Kurzbericht

des Forschungsvorhabens:

„Demonstrationsvorhaben Ozonung des Abwassers auf der Kläranlage Aachen-Soers“

(Phase 1a und 1b)

DEMO3AC

gerichtet an das

Ministerium für Umwelt, Landwirtschaft,
Natur- und Verbraucherschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen

Düren, den 28.06.2018

Dr.-Ing. Joachim Reichert

Antragsteller

Wasserverband Eifel-Rur
Dr.-Ing. Joachim Reichert
Eisenbahnstr. 5
52353 Düren
www.wver.de

Projektpartner

RWTH Aachen University
52056 Aachen
www.rwth-aachen.de

Institut für Siedlungswasserwirtschaft (ISA)
Prof. Dr.-Ing. Johannes Pinnekamp
www.isa.rwth-aachen.de

Institut für Umweltforschung (IfU)
Lehr- und Forschungsgebiet Ökosystemanalyse (ESA)
Prof. Dr. Henner Hollert
www.bio5.rwth-aachen.de

Institut für Angewandte Mikrobiologie (iAMB)
Prof. Dr. Miriam Agler-Rosenbaum
www.iamb.rwth-aachen.de

Forschungsinstitut für Ökosystemanalyse und -bewertung e. V. (gaiac) an der RWTH Aachen University
Dr. Monika Hammers-Wirtz
Kackertstr. 10
52072 Aachen
www.gaiac.rwth-aachen.de

Erstellt durch:
Brückner, Ira (WVER, Projektleitung)
Klaer, Kassandra (ISA)
Schiwy, Sabrina (IfU)
Kirchner, Kristina (iAMB)
Hammers-Wirtz, Monika (gaiac)
Müller, Yvonne (IfU)
Shuliakevich, Aliaksandra (IfU)
Claßen, Silke (gaiac)
Stepkes, Hermann (WVER)
Grunau, Thalia (WVER)
Dolny, Regina (ISA)
Gebhardt, Wilhelm (ISA)
Gschwendtner, Reiner (ISA)
David, Montag (ISA)
Könemann, Sarah (IfU)
Wendt, Laura (iAMB)
Hollert, Henner (IfU)
Agler-Rosenbaum, Miriam (HKI)
Reichert, Joachim (WVER)
Pinnekamp, Johannes (ISA)

Zitation: Brückner, I.; Klaer, K.; Schiwy, S.; Kirchner, K.; Hammers-Wirtz, M.; Müller, Y.; Shuliakevich, A.; Claßen, S.; Stepkes, H.; Grunau, T.; Dolny, R.; Gebhardt, W.; Gschwendtner, R.; Montag, D.; Könemann, S.; Wendt, L.; Hollert, H.; Agler-Rosenbaum, M.; Reichert, J.; Pinnekamp, J.; (2018): Abschlussbericht der Phase 1 des Forschungsvorhabens Demonstrationsvorhaben Ozonung des Abwassers auf der Kläranlage Aachen-Soers (DemO_3AC). Gerichtet an das MULNV NRW. Düren, 2018

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis II

Abbildungsverzeichnis III

Tabellenverzeichnis IV

1 Projektbeschreibung und Experimentelles Design ..... - 1 -

2 Feststellung des Status Quo als Ergebnis der Phase 1 ..... - 5 -

2.1 Untersuchung der Kläranlagen - 5 -

2.1.1 Abwasserparameter - 5 -

2.1.2 Spurenstoffelimination - 6 -

2.1.3 Ökotoxizität - 8 -

2.1.4 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen - 9 -

2.2 Untersuchung des Regenüberlaufbeckens - 10 -

2.3 Untersuchung des Einflusses der Kläranlagen auf die Vorfluter - 12 -

2.3.1 Abwasserparameter - 12 -

2.3.2 Spurenstoffelimination - 13 -

2.3.3 Ökotoxizität - 16 -

2.3.4 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen - 17 -

2.3.5 Lebensgemeinschaften im Gewässer - 18 -

2.4 Ozonung im Pilotmaßstab - 19 -

2.4.1 Grundlagen und Vorversuche - 19 -

2.4.2 Spurenstoffelimination - 20 -

2.4.3 Transformationsproduktbildung und Ökotoxizität - 22 -

2.4.4 Ökotoxizität - 24 -

2.4.5 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen infolge Ozonung - 25 -

3 Zusammenfassung ..... - 27 -

4 Referenzen ..... - 30 -

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Schematische Darstellung des Projektaufbaus als relativer Bezug der Zustandsänderung (Implementierung einer großtechnischen Ozonungsanlage) zur Prozesskontrolle (Ist-Zustand der Kläranlage und des Vorfluters) mit den jeweils eingesetzten Bewertungskategorien (Toolbox) ..- 2 -

Abbildung 2: Untersuchungsgebiet DemO_3AC mit Abwasseranlagen und Gewässerprobenahmestellen (Esri 2016) .....- 4 -

Abbildung 3: Spurenstoffelimination auf der Kläranlage Aachen-Soers (Zulauf Kläranlage–Ablauf Nachklärung; gestreifte Balken: mindestens eine Probe ANK unter BG (n_{TW} = 9, n_{RW} = 9)) bei Trocken- (TW) und Regenwetter (RW).....- 7 -

Abbildung 4: Vergleich der Ablaufkonzentrationen für ausgewählte Abwasserparameter der Kläranlage Aachen-Soers (n = 4) und des RÜB Soers (n = 16).....- 11 -

Abbildung 5: Einfluss der Kläranlagen auf die Spurenstoffbelastung in der Wurm an der Probenahmestelle W5 (n = 4; Datensatz Screening 2017).....- 14 -

Abbildung 6: Spurenstoffkonzentrationen in der Wurm (W5) nach Einleitung der Kläranlage Aachen-Soers und Zuordnung der Herkunft der Spurenstoffbelastung (n = 9; Datensatz Screening 2015–2016). - 15 -

Abbildung 7: Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten in Abhängigkeit der spezifischen Ozondosis .....- 20 -

Abbildung 8: Spurenstoffelimination in Abhängigkeit der spezifischen Ozondosierung während der dynamischen Ozonversuche .....- 21 -

Abbildung 9: Links: Korrelation zwischen der spezifischen Ozondosierung und dem daraus resultierendem ΔSAK_{254}. Rechts: Spurenstoffelimination in Abhängigkeit des ΔSAK_{254} während der dynamischen Ozonversuche. .....- 22 -

Abbildung 10: Bromatkonzentration im Ablauf der Pilotanlage in Abhängigkeit unterschiedlicher Betriebsparameter. .....- 24 -

Abbildung 11: Reduzierung des Anteils gentamycinresistenter Enterokokken infolge der Ozonung (* = Kolonien der Kontrollplatte unterhalb des Grenzwertes).....- 26 -

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Paarweiser Vergleich der Konzentrationen von ausgewählten Spurenstoffen auf der Kläranlage Aachen-Soers im Ablauf im Vergleich zum Zulauf (Datensatz „Screening“) (-: nicht signifikant; +: signifikant; ↓: signifikant verringert im AF vs. ZKA, p: Wahrscheinlichkeit) .....- 8 -

Tabelle 2: Übersicht der beobachteten Effekte durch Mischwasserentlastung der nativen Proben und der Extrakte (RÜB Soers und W3 nach Abschlagsereignis). Orange: Effekt nachweisbar. Grün: kein Effekt nachweisbar. .....- 12 -

Tabelle 3: Univariate statistische Auswertung von Standardparametern im Datensatz „Screening“ für den Haarbach und die Wurm unter Einfluss der Kläranlage Eilendorf und Aachen-Soers (-: nicht signifikant; +: signifikant;·↑: signifikant erhöht; ↓: signifikant verringert) .....- 13 -

Tabelle 4: Öko- und zelltoxikologische Tests der Ozonung im Pilotmaßstab .....- 25 -

1 Projektbeschreibung und Experimentelles Design

Rückstände von Haushaltschemikalien, wie z. B. Reinigungsmitteln, Hygieneprodukten und Medikamenten oder Industriechemikalien, gelangen nach der Verwendung in Spuren über das Abwasser in Kläranlagenabläufe und von dort in Oberflächengewässer. Auch geringe Konzentrationen von Spurenstoffen im Gewässer, die nicht zu Überschreitungen von eventuellen Grenzwerten führen, können ökotoxikologisch relevant sein und Effekte in Bezug auf Reproduktion, Wachstum, Mortalität etc. der Gewässerorganismen haben (Triebskorn und Hetzenauer 2012). Der Wasserverband Eifel-Rur entschied daher bereits 2012, dass im Rahmen des Forschungsvorhabens „Demonstrationsvorhaben Ozonung des Abwassers auf der Kläranlage Aachen-Soers“ ($DemO_3AC$) eine großtechnische Ozonung auf der Kläranlage Aachen-Soers gebaut werden soll. Die Planung und Dimensionierung, der Bau und die Evaluierung der Ozonanlage wurde durch das Forschungsvorhaben unterstützt und begeleitet. Die Evaluierung des Erfolgs der Ozonung erfolgt anhand von chemisch-physikalischen, ökotoxikologischen und mikrobiologischen Untersuchungen auf der Kläranlage und im Vorfluter, die sowohl vor als auch nach dem Ausbau der Kläranlage Aachen-Soers durchgeführt werden. Dieser Bericht beinhaltet die Ergebnisse der Phase 1, somit die Dokumentation des Status quo „vor Ozonung“ präsentiert.

Für das Projekt $DemO_3AC$ lassen sich entsprechend zwei übergeordnete Ziele formulieren, welche die Notwendigkeit und den Erfolg einer Ozonung als weitergehende Reinigungsstufe bewerten sollen:

- **die Evaluierung der Ozonung im Hinblick auf die Auswirkungen auf die Gewässerqualität und -biozönose;**
- **die verfahrenstechnische Optimierung der Ozonung.**

Im Rahmen des ersten Ziels des Projekts wird eine Bewertung der Zustandsänderung der Kläranlage Aachen-Soers – einschließlich des Gewässers – infolge der Implementierung der Ozonung durchgeführt. Die Zustandsänderung wird bezogen auf den Status quo. Um diese Zustandsänderung darzustellen, werden vergleichende Untersuchungen auf der Kläranlage Aachen-Soers und deren Vorfluter, der Wurm, vor (als Ausgangslage) und nach (also die relative Veränderung in Bezug auf die Ausgangslage) der Inbetriebnahme einer großtechnischen Demonstrationsanlage durchgeführt. Vor Einleitung der Kläranlage Aachen-Soers in die Wurm befindet sich als einzige flussaufwärts liegende Kläranlage die Kläranlage Eilendorf. Diese leitet in den Haarbach ein, der wiederum in die Wurm mündet. Daher wurden die Untersuchungen des Status Quo um weitere Probenahmestellen und -tage ergänzt, sodass zusätzlich die Vorbelastung der Wurm flussaufwärts eruiert und die Datengrundlage des Projektgebiets wesentlich ergänzt wurde. Der übergreifende Aufbau des Projekts ist in Abbildung 1 dargestellt.

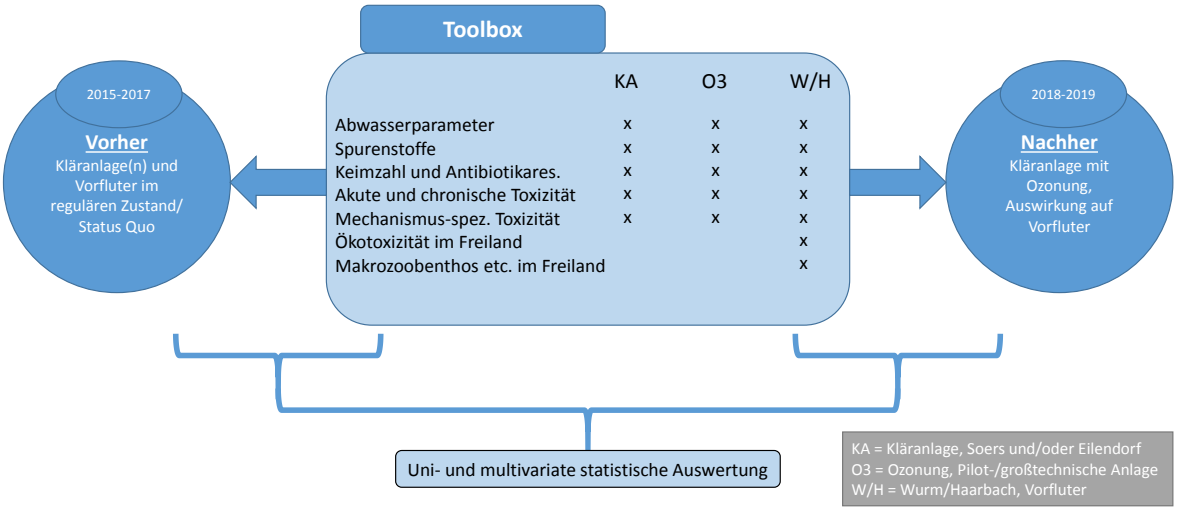

Abbildung 1: Schematische Darstellung des Projektaufbaus als relativer Bezug der Zustandsänderung (Implementierung einer großtechnischen Ozonungsanlage) zur Prozesskontrolle (Ist-Zustand der Kläranlage und des Vorfluters) mit den jeweils eingesetzten Bewertungskategorien (Toolbox)

Die Toolbox zeigt die übergeordneten Bewertungskategorien (z. B. Abwasserparameter, Spurenstoffe etc.) einschließlich der Zuordnung, ob diese Untersuchungen zur Bewertung der Kläranlage, der Ozonung oder der beiden untersuchten Vorfluter angewendet wurde. Den jeweiligen Kategorien in der Toolbox sind zahlreiche Einzeltests der folgenden Bereiche hinterlegt:

- Abwasser- und Standardparameter
- Spurenstoffanalytik
- Bestimmung der Keimzahl
- Tests zur Ökotoxizität
- Beprobung von Makrozoobenthos, Makrophyten und Phytobenthos

Der Wasserverband Eifel-Rur betreibt 44 Kläranlagen, von denen die größte Kläranlage im Verbandsgebiet mit einer Ausbaugröße von 458.300 Einwohnerwerten die Kläranlage Aachen-Soers ist. Dort werden jährlich bis zu 27 Mio. m³ Abwasser mechanisch-biologisch und chemisch (chemische Reinigung z. B. über den Einsatz von Fäll- und Flockungsmitteln) gereinigt. Den Abschluss bildet eine Sandfiltrationsstufe.

Der Ablauf der Kläranlage Aachen-Soers wird in den Vorfluter Wurm geleitet. Die Wurm ist ein silikatischer Mittelgebirgsbach, der im Aachener Wald entspringt und über weite Strecken im Stadtgebiet verrohrt ist. Bis zum Ablauf der Kläranlage Aachen-Soers fließen der Wurm noch der Haarbach (MNQ = 0,07 m^3/s am Pegel Haaren; (ELWAS-WEB 2017)) und der Wildbach zu. Unterhalb der Kläranlage Aachen-Soers macht das gereinigte Abwasser dieser Anlage bis zu 70 % der Wasserführung der Wurm aus (MKULNV 2014).

