

Abstract

Microplastics (MPs) were found to be ubiquitous in the environment, yet much uncertainty remains to be resolved with respect to their ecological impact and fate. Within aquatic environments, the transport of MPs and similar particulates is driven by numerous factors and processes. Gravitational settling plays a major role in the vertical transport of nonbuoyant or ballasted MPs and thus influences their distribution within the water column as well as their possible deposition. So far, terminal settling velocities have been mostly studied for large MPs ($> 500\text{ }\mu\text{m}$), while empirical data on small MPs is still sparse. For tire and road wear particles (TRWP), no respective measurements have been reported at all, although variabilities in size and density of TRWP impede reliable settling velocity predictions. TRWP are not consistently defined as MPs, but emitted at large scale and proven to be environmentally relevant.

This thesis presents a method for measuring the single particle settling velocities of small MPs ($10\text{--}400\text{ }\mu\text{m}$). The measurement is based on optical imaging and features an image processing routine for automated particle tracking. The experimental setup was validated extensively according to experiments with spherical particles of different sizes and densities. It was demonstrated that vibrations and thermal convection could be suppressed effectively to allow for high precision and robustness. At elevated particle doses, interactions between particles were observed to induce deviations from single particle settling behavior. An empirical model was proposed and calibrated in order to monitor and thus minimize these effects during measurements by optimizing the particle dose accordingly.

The measurement method was applied to determine the settling velocities of nonbuoyant, small MPs. Several types of MP fragments and MP fibers were investigated, as these represent the two most commonly found shapes of MPs. The obtained empirical data were used to assess the predictive qualities of ten existing models for computing terminal settling velocities. Six of these models had been specifically proposed for MPs, yet all of them notably failed when being applied to small MPs. Instead, a more general model is recommended for predicting settling velocities of MPs of different shapes and across the entire size range.

Moreover, the very first measurements of TRWP settling velocities are reported. Despite sample impurities, profound conclusions could be drawn due to an innovative combination of density and size fractionations, thermogravimetric analysis of tire polymers, and settling experiments according to the developed method. Thus, empirical distributions of particle sizes and settling velocities could be derived for model TRWP from a road simulator as well as for environmental TRWP sampled from a highway tunnel.

This thesis presents comprehensive empirical data on the gravitational settling of small MPs and TRWP in water, which are crucial inputs for transport models. The developed measurement technique and its effective combination with further analyses were demonstrated as powerful approaches, that could be adopted for future investigations.

Zusammenfassung

Umweltbefunde bestätigen die weltweite Verbreitung von Mikroplastik (MP). Nach wie vor bestehen jedoch große Wissenslücken hinsichtlich der ökologischen Auswirkungen und des Verbleibs von MP. Der Transport von MP in der aquatischen Umwelt wird von zahlreichen Prozessen und Faktoren bestimmt. Schwerkraftgetriebener Sedimentation kommt eine wichtige Rolle beim vertikalen Transport von nicht schwimmfähigem MP zu. Sie beeinflusst dessen Verteilung in der Wassersäule sowie eine mögliche Deposition. Bislang wurden terminale Sinkgeschwindigkeiten in Wasser vornehmlich für großes MP ($> 500 \mu\text{m}$) gemessen, hingegen selten für kleinere MP-Partikel. Zum Sinkverhalten von Reifen- und Straßenabriebspartikel (TRWP) existieren bislang keinerlei empirische Daten, obwohl ihre variable Größe und Dichte theoretische Vorhersagen erschwert. TRWP werden zwar nicht einheitlich als MP definiert, sind jedoch nachweislich umweltrelevant und werden in großem Umfang emittiert.

Im Rahmen dieser Dissertation wurde ein bildgebendes Messverfahren für die Sinkgeschwindigkeiten kleiner MP-Partikel ($10\text{--}400 \mu\text{m}$) entwickelt, welches einzelne Partikel mithilfe automatisierter Bildauswertung verfolgt. Der Messaufbau wurde anhand umfangreicher Experimente mit kugelförmigen Partikeln verschiedener Größen und Dichten validiert. Durch die effektive Unterdrückung von Störfaktoren wie Vibrationen und thermischer Konvektion konnte eine hohe Messgenauigkeit und Robustheit erreicht werden. Für erhöhte Partikeldosen wurden Wechselwirkungen zwischen Partikeln beobachtet, die zu abweichendem Sinkverhalten führen. Ein empirisches Modell wurde aufgesetzt und kalibriert, um diese Effekte zu erkennen, abzuschätzen und durch Anpassen der Partikeldosis real zu minimieren.

Mit dem entwickelten Messverfahren wurden zunächst die Sinkgeschwindigkeiten verschiedener kleiner, nicht schwimmfähiger MP-Fragmente und Fasern untersucht. Irregulär geformte Fragmente sowie Fasern sind die am häufigsten gefundenen Formen von MP in der Umwelt. Anhand der gewonnenen Daten wurden zehn verschiedene theoretische Modelle zur Vorhersage von Sinkgeschwindigkeiten miteinander verglichen. Sechs dieser Modelle wurden originär für MP postuliert, offenbarten jedoch erhebliche Defizite bei Vorhersagen für kleines MP. Stattdessen wird ein allgemeingültigeres Modell für die Berechnung der Sinkgeschwindigkeiten von MP innerhalb eines breiten Größen- und Formspektrums empfohlen.

Erstmals wurden auch Sinkgeschwindigkeiten von TRWP gemessen. Um nicht nur aus hochreinen Partikelproben Rückschlüsse ziehen zu können, wurde eine innovative Kombination aus Dichte- und Größenfraktionierungen, thermogravimetrischer Analyse von Reifenpolymeren und Sinkgeschwindigkeitsmessungen angewandt. Auf diese Weise konnten Verteilungen der Sinkgeschwindigkeiten und Partikelgrößen für Modell-TRWP aus einem Teststand sowie für reale TRWP aus einem Autobahntunnel bestimmt werden.

Diese Dissertation legt umfangreiche empirische Daten zum schwerkraftgetriebenen Sinkverhalten von kleinem MP und TRWP in Wasser vor, welche z.B. Transportmodelle speisen können. Die eigens entwickelte Messung und ihre Kombination mit weiteren Analyseverfahren wurden erfolgreich demonstriert – auch im Hinblick auf mögliche zukünftige Anwendungen.