in Folge des pH-Werts identifiziert werden.

Die PAK-Belastung in der Schwebstofffracht steigt mit zunehmender Schwebstoffkonzentration.

Die PAK-Belastung in der Schwebstofffracht sinkt mit zunehmendem pH-Wert. Der Zusammenhang ist fragwürdig.

Die Auswahl der gewählten Parameter kann als relevant für die Beurteilung schadstoffbehafteter Sedimente und deren Prozesse im Betrachtungsraum eingestuft werden. Dabei sind die folgenden Parameter von besonderer Wichtigkeit und zeigen die höchste Signifikanz und beeinflussen viele Prozesse: Schwebstoffkonzentration, Sohlschubspannung, pH-Wert, Wasserhärte, Schadstoffkonzentration in der Schwebstofffracht, Aktivität der Ethoxyresorufin-O-deethylase (EROD), Messung der PAK-Metabolite in der Galle sowie Induktion der Mikrokernrate.

Die folgenden Parameter zeigten sich als vielversprechend für eine zukünftige Bewertung, ließen aber eine belastbare Zusage auf der momentanen Datenlage nicht zu und fordern mehr Experimente: Schadstoffkonzentration in der Wasserphase, Schadstoffkonzentration im Sediment, MT-Konzentration, Aktivität der Glutathion-S-Transferase (GST) (hier nicht vorgestellt), Lipidperoxidation (hier nicht vorgestellt).

### 4.5 Fazit der gesamten Auswertung im Rahmen hydrotoxikologischer Experimente

Zur Validierung der hydrotoxikologischen Methodik sind elf Experimente (Abbildung 3-14) im Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University durchgeführt worden. Die Auswertung der gewonnen Daten kann in drei große Abschnitte geteilt werden. Dabei wurde mit einer klassischen Betrachtung zur Charakterisierung des Erosionsverhaltens der einsetzten Sedimente begonnen. Anschließend wurden die ausgewählten ökotoxikologischen Ergebnisse vorgestellt. Im letzten Abschnitt erfolgte die hydrotoxikologische Auswertung.

Bei der sedimentologischen Auswertung (vgl. Kapitel 4.2) erfolgen eine Berechnung der Erosionsraten und die damit einhergehenden Erosionstiefen infolge der wirkenden Sohlschubspannung. Mit Hilfe der Erosionsraten kann der beobachteten Erosion der vorliegende Erosionstyp zugeordnet werden (vgl. Kapitel 4.2.7 – Fazit zur sedimentologischen Auswertung). Ebenfalls wurde eine reine ökotoxikologische Auswertung der vorliegenden Daten durchgeführt. Dabei lag der Fokus auf der chemischen Analytik der gewonnen Wasser-, Schwebstoff- und Sedimentproben. Die zeitliche Entwicklung der jeweiligen Schadstoffkonzentrationen konnte auf diese Weise nachvollzogen werden. Weiterhin wurde die ausgewählte Biomarkerbatterie betrachtet und als geeignet eingestuft, wenn auch einzelne Biomarker (z. B. MT-Konzentration) bei zukünftigen Experimenten angepasst und detaillierter untersucht werden sollten, um belastbare Aussagen ableiten zu können (vgl. Kapitel 4.3.4 – Fazit zur ökotoxikologischen Auswertung).

Die gewonnen Daten sind abschließend unter monodisziplinären und interdisziplinären Gesichtspunkten ausgewertet worden. Die monodisziplinäre Auswertung stellt dabei den ersten Schritt der hydrotoxikologischen Auswertungsmethodik dar. Dabei konzentriert sich die Auswertung auf die nach Fachgebieten getrennte Betrachtung der jeweilig zugeordneten Parametergruppen. Dem Fachgebiet Ingenieurwissenschaften wurden die beiden Parametergruppen *Sedimente* und *Hydrodynamik* zugeordnet. Folglich gehören die Parametergruppen *Organismen* und *Schadstoffe* zum Fachgebiet Biologie. Die Parametergruppe der *Umweltbedingungen* kann nicht einem bestimmten Fachgebiet zugeordnet werden und wird bei Schritt 1 der Auswertung in beiden Fachgebieten berücksichtigt, wenn relevante Prozesse zu erwarten sind (Tabelle 4-23).

Fachgebiet Ingenieurwissenschaften				
Parameter 1	Parameter 2			
Sohlschubspannung	Schwebstoffkonzentration			
Schwebstoffkonzentration	Redoxpotential			
Schwebstoffkonzentration	pH-Wert			
Schwebstoffkonzentration	Wasserhärte/ elektrische Leitfähigkeit			
Schwebstoffkonzentration	DOC/ TOC			
Schwebstoffkonzentration	Sauerstoffgehalt			
Fachgebiet Biologie				
Parameter 1	Parameter 2			
Kupferkonzentration Schwebstoff/ Wasser- phase	MT-Konzentration			
Kupferkonzentration Schwebstoff/ Wasser- phase	Kupferkonzentration an Kiemen			
PAK-Konzentration am Schwebstoff	EROD-Aktivität			

Tabelle 4-23: Parameterkombination für die monodisziplinäre Auswertung im Rahmen der dreischrittigen hydrotoxikologischen Auswertung der durchgeführten Experimente

PAK-Konzentration am Schwebstoff	PAK-Metabolite in der Galle
PAK-Konzentration am Schwebstoff	Mikrokernrate

Im zweiten Schritt werden alle Parametergruppen gleichwertig betrachtet und Parameter in Beziehung gesetzt, von denen eine Wechselwirkung und gegenseitige Abhängigkeit zu erwarten ist. Vorrangig wurden die Parameter der Gruppen *Sedimente* und *Schadstoffe* sowie *Umweltbedingungen* und *Schadstoffe* kombiniert (Tabelle 4-24).

Tabelle 4-24:Parameterkombination für die interdisziplinäre Auswertung im Rahmen der dreischrittigen hydrotoxikolo-<br/>gischen Auswertung der durchgeführten Experimente

Parameter 1	Parameter 2
Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht	Schwebstoffkonzentration
Kupferkonzentration in der Wasserphase	Schwebstoffkonzentration
PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht	Schwebstoffkonzentration
Kupferkonzentration in der Schwebstofffracht	pH-Wert
Kupferkonzentration in der Wasserphase	pH-Wert
PAK-Konzentration in der Schwebstofffracht	pH-Wert

Abschließend werden in Schritt 3 die Kernaussagen der ersten beiden Schritte zusammengestellt und eine Bewertung der Experimente vorgenommen. Die Zielvorgabe für die Auswertung der Hauptstudie bestand darin, die neu aufgebaute experimentelle hydrotoxikologische Methodik zu validieren. Die Experimente zeigen dabei eindeutig, dass die Umsetzung erfolgreich stattgefunden hat. Der Versuchsstand bietet die Möglichkeit, unter abstrahierten Strömungsbedingungen die Erosion gestörter Sedimentschichten zu untersuchen und gleichzeitig ökotoxikologische Parameter zu berücksichtigen. Die Ergebnisse zeigen, dass aus der Literatur bekannte Prozesse im Kreisgerinne abgebildet werden können. Die ausgewählten Parameter werden überwiegend als relevant eingestuft. Für die Parameter, deren Datenlage derzeitig keine Aussage zulässt, wird eine umfangreichere Datenerfassung (z. B. Schadstoffkonzentrationen in der Wasserphase) und ggf. eine Anpassung der grundsätzlichen Datenerhebung (z. B. Expositionszeit für den Biomarker Mikrokernrate, Messung der MT-Konzentration) vorgeschlagen, um zukünftig die Relevanz einzustufen.

Grundsätzlich stellen die Ergebnisse eine vielversprechende Basis für die Weiterführung der hydrotoxikologischen Methodik dar. Die Flexibilität in der Zusammenstellung der Parametergruppen zeigte bereits ihren großen Vorteil bei der Durchführung der Machbarkeitsstudie und der anschließenden Hauptstudie. Die Verdichtung der Datenlage durch die Durchführung zukünftiger hydrotoxikologischer Experimente sollte als Ziel formuliert werden und somit die Expertise im Bereich der interdisziplinären Forschung im Bereich des nachhaltigen Sedimentmanagements und der Hochwasserfolgenabschätzung vertiefen.

### 5 Zusammenfassung und Ausblick

### 5.1 Zusammenfassung

Die Erosion schadstoffbehafteter und kohäsiver Sedimente sowie die mögliche Freisetzung von Schadstoffen stellen ein akutes interdisziplinäres Problem im Bereich des nachhaltigen Sedimentmanagements dar. Mit einer vermehrten Freisetzung von Schadstoffen infolge Erosion kann es auch zu einer gesteigerten Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit für aquatische Organismen im Betrachtungsraum kommen. Bisher ist kein integrierter Ansatz verfügbar, der zur Identifizierung relevanter Parameter und damit resultierender Prozesse sowie Folgenabschätzungen des schadstoffbehafteten Sedimenttransports unter Berücksichtigung ökotoxikologischer Auswirkungen geeignet ist. Daher ist es notwendig, neue Methodiken zu entwickeln, die eine Verknüpfung der hauptsächlich beteiligten Fachgebiete Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) sowie Biologie (Ökotoxikologie) vorantreiben.

#### Forschungsfrage 1

Gibt es relevante Parameter zur hydrotoxikologischen Beschreibung und Bewertung des Betrachtungsraums?

#### Antwort 1

Die Auswahl eines speziellen Betrachtungsraums zieht immer eine individuelle Zusammenstellung der vorliegenden Parameter zur Beschreibung und anschließenden Bewertung nach sich. Eine allgemeingültige Aufstellung von Parametern für die Beschreibung und Bewertung von Betrachtungsräumen unter hydrotoxikologischen Gesichtspunkten ist nicht möglich, da jeder Betrachtungsraum individuelle Schwerpunkte und Randbedingungen mit sich bringt. Jedoch lassen sich die relevanten Parameter für die Beurteilung des Betrachtungsraums in fünf Gruppen zusammenfassen, die anschließend einem Fachgebiet zugeordnet werden können. Dabei sind die Parametergruppen generell auf jeden Betrachtungsraum anwendbar bei variierenden Parametern innerhalb der Parametergruppen. Somit gehören die Parametergruppen *Sedimente* und *Hydrodynamik* zum Fachgebiet Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und die Parametergruppen *Schadstoffe* und *Organismen* zum Gebiet der Biologie (Ökotoxikologie). Die verbleibende Parametergruppe der Umweltbedingungen kann beiden Fachgebieten zugeordnet werden.

Die hier vorgestellte Studie konzentriert sich auf die Untersuchung kohäsiver Sedimente mit natürlichem Ursprung. Aufgrund ihrer Korngrößenzusammensetzung und meist hohen organischen Anteilen weisen kohäsive Sedimente ein erhöhtes Potential der Schadstoffbindung auf. Hierbei ist besonders der molekulare Aufbau der Partikel zu nennen, der zu einer negativen Oberflächenladung führt. Diese Ladungseigenschaften fördern die Bindung von Schwermetallbelastungen (hier: Kupfer, Kapitel 2.3.2) in Sediment und sind dabei von den Umweltbedingungen zum Teil stark abhängig. So zeigen schwankende pH-Bedingungen in Richtung saurer Verhältnisse eine messbare Zunahme der freigesetzten Schwermetalle. Durch die Freisetzung kann eine gesteigerte Bioverfügbarkeit der Schadstoffe resultieren, wodurch von einer zunehmenden Belastung der aquatischen Organismen ausgegangen werden muss. Weiterhin ist der meist hohe organische Anteil in der Fraktion der kohäsiven Sedimente ein entscheidender Faktor bei der Betrachtung von organischen Schadstoffgruppen (hier: 16 EPA-PAKs, Kapitel 2.3.3). Der Eintrag der PAKs in die Umwelt erfolgt dabei hauptsächlich über anthropogene Quellen in industriell geprägten Regionen. Für die hier ausgewählten Betrachtungsräume und die damit einhergehende erstmalige interdisziplinäre Auswahl der vorliegenden Parameter war es möglich relevante Parameter zusammenzustellen.

#### Forschungsfrage 2

Können die relevanten Parameter mit Hilfe der hydrotoxikologischen Methodik experimentell abgebildet und erfasst werden?

#### Antwort 2

Die Hydrotoxikologie bietet die Möglichkeit, natürliche, schadstoffbehaftete und kohäsive Sedimente in einem experimentellen Versuchsstand unter Einhaltung hydraulischer und ökotoxikologischer Randbedingungen zu untersuchen. Ziel der Hydrotoxikologie ist die interdisziplinäre Charakterisierung und Bewertung kohäsiver schadstoffbehafteter Natursedimente mit Hinblick auf die beiden Fachgebiete Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) und Biologie (Ökotoxikologie). Dabei konzentriert sich die neu entwickelte Methodik der Hydrotoxikologie auf die Erfassung verschiedener relevanter Parameter (z. B. Schwebstoffkonzentration, pH-Wert etc.) und die Identifikation von Prozessen und Wechselwirkungen (z. B. Änderung der Biomarkerreaktion infolge variierender Belastungssituationen).

Die erste erfolgreiche experimentelle Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik wurde mit Natursedimenten aus Rhein und Mosel durchgeführt. Als zentraler Versuchsstand ist das Kreisgerinne des Instituts für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University gewählt worden. Die Validierung der hydrotoxikologischen Methodik erfolgte über eine Machbarkeitsstudie und eine angeschlossene Hauptstudie (Kapitel 3.4 und 3.5). Die Machbarkeitsstudie konzentrierte sich ausschließlich auf die Eignung des Versuchsstands und die Identifikation der Optimierungspotentiale im Bereich der Durchführungsprozedur und der Messtechnik. Weiterhin wurden die Parametergruppen definiert und die relevanten Parameter identifiziert. Die Hauptstudie zeigte eine deutlich höhere Komplexität der verwendeten Materialien und Parameter, mit dem Ziel mehr natürliche Prozesse abzubilden und messtechnisch zu erfassen. Gezielt wurden Parameter isoliert, um Prozesse zu steuern (z. B. Absenkung des pH-Werts). Es entstand ein Versuchsprogramm in dem systematisch verschiedene Parameter hervorgehoben worden sind (vgl. Kapitel 3). Mit der Isolation verschiedener Parameter können anschließend Einfluss und Auswirkung des jeweiligen Parameters identifiziert werden.