Am zufließenden Haarbach befindet sich die Kläranlage Eilendorf. Da im Rahmen des Projekts eine starke Vorbelastung des Wassers in der Wurm festgestellt wurde, fand eine Erweiterung des ursprünglichen Untersuchungsgebiets um diese Kläranlage und den Haarbach statt. Die Kläranlage

Eilendorf hat eine Ausbaugröße von 87.000 EW und behandelt 4,5 Mio. m³ Abwasser (Jahresabwassermenge) pro Jahr.

Insgesamt ist die Wurm im untersuchten Gewässerabschnitt daher bereits durch die Kläranlageneinleitungen stark abwassergeprägt. Als weitere Abwassereintragspfade leiten auch Mischwasserbehandlungsanlagen in die Wurm. Innerhalb dieses Projekts wurde das Regenüberlaufbecken (RÜB) Soers untersucht, da es aufgrund seiner Lage und des Abschlagsverhaltens von großer Relevanz für den betrachteten Gewässerabschnitt ist. Der teils erhebliche Einfluss des RÜB Soers auf die Wurm hinsichtlich hydraulischer und stofflicher Belastung ergibt sich aus seinem Abschlagverhalten. Das RÜB Soers schlägt im Vergleich zu den anderen Mischwasserentlastungsanlagen im Untersuchungsgebiet häufig ab: an 40 oder mehr Tagen im Jahr (Auswertung ab 2015) werden mit einer Gesamtsumme des Abschlagsvolumens von über 1,2 Mio. m^3/a (2015 & 2016) erhebliche Mengen Mischwasser in das Gewässer eingeleitet. Das RÜB Soers befindet sich auf dem Gelände der Kläranlage Aachen-Soers und wurde im Rahmen des Projekts aufgrund seiner relevanten Gewässerbeeinflussung gesondert untersucht. Das Speichervolumen des RÜB Soers beträgt 10.000 m³.

Auf der Kläranlage Aachen-Soers wurden der Zulauf (ZKA) (nach dem Rechen), der Ablauf der Nachklärung (ANK) und der Ablauf des Filters (AF), der dem Ablauf der Kläranlage entspricht, untersucht. Auf der Kläranlage Eilendorf wurden die Messstellen Zulauf und Ablauf der Kläranlage (entspricht ebenfalls dem Ablauf Filter) gewählt. Als Grundlage für eine Machbarkeitsstudie wurden darüber hinaus auch der Zulauf der Biologie und der Ablauf der Nachklärung der Kläranlage Eilendorf beprobt und auf Abwasserparameter und Spurenstoffe hin untersucht. Die Ergebnisse der Beprobung des Zu- und Ablaufs sind eine relevante Eingangsgröße zur Bestimmung der Reinigungsleistung der Kläranlage. Die Ermittlung der Konzentrationen im Ablauf der Nachklärung geben wichtige Hinweise darauf, wie sich die Belastung des Abwassers im Zulauf der zukünftigen Ozonung gestaltet, wohingegen die Konzentrationen im Ablauf der Kläranlage einen Aufschluss über die Emissionen der Kläranlage in die Wurm bzw. den Haarbach zulassen.

Im Untersuchungsgebiet wurde das Wasser an zahlreichen Probenahmestellen in der Wurm (W1 bis W5), im Haarbach (H1 und H2) sowie das Abwasser der zuvor beschriebenen Probenahmestellen auf den Kläranlagen Aachen-Soers und Eilendorf untersucht. Das gesamte Untersuchungsgebiet mit den Gewässerprobenahmestellen ist in Abbildung 2 zu sehen.

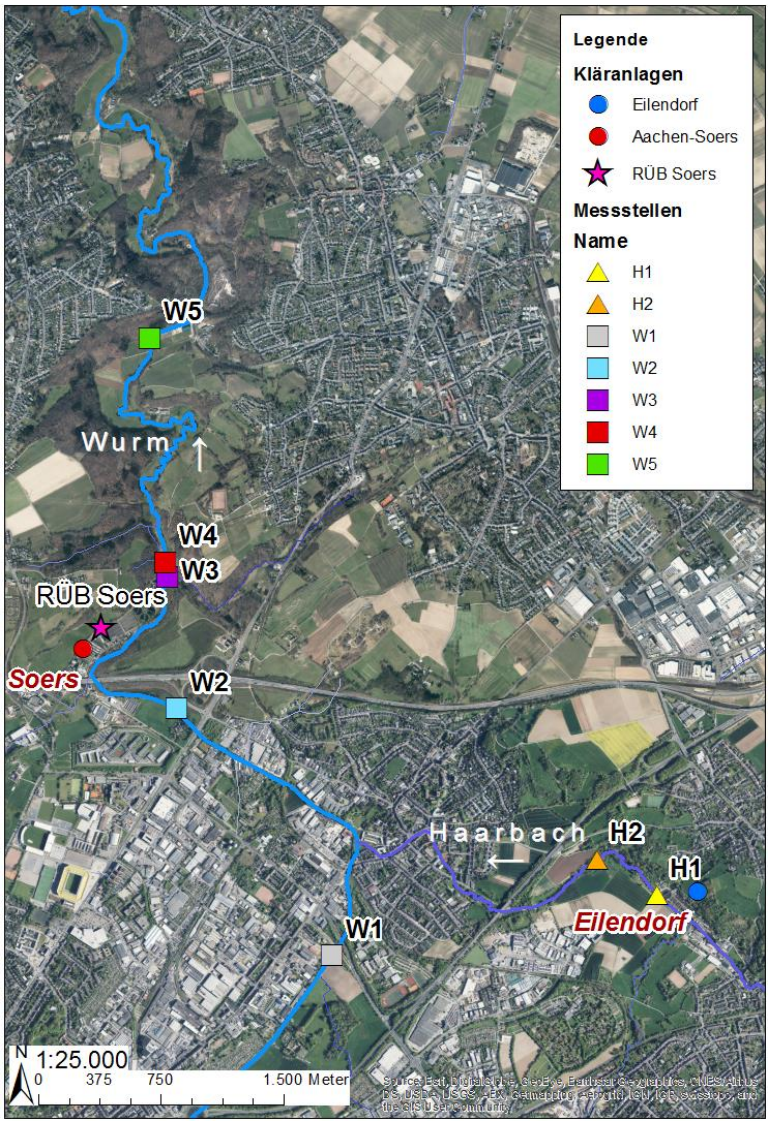

Abbildung 2: Untersuchungsgebiet DemO$_3$AC mit Abwasseranlagen und Gewässerprobenahmestellen (Esri 2016)

2 Feststellung des Status Quo als Ergebnis der Phase 1

2.1 Untersuchung der Kläranlagen

2.1.1 Abwasserparameter

Mit ca. 27 Mio. m³/a behandelter Jahresabwassermenge ist die Kläranlage Aachen-Soers die größte Kläranlage des WVER. Die Zulaufwassermenge der Kläranlage Aachen-Soers beträgt durchschnittlich 1.200 l/s bei Trockenwetter. Der maximale Zulauf ist beschränkt auf knapp 3.000 l/s. Die Kläranlage ist mit mechanisch-biologischen Reinigungsstufen und zusätzlich mit einer Klarwassernitrifikation und einer Sandfiltration ausgestattet. In der Biologie und nach Bedarf auch im Sandfilter werden Fällmittel eingesetzt. Die großtechnische Ozonungsanlage ist zwischen Nachklärung und Klarwassernitrifikation geschaltet, so dass sich für die Ozonung zwei Nachbehandlungsstufen ergeben.

Auf der Kläranlage Aachen-Soers wurden vom Zulauf bis zum Ablauf der Kläranlage ca. 98 % der sauerstoffzehrenden bzw. oxidierbaren Verbindungen eliminiert. Diese Verbindungen werden über den chemischen Sauerstoffbedarf (CSB) gemessen, welcher mit Eingangskonzentrationen von $c_{CSB,zu}$ = 698 ± 244 mg/l und Ablaufkonzentrationen von $c_{CSB,ab}$ = 14 ± 2,4 mg/l im Abwasser vorlag. Der Anteil der gelösten organischen Substanzen, gemessen als DOC, wurde bei Zulaufkonzentrationen von $c_{DOC,zu}$ = 107 ± 46,7 mg/l im Mittel um ~95 % eliminiert ($c_{DOC,ab}$ = 5,1 ± 1 mg/l). Aufgrund der Filtrationsstufe wurden nahezu alle als AFS erfassten Feststoffe zurückgehalten (99,5 % Elimination; $c_{AFS,ab}$ = 0,9 ± 0,3 mg/l). Obwohl die Elimination der gesamten Nährstoffverbindungen durch die Kläranlage im Schnitt bei N_{ges} = 81 % und P_{ges} = 99 % lag, erfolgte im Fall von Nitrat eine Erhöhung der Konzentrationen in der Wurm nach Einleitung der Kläranlage. Der Überwachungswert von 13 mg N_{ges}/l wurde im Ablauf der Kläranlage jedoch zu keinem Zeitpunkt überschritten (mittlere Konzentration am Ablauf der Kläranlage $c_{NO3-N,ab}$ = 6 ± 2,3 mg/l, n = 11). Auch die Einhaltung der Überwachungswerte weiterer Stickstoffverbindungen, wie Ammonium (1 mg/l), war stets gewährleistet ($c_{NO4-N,ab}$ = 0,045 ± 0,065 mg/l; n = 12). Die zuvor aufgeführten Messungen im Rahmen von DemO_3AC bestätigen die Ergebnisse der ständigen Selbstüberwachung der Kläranlage. Die Einhaltung der teils sehr niedrigen Überwachungswerte entspricht dem Regelbetrieb der Kläranlage Aachen-Soers (Brückner et al. 2018).

Die meisten Standardparameter, wie TOC, DOC, TN_b, NH_4-N, $N_{org.}$ und $P_{ges.}$, waren im Ablauf der Kläranlage im Vergleich zum Zulauf signifikant verringert. Lediglich NO_3-N und Sulfat sind im Ablauf gegenüber dem Zulauf signifikant erhöht und resultieren aus der biologischen Behandlung des Abwasser bzw. der Verwendung von Grünsalz als Fällmittel (Eisen(II)Sulfat) auf der Kläranlage.

Die Kläranlage Eilendorf ist für 87.000 EW ausgelegt. Der Trocken- bzw. Mischwasserzulauf zur Kläranlage beträgt Q_T = 261,5 l/s bzw. Q_M = 523 l/s. Verfahrenstechnisch ist die Kläranlage Eilendorf vergleichbar ausgestattet wie die Kläranlage Aachen-Soers.

Basierend auf den Messwerten im Rahmen von DemO_3AC lag der chemische Sauerstoffbedarf (CSB) im Median bei 476,3 mg/l im Zulauf und 13,3 mg/l im Ablauf der Kläranlage Eilendorf. Durch die Behandlungsstufen der Kläranlage wurden demnach 97 % des CSB eliminiert. Allein in der biologischen Stufe (Zulauf–Ablauf Biologie) wurden 94 % des CSB, 96 % der abfiltrierbaren Stoffe und 88 % des DOC abgebaut. Über die gesamte Kläranlage (Zulauf bis Ablauf) wurden 99 % der AFS, 97 % des CSB und 89 % des DOC eliminiert. Nitrit lag im Ablauf der Nachklärung bei ca. 0,026 mg/l und Bromid bei 0,11 mg/l (ANK-E). Ebenso wie für die Kläranlage Aachen-Soers decken sich die Ergebnisse dieser Datenauswertung mit denen der Selbstüberwachung der Kläranlage Eilendorf.

Ähnlich wie bei der Kläranlage Aachen-Soers wurden über die Reinigungsstufen der Kläranlage Eilendorf die Konzentrationen der Standardparameter vom Zulauf bis zum Ablauf signifikant reduziert (z. B. TOC, DOC, TN_b, NH_4-N, $N_{org.}$ und P_{ges}). Eine Erhöhung war bei NO_3-N messbar, jedoch stets unter Einhaltung des Überwachungswertes (18 mg_{Nges}/l).

2.1.2 Spurenstoffelimination

Die Aufnahme der Spurenstoffkonzentrationen im Zulauf und im Ablauf der Kläranlage Aachen-Soers hat das Ziel, die tagesabhängige bzw. auch stundenabhängige Belastung der Kläranlage mit Spurenstoffen abzubilden und nachzuvollziehen. Die gemessenen Konzentrationen der einzelnen Spurenstoffe unterscheiden sich stark in Abhängigkeit des Probenahmetages und der Substanz, was auf verschiedene Phänomene, wie z. B. den Niederschlag, saisonale und betriebliche Nutzungs- bzw. Produktionszyklen und Probenahmezeitpunkte bzw. -intervalle zurückzuführen ist. Insbesondere die Beeinflussung der Spurenstoffkonzentration infolge von Niederschlagsereignissen und dadurch auftretenden erhöhten Abwasservolumina ist im Zulauf zur Kläranlage stark ausgeprägt. Im Regenwetterfall tritt für nahezu alle Pharmaka sowie für die Haushalts- und Industriechemikalien auch im Ablauf der Nachklärung eine Abnahme der Spurenstoffkonzentration auf, wobei jedoch die Unterschiede der Konzentrationen weniger stark ausgeprägt sind, als im Zulauf der Kläranlage. Dies ist auf die Vermischung des Abwassers innerhalb des Belebungsprozesses bzw. des gesamten Klärprozesses zurückzuführen.

In einer höheren Auflösung zeigt jeweils ein Tagesgang die Konzentrationsverläufe der untersuchten Spurenstoffe bei Trockenwetter und bei Regenwetter. Im Zulauf der Käranlage sind mitunter starke Änderungen der Spurenstoffkonzentrationen infolge des Nutzungsverhaltens oder der Wetterbedingungen zu beobachten. Im Ablauf der Nachklärung verändern sich die Konzentrationen im Trockenwetterfall nur geringfügig, was auf die Rezirkulation in der biologischen Stufe und daraus folgend einer Vergleichmäßigung zurückzuführen ist. Am Regenwettertag findet hier zeitverzögert zur Zunahme des Abwasservolumenstroms zunächst eine Zunahme und anschließend eine Abnahme der Spurenstoffkonzentration statt. Dieser ausgeprägte Verlauf fällt jedoch deutlich geringer aus als im Zulauf zur Kläranlage. Eine Erklärung hierfür könnte die Restbelastung des Belebungsbeckens sein, die infolge des Niederschlagsereignisses ausgeschwemmt wird, wodurch die Spurenstoffkonzentration kurzfristig erhöht wird. Im Anschluss

daran fließt das durch den Niederschlag verdünnte Abwasser aus dem Belebungsbecken, weshalb die Spurenstoffkonzentration wieder sinkt.

Für die Bewertung der Reinigungsleistung der Kläranlage wurde mittels volumenproportionaler 24 h-Mischproben die Elimination der Spurenstoffe vom Zulauf der Kläranlage bis zum Ablauf der Nachklärung ermittelt. Für einige Substanzen, wie z. B. Ibuprofen, Valsartan, N-Acetyl-Sulfamethoxazol oder Metformin kann bereits durch die konventionelle Kläranlage eine Spurenstoffelimination von im Mittel über 90 % erreicht werden. Weitere Spurenstoffe, wie Metoprolol, Sulfamethoxazol oder Benzotriazol, können noch zu > 50 % reduziert werden.

