

## Anlage 3:

### Literaturauswertung zu PAK-Belastung in Gewässersedimenten

Verfasser: H. Krause, I. Hildebrandt

---

#### Seen

Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) sind im Sinne der Wasserrahmenrichtlinie als prioritäre Stoffe eingestuft und wurden in Sedimenten und Schwebstoffen zahlreicher natürlicher und künstlicher Seen untersucht. Die Messergebnisse bezüglich der Summe der PAK streuen dabei in einem sehr weiten Bereich von 0,15 (La Caldera, Spanien) bis über 150 mg/kg TS (Lake Windermere, UK). Die PAK-Belastungen treten ubiquitär auf, selbst abgelegene Gebirgsseen sind durch atmosphärische Einträge betroffen, wenn auch in geringerem Ausmaß als Seen mit urbanem und industrialisiertem Einzugsgebiet. Auch der Anteil bestimmter Einzelverbindungen an der Summe der PAK ist zum Teil signifikant unterschiedlich. Um ubiquitäre Hintergrundbelastungen von lokalen Einflüssen unterscheiden zu können, werden abgelegene Seen, urbane, zum Teil intensiv touristisch und anderweitig genutzte Seen, sowie sächsische Tagebaurestseen gesondert betrachtet.

Insbesondere die Daten abgelegener Seen sollen als Orientierungswerte einer Hintergrundbelastung (einschließlich der Verteilungsmuster der PAK-Einzelverbindungen) allein durch atmosphärische Depositionen dienen.

#### Abgelegene Seen

Bei Hochgebirgsseen, die oberhalb der Baumgrenze liegen, sind die Seen selbst und das Einzugsgebiet nur wenig anthropogen beeinflusst. Sämtliches allochthones Material wird atmosphärisch eingetragen. Betrachtet man die PAK-Belastung in den Sedimenten dieser oligotrophen und durch einen niedrigen Gehalt organischen Kohlenstoffs charakterisierten Seen, so fallen große Unterschiede in der Konzentration der Summe an PAK auf.

Die niedrigsten Konzentrationen sind in den entlegenen arktischen Regionen und ganz im Westen Europas zu finden und liegen zwischen 150 und 200 µg/kg TS. Seen in den Pyrenäen und Alpen sowie in Großbritannien weisen PAK-Konzentrationen bis zu 1 mg/kg TS im Sediment auf, während die höchsten Konzentrationen in der Tatra auftreten. Mit bis zu 15 mg/kg liegen die Konzentrationen im Bereich, der eigentlich typisch für urbane Einzugsgebiete ist. Die hohe PAK-Belastung korreliert hier mit der Deposition der anderen Luftschadstoffe Sulfat und Nitrat, sodass es sich um ein Gebiet mit insgesamt hohen atmosphärischen Schadstoffeinträgen handelt (Fernández et al., 1999; Rose & Rippey, 2002).

Die Sedimente in Seen der USA weisen auch in entlegenen Gebieten höhere PAK Belastungen als die europäischen Sedimente auf. Hier wird von Konzentrationen im Bereich von 2 bis 6 mg/kg TS berichtet (Leeming & Maher, 1992).

Abbildung 1 zeigt eine Übersicht über die Konzentrationen an PAK-Einzelverbindungen in entlegenen Seen Mitteleuropas und der USA.

