

Verhalten von Uran aus Phosphat haltigen Düngern im System Boden-Wasser-Pflanze

Endbericht Februar 2016

Andreas Baumgarten¹, Alexander Eder², Georg Dersch¹, Gerald Großgut¹, Franko Humer³, Markus Herndl⁴, Christian Katzlberger¹, Monika Kumpan², Claudia Landstetter¹, Bettina Liebmann³, Erwin Pfundtner¹, Alarich Riss³, Heide Spiegel¹, Gerhard Zethner³

¹Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit

²Bundesamt für Wasserwirtschaft, Institut für Kulturtechnik und Bodenwasserhaushalt

³Umweltbundesamt

⁴HBLFA Raumberg-Gumpenstein



Dieses Projekt wurde aus Mitteln des Bundesministeriums für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft finanziert.

Zusammenfassung

Uran (U) ist ein natürlicherweise in Gesteinen, Böden und Gewässern vorkommendes, schwach radioaktives Schwermetall. Die für die Herstellung von Phosphatdüngern verwendeten P-Erze können Uran enthalten. Im vorliegenden Projekt wird untersucht, in welcher Größenordnung diese Gehalte liegen und wie das Verhalten von Uran im System Boden – Wasser – Pflanze zu beurteilen ist.

Gehalte in Düngemitteln

Die Untersuchung von mineralischen Düngemitteln ergab Gehalte in einem Bereich zwischen 0,2 und 208 mg Uran pro Kilogramm Dünger, bezogen auf den Phosphatgehalt lagen die Gehalte zwischen 2 und 517 mg U/kg P₂O₅. In organischen Düngern, Wirtschaftsdüngern und Kultursubstraten wurden keine nennenswerten Mengen an Uran gefunden. Der Zusammenhang zwischen dem Cadmium- und dem Urangehalt erreichte ein Bestimmtheitsmaß von ca. 60%, im Rahmen der Düngemittelüberwachung erscheint die Korrelation jedoch nicht eindeutig genug, um in allen Fällen aus dem Cd-Gehalt den Urangehalt ableiten zu können. Allerdings weisen Ergebnisse aus P-Dauerversuchen darauf hin, dass die Belastung der P-Dünger mit Uran eine steigende Tendenz aufweist.

Gehalte im Boden

Zufällig ausgewählte Proben von Standorten mit landwirtschaftlicher Nutzung, unter Wald und im Hochgebirge weisen aus der Literatur bekannte Gehalte unbelasteter Böden auf und lassen keine nutzungsbezogenen, sondern überwiegend geogen bedingte Unterschiede erkennen. Zusammenhänge zu anderen Bodeneigenschaften, insbesondere dem Gehalt an pflanzenverfügbarem Phosphat, konnten nicht festgestellt werden. In Bezug auf den Absolutgehalt an Uran war dementsprechend keine Abhängigkeit von der Phosphatdüngung gegeben. Dies wurde auch durch eine fehlende Korrelation der P- und U-Gehalte im Tiefenverlauf von Weingartenböden mit hoher Phosphatversorgung im Oberboden bestätigt.

In P-Düngungsversuchen konnte nur nach langjährig stark überhöhter Superphosphatdüngung (150, 300 und 400 kg P₂O₅ ha⁻¹a⁻¹) eine statistisch signifikante Anhebung der Urankonzentrationen im Ober- und teilweise Unterboden festgestellt werden, nicht aber bei „sachgerechten“ P-Düngungsmengen (75 kg P₂O₅ ha⁻¹ a⁻¹). Aus Untersuchungen der Tiefenstufe 45-50 cm im P-Formenfeldversuch findet sich kein Hinweis auf eine Verlagerung bis in diese Tiefe. Bei Dauerversuchen im Grünland zeigte sich keinerlei Effekt auf den Urangehalt

Gehalte in Pflanzen

Eine Aufnahme von Uran in die Kartoffelknolle und in das Winterweizenkorn konnte nicht nachgewiesen werden. Auch in Gemüse aus erdeloser Kultur (Tomaten, Paprika, Gurken) wurde kein Uran gefunden. Proben von Blattgemüse und Kräutern zeigten geringe Urangelhalte, die jedoch keinerlei Gefährdungspotenzial in Bezug auf die Aufnahme durch den Menschen aufweisen.

Gehalte in Sickerwässern

Bei der Analyse von Sickerwässern aus Lysimeterversuchen der HBLFA Raumberg-Gumpenstein und des IKT Petzenkirchen konnte kein (Gumpenstein) oder nur geringe Konzentrationen von Uran (0,5 –

5,6 $\mu\text{g L}^{-1}$) festgestellt werden. Auch in Proben von Drainagewasser wurden keine relevanten Konzentrationen gefunden.

Microlysimeterversuch

Im Microlysimeterversuch wurden für 4 aufeinanderfolgende Schichten eines Bodenprofils die Verlagerung von Uran durch Sickerwasser und die Adsorption im Boden untersucht. Die geringste Austragsrate wurde für die oberste, humusreiche Schicht festgestellt (14,5% des applizierten Urans), in den tieferen Schichten erreichte die Austragsmenge bis zu 40%. Der Austrag erfolgte über einen langen Zeitraum mit nur undeutlich erhöhter Konzentration im Vergleich zur Basisbelastung des Sickerwassers. Trotz der hohen Beregnungsintensität und der erhöhten Uranapplikationsmenge konnte in 11 Monaten nur eine angedeutete Durchbruchkurve beobachtet werden. Dementsprechend scheint kein unmittelbares Risiko einer Grundwasserbelastung durch die Anwendung uranhaltiger Phosphatdünger zu bestehen. Ein möglicher Austrag könnte lediglich über präferentielle Fließwege erfolgen.

Abschätzung von Uranfrachten durch P-Düngung

Basierend auf den derzeit vorliegenden Ergebnissen für Urangelhalte in P-Düngern, den Aufwandmengen und den Gehalten in Sickerwässern ist von keiner unmittelbaren Gefährdung des Grundwassers auszugehen. Es kann allerdings zu Erhöhungen des Urangelhalts in Böden kommen, wobei vor allem Grünland aufgrund der geringen Krumentiefe als sensibel einzustufen ist.

Grundwassersituation Seewinkel

Die Böden im Einzugsbereich belasteter Grundwassermessstellen wiesen keine erhöhten Urangelhalte auf. Lediglich im südöstlichen Teil des Seewinkels wurden erhöhte Urangelhalte in an- oder niedermoorigen Böden gefunden. Die Belastung dürfte auf Prozesse während der Genese dieser Böden zu erklären sein, es konnte aber kein Zusammenhang zu erhöhten Gehalten im Grundwasser festgestellt werden.

Fazit

Aufgrund der Ergebnisse der Untersuchungen und Versuche ist derzeit nicht von einer Gefährdung des Grundwassers oder der Nahrungsmittel durch Uran in Phosphatdüngemitteln auszugehen. Eine Anreicherung im Boden ist allerdings möglich. Da sowohl aktuell hohe Urankonzentrationen in Düngemitteln gefunden wurden als auch eine Verschlechterung der Qualität der P-Düngemittel vermutet werden kann, wird ein permanentes Monitoring der Urangelhalte im Rahmen der amtlichen Düngemittelkontrolle empfohlen. Zusätzlich sollten die Urangelhalte der Böden besser erfasst und zur Ausweisung von sensiblen Gebieten herangezogen werden.

Abstract

Uranium is a weakly radioactive heavy metal and a natural part of rocks, soils and waters. Phosphate ores used for the production of P-fertilizers may contain Uranium. In this project, the range of this content and the behavior in the soil – water – plant system have been investigated.

Content in fertilizers

The analysis of mineral fertilizers showed a range between 0,2 and 208 mg U kg⁻¹ fertilizer, corresponding to 2 – 517 mg U kg⁻¹ P₂O₅. In organic as well as in farm fertilizers, no noteworthy amounts could be detected. The coefficient of determination for the correlation between Cd- and U-content was only 60%. So Uranium contents cannot be predicted sufficiently on the basis of Cd-contents. Results from long term experiments indicate a decreasing quality of fertilizers with respect to U contamination

Soil contents

Random surface soil samples of arable areas, grassland, forests and high mountain regions show contents corresponding to values of not contaminated soils as known from the literature, indicating a minor influence of the soil use as compared to the geologic influence. There was no correlation to specific soil characteristics, especially the plant available P-content. The absolute U-content of soil was not linked to P-fertilization. This was confirmed by the lacking correlation between P and U contents in the profile of vineyard soils with high P-supply.

Long-term (unrealistic) high P fertilization (150, 300 and 400 kg P₂O₅ ha⁻¹a⁻¹) lead to statistically significant increases in U concentrations in upper and lower soil. A transfer into deeper soil horizons (45 – 50cm) could not be detected. For grassland, no effects of P-fertilization could be asserted.

Plant contents

Potato tubers and winter wheat grain showed no uptake, as well as vegetables from soilless cultivation. Samples from leafy vegetables and herbage showed detectable amounts of uranium, but without risk for human uptake.

Seepage and drainage water contents

In the analyses of seepage water from Lysimeter trials performed by the AREC Raumberg-Gumpenstein and the IKT Petzenkirchen, no Uranium (Raumberg-Gumpenstein) or small amounts (0,5 – 5,6 µg L⁻¹) could be detected. Drainage water samples showed no relevant concentrations.

Micro - lysimeter trial

Especially for this project, a microlysimeter facility has been developed to monitor the transport of Uranium within the soil. 4 consecutive soil layers were investigated for Uranium transport and adsorption. The smallest Uranium release occurred in the upper humic layer (14,5%), lower layer showed up to 40% loss. The release occurred during a long period of time with only low concentrations, compared to the basic contamination of the seepage water. Despite the high watering intensities only an indication of a break through curve could be stated after 11 months. Therefore the risk for groundwater contamination seems to be neglectable. Only preferential flow might enhance Uranium losses.

Assessment of Uranium mass flow caused by P-fertilization

Based on the data of P-fertilizer Uranium content, possible application amounts and seepage water contents no risk for groundwater contamination can be assumed. Soil contents may be enhanced, due to the small top layer especially grassland can be considered as more sensitive.

Groundwater – Situation in the Seewinkel region

Soils in the catchments of contaminated groundwater control points did not show elevated Uranium contents. Only in the southeastern part of the Seewinkel high contents could be found in peaty soils. The contamination is possibly due to processes during the soil genesis, however, no connection to the elevated groundwater contents could be identified.

Conclusion

Based on the results of analyses and experiments no risk for groundwater or food contamination with Uranium due to Phosphorous fertilization could be identified. However, an enrichment in soils is possible. As Uranium contents in fertilizers were partly high and an impairment of P-fertilizer quality with respect to U-contents can be assumed, a permanent monitoring of U-contents in the course of the official fertilizer control is recommended. Furthermore, soil U-contents should be recorded to delineate sensitive regions with respect to U accumulations.