Eine detaillierte Auswertung der Eliminationsgrade zeigt, dass die Spurenstoffe durch die Kläranlage im Mittel besser bei Trockenwetter als bei Regenwetter eliminiert werden. In Abbildung 3 ist dafür die mittlere Elimination der einzelnen Spurenstoffe getrennt für Trockenwetter und Regenwetter dargestellt. Der Einfluss des Niederschlags auf die Eliminationsleistung der Kläranlage ist für Substanzen, die sehr gut biologisch abgebaut werden können, vergleichsweise gering. Für mäßig biologisch abbaubare Substanzen, wie z. B. Atenolol oder Diclofenac, wird der Unterschied zwischen Regenwetter und Trockenwetter jedoch deutlich.

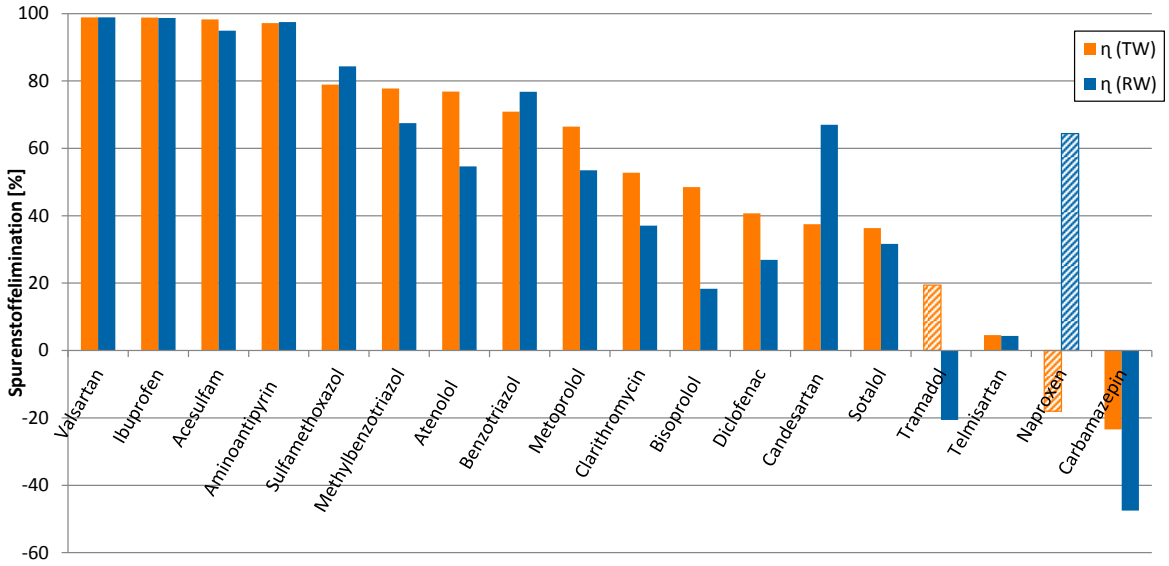

Abbildung 3: Spurenstoffelimination auf der Kläranlage Aachen-Soers (Zulauf Kläranlage–Ablauf Nachklärung; gestreifte Balken: mindestens eine Probe ANK unter BG (n_{TW} = 9, n_{RW} = 9)) bei Trocken- (TW) und Regenwetter (RW).

Die Überwachung der Kläranlage Eilendorf (n = 4, 2017) zeigt vergleichbare Eliminationsleistungen (Zulauf Kläranlage bis Ablauf Kläranlage), wie für die Kläranlage Aachen-Soers.

Für die Spurenstoffmessungen beider Kläranlagen wurde eine statistische Auswertung vorgenommen. Für neun von 24 dieser Substanzen war die Konzentration im Ablauf der Kläranlage Eilendorf aufgrund der guten Eliminationsleistung signifikant gegenüber dem Zulauf verringert. 15 dieser Substanzen zeigten dagegen keine signifikante Verringerung durch die Reinigungsstufen der Kläranlage. Dies sind überwiegend die Substanzen, für die geringe Eliminationsraten ermittelt

wurden, wie Candesartan, Carbamazepin, Sulfamethoxazol, Telmisartan sowie die Flammschutzmittel TCEP und TBEP. Die Ergebnisse der Auswertung für die Kläranlage Aachen-Soers sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Tabelle 1: Paarweiser Vergleich der Konzentrationen von ausgewählten Spurenstoffen auf der Kläranlage Aachen-Soers im Ablauf im Vergleich zum Zulauf (Datensatz „Screening“) (-: nicht signifikant; +: signifikant; ↓: signifikant verringert im AF vs. ZKA, p: Wahrscheinlichkeit)

Parameter	Kläranlage Soers Ablauf vs. Zulauf (AF vs. ZKA)	
	Sign.	p, Methode
Acesulfam	+↓	<0,001, U-Test
Aminoantipyrin	+↓	<0,001, U-Test
Atenolol	+↓	0,047, U-Test
Benzotriazol	+↓	<0,001, U-Test
Bisoprolol	-	0,102, U-Test
Candesartan	+↓	0,021, U-Test
Carbamazepin	-	0,343, t-Test
Clarithromycin	+↓	0,001, t-Test
Diclofenac	+↓	0,002, U-Test
Gabapentin	+↓	0,011, U-Test

Parameter	Kläranlage Soers Ablauf vs. Zulauf (AF vs. ZKA)	
	Sign.	p, Methode
Ibuprofen	+↓	<0,001, U-Test
Methylbenzotriazol	+↓	0,004, U-Test
Metoprolol	+↓	<0,001, U-Test
Naproxen	-	0,721, U-Test
Sotalol	-	0,052, U-Test
Sulfamethoxazol	+↓	0,002, t-Test
Telmisartan	-	0,846, t-Test
Tramadol	-	0,798, U-Test
Valsartan	+↓	<0,001, U-Test
Galaxolid	+ ↓	<0,001, U-Test

Insgesamt sind die Spurenstoffkonzentrationen und Eliminationsgrade der beiden Kläranlagen vergleichbar. Beide Kläranlagen sind jedoch trotz guter Reduktionsleistung klare Emittenten von Spurenstoffen in die Vorfluter.

2.1.3 Ökotoxizität

Zur Untersuchung der Kläranlageneffizienz der konventionellen Reinigungsstufen hinsichtlich des ökotoxikologischen Potenzials wurden umfassende Untersuchungen durchgeführt. Die entnommenen Proben wurden auf akute und chronische sowie mechanismusspezifische Toxizität analysiert. Als Stellvertreterorganismen wurden Organismen verschiedener trophischer Ebenen ausgewählt (Leuchtbakterientest, Algenwachstumshemmtest, Daphnienimmobilisationstest, Fischembryo-Toxizitätstest, FET). Die Proben wurden auf ihr embryotoxisches und teratogenes (FET-Test), endokrines (L-YES Assay, ERα CALUX® Assay, H295R Steroidgenese Assay), gentoxisches (Mikrokern Test) sowie mutagenes (Ames-Fluktuations Assay) Potenzial hin bewertet. Um die Vergleichbarkeit beider Kläranlagen zu gewährleisten, wurden die Proben der Kläranlage Eilendorf ebenfalls auf dieselben Potenziale untersucht.

Im Zulauf der Kläranlage Aachen-Soers konnte in sämtlichen angewandten Tests ein deutliches ökotoxikologisches Potenzial festgestellt werden. Über die verschiedenen Behandlungsstufen auf der Kläranlage wurde das Abwasser sehr effektiv gereinigt, so dass bereits am Ablauf der

Nachklärung keine oder stark verringerte ökotoxikologische Potenziale im Vergleich zum Zulauf der Kläranlage festgestellt werden konnten. Am Ablauf der Kläranlage (Ablauf Filter) waren insbesondere in Bezug auf das embryotoxische und teratogene keine Effekte mehr nachweisbar. Die Untersuchungen des mutagenen Potenzials zeigten keine eindeutigen Ergebnisse. Während die Proben des Zulaufs kein mutagenes Potenzial anzeigten, wurde in zwei der Messkampagnen ein mutagenes Potenzial am Ablauf des Filters festgestellt. Allerdings wurde dieses Potenzial lediglich in stark aufkonzentrierten Proben (25- und 50-fach) nachgewiesen und ist demnach als gering einzustufen. Zudem konnten die rezeptorvermittelten östrogenen Effekte und auch die Änderungen der Steroidgenese durch die konventionellen Reinigungsstufen nicht vollständig eliminiert werden: es zeigte sich in den beiden rezeptorvermittelten Testsystemen bereits eine deutliche Reduktion des östrogenen Potenzials über die konventionellen Reinigungsstufen von 87 % bis 100 % (L-YES Assay) bzw. 98 % bis 100 % (ERα Calux® Assay). Allerdings waren in 50 % der Screenings sowohl im L-YES Assay als auch im ERα Calux® Assay ein östrogenes Potenzial am Ablauf des Filters nachweisbar. Auch Effekte auf die Steroidgenese konnten durch die konventionellen Reinigungsschritte der Kläranlage Aachen-Soers nicht vollständig eliminiert werden.

Insgesamt sind die Kläranlagen Eilendorf und Aachen-Soers in Bezug auf die Reduzierung der ökotokologischen Potenziale gut vergleichbar. Die konventionellen Reinigungsstufen der Kläranlage Eilendorf führten in Bezug auf das embryotoxische und teratogene Potenzial zu einer vollständigen Eliminierung. Die rezeptorvermittelten östrogenen Effekte und auch die Änderungen der Steroidgenese der Hormone Östradiol, Testosteron und Progesteron konnten durch die konventionellen Reinigungsstufen zwar nicht vollständig, aber weitestgehend eliminiert werden. Bezogen auf die Östrogenität zeigte die Kläranlage Eilendorf mit einer Elimination von 97 % bis 100 % bereits eine sehr gute Reinigungsleistung.

2.1.4 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen

Mikrobiologische Analysen wurden insgesamt im Rahmen von zehn Screenings durchgeführt. Darunter fallen die Keimzahlbestimmung von *E. coli* und Enterokokken sowie die Bestimmung der Antibiotikaresistenzen von *E. coli*, Enterokokken und Staphylokokken gegen die Antibiotika Ampicillin, Gentamycin, Vancomycin, Cefotaxim, Clarithromycin und das Kombipräparat Sulfamethoxazol/Trimethoprim.

Die Eliminationsleistung der Kläranlage Aachen-Soers zeigt für *E. coli* eine Reduzierung von 2,8 log-Stufen vom Zulauf der Kläranlage zum Ablauf der Nachklärung und eine Reduzierung von 3,6 log-Stufen vom Zulauf der Kläranlage zum Ablauf des Filters/der Kläranlage. Für Enterokokken wurde eine Reduzierung von 2,9 log-Stufen vom Zulauf der Kläranlage zum Ablauf der Nachklärung und eine Reduzierung von 3,8 log-Stufen vom Zulauf zum Ablauf der Kläranlage erreicht. Prozentual kann demnach eine Abnahme von *E. coli* und Enterokokken vom Zulauf bis zum Ablauf der Kläranlage von bis zu 99,9 % verzeichnet werden. Diese signifikante Reduzierung wurde auch statistisch (univariat) validiert.

Für *E. coli* wurden keine signifikanten Antibiotikaresistenzen gegen Gentamycin gefunden. Die Resistenzen gegen Ampicillin wurden am Zulauf der Kläranlage mit bis zu 64 % detektiert. Aus vorherigen Arbeiten ist bereits bekannt, dass die natürliche Sensitivität von *E. coli* gegenüber Ampicillin geringer als 60 % ist (Solbach 2013). Dies kann ein Hinweis darauf sein, dass *E. coli* bereits hohe natürliche Resistenzen aufweisen kann und die vorliegende Resistenz nicht zwingend auf Gentransfer (o. ä.) zurückzuführen ist. Die detektierten Resistenzen gegen Sulfamethoxazol/ Trimethoprim lagen bei bis zu 43 % im Zulauf der Kläranlage und bei bis zu 50 % im Ablauf des Filters. Während einiger Screenings konnten im Ablauf der Nachklärung und im Ablauf des Filters teilweise höhere Resistenzen verzeichnet werden als im Zulauf der Kläranlage. Hier ist einerseits darauf hinzuweisen, dass die Probenahme nicht korrespondierend verlief und die Verweilzeiten der Reinigungsstufen nicht berücksichtigt werden könnten. Aufgrund der unterschiedlichen Abwassermatrizes können daraus möglicherweise unterschiedliche Resultate in den Resistenzen erfolgen. Andererseits besteht möglicherweise ein Zusammenhang zur nährstoffreichen biologischen Stufe und zur grundsätzlichen Stresstoleranz der Keime. Diesbezüglich besteht weiterhin Untersuchungsbedarf.

Für Enterokokken lagen die Resistenzen gegen Ampicillin und Vancomycin an allen Probenahmestellen auf der Kläranlage unterhalb von 20 %. Die Resistenzen gegen Gentamycin wurden mit Werten von bis zu 55 % ermittelt. Auch hier wurde kein eindeutiger Trend für die einzelnen Probenahmestellen beobachtet. Zuvor veröffentlichte Daten zeigten eine Sensitivität von Enterokokken gegenüber Gentamycin von unter 60 % (Solbach 2013). Zusätzlich wurden 55 % der *E. faecalis* Stämme (eine Art, die zur Gattung der Enterokokken gehört), welche in den USA isoliert wurden, als sehr resistent gegenüber Gentamycin beschrieben (Rüden und Edmond 1998). Die im Rahmen von DemO_3AC erzielten Resultate bestätigen somit die weit verteilte natürliche Resistenz von Enterokokken gegen Gentamycin. Die Resistenzen gegen Clarithromycin lagen im Zufluss der Kläranlage bei bis zu 28 % und im Ablauf der Nachklärung bis zu 45 %. Die größere Anzahl der antibiotikaresistenten Enterokokken im Ablauf der Nachklärung könnte einen Hinweis darauf geben, dass stresstolerante Organismen, welche in nährstofflimitierten, späteren Stufen der Kläranlage auftreten, oftmals auch vermehrt dazu neigen, Resistenzen zu tragen.

Die statistische Auswertung ergab, dass sich hinsichtlich der Antibiotikaresistenzen keine signifikanten Unterschiede für die drei untersuchten Mikroorganismengruppen zwischen Zulauf und Ablauf der Kläranlage Aachen-Soers zeigten.

2.2 Untersuchung des Regenüberlaufbeckens

Das Regenüberlaufbecken Soers befindet sich kurz vor der Probenahmestelle W3. Ein Entlastungsereignis führt sowohl hydraulisch als auch stofflich zu einer enormen Belastung der Wurm. Bei einer Gegenüberstellung der Ablaufwerte der Kläranlage Aachen-Soers und des RÜB Soers wird deutlich, dass das RÜB Soers insbesondere in Bezug auf die Parameter CSB, TOC und AFS_{fein} sowie die Trübung eine maßgebliche Belastungsquelle der Wurm darstellt. Zur Verdeutlichung der Belastung sei auf die Überwachungswerte des Kläranlagenablaufs der Aachener Soers (AF) hingewiesen, die für CSB

40 mg/l und NH_4-N 1 mg/l betragen. Eine Gegenüberstellung der Ablaufwerte der Kläranlage mit den Messwerten des RÜB Soers ist in Abbildung 4 dargestellt.