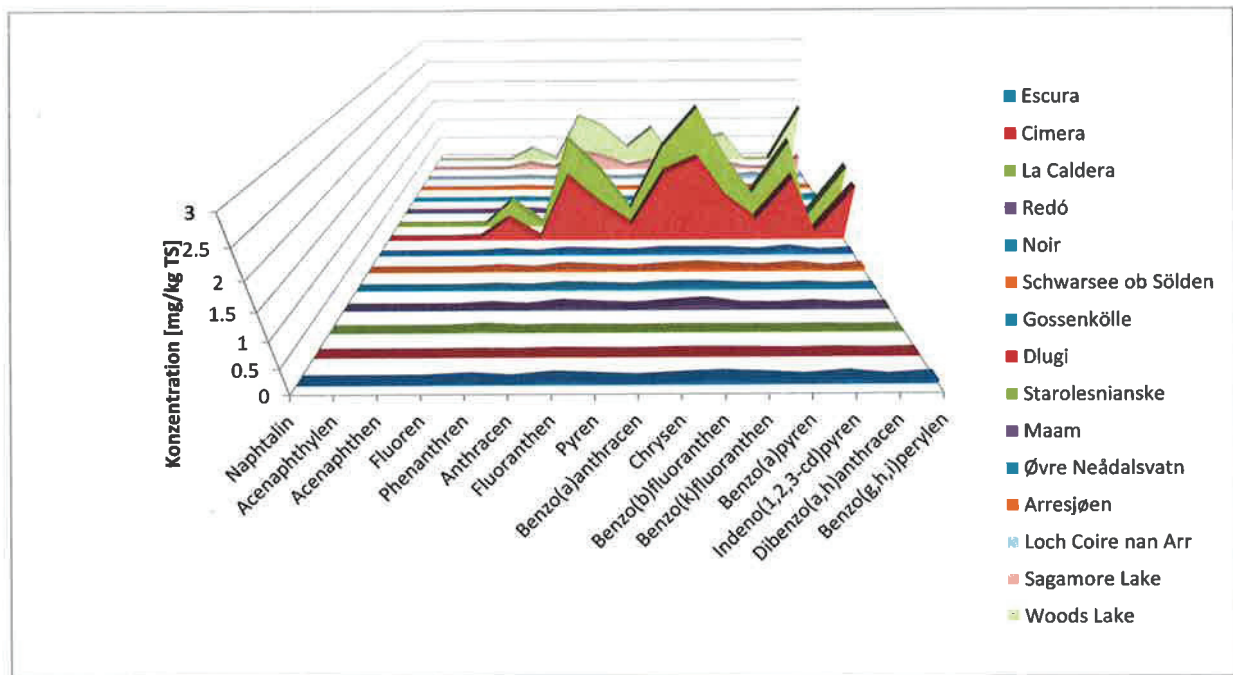


Abbildung 1: Konzentration an PAK in Sedimenten entlegener Seen

Der Anteil der Einzelverbindungen an der Summe der PAK ist dabei unabhängig von den absoluten Konzentrationen sehr ähnlich (vgl. Abbildung 2). Eine höhere Variabilität zeigt sich lediglich beim Phenanthren, das in Seen mit einer insgesamt niedrigen PAK-Konzentration stärker dominiert. Es besteht die Vermutung, dass diese Verbindung im See biogen entsteht oder aufgrund niedriger Temperaturen in stärkerem Maße an Partikeln kondensiert (Fernández et al., 1999). Die Seen in den USA zeigen einen vergleichsweise höheren Anteil an Fluoranthren und Pyren. Insgesamt dominieren in den Sedimenten entlegener Seen genauso wie im Aerosol an den jeweiligen Standorten die PAK-Verbindungen, die besonders stabil gegenüber Photooxidation und chemischem Abbau sind (Fernández et al., 1999).