#### Forschungsfrage 3

Lassen sich hydrotoxikologisch signifikante Prozesse zur Beschreibung und Bewertung kritisch belasteter Betrachtungsräume mit der Hydrotoxikologie identifizieren?

#### Antwort 3

In den Experimenten wurden die entnommenen Sedimentproben als gestörtes Sedimentbett in das Kreisgerinne eingebaut und deren Erosionsverhalten einzeln und als Mischsediment charakterisiert. Dafür folgte nach einer siebentägigen Konsolidierungsphase eine ebenfalls siebentägige Erosionsphase, in der stufenweise die wirkende Sohlschubspannung gesteigert wurde. Mit Hilfe gewonnener Wasser-, Schwebstoff- und Sedimentproben konnte auf Basis einer chemischen Analytik der zeitliche Verlauf der Schadstoffkonzentration durch die Erosion quantifiziert werden. Weiterhin konnte mit den gewonnen Proben das Erosionsverhalten der eingesetzten Sedimente charakterisiert werden.

Die Quantifizierung und Folgenabschätzung der bioverfügbaren und biozugänglichen Schadstoffe erfolgte über die Auswertung ausgewählter Biomarker. Dazu wurden aquatische Organsimen (hier: Regenbogenforelle) im Kreisgerinne gegenüber den Sedimenten exponiert. Nach der siebentägigen Expositionszeit erfolgt die Auswertung der Biomarker. Dabei decken die Biomarker unterschiedliche Phasen des Fremdkörperstoffwechsels ab. Die Wahl der Biomarker erfolgt in Abhängigkeit des zu untersuchenden Schadstoffs. Die Beschreibung der Biomarker findet sich in Kapitel 2.5.

Da die Erosion kohäsiver Sedimente und die folgende Schadstofffreisetzung mit den Umweltbedingungen schwankten, ist es bei einer ganzheitlichen Bewertung maßgeblich, die in diesem Zusammenhang relevanten Umweltparameter kontinuierlich aufzuzeichnen. Im Rahmen dieser Experimente wurden die folgenden Parameter messtechnisch erfasst: pH-Wert, Redoxpotential, elektrische Leitfähigkeit, gelöster Sauerstoffgehalt und Temperatur.

Die Ergebnisse belegen die erfolgreiche Umsetzung der hydrotoxikologischen Methodik. Eine exemplarische Auswertung einiger Parameter (z. B. pH-Wert, Schwebstoffkonzentration, Schadstoffkonzentration in der Schwebstofffracht) und die resultierenden Prozesse decken sich mit den in der Literatur beschriebenen. Die Auswahl der Parameter kann daher als relevant und zielführend zur Bewertung schadstoffbehafteter Sediment eingestuft werden. Die ersten Experimente weisen neben der Eignung des Versuchsstands für die Hydrotoxikologie auch einige Potentiale und Optimierungsmöglichkeiten für eine Weiterführung der bisherigen Methodik. Diese Potentiale liegen in beiden Fachgebieten und unterschiedlichen Parametergruppen vor (Abbildung 5-1).



Abbildung 5-1: Darstellung der beteiligten Parameter mit funktionalem Zusammenhang zwischen den Parametern

#### 5.2 Weiterentwicklungspotential im Gebiet der Hydrotoxikologie

#### 5.2.1 Allgemeine Erweiterungen

Die hydrotoxikologische Methodik wurde so aufgebaut und konzipiert, dass sie grundsätzlich die Möglichkeit bietet, eine Vielzahl unterschiedlicher Parameter im zu untersuchenden Betrachtungsraum zu untersuchen. Das Hauptaugenmerk wird dabei auf Erosion und Transport kohäsiver schadstoffbelasteter Natursedimente und die ökotoxikologische Folgenabschätzung mit Hilfe von chemischer Analytik und Biomarkeranalyse gesetzt. Grundsätzlich gilt, dass mit der Durchführung weiterer Experimente, die der hydrotoxikologischen Methodik folgen, das Grundlagenwissen mit Fokus auf eine ganzheitliche Sedimentbewertung ausgebaut werden soll. Hier sollten nicht nur die bereits durchgeführten Experimente mit zukünftig erhobenen Daten verdichtet werden, sondern insbesondere weitere Natursedimente mit unterschiedlichen natürlichen und nachträglich hinzugefügten Schadstoffen mit bekannter Konzentration untersucht werden. Weiterhin ist immer eine Optimierung und Erweiterung des Versuchsstands voranzutreiben, um die Qualität der aufgezeichneten Daten weiter zu steigern und die Parameteranzahl zu erhöhen.

Um zukünftig eine Abschätzung des interessierenden Betrachtungsraums durchführen zu können, ist es zielführend, neben der Optimierung der Methodik auf Laborebene auch Wege für *insitu*-Messungen zu formulieren. Dabei kann die geschaffene Datengrundlage helfen, indem die Komplexität im Labor weiter gesteigert wird und gleichzeitig damit begonnen wird, die gleichen Parameter *in-situ* zu messen. Die ergänzende Erfassung der Naturdaten ermöglicht eine Einschätzung der Übertragbarkeit zwischen Labor und Natur und hilft schrittweise, die Komplexität der natürlichen Prozesse zwischen den fünf Parametergruppen zu verstehen. So kann als Fernziel die Beschreibung der identifizierten Prozesse der relevanten Parameter für verschiedene Betrachtungsräume formuliert werden. Diese Beschreibung hilft beim Aufbau hydrodynamischnumerischer Simulationen zur Bewertung schadstoffbehafteter Sedimente in großräumigen Skalen auf Basis der durch die durchgeführten hydrotoxikologischen Experimente erstellten Datenbank für Sedimente, Schadstoffe und Organsimen.

#### 5.2.2 Erweiterungen im Fachgebiet Ingenieurwissenschaften – Wasserbau und Wasserwirtschaft

Das Fachgebiet der Ingenieurwissenschaften (Wasserbau und Wasserwirtschaft) deckt in der Hydrotoxikologie die beiden hauptsächlichen Parametergruppen der *Sedimente* und *Hydrodynamik* ab. Dabei ist besonders der Einfluss der *Hydrodynamik* eine entscheidende Größe bei der Quantifizierung der Stoffströme und deren Verteilung im Betrachtungsraum. Weiterführend sollte in diesem Zusammenhang der Einfluss unterschiedlicher Erosionsereignisse und Schwebstofftransportverhalten (z. B. Baggerungsmaßnahmen, Hochwasserereignisse) betrachtet werden, um die möglichen räumlichen Ausdehnungen und lokalen Änderungen der *Umweltbedingungen* angeben zu können. Mit der Änderung der Umweltbedingungen und Schwebstoffkonzentrationen können anschließend Rückschlüsse auf Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit freigesetzter Schadstoffe für aquatische Organismen im Betrachtungsraum getroffen werden. Hier ist besonders eine Verknüpfung mit *in-situ*-Messungen anzustreben, da die räumliche Ausdehnung im Betrachtungsraum im Labormaßstab nicht realisiert werden kann.

Neben dem übergeordneten Ziel das System der Prozesse während der Erosion schadstoffbehafteter Sedimente zu beschreiben, kann zu Beginn auch eine nach Fachgebieten getrennte Betrachtung verfolgt werden und sich dabei dem Bereich der Rheologie detaillierter genähert werden. Dabei konzentriert sich die Beschreibung auf den Sedimenttransport der schadstoffbehafteten kohäsiven Sedimente im Wechselspiel mit hydrodynamischen Bedingungen und schwankenden Umweltbedingungen. Neben der reinen Beschreibung der Transportmechanismen, sollte in einem weiteren Schritt infolge sich ändernder Umweltbedingungen auch die Bindungs- und Lösungsprozesse der Schadstoffe und Partikel untereinander berücksichtigt werden. Die Beschreibung der Prozesse sollten dem Transportkreislauf zugeordnet werden, wobei mit der Erosion begonnen werden sollte, da es vornehmlich bei diesem Prozess zu einer erhöhten Belastung im Betrachtungsraums durch Schadstoffe kommt und Folgen für die unterschiedlichen Fachgebiete abgeschätzt werden müssen.

Die ersten hydrotoxikologischen Experimente konzentrieren sich auf Sedimente aus limnischen Gewässersystemen. Um Sedimente auf ihrem Weg von der Quelle bis zur Mündung verfolgen zu können, sollte in zukünftigen Untersuchungszielen auch der Bereich der marinen Sedimente berücksichtigt werden. Neben der räumlichen Beschreibung von Sedimenten entlang ihres Weges in einem Fließgewässer, sind besonders die Mündungsbereiche stark anthropogenen Belastungen ausgesetzt, die es zu bewerten gilt. Weiterhin interessiert die Auswirkung im Bereich geringer Schwebstoffkonzentrationen im Gegensatz zu den bisher betrachteten hohen Konzentrationen infolge Erosion. Hier können als Anwendungsfeld die Trinkwassergewinnung und das dazugehörige Versorgungssystem betrachtet werden. Neben den ökotoxikologischen Folgen durch Schadstoffeintrag kann es auch zu humantoxikologischen Auswirkungen kommen, die berücksichtigt werden können.

Das Kreisgerinne bietet als Versuchsstand die Möglichkeit, sämtliche der genannten Betrachtungsräume und Prozesse des Transportkreislaufes abstrahiert und grundlegend darzustellen. Für die Verknüpfung mit *in-situ*-Messungen gilt es, geeignete Messtechnik zu identifizieren. Bei der Verknüpfung der unterschiedlichen Messmethoden ist auf die Übertragbarkeit und Vergleichbarkeit der gemessen Daten zu achten. Die Experimente im Labormaßstab und die resultierende Auswertung ist von einigen Modelleffekten beeinflusst, die sich nicht auf natürliche Umgebungen übertragen lassen (vgl. Kapitel 3.6). Im besonderen Fokus sollten Sedimenteigenschaften stehen. So hat der Einbau der gestörten Sedimentproben im Kreisgerinne großen Einfluss auf Konsolidierung, Erosionswiderstand und Sedimentalterungsprozesse, die bei *in-situ-*Messungen miteinfließen können. Weiterhin können die Heterogenität im Strömungsmuster und Turbulenzen das Erosions- und Transportverhalten maßgeblich beeinflussen. Diese Einflüsse lassen sich mit der gleichförmigen Strömung im Kreisgerinne nicht untersuchen und stellen damit individuelle Parameter dar, die dem jeweiligen Betrachtungsraum *in-situ* zugeordnet werden müssen. Da eine Isolation von Parametern bei Naturmessungen nicht realisiert werden kann, ist es zielführend möglichst viele Parameter und die zugehörigen Prozesse im Labor zu beschreiben und dort die maximal mögliche Komplexität natürlicher Parameter aufzubauen. So kann eine Verknüpfung der Messdaten erfolgen und das Verständnis natürlicher Prozesse vertieft werden.

#### 5.2.3 Erweiterungen im Fachgebiet Biologie – Ökotoxikologie

Das Fachgebiet der Biologie (Ökotoxikologie) beinhaltet in der Hydrotoxikologie die beiden Parametergruppen *Schadstoffe* und *Organismen*; letzteres beinhalte dabei die Auswahl und Analyse der ausgewählten Biomarker. Wie schon im ingenieurwissenschaftlichen Fachgebiet muss auch hier die Parametergruppe der *Umweltbedingungen* berücksichtigt werden, die in beiden Fachgebieten einen maßgebenden Einfluss auf resultierende Prozesse hat. Die Hydrotoxikologie bietet nach den ersten erfolgreichen Experimenten ein hohes Weiterentwicklungspotential, das in weiterführenden Studien genutzt werden sollte.

So steht neben der Hinzunahme weiterer Natursedimente auch die Erweiterung der betrachteten Schadstoffgruppen zur Diskussion. In einem ersten Schritt können die bisher berücksichtigten Schadstoffgruppen jedoch vertiefend untersucht werden, um zum einen die Datendichte zu erhöhen und zum anderen die Variabilität der Biomarkerauswertung zu erfassen. Da die bisherigen Analysen der Biomarker (z. B. GST<sub>CDNB</sub>-Aktivität zur Quantifizierung der PAK-Belastung) zum Teil keine differenzierte Aussage zur Dosis-Wirkung-Beziehung ermöglichte, sollten weiterführende Untersuchungen durchgeführt werden oder eine Anpassung der verwendeten Biomarker erfolgen. Mögliche weitere Biomarker, die für die Erfassung der bioverfügbaren PAK-Belastung herangezogen werden können, sind histopathologische Indikatoren, die eine integrative Erfassung der Effekte in Folge einer Exposition über einen längeren Zeitraum ermöglichen.

Weiterhin ist eine Optimierung hinsichtlich der zeitlichen Entwicklung der Biomarker im Rahmen von hydrotoxikologischen Experimenten anzustreben. Dabei kann das Kreisgerinne insofern erweitert werden, als dass eine zeitlich gestaffelte Entnahme von aquatischen Organismen im Verlauf der Experimente ermöglicht wird. Bisherige Untersuchungen von BRINKMANN ET AL. (2014) zeigen vielversprechende Ergebnisse. Der bisherige experimentelle Aufbau dieser Untersuchungen berücksichtigt keine Strömungs- und Erosionsprozesse. Jedoch besteht die Annahme, dass die Strömung Auswirkungen auf eine gesteigerte Aufnahme von Schadstoffen infolge erhöhter Herzfrequenz und Durchströmrate der Kiemen haben kann. Die Kopplung der Fachgebiete ist damit unbedingt voranzutreiben. Denn erst die experimentelle Umsetzung der relevanten Parameter und die daraus resultierenden Prozesse erlaubt eine realistische Beschreibung der Auswirkung schadstoffbelasteter Natursedimente.

Ein übergeordnetes Ziel im Rahmen der Hydrotoxikologie sollte die Reduzierung der eingesetzten aquatischen Organismen sein. Dabei können anstatt juveniler Regenbogenforellen auch Fischembryonen verwendet oder mikrobielle Lebensgemeinschaften zum Einsatz gebracht werden. Um den Einsatz von lebenden Organismen vollständig zu vermeiden, kann jedoch auch der Einsatz von Passivsammlern im Kreisgerinne zur Bestimmung bioverfügbarer PAK-Belastungen eine wichtige Ergänzung zur Analytik partikelgebundener Schadstoffe bilden. Erste Ergebnisse, die im Rahmen der Hauptstudie gewonnen werden konnten, zeigten eine gut Auswertbarkeit und vielversprechende Ergebnisse. Die analytische Methode muss jedoch in weiteren Experimenten weiter validiert werden.