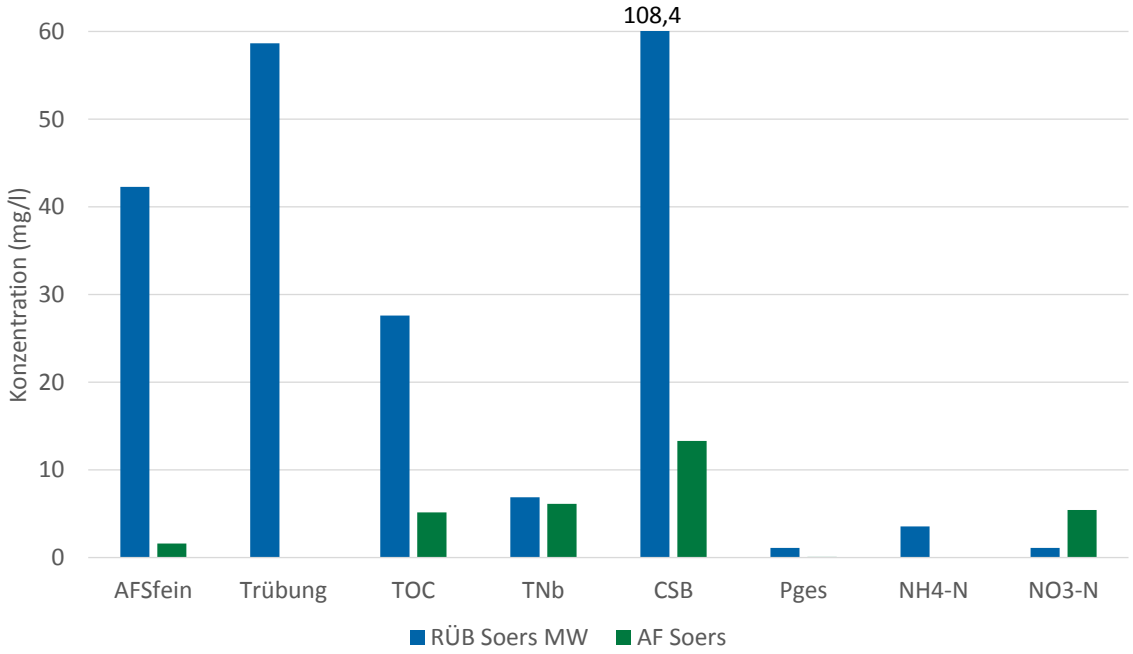

Abbildung 4: Vergleich der Ablaufkonzentrationen für ausgewählte Abwasserparameter der Kläranlage Aachen-Soers (n = 4) und des RÜB Soers (n = 16)

Zur ökotoxikologischen Bewertung des Einflusses des RÜBs auf die Wurm wurden zwei Proben (RÜB und W3) auf ihr embryotoxisches (FET), teratogenes (FET), endokrines (L-YES, ERα CALUX©) und mutagenes (Ames-Fluktuation Assay) Potenzial hin untersucht.

Im RÜB und an der Stelle W3 wurde nach dem Abschlagsereignis erst bei einer 25-fachen Aufkonzentrierung mutagenes Potenzial identifiziert. Im Ablauf der Kläranlage Aachen-Soers konnte dieses Potenzial ab einer 50-fachen Aufkonzentrierung nachgewiesen werden. In beiden Fällen ist das mutagene Potenzial als sehr gering einzustufen.

Bei der Untersuchung der Proben auf endokrines Potenzial im L-YES Assay zeigten die aufkonzentrierten Proben (REF: 16,7) deutlich erhöhte östrogene Effekte mit EEQ-Werten von 22,8 ng E2/l (RÜB) und 28,8 ng E2/l (W3 nach Abschlag). Im Vergleich zum Kläranlagenablauf (< LOQ 6,1 ng E2/l) ist das eine ca. fünffache Erhöhung. Die gemessen EEQ-Werte an der Probenahmestelle W3 in der Wurm waren nach dem RÜB-Abschlag um den Faktor 5–20 höher als in den zuvor gemessenen Proben in den Gewässerscreenings.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass es durch einen Abschlag des RÜBs zum erhöhten Eintrag von Stoffen kommen kann, die ein embryotoxisches, teratogenes, endokrines und mutagenes Potenzial aufweisen können (vgl. Tabelle 2).

Tabelle 2: Übersicht der beobachteten Effekte durch Mischwasserentlastung der nativen Proben und der Extrakte (RÜB Soers und W3 nach Abschlagsereignis). Orange: Effekt nachweisbar. Grün: kein Effekt nachweisbar.

Probentyp	Nativ		Extrakt			
Endpunkt	**Embryo-toxizität**	**endokrines Potenzial**	**Embryo-toxizität**	**Mutagenität**	**endokrines Potenzial**	**endokrines Potenzial**
Test	FET	ERα CALUX©	FET	AMES	ERα CALUX©	L-YES
W3						
RÜB Soers						

Zudem werden durch die hydraulische Belastung der Wurm durch ein Abschlagereignis des RÜBs die Sedimente im Gewässer aufgewirbelt, wodurch partikelgebundene Schadstoffe remobilisiert werden, die ebenfalls einen negativen Effekt auf Wasserorganismen haben können.

Um zukünftig die Wurm zu entlasten, ist der Bau eines Retentionsbodenfilters geplant (außerhalb des Projekts), der mit dem Abschlag des RÜB Soers beschickt werden soll.

2.3 Untersuchung des Einflusses der Kläranlagen auf die Vorfluter

2.3.1 Abwasserparameter

Der Einfluss der Kläranlageneinleitung der Kläranlage Aachen-Soers ist in der Wurm signifikant sichtbar anhand typischer Abwasserparameter, wie beispielsweise dem DOC oder dem Nitrat. Obwohl es in Bezug auf Nitrat zu einer Erhöhung der Nitratkonzentration im Vorfluter durch die Kläranlageneinleitung kommt, ist der Überwachungswert der Kläranlage für Gesamtstickstoff nicht überschritten. Aufgrund der weitergehenden Elimination von P_{ges} über die Reinigungsstufen der Kläranlage und einem Verdünnungseffekt aufgrund des hohen Abwasseranteils der Wurm wird nach der Kläranlageneinleitung eine Reduzierung der Konzentration in der Wurm sichtbar (im Vergleich zur Gewässerprobenahmestelle vor Kläranlageneinleitung).

Die Ergebnisse weiterer Standardparameter aus der statistischen Analyse sind Tabelle 3 zu entnehmen. Die Tabelle veranschaulicht, dass sich die Konzentrationen der Standardparameter im Haarbach und in der Wurm infolge des Einflusses der beiden betrachteten Kläranlagen signifikant verändern. Im Haarbach ist lediglich die Nitratkonzentration unterhalb der Kläranlage signifikant erhöht. In der Wurm sind zusätzlich TOC und Chlorid an der Probestelle W2, welche unterhalb der Mündung des Haarbachs liegt, durch die Kläranlage Eilendorf signifikant erhöht.

Tabelle 3: Univariate statistische Auswertung von Standardparametern im Datensatz „Screening“ für den Haarbach und die Wurm unter Einfluss der Kläranlage Eilendorf und Aachen-Soers (-: nicht signifikant; +: signifikant;↑: signifikant erhöht; ↓: signifikant verringert)

Parameter	Gewässer Wurm uh KA vs. oh KA- AC W5 vs. W2/W3		Gewässer Haarbach uh KA-E vs. oh KA-E H2 vs. H1		Gewässer Wurm uh KA-E vs. oh KA-E W2 vs. W1	
TOC	Wurm unter Einfluss der KA Aachen-Soers	-	Haarbach unter Einfluss der KA Eilendorf	-	Wurm unter Einfluss der KA Eilendorf	+↑
DOC		+↑		-		-
TNb		-		-		-
NH_4-N		-		-		-
NO_3-N*		+↑		+↑		+↑
NO_2-N*		-		-		-
Norg		-		-		-
Pges		+↓		-		-
Chlorid*		+↑		-		+↑
Sulfat*		+↑		-		-
Bromid		+↑		-		-

Zusammenfassend ist der Einfluss der Einleitung gereinigten Abwassers in die Vorfluter aus physikalisch-chemischer Sicht, insbesondere anhand der Parameter DOC, Nitrat, Phosphat, Chlorid, Sulfat und Bromid, messbar – wobei die teils sehr hohen Anforderungen an die einzuhaltenden Überwachungswerte stets eingehalten wurden. Inwiefern dies zu einer Beeinträchtigung der Gewässerbiozönose führt, muss über biologische Qualitätskomponenten abgeschätzt werden (vgl. Kap. 2.3.5).

2.3.2 Spurenstoffelimination

Die Betrachtung der Spurenstoffkonzentration in den Gewässern zeigt, dass ein starker Einfluss der Kläranlagen auf die Wurm und den Haarbach vorzufinden ist. Im Haarbach werden vor Einleitung der Kläranlage Eilendorf kaum Spurenstoffe nachgewiesen. Nach Einleitung der Kläranlage Eilendorf werden dagegen kontinuierlich Spurenstoffe im Gewässer gemessen. Die Wurm, als Vorfluter der Kläranlage Aachen-Soers, ist ebenfalls vor der Einmündung des Haarbachs gering belastet. Die Mündung des Haarbachs in die Wurm führt zu einer deutlichen Erhöhung der Spurenstoffkonzentration. Anschließend findet eine weitere Erhöhung der Spurenstoffbelastung in der Wurm infolge der Einleitung des Ablaufs der Kläranlage Aachen-Soers statt.

Durch die Kläranlage Aachen-Soers findet der maßgebliche Eintrag der gemessenen Spurenstoffe in die Wurm statt. Um den Einfluss der einzelnen Kläranlagen auf die Wurm zu quantifizieren, wurden die Frachten der im gesamten Gebiet parallel gemessenen Spurenstoffe berechnet und so der prozentuale Einfluss der einzelnen Quellen auf die Gesamtbelastung der Wurm im Untersuchungsgebiet berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5 dargestellt.

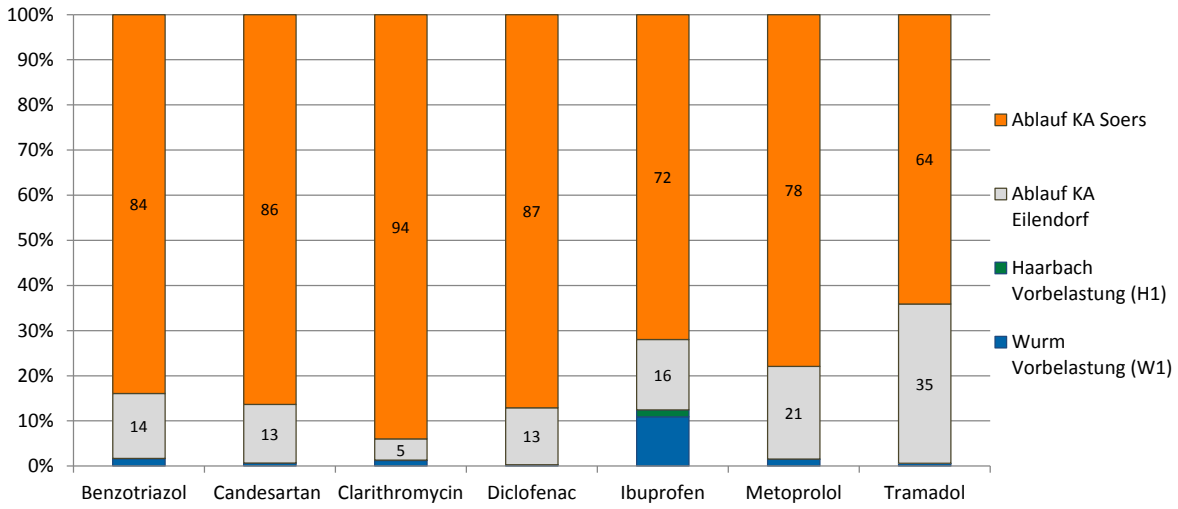

Abbildung 5: Einfluss der Kläranlagen auf die Spurenstoffbelastung in der Wurm an der Probenahmestelle W5 (n = 4; Datensatz Screening 2017).

In Abbildung 6 sind für verschiedene Spurenstoffe die mittleren (arithmetisches Mittel) gemessenen Konzentrationen an der Stelle W5, nach Einleitung der Kläranlage, dargestellt. Die Whisker geben die maximalen und die minimalen gemessenen Werte an. Es fällt auf, dass bis auf wenige Substanzen, z. B. Ibuprofen, Valsartan, Bisphenol A und Tramadol, die Hauptbelastung eine Folge der Einleitung aus der Kläranlage Aachen-Soers ist. Die zuvor aufgezählten Substanzen liegen dagegen bereits vor der Kläranlageneinleitung in einer nennenswerten Konzentration im Oberflächengewässer vor.

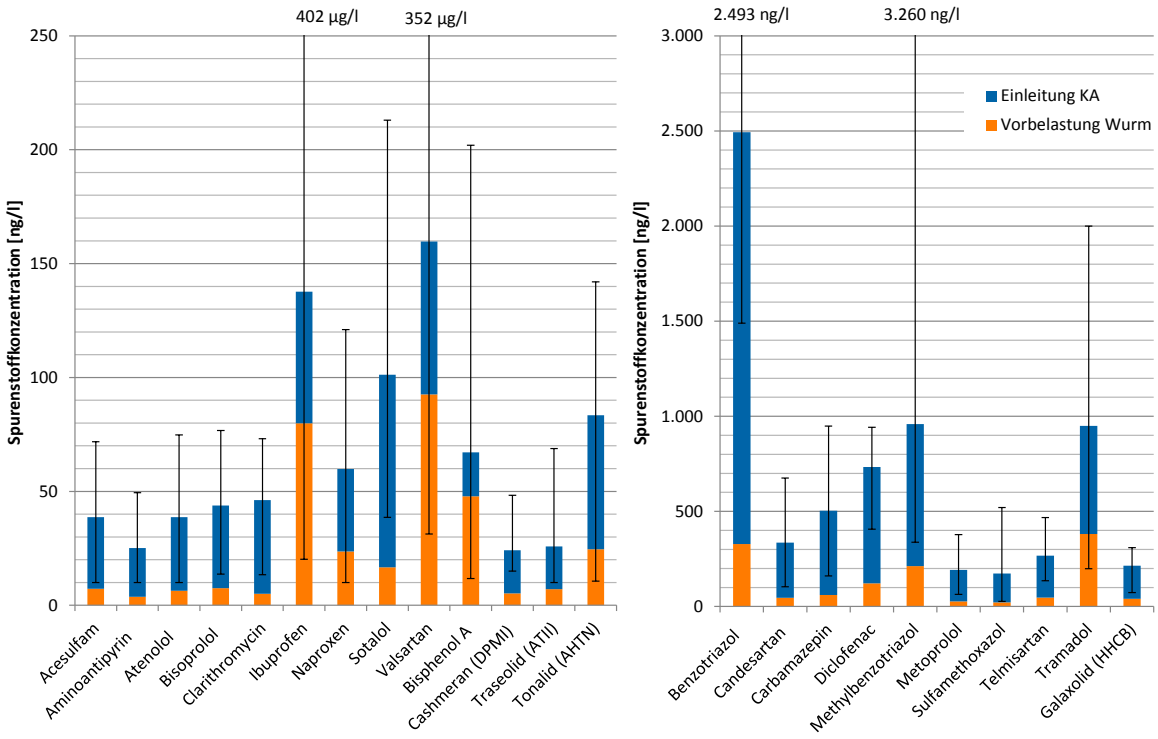

Abbildung 6: Spurenstoffkonzentrationen in der Wurm (W5) nach Einleitung der Kläranlage Aachen-Soers und Zuordnung der Herkunft der Spurenstoffbelastung (n = 9; Datensatz Screening 2015–2016).