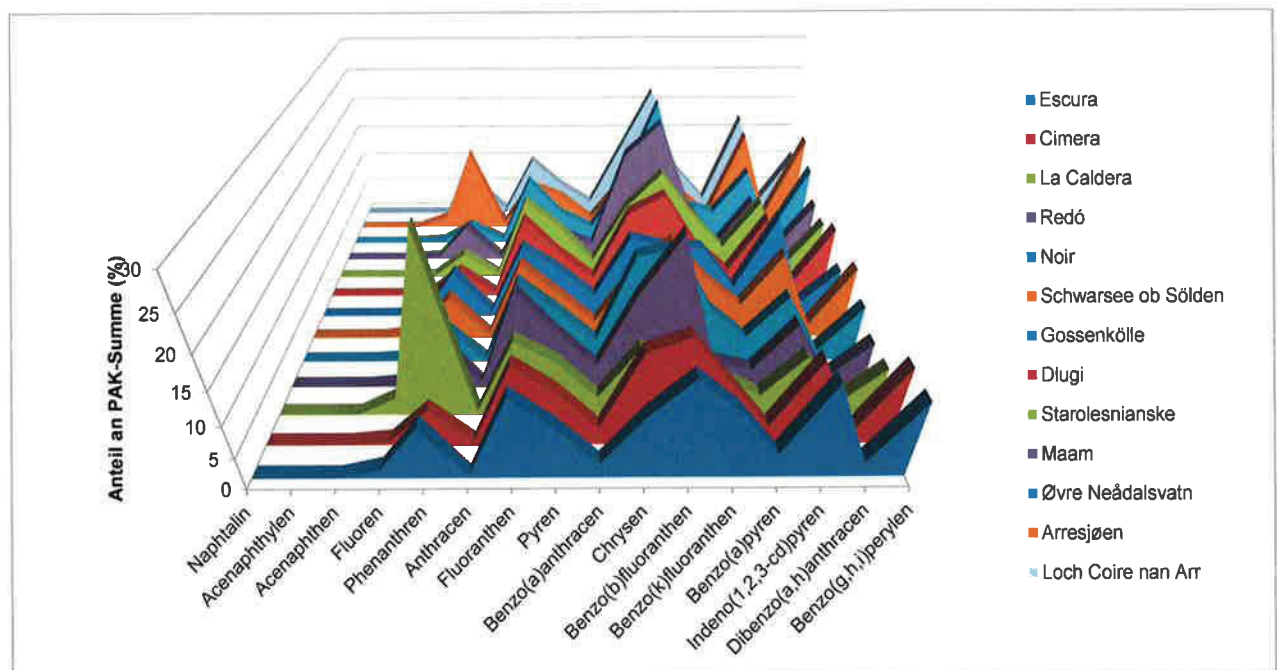


Abbildung 2: Anteil an  $\Sigma$  PAK der Einzelverbindungen bei entlegenen Seen

## Urbane Seen

Neben den ubiquitären Hintergrundbelastungen in den Sedimenten entlegener Seen sind auch PAK-Konzentrationen in Seesedimenten mit siedlungsnahem oder industrialisiertem Einzugsgebiet beschrieben. In den meisten Fällen ist auch hier die atmosphärische Deposition der dominierende Eintragspfad neben Straßenabläufen und Direkteinleitungen bestimmter Industrien als Punktquellen (Wakeham et al., 2004).

Die Konzentrationen sind nicht unmittelbar vergleichbar, da oft nicht alle 16 EPA-PAK untersucht wurden und sie sich unter Umständen auch an verschiedenen Probenahmestellen in einem See um das Zehnfache unterscheiden. Diese Unterschiede werden besonders bei großen Seen deutlich. Im Lake Michigan, USA, liegen die Konzentrationen zwischen 0,4 und 7,2 mg/kg. Dabei nimmt die Belastung mit zunehmender Entfernung von der Küste ab. Im Vergleich mit Aerosolmessungen liegt das vor allem an der über dem See abnehmenden Schadstoffkonzentration der Luft (Zhang et al., 1993). Beim kleineren, 1,47 km<sup>2</sup> großen See von Bled in Slowenien hingegen streuen die Werte lediglich zwischen 0,6 und 1,2 mg/kg, auch in Abhängigkeit des jeweiligen Redoxpotentials im Sediment (Muri & Wakeham, 2009).

Esthwaite Water ist ein kleiner, eutropher See in Großbritannien. In seiner Umgebung liegen einige mittelgroße Städte und das Sediment enthält hier etwa 6 mg/kg PAK (Gevao et al., 1998). Im Gegensatz zum Esthwaite Water ist der mesotrophe Lake Windermere von Motorbooten befahren, die hohen PAK-Konzentrationen lassen sich jedoch nur schwer darauf zurückführen. An einer Messstelle wurden hier PAK-Konzentrationen von 158 mg/kg TS gemessen, die jedoch auf die historischen Einleitungen von Abwasser aus der Schwarzpulver- und Kohleindustrie zurückzuführen sind. Auch die atmosphärische Deposition von Schadstoffen spielt im Gebiet eine große Rolle, denn in der Hauptwindrichtung liegt eine Industriestadt. Dafür spricht auch, dass der in 3 km Entfernung gelegene kleine See Priest Pot, der weder Direkteinleitungen noch Motorbootverkehr hat, ebenfalls hohe PAK-Konzentrationen im Sediment von bis zu 26 mg/kg aufweist (Cranwell & Koul, 1989).

In den Sedimenten der Gewässer im Stadtgebiet Hamburg, mit Ausnahme von Elbe und Hafen, die jeweils noch einmal eine besondere Belastungssituation haben, liegen die PAK-Konzentrationen zwischen < 1 und 80 mg/kg. Durch die hohe Verkehrsdichte und Einleitungen aus Mischwasserüberläufen sind diese städtischen Gewässer besonders belastet (Hamburger Umweltberichte, 2000).

In einer Auswahl oligitropher Seen Baden-Württembergs liegt die PAK-Konzentration zwischen 3 und 64 mg/kg (Umweltministerium Baden-Württemberg, 1992). In Abbildung 3 ist lediglich die durchschnittliche Verteilung der PAK aus 44 Seesedimenten in Baden-Württemberg dargestellt.