Für Schwermetallbelastung mit Kupfer konnten im Rahmen der hydrotoxikologischen Experimente vielversprechende Hinweise auf die Bioverfügbarkeit quantifiziert werden, die bestätigen, dass die anhaftende Kupferkonzentration an den Kiemen steigt, wenn die Kupferbelastung im Betrachtungsraum ebenfalls gesteigert wird. In diesem Zusammenhang sollte eine detaillierte Betrachtung der Mucusschicht (Kiemen) vorangetrieben werden. Zur Quantifizierung der aufgenommenen Kupferkonzentration wurde die MT-Konzentration als Biomarker ausgewählt. Die Ergebnisse konnten die Sensitivität des Biomarkers nicht bestätigen. Daher wird für zukünftige Experimente empfohlen, die Biomarkerbatterie zu erweitern. Auf Basis der positiven Hinweise in der Mucusschicht sollte in weiterführenden Untersuchungen der Einfluss des pH-Werts im Detail betrachtet werden, da angenommen werden kann, dass die bioverfügbare Kupferkonzentration mit sinkendem pH-Wert ansteigt und eine gesteigerte Ansammlung von Kupfer im Organismus als Folge gezeigt werden kann. Weiterhin sollte bei der Beurteilung der Toxizität von anwesenden Schadstoffkombinationen im Betrachtungsraum auch deren kombinierte Wirkung nicht unterschätzt werden. So kann sich die Toxizität durch eine Schwermetall-Kombination oder weitere organische Schadstoffe verstärkt oder reduziert werden. Die dabei einhergehenden Wechselwirkungen sind in der derzeitigen Literatur nicht ausreichend beleuchtet und sind zur Beurteilung von limnischen Gewässersystemen sowie bei der Erarbeitung von Schwellenwerten unbedingt zu berücksichtigen und sollten in zukünftigen Studien mitaufgenommen werden.

Bisher lassen sich zwei Arten von Tests beschreiben, die einen zur Untersuchung der akuten Toxizität bei Testdauern von 24, 48 sowie 96 Stunden und zum anderen Tests zur Beurteilung der chronischen Toxizität mit Testdauern zwischen 21-28 Tagen. Die Experimente, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, liegen zeitlich gesehen dazwischen und werden tendenziell zur Abschätzung der akuten Toxizität eingestuft. Eine Verlängerung der Experimente im Kreisgerinne auf beispielsweise 21 Tage zur Abschätzung von chronischen Auswirkungen könnten realisiert werden, um die Ergebnisse mit Daten in der Literatur besser vergleichen zu können.

#### 5.2.4 Beispiele zur Erweiterung der Hydrotoxikologie

Hauptsächlich verantwortlich für die Bioverfügbarkeit und Biozugänglichkeit von Schadstoffen ist der Eintrag von Sedimenten in den Betrachtungsraum. Der Grundprozess stellt dabei die Erosion bzw. die Resuspension durch Fremdeinwirkung (z. B. Hochwasser, Baggerung, Stauraumspülung) dar. Neben den kohäsiven Eigenschaften, die im chemischen Aufbau und den resultierenden Oberflächeneigenschaften begründet sind, können auch Biofilme, bestehend aus Mikroorganismen und deren ausgeschiedene extrazellulären polymeren Substanzen (EPS) die Erosionsstabilität der Sedimentsohle verändern. Besonders die EPS erhöht die Bindungsfähigkeit zwischen den einzelnen Partikeln und beeinflusst damit die Sedimentstabilität. Experimentelle Untersuchungen von THOM ET AL. (2012) haben gezeigt, dass ein gezüchteter Biofilm auf Sedimentbetten einen erheblichen Einfluss auf die Sedimentstabilität hat. Erste Ergebnisse zeigen eine deutliche Zunahme der Erosionsstabilität. Eine Kopplung mit der Hydrotoxikologie ist vielversprechend, da besonders die Erosionsstabilität einen maßgeblichen Einfluss auf Schadstofffreisetzung und die Gewässergüte hat.

Bei der Untersuchung von schadstoffbehafteten Sedimenten sind bisher Experimente mit einer homogenen Belastung, die bereits natürlich vorhanden war oder zu Beginn der Konsolidierungsphase zugegeben wurde, durchgeführt worden. Die Ergebnisse zeigen eine Änderung der Schadstoffkonzentration in Sediment, Schwebstoff und Wasser im Verlauf der Erosionsphase. Zur Erweiterung der Schadstofffreisetzung und anschließendem Transport in der Wasserphase kann auch eine punktuelle Zugabe von Schadstoffen experimentell umgesetzt werden. Bei der punktuellen Zugabe kann zwischen zwei Vorgehensarten unterschieden werden. Zur Bestimmung der zeitlichen und räumlichen Verteilung interessierender Schadstoffe kann vor der Erosionsphase ein begrenzter Bereich lokal mit bekannter Konzentration belastete werden. Mit der beginnenden Erosion kann die Freisetzung und Verteilung der Schadstoffe mit Hilfe entnommener Proben nachvollzogen werden. Alternativ kann eine plötzliche Schadstoffzugabe während der Erosionsphase untersucht werden. Hier stehen Bindungsprozesse und Transportverhalten in der Wasserphase im Fokus. Auch bei diesem Untersuchungsziel liegt die zeitliche Verteilung der Schadstoffkonzentration im Mittelpunkt.

Neben den möglichen Erweiterungen bezüglich Untersuchungen zur Sedimentstabilität und unterschiedlichen Schadstoffzugaben sollte die ökotoxikologische Antwort des Systems vertiefend untersucht werden. Die Reduzierung der zu verwendenden Testorganismen ist bereits als Ziel genannt. Und auch die gleichzeitige Durchführung von Experimenten mit ingenieurwissenschaftlichen und ökotoxikologischen Schwerpunkten sollte zukünftig realisiert werden. Mit dem seit dem Jahr 2013 anerkannten Fischeitest (OECD, 2013) kann die Anzahl der Organismen erheblich reduziert werden. Zur praktischen Umsetzung des Tests am Kreisgerinne ist die Schaffung eines Bypasssystems, das mit der Schwebstoff-Wasser-Suspension beschickt wird, eine Möglichkeit. Dieses System bietet die Vorteile, dass zum einen die Strömung im Kreisgerinne nicht mehr durch die Anwesenheit von aquatischen Organismen gestört wird, zum anderen ist die zeitliche Entwicklung der Auswirkungen durch die Exposition unter variierenden Stressoren möglich. Bei dieser Umsetzung muss die fehlende Strömung als nachteiliger Aspekt genannt werden. Eine Kombination des Fischeitests mit klassischer Fischexposition kann an dieser Stelle angestrebt werden, um eine biologische Antwort auf alle relevanten Stressoren zu erhalten.

### 6 Literaturverzeichnis

- AMIARD, J.-C.; AMIARD-TRIQUET, C.; BARKA, S.; PELLERIN, J. & RAINBOW, P.S. (2006): Metallothioneins in aquatic invertebrates: their role in metal detoxification and their use as biomarkers. *Aquatic toxicology (Amsterdam, Netherlands)*, 76(2), S.160–202.
- AMOS, C.L.; GRANT, J.; DABORN, G.R. & BLACK, K. (1992): Sea Carousel-A Benthic, Annular Flume. *Estuarine, Coast and Shelf Science*, 34, S.557–577.
- ARIATHURAI, R. & ARULANANDAN, K. (1978): Erosion Rates of Cohesive Soils. Journal of the Hydraulics Division, 104(2), S.279–283.
- ARNELL, N.W. (1999): Climate change and global water resources. *Global Environmental Change*, 9(Supplement 1), S.31–49.
- ATKINSON, C.A.; JOLLEY, D.F. & SIMPSON, S.L. (2007): Effect of overlying water pH, dissolved oxygen, salinity and sediment disturbance on metal release and sequestration from metal contaminated marine sediments. *Chemosphere*, 69, S.1428–1437.
- BAT, L.; AKBULUT, M.; ÇULHA, M.; GÜNDOĞDU, A. & SATILMIŞ, H.H. (2000): Effect of Temperature on the Toxicity of Zinc, Copper and Lead to the Freshwater Amphipod Gammarus pulex pulex(L., 1758). *Turkish Journal of Zoology*, 24(4), S.409–416.
- BERLAMONT, J.; VAN DEN BOSCH, L. & TOORMAN, E. (1993a): Effective Stresses and Permeability in Consolidating Mud. *Proceedings of the Coastal Engineering Conference*, S.2962–2975.
- BERLAMONT, J.; OCKENDEN, M.; TOORMAN, E. & WINTERWERP, J. (1993b): The characterization of cohesive sediment properties. *Coastal Engineering*, 21(1-2), S.105–128.
- BFG (1999): HABAK Handlungsanweisung für den Umgang mit Baggergut im Küstenbereich. Koblenz.
- BLACK, K.S.; TOLHURST, T.J.; PATERSON, D.M. & HAGERTHEY, S.E. (2002): Working with Natural Cohesive Sediments. *Journal of Hydraulic Engineering*, 128(1), S.2–8.
- BOETTCHER, M.; GRUND, S.; KEITER, S.; KOSMEHL, T.; REIFFERSCHEID, G.; SEITZ, N.; ROCHA, P.S.; HOLLERT, H. & BRAUNBECK, T. (2010): Comparison of in vitro and in situ genotoxicity in the Danube River by means of the comet assay and the micronucleus test. *Mutation Research/Genetic Toxicology and Environmental Mutagenesis*, 700(1–2), S.11–17.

- BÖHLE, M.; EHRHARD, P.; ETLING, D.; MÜLLER, U.; RIEDEL, U.; SREENIVASAN, K.R. & WARNATZ, J. (2008): Prandtl Führer durch die Strömungslehre: Grundlagen und Phänomene 12, vollst. überarb. u. erw. Aufl. 2008. Vieweg+Teubner Verlag. ISBN 3834804304
- BOJES, H.K. & POPE, P.G. (2007): Characterization of EPA's 16 priority pollutant polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in tank bottom solids and associated contaminated soils at oil exploration and production sites in Texas. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 47(3), S.288–295.
- BREMNER, I. & BEATTIE, J.H. (1990): Metallothionein and the trace minerals. *Annual review of nutrition*, 10, S.63–83.
- BRINKMANN, M. (2009): A multiple biomarker approach to assess the toxicity of resuspended sediments. Bachelorarbeit. Aachen: RWTH Aachen University.
- BRINKMANN, M.; EICHBAUM, K.; KAMMANN, U.; HUDJETZ, S.; COFALLA, C.; BUCHINGER, S.; RE-IFFERSCHEID, G.; SCHÜTTRUMPF, H.; PREUSS, T. & HOLLERT, H. (2014): Physiologically-based toxicokinetic models help identifying the key factors affecting contaminant uptake during flood events. *Aquatic Toxicology*, 152, S.38–46.
- BRINKMANN, M.; HUDJETZ, S.; COFALLA, C.; ROGER, S.; KAMMANN, U.; GIESY, J.; HECKER, M.; WISEMAN, S.; ZHANG, X.; WÖLZ, J.; SCHÜTTRUMPF, H. & HOLLERT, H. (2010): A combined hydraulic and toxicological approach to assess re-suspended sediments during simulated flood events. Part I–multiple biomarkers in rainbow trout. *Journal of Soils and Sediments*, 10(7), S.1347–1361.
- BRYAN, G. (1992): Bioavailability, accumulation and effects of heavy metals in sediments with special reference to United Kingdom estuaries: a review. *Environmental Pollution*, 76(2), S.89–131.
- BUNDESMINISTERIUMS DER JUSTIZ UND FÜR VERBRAUCHERSCHUTZ (2006): Tierschutzgesetz (TierSchG).
- BURGESS, R.M.; AHRENS, M.J. & HICKEY, C.W. (2003): Geochemistry of PAHs in Aquatic Environments: Source, Persistence and Distribution. In DOUBEN, P. (Hrsg.) PAHs: An Ecotoxicological Perspective. West Sussex: John Wiley & Sons Ltd.
- CALMANO, W.; AHLF, W. & BENING, J.C. (1992): Chemical Mobility and Bioavailability of Sediment-Bound Heavy-Metals Influenced by Salinity. *Hydrobiologia*, 235, S.605–610.
- CALMANO, W.; AHLF, W. & FORSTNER, U. (1988): Study of Metal Sorption Desorption Processes on Competing Sediment Components with A Multichamber Device. *Environmental Geology and Water Sciences*, 11(1), S.77–84.
- CALMANO, W. & FÖRSTNER, U. (1993): Grundlagen der Erfassung, Bewertung und Sanierung schwermetallbelasteter Standorte. In STEGMANN, R. & HUPE, K.-P. (Hrsg.) Bodenreinigung : biologische und chemisch-physikalische Verfahrensentwicklung unter Berücksichtigung der bodenkundlichen, analytischen und rechtlichen Bewertung. Hamburger Berichte. Bonn: Economica, S. 187–224.
- CALMANO, W.; HONG, J. & FORSTNER, U. (1993): Binding and Mobilization of Heavy-Metals in Contaminated Sediments Affected by Ph and Redox Potential. *Water Science and Technology*, 28(8-9), S.223–235.
- CAMPBELL, P.G.C. & STOKES, P.M. (1985): Acidification and Toxicity of Metals to Aquatic Biota. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, 42(12), S.2034–2049.