Diese Aussagen werden statistisch anhand einer univariaten Datenanalyse (für 20 Substanzen) untermauert. Elf der 20 ausgewerteten Spurenstoffe, wie z. B. Aminoantipyrin, Carbamazepin, Diclofenac, Sotalol, Sulfamethoxazol und Telmisartan zeigen eine signifikante Erhöhung in der Wurm unterhalb der Kläranlage Aachen-Soers. Für 80 % der Spurenstoffe korreliert die Konzentration an der Stelle W5 signifikant mit der Konzentration im Ablauf der Kläranlage. Dies bestätigt den starken Einfluss der Kläranlage Aachen-Soers auf die Wurm.

Des Weiteren wurde der Einfluss des Haarbachs auf die Wurm (Vergleich W1 und W2) und der Einfluss der Kläranlage Eilendorf auf den Haarbach (Vergleich H1 und H2) in Bezug auf relevante Vertreter der Spurenstoffe (überwiegend Pharmaka und Industrie-/Haushaltschemikalien) statistisch untersucht. Die Konzentration von elf der ausgewerteten 24 Spurenstoffe ist an der Stelle H2 signifikant erhöht, was den starken Einfluss der Kläranlage Eilendorf auf den Haarbach bestätigt. Fünf dieser Substanzen liegen nach der Einleitung der Kläranlage Eilendorf in so hohen Konzentrationen in der Wurm vor, dass sie auch nach Einleitung des Haarbachs in die Wurm zu einem signifikanten Anstieg der Konzentration in der Wurm führen (Benzotriazol, Candesartan, Diclofenac, Metoprolol und Tramadol). Bei den zwei Substanzen Metoprolol und Benzotriazol besteht ein statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen der Ablaufkonzentration der Kläranlage Eilendorf und der Konzentration im Haarbach nach Einleitung (H2). Insgesamt zeigte sich ein maßgeblicher Einfluss der Kläranlage Eilendorf auf die Spurenstoffbelastung des Haarbachs und daraus folgend auf die Spurenstoffbelastung der Wurm.

2.3.3 Ökotoxizität

Die umfassenden Untersuchungen der Proben aus der Wurm und dem Haarbach zeigten im Ames-Fluktuation Assay sowie in allen endokrinen Testsystemen (L-YES, ERα-CALUX® und H295R Steroidgenese Assay) Effekte. Dagegen wurden mit dem Fischembryo-Toxizitätstest und dem Mikrokerntest keine Effekte nachgewiesen. In der Regel konnte dabei kein Zusammenhang zu den Einleitungen der Kläranlagen Aachen-Soers oder Eilendorf festgestellt werden. Gerade die vereinzelten positiven Befunde im Ames-Fluktuation Assay weisen auf ein ubiquitäres Vorkommen mutagener Substanzen in der Umwelt hin. Mutagene Substanzen können durch diffuse und punktuelle Eintragspfade in die Gewässer eigetragen werden und dann zu den beobachten Effekten führen.

Ein anderes Bild zeigte sich allerdings bei der Untersuchung des endokrinen Potenzials:

- Die beiden rezeptorvermittelten Testsysteme (L-YES Assay und ERα CALUX® Assay) zeigten unterhalb beider Kläranlagen eher einen Verdünnungseffekt als eine Steigerung des östrogenen Potenzials.
- Die Untersuchung der Steroidgenese mittels des H295R Assays zeigte keinen eindeutigen Einfluss durch die Kläranlagen.
- Die *in situ*-Untersuchungen mit den Regenbogenforellen zeigte keine Steigerung der Vitellogeninproduktion in juvenilen Fischen.
- Der Reproduktionstest mit der Zwergdeckelschnecke zeigte eine gesteigerte Embryonenzahl an den beiden Probenahmestellen W4 und W5 unterhalb der Kläranlage Aachen-Soers. An den Probenahmestellen oberhalb der Kläranlage Aachen-Soers und unterhalb der Kläranlage Eilendorf war dagegen kein Einfluss feststellbar. Anhand dieser Ergebnisse lässt sich ein Einfluss der Kläranlage Aachen-Soers bezogen auf die Reproduktion der Zwergdeckelschnecke ableiten.

Diese Ergebnisse der endokrinen Tests veranschaulichen dabei, dass die *in vitro*-Ergebnisse nicht auf die *in situ*-Situation übertragen werden können. Allerdings muss beachtet werden, dass gerade endokrine Disruptoren ubiquitär verbreitet sind und durch diffuse Eintragsquellen in die Gewässer eingetragen werden.

Die Untersuchungen der Sedimentextrakte der Proben aus dem Haarbach und der Wurm zeigten ein teratogenes, endokrines und mutagenes Potenzial. Hier lässt sich ein Einfluss der Sedimente auf die positiven Befunde in den Gewässern nicht ausschließen. Die Untersuchungen eines RÜB-Abschlags verdeutlichen dabei, welche Auswirkungen die Aufwirbelung des Sediments haben können. So konnte durch den Abschlag ein fünf- bis zwanzigfach erhöhtes östrogenes Potenzial unterhalb des RÜB (W3) beobachtet werden. Durch solch einen Abschlag kann es außerdem zur Aufwirbelung und Verdriftung von Sedimenten kommen, die ebenfalls einen Beitrag an den beobachteten Effekten haben können, wenn die sedimentgebundenen Partikel wieder remobilisiert werden.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Belastung der beiden Vorfluter, ausgehend von den Kläranlageneinleitungen, für die meisten Toxizitätstests nicht eindeutig ist – im Umkehrschluss also als nicht sehr ausgeprägt zu bewerten ist. Dies weist auch auf eine gute Reinigungsleistung der beiden Kläranlagen hin. Andererseits scheinen die diffusen Belastungen im Untersuchungsgebiet eine mindestens gleichwertige Belastung für die Vorfluter darzustellen. Bezogen auf die ökotoxikologischen Potenziale haben sich vor allem das endokrine, aber auch das mutagene Potenzial (Ames-Fluktuations Assay) als relevantes Bewertungssystem zur Beantwortung der Zielfragestellungen des Projekts herausgestellt.

2.3.4 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen

Im Zuge der Screenings, die u. a. an den Gewässern Haarbach und Wurm durchgeführt wurden, wurden die Reduzierung der Keimbelastung und der prozentuale Anteil der Antibiotikaresistenzen untersucht. Anhand des Vergleichs von Probenahmestellen vor und nach Kläranlageneinleitung wurde die Auswirkung dieser auf das Gewässer bewertet.

Die Analysen der Proben, die in den Screenings durchgeführt wurden, zeigten bezüglich der Keimzahlen von *E. coli* und Enterokokken keine signifikanten Unterschiede zwischen den Probenahmestellen H1 und H2 im Haarbach (vor und nach Einleitung der Kläranlage Eilendorf) und W1, W2, W3 und W5 in der Wurm. Es scheint keinen signifikanten Einfluss des Kläranlagenablaufes der Kläranlage Aachen-Soers auf die Keimzahl der Wurm zu geben (Vergleich der W2/W3 mit W5). Da auch die Probenahmestellen im Haarbach vor und nach Einleitung des Ablaufes der Kläranlage Eilendorf eine vergleichbar hohe Keimzahl aufweisen, scheint auch diese Kläranlage bezüglich der Keimzahl keinen signifikanten Einfluss auf den Haarbach zu haben (Vergleich H1 mit H2). Ebenfalls ist ein Einfluss des Haarbaches nach Mündung in die Wurm auf die Keimzahlentwicklung in der Wurm auszuschließen (Vergleich W1 mit W2). Für *E. coli* lagen die Werte an den Probenahmestellen H1, H2, W1, W2, W3 und W5 zwischen $5{,}0 \cdot 10^2$ KBE/ml und $3{,}77 \cdot 10^4$ KBE/ml. Für Enterokokken wurden an den Probenahmestellen H1, H2, W1, W2, W3 und W5 Werte zwischen $2{,}82 \cdot 10^1$ KBE/ml und $5{,}37 \cdot 10^3$ KBE/ml ermittelt. Obwohl beobachtet werden konnte, dass die Keimzahlen während der Trockenwetterscreenings zum Teil höher als bei den Regenwetterscreenings lagen, ist der Unterschied zwischen Regen- und Trockenwetter als geringfügig einzuordnen.

Hinsichtlich der Antibiotikaresistenzen zeigen sich keine signifikanten Unterschiede zwischen den Probestellen in der Wurm oberhalb und unterhalb der Kläranlage Aachen-Soers. Auch im Haarbach oberhalb und unterhalb der Kläranlage Eilendorf sowie in der Wurm oberhalb und unterhalb der Mündung des Haarbachs in die Wurm wurden keine signifikanten Unterschiede in dem Anteil antibiotikaresistenter Keime beobachtet.

In Bezug auf den Anteil gentamycinresistenter Staphylokokken ergab die statistische Auswertung eine signifikante Erhöhung in der Wurm und im Haarbach bei Trockenwetter im Vergleich zu Regenwetter, d. h. bei Trockenwetter war die Anzahl gentamycinresistenter Staphylokokken in der

Wurm und im Haarbach signifikant höher als bei Regenwetter. Eine Erklärung dafür gibt es derzeit allerdings nicht.

Die Methode der Bestimmung von multiplen Antibiotikaresistenzen wurde im Rahmen der Phase 1b etabliert. Die resistenten *E. coli* wurden auf fünf weitere, die resistenten Enterkokken auf vier weitere Antibiotika getestet. Mit Hilfe des Agardiffusionstests konnten sowohl für *E. coli* als auch für Enterokokken verschiedene Co-Resistenzen und auch definitionsgemäße Multiresistenzen nachgewiesen werden. Die in den Untersuchungen nachgewiesenen multiplen Antibiotika-resistenzen von *E. coli* und Enterokokken sind im Hinblick auf die immer knapper werdenden Reserveantibiotika als kritisch zu bewerten. Nach derzeitiger Datenlage sind die erhobenen Ergebnisse für eine Aussage, ob und inwiefern die Kläranlage das Auftreten von multiplen Resistenzen in der Wurm beeinflusst, nicht geeignet. In Phase 2 soll die Datengrundlage jedoch durch eine Erweiterung des Untersuchungsumfanges soweit ausgebaut werden, dass eine solche Einschätzung möglich wird.

2.3.5 Lebensgemeinschaften im Gewässer

Das Gewässerumfeld des Haarbachs und der Wurm weist im Untersuchungsabschnitt eine hohe Besiedlungsdichte auf und unterliegt damit sowohl starken Einflüssen durch Siedlungsgebiete als auch durch landwirtschaftliche Nutzung. Dabei wird das Gewässer u. a. durch diverse gewässer-morphologische Beeinträchtigungen (z. B. veränderte Sohlbeschaffenheit etc.), stoffliche Belastungen durch die Einleitung der Kläranlagen Eilendorf und Aachen-Soers sowie hydraulische und stoffliche Belastungen aufgrund von Abschlagsereignissen des RÜB Soers beeinflusst.

Die Untersuchungen der Qualitätskomponente Makrozoobenthos wiesen die Wurm und den Haarbach im Untersuchungsgebiet für alle Aufnahmezeitpunkte als strukturell beeinträchtigte Gewässer mit einer leichten saprobiellen Belastung aus. Die Ergebnisse des Saproienindex lagen dabei mit Werten von 1,9 bis 2,4 überwiegend im Übergangsbereich der Güteklasse 2 (gut) und der Güteklasse 3 (mäßig). Darüber hinaus war jedoch klar erkennbar, dass die Lebengemeinschaft durch weitere Stressoren, wie z. B. einer defizitärten Gewässermorhologie, übermäßig beeinträchtigt ist, was in einer durchgehend lediglich unbefriedigenden bis schlechten Gesamtbewertung im ökologischen Zustand resultierte.

Die Makrophytenbesiedelung (MaBS) der Probenahmestelle W1 wies 2016 und 2017 einen schlechten ökologsichen Zustand auf, der sich im weiteren Streckenverlauf nur leicht verbesserte. Die Probestellen W2 und W3 wurden im Jahr 2017 in die ÖZK 4 (unbefriedigend), die Probestellen W4 und W5 insgesamt in einen mäßigen (2016) bis unbefriedigenden (2017) ökologischen Zustand eingestuft.

Bei der Untersuchung des Phytobenthos ohne Diatomeen wurden insgesamt 23 verschiedene Arten nachgewiesen und eine abschließende Bewertung der Artengemeinschaften nach Phylib konnte für alle Proben gesichert durchgeführt werden. Hieraus resultiert für die Wurm im untersuchten Abschnitt eine Einstufung in die Klassen 3 (mäßig) und 4 (unbefriedigend).

Die Diatomeengesellschaft der Wurm indizierten einen negativen Gütegadienten zwischen den Probestellen W1 bis W5. Verschiedene Indikatoren zeigten dabei an W4 und W5 eine stärkere Belastung an, wobei auch bei den oberhalb der Kläranlage gelegenen Probenahmestellen W1 bis W3 deutlichen Beeinträchtigungen nachgewiesen wurden.

Zusammengefasst spiegelten beide untersuchten Qualitätskomponenten (Makrozoobenthos sowie Makrophyten und Phytobenthos) den stark verbesserungswürdigen ökologischen Zustand der Wurm deutlich wieder.

2.4 Ozonung im Pilotmaßstab

2.4.1 Grundlagen und Vorversuche

Im Rahmen der Untersuchungen zur Ozonung wurden Versuche durchgeführt, welche für die Auslegung und den Betrieb der großtechnischen Ozonanlage relevant sind. Hierfür wurden sowohl Laborversuche zur Grundlagenermittlung als auch Versuche an einer Pilotanlage vorgenommen.