Inhalt

Zusammenfassung	2
Abstract	4
1 Einleitung	8
2 Uran in Düngemitteln	8
3 Uran in Böden und Kulturpflanzen	15
Nutzungsform Acker	15
Nutzungsform Grünland	19
Nutzungsform Weingarten	19
Gehalte an ausgewählten Standorten im Seewinkel	22
Gehalte im Großglocknergebiet	24
Langzeitfeldversuche der AGES	26
Versuchsergebnisse Düngungsversuche „P-Formen“	27
Versuchsergebnisse Düngungsversuche „P-Vorrat“	29
Langzeitversuche Gumpenstein	33
Fazit	33
4 Uranaufnahme von Pflanzen in erdeloser Kultur	34
Urangehalte in Kräutern und Blattgemüse	35
5 Urangehalte in Sickerwasser und Bodenlösung	36
Beprobte Standorte - IKT	36
Beprobte Standorte – HBLFA Raumberg-Gumpenstein	39
Mineraldüngerversuch Gumpenstein:	39
Wirtschaftsdüngerversuch Gumpenstein:	39
Methodik und Ergebnisse	40
6 Adsorptionsverhalten von Uran – Mikrolysimeteranlage	45
Aufbau der Mikrolysimeteranlage (MLA)	45
Vorversuche	45
Versuchsdurchführung	49
7 Allgemeine Diskussion der Einträge von Uran im Rahmen der Phosphatdüngung - eine Frachtenabschätzung	63
Frachtenberechnung	67
Grundwasserbelastung durch Sickerwasser	68

Fazit	68
8 Grundwassersituation Seewinkel	69

1 Einleitung

Uran (U) ist ein natürlicherweise in Gesteinen, Böden und Gewässern vorkommendes, schwach radioaktives Schwermetall. Es besteht aus drei Radioisotopen, zu 99,28% aus dem Isotop ^{238}U , zu 0,71% aus dem spaltbaren ^{235}U und zu 0,0056 % aus ^{234}U . Insbesondere auf Standorten aus Kristallin, wie z. B. dem Granit und Gneis der Böhmisches Masse sowie in Orthogneisen der Schladminger Tauern und in Zentralgneisen des Ankogel-Hochalm-Kernes, kommen höhere Gehalte an Uran in Bachsedimenten vor (Geologische Bundesanstalt, 1989).

Das Schwermetall Uran ist in vielen Fällen ein Bestandteil von Phosphaterzen, die für die Herstellung von Phosphatdüngern verwendet werden. Durch geochemische Prozesse kann es zu Anreicherungen von Uran kommen (Kratz, 2004). Je nach Herkunft der Phosphaterze liegt der Gehalt zwischen 3 und 660 mg/kg Erz (Al-Shawi & Dahl 1995). Die Urankonzentration der Düngemittel ist von der Herkunft der Phosphaterze abhängig. Über diese mineralischen Phosphordünger kann Uran auf landwirtschaftlich genutzten Flächen in den Boden gelangen.

Im Boden kann Uran in mehreren Oxidationsstufen vorkommen, wobei das vorwiegend vierwertige U^{4+} primärer Minerale rasch zum sechswertigen U^{6+} oxidiert und dieses in wässrigen Lösungen Uranyl-Komplexe bildet (Welp, 2010). Die Mobilität und Verlagerung von Uran in Böden sowie die Aufnahme in die Pflanze wird im Allgemeinen als eher gering eingestuft.

Im vorliegenden Projekt wurde untersucht, ob es durch die Anwendung von Phosphat haltigen Düngemitteln zu Anreicherungen von Uran im Boden, im Grundwasser, in Pflanzen oder in der Nahrungskette kommen kann. Zusätzlich erfolgte eine eingehende Analyse möglicher Ursachen für erhöhte Gehalte an Uran im Grundwasserkörper des Seewinkels.

2 Uran in Düngemitteln

Phosphordüngemittel werden immer wieder als mögliche Quelle von Uraneinträgen in Böden genannt. In verschiedenen Ländern Europas gibt es Diskussionen über die Einführung eines Grenzwertes für Uran in Düngemitteln. Auf europäischer Ebene wird aktuell eine neue Düngemittelverordnung vorbereitet, in der erstmals auch Schadstoffgrenzwerte für Düngemittel vorgesehen sind, wobei für Uran derzeit keine Regelung vorgesehen ist. Um einen Überblick über die Bandbreite der Urangelhalte der in Österreich in Verkehr gebrachten Düngemittel zu erhalten, erfolgten Probenahmen und Analysen von Phosphat haltigen mineralischen Düngemitteln (Schwerpunkt) sowie anderer Düngemitteltypen (organische und organisch-mineralische Düngemittel, Kalke und Kultursubstrate) und von Wirtschaftsdüngern. Da auch Cadmium in P-haltigen Düngern als Schadstoff von Bedeutung ist, wurde zusätzlich auch dessen Gehalt gemessen. Im Folgenden sind die Ergebnisse zusammengestellt.

Tabelle 1: Gehalte an Uran und Cadmium in mineralischen P-Düngern

	P (%)	mg kg ⁻¹ Dünger		mg kg ⁻¹ P ₂ O ₅	
		Cadmium	Uran	Cadmium	Uran
P1	27,7	6,73	69,40	24,29	250,45
P2	19,5	3,69	42,30	18,93	217,03
P3	25,0	5,23	54,80	20,96	219,64
P4	20,2	15,09	74,90	74,85	371,53
P5	47,0	15,19	109,00	32,29	231,72
P6	45,6	9,42	122,00	20,67	267,66
P7	44,7	21,74	176,00	48,66	393,91
P8	46,4	9,47	140,00	20,43	302,05
P9	44,3	20,94	159,00	47,30	359,16
P10	45,9	24,89	183,00	54,19	398,43
P11	44,1	7,17	108,00	16,27	245,12
P12	45,0	29,59	208,00	65,78	462,43
P13	24,5	9,70	81,50	39,66	333,20
P14	19,2	9,42	68,90	48,99	358,29
P15	44,5	9,58	124,00	21,53	278,71
P16	43,7	11,49	142,00	26,31	325,17
P17	46,0	32,40	125,00	70,43	271,74
P18	46,0	8,91	122,00	19,37	265,22
P19	46,0	20,90	31,30	45,43	68,04
P20	46,0	12,20	140,00	26,52	304,35
P21	46,0	10,20	66,00	22,17	143,48
P22	46,0	9,75	135,00	21,20	293,48
P23	46,0	14,30	148,00	31,09	321,74
Min		3,69	31,30	16,27	68,04
Max		32,40	208,00	74,85	462,43
Median		10,20	122,00	26,52	293,48

Die Ergebnisse zeigten eine relativ starke Streuung der Urangelhalte (Tabelle 1). Beim Düngemitteltyp „Mineralischer Phosphordünger“ wurden Urangelhalte zwischen 31,3 und 208 mg Uran pro Kilogramm Dünger festgestellt. Der Median der untersuchten mineralischen Phosphordüngerproben lag bei 122 mg kg⁻¹. Bezogen auf den Phosphatgehalt ergaben sich deutlich höhere Werte. Die Gehalte lagen zwischen 68 und 462 mg kg⁻¹ P₂O₅, der Median lag bei 293 mg kg⁻¹ P₂O₅.

Tabelle 2: Gehalte an Uran und Cadmium in mineralischen NPK-Düngern

	P (%)	mg kg ⁻¹ Dünger		mg kg ⁻¹ P ₂ O ₅	
		Cadmium	Uran	Cadmium	Uran
MND1	8,0	8,10	41,40	101,25	517,50
MND2	25,0	10,05	83,80	40,20	335,20
MND3	20,0	9,50	58,80	47,50	294,00
MND4	10,0	4,97	33,70	49,70	337,00
MND5	46,0	12,65	20,20	27,50	43,91
MND6	18,7	3,29	29,90	17,61	160,06
MND7	23,8	10,54	85,40	44,38	359,58
MND8	13,8	6,84	54,30	49,49	392,91
MND9	13,2	1,35	13,70	10,24	103,87
MND10	12,0	8,96	48,90	74,67	407,50
MND11	12,1	3,35	28,80	27,66	237,82
MND12	14,7	6,94	64,00	47,34	436,56
MND13	5,2	2,88	20,70	55,92	401,94
MND14	15,5	3,83	33,30	24,74	215,12
MND15	13,8	6,45	65,50	46,60	473,27
MND16	9,8	0,06	0,20	0,61	2,04
MND17	10,2	0,05	1,10	0,49	10,79
MND18	5,2	0,51	5,30	9,86	102,51
MND19	2,9	0,07	< 0,1	2,39	
MND20	15,5	0,08	1,30	0,52	8,40
MND21	19,2	0,05	1,50	0,26	7,80
Min		0,05	0,20	0,26	2,04
Max		12,65	85,40	101,25	517,50
Median		3,83	31,60	27,66	265,91

Auch bei mineralischen Mehrnährstoffdüngern schwankten die Gehalte in einem weiten Bereich (Tabelle 2). Diese Düngemittel waren im Schnitt mit 31,6 mg Uran pro kg Dünger belastet, wobei die Gehalte zwischen 0,2 und 85,4 mg kg⁻¹ lagen. Bezogen auf den Phosphatgehalt ergab sich ein Median von 266 mg kg⁻¹ P₂O₅, der Gehaltsbereich lag zwischen 2 und 517 mg kg⁻¹ P₂O₅.

In organischen bzw. organisch-mineralischen Düngemitteln und Kultursubstraten wurden keine nennenswerten Mengen an Uran gefunden (Tabellen 3 und 4). In Rindergülle und Jauche war Uran praktisch nicht nachweisbar, in Mistproben wurden Gehalte zwischen 0,02 und 0,15 mg kg⁻¹ gefunden. Lediglich Geflügelmist zeigte mit 0,77 mg kg⁻¹ einen etwas höheren Gehalt (Tabelle 6). Ein relevanter Eintrag aus diesen Quellen ist daher nicht zu erwarten.

Tabelle 3: Gehalte an Uran und Cadmium in organisch mineralischen Düngern

	Cadmium	Uran
	mg kg ⁻¹	
org.min. Dünger 1	0,11	0,2
org.min. Dünger 2	0,06	0,2
org.min. Dünger 3	0,16	1,7
org.min. Dünger 4	0,11	0,3
org.min. Dünger 5	0,19	0,1
org.min. Dünger 6	0,02	0,1
org.min. Dünger 7	0,6	3
org.min. Dünger 8	0,06	0,2
org.min. Dünger 9	0,09	0,2
org.min. Dünger 10	0,04	0,1
org.min. Dünger 11	0,22	0,5
org.min. Dünger 12	0,18	0,5
Min	0,02	0,1
Max	0,6	3
Median	0,11	0,2

Tabelle 4: Gehalte an Uran und Cadmium in Kultursubstraten

	Cadmium	Uran
	mg kg ⁻¹	
Kultursubstrat 1	0,15	0,5
Kultursubstrat 2	0,09	0,2
Kultursubstrat 3	0,03	0,4
Kultursubstrat 4	0,07	1
Kultursubstrat 5	0,04	1,3
Kultursubstrat 6	0,07	< 0,1
Kultursubstrat 7	0,12	0,3
Kultursubstrat 8	0,06	0,6
Kultursubstrat 9	0,05	0,6
Kultursubstrat 10	0,05	1,7
Kultursubstrat 11	0,1	0,2
Kultursubstrat 12	0,05	0,1
Kultursubstrat 13	0,04	0,7
Kultursubstrat 14	0,04	0,2
Kultursubstrat 15	0,15	0,2
Kultursubstrat 16	0,15	0,4
Kultursubstrat 17	0,14	0,4
Kultursubstrat 18	0,14	0,4
Kultursubstrat 19	0,07	0,2
Kultursubstrat 20	0,21	0,4
Kultursubstrat 21	0,29	0,3

	Cadmium	Uran
	mg kg ⁻¹	
Kultursubstrat 22	0,22	0,4
Kultursubstrat 23	0,09	0,2
Kultursubstrat 24	0,12	0,4
Kultursubstrat 25	0,07	0,3
Kultursubstrat 26	0,06	0,3
Kultursubstrat 27	0,09	0,7
Min	0,03	0,1
Max	0,29	1,7
Median	0,09	0,4