- CANTWELL; BURGESS, R.M. & KESTER, D.R. (2002): Release and phase partitioning of metals from anoxic estuarine sediments during periods of simulated resuspension. *Environmental Science & Technology*, 36(24), S.5328–5334.
- CANTWELL, M. & BURGESS, R. (2004): Variability of parameters measured during the resuspension of sediment with particle entrainment simulator. *Chemosphere*, 56(1), S.51–58.
- CANTWELL, M.; BURGESS, R. & KING, J. (2008): Resuspension of contaminated field and formulated reference sediments/ Evaluation of Metal. *Chemosphere*, 73, S.1824–1831.
- CAPPUYNS, V.; SWENNEN, R. & DEVIVIER, A. (2006): Dredged River Sediments: Potential Chemical Time Bombs? a Case Study. *Water, Air, & Soil Pollution*, 171(1-4), S.49–66.
- CHANDLER, I.D. (2012): Vertical variation in diffusion coefficient within sediments. Warwick: University of Warwick.
- COFALLA, C. (2011): Investigating the impact of contaminated sediments in an integrated approach. In Proceedings of the 34th IAHR World Congress. 34th IAHR World Congress. Brisbane, S. 1834–1841.
- COFALLA, C. (2008): Wasserbauliche Modellversuche zur Gewährleistung der "Situativen Ähnlichkeit" mit dem Ziel der Übertragbarkeit von Fischbeobachtungen zwischen Labormodell und Natur. Diplomarbeit. Karlsruhe: Universität Karlsruhe.
- COFALLA, C.; BRINKMANN, M.; ROGER, S.; HUDJETZ, S.; KAMMANN, U.; ZHANG, X.; WISEMAN, S.; GIESY, J.; HECKER, M.; WÖLZ, J.; HOLLERT, H. & SCHÜTTRUMPF, H. (2011): Hydrotoxische Untersuchungen schadstoffbehafteter Sedimente im Kreisgerinne. In *Innovative Methoden und Ansätze im Wasserbau und Wasserwirtschaft*. Internationales Wasserbau-Symposium Aachen 2010. Aachen: Shaker Verlag, S. 28–47.
- COFALLA, C.; HUDJETZ, S.; ROGER, S.; BRINKMANN, M.; FRINGS, R.; WÖLZ, J.; SCHMIDT, B.; SCHÄFFER, A.; KAMMANN, U.; HECKER, M.; HOLLERT, H. & SCHÜTTRUMPF, H. (2012): A combined hydraulic and toxicological approach to assess re-suspended sediments during simulated flood events—part II: an interdisciplinary experimental methodology. *Journal of Soils and Sediments*, 12(3), S.429–442.
- COFALLA, C.; ROGER, S.; BRINKMANN, M.; HUDJETZ, S.; HOLLERT, H. & SCHÜTTRUMPF, H. (2010): Floodsearch - Hydrotoxic Investigations of Contaminated Sediments in an Annular Flume. In PIANC MMX papers collection: 32nd PIANC Congress, 125th Anniversary, Liverpool UK, 10-14 May 2010. London: PIANC, S. 1–14.
- CROWE, C.T.; ELGER, D.F. & ROBERSON, J.A. (2005): Engineering Fluid Mechanics 8. Aufl. Hoboken, NJ: Wiley. ISBN 0471661619
- DIN 4049-3 (1994): DIN 4049 Teil 3: Hydrologie Begriffe zur quantitativen Hydrologie. Beuth Verlag GmbH.
- DIN 5814 (2010): DIN EN ISO 5814: Wasserbeschaffenheit Bestimmung des gelösten Sauerstoffgehalts - Elektrochemische Verfahren (Entwurf). Beuth Verlag GmbH.
- DIN 18123 (Hrsg.) (2011): DIN 18123: Baugrund, Untersuchung von Bodenproben Bestimmung der Korngrößenverteilung. Beuth Verlag GmbH.

- DIN 38414 (Hrsg.) (1987): DIN 38414-S11: Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Schlamm und Sedimente (Gruppe S); Probenahme von Sedimenten (S 11). Beuth Verlag GmbH.
- DIN EN 12880 (2001): Charakterisierung von Schlämmen Bestimmung des Trockenrückstandes und des Wassergehalts. Berlin: Deutsches Institut für Normung e.V.
- DIN EN ISO 21427-2 (2009): DIN EN ISO 21427-2 Wasserbeschaffenheit Bestimmung der Gentoxizität mit dem In-vitro-Mikrokerntest - Teil 2: Verwendung einer nicht-synchronisierten V79-Zellkulturlinie.
- DIN ISO 11465 (1996): DIN ISO 11465 Bodenbeschaffenheit Bestimmung der Trockensubstanz und des Wassergehalts auf Grundlage der Masse - Gravimetrisches Verfahren.
- DOUBEN, P. (2003): PAHs: An Ecotoxicological Perspective 1. Aufl. West Sussex: John Wiley & Sons Ltd. ISBN 0-471-56024-3
- DUFFUS, J.H. (2002): "Heavy metals" a meaningless term? (IUPAC Technical Report). Pure and Applied Chemistry, 74(5), S.793–807.
- EGGLETON, J. & THOMAS, K.V. (2004): A review of factors affecting the release and bioavailability of contaminants during sediment disturbance events. *Environment International*, 30(7), S.973–980.
- EU (2000): Directive 2000/60/EC of the European Parliament and of the Council of 23 October 2000 establishing a framework for Community action in the field of water policy.
- FAIRBROTHER, A.; WENSTEL, R.; SAPPINGTON, K. & WOOD, W. (2007): Framework for Metals Risk Assessment. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 68(2), S.145–227.
- FEILER, U.; AHLF, W.; HOESS, S.; SEILER, T.-B.; HOLLERT, H.; MELBYE, K.; NEUMANN-HENSEL, H.; MELLER, M.; WEBER, J. & HEINIGER, P. (2005): Das SeKT Verbundprojekt: Definition von Referenzbedingungen, Kontrollsedimenten und Toxizitätsschwellenwerten für limnische Sedimentkontrasttests. Umweltwissenschaften und Schadstoffforschung, 17(4), S.250–251.
- FEILER, U.; AHLF, W.; HÖSS, S.; HOLLERT, H.; NEUMANN-HENSEL, H.; MELLER, M.; WEBER, J. & HEININGER, P. (2005): The SeKT Joint Research Project: Definition of reference conditions, control sediments and toxicity thresholds for limnic sediment contact tests (2 pp). *Environmental Science and Pollution Research*, 12(5), S.257–258.
- FENT, K. (2007): Ökotoxikologie. Umweltchemie, Toxikologie, Ökologie 2., überarb. u. erw. A. Thieme, Stuttgart. ISBN 3131099925
- FLEMMING, C.A. & TREVORS, J.T. (1989): Copper toxicity and chemistry in the environment: a review. Water, Air, & Soil Pollution, 44(1), S.143–158.
- FÖRSTNER (1982): Accumulative phases for heavy metals in limnic sediments. *Hydrobiologia*, 91-92(1), S.269–284.
- FÖRSTNER, U. (1989): Contaminated sediments: lectures on environmental aspects of particleassociated chemicals in aquatic systems. Springer-Verlag. ISBN 9783540510765
- FÖRSTNER, U.; AHLF, W. & CALMANO, W. (1989): Studies on the Transfer of Heavy-Metals Between Sedimentary Phases with A Multi-Chamber Device - Combined Effects of Salinity and Redox Variation. *Marine Chemistry*, 28(1-3), S.145–158.

- FOSTER, I.D.L. & CHARLESWORTH, S.M. (1996): Heavy metals in the hydrological cycle: Trends and explanation. *Hydrological Processes*, 10(2), S.227–261.
- FREI, C.; DAVIES, H.; GURTZ, J. & SCHÄR, C. (2000): Climate dynamics and extreme precipitation and flood events in Central Europe. *Integrated Assessment*, 1(4), S.281–300.
- FUKUDA, M.K. & LICK, W. (1980): The Entrainment of Cohesive Sediments in Freshwater. J. Geophys. Res., 85(C5), S.2813–2824.
- GERBERSDORF, S.; JANCKE, T. & WESTRICH, B. (2007): Erosion Risk of Contaminated Riverine Sediment. *Journal of Soils and Sediments*, 7(1), S.25–35.
- GERBERSDORF, S.U.; HOLLERT, H.; BRINKMANN, M.; WIEPRECHT, S.; SCHÜTTRUMPF, H. & MANZ, W. (2011): Anthropogenic pollutants affect ecosystem services of freshwater sediments: the need for a "triad plus x" approach. *Journal of Soils and Sediments*, 11(6), S.1099–1114.
- GERBERSDORF, S.U.; JANCKE, T. & WESTRICH, B. (2005): Physico-chemical and biological sediment properties determining erosion resistance of contaminated riverine sediments – Temporal and vertical pattern at the Lauffen reservoir/River Neckar, Germany. *Limnologica - Ecology and Management of Inland Waters*, 35(3), S.132–144.
- GESTEL, C.A.M. & BRUMMELEN, T.C. (1996): Incorporation of the biomarker concept in ecotoxicology calls for a redefinition of terms. *Ecotoxicology*, 5(4), S.217–225.
- GOKSØYR, A. & FÖRLIN, L. (1992): The cytochrome P-450 system in fish, aquatic toxicology and environmental monitoring. *Aquatic Toxicology*, 22(4), S.287–311.
- GÖTZ, T.; HILLENBRAND, T.; MARSCHEIDER-WEIDEMANN, F.; FUCHS, S. & SCHERER, U. (2009): Abschätzung der Einträge von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen in deutsche Gewässer. Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung, 21(5), S.433–442.
- GRANT, J.; WALKER, T.R.; HILL, P.S. & LINTERN, D.G. (2013): BEAST—A portable device for quantification of erosion in natural intact sediment cores. *Methods in Oceanography*, 5, S.39–55.
- GULARTE, R.C.; KELLY, W.E. & NACCI, V.A. (1980): Erosion of cohesive sediments as a rate process. *Ocean Engineering*, 7(4), S.539–551.
- GUTTERIDGE, J.M. (1995): Lipid peroxidation and antioxidants as biomarkers of tissue damage. *Clinical Chemistry*, 41(12), S.1819–1828.
- HAAG, I.; KERN, U. & WESTRICH, B. (2001): Erosion investigation and sediment quality measurements for a comprehensive risk assessment of contaminated aquatic sediments. *The Science of The Total Environment*, 266(1-3), S.249–257.
- HAYES, J.D. & PULFORD, D.J. (1995): The glutathione S-transferase supergene family: regulation of GST and the contribution of the isoenzymes to cancer chemoprotection and drug resistance. *Critical reviews in biochemistry and molecular biology*, 30(6), S.445–600.
- HAYTER, E.J. & MEHTA, A.J. (1986): Modelling cohesive sediment transport in estuarial waters. *Applied Mathematical Modelling*, 10(4), S.294–303.
- HERRMANN, H. (2013): Bioverfügbarkeit und Toxizität sedimentbürtiger Schadstoffe während der Remobilisierung in einem Kreisgerinne - Studie mit Passivsammlern und Biomarkern in Regenbogenforellen (Oncorhynchus mykiss). Masterarbeit. Aachen: RWTH Aachen University.

- HILLEBRAND, G. (2008): Transportverhalten kohäsiver Sedimente in turbulenten Strömungen : Untersuchungen im offenen Kreisgerinne. Dissertation. Karlsruhe: Universität Karlsruhe.
- HOFMANN, T.; BAUMANN, T.; BUNDSCHUH, T.; KAMMER, V. D. F.; LEIS, A.; SCHMITT, D.; SCH,,FER, T.; THIEME, J.; TOTSCHE, K.-U. & Z,,NKER, H. (2003): Aquatische Kolloide I: Eine Übersichtsarbeit zur Definition, zu Systemen und zur Relevanz. *Grundwasser*, 8(4), S.203–212.
- HO, K.T.; BURGESS, R.M.; PELLETIER, M.C.; SERBST, J.R.; RYBA, S.A.; CANTWELL, M.G.; KUHN, A.
   & RACZELOWSKI, P. (2002): An overview of toxicant identification in sediments and dredged materials. *Marine Pollution Bulletin*, 44(4), S.286–293.
- HOLLERT, H. (2001): Entwicklung eines kombinierten Untersuchungssystems für die Bewertung der ökotoxikologischen Belastung von Fließgewässersedimenten und -schwebstoffen. Dissertation. Heidelberg: Universität Heidelberg.
- HOLLERT, H.; DÜRR, M.; ERDINGER, L. & BRAUNBECK, T. (1998): Wie giftig sind Schwebstoffe und Sedimente des Neckars? Zur Eignung von Biotests und Bioassay-dirigierten Fraktionstechniken für die Bewertung des Schadstoffpotentials in hydrologischen Fallstudien. *Heidelberger Geographische Gesellschaft Journal*, 13, S.130–145.
- HOLLERT, H.; ERNST, M.; SEILER, T.-B.; WÖLZ, J.; BRAUNBECK, T.; KOSMEHL, T.; KEITER, S.; GRUND, S.; AHLF, W.; ERDINGER, L. & DÜRR, M. (2009): Strategien zur Sedimentbewertung – ein Überblick. Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung, 21(2), S.160–176.
- HÖLL, K. & NIESSNER, R. (2010): Wasser Nutzung im Kreislauf: Hygiene, Analyse und Bewertung. Berlin; New York: De Gruyter.
- HONEYMAN, B.D. & SANTSCHI, P.H. (1988): Metals in aquatic systems. *Environmental Science & Technology*, 22(8), S.862–871.
- HOOFTMAN, R.N. & DE RAAT, W.K. (1982): Induction of nuclear anomalies (micronuclei) in the peripheral blood erythrocytes of the eastern mudminnow Umbra pygmaea by ethyl methanesulphonate. *Mutation research*, 104(1-3), S.147–152.
- HÖSS, S. ET AL. (2010): Variability of sediment-contact tests in freshwater sediments with low-level anthropogenic contamination – Determination of toxicity thresholds. *Environmental Pollution*, 158(9), S.2999–3010.
- HOWARTH, R.S. & SPRAGUE, J.B. (1978): Copper lethality to rainbow trout in waters of various hardness and pH. *Water Research*, 12(7), S.455–462.
- HUDJETZ, S.; HERRMANN, H.; COFALLA, C.; BRINKMANN, M.; KAMMANN, U.; SCHÄFFER, A.; SCHÜT-TRUMPF, H. & HOLLERT, H. (2013): An attempt to assess the relevance of flood events biomarker response of rainbow trout exposed to resuspended natural sediments in an annular flume. *Environmental Science and Pollution Research*, S.1–14.
- JOHNSON-RESTREPO, B.; OLIVERO-VERBEL, J.; LU, S.; GUETTE-FERNÁNDEZ, J.; BALDIRIS-AVILA, R.; O'BYRNE-HOYOS, I.; ALDOUS, K.M.; ADDINK, R. & KANNAN, K. (2008): Polycyclic aromatic hydrocarbons and their hydroxylated metabolites in fish bile and sediments from coastal waters of Colombia. *Environmental Pollution*, 151(3), S.452–459.
- KÄGI, J.H. (1991): Overview of metallothionein. Methods in enzymology, 205, S.613-626.
- KÄGI, J.H.R. & SCHAEFFER, A. (1988): Biochemistry of metallothionein. *Biochemistry*, 27(23), S.8509–8515.