Die im Labor durchgeführten Zehrungsversuche geben Aufschluss über die für den Ozonzerfall benötigte Zeit in verschiedenen Abwässern. Dieser ist für jede Kläranlage und jedes Abwasser individuell. Daher zählen diese Versuche zu den grundlegenden Untersuchungen, die zur Dimensionierung einer Anlage notwendig sind. Für die Kläranlage Aachen-Soers wurden zwischen Juli und November 2015 an elf Tagen für verschiedene Ozondosen Zehrungsprofile des Abwassers aus dem Ablauf der Nachklärung aufgenommen. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten der Ozonzehrung wurden für alle untersuchten Abwässer und eingetragenen Ozondosen berechnet, an denen gelöstes Ozon ausreichend lange im Abwasser nachgewiesen werden konnte. Für die Auswertung der Zehrungsprofile wird die spezifische Ozondosis betrachtet, um die unterschiedlichen Abwassermatrizes zu berücksichtigen. Eine Auftragung der ermittelten Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten gegenüber der spezifischen Ozondosis zeigt einen deutlichen Zusammenhang dieser Parameter, dargestellt in Abbildung 7.

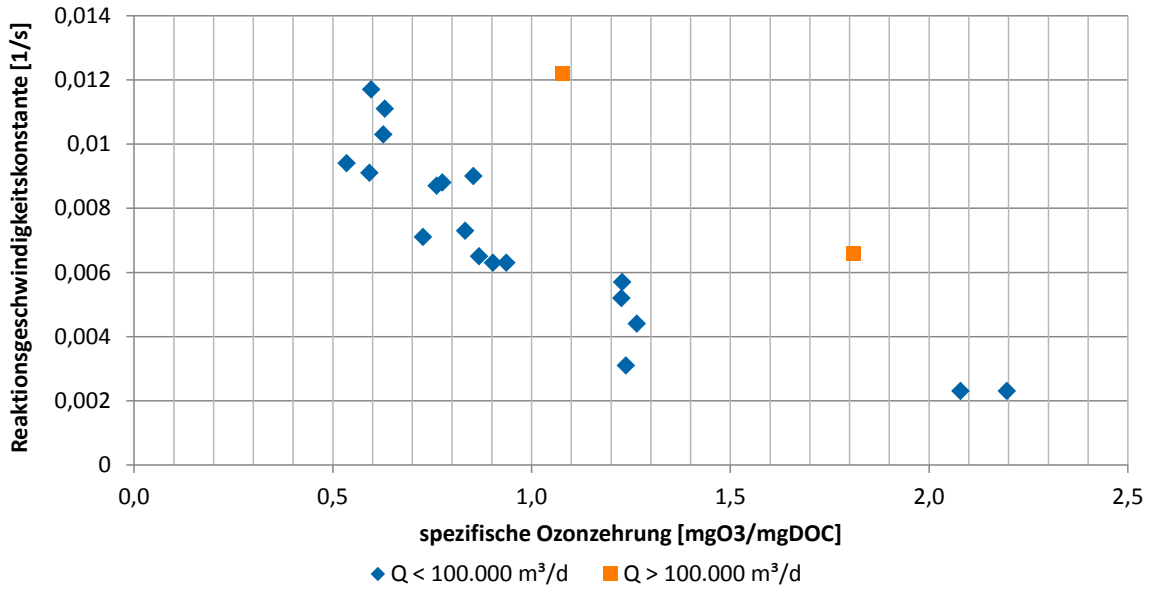

Abbildung 7: Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten in Abhängigkeit der spezifischen Ozondosis

Bei geringen spezifischen Ozondosierungen zehren gut oxidierbare Substanzen schnell das hinzudosierte Ozon. Bei höheren spezifischen Ozondosen werden dagegen auch die moderat reagierenden Substanzen oxidiert, weshalb die Reaktion und damit der Ozonabbau langsamer sind. Die im Abwasser enthaltenen organischen Verbindungen zehren Ozon, unmittelbar nachdem dieses in das Abwasser eingetragen wird. Der IOD ist als die Ozonmenge definiert, die während der ersten 30 Sekunden gezehrt wird (Wert et al. 2009). Im Abwasser der Kläranlage Aachen-Soers liegt der IOD (instantaneous ozone demand) in Abhängigkeit der Ozondosis und der Abwasserprobe bei 0,9 mg/l bis 3,6 mg/l, was ca. 18 % bis 100 % der zugegebenen Ozondosis entspricht.

2.4.2 Spurenstoffelimination

Die Ergebnisse der Untersuchungen an der Pilotanlage zeigen, dass mit Hilfe der Ozonung alle im Zulauf der Pilotanlage untersuchten Spurenstoffe zuverlässig reduziert werden können. Die Elimination der Spurenstoffe hängt vorrangig von der Ozondosis ab. Mit zunehmender Ozondosis nimmt auch die Elimination der Spurenstoffe zu. Eindeutige Zusammenhänge lassen sich insbesondere für moderat bis gut zu entfernende Substanzen, wie Benzotriazol, Candesartan, Methylbenzotriazol, Telmisartan und Metoprolol, erkennen. Einige Substanzen, wie beispielsweise Diclofenac, Carbamazepin oder Clarithromycin, werden bereits mit geringen Ozondosen von 2 mg_{O3}/l bis unter die Bestimmungsgrenze eliminiert. Um eine Übertragbarkeit und Vergleichbarkeit der Versuchsergebnisse mit anderen Projekten sicherzustellen, wird die Spurenstoffelimination auf die spezifische Ozondosis bezogen. In Abbildung 8 sind die Ergebnisse graphisch dargestellt. Der Bezug der Ozondosis auf die organische Belastung des Abwassers zeigt, dass ein deutlicher Zusammenhang zur Spurenstoffelimination besteht.

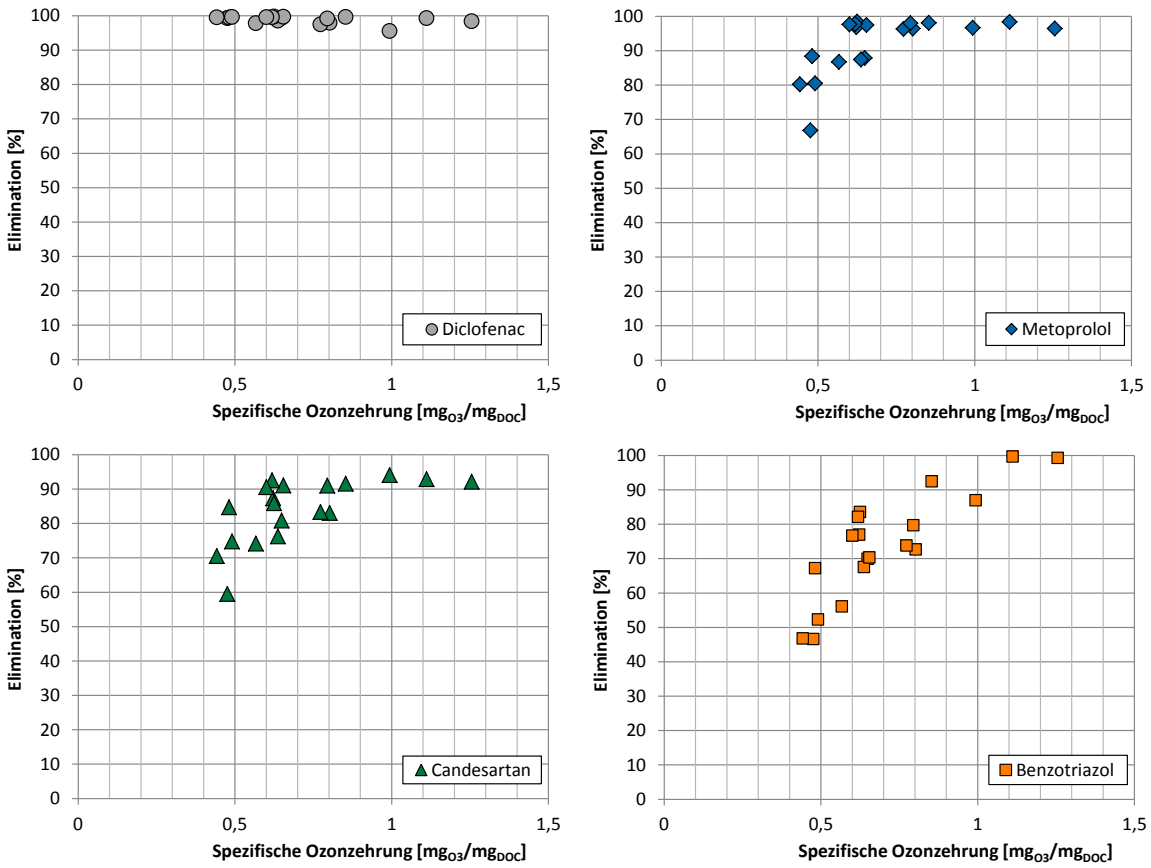

Abbildung 8: Spurenstoffelimination in Abhängigkeit der spezifischen Ozondosierung während der dynamischen Ozonversuche

Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Spurenstoffelimination mittels Ozonung auf der Kläranlage Aachen-Soers sind insgesamt mit denen anderer Projekte vergleichbar. Für eine gute Reduzierung der Spurenstoffe wird gemäß den durchgeführten Untersuchungen eine Ozondosis von 3 mg_{O3}/l bis 4 mg_{O3}/l bzw. eine spezifische Ozondosis von 0,5 g_{O3}/g_{DOC} bis 0,7 g_{O3}/g_{DOC} empfohlen.

Steuer-/Regelungskonzepte

Online-Messungen während der Abwasserozonung sollen eine bedarfsgerechte Ozondosierung unterstützen. Für den Betrieb einer Ozonung werden online messbare Größen gesucht, die eine Überdosierung von Ozon vermeiden und so sowohl Kosten als auch die Bildung unerwünschter Nebenprodukte vermindern.

Während der volumenproportionalen Ozondosierung findet keine Anpassung des eingetragenen Ozons an die Belastungssituation des Abwassers statt. Dadurch kann es leicht zu einer Überdosierung von Ozon kommen, wenn z. B. im Regenwetterfall eine Verdünnung des Abwassers vorliegt. Dieser Effekt soll vermindert werden, indem als Bezugsparameter zur Dosierung von Ozon bzw. als Regelparameter zur Kontrolle des Erfolgs der Spurenstoffelimination ein Parameter eingesetzt wird, der Aufschluss über die Abwasserqualität gibt, wie beispielsweise der DOC, der SAK_{254} oder der ΔSAK_{254} (Altmann et al. 2014; ARGE 2014; Lee et al. 2013).

Im Bereich der Spurenstoffelimination wurde in einigen Forschungsvorhaben der Zusammenhang zwischen einer prozentualen Abnahme des SAK_{254} infolge der Ozonung und der Spurenstoffelimination beschrieben. Dieser Zusammenhang kann im besten Fall sogar für eine bedarfsgerechte Regelung der Ozonung genutzt werden (Altmann et al. 2014; ARGE 2014; Fleiner et al. 2015). Die in diesem Projekt erhaltenen Ergebnisse bestätigen, dass ebenfalls eine gute Korrelation zwischen der prozentualen SAK_{254}-Abnahme und der Reduzierung der Spurenstoffe vorliegt, vgl. Abbildung 9. Aus diesem Grund kann diese Größe für die bedarfsgerechte Ozondosierung zur Regelung der großtechnischem Ozonanlage in Betracht gezogen werden.

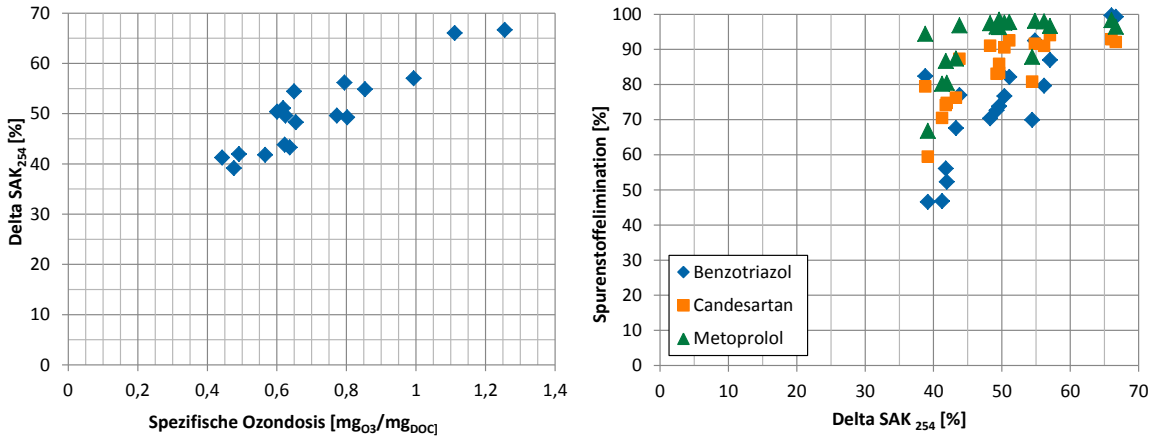

Abbildung 9: Links: Korrelation zwischen der spezifischen Ozondosierung und dem daraus resultierendem ΔSAK_{254}. Rechts: Spurenstoffelimination in Abhängigkeit des ΔSAK_{254} während der dynamischen Ozonversuche.

Einschränkungen der ΔSAK_{254}-Regelung ergeben sich daraus, dass die eingesetzten online-Messsonden die Messergebnisse genau und zuverlässig angeben müssen. Da der SAK_{254} beispielsweise im Aachener Abwasser in der Regel Werte zwischen 10 m^{-1} und 15 m^{-1} annimmt, führt bereits eine Ungenauigkeit der Sonden von ± 1 m^{-1} im Zulauf und im Ablauf zu einer Abweichung von ca. 10 % bis 20 %. Eine Abweichung dieser Größenordnung hätte starke Auswirkungen auf die eingesetzte Ozondosis und damit auf die erreichte Spurenstoffelimination. Da die Sonden zur Messung der erforderlichen Parameter sehr schmutzempfindlich sind, muss eine regelmäßige Reinigung gewährleistet werden.

2.4.3 Transformationsproduktbildung und Ökotoxizität

Transformationsproduktbildung

Im Rahmen der Untersuchungen wurden als mögliche Transformationsprodukte der Ozonung 8 Nitrosamine (N-Nitrosodimethylamin, N-Nitrosodibutylamin, N-Nitrosodiethylamin, N-Nitrosodipropylamin, N-Nitrosoethylmethylamin, N-Nitrosomorpholin, N-Nitrosopiperidin, N-Nitrosopyrrolidin) und Bromat untersucht. Nitrosamine wurden im Ablauf der Pilotanlage nicht gefunden, deshalb wird im Nachfolgenden ausschließlich Bromat betrachtet.

Im Abwasser befindliches Bromid kann während der Ozonung zu Bromat reagieren. Bromat ist potenziell kanzerogen und daher in der Trinkwasserverordnung mit einem Grenzwert von 10 µg/l

reglementiert. Entsprechend der erhaltenen Ergebnisse zur Spurenstoffelimination wird eine Ozondosis von ca. 4 mg_{O3}/l als ausreichend angesehen. Die im Folgenden vorgestellten teils hohen Dosierungen wurden explizit zum Zweck der Bromatproduktion eingestellt, damit eine Beobachtung und Bewertung der Einflussfaktoren auf die Bromatbildung erfolgen konnte. Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Bromatbildung lassen eine Abhängigkeit der gebildeten Bromatkonzentration von der Ozondosis erkennen. Dennoch ist die Schwankungsbreite der gebildeten Bromatkonzentration für die gleiche Ozondosis an verschiedenen Tagen groß.