Tabelle 5: Gehalte an Uran und Cadmium in Wirtschaftsdüngern

Material	Cadmium	Uran
	mg kg ⁻¹	
Rindergülle 1	< 0,01	< 0,01
Rindergülle 2	0,01	< 0,01
Rindergülle 3	0,02	< 0,01
Rindergülle 4	0,01	< 0,01
Rindergülle 5	0,02	< 0,01
Rindergülle 6	< 0,01	< 0,01
Rindergülle 7	0,02	< 0,01
Rindergülle 8	0,02	< 0,01
Rindergülle 9	< 0,01	< 0,01
Rindergülle 10	0,01	< 0,01
Rindergülle 11	< 0,01	< 0,01
Rindergülle 12	0,01	< 0,01
Rindergülle 13	0,01	< 0,01
Rottemist	0,07	0,11
Tretmistkompost	0,09	0,12
Stallmistkompost	0,09	0,15
Jauche 1	< 0,01	< 0,01
Jauche 2	< 0,01	< 0,01
Jauche 3	< 0,01	< 0,01
Jauche 4	0,01	< 0,01
Jauche 5	< 0,01	< 0,01
Jauche 6	< 0,01	0,09
Jauche 7	< 0,01	< 0,01
Rindergülle 14	0,01	< 0,01
Rindergülle 15	< 0,01	< 0,01
Schweinemist 1	0,03	0,02
Schweinemist 2	< 0,01	< 0,01
Geflügelmist	0,19	0,77

Tabelle 6: Überblick über die Cadmium- und Urangelhalte in Düngemitteln

	n	Uran (mg kg ⁻¹)			Uran (mg kg ⁻¹ P ₂ O ₅)		
		Min	Max	Med	Min	Max	Med
Mineralische Phosphordünger	23	31,3	208	122	68	462	294
Mineralische Mehrnährstoffdünger	21	0,2	85,4	31,6	2,0	517	266
Organisch- und organisch mineralische Dünger	12	0,1	3	0,2	n.a.	n.a.	n.a.
Kultursubstrate	27	0,1	1,7	0,4	n.a.	n.a.	n.a.
Wirtschaftsdünger	28	n.n.	0,77	0	n.a.	n.a.	n.a.

n.n. nicht nachweisbar

n.a. nicht analysiert

Der maximal zulässige Cadmiumgehalt von Düngemitteln bzw. die maximale Cadmium-Fracht sind in Österreich gesetzlich festgelegt. So dürfen in zwei Jahren höchstens 10 g/ha Cd ausgebracht werden. Bezogen auf die Trockenmasse beträgt der Grenzwert in Düngemitteln, Bodenhilfsstoffen und Pflanzenhilfsmitteln mit einem P₂O₅-Gehalt unter 5% 3 mg Cd /kg TM. Bei Düngemitteln mit einem Gehalt über 5% P₂O₅ wird der Cadmiumgehalt auf den P₂O₅ – Gehalt bezogen und darf 75 mg Cd /kg P₂O₅ nicht überschreiten. Es wurde nun geprüft, ob zwischen den Cadmium- und den Urangelhalten ein Zusammenhang besteht, sodass möglicherweise erhöhte Urangelhalte aufgrund der Cd-Grenzwerte von vornherein ausgeschlossen werden könnten. Abbildung 1 zeigt den Zusammenhang zwischen Cd- und U – Gehalten bezogen auf die Trockenmasse, Abbildung 2 mit Bezug auf den P₂O₅ – Gehalt.

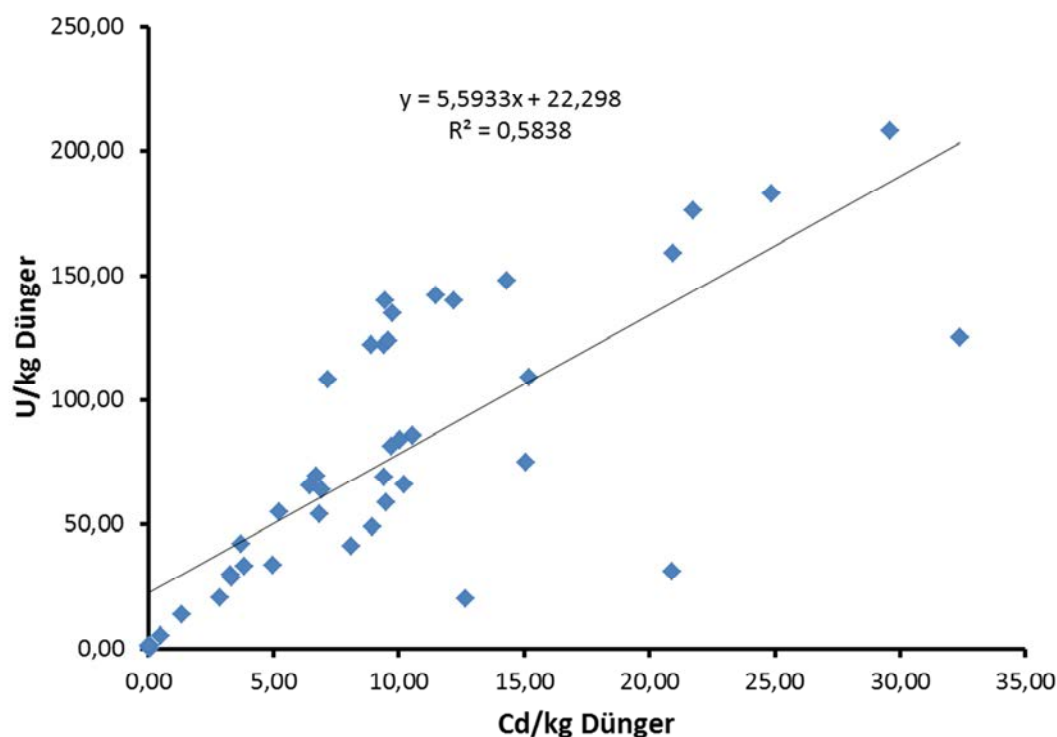


Abbildung 1: Korrelation zwischen Uran- und Cadmiumgehalt pro kg Düngemittel

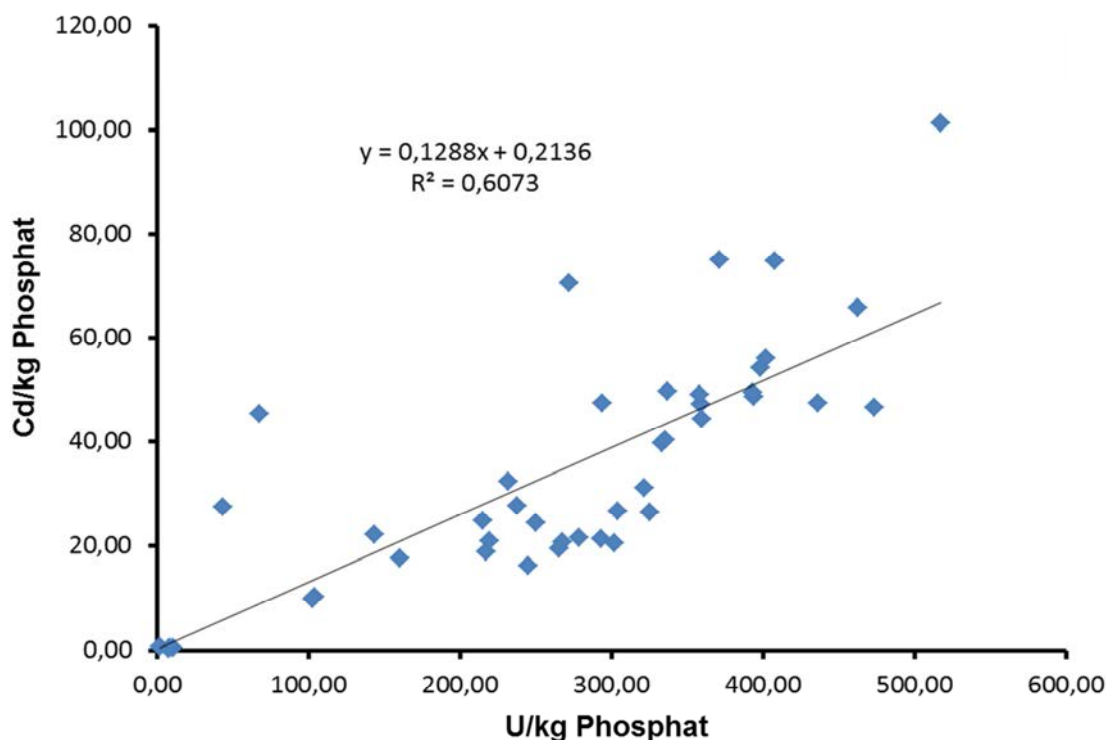


Abbildung 2: Korrelation zwischen Uran- und Cadmiumgehalt pro kg P_2O_5

Der Urangehalt beträgt im Schnitt etwa das 4- bis 5-fache des Cadmiumgehalts. Es zeigte sich, dass das Bestimmtheitsmaß für den Zusammenhang der Gehalte sowohl bezogen auf kg Düngemittel als auch auf kg Phosphat etwa 60% erreichte. Es ist somit zwar grundsätzlich eine gewisse Abhängigkeit gegeben, allerdings erscheint im Rahmen der Düngemittelüberwachung die Korrelation jedoch nicht eindeutig genug, um in allen Fällen aus dem Cd-Gehalt den Urangehalt ableiten zu können. Allerdings wurde bei der einzigen Probe mit einer Grenzwertüberschreitung bei Cadmium ($101 \text{ mg kg}^{-1} P_2O_5$) auch der höchste Urangehalt gemessen ($517 \text{ mg kg}^{-1} P_2O_5$).

Zusammenfassung

Relevante Urangehalte wurden lediglich in mineralischen Phosphat – und Mehrnährstoff - Düngemitteln gemessen. Die Werte schwankten in einem großen Bereich, bezogen auf den Phosphatgehalt wurden teilweise sehr hohe Urankonzentrationen festgestellt. Im Schnitt ist pro kg ausgebrachtem P-Dünger mit einem Eintrag von knapp 0,3 g Uran zu rechnen. Zur Berechnung von möglichen Frachten siehe Kapitel 7. Organische Dünger und Kultursubstrate waren nicht mit Uran belastet.

3 Uran in Böden und Kulturpflanzen

Um einen Überblick über die durchschnittlichen Gehalte von Uran in Böden und Hinweise auf eine mögliche anthropogene Beeinflussung zu erhalten, wurden Proben für unterschiedliche Nutzungsformen von Böden ausgewählt. Neben dem Urangehalt wurden, soweit möglich, auch weitere Parameter erfasst, für die ein möglicher Zusammenhang zum Urangehalt besteht. Dies waren einerseits der Gehalt an Phosphat (pflanzenverfügbar – P CAL und Königswasser löslich – P KW) und andererseits der Humusgehalt. Ein Zusammenhang zu hohen P-Gehalten könnte auf eine Beeinflussung des Urangehalts durch die Düngung mit Phosphat hinweisen. Die mögliche Adsorption von Uran an organische Substanz könnte durch eine Korrelation mit dem Humusgehalt gezeigt werden.

Nutzungsform Acker

Aus einem Probenkollektiv wurden Proben aus intensiv genutzten Ackerbauregionen der Bundesländer Niederösterreich, Oberösterreich und Burgenland ausgewählt. Die intensive Wirtschaftsweise manifestiert sich teilweise auch in den relativ hohen Phosphatgehalten (Tabelle 7). Es wurden sowohl Standorte auf Kalk als auch Silikat ausgewählt, um auch für den pH-Wert eine entsprechende Bandbreite zu gewährleisten.

Die Urangehalte lagen im Median bei 1,00 mg kg⁻¹ (Tabelle 7) und lagen damit unter dem für europäische Oberböden berichteten Wert von 2,03 mg kg⁻¹ (De Vos and Tarvainen, 2005).