- KAMMANN, U. (2007): PAH Metabolites in Bile Fluids of Dab (Limanda limanda) and Flounder (Platichthys flesus): Spatial Distribution and Seasonal Changes. *Environmental Science and Pollution Research - International*, 14(2), S.102–108.
- KAMMANN, U.; BRINKMANN, M.; FREESE, M.; POHLMANN, J.-D.; STOFFELS, S.; HOLLERT, H. & HA-NEL, R. (2014): PAH metabolites, GST and EROD in European eel (Anguilla anguilla) as possible indicators for eel habitat quality in German rivers. *Environmental Science and Pollution Research*, 21(4), S.2519–2530.
- KAMMANN, U.; LANG, T. & WOSNIOK, W. (2012): Biological effects monitoring in marine research. *Environmental Sciences Europe*, 24(1), S.1–12.
- KEITER, S.; RASTALL, A.; KOSMEHL, T.; ERDINGER, L.; BRAUNBECK, T. & HOLLERT, H. (2006): Ecotoxicological Assessment of Sediment, Suspended Matter and Water Samples in the Upper Danube River. A pilot study in search for the causes for the decline of fish catches. *Environmental Science and Pollution Research*, 13(5), S.308–319.
- KÖCK, G. (1996): Die toxische Wirkung von Schwermetallen auf Fische Beiträge zur Festlegung von Immissionsbereichen für Kupfer, Cadmium, Quecksilber, Chrom, Nickel, Blei und Zink aus fischbiologischer Sicht. In Handbuch Angewandte Limnologie: Grundlagen - Gewässerbelastung - Restaurierung - Aquatische Ökotoxikologie - Bewertung - Gewässerschutz. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.
- KÖHLER, H.-R. & TRIEBSKORN, R. (2004): Stress im Boden: Früherkennung ökotoxikologischer Effekte durch Biomarker. *Biologie in unserer Zeit*, 34(4), S.240–248.
- KÖLLING, M. (2000): Comparison of Different Methods for Redox Potential Determination in Natural Waters. In SCHÜRING, J. (Hrsg.) *Redox : fundamentals, processes, and applications*. Berlin, New York: Springer, S. 42–54.
- KOSCHKE, P.; HÜTTL, W. & RINN, C. (Hrsg.) (2009): ALMEMO Handbuch. Holzkirchen: Fa. Ahlborn Mess- und Regelungstechnik GmbH.
- KRIER, H. (1983): Erosionsbeginn bei kohäsiver Wasserlaufsohle. Dissertation. Darmstadt: TH Darmstadt.
- KUIJPER, C. (1993): On the Methodology and Accuracy of Measuring Physico-chemical Properties to Characterize Cohesive Sediment.
- LANG, H.-J.; HUDER, J. & AMANN, P. (2011): Bodenmechanik und Grundbau: das Verhalten von Böden und Fels und die wichtigsten grundbaulichen Konzepte 9. Aufl. Springer DE. ISBN 9783540438151
- LATIMER, J.S.; DAVIS, W.R. & KEITH, D.J. (1999): Mobilization of PAHS and PCBs from in-place contaminated marine resuspension events. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 49(4), S.577– 595.
- LATIMER, J. & ZHENG, J. (2003): The Sources, Transport, and Fate of PAHs in the Marine Environment. In DOUBEN, P. (Hrsg.) PAHs: An Ecotoxicological Perspective. West Sussex: John Wiley & Sons Ltd.
- LAVELLE, J.W. & DAVIS, W.R. (1987): Measurements of Benthic Sediment Erodibility in Puget Sound, WA. National Oceanic and Atmospheric Administration.

- LEE, R.F.; SAUERHEBER, R. & DOBBS, G.H. (1972): Uptake, metabolism and discharge of polycyclic aromatic hydrocarbons by marine fish. *Marine Biology*, 17(3), S.201–208.
- LEUSSEN, W. VAN (1988): Aggregation of Particles, Settling Velocity of Mud Flocs A Review. In *Physical Processes in Estuaries*. Berlin, Heidelberg: Springer, S. 347–403.
- LEY, H.L., 3RD; FAILLA, M.L. & CHERRY, D.S. (1983): Isolation and characterization of hepatic metallothionein from rainbow trout (Salmo gairdneri). *Comparative biochemistry and physiology. B, Comparative biochemistry*, 74(3), S.507–513.
- LUOMA, S.N. (1989): Can we determine the biological availability of sediment-bound trace elements? *Hydrobiologia*, 176/177, S.379–396.
- MCCORMICK, J.H. & PODOLIAK, H.A. (1984): Gallbladder Color and Relative Fullness as a Field Technique for Estimating Time Since Last Feeding in Brook Trout. *North American Journal of Fisheries Management*, 4(4B), S.566–568.
- MEADOR, J.P. (1991): The interaction of pH, dissolved organic carbon, and total copper in the determination of ionic copper and toxicity. *Aquatic Toxicology*, 19(1), S.13–31.
- MEHTA, A.J. (1991): Characterization of cohesive soil bed surface erosion, with special reference to the relationship between erosion shear strength and bed density. Gainesville, Florida: University of Florida -- Gainesville -- College of Engineering -- Department of Civil and Coastal Engineering -- Coastal and Oceanographic Program.
- MEHTA, A.J. (1989): Cohesive Sediment Transport. I: Process Description. Journal of Hydraulic Engineering, 115, No. 8, S.1076–1093.
- MEHTA, A.J.; PARCHURE, T.M.; DIXIT, J.G. & ARIATHURAI, R. (1982): Resuspension Potential of Deposited Cohesive Sediment Beds. In *Estuarine Comparisons*. New York: Academic Press, S. 591–609.
- MEHTA, A.J. & PARTHENIADES, E. (1982): Resuspension of Deposited Cohesive Sediment Beds. In 18th Coastal Engineering Conference. 18th International Conference on Coastal Engineering. Cape Town, S. 1569–1587.
- MIDDELKOOP, H. & KWADIJK, J.C.J. (2001): Towards integrated assessment of the implications of global change for water management - the Rhine experience. *Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere*, 26(7-8), S.553–560.
- MILLY, P.C.D.; WETHERALD, R.T.; DUNNE, K.A. & DELWORTH, T.L. (2002): Increasing risk of great floods in a changing climate. *Nature*, 415(6871), S.514–517.
- MITCHELL, J.K. & SOGA, K. (2005): Fundamentals of Soil Behavior 3. Auflage. John Wiley & Sons. ISBN 0471463027
- MITCHENER, H. & TORFS, H. (1996): Erosion of mud/sand mixtures. *Coastal Engineering*, 29(1-2), S.1–25.
- MONSERRAT, J.M.; MARTÍNEZ, P.E.; GERACITANO, L.A.; LUND AMADO, L.; MARTINEZ GASPAR MARTINS, C.; LOPES LEÃES PINHO, G.; SOARES CHAVES, I.; FERREIRA-CRAVO, M.; VENTURA-LIMA, J. & BIANCHINI, A. (2007): Pollution biomarkers in estuarine animals: Critical review and new perspectives. *Comparative Biochemistry and Physiology Part C: Toxicology & Pharmacology*, 146(1–2), S.221–234.

- MORTIMER, U.M.C.E. (2010): Chemie: Das Basiswissen der Chemie 10., vollständig überarbeitete Auflage. Thieme, Stuttgart. ISBN 3134843102
- NAGEL, F.; KAMMANN, U.; WAGNER, C. & HANEL, R. (2012): Metabolites of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in bile as biomarkers of pollution in European eel (Anguilla anguilla) from German rivers. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 62(2), S.254– 263.
- NEFF, J.M.; STOUT, S.A. & GUNSTER, D.G. (2005): Ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments: Identifying sources and ecological hazard. *Integrated Environmental Assessment and Management*, 1(1), S.22–33.
- OECD (2004): OECD Guideline 218 Sediment-Water Chironomid Toxicity Test Using Spiked Sediment.
- OECD (2013): Test No. 236: Fish Embryo Acute Toxicity (FET) Test. Paris: Organisation for Economic Co-operation and Development. ISBN 9789264203709
- OECD (2012): Test No. 305: Bioaccumulation in Fish: Aqueous and Dietary Exposure. Paris: Organisation for Economic Co-operation and Development.
- OETKEN, M.; STACHEL, B.; PFENNINGER, M. & OEHLMANN, J. (2005): Impact of a flood disaster on sediment toxicity in a major river system--the Elbe flood 2002 as a case study. *Environmental pollution (Barking, Essex: 1987)*, 134(1), S.87–95.
- OLSSON, P.-E. & HAUX, C. (1985): Rainbow trout metallothionein. *Inorganica Chimica Acta*, 107(1), S.67–71.
- VAN DER OOST, R.; BEYER, J. & VERMEULEN, N.P.E. (2003): Fish bioaccumulation and biomarkers in environmental risk assessment: a review. *Environmental toxicology and pharmacology*, 13(2), S.57–149.
- OSPAR (2008): JAMP Guideline for Contaminated-specific Biological Effects (OSPAR Agreement 2008-09). Brest.
- OWENS, P. (2005): Conceptual Models and Budgets for Sediment Management at the River Basin Scale. *Journal of Soils and Sediments*, 5(4), S.201–212.
- OZOH, P.T.E. (1992): The effect of temperature and salinity on copper body-burden and copper toxicity to Hediste (Nereis) diversicolor. *Environmental Monitoring and Assessment*, 21(1), S.11–17.
- PALLER, M.H. & KNOX, A.S. (2013): Bioavailability of Metals in Contaminated Sediments PIRRONE, N. (Hrsg.). *E3S Web of Conferences*, 1, S.1–4.
- PARCHURE, T.M. (1984): Erosional Behavior of Deposited Sediments. Dissertation. Gainsville: Coastal and Oceanographic Engineering Department, University of Florida.
- PARCHURE, T.M. & MEHTA, A.J. (1985): Erosion of soft cohesive sediment deposits. *Journal of Hydraulic Engineering*, 10(111), S.1308 – 1326.
- PARKINSON, A.; OGILVIE, B.W.; BUCKLEY, D.B.; KAZMI, F.; CZERWINSKI, M. & PARKINSON, O. (2001): Biotransformation of Xenobiotics. In CASARETT & DOULL (Hrsg.) *Toxicology, The Basic Science of Poisons*. McGraw-Hill, S. 133–224.

- PARRY, M. L.; CANZIANI, O. F.; PALUTIKOF, J. P.; VAN DER LINDEN, P. J. & HANSON, C. E. (Hrsg.) (2007): Contribution of Working Group II to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press.
- PARTHENIADES, E. (1965): Erosion and Deposition of Cohesive Soils. *Journal of the Hydraulics Division*, 91(1), S.105–139.
- PIANC WG 100 (2009): DREDGING MANAGEMENT PRACTICES FOR THE ENVIRONMENT a structured selection approach (Guideline). PIANC.
- PIANC WG 104 (2009): Dredged Material as a Resource (Guideline). PIANC.
- PIZZOL, M.; CHRISTENSEN, P.; SCHMIDT, J. & THOMSEN, M. (2001): Eco-toxicological impact of "metals" on the aquatic and terrestrial ecosystem: A comparison between eight different methodologies for Life Cycle Impact Assessment (LCIA). *Journal of Cleaner Production*, 19(6–7), S.687–698.
- PROCHNOW, J.; SPORK, V.; JAHNKE, J. & SCHWEIM, C. (1999): Stabilizing effects of Biota on Cohesive Sediment. In IAHR Symposium on River, Coastal and Estuarine Morphodynamics. Genova, Italien, S. 725–734.
- QUARESMA, V. DA S.; AMOS, C.L. & FLINDT, M. (2004): The Influences of Biological Activity and Consolidation Time on Laboratory Cohesive Beds. *Journal of Sedimentary Research*, 74(2), S.184–190.
- RAUDKIVI, A.J. (1990): Loose Boundary Hydraulics 3. Aufl. Butterworth-Heinemann Ltd. ISBN 0080340733
- RAUDKIVI, A.J. & HUTCHINSON, D.L. (1974): Erosion of Kaolinite Clay by Flowing Water. *Proceed*ings of the Royal Society of London, Vol.337, No.1611, S.537–554.
- REIFFERSCHEID, G.; ZIEMANN, C.; FIEBLINGER, D.; DILL, F.; GMINSKI, R.; GRUMMT, H.-J.; HAFNER, C.; HOLLERT, H.; KUNZ, S.; RODRIGO, G.; STOPPER, H. & SELKE, D. (012008): Measurement of genotoxicity in wastewater samples with the in vitro micronucleus test: results of a round-robin study in the context of standardisation according to ISO. *Mutation Research*, 649(1-2), S.15–27.
- RICHARDSON, D.M.; GUBBINS, M.J.; DAVIES, I.M.; MOFFAT, C.F. & POLLARD, P.M. (2004): Effects of feeding status on biliary PAH metabolite and biliverdin concentrations in plaice (Pleuronectes platessa). *Environmental Toxicology and Pharmacology*, 17(2), S.79–85.
- VAN RIJN, L.C. (1984): Sediment Transport, Part I: Bed Load Transport. Journal of Hydraulic Engineering-Asce, 110(10), S.1431–1456.
- ROESIJADI, G. (1992): Metallothioneins in metal regulation and toxicity in aquatic animals. *Aquatic Toxicology*, 22(2), S.81–113.
- ROTH, J.-E. (1991): Grenzflächeneffekte bei der Fest/Flüssig-Trennung. *Chemie Ingenieur Technik*, 63(2), S.104–115.
- RUDDOCK, P.J.; BIRD, D.J.; MCEVOY, J. & PETERS, L.D. (2003): Bile metabolites of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in European eels *Anguilla anguilla* from United Kingdom estuaries. *The Science of the Total Environment*, 301(1-3), S.105–117.