Es zeigt sich zudem, dass sowohl für die spezifische Ozondosis als auch für die Ozonkonzentration im Off-Gas ein Zusammenhang zur Bromatkonzentration im Ablauf existiert (vgl. Abbildung 10). Die Bromatkonzentration nimmt mit zunehmender spezifischer Ozondosis deutlich zu. Das bedeutet, dass bei gleicher Ozondosis in einem gering mit organischer Substanz belasteten Abwasser eine höhere Bromatbildung zu erwarten ist, als in einem stark belasteten Abwasser, in welchem das Ozon durch verschiedene Konkurrenzreaktionen gezehrt wird. In einem stark zehrenden Abwasser liegt Ozon dagegen potenziell weniger lange gelöst vor. Entsprechend sind Reaktionen zwischen Ozon und Bromid seltener. Hohe Ozonkonzentrationen in der Abluft zeigen ebenfalls eine Überdosierung an. Entsprechend kann auch dieser Parameter als Vorsorge-Schwellenwert oder Korrekturfaktor genutzt werden, der in die Steuerung oder Regelung einprogrammiert werden kann und so einer Bromatbildung entgegenwirkt. Bis zu einer Ozonkonzentration im Off-Gas von 0,5 g_{O3}/m^3 liegen die gemessenen Bromatwerte an der Pilotanlage sicher unter 10 µg/l.

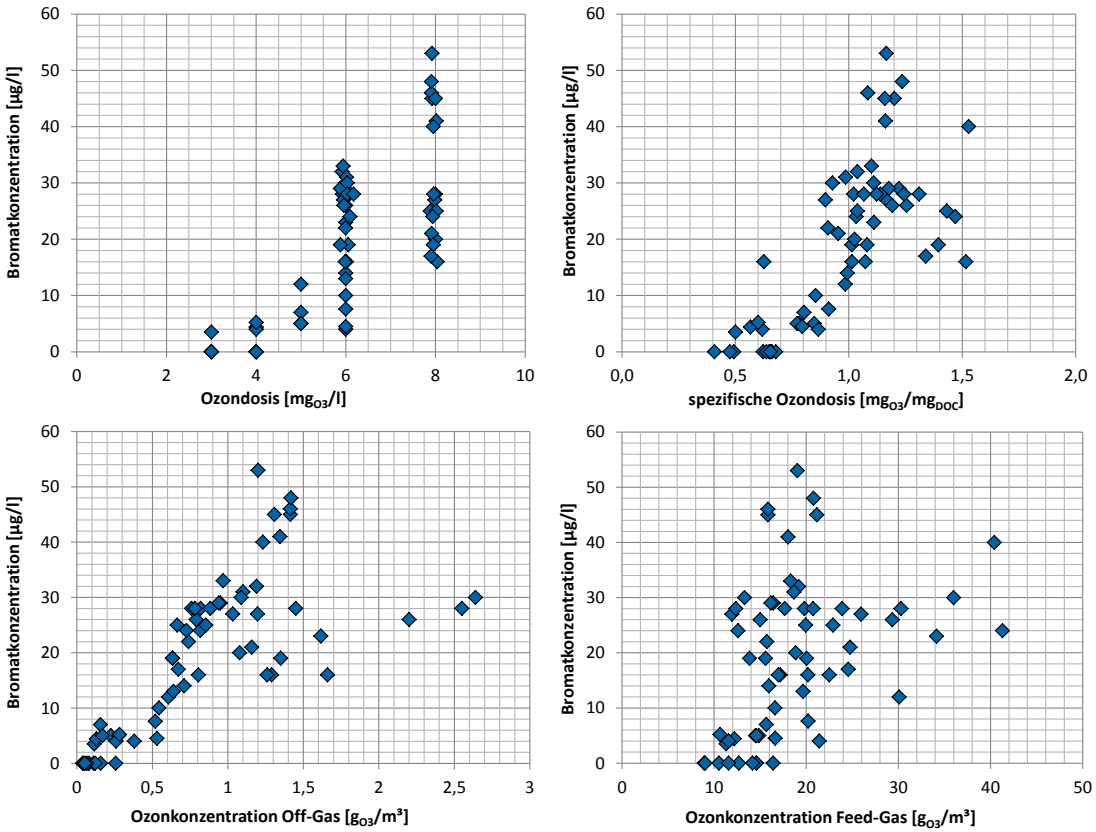

Abbildung 10: Bromatkonzentration im Ablauf der Pilotanlage in Abhängigkeit unterschiedlicher Betriebsparameter.

Generell spielt die im Abwasser vorliegende Bromidkonzentration eine entscheidende Rolle für die Bromatbildung. Daher wurde in einem weiteren Schritt die prozentuale Bildung der molaren Bromatkonzentration [mol_{BrO3-}/l] ausgehend von der im Wasser vorliegenden molaren Bromidkonzentration [mol_{Br-}/l] untersucht. Es zeigt sich, dass ein deutlicher Zusammenhang zwischen der Bromatausbeute [%] und der Ozonkonzentration im Off-Gas bzw. der spezifischen Ozondosis besteht. Dadurch kann geschlussfolgert werden, dass die im Wasser verfügbare Ozonkonzentration und die für eine Reaktion zur Verfügung stehende Bromidkonzentration den maßgeblichsten Einfluss auf die Bromatbildung hat.

Für die üblichen Ozondosierungen mit dem Ziel der Spurenstoffelimination, z. B. 4 mg_{O3}/l, lagen die im kontinuierlichen Betrieb gemessenen Bromatwerte zuverlässig ≤ 10 µg/l.

2.4.4 Ökotoxizität

Anhand der ökotoxikologischen Untersuchungen wird der Einfluss der Ozonung auf die Abwasserreinigung bewertet und diese können darüber hinaus indirekt als Bewertung für die Entstehung von Transformationsprodukten herangezogen werden.

Für alle Probenahmestellen und eingesetzte Ozondosen konnte weder eine akute, noch eine chronische Toxizität auf Leuchtbakterien ermittelt werden. Auch im Algen-Wachstumshemmtest zeigte sich zu keiner Zeit eine toxische Wirkung.

Des Weiteren zeigen die Ergebnisse des ERα CALUX® und des L-YES Assay, dass die Pilotanlage zu einer effizienten Reduzierung, nicht jedoch zu einer vollständigen Eliminierung des östrogenen Potenzials führt (vgl. Tabelle 4).

Beim Ames-Fluktuations Assay wurde in fünf von acht Fällen am Zulauf zur Pilotanlage ein mutagenes Potenzial nachgewiesen, was am Ablauf der Pilotanlage nur bei einer von acht Proben noch messbar war. Die Ergebnisse des Mikrokerntests zeigten in keiner der Zulaufproben ein gentoxisches Potenzial. Lediglich in Messkampagne 6 konnte eine signifikant erhöhte Anzahl an Mikrokernen in der Probe des Ablaufs der Pilotanlage nachgewiesen werden. Die Ergebnisse zeigten, dass vor allem im Ames-Fluktuation Assay das mutagene Potenzial erst ab einer Aufkonzentrierung der Probe von 25 (REF) nachweisbar war, was auf ein generell sehr geringes mutagenes Potenzial hindeutet. Insgesamt konnte das gentoxische und mutagene Potenzial in den durchgeführten Untersuchungen sehr effektiv durch die Pilotanlage eliminiert werden.

Tabelle 4: Öko- und zelltoxikologische Tests der Ozonung im Pilotmaßstab

Testsystem	Beobachtung an der Pilotanlage
Lemna minor	↓ Reduzierung durch Ozonung
Ames-Fluktuations Assay	↓↓ Elimination durch Ozonung
L-YES Assay	↓↓ Elimination durch Ozonung
ERα CALUX® Assay	↓ Reduzierung durch Ozonung, keine vollständige Eliminierung
H295R Assay	↓ Reduzierung durch Ozonung, keine vollständige Eliminierung
Mikrokerntest	↓ Reduzierung durch Ozonung
FET	- Keine Effekte nachweisbar
MTT-Assay	
Akuter Leuchtbakterientest	
Chronischer Leuchtbakterientest	
Algen	
Daphnien	

2.4.5 Reduzierung der Keimbelastung und Antibiotikaresistenzen infolge Ozonung

Durch den Einsatz von Ozon können im Abwasser vorhandene Keime, wie beispielsweise *E. coli* oder Enterokokken, effektiv geschädigt und reduziert werden. Dies konnte anhand der Untersuchungen der Keimzahl der genannten Indikatororganismen im Rahmen der Pilotuntersuchungen festgestellt werden: bei Versuchsreihen mit 4 mg_{O3}/l oder 6 mg_{O3}/l wurden Keimreduzierungen vom Zulauf bis zum Ablauf der Pilotanlage von ca. 1,5 bis 2,5 log-Stufen erreicht.

Darüber hinaus wurde die Reduzierung des Anteils antibiotikaresistenter Keime bei gleichen Versuchseinstellungen untersucht. Der Einsatz von Ozon scheinte zu einer deutlichen Reduzierung der antibiotikaresistenten Keime zu führen, beispielhaft an den gentamycinresistenten Enterokokken (Abbildung 11) erläutert: Die vorgefundenen Resistenzen lagen an acht von zehn Versuchstagen zwischen 20 % und 55 % (die verbleibenden zwei Versuchstage wiesen keine Resistenzen auf), am Ablauf der Pilotanlage waren in einem dieser acht Fälle keine Resistenzen mehr nachweisbar und in zwei anderen Fällen zeigte sich eine deutliche Reduzierung des Anteils antibiotikaresistener Keime. In den fünf weiteren Fällen konnte aufgrund der nicht ausreichenden Anzahl an Kolonien auf den Kontrollplatten keine Aussage über den Anteil an antibiotikaresistenten Keimen getroffen werden. Die Messungen an den einzelnen Versuchtagen fallen teilweise sehr unterschiedlich aus und sollten deshalb differenziert betrachtet werden.

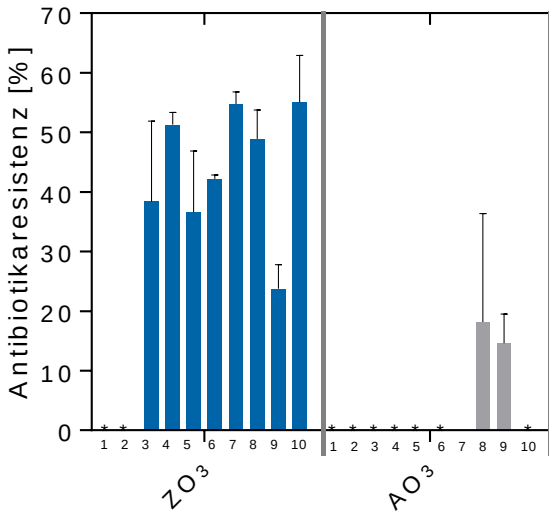

Abbildung 11: Reduzierung des Anteils gentamycinresistenter Enterokokken infolge der Ozonung (* = Kolonien der Kontrollplatte unterhalb des Grenzwertes).

Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse, dass die Pilotanlage zur Ozonung von Abwasser in Bezug auf die Keimzahl und Antibiotikaresistenzen eine Verbesserung der Abwasserqualität erwarten lässt, obwohl über die Reinigungsstufen der Kläranlage vom Zulauf bis zum Ablauf bereits ca. 99,9 % der untersuchten Keime reduziert werden. Der Einsatz von Ozon kann zu einer zusätzlichen Reduzierung der Keime einschließlich antibiotikaresistenter Keime führen. Demnach ist zu erwarten, dass die großtechnische Demonstrationsanlage zur Ozonung von Abwasser die Ablaufqualität der Kläranlage in Bezug auf die Keimzahlen verbessern wird. Darüber hinaus konnte keine signifikante Reduzierung der antibiotikaresistenten Keime durch den Klärprozess festgestellt werden. Innerhalb der Pilotanlage konnte jedoch eine deutliche Reduzierung antibiotikaresistenter Keime festgestellt werden. Aus diesem Grund ist auch diesbezüglich zukünftig von einer Verbesserung der Ablaufqualität auszugehen.

3 Zusammenfassung

Im Projekt DemO_3AC werden die Auswirkungen einer großtechnischen Ozonanlage zur Behandlung des gesamten Abwassers der Kläranlage Aachen-Soers auf den Vorfluter, die Wurm, untersucht. Dies ist das erste übergeordnete Ziel des Projekts DemO_3AC. Dazu wurde in der Phase 1a zunächst der Ist-Zustand, der Status Quo, der Kläranlage und des Vorfluters festgestellt. Die Phase 1b umfasste darüber hinaus Untersuchungen der Kläranlage Eilendorf und ihrem Vorfluter Haarbach. Der Haarbach mündet oberhalb der Kläranlage Aachen-Soers in die Wurm. Somit tragen die Kläranlage Eilendorf und der Haarbach zur Vorbelastung der Wurm vor der Einleitung der Kläranlage Aachen-Soers bei.

Die Evaluierung der Auswirkungen wird anhand vergleichender Untersuchungen durchgeführt, die in Phase 2 (2018–2019), wenn die Ozonungsanlage in Betrieb ist, wiederholt werden.

Untersucht wurden Abwasserparameter zur Charakterisierung der Abwassermatrix, Spurenstoffe, Keimzahlen und Antibiotikaresistenzen, ökotoxikologische Potenziale und die Lebensgemeinschaften im Gewässer.

Darüber hinaus wurde eine Pilotanlage zur Ozonung von Abwasser betrieben, mit der einerseits verfahrenstechnische Grundlagen ermittelt und andererseits Bewertungen im Hinblick auf mikrobiologische und ökotoxikologische Testsysteme durchgeführt wurden. Diese Untersuchungen dienen weiterhin als Grundlage zur Erreichung des zweiten übergeordneten Projektziels: der Optimierung der Ozonung (welche ebenfalls in Phase 2 erfolgt).

Die Ermittlung des Status Quo zeigt, dass die Kläranlagen Aachen-Soers und Eilendorf, die verfahrenstechnisch ähnlich aufgebaut sind (beide haben als zusätzliche Reinigungsstufe bereits eine Klarwassermitrifikation und einen Sandfilter), das Abwasser bereits sehr gut reinigen:

Dieses Ergebnis lieferte die Auswertung der Abwasserparameter, wie z. B. CSB, DOC, AFS und Nährstoffverbindungen. Die vorgeschriebenen Überwachungswerte werden zuverlässig eingehalten. Positive Auswirkungen hatte die Kläranlageneinleitung beispielsweise in Bezug auf Feststoffe bzw. Trübung sowie Phosphor. Nitrat war nach Kläranlageneinleitung in der Wurm in höheren Konzentrationen messbar, lag allerdings weiterhin deutlich unterhalb des Überwachungswertes für N_{ges}.