Tabelle 7: Zusammenfassende Darstellung von pH-Wert, Humusgehalt, P CAL, P KW, Cadmium- und Urangehalt nach unterschiedlichen Nutzungsformen

Nutzung		pH-Wert	Humus %	P CAL mg kg ⁻¹	P KW mg kg ⁻¹	Cadmium mg kg ⁻¹	Uran mg kg ⁻¹
Acker	Min	5,38	1,5	6	335	0,02	0,35
	Max	7,78	8	359	2330	0,55	3,3
	Median	7,57	2,9	63	829	0,24	1
Grünland	Min	5,38	4,4			0,16	0,34
	Max	7,21	13,3			1,51	2,03
	Median	6,32	6,9			0,4	0,85
Weinbau	Min	7,00	1,4	78		0,12	0,68
	Max	7,65	4	341		0,26	1,36
	Median	7,39	3,1	176		0,21	0,96
Wald	Min	3,08	2,3	10	79,9	0,13	0,3
	Max	4,11	61,7	100	1000	1,21	3,73
	Median	3,49	23,9	18	776	0,27	0,65

Auch für Cadmium stellen Phosphatdünger einen möglichen Eintragungspfad dar. Es wurde daher auch für dieses Schwermetall mögliche Abhängigkeiten sowie eine mögliche Korrelation mit den Urangehalten im Boden untersucht. Die Gehalte der beiden Metalle im Boden waren voneinander unabhängig (Abbildung 3).

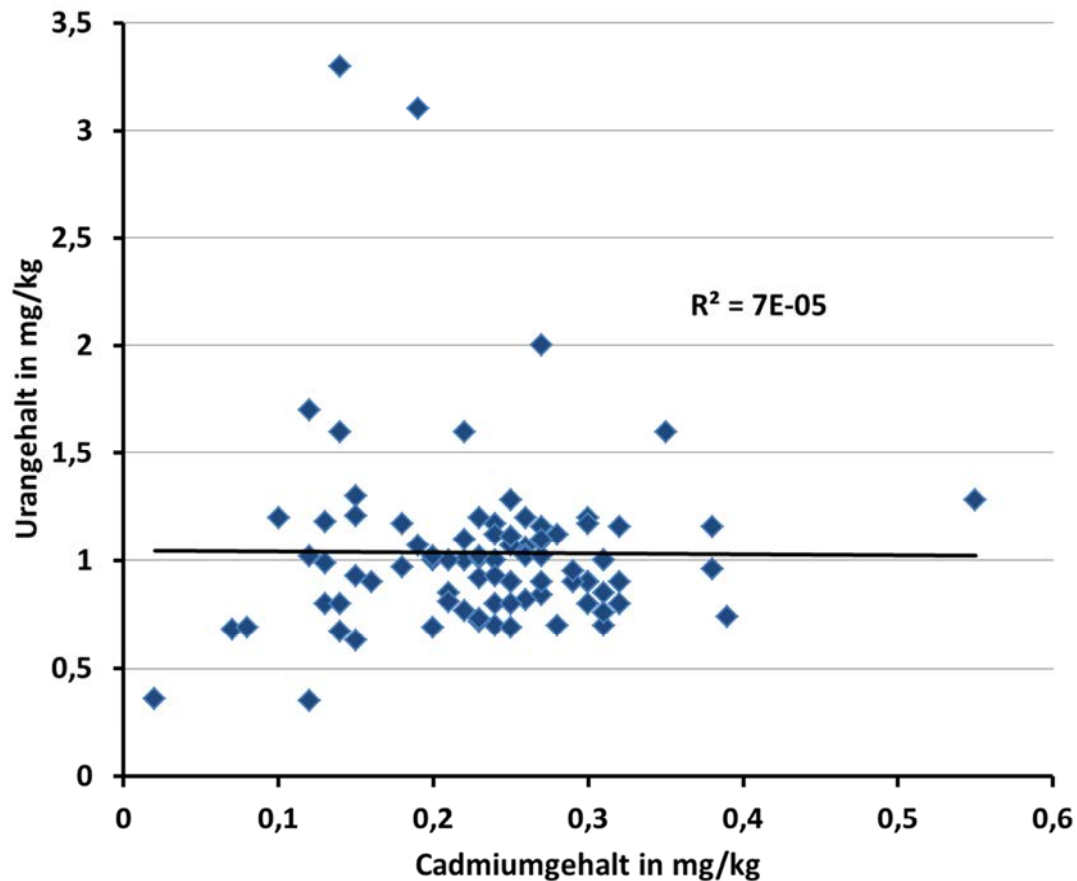


Abbildung 3: Zusammenhang zwischen dem Cadmiumgehalt und dem Urangehalt im Oberboden von Ackerstandorten

Es konnte weiters auch kein eindeutiger Zusammenhang zwischen dem Cadmium- bzw. dem Urangehalt und den Parametern Humus, P CAL und P KW festgestellt werden (Abbildungen 4 – 7). Auch zum pH-Wert ergab sich keine Abhängigkeit.

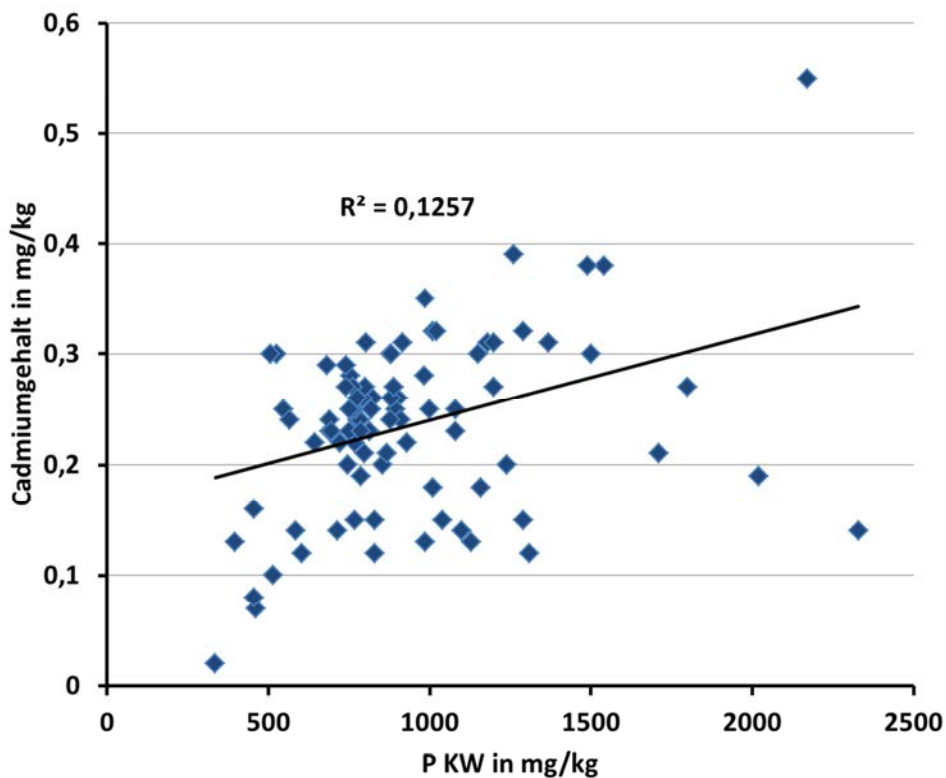


Abbildung 4: Zusammenhang zwischen dem Königswasser löslichen P-Gehalt (P KW) und dem Cadmiumgehalt im Oberboden von Ackerstandorten

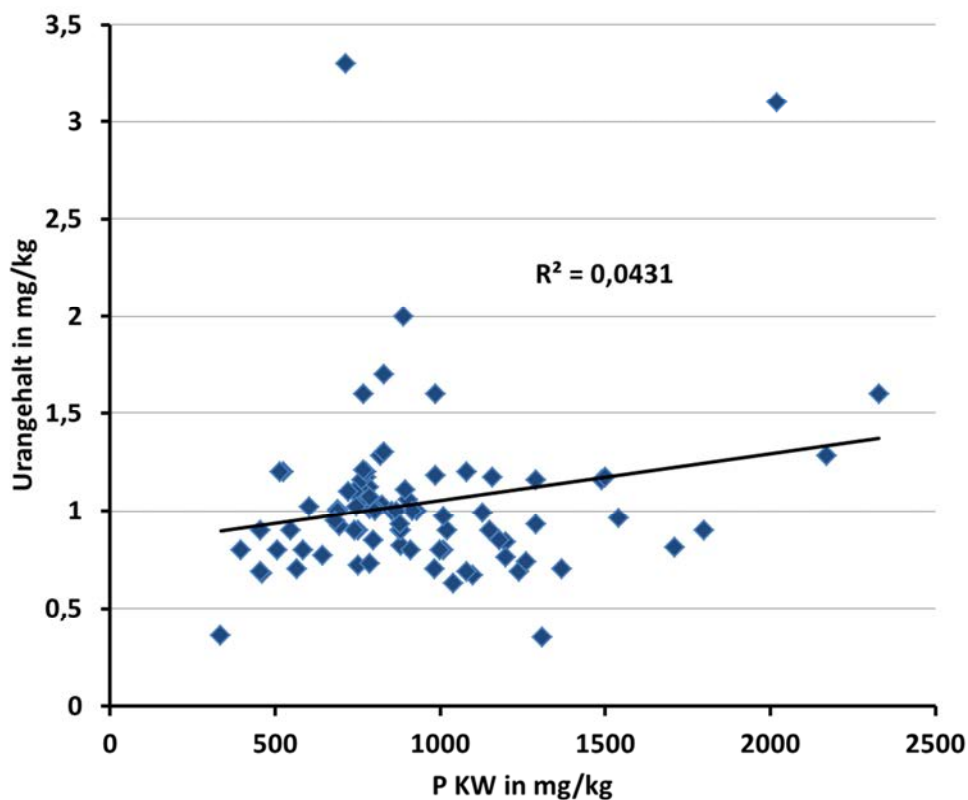


Abbildung 5: Zusammenhang zwischen dem Königswasser löslichen P-Gehalt (P KW) und dem Urangehalt im Oberboden von Ackerstandorten

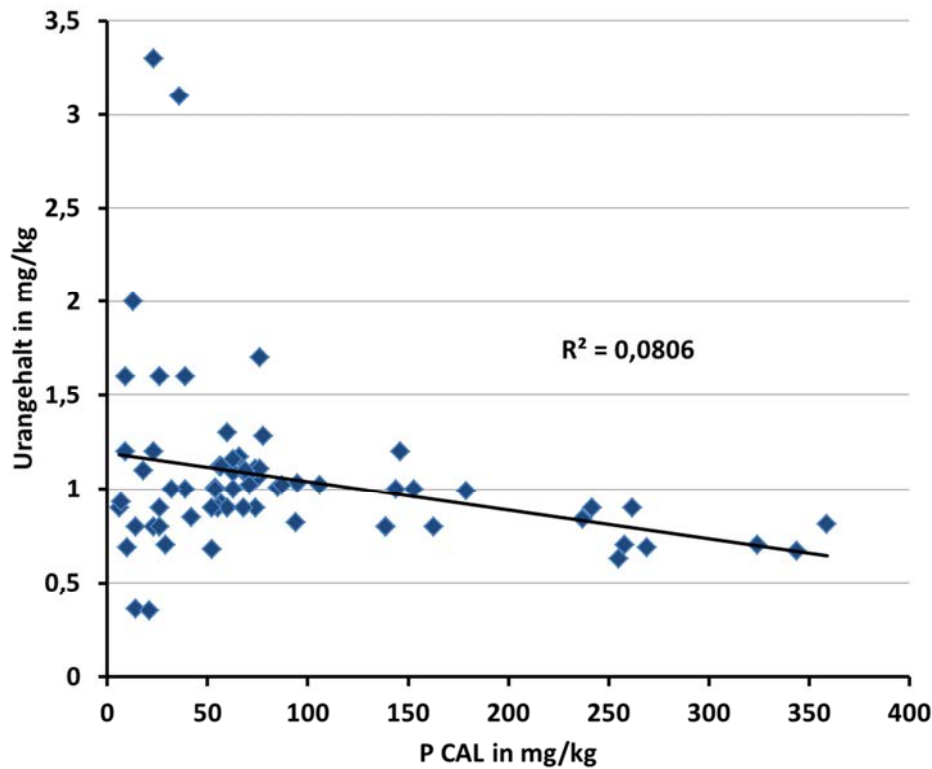


Abbildung 6: Zusammenhang zwischen dem pflanzenverfügbaren P-Gehalt (P CAL) und dem Urangehalt im Oberboden von Ackerstandorten