- AL-SABTI, K. & METCALFE, C.D. (1995): Fish micronuclei for assessing genotoxicity in water. *Mutation research*, 343(2-3), S.121–135.
- SALOMONS, W.; DEROOIJ, N.M.; KERDIJK, H. & BRIL, J. (1987): Sediments As A Source for Contaminants. *Hydrobiologia*, 149, S.13–30.
- SANFORD, L. & MAA, J. (2001): A unified erosion formulation for fine sediments. *Marine Geology*, 179(1-2), S.9–23.
- SCHAFFRATH, H. (2012): Assessing the copper exposure of rainbow trout by metallothionein quantification after sediment resuspension experiments. Bachelorarbeit. Aachen: RWTH Aachen University.
- SCHMID, W. (1975): The micronucleus test. Mutation research, 31(1), S.9–15.
- SCHURING, J. (2000): Redox : fundamentals, processes, and applications. Berlin, New York: Springer. ISBN 9783540665281
- SCHWEIM, C. (2005): Modellierung und Prognose der Erosion feiner Sedimente. Dissertation. Aachen: RWTH Aachen.
- SEMPLE, K.T.; DOICK, K.J.; JONES, K.C.; BURAUEL, P.; CRAVEN, A. & HARMS, H. (2004): Peer Reviewed: Defining Bioavailability and Bioaccessibility of Contaminated Soil and Sediment is Complicated. *Environmental Science & Technology*, 38(12), S.228A–231A.
- SHIELDS, A. (1936): Anwendung der Ähnlichkeitsmechanik und der Turbulenzforschung auf die Geschiebebewegung. Dissertation. Berlin: TH Berlin.
- SIMPSON, S.L.; APTE, S.C. & BATLEY, G.E. (1998): Effect of Short-Term Resuspension Events on Trace Metal Speciation in Polluted Anoxic Sediments. *Environmental Science & Technology*, 32(5), S.620–625.
- SMIT, M.P.J.; GROTENHUIS, T.; BRUNING, H. & RULKENS, W.H. (2008): Desorption of Dieldrin from field aged sediments: Simulating flood events. *Journal of Soils and Sediments*, 8(2), S.80–85.
- SPORK, V. (1997): Erosionsverhalten feiner Sedimente und ihre biogene Stabilisierung. Dissertation. Aachen: RWTH Aachen University.
- SPORK, V.; RULAND, P.; SCHNEIDER, B. & KÖNGETER, J. (1995): Das Kreisgerinne, ein Gerät zur Untersuchung der Transportvorgänge feiner Sedimente. *Wasserwirtschaft, Jg.85, H.10*, S.480–484.
- STUMM, W. (1992): Chemistry of the solid-water interface : processes at the mineral-water and particle-water interface in natural systems. New York: Wiley. ISBN 9780471576723
- SZKLARZ, G.D. & PAULSEN, M.D. (2002): Molecular modeling of cytochrome P450 1A1: enzymesubstrate interactions and substrate binding affinities. *Journal of Biomolecular Structure & Dynamics*, 20(2), S.155–162.
- TERRADAS, M.; MARTÍN, M.; TUSELL, L. & GENESCÀ, A. (2010): Genetic activities in micronuclei: is the DNA entrapped in micronuclei lost for the cell? *Mutation research*, 705(1), S.60–67.
- THOM, M.; SCHMIDT, H.; WIEPRECHT, S. & GERBERSDORF, S.U. (2012): Physikalische Modellversuche zur Untersuchung des Einflusses von Biofilm auf die Sohlenstabilität. *WasserWirtschaft*, 6, S.32–36.
- THORN, M.F.C. & J.G.PARSON (1980): Erosion of cohesive sediments in estuaries: an engineering guide. *Third International Symposium on dredging technology, Bordeaux, France, BHRA Fluid Engineering, Cranfield.*
- TORFS, H.; MITCHENER, H.; HUYSENTRUYT, H. & TOORMAN, E. (1996): Settling and consolidation of mud/sand mixtures. *Coastal Engineering*, 29(1–2), S.27–45.
- DI TORO, D.M.; MAHONY, J.D.; HANSEN, D.J.; SCOTT, K.J.; HICKS, M.B.; MAYR, S.M. & REDMOND, M.S. (1990): Toxicity of cadmium in sediments: The role of acid volatile sulfide. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 9(12), S.1487–1502.
- TSAI, C.-H. & LICK, W. (1986): A Portable Device for Measuring Sediment Resuspension. Journal of Great Lakes Research, 12(4), S.314–321.
- TUVIKENE, A. (1995): Responses of fish to polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Annales Zoologici Fennici*, 32(3), S.295–309.
- UBA (2010): Biologische Vielfalt, Naturhaushalt und Landschaft Belastung der Umweltmedien und Lebensräume durch Stoffe, Gewässer.
- UBA (2012): Wasser, Trinkwasser und Gewässerschutz Flüsse und Seen.
- VALAVANIDIS, A.; VLAHOGIANNI, T.; DASSENAKIS, M. & SCOULLOS, M. (2006): Molecular biomarkers of oxidative stress in aquatic organisms in relation to toxic environmental pollutants. *Ecotoxicology and environmental safety*, 64(2), S.178–189.
- VALLEE, B.L. (1995): The function of metallothionein. Neurochemistry International, 27(1), S.23-33.
- WAIWOOD, K.G. & BEAMISH, F.W.H. (1978): Effects of copper, pH and hardness on the critical swimming performance of rainbow trout (Salmo gairdneri Richardson). *Water Research*, 12(8), S.611–619.
- WHYTE, J.J.; JUNG, R.E.; SCHMITT, C.J. & TILLITT, D.E. (2000): Ethoxyresorufin-O-deethylase (EROD) activity in fish as a biomarker of chemical exposure. *Critical reviews in toxicology*, 30(4), S.347–570.
- WÖLZ, J.; COFALLA, C.; HUDJETZ, S.; ROGER, S.; BRINKMANN, M.; SCHMIDT, B.; SCHÄFFER, A.; KAMMANN, U.; LENNARTZ, G.; HECKER, M.; SCHÜTTRUMPF, H. & HOLLERT, H. (2009): In search for the ecological and toxicological relevance of sediment re-mobilisation and transport during flood events. *Journal of Soils and Sediments*, 9(1), S.1–5.
- WÖLZ, J.; ENGWALL, M.; MALETZ, S.; TAKNER, H.O.; BAVEL, B. VAN; KAMMANN, U.; KLEMPT, M.;
  WEBER, R.; BRAUNBECK, T. & HOLLERT, H. (2008): Changes in toxicity and Ah receptor agonist activity of suspended particulate matter during flood events at the rivers Neckar and Rhine

  a mass balance approach using in vitro methods and chemical analysis. *Environmental Science and Pollution Research*, 15(7), S.536–553.
- ZANKE, U. (2013): Hydraulik für den Wasserbau 3. Aufl. Berlin: Springer Vieweg. ISBN 978-3-642-05488-4
- ZOUMIS, T.; SCHMIDT, A.; GRIGOROVA, L. & CALMANO, W. (2001): Contaminants in sediments: remobilisation and demobilisation. *The Science of the Total Environment*, 266(1-3), S.195–202.

# A Fließgeschwindigkeiten und Sohlschubspannungen im Kreisgerinne

# A.1 Die Strömungserzeugung im Kreisgerinne

Das Kreisgerinne ist ein Versuchsstand zur Charakterisierung der Transportprozesse kohäsiver Sedimente. Durch die Drehung der Hauptkomponenten Deckel und Gerinne wird eine unendliche, stationäre und gleichförmige Strömung erzeugt, die es erlaubt Transportphänomene (z. B. Flockung) kohäsiver Sedimente zu berücksichtigen. Bei der Nutzung klassischer Längsrinnen können diese Phänomene nicht abgebildet werden, da durch die Umwälzung des Wassers mit Pumpen diese Strukturen zerstört und somit Sedimentations- und Erosionsprozesse gestört werden. Die Strömung im Kreisgerinne gleicht in ihren Grundzügen einer COUETTE-Strömung. Jedoch ist die Strömung im Gegensatz zu COUETTES Strömungsversuchen turbulent und gekrümmt. Um den Einfluss der Sekundärwirbel aufgrund der Krümmung des Kreisgerinnes zu reduzieren, dreht sich das Gerinne in entgegengesetzter Richtung zum Deckel. Die entstehenden Sekundärwirbel entstehen aufgrund der wirkenden Druck- und Tangentialkräften aus der Drehung der Bauteile und der resultierenden Neigung der Wasseroberfläche (Abbildung A-1).



Abbildung A-1: Ausbildung der Sekundärwirbel, wenn beide Gerinne und Deckel gegensinnig rotieren (1); idealisierte Kraftverteilung der Sekundärwirbel aus Druck- und Tangentialanteil (oben) und kombiniert (unten), wenn nur der Deckel dreht (2) und wenn nur das Gerinne dreht (3), nach SPORK (1997)

Bei den Experimenten wird das Kreisgerinne ausschließlich mit gegensinniger Rotation betrieben, dabei dreht der Deckel immer schneller als das Gerinne und gibt somit die Hauptströmungsrichtung vor. Da die Charakterisierung des kohäsiven Sedimenttransports im Vordergrund der Experimente steht, muss die Verteilung der Fließgeschwindigkeit über die Wassertiefe und die Gerinnebreite bekannt sein, um die wirkenden Sohlschubspannungen zu quantifizieren, die als Maß für Erosionsstabilitäten und weitere Sedimentparameter angeben werden. Die detaillierte Beschreibung und der konstruktive Aufbau findet sich in SPORK (1997).

### A.2 Quantifizierung der Sohlschubspannung

Zur Untersuchung der Erosion und des resultierenden Schwebstofftransports in der Wassersäule im Rahmen der hydrotoxikologischen Experimente ist die auschlaggebende Größe die Sohlschubspannung, angegeben in  $[N/m^2]$ . Zur Ermittlung der wirkenden Sohlschubspannung wird die sohlnahe Fließgeschwindigkeit im Kreisgerinne mit Hilfe der LDV-Technik (Laser Doppler Velocimetrie) messtechnisch erfasst. Im Rahmen dieser Studie wurden die bestehenden Messungen von SCHWEIM (2005) und SPORK (1997) für die Wassertiefen (Erosion bei  $h_1 = 175$  mm und  $h_2 = 325$  mm) überprüft, um mögliche Änderungen (z. B. Motorenumdrehung) aufgrund der langen Standzeit des Kreisgerinnes zu identifizieren. Bei der Überprüfung der Daten wurden nur die Einstellungen für Erosionsuntersuchen berücksichtigt, so dass sich die Auswertung der Messungen auf eine Optimierung der Strömung im sohlnahen Bereich des Gerinnes konzentrierte. Bei der Optimierung ist darauf zu achten, dass die Sohlschubspannungen über die gesamte Gerinnebreite gleichverteilt sind.

Bei der Überprüfung und Optimierung der Strömung werden die gemessenen Fließgeschwindigkeiten unter Anwendung des logarithmischen Wandgesetzes in Sohlschubspannungen umgerechnet. Der Messquerschnitt erstreckt sich über die gesamte Gerinnebreite von 250 mm bei einer Höhe von 600 mm. Bei der Auswertung der Messdaten werden nur Werte berücksichtigt, die sich im Bereich der *turbulenten Innenzone* befinden und deren Verhältnis vom lotrechten Abstand y, angegeben in [mm], zur viskosen Länge  $l_v$  angegeben in [mm], im Bereich  $30 < y/l_v < 500$  liegen. Die viskose Länge ist ein Maß für den Einfluss der Wand auf die Strömung und wird als Verhältnis von kinematischer Viskosität v zu Sohlschubspannungsgeschwindigkeit  $\vec{u}_*$ , angegeben in [m/s], ausgedrückt (BÖHLE ET AL., 2008). Der Bereich der *turbulenten Innenzone* ist sowohl dem Wandeinfluss ausgesetzt als auch turbulenten Schwankungen aufgrund fluktuierender Wirbelschwanken, die aus der *turbulenten Außenzone* eindringen (CROWE ET AL., 2005). Der Messbereich liegt oberhalb der *viskosen Unterschicht*, so dass die Sohlschubspannungen mit dem *logarithmischen Wandgesetz* (vgl. Gleichung (6.1)) iterativ bestimmt werden können. Dabei wird die Karman-Konstante mit 0,4 angeben.

$$\vec{u}_{*} = \frac{1}{\kappa} \cdot \ln \frac{y \cdot \vec{u}_{*}}{\nu} + 5,5$$
(6.1)  

$$\vec{u} = \text{Fließgeschwindigkeit} \qquad [m/s]$$

$$\vec{u}_{*} = \text{Sohlschubspannungsgeschwindigkeit} \qquad [m/s]$$

$$\kappa = \text{Karman-Konstante} \qquad [-]$$

$$y = \text{lotrechter Wandabstand} \qquad [m]$$

$$\nu = \text{kinematische Viskosität des Wassers} \qquad [m^{2}/s]$$

Messwerte die den angegebenen Gültigkeitsbereich nicht erfüllen, werden bei der Auswertung nicht berücksichtigt. Dies gilt, besonders für Messwerte mit einem hohen Wandabstand zwischen 500 und 600 mm. Die untere Grenze hin zur *viskosen Unterschicht* wird nur in Bereichen nah zur Seitenwand unterschritten und ebenfalls von der Auswertung ausgeschlossen.

#### A.2.1 Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe h = 175 mm

Für die Überprüfung der Sohlschubspannungsverteilung bei einer Wassertiefe von h1 = 175 mm, wurde das Drehzahlverhältnis (DV) von Deckel zu Gerinne mit DV = -1,60 von SPORK (1997) übernommen und die Fließgeschwindigkeit im Kreisgerinne bei verschiedene Rotationsgeschwindigkeiten des Gerinnes mit passenden Deckelgeschwindigkeiten aufgenommen. Der funktionale Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und resultierender Sohlschubspannung kann mit Hilfe einer Potenzfunktion der Form  $y = A \cdot x^B$  beschrieben werden (). Die Messungen aus den Jahren 2008 von SCHWEIM (2005) und 2012 haben die Erstkalibrierung von SPORK (1997) bestätigt und konnten für die Experimente angewendet werden (Abbildung A-2).



Abbildung A-2: Funktionaler Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe von  $b_1 = 175$  mm und einem Drehzahlverhältnis von Deckel zu Gerinne von DV = -1,60

#### A.2.2 Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe h = 325 mm

Die Optimierung der Sohlschubspannung für die Experimente, die mit einer Wassertiefe von  $h_2 = 325$  mm durchgeführt wurden, ist im Vorfeld der Hauptstudie neu erstellt worden. Dabei wurde die Gerinnedrehzahl konstant bei  $N_G = 2,00$  U/min gehalten und die Deckeldrehzahl  $N_G$  variiert bis eine gleichmäßige Verteilung der Sohlschubspannung erreicht wurde. Anschließend wurden Fließgeschwindigkeiten bei unterschiedlichen Gerinnedrehzahlen vermessen, um den funktionalen Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und Sohlschubspannung zu ermitteln (Abbildung A-3).