In Bezug auf Spurenstoffelimination wurden im Schnitt etwa die Hälfte der gemessenen Konzentrationen eliminiert, was insbesondere auf die biologische Reinigungsstufe zurückzuführen war. Ein gewisser Teil wurde darüber hinaus auch im Sandfilter zurückgehalten. Dennoch stellte insbesondere die Kläranlage Aachen-Soers aufgrund des hohen Anteils der Wasserführung in der Wurm nach Einleitung einen maßgeblichen Eintragspfad für Spurenstoffe in die Wurm dar. Ebenso war die punktuelle Einleitung der Kläranlage Eilendorf im Haarbach messbar und auch der Einfluss der Mündung des Haarbachs in die Wurm war anhand der Spurenstoffmessungen erkennbar.

Auf der Kläranlage Aachen-Soers wurden die Fäkalkeime *E. coli* und Enterokokken bereits zu > 99 % eliminiert. Die Kläranlageneinleitung führte, trotz des großen Einflusses auf die Wasserführung, zu keiner Veränderung der Keimzahlen in der Wurm. Anhand der Keimzahl war demnach in der Wurm kein Abwassereinfluss erkennbar.

Antibiotikaresistenzen wurden für *E. coli*, Enterokokken und Staphylokokken gegen einige gängige Antibiotika untersucht, z. B. Clarithromycin und Sulfamethoxazol. Obwohl über die Reinigungsstufen der Kläranlage Keime auch mit antibiotikaresistenten Genen reduziert werden können, führte ein Vergleich des Zu- und Ablaufs im Mittel zu keiner signifikanten Veränderung des prozentualen Anteils der antibiotikaresistenten Keime. Für einzelne Tag war dies zwar messbar, jedoch waren die Schwankungen hoch. Zu betonen ist, dass die Untersuchung der Keimzahl nicht mit der Untersuchung der Antibiotikaresistenzen verknüpft werden kann, da sich die Angabe der Resistenzen auf ein Kontrollmedium bezieht und die Ergebnisse nicht die Resistenzen der im Zusammenhang mit der Keimzahlbestimmung verwendeten Keime wiedergaben. Weiterhin wurden multiple Resistenzen der bereits antibiotikaresistenten Keime untersucht und die Methodik etabliert. Grundsätzlich waren multiple Resistenzen nachweisbar. Die Daten lassen zum derzeitigen Standpunkt jedoch keine Aussage über den Einfluss der Kläranlage auf multiple Antibiotikaresistenzen zu.

Ökotoxikologisch war der Kläranlagenzulauf in allen Untersuchungen auffällig, jedoch wird das Potenzial aller Testsysteme bis zum Ablauf der Kläranlage mindestens deutlich reduziert (z. B. Endokrinität, Mutagenität, Gentoxizität), häufig sogar vollständig eliminiert (z. B. Embryotoxizität/Teratogenität, akute/chronische Toxizität). Da auf die Vorfluter diverse, teilweise sehr diffuse Belastungen wirken und auch Vorbelastungen (z. B. anhand der Sedimentuntersuchungen) merklich messbar waren, fiel der Einfluss der Kläranlageneinleitung auf die Vorfluter nicht immer eindeutig aus. Teilweise führte die Einleitung des gereinigten Abwassers zu einem Verdünnungseffekt, teilweise gab es allerdings Hinweise auf eine Beeinflussung des Gewässers durch den hohen Abwasseranteil (insbesondere im Hinblick auf östrogenes Potenzial anhand von *in situ*, teilweise *in vitro* Untersuchungen). Die Sedimentbelastung fiel im Vergleich zur wässrigen Phase deutlicher aus: hier war neben östrogenem Potenzial auch mutagenes/gentoxisches Potenzial präsenter, jedoch bestand hier nicht die Möglichkeit, die Belastung einer eindeutigen Quelle zuzuordnen.

Aus ökotoxikologischer Sicht hat sich insbesondere die Mischwassereinleitung durch das RÜB Soers als relevant herausgestellt. Hier konnten teratogene, endokrine, mutagene und gentoxische Effekte nachgewiesen werden. Neben einem stofflichen Eintrag kann es darüber hinaus aufgrund der hydraulischen Belastung zu Sedimentaufwirbelungen kommen, wodurch gebundene Schadstoffe erneut remobilisiert und so wiederum ein ökotoxikologisches Potenzial auf aquatische Organismen haben können.

Die Gewässerabschnitte in Wurm und Haarbach zeigten auch in Bezug auf die Bewertung der Lebensgemeinschaften starke Defizite auf. Der Zustand war überwiegend schlecht bis

unbefriedigend. Ein Einfluss durch die Kläranlageneinleitung war insbesondere an den Diatomeen sichtbar.

Die Untersuchungen der Abwasserozonung im Labor- bzw. Pilotmaßstab zeigen, dass eine vollständige Ozonzehrung des Abwassers bei verschiedenen Ozondosierungen und Zulaufbedingungen nach ca. fünf Minuten erreicht wurde. Für eine durchschnittliche Elimination der Spurenstoffkonzentrationen vom Zulauf bis zum Ablauf der Pilotanlage von ca. 90 % waren Ozondosierungen von 3 mg_{O3}/l bis 4 mg_{O3}/l ausreichend. Als Grundlage für ein Regelungskonzept des Ozoneintrags erwies sich die Abnahme der Absorbanz bei 254 nm (ΔSAK_{254}) aufgrund guter Korrelationen zur Spurenstoffelimination als vielversprechend. Die Grundlagenermittlungen flossen in die Dimensionierung der großtechnischen Ozonanlage ein.

In Bezug auf Transformationsproduktbildung konnten keine Nitrosamine gefunden werden. Das potenziell kanzerogene Transformationsprodukt Bromat wurde intensiv untersucht und wurde nur bei vergleichsweise sehr hohen Ozondosierungen (> 6 mg_{O3}/l) gebildet, die in der Praxis zur Spurenstoffelimination nicht angewandt werden.

Darüber hinaus wurde eine indirekte Abschätzung der Transformationsproduktbildung anhand ökotoxikologischer Tests durchgeführt. Es zeigte sich, dass die Pilotanlage insgesamt zu einer weiteren Verbesserung der Abwasserqualität beitrug und die ökotoxikologischen Potenziale weiter reduziert wurden. Auf Basis der bisherigen Ergebnisse ist die potenziell von Transformationsprodukten ausgehende Ökotoxizität als gering einzustufen.

Weiterhin konnte mittels Ozonung bei Dosierungen von 4 mg_{O3}/l und 6 mg_{O3}/l eine Keimreduzierung von 1,5 bis 2 log-Stufen erreicht werden. Auch der Anteil antibiotikaresistenter Keime reduzierte sich durch die Ozonung.

Anhand der Untersuchungen der Ozonung im Pilotmaßstab lässt sich derzeit abschätzen, dass sich die Qualität des Kläranlagenablaufs nach Inbetriebnahme der großtechnischen Ozonungsanlage im Hinblick auf chemische, mikrobiologische und ökotoxikologische Parameter verbessern wird. Eine mögliche sichtbare Verbesserung der Gewässerqualität ist insbesondere in Bezug auf östrogenes, ggf. auch auf mutagenes Potenzial zu erwarten. Darüber hinaus weisen Angaben aus der Literatur auf eine Verbesserung der Lebensgemeinschaften hin. Diese Bewertung kann jedoch erst im Zuge der Phase 2 erfolgen: entsprechende Untersuchungen und die Auswirkungen dieser Zustandsänderung auf das Gewässer werden in 2018 und 2019 im Rahmen der Phase 2 des Projekts DemO_3AC durchgeführt.

4 Referenzen

Abegglen, C., Escher, B., Hollender, J., Koepke, S., Ort, C., Peter, A., Siegrist, H., Gunten, U. von, Zimmermann, S., Koch, M., Niederhauser, P., Schärer, M., Braun, C., Gälli, R., Junghans, M., Brocker, S., Moser, R., und Rensch, D. (2009). *Ozonung von gereinigtem Abwasser: Schlussbericht Pilotversuch Regensdorf,* Studie der Eawag im Auftrag des Bundesamts für Umwelt BAFU und des AWEL Amt für Abfall, Wasser, Energie und Luft des Kantons Zürich, in enger Zusammenarbeit mit BMG Engineering AG und Hunziker-Betatech AG.

Altmann, J., Ruhl, A. S., Zietzschmann, F., und Jekel, M. (2014). "Direct comparison of ozonation and adsorption onto powdered activated carbon for micropollutant removal in advanced wastewater treatment." *Water research*, 10.1016/j.watres.2014.02.025, 185–193.

Amler, K., Benišek, M., Bláha, L., Fromm, J., Gallert, C., Giebner, S., and Triebskorn, R., eds. (2017). *Weitergehende Abwasserreinigung: Ein wirksames und bezahlbares Instrument zur Verminderung von Spurenstoffen und Keimen im Wasserkreislauf: Gemeinsamer Schlussbericht der vom Bundesministerium für Bildung und Forschung sowie vom Ministerium für Umwelt, Klima und Energiewirtschaft Baden-Württemberg geförderten Projekte SchussenAktiv, SchussenAktivplus und SchussenAktivplus+*, Ökonsult GbR Stuttgart, Stuttgart.

Antoniou, M. G., Hey, G., Rodríguez Vega, S., Spiliotopoulou, A., Fick, J., Tysklind, M., la Cour Jansen, Jes, und Andersen, H. R. (2013). "Required ozone doses for removing pharmaceuticals from wastewater effluents." *Science of The Total Environment*, 10.1016/j.scitotenv.2013.03.072, 42–49.

ARGE (2014). *Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben „Elimination von Arzneimittelrückständen in kommunalen Kläranlagen. Abschlussbericht zur Phase 2 der "Arbeitsgemein-schaft Spurenstoffe NRW, Teilprojekt 6" (Arge)“*.

Bahr, C., Ernst, M., Jekel, M., Heinzmann, B., Luck, F., und Ried, A. (2007). *Pilotuntersuchungen zur kombinierten oxidativ-biologischen Behandlung von Klärwerksabläufen für die Entfernung von organischen Spuren- und Wirkstoffen und zur Desinfektion*, Berlin (Feb. 17, 2015).

Brückner, I., Claßen, S., Hammers-Wirtz, M., Hollert, H., Kirchner, K., Klaer, K., Müller, Y., Pinnekamp, J., A.-Rosenbaum, M., Schiwy, S., und Stepkes, H. (2018). "Kläranlagen- und Gewässermonitoring zur Evaluierung der Auswirkungen einer Ozonung auf den Vorfluter – das Projekt DemO3AC." *KW Korrespondenz Wasserwirtschaft*, (11 (1)).

Buffle, M.-O., Schumacher, J., Salhi, E., Jekel, M., und Gunten, U. von (2006). "Measurement of the initial phase of ozone decomposition in water and wastewater by means of a continuous quench-flow system: Application to disinfection and pharmaceutical oxidation." *Water research*, 10.1016/j.watres.2006.02.026, 1884–1894.

Dong, Z.-J., Dong, W.-Y., Zhang, X.-M., Yu, X.-H., Ou, Y.-F., und Du, H. (2009). *Removal of Bromate by Ferrous Sulfate Reduction in Drinking Water: ICBBE 2009 : June 11-16, 2009 Beijing,*

China, Proceedings, the 3rd International Conference on Bioinformatics and Biomedical Engineering, [IEEE], [Piscataway, NJ].

ELWAS-WEB. (2017). "Das Fachinformationssystem ELWAS mit dem Auswertewerkzeug ELWAS-WEB ist ein elektronisches wasserwirtschaftliches Verbundsystem für die Wasserwirtschaftsverwaltung in NRW.: ." <http://www.elwasweb.nrw.de/elwas-web/index.jsf>.

Fleiner, J., Wittmer, A., Siegrist, H., Böhler, M., McArdell, C. S., Teichler, R., und Bourgin, M. (2015). *Ozonung ARA Neugut, Dübendorf - Grosstechnische Optimierung der Ozondosierung*.

Gunten, U. von (2003). "Ozonation of drinking water: Part II. Disinfection and by-product formation in presence of bromide, iodide or chlorine." *Water research*, 10.1016/S0043-1354(02)00458-X, 1469–1487.

Jekel, M., Dott, W., Bergmann, A., Dünnbier, U., Gnirß, R., Haist-Gulde, B., Hamscher, G., Letzel, M., Licha, T., Lyko, S., Miehe, U., Sacher, F., Scheurer, M., Schmidt, C. K., Reemtsma, T., und Ruhl, A. S. (2015). "Selection of organic process and source indicator substances for the anthropogenically influenced water cycle." *Chemosphere*, 10.1016/j.chemosphere.2014.12.025, 155–167.

Lee, Y., Gerrity, D., Lee, M., Bogeat, A. E., Salhi, E., Gamage, S., Trenholm, R. A., Wert, E. C., Snyder, S. A., und Gunten, U. von (2013). "Prediction of Micropollutant Elimination during Ozonation of Municipal Wastewater Effluents: Use of Kinetic and Water Specific Information." *Environ. Sci. Technol.*, 10.1021/es400781r, 5872–5881.

Magdeburg, A., Stalter, D., Schlüsener, M., Ternes, T., und Oehlmann, J. (2014). "Evaluating the efficiency of advanced wastewater treatment: Target analysis of organic contaminants and (geno-)toxicity assessment tell a different story." *Water research*, 10.1016/j.watres.2013.11.041, 35–47.

MKULNV (2014). *Entwicklung und Stand der Abwasserbeseitigung in NRW 2014: Langfassung des Berichts mit ergänzender flußgebietsbezogener Darstellung der Abwasseranlagen und ihrer Einleitungen,* Kapitel 12.3.2: Teileinzugsgebiet Maas-Süd <https://www.lanuv.nrw.de/umwelt/wasser/abwasser/lagebericht/>.

Nanaboina, V., und Korshin, G. V. (2010). "Evolution of absorbance spectra of ozonated wastewater and its relationship with the degradation of trace-level organic species." *Environmental science & technology*, 10.1021/es1005175, 6130–6137.

Nöthe, T., Fahlenkamp, H., und Sonntag, C. v. (2009). "Ozonation of Wastewater: Rate of Ozone Consumption and Hydroxyl Radical Yield." *Environ. Sci. Technol.*, 10.1021/es900825f, 5990–5995.

Paraskeva, P., und Graham, N. J. D. (2002). "Ozonation of Municipal Waste water Effluents: STATE-OF-THE-ART REVIEW." *Water Environmental Research*, (74) (en).

Rüden, H. W. C., und Edmond, M. (1998). "Vancomycin-resistente Enterokokken: Epidemiologie, Risikofaktoren und Prävention." *Deutsches Ärzteblatt*, (95 (25)), A-1604 / B-1375 / C-1278.

Siddiqui, M., und Amy, G. (1995). "Strategies for removing bromate from drinking water." *prepared for: California Urban Water Agencies* (en).

Solbach, W. (2013). *Antibiotika-Wirkspektrum unter Berücksichtigung der Resistenzlage (Stand 2013)*.

Stalter, D., Magdeburg, A., und Oehlmann, J. (2010). "Comparative toxicity assessment of ozone and activated carbon treated sewage effluents using an in vivo test battery." *Water research*, 10.1016/j.watres.2010.01.023, 2610–2620.

Wert, E. C., Rosario-Ortiz, F. L., und Snyder, S. A. (2009). "Effect of ozone exposure on the oxidation of trace organic contaminants in wastewater." *Water research*, 10.1016/j.watres.2008.11.050, 1005–1014.