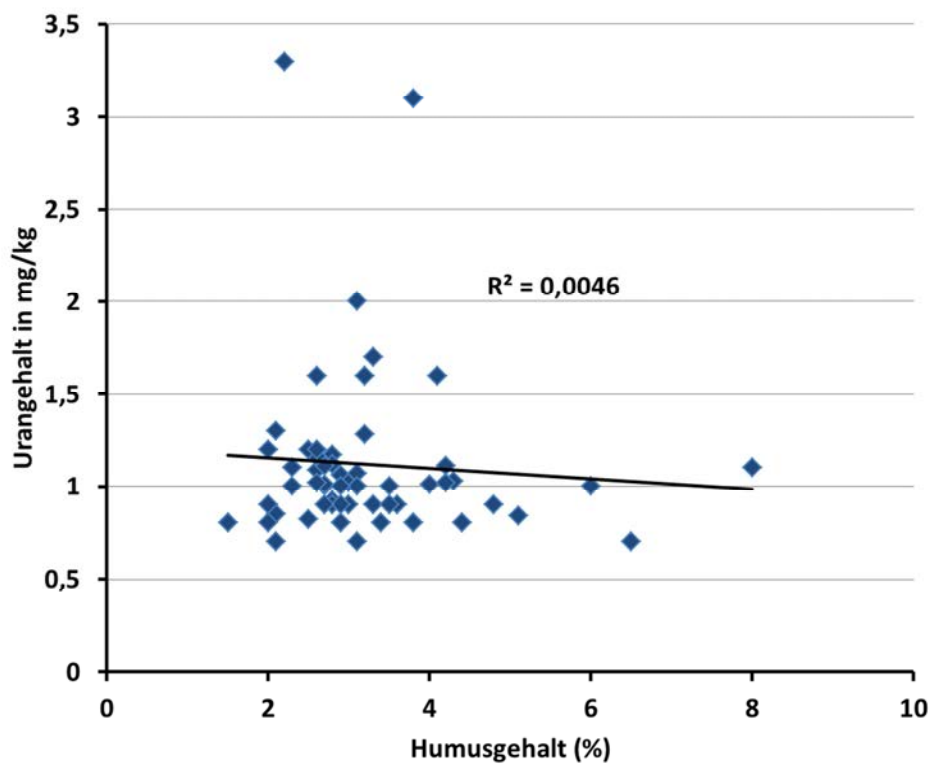


Abbildung 7: Zusammenhang zwischen dem Humusgehalt und dem Urangehalt im Oberboden von Ackerstandorten

Nutzungsform Grünland

Um die durchschnittlichen Urangelhalte von Grünlandstandorten festzustellen, wurden Standorte in Salzburg und der Steiermark untersucht. Sie lagen im Median bei $0,85 \text{ mg kg}^{-1}$ (Tabelle 7). Auch in diesem Fall konnte kein Zusammenhang zum Humusgehalt festgestellt werden (Abbildung 8). Für die untersuchten Standorte standen keine Analysen des P-Gehalts zur Verfügung.

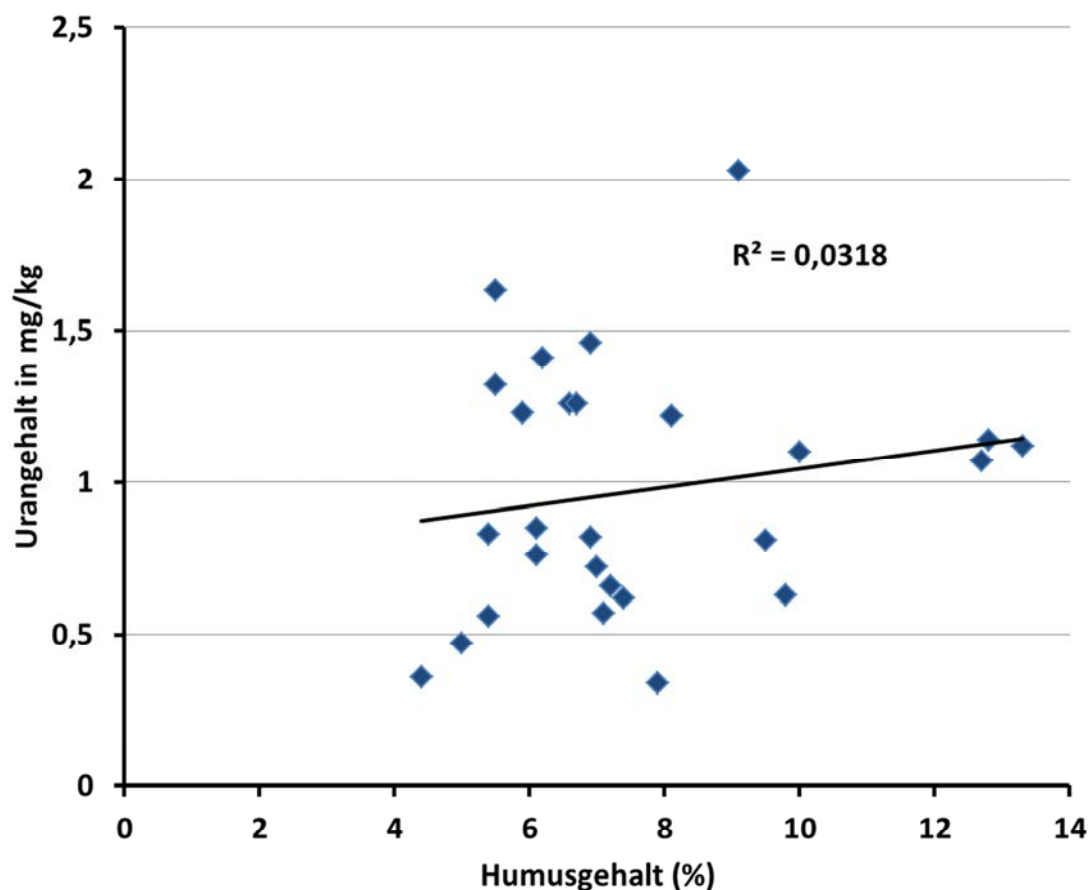


Abbildung 8: Zusammenhang zwischen dem Humusgehalt und dem Urangelgehalt im Oberboden von Grünlandstandorten

Nutzungsform Weingarten

Die Urangelhalte von Oberböden in Weingärten lagen im Median bei $0,96 \text{ mg kg}^{-1}$ und damit im Bereich der Acker- und Grünlandböden (Tabelle 7). Weingartenböden, die bereits langjährig kultiviert werden, sind im allgemeinen gut mit verfügbarem Phosphor versorgt, wobei zumeist ein deutlicher Gradient vom Oberboden zu den tiefer gelegenen Bodenschichten gegeben ist. An ausgewählten Standorten mit hohem P – Gehalt wurde überprüft, ob sich der Gradient im P-Gehalt auch im Urangelgehalt widerspiegelt und damit ein Zusammenhang zur Düngung hergestellt werden kann. Die Ergebnisse von Standorten in der Wachau (Bezeichnung „W“) und im Seewinkel (Bezeichnung „S“) mit Tiefenverlauf sind in Tabelle 8 wiedergegeben.

Tabelle 8: pflanzenverfügbare Gehalte an P (P CAL), Königswasser lösliche Gehalte an U und Cd auf Standorten mit hohem P-Gehalt im Oberboden

Profil	Tiefe (cm)		pH-Wert	P CAL mg kg ⁻¹	Cadmium mg kg ⁻¹	Uran mg kg ⁻¹
	von	bis				
W1	0	28	7,29	269	0,2	0,69
W1	28	70	7,53	255	0,15	0,63
W1	70	120	7,9	52	0,07	0,68
W2	0	30	7,35	344	0,14	0,67
W2	30	55	7,71	14	0,02	0,36
W2	55	120	7,82	21	0,12	0,35
W3	0	20	7,27	359	0,21	0,81
W3	20	50	7,58	179	0,13	0,99
W3	50	60	8,02	10	0,08	0,69
W3	60	80	7,91	7	0,15	0,93
W4	60	70	7,92	8	0,07	0,94
W4	70	105	7,87	2	0,1	0,94
W4	105	120	7,96	1	0,11	1,04
W5	0	20	7,35	207	0,14	0,69
W5	20	50	7,6	89	0,1	0,76
W5	50	70	7,66	5	0,11	0,75
W5	70	120	7,62	3	0,11	0,83
W6	0	10	7,49	192	0,12	1,36
W6	10	30	8,02	42	0,12	2,12
W6	30	80	8,17	44	0,08	2,28
W6	80	120	8,24	43	0,11	1,87
W7	0	20	7,31	187	0,21	0,96
W7	20	45	7,51	142	0,16	1,01
W7	45	60	7,74	83	0,12	0,86
W7	60	75	7,82	24	0,07	0,97
W8	0	20	7,46	341	0,2	1,28
W8	20	65	7,37	205	0,14	1,14
W8	65	120	7,56	11	0,06	0,56
W9	0	20	7,34	188	0,24	0,68
W9	20	50	7,49	179	0,22	0,5
W9	50	60	7,68	96	0,12	0,42
W9	60	120	7,92	4	0,05	0,36
W10	0	25	6,33	282	0,22	1,29
W10	25	75	7,52	182	0,06	0,86
W10	75	110	7,76	24	0,07	0,75
W11	0	10	7,3	349	0,23	0,94
W11	10	35	7,56	347	0,23	0,87
W11	35	72	8,03	109	0,15	0,89
W11	72	100	8,04	37	0,09	0,88

Profil	Tiefe (cm)		pH-Wert	P CAL mg kg ⁻¹	Cadmium mg kg ⁻¹	Uran mg kg ⁻¹
	von	bis				
W11	100	120	8,03	22	0,08	0,93
W12	0	15	7,19	325	0,21	0,7
W12	15	35	7,55	113	0,14	0,64
W12	35	120	7,85	39	0,12	0,71
W13	0	15	7,27	255	0,25	1,54
W13	15	65	7,58	132	0,16	1,7
W13	65	120	7,83	12	0,26	5,39
W14	0	15	7,03	235	0,26	1,1
W14	15	45	7,4	22	0,08	1,45
W14	45	110	7,67	19	0,31	1,37
W15	0	15	7,41	189	0,15	0,86
W15	30	55	7,86	38	0,1	0,97
W15	55	110	7,9	16	0,1	1
S1	0	30		85	0,19	1,02
S1	30	60	6,86	84	0,2	0,93
S2	0	30	7,42	103	0,22	0,88
S2	30	60	7,5	49	0,17	0,74
S2	60	90			0,08	0,42
S3	0	30	7,58	117	0,21	0,91
S3	30	60	7,7	82	0,19	0,9
S3	60	90	7,95	3	0,11	1,1
S4	0	30	7,26	288	0,22	1,16
S4	30	60	7,49	192	0,19	1,02
S4	60	90			0,09	0,46
S5	0	30	7,25	216	0,18	0,78
S5	30	60	7,37	164	0,17	0,77
S5	60	90			0,1	0,45
S6	0	30	7,65	176	0,24	0,97
S6	30	60	7,72	65	0,21	0,89
S6	60	90	7,9	5	0,09	0,83
S7	0	30	7,53	164	0,23	0,97
S7	30	60	7,68	77	0,21	1,09
S7	60	90	7,89	10	0,11	1,36
S8	0	30	7,35	79	0,26	0,96
S8	30	60	7,62	20	0,18	0,87
S8	60	90	7,84	5	0,11	0,83
S9	0	30	7,47	78	0,21	0,69
S9	30	60	7,65	13	0,15	0,71
S9	60	90	7,88	2	0,11	0,92
S10	0	30	7	107	0,21	0,68
S10	30	60	7,02	102	0,21	0,7

Ein Tiefengradient vergleichbar dem für Phosphor konnte nicht festgestellt werden. Während die Gehalte an Phosphor im Unterboden im Mittel bei 47% der Gehalte im Oberboden lagen, ergab sich für Uran ein Mittelwert von 105%. Dem entsprechend ergab sich auch keine Beziehung zwischen den beiden Parametern (Abbildung 9). An einigen Standorten lag der Gehalt an Uran im Unterboden deutlich über dem des Oberbodens, was eventuell als Hinweis auf einen geogenen Einfluss gewertet werden kann.