Abbildung A-3: Funktionaler Zusammenhang zwischen Gerinnedrehzahl und Sohlschubspannung bei einer Wassertiefe von  $h_2 = 325$  mm und einem Drehzahlverhältnis von Deckel zu Gerinne von DV = -2,00

# B Vorstellung der verwendeten Natursedimente

### B.1 Natursediment 1 – Rhein Ehrenbreitstein

Die Korngrößenverteilung für das Sediment aus dem Rhein wird ausschließlich durch die Methode Sedimentation aufgestellt, da das Sediment keine Körner größer 0,063 mm aufweist (Abbildung B-1). Die Sedimentation wird in leicht veränderter Form nach DIN 18123 – Baugrund, Untersuchung von Bodenproben – Bestimmung der Korngrößenverteilung (DIN 18123, 2011) durchgeführt. Das Ergebnis weist eine einheitliche Korngrößenverteilung in allen 49 Fässern auf, wobei die Standardabweichung im Bereich 3,80 % <  $\sigma$  < 10,19 % schwankt. Das kleineste Korn weist einen Durchmesser von d<sub>min</sub> = 1,2 µm auf und es wird ein maximaler Korndurchmesser von d<sub>max</sub> = 37,5 µm erreicht. Die zugehörigen Massenanteile und deren Standardabweichungen sind in Tabelle B-1 zusammengestellt. Das Natursediment 1 kann somit als kohäsives Sediment eingeordnet werden.



Abbildung B-1: Grafisches Ergebnis der Korngrößenbestimmung durch Sedimentation für das Sediment aus dem Rhein bei Koblenz-Ehrenbreitstein

Tabelle B-1: Charakteristische Korndurchmesser und deren Massenanteil für das Natursediment aus dem Rhein

Korngröße d in [mm]	Mittlerer Massenanteil $\overline{M} \pm \sigma$ in [%]
$d_{min} = 0,0012$	$\overline{M} \pm \sigma = 18,803 \pm 3,806$
$d_m = 0,0097$	$\overline{M} \pm \sigma = 55,585 \pm 6,670$
$d_{max} = 0,0375$	$\overline{M} \pm \sigma = 93,117 \pm 10,197$

Die Bestimmung des Wassergehalts  $w_w$  der gesamten Probenmasse erfolgt nach DIN ISO 11465 (DIN ISO 11465, 1996), auf die in der DIN 18123 (2011) für die Korngrößenbestimmung verwiesen wird. Der Wassergehalt beschreibt das Verhältnis zwischen der Trockenmasse des Sediments und dem anteiligen Wasser. Der Massenanteil des Wassers kann den Wert von 100 % übersteigen, wenn die berücksichtigten Massen auf die ofengetrocknete Schlammprobe bezogen werden. Der mittlere Wassergehalt des Sediments aus dem Rhein beträgt  $w_w = 103,76$  % bei einer Standardabweichung von  $\sigma = 22,12$  %.

$$w_{w} = \frac{m_{1} - m_{2}}{m_{2}} \cdot 100 \%$$
(B.2)  
$$w_{w} = Wassergehlt [\%]$$
  
$$m_{1} = feuchte Schlammprobe [g]$$

 $m_2$  = ofentrockene Schlammprobe [g]

#### B.2 Natursediment 2 – Mosel Palzem (Stadtbredimus)

Die Bestimmung der Korngrößenverteilung für das Sediment aus der Mosel erfolgt analog zum beschriebenen Verfahren, das für das Sediment aus dem Rhein verwendet wurde. Hinzukommend zur Schlämmanalyse wurde noch eine klassische Siebanalyse durchgeführt, um die Verteilung des Feinsandes zu bestimmen. Bevor die Siebung des Feinsandes durchgeführt werden kann, wird der Feinstanteil mit einem Korndurchmesser d < 63 µm mit Wasser abgetrennt. Die Sandfraktionen > 63 µm werden bei 105°C für mindestens 12 Stunden getrocknet und anschließend gesiebt. Für die Siebung wurden Maschenweiten von 0,063 mm bis 1,00 mm verwendet. Die zusammengesetzte Korngrößenverteilung (Abbildung B-2) kann mit Standardabweichungen von 2,43 % <  $\sigma$  < 6,83 % angegeben werden.



Abbildung B-2: Grafisches Ergebnis der Korngrößenbestimmung durch Sedimentation für das Sediment aus der Mosel aus der Staustufe Palzem

Der Wassergehalt für die Sedimentprobe aus der Mosel wird nach der gleichen Methode wie für das Sediment aus dem Rhein berechnet. Es ergibt sich somit ein Wassergehalt w = 91,88 % bei einer Standardabweichung  $\sigma$  = 10,34 %.

# C Grafische Darstellung der Konsolidierung

Die Ergebnisse der Konsolidierung werden hier vorgestellt. Zur Dichtmessung kann zum Beispiel das in dieser Arbeit verwendete Spannungsmessgerät UHCM (Ultra High Concentration Meter) eingesetzte werden.

Die Untersuchungen mit dem UHCM haben bestätigt, dass die Konsolidierung durch Eigengewicht nach 3-7 Tagen abgeschlossen ist und bestätigt damit die Angaben aus der Literatur (several days nach (MEHTA, 1991)) und den früheren Versuchen am Institut für Wasserbau und Wasserwirtschaft der RWTH Aachen University (3 Tage durch SCHWEIM (2005)). Die aktuellen Messungen für die hydrotoxikologischen Experimente bestätigen, dass eine dreitägige Konsolidierung zum Abschluss der Eigengewichtskonsolidierung ausreichend ist (Abbildung C-1).



Abbildung C-1: Änderung der Sedimentkonzentration in der Sedimentschicht infolge der Eigenkonsolidierung über drei Tage am Bespiel der Messposition 1,25 cm über der Sohle

Nach Abschluss der Konsolidierungsmessungen kann der Verlauf der Sedimentkonzentration für die gewünschte Sedimentschicht von 40 mm angegeben werden (Abbildung C-2, Tabelle C-1).



Abbildung C-2: Verlauf der Sedimentkonzentration nach Abschluss der Konsolidierungsphase über eine Sedimentschicht von 40 mm

Tabelle C-1: Zugehörige Messwerte der Sedimentkonzentration nach Abschluss der Konsolidierungsphase

Messposition über der über der Sohle [mm]	Sedimentkonzentration [g/1]
40,0	0,00
37,5	55,08
32,5	136,50
27,5	282,97
22,5	604,41
17,5	885,16
12,5	1231,01
7,5	1723,33
2,5	2089,53

# D Kalibrierung der Lichtintensität anhand von Schwebstoffdaten

Zur Auswertung des Erosionsverhaltens und des anschließenden Schwebstofftransports in der Wassersäule ist es notwendig, die kontinuierlich gemessene Lichtintensität anhand entnommener Schwebstoffproben zu kalibrieren. Die Lichtintensität stellt dabei ein Maß der Trübung dar und beschreibt die Lichtdurchgängigkeit durch die Suspension ausgehend von einer Lichtquelle und gemessen an einem Empfänger. Die Durchführung erfolgt anhand der zeitlichen Zuordnung der gravimetrisch bestimmten Schwebstoffkonzentration mit der zugehörigen aufgezeichneten Lichtintensität. Die Kalibrierung der Lichtintensität erfolgt dann mit Hilfe einer Regressionsanalyse. Dabei werden die Schwebstoffdaten in Abhängigkeit der Lichtintensität aufgetragen. Zur analytischen Beschreibung wurden drei Grundgleichungen identifiziert, die den mathematischen Zusammenhang aller durchgeführten Experimente in unterschiedlicher Güte ausgedrückt durch das Bestimmtheitsmaß r<sup>2</sup> beschreiben können (Tabelle D-1).

 
 Tabelle D-1:
 Verwendete Regressionstypen zur Bestimmung des funktionalen Zusammenhangs zwischen Schwebstoffkonzentration und gemessener Lichtintensität

Regressionstyp 1:	$SPM_b = K + a \cdot \ln(LI)$	
Regressionstyp 2:	$SPM_b = K \cdot LI^a$	
Regressionstyp 3:	$SPM_b = K \cdot e^{a \cdot LI}$	
	K = Konstante	[g/l]
	a = Faktor	[g/(Hz l)]
	$SPM_b$ = berechnete Schwebstoffkonzentration	[g/l]
	LI = gemessene Lichtintensität	[Hz]

Die Regressionsanalyse wurde getrennt für jedes Experiment einzeln durchgeführt, so dass sich für jedes Experiment individuelle Konstanten und Faktoren in Abhängigkeit des resultierenden

Regressionstyps und des dazugehörigen Bestimmtheitsmaßes ergeben (Tabelle D-2). Ebenfalls wurde die Regressionsanalyse für die Experimente der Gruppe C durchgeführt, auch wenn auf eine detaillierte sedimentologische Auswertung verzichtet wird aufgrund der Tierexposition, ist die Kenntnis des Schwebstoffverlaufs für die Analyse der ökotoxikologischen Parameter von Bedeutung (beispielsweise die Freisetzung von Schadstoffen als Folge der ansteigenden Schwebstoffkonzentration). Eine sedimentologische Auswertung der Experimente, die der Gruppe C zugeordnet sind, ist nicht zielführend, da sich durch die Exposition der Regenbogenforellen keine ungestörte Entwicklung der Erosion und des Schwebstofftransports im Kreisgerinne einstellen konnte.

Nr.	Regressionstyp	Konstante K	Faktor a	Bestimmtheitsmaß r <sup>2</sup>
B1	1	11,45	-0,92	0,98
B2	1	17,77	-1,49	0,99
B3	3	8,40	-2,09 10-5	0,91
B4	1	15,23	-1,23	0,98
В5	3	3,89	-1,29 10-5	0,96
B gesamt	1	15,88	-1,23	0,92
C1	2	314,25	-0,46	0,99
C2	2	72,31	-0,28	0,91
C3	Experiment abgebro	ochen nach 4 Stur	nden Erosionsph	ase
C4	2	366,32	-0,50	0,98
С5	2	332,09	-0,49	0,99
C gesamt	2	219,11	-0,44	0,92

Tabelle D-2: Aufstellung der Regressionsgleichung für die durchgeführten Experimente der Gruppen B und C

Die Regressionsanalyse ergab eine einheitliche Auswahl der Regressionstypen in Abhängigkeit der gruppierten Experimente. So werden für alle fünf Experimente der Gruppe B ausschließlich die Regressionstypen 1 und 3 zur Umrechnung der Trübungsdaten verwendet. Die vergleichbaren Verläufe in der grafischen Darstellung (Abbildung D-1) zeigten die Ähnlichkeit der Entwicklung der Schwebstoffdaten. Wohingegen für die Experiment der Gruppe C nur der Regressionstyp 2 zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Schwebstoffdaten und Werten der Lichtintensität verwendet werden kann, um die beste statistische Übereinstimmung zu erreichen (Tabelle D-2 und Abbildung D-2). Die Regressionsanalyse konnte für alle beendeten Experimente erfolgreich durchgeführt werden, was durch die hohen Werte des Bestimmtheitsmaßes r<sup>2</sup>  $\geq$  0,913 (Wert für Experiment B3) demonstriert werden kann. Die Durchführung der Regressionsanalyse erlaubt anschließend die kontinuierliche Darstellung der Verläufe der Schwebstoffkonzentrationen über die gesamte Versuchszeit für alle Experimente.

Im direkten Vergleich der Gruppen B und C der ermittelten Regressionsgleichungen zeigt sich, dass die Verläufe der Schwebstoffkonzentrationen einen anderen mathematischen Zusammenhang aufweisen. Diese Unterschiede lassen sich auf die Tierexposition zurückführen. Durch die begrenzende Wassertiefe von h = 325 mm wurde durch das Schwimmverhalten der Regenbogenforellen deutlich mehr Sediment resuspendiert als es allein durch die wirkenden Sohlschubspannung der Fall gewesen wäre (vgl. Experimente der Gruppe B).



Abbildung D-1: Grafische Darstellung der Regressionsgleichungen für die durchgeführten Experimente der Gruppe B



Abbildung D-2: Grafische Darstellung der Regressionsgleichungen für die durchgeführten Experimente der Gruppe C

# E Identifikation von Ausreißern der aufgezeichneten Daten für alle Experimente

# E.1 Vorstellung der verwendeten Methode zur Bestimmung und grafischen Darstellung der Ausreißeridentifikation

Die Identifikation der Ausreißer erfolgt mit dem Softwarepaket PASW Statistics 18. Das Softwarepaket bietet die Möglichkeit einer explorativen Datenanalyse. Darin enthalten ist die Angabe der deskriptiven Statistik. Nachfolgend sind für die analysierten Daten die folgenden Werte ermittelt worden: Mittelwert, 95 %-Konfidenzintervall, Median, Varianz, Standardabweichung, Minimum und Maximum sowie die Spannweite der ausgewählten Daten.

Mit Hilfe des Histogramms lassen sich die Daten nach deren Häufigkeit grafisch darstellen. Identifizierte Ausreißer, werden aus dem Datensatz entfernt und für die nachfolgende Betrachtung und Interpretation der Daten unter hydrotoxikologischen Gesichtspunkten nicht weiter berücksichtigt. Weiterhin hilft die Erstellung von Boxplots die identifizierten Ausreißer grafisch übersichtlich darzustellen. Daher wird diese Darstellungsform für alle Daten mitangegeben, wenn die Datenlage eine Auswertung erlaubt. Ein Ausreißer ist definiert als ein Wert der das 1,5-fache Quantil überschreitet.

Die nachfolgende Darstellung zur Identifikation der Ausreißer beschränkt sich auf die tabellarische Darstellung der deskriptiven Statistik für den jeweiligen Parameter sowie das dazugehörige Histogramm und den Boxplot mit den markierten Ausreißern. Die Identifikation der Ausreißer ist in die beiden experimentellen Gruppen B und C aufgeteilt.