In den Sedimenten des eutrophen Stausees Lake Burley Griffin in Australien wird nur von sehr geringen PAK-Konzentrationen berichtet, die im Mittel bei 0,27 mg/kg liegen. Die Autoren begründen dies mit der gegenüber Europa und den USA niedrigeren Bevölkerungs- und Industriedichte in Australien. Das Verteilungsmuster der Einzelverbindungen liegt jedoch auch hier eher im Bereich der Werte für urbane Einzugsgebiete (vgl. Abbildung 4; Leeming & Maher, 1992).

Abbildung 3 zeigt die Konzentrationen der PAK-Einzelverbindungen in verschiedenen Sedimenten urbaner Seen. Zum Vergleich ist außerdem der Mittelwert der Hintergrundbelastungen von den entlegenen Seen dargestellt.

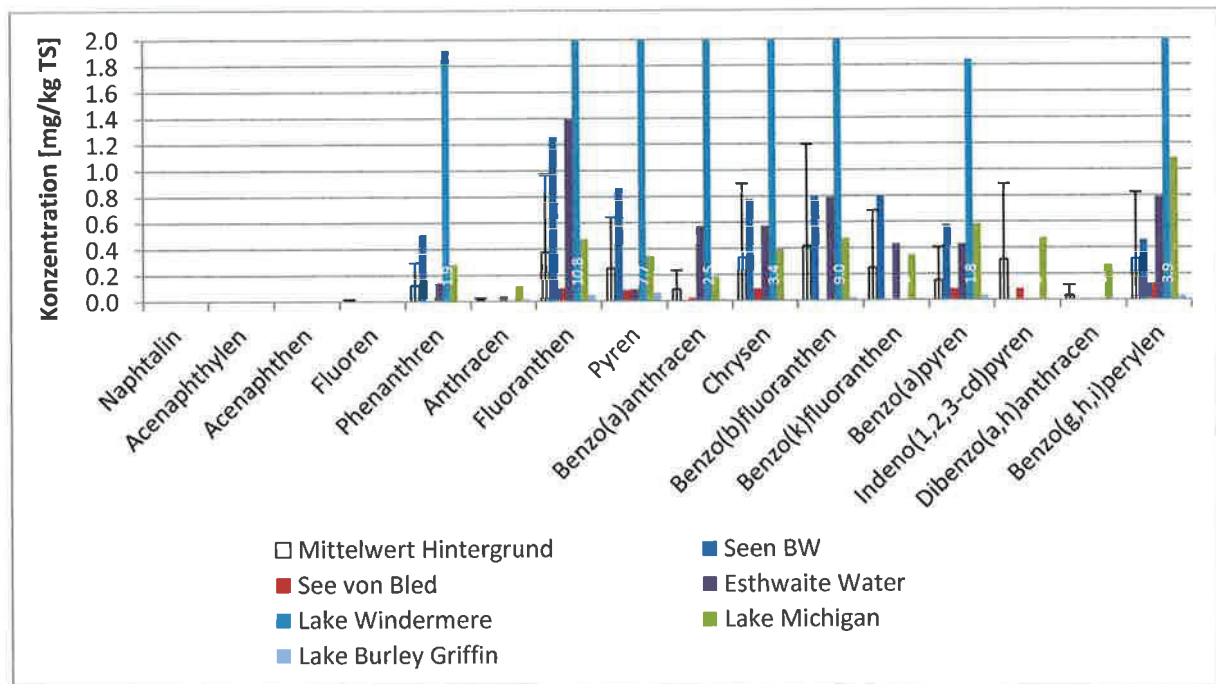


Abbildung 3: Konzentrationen der PAK Einzelverbindungen in Sedimenten von Seen mit urbanem Einzugsgebiet

In Abbildung 4 ist der Anteil der Einzelverbindungen an der Summe der 16 EPA-PAK dargestellt. Die Übersicht zeigt, dass die Verteilung in allen Seen ziemlich ähnlich ist. Im Gegensatz zu den entlegenen Seen, die als Mittelwert der Hintergrundbelastung dargestellt sind, fällt auf, dass der Anteil einiger Verbindungen signifikant unterschiedlich ist. So ist der Anteil an Anthracen, Fluoranthren, Pyren, Benzo(a)anthracen und Benzo(a)pyren in urbanen Seen oft höher, während vor allem der Anteil an Chrysen und Benzo(k)fluoranthren niedriger ausfällt.