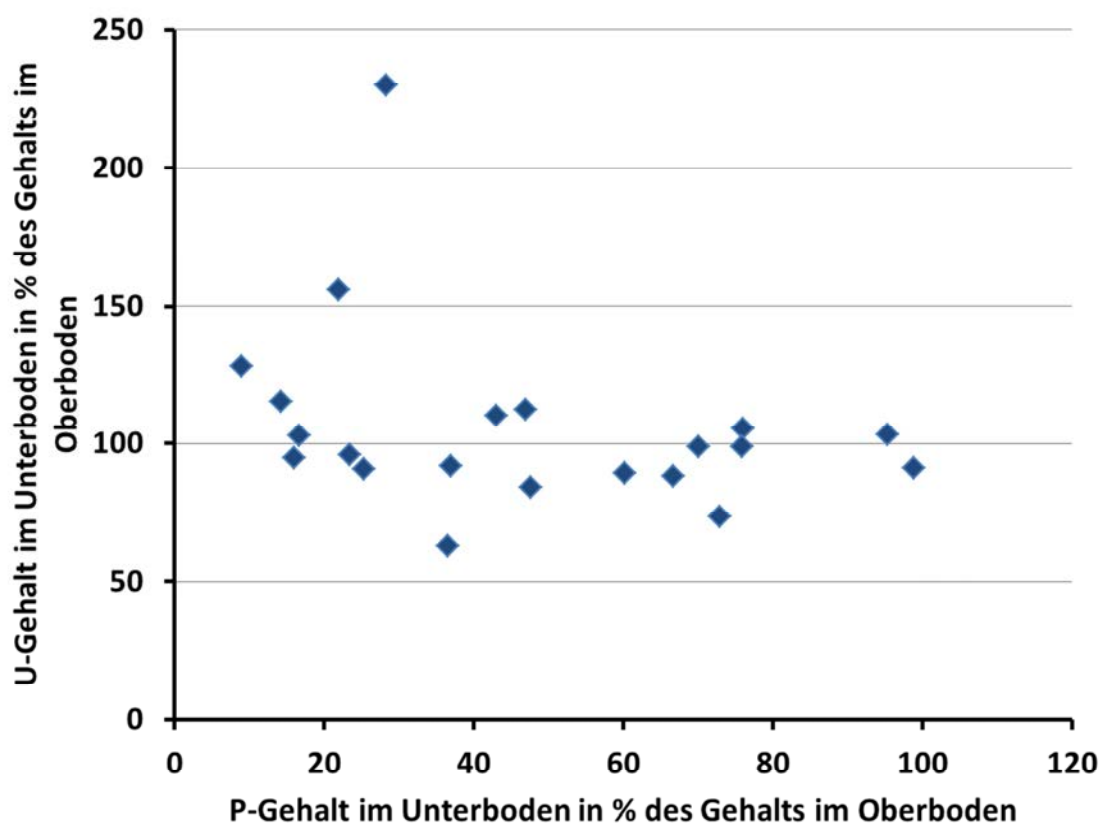


Abbildung 9: Gehalte an Phosphor und Uran in Weingartenböden im Unterboden relativ zum Gehalt im Oberboden

Gehalte an ausgewählten Standorten im Seewinkel

Im Rahmen der Gewässerzustandsüberwachung wurden an einigen Messstellen im Seewinkel Werte über $15 \mu\text{g L}^{-1}$ Uran im Grundwasser festgestellt. Um einen Zusammenhang zu möglichen Belastungen des Bodens zu untersuchen, wurden Bodenproben auf landwirtschaftlich genutzten Flächen aus unterschiedlichen Tiefen entnommen und analysiert. Eine detaillierte Darstellung der Ergebnisse und eine eingehende Diskussion sind im Kapitel 8 „Grundwassersituation Seewinkel“ wiedergegeben. An insgesamt 50 Standorten wurden die Gehalte im Oberboden (Abbildung 10; Entnahmetiefe zwischen 0 und 30 cm), an 34 Standorten im Unterboden (Abbildung 11; Entnahmetiefe 30 – 60 cm und 60 – 90 cm; diese unterschiedlichen Tiefen sind in der Darstellung nicht differenziert) untersucht.

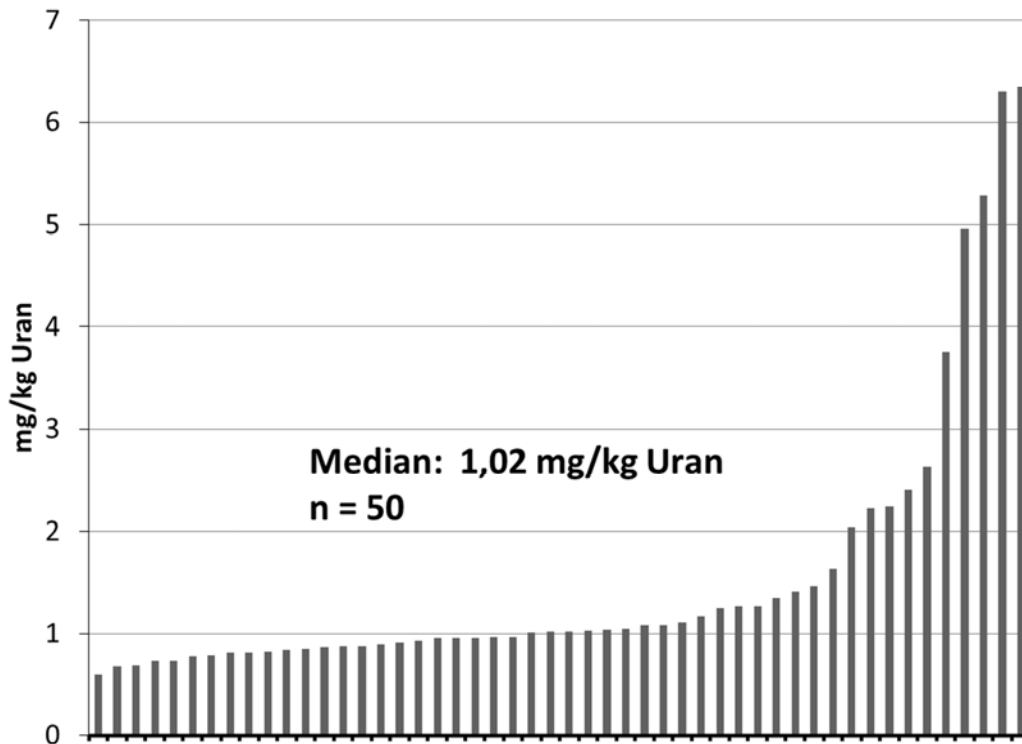


Abbildung 10: Urangelhalte im Oberboden ausgewählter Standorte im Seewinkel

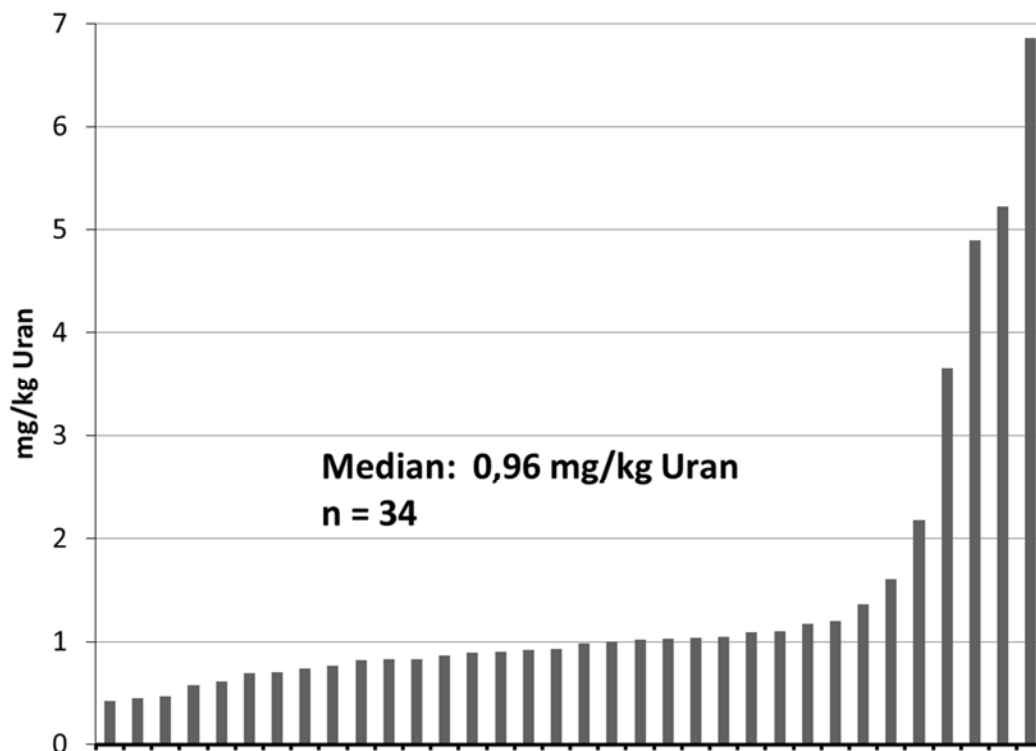


Abbildung 11: Urangelhalte im Unterboden ausgewählter Standorte im Seewinkel

An einigen Standorten, die räumlich dem Hanság zugeordnet werden konnten, wurden erhöhte Gehalte an Uran ($> 3\text{mg kg}^{-1}$) festgestellt. Für diese Standorte ergab sich keine Tiefendifferenzierung, mögliche Ursachen für diese Werte werden im Kapitel 8 „Grundwassersituation Seewinkel“ diskutiert.

Gehalte im Großglocknergebiet

Um den Einfluss von landwirtschaftlicher Produktion gänzlich auszuschließen, wurden abschließend einige Proben, die im Rahmen einer bodenkundlichen Exkursion ins Großglocknergebiet gezogen wurden, analysiert. Die Lage der Profilstellen ist in Abbildung 12, die pH-Werte, TOC-Gehalte sowie die Gehalte an Cadmium und Uran sind in Tabelle 9 wiedergegeben.