# E.2 Identifikation von Ausreißern für die Experimente der Gruppe B

# E.2.1 Ausreißeridentifikation für den pH-Wert

Für die pH-Werte aller Experimente der Gruppe B konnte nach Durchführung der explorativen Datenanalyse alle gewünschten Werte ermittelt werden (Tabelle E-1). Bei der Analyse werden die Daten von Experiment B3 nicht berücksichtigt, da eine natürliche Entwicklung des pH-Wert

aufgrund der pH-Wert-Regulierung unterdrückt wurde. Die Datenlage umfasste dabei eine Stichprobe von N = 102.

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		8,03	0,017
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	7,99	
Mittelwerts	Obergrenze	8,06	
Median		8,08	
Varianz		0,03	
Standardabweichung σ		0,17	
Minimum		7,43	
Maximum		8,24	
Spannweite		0,81	

 Tabelle E-1:
 Deskriptive Statistik f

 Generation of the pH-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe B (ohne Experiment B3)

Nach der Auswertung der explorativen Datenanalyse werden zwei Datenpunkte ( $pH_1 = 7,43$  und  $pH_2 = 7,46$ ) entfernt. Auch die Häufigkeitsverteilung der pH-Werte unterstützt die Identifikation der genannten Ausreißer (Abbildung E-1). Die genannten Werte werden bei der anschließenden Datenauswertung nicht weiter berücksichtigt.



Abbildung E-1: Häufigkeitsverteilung (links) der pH-Werte aller Experimente der Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)

#### E.2.2 Ausreißeridentifikation für das Redoxpotential

Die Häufigkeitsverteilung des Redoxpotentials der Experimente, die Gruppe B zugeordnet werden können, zeigt eine bimodale Verteilung (Abbildung E-2). Eine Aufteilung nach Schwellenwerten ist hier nicht zielführend, um bereichsweise auf Normalverteilung zu testen. Nach Auswertung der Extremwerte und der Boxploterstellung lassen sich keine Ausreißer für diesen Datensatz identifizieren. Für die nachfolgende Auswertung werden alle verfügbaren Daten verwendet. Der Datensatz mit N = 102 Werten erlaubt eine deskriptive Datenanalyse (Tabelle E-2).



Abbildung E-2: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Redoxpotentiale aller Experimente der Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)

Tabelle E-2: Deskriptive Statistik für das Redoxpotential der zusammengefassten Experimente der Gruppe B

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		221,46 mV	8,05
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	205,48 mV	
Mittelwerts	Obergrenze	237,43 mV	
Median		214,10 mV	
Varianz		6615,63 mV	
Standardabweichung σ		81,43 mV	
Minimum		11,90 mV	
Maximum		331,40 mV	
Spannweite		319,50 mV	

## E.2.3 Ausreißeridentifikation für den gelösten organischen Anteil DOC

Nach der Ermittlung der statistischen Kennwerte für die zusammengefassten Werte des gelösten organischen Anteils DOC in der Wasserphase der gewonnen Proben und der dazugehörigen grafischen Auswertung konnten keine Ausreißer identifiziert werden (Tabelle E-3). Die Auswertung der DOC-Werte ergab nach Durchführung der deskriptiven Statistik keine Ausreißer, die bei der anschließenden Auswertung ausgeschlossen werden müssen (Abbildung E-3).

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		6,32 mg/l	0,63
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	5,03 mg/l	
Mittelwerts	Obergrenze	7,61 mg/l	
Median		7,31 mg/l	
Varianz		11,53 mg/l	
Standardabweichung $\sigma$		3,40 mg/l	
Minimum		1,11 mg/l	
Maximum		12,69 mg/l	
Spannweite		11,58 mg/l	

Tabelle E-3: Deskriptive Statistik für die DOC-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe B



Abbildung E-3: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen DOC-Werte aller Experimente der Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)

## E.2.4 Ausreißeridentifikation für den gesamten organischen Anteil TOC

Nach der Ermittlung der statistischen Kennwerte für die zusammengefassten Werte des gesamten organischen Anteils TOC in der Wasserphase der gewonnen Proben und der dazugehörigen Grafischen Auswertung konnten mehrere Ausreißer identifiziert werden (Tabelle E-4). Insgesamt ist die Datengrundlage mit N = 28 sehr gering und lässt keine belastbare Aussage zu, so dass die scheinbar identifizierten Ausreißer in der weiteren Auswertung nicht entfernt werden (Abbildung E-4).



Tabelle E-4: Deskriptive Statistik für die TOC-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe B



Abbildung E-4: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen TOC-Werte aller Experimente der Gruppe B und der dazugehörige Boxplot (rechts)

# E.2.5 Ausreißeridentifikation für die elektrische Leitfähigkeit

Eine kumulierte Auswertung ist bei der Betrachtung der elektrischen Leitfähigkeit in [mS/m] nicht zielführend, da im Experiment B3 die Werte stark von denen der übrigen Experimente abweichen (Abbildung E-5). Die grafische Darstellung zeigt, dass keine Ausreißer zu definieren sind.



Abbildung E-5: Darstellung des Verlaufs der elektrischen Leitfähigkeit über die Sohlschubspannung für die Experimente der Gruppe B

# E.2.6 Ausreißeridentifikation für die Wasserhärte

Die deskriptive Statistik des Härtegrades konnte für die Experimenten B1, B4 und B5 durchgeführt, da nur für diese Experimente Daten vorliegen (Tabelle E-5). Die grafische Auswertung hat weiterhin gezeigt, dass sich keine Ausreißer definieren lassen (Abbildung E-6). Alle Werte können für eine weitere Auswertung und Interpretation verwendet werden.

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		73,09 mg CaO	0,53
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	72,02 mg CaO	
Mittelwerts	Obergrenze	74,16 mg CaO	
Median		73,50 mg CaO	
Varianz		15,35 mg CaO	
Standardabweichung σ		3,92 mg CaO	

Tabelle E-5: Deskriptive Statistik für die Werte der Wasserhärte der zusammengefassten Experimente der Gruppe B





Abbildung E-6: Häufigkeitsverteilung (links) der ermittelten Wasserhärte für die Experimente B1, B4 und B5 sowie der dazugehörige Boxplot (rechts)

# E.3 Identifikation für die Experimente der Gruppe C

#### E.3.1 Ausreißeridentifikation für den pH-Wert

Nach der Durchführung der explorativen Datenanalyse lassen sich für den aufgezeichneten pH-Werte Ausreißer identifizieren (Tabelle E-6 und Abbildung E-7). Die identifizierten Ausreißer ergeben sich zu: 7,91; 7,88 und zweimal 7,86. Die Werte werden bei der anschließenden Auswertung der Daten nicht weiter berücksichtigt.

Tabelle E-6: Deskriptive Statistik für die pH-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe C

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		7,50	0,015
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	7,47	
Mitterweits	Obergrenze	7,53	
Median		7,49	

	Statistik	Standardfehler
Varianz	0,015	
Standardabweichung σ	0,12	
Minimum	7,33	
Maximum	7,91	
Spannweite	0,58	



Abbildung E-7: Häufigkeitsverteilung (links) der pH-Werte aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot mit Extremwerten (rechts)

#### E.3.2 Ausreißeridentifikation für das Redoxpotential

Für die Daten der zusammengefassten gemessenen Redoxpotentiale der Gruppe C wurden die üblichen statistischen Werte ermittelte und tabellarisch zusammengestellt (Tabelle E-7). Die grafische Auswertung der zusammengefassten Daten zeigt, dass sich eine gleichmäßige Verteilung ergibt. Dabei ist der Median leicht nach rechts verschoben. Die Verteilung der Daten im Boxplot umfasst alle Daten und keine Ausreißer können identifiziert werden (Abbildung E-8).

 Tabelle E-7:
 Deskriptive Statistik für das Redoxpotential der zusammengefassten Experimente der Gruppe C

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		156,50	9,48
95 % Konfidenzintervall des	Untergrenze	137,58	
Mittelwerts	Obergrenze	175,41	

	Statistik	Standardfehler
Median	171,60	
Varianz	6201,92	
Standardabweichung σ	78,75	
Minimum	6,90	
Maximum	297,70	
Spannweite	290,80	



Abbildung E-8: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Redoxpotentiale aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)

#### E.3.3 Ausreißeridentifikation für den gelösten organischen Anteil DOC

Die explorative Datenanalyse führte zu keiner Identifikation von Ausreißern. Alle Werte können für die anschließende Auswertung verwendet werden (Tabelle E-8 und Abbildung E-9).

Tabelle E-8: Deskriptive Statistik für die DOC-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe C

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		6,79 mg/l	0,62
95 % Konfidenzintervall des Mittelwerts	Untergrenze	5,52 mg/l	
	Obergrenze	8,06 mg/l	

	Statistik	Standardfehler
Median	6,50 mg/l	
Varianz	10,32 mg/l	
Standardabweichung σ	3,21 mg/l	
Minimum	1,15 mg/l	
Maximum	13,28 mg/l	
Spannweite	12,13 mg/l	



Abbildung E-9: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen DOC-Werte aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)

# E.3.4 Ausreißeridentifikation für den gesamten organischen Anteil TOC

Die Analyse der TOC-Werte für die verfügbaren Experimente der Gruppe C weist eine hohe Spannweite von 791,49 mg/l auf. Dem folgt auch der hohe Varianzwert (Tabelle E-9). Eine aussagekräftige Identifikation von Extremwerten ist nicht möglich. Die sehr geringen Werte zu Beginn der Versuche entsprechen der gleichen Größenordnung wie Experimente der Gruppe B. Die anschließend hohen Werte lassen sich auf die erhöhte Schwebstofffracht zurückführen. Resultierend aus diesen Rückschlüssen werden keine Ausreißer identifiziert und aus dem Datensatz entfernt (Abbildung E-10).

Tabelle E-9: Deskriptive Statistik für die TOC-Werte der zusammengefassten Experimente der Gruppe C

	Statistik	Standardfehler
Mittelwert	353,20 mg/l	47,67

		Statistik	Standardfehler
95 % Konfidenzintervall des Mittelwerts	Untergrenze	255,38 mg/l	
	Obergrenze	451,01 mg/l	
Median		311,16 mg/l	
Varianz		63637,56 mg/l	
Standardabweichung σ		252,26 mg/l	
Minimum		6,00 mg/l	
Maximum		797 <b>,</b> 49 mg/l	
Spannweite		791,49 mg/l	



Abbildung E-10: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen TOC-Werte aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)

#### E.3.5 Ausreißeridentifikation für die elektrische Leitfähigkeit

Die Daten für die elektrische Leitfähigkeit liegen für alle verfügbaren Daten der Experimente C1, C2, C4 und C5. Die Daten liegen in einem engen Wertebereich mit einer Spannweite von 18 mS/m (Tabelle E-10). Es konnten keine Ausreiße identifiziert werden (Abbildung E-11). Die anschließende Auswertung und Interpretation berücksichtigt alle Daten.

 Tabelle E-10:
 Deskriptive Statistik für die Werte der elektrischen Leitfähigkeit EL der zusammengefassten Experimente der Gruppe C

Statistik	Standardfehler

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		0,40 mS/m	0,005
95 % Konfidenzintervall des Mittelwerts	Untergrenze	0,39 mS/m	
	Obergrenze	0,41 mS/m	
Median		0,40 mS/m	
Varianz		0,002 mS/m	
Standardabweichung $\sigma$		0,04 mS/m	
Minimum		0,30 mS/m	
Maximum		0,48 mS/m	
Spannweite		0,18 mS/m	



Abbildung E-11: Häufigkeitsverteilung (links) der gemessenen Werte der elektrischen Leitfähigkeit aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)

#### E.3.6 Ausreißeridentifikation für die Wasserhärte

Auf Basis von N = 54 Werten konnte die deskriptive Statistik für die Wasserhärte der Experimente C1, C2, C3 und C4 aufgestellt werden. Die Daten weisen bei einem Mittelwert von 94,33 mg CaO mit einer Standardabweichung von 14,46 eine Spannweite von 56,50 auf, so dass das Minimum mit 64,50 und das Maximum mit 121,00 angegeben werden kann (Tabelle E-11). Die Auswertung zeigte, dass in dem Datensatz keine Ausreißer identifiziert werden konnten. Folglich können alle Werte für die anschließende Auswertung verwendet werden (Abbildung E-12).

		Statistik	Standardfehler
Mittelwert		94,33 mg CaO	1,97
95 % Konfidenzintervall des Mittelwerts	Untergrenze	90,39 mg CaO	
	Obergrenze	98,28 mg CaO	
Median		94,00 mg CaO	
Varianz		209,23 mg CaO	
Standardabweichung		14,46 mg CaO	
Minimum		64,50 mg CaO	
Maximum		121,00 mg CaO	
Spannweite		56,50 mg CaO	

Tabelle E-11: Deskriptive Statistik für die Werte der Wasserhärte der zusammengefassten Experimente der Gruppe C



Abbildung E-12: Häufigkeitsverteilung (links) der ermittelten Wasserhärte aller Experimente der Gruppe C und der dazugehörige Boxplot (rechts)

# Lebenslauf

Persönliche Daten		
Name	Catrina Cofalla	
Geburtsdatum	20. Mai 1982	
Geburtsort	Düsseldorf	
Wissenschaftlicher	und beruflicher Werdegang	
Seit 08/2013	Leitende wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut und Lehrstuhl für Wasserbau und Wasserwirtschaft. RWTH Aachen University	
Seit 06/2008	Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut und Lehrstuhl für Wasserbau und Wasserwirtschaft. RWTH Aachen University	
2005-2008	Wissenschaftliche Hilfskraft am Institut für Wasser und Gewässerent- wicklung, Abteilung Wasserwirtschaft und Kulturtechnik, Universität Karlsruhe (TH)	
04/2004-05/2008	Bauingenieurstudium, Universität Karlsruhe (TH), Vertiefungsrichtung "Wasser und Umwelt"	
10/2002-03/2004	Internationales Bauingenieurstudium (Vordiplom), Fachhochschule Mainz	
Schulausbildung		
1992-2002	Städtisches Meerbusch Gymnasium, Meerbusch, Abitur	
1998-1999	Austauschjahr mit Besuch der High School, Juneau, Alaska USA	
Auszeichnungen und Stipendien		
05/2010	2. Young Professional-Preis für Poster und Präsentation auf dem 32. PIANC World Congress in Liverpool, England, 1014. Mai 2010	