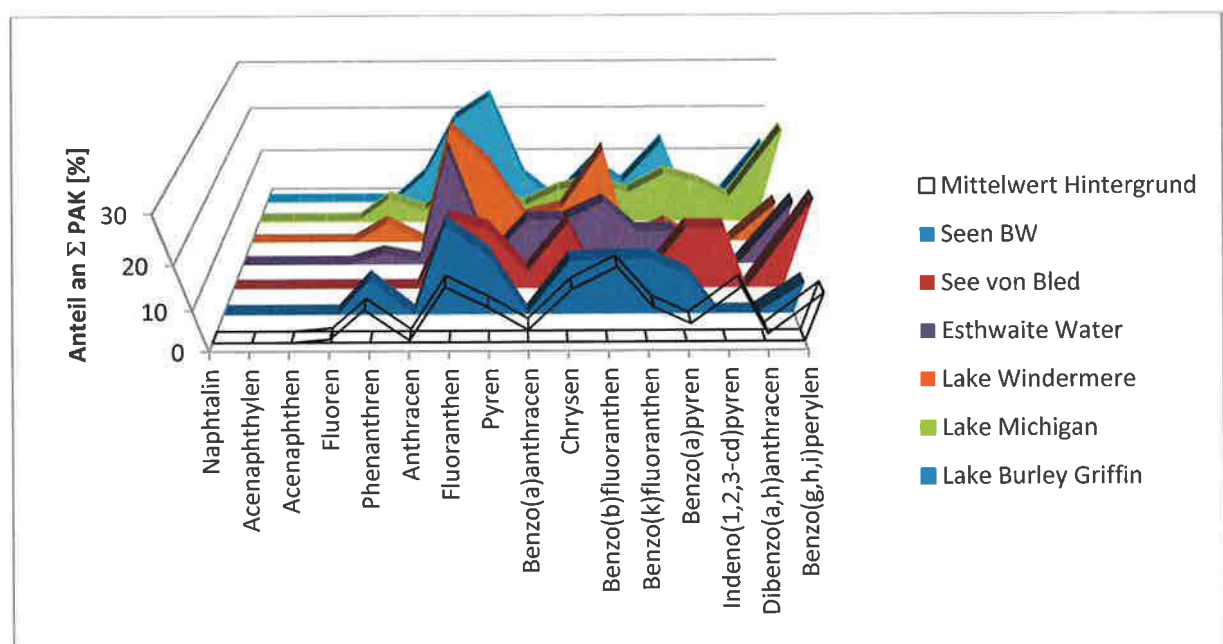


Abbildung 4: Anteil an  $\Sigma$  PAK der Einzelverbindungen bei urbanen Seen



## Tagebauseen in Sachsen

Die PAK-Konzentrationen in sächsischen Tagebauseen sind in Abbildung 5 und Abbildung 6 nach den Messungen des LfULG Sachsen (Quelle: LfULG Sachsen, per e-mail, Frau Rohde, Daten von 2010/11) dargestellt. Die Angaben beziehen sich auf die 63 µm-Fraktion der Proben.

Dabei fällt auf, dass Einzelkonzentrationen unter den Werten der Hintergrundbelastungen entlegener Seen liegen. Die PAK-Verteilung weist gegenüber entlegenen Seen vergleichsweise höhere Anteile an Anthracen, Fluoranthen, z.T. Pyren, Benzo(a)anthracen und Benzo(a)pyren sowie niedrigere Anteile an Chrysen und Benzo(k)fluoranthen auf. Damit erinnert sie an das Verteilungsmuster urbaner Seen, auf sehr geringem Konzentrationsniveau.

Die Summe der PAK betragen z.B.	Kulkwitzer See	6,4 mg/kg TS
	Albrechshainer See:	3,0 mg/kg TS
	Kiesgruben bei Leipzig*	0,41 mg/kg TS
	Olbersdorfer See	1,02 mg/kg TS
	Halbendorfer See	1,29 mg/kg TS