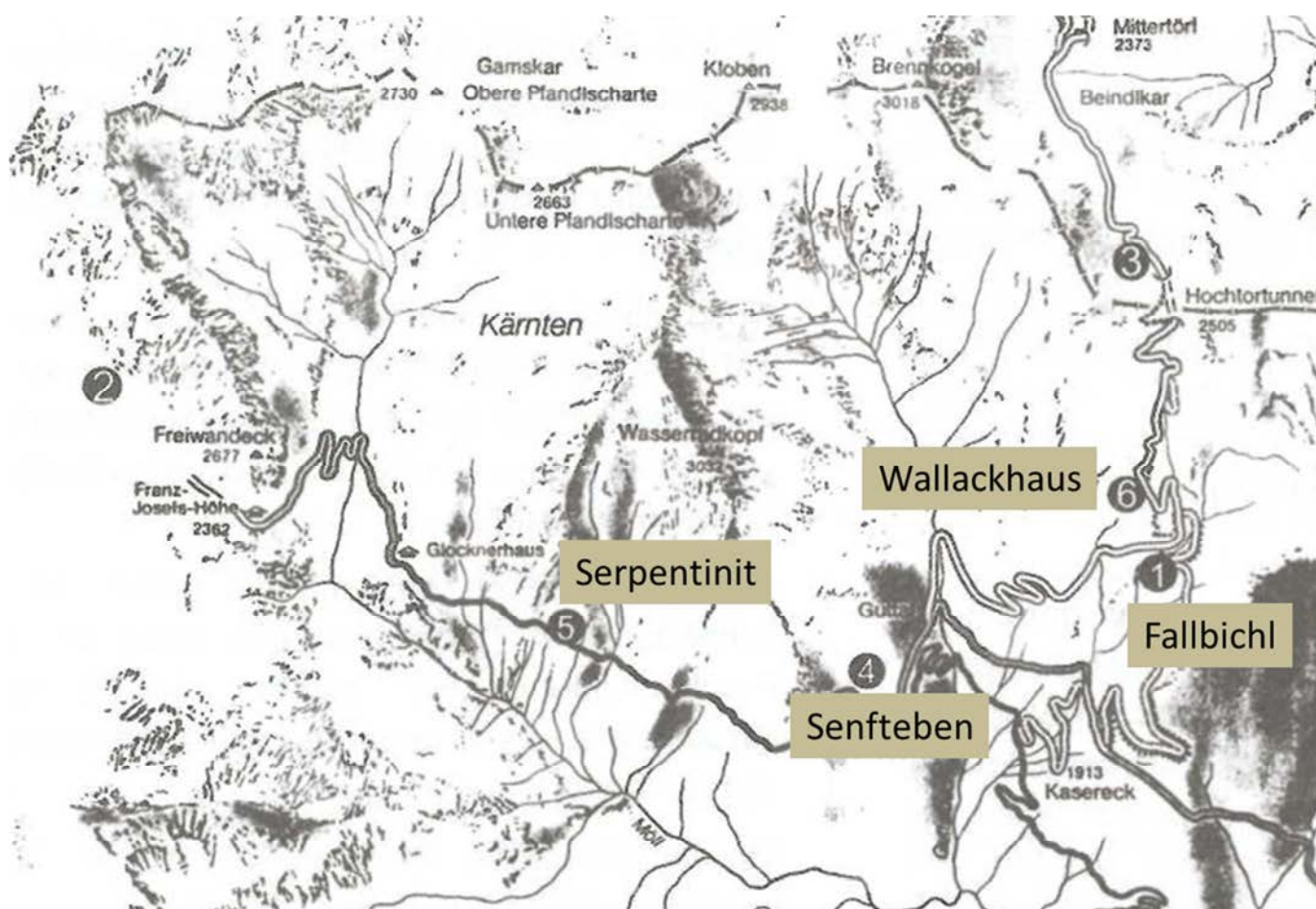


Abbildung 12: Lage der analysierten Profilstellen im Glocknergebiet (aus: Exkursionsführer München 2015, Band 117 der Mitteilungen der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft)

Tabelle 9: pH-Wert, TOC-Gehalt sowie Gehalt an Cadmium und Uran ausgewählter Standorte im Großglocknergebiet:

	Tiefe cm	pH-Wert	TOC %	Cadmium mg kg ⁻¹	Uran mg kg ⁻¹
Serpentinit	0 - 12	6,1	4,18	0,19	0,22
	12 - 20	5,4	4,63	0,19	0,2
Wallackhaus	0 - 3	5,6			
	3 - 8	4,2	2,65	0,12	0,63
	8 - 13	4,3	1,51	0,11	0,8
	13 - 27	4,5	0,68	0,11	0,92
	27 - 40	4,7	0,46	0,13	0,94
	40 - 50+	4,8	0,77	0,13	1,16
Fallbichl	0 - 10	3,9	6,96		
	10 - 15	4,3	1,36	0,1	1,39
	15 - 25	4,7	0,67	0,11	1,45
	25 - 35	6,2	0,59	0,3	1,98
	35 - 45+	7,4	0,2	0,1	1,28
Senfteben	0 - 8	6,0	3,96	0,32	0,66
	8 - 18	5,8	0,75	0,52	0,84
	17 - 28	6,6	0,41	0,84	1,04
	28 - 40+	7,8	0,11	0,2	0,45

Die verschiedenen Standorte zeigten deutlich unterschiedliche Urangelhalte, dies dürfte auf die Ausgangsmaterialien der Bodenbildung zurückzuführen sein. Die am Serpentinitstandort mit einem typischen Moder – Ranker zu erwartenden hohen Gehalte an Nickel und Chrom (760 mg kg⁻¹ Ni; 1530 mg kg⁻¹ Cr) spiegeln sich nicht im Cadmium- und Urangelhalt wieder. Der Standort Wallackhaus liegt auf Glimmerschiefer, der Boden ist als Haftnässe – Pseudogley mit kolluvialem Einfluss ausgebildet. Alle Schwermetallgehalte lagen an diesem Standort im niedrigen Bereich. Der Standort Fallbichl mit einem Hangnässe-Pseudogley auf Jungmoränenmaterial zeigte etwas erhöhte Uranwerte, die allerdings auch im Bereich der durchschnittlich ermittelten Gehalte der anderen Nutzungsformen lagen. Die Gehalte der anderen Schwermetalle lagen aber wiederum im niedrigen Bereich. Das Profil Senfteben, eine carbonatfreie typische Braunerde aus Sedimenten von verwittertem carbonathaltigen Bündner Schiefen und Anteilen von Serpentinit lässt im Unterboden erhöhte Gehalte an Nickel erkennen, der Urangelhalt liegt aber erneut im niedrigen Bereich.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass die Urangelhalte im Bereich der in landwirtschaftlich genutzten Böden gemessenen Werte lagen. Dies kann auch als Hinweis dafür gelten, dass diese Werte den natürlichen „Hintergrund“ für Urangelhalte in Böden darstellen. Es scheint, dass der Urangelhalt im Wesentlichen durch das Ausgangsmaterial beeinflusst wird. Dies deckt sich mit den Ergebnissen von Liesch et al. (2015), die vor allem bei relativ hohen Urangelhalten im Grundwasser eine Dominanz der Beeinflussung durch geologische Faktoren konstatierten. Lediglich Schwankungen im niedrigen Konzentrationsbereich konnten mit einer landwirtschaftlichen Nutzung in Verbindung gebracht werden.

Langzeitfeldversuche der AGES

Um den Einfluss langjähriger P-Düngung auf den Urangehalt des Bodens zu überprüfen, wurden Ober- und Unterböden von AGES Phosphor-Dauerdüngungsversuchen auf Urangehalte getestet.

Die Langzeit P Düngungsversuche („P-Formen“) wurden 1954 und 1956 in Rottenhaus (Alpenvorland) und Fuchsenbigl (Marchfeld) mit unterschiedlichen Düngern (u.a. Superphosphat und Thomasphosphat) in 3 Düngungsstufen (0, 44 und 175 kg P entsprechend 0, 100, 400 kg P₂O₅ ha⁻¹a⁻¹) im ungeordneten Block mit 5 Wiederholungen angelegt. Die Versuche wurden 2004 stillgelegt (begrünt) und 2011/2012 wieder kultiviert. Von den genannten Parzellen wurden im Herbst 2011 in 0-25 cm und 25-50 cm Bodentiefe Bodenproben genommen und auf allgemeine Bodenparameter sowie auf Königswasserlösliche Elementgehalte untersucht. 2012 wurden von allen Versuchsvarianten Kartoffelproben und 2013 Winterweizenproben auf Uran-Gehalte untersucht. Zusätzlich wurden die Auswirkungen langjähriger Superphosphat Düngung in einem weiteren Versuch („P-Vorrat“) auf zwei verschiedenen Standorten, Rutzendorf (Marchfeld) und Grabenegg (Alpenvorland), untersucht. Bodenproben wurden 2012 in zwei Tiefenstufen (0-25 cm und 25-50 cm) gezogen und analysiert.

Die P-Vorrat-Versuche wurden im Marchfeld 1982 und im Alpenvorland 1986 als P-Düngungsversuche mit jeweils 4 Wiederholungen angelegt. Die Parzellengröße beträgt 32x6 m (Marchfeld) und 30x7,5 m (Alpenvorland). Die P-Aufwandstufen sind 0, 33, 66, 131 kg P ha⁻¹ a⁻¹. Die Ernterückstände wurden auf dem Feld belassen, die N und K Düngung erfolgte nach den Richtlinien der sachgerechten Düngung (BMLFUW 2006).

Tabelle 10: Allgemeine Bodenparameter der P-Düngungsversuche (Mittelwerte der Nullparzellen, 0-25 cm): P-Formen Versuch – Fuchsenbigl (Marchfeld), Rottenhaus (Alpenvorland); P-Vorrat Versuch – Rutzendorf (Marchfeld), Grabenegg (Alpenvorland)

Standort	pH	Corg %	P CAL mg kg ⁻¹	K CAL mg kg ⁻¹	Nt %	C/N	N nachl. mg kg ⁻¹ 7d ⁻¹	S/U/L %	Bodenart
Fuchsenbigl	7,6	1,57	81	120	0,15	10,7	36	40/42/18	sL
Rottenhaus	6,4	1,69	12,2	76,2	0,23	7,4	49	3/67/30	zL
Rutzendorf	7,7	2,19	67	278	0,21	10,3	40	26/52/23	sL
Grabenegg	5,6	0,96	26	155	0,11	8,7	33	7/77/16	lZ

Versuchsergebnisse Düngungsversuche „P-Formen“

Tabelle 11 : Auswirkungen langjähriger (1956-2004) unterschiedlicher Superphosphat Düngung auf Königswasser-lösliche Uran- (U), Phosphor- (P) und Cadmiumgehalte (mg kg^{-1}) im Boden (0-25cm) in Fuchsenbigl (Marchfeld), 2012; Signifikanz für $p \leq 0,05$

Variante	U			P			Cd		
	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$
keine P-Düngung „Zero P“	0,94	100	a	810	100	a	0,20	100	a
P1: Super P 44 kg P ha^{-1}	1,02	109	a	895	110	a	0,21	105	ab
P2 Super P 175 kg P ha^{-1}	1,26	134	b	1224	151	b	0,25	125	b

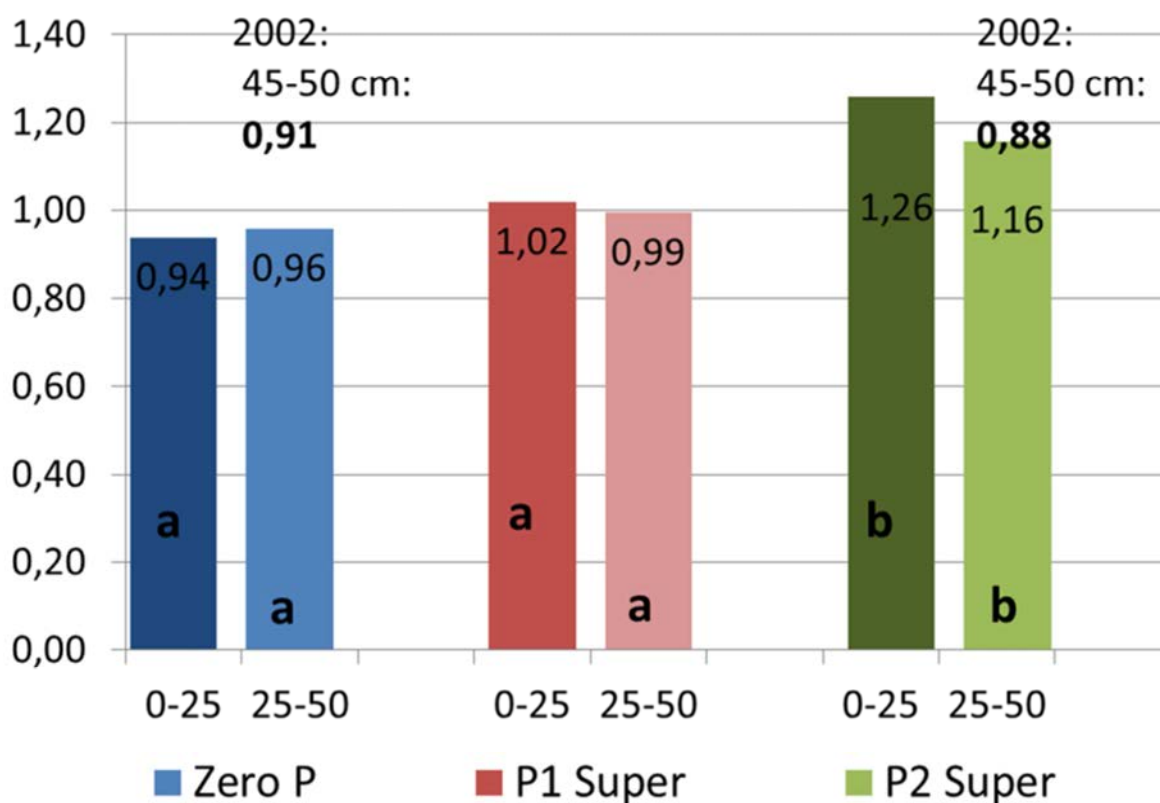


Abbildung 13: Auswirkungen langjähriger (1956-2004) unterschiedlicher P Düngung auf Königswasser-lösliche Uran (U) Gehalte (mg kg^{-1}) in 0-25cm und 25-50 cm in Fuchsenbigl (Marchfeld), 2012