\* Mittelwert aus 4 Einzelwerten

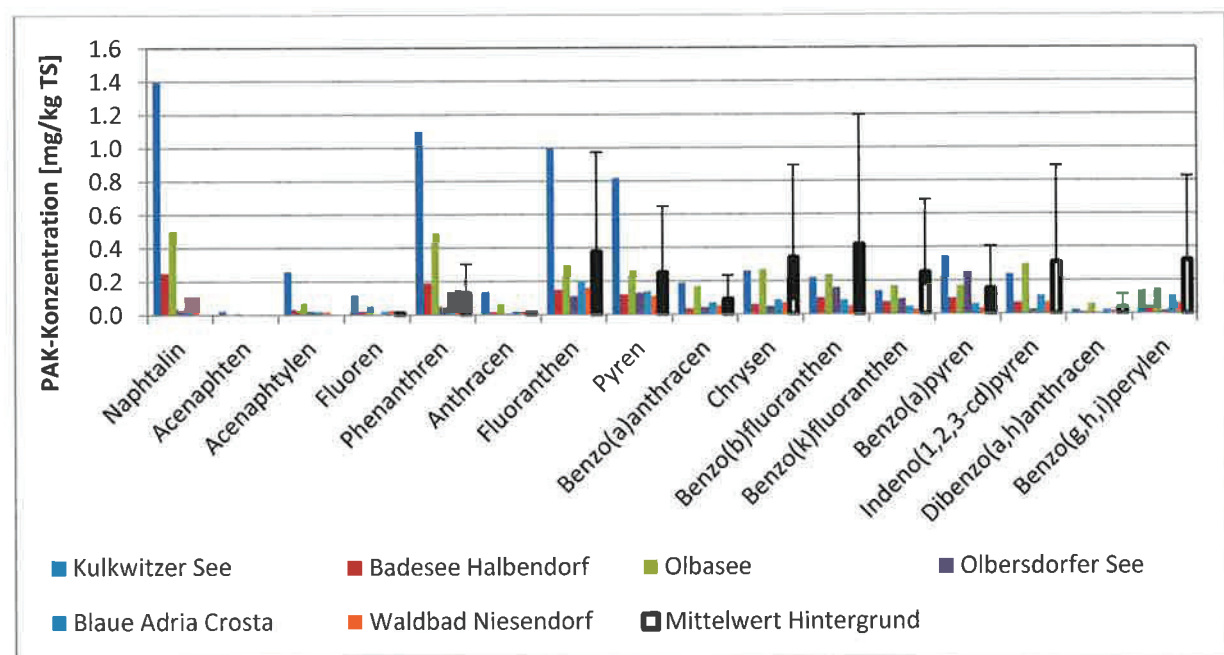


Abbildung 5: Konzentration der PAK-Einzelverbindungen in Sedimenten sächsischer Tagebauseen

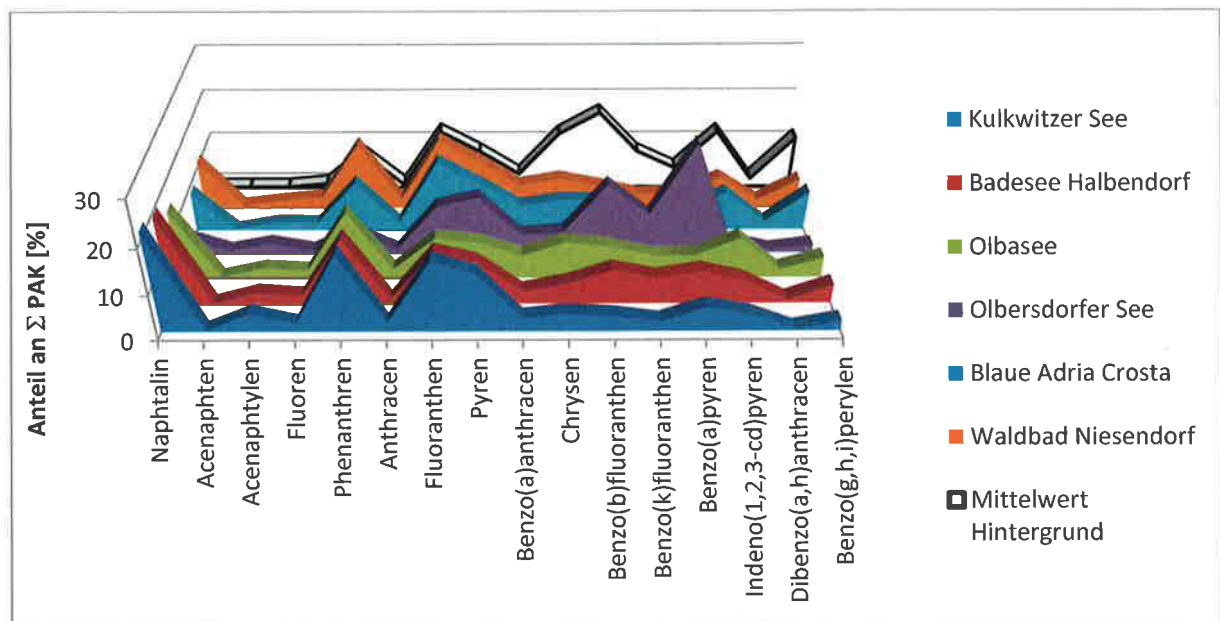


Abbildung 6: Anteil der Einzelverbindungen an  $\Sigma$  PAK in sächsischen Tagebauseen

Anlage 1: Tabellarische Übersicht: Daten von Seen

Anlage 2: Tabellarische Übersicht: Daten von Seen

## Quellen:

- Böhm E., Hillenbrand T. und Marscheider-Weidemann F. (2002) Ermittlung der Quellen für die prioritären Stoffe nach Artikel 16 der Wasserrahmenrichtlinie und Abschätzung ihrer Eintragsmengen in die Gewässer in Deutschland. Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Forschungsbericht 200 28 234, UBA-FB 000394. Umweltbundesamt, Texte 68-02, Berlin.
- Cranwell, P.A und Koul, V.K. (1989) Sedimentary record of polycyclic aromatic and aliphatic hydrocarbons in the Windermere catchment. *Water Research* 23:275–283.
- Evans, K.M., Gill, R.A., Robotham und P.W.J. (1990) The source, composition and flux of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the River Derwent, Derbyshire, UK. *Water, Air and Soil Pollution* 51:1–12.
- Fernández P, Vilanova RM und Grimalt JO (1999) Sediment Fluxes of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in European High Altitude Mountain Lakes. *Environmental Science and Technology* 33:3716-3722.
- Gevao, B., Jones, K.C. und Hamilton-Taylor, J. (1998) Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) deposition to and processing in a small rural lake, Cumbria UK. *Science of the Total Environment* 215:231–242.
- Hamburger Umweltberichte (2000) Gewässergütebericht Hamburg 1999. Hamburg.
- Kaut H. (1984) Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe in Sedimenten des Neckars, seiner Nebenflüsse, Rhein und Donau sowie in Klärschlämmen und Zu- und Abläufen von Kläranlagen. Dissertation Universität Tübingen.
- Kuch H. und Ballschmitter K. (1999) Hormoonell wirksame Verbindungen in der Umwelt Baden-Württembergs. Arbeitsbericht Nr. 151, Stuttgart.
- Leeming R. und Maher W. (1992) Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in Lake Burley Griffin, Australia. *Org. Geochem.* 18(5):647-655.
- Muri G. und Wakeham S.G. (2009) Effect of depositional regimes on polycyclic aromatic hydrocarbons in Lake Bled (NW Slovenia) sediments. *Chemosphere* 77:74-79.
- Pelzer G., Steffen D., und Lach G. (2003) Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe in Schwebstoffen und Sedimenten niedersächsischer Fließgewässer (1995 – 2000). *Oberirdische Gewässer, Bericht 17/2003*. Niedersächsisches Landesamt für Ökologie.
- Rose N.L. und Rippey B. (2002) The historical record of PAH, PCB, trace metal and fly-ash particle deposition at a remote lake in north-west Scotland. *Environ Poll* 117:121-132.
- Umweltministerium Baden-Württemberg (1992) Chemische Untersuchungen des Wassers und der Sedimente von 44 Seen in Baden-Württemberg. Stuttgart.
- Wakeham S.G., Forrest J., Masiello C.A., Gélinas Y., Alexander C.R. und Leavitt P.R. (2004) Hydrocarbons in Lake Washington Sediments. A 25-Year Retrospective in an Urban Lake. *Environmental Science and Technology* 38:431-439.
- Zhang, X., Christensen, E.R. und Yan, L.-Y. (1993) Fluxes of polycyclic aromatic hydrocarbons to Green Bay and Lake Michigan sediments. *Journal of Great Lakes Research* 19:429–444.