Tabelle 12: Auswirkungen langjähriger (1956-2004) unterschiedlicher Superphosphat Düngung auf Königswasser-lösliche Uran- (U), Phosphor- (P) und Cadmiumgehalte (mg kg^{-1}) im Boden (0-25cm) in Rottenhaus (Alpenvorland), 2012; Signifikanz für $p \leq 0,05$

Variante	U			P			Cd		
	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$	mg kg^{-1}	%	$p \leq 0,05$
keine P-Düngung "Zero-P"	0,90	100	a	707	100	a	0,23	100	a
P1 Super P 44 kg P ha^{-1}	1,03	114	a	885	125	b	0,25	109	a
P2 Super P 175 kg P ha^{-1}	1,23	137	b	1200	170	c	0,26	113	a

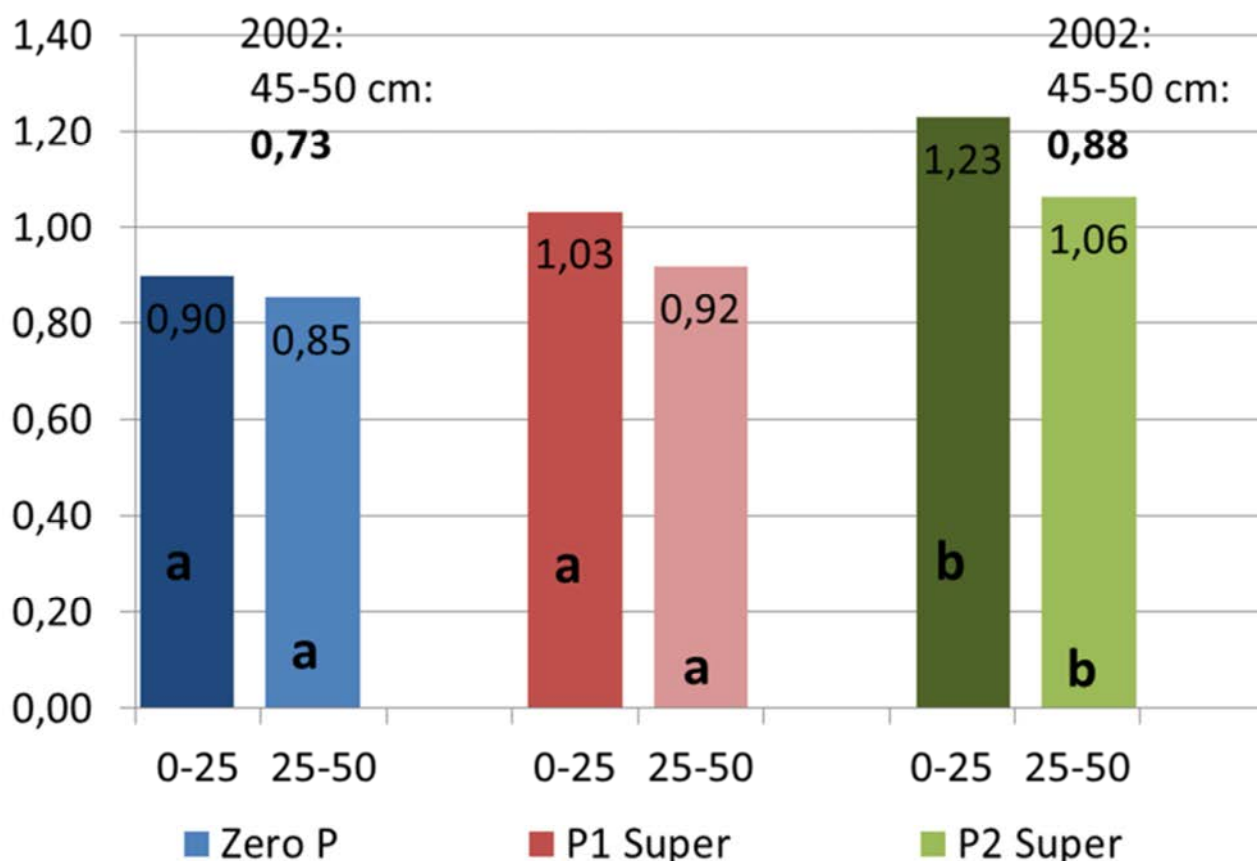


Abbildung 14: Auswirkungen langjähriger (1954-2004) unterschiedlicher P Düngung auf Königswasser-lösliche Uran (U) Gehalte (mg kg^{-1}) in 0-25cm und 25-50 cm in Rottenhaus (Alpenvorland), 2012

Nach (über) 50-jähriger mineralischer Super-Phosphatdüngung mit 44 kg P bzw. $100 \text{ kg P}_2\text{O}_5$ pro ha und Jahr (diese Gaben liegen deutlich über den aktuell geltenden Düngeempfehlungen von ca. 22 kg P bzw. $50 \text{ kg P}_2\text{O}_5$ pro Hektar und Jahr) lag der Urangelgehalt in der Bearbeitungsschicht bis 25 cm um etwa $0,10 \text{ mg kg}^{-1}$ höher als in der ungedüngten Kontrolle (Tabelle 11 und 12 sowie Abbildung 13 und 14).

Diese Steigerung ist statistisch nicht signifikant. Lediglich nach langjährig stark überhöhter Superphosphatdüngung („worst case scenario“) war - verglichen mit der Nulldüngungsvariante - auch noch 8 Jahre nach Düngungsstopp ein statistisch signifikanter Anstieg der Urangelhalte im Oberboden (0-25 cm) um ca. 0,32 mg kg⁻¹ nachweisbar. Ebenso kam es in der Tiefenstufe 25-50 cm in der (unrealistisch) hoch gedüngten Variante zu statistisch signifikanten U Anreicherungen verglichen mit der nicht P gedüngten Kontrolle (Abbildung 13 und Abbildung 14). Dies dürfte auf eine (vorübergehende) Pflugtiefe von mehr als 25 cm und Einbringen von Oberbodenmaterial in die darunterliegende Bodenschicht zurückzuführen sein. Eine Untersuchung von Archivproben aus dem Jahr 2002 (Abbildung 13 und Abbildung 14) zeigte, dass eine Verlagerung von Uran in den tieferen Unterboden (Bodenschicht von 45 – 50 cm) auf keinem der unterschiedlichen Versuchsstandorte feststellbar war, selbst nicht bei den unrealistisch hohen mineralischen Phosphor-Gaben.

Die Analyse von Kartoffelknollen-Proben (2012) und Winterweizenkorn-Proben (2013) von beiden Versuchen ergab, dass eine Aufnahme von Uran in keinem Fall nachweisbar war (U-Konzentrationen <0,0005 mg kg⁻¹ TM).

Versuchsergebnisse Düngungsversuche „P-Vorrat“

Tabelle 13 : Auswirkungen langjähriger (1982-2012) unterschiedlicher Superphosphat-Düngung auf Königswasser lösliche Uran- (U), Phosphor- (P) und Cadmiumgehalte (mg kg⁻¹) in 0-25cm und 25-50 cm in Rutzendorf, Marchfeld, 2012

Variante	Tiefe (cm)	U			P			Cd		
		mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05	mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05	mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05
0	0-25	1,07	100	a	826	100	a	0,26	100	a
33 kg P	0-25	1,11	104	a	988	120	b	0,27	104	a
66 kg P	0-25	1,26	118	b	1145	139	c	0,29	109	b
131 kg P	0-25	1,44	134	c	1465	177	d	0,32	124	c
0	25-50	0,99	100	a	703	100	a	0,22	100	a
33 kg P	25-50	1,03	104	a	761	108	ab	0,23	102	a
66 kg P	25-50	1,05	106	a	797	123	ab	0,23	102	a
131 kg P	25-50	1,17	118	b	919	161	b	0,24	108	a

Nach 31 Jahren sind in Rutzendorf (Marchfeld) die Urankonzentrationen im Oberboden mit höheren P-Düngungsmengen (66 und 131 kg P ha⁻¹a⁻¹) signifikant angestiegen, nicht aber in der praxisnahen 1. Düngungsstufe. Signifikante Anreicherungen im Unterboden treten nur in der unrealistisch hohen Düngungsstufe („worst case scenario“) auf. Auch Cd zeigt signifikante Anstiege in den zwei höheren Düngungsstufen in 0-25 cm, nicht aber in 25-50 cm.

Tabelle 14: Auswirkungen langjähriger (1986-2012) unterschiedlicher P Düngung auf Königswasserlösliche Uran- (U), Phosphor- (P) und Cadmiumgehalte (mg kg⁻¹) in 0-25cm und 25-50 cm in Grabenegg, Alpenvorland, 2012

Variante	Tiefe (cm)	U			P			Cd		
		mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05	mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05	mg kg ⁻¹	%	P≤ 0,05
0	0-25	1,27	100	a	747	100	a	0,26	100	a
33 kg P	0-25	1,38	109	b	910	122	b	0,27	104	a
66 kg P	0-25	1,52	120	c	1068	143	c	0,29	112	ab
131 kg P	0-25	1,72	135	d	1335	179	d	0,33	125	b
0	25-50	1,21	100	a	684	100	a	0,22	100	a
33 kg P	25-50	1,30	107	b	786	115	ab	0,23	102	a
66 kg P	25-50	1,32	109	b	823	120	b	0,23	102	a
131 kg P	25-50	1,40	115	c	984	144	c	0,24	108	a

In Grabenegg (Alpenvorland) liegen die Urankonzentrationen etwas höher als im Marchfeld, die prozentuellen Steigerungen mit steigenden P-Düngermengen sind sehr ähnlich. An diesem Standort treten sowohl im Oberboden (0-25 cm) als auch im Unterboden (25-50 cm) geringfügige, aber statistisch signifikante Anreicherungen von Uran mit der P-Düngung auf (auch mit der praxisnahen Düngungsaufwandmenge von 33 kg P ha⁻¹a⁻¹). Die Erhöhung der U-Konzentrationen im Unterboden steht im Gegensatz zu Ergebnissen von anderen deutschen bzw. mitteleuropäischen Langzeitfeldversuchen (z.B. Rogasik et al., 2008).

Tabelle 15: Erhöhungen der U-Konzentrationen mit P-Düngung in mg kg^{-1} Boden und Jahr, P-Gesamteinträge und rechnerische Erhöhung der U Vorräte (g U ha^{-1}) mit unterschiedlicher Superphosphat-Düngung, Bodenanalysen 2012

Versuchsstandort Versuchsdauer	Jährliche P-Düngemenge in kg P ha^{-1}	Tiefenstufe	Erhöhung der U Konzentrationen (gegenüber 0