# Anlage 1: Daten von Seen

Ort		Einheit	Art der PAK	min.	max.	Quelle	Bemerkung
See von Bled, SL	touristisch genutzter See	mg/kg TS	einzelne PAK	0.026	0.116	Muri & Wakeham, 2009	
Loch Coire nan Arr, UK	sehr saubere Umgebung	mg/kg TS	Summe 12 PAK	0.626	0.626	Rose & Rippey, 2002	auch Einzelkonzentrationen
Esthwaite Water, UK	ländliche Umgebung, keine Motorboote	mg/kg TS	Summe 12 PAK	0.75	2.11	Gevao et al., 1998	auch Einzelkonzentrationen
Lake Michigan, USA		mg/kg TS	Summe 12 PAK	0.4	7.2	Zhang et al., 1993	
Lake Burley Griffin, AUS	Talsperre mit teils urbanem Einzugsgebiet	mg/kg TS	Summe 12 PAK	0.08	0.538	Leeming & Maher, 1992	auch Einzelkonzentrationen
Greifensee, CH	Urbanes/industrialisiertes EZG	mg/kg TS	einzelne PAK	0.03	0.38	Leeming & Maher, 1992	
Cayuga Lake, USA	Urbanes/industrialisiertes EZG	mg/kg TS	einzelne PAK	0.009	2.5	Leeming & Maher, 1992	
Sagamore Lake, USA	ländliche Umgebung	mg/kg TS	Summe 8 PAK	1.8	1.8	Leeming & Maher, 1992	auch Einzelkonzentrationen
Woods Lake, USA	ländliche Umgebung	mg/kg TS	Summe 8 PAK	6.4	6.4	Leeming & Maher, 1992	auch Einzelkonzentrationen
Coburn Mtn. Pond, USA	ländliche Umgebung	mg/kg TS	einzelne PAK	0.04	0.26	Leeming & Maher, 1992	
Windermere North Basin, UK	teils urbanes EZG, Motorboote	mg/kg TS	Summe 11 PAK	0.91	175.4	Cranwell & Koul, 1989	auch Einzelkonzentrationen
Priest Pot, UK	ländliche Umgebung, keine Motorboote	mg/kg TS	Summe 11 PAK	2.6	26.08	Cranwell & Koul, 1989	auch Einzelkonzentrationen
44 Seen in Baden-Württemberg		mg/kg TS	Summe 11 PAK	<0.56	76.9	Umweltministerium Baden-Württemberg, 1992	
12 Hochgebirgsseen in Europa		mg/kg TS	Summe 12 PAK	0.19	16	Fernandez et al., 1999	aufgeschlüsselt nach Seen und Einzelverbindungen
Lake Washington, USA	Urbanes/industrialisiertes EZG	mg/kg TS		0.5	0.5	Wakeham et al., 2004	

blau: abgelegene Seen



# Anlage 2: Daten von Fließgewässern

Ort		Einheit	Art der PAK	min.	max.	Quelle	Bemerkung
River Derwent, UK	eher ländliches EZG	Sediment	parent PAH com	0.58	35.24	Evans et al., 1989	nach Monaten und Probenahmeort aufgeschlüsselte Ergebnisse
Mosel und Saar		Schwebstoffe	TVO-PAK	2.4	5.4	Böhm et al., 2002	
Rhein		Schwebstoffe	TVO-PAK	1.3	2.2	Böhm et al., 2002	
Flüsse in BW und Hessen		Schwebstoffe	TVO-PAK	0.6	10.6	Kuch & Ballschmitt, 1999	
Neckar							Fluoranthen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Benzo(a)pyren, Benzo(ghi)perylene, Indeno(1,2,3-cd)pyren
		Sediment	Summe 6 PAK	4.55	21.8	Kaut 1984	
Rhein							Fluoranthen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Benzo(a)pyren, Benzo(ghi)perylene, Indeno(1,2,3-cd)pyren
		Sediment	Summe 6 PAK	1.96	14.1	Kaut 1984	
Donau							Fluoranthen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Benzo(a)pyren, Benzo(ghi)perylene, Indeno(1,2,3-cd)pyren
		Sediment	Summe 6 PAK	1.37	12.64	Kaut 1984	
Neckarnebenflüsse							Fluoranthen, Benzo(b)fluoranthen, Benzo(k)fluoranthen, Benzo(a)pyren, Benzo(ghi)perylene, Indeno(1,2,3-cd)pyren
Weser	Farge	Schwebstoffe	Summe 6 PAK	3.25	35.78	Kaut 1984	
Aller	Verden	Schwebstoffe	EPA PAK +3	1.19	3.17	Pelzer et al., 2003	
Ems	Herbrum	Schwebstoffe	EPA PAK +3	1.38	5.42	Pelzer et al., 2003	
Weser	Drakenburg	Schwebstoffe	EPA PAK +3	0.86	5.88	Pelzer et al., 2003	
Aller	Oldau	Schwebstoffe	EPA PAK +3	1.46	5.95	Pelzer et al., 2003	
		Sediment	EPA PAK +3	10	60	Pelzer et al., 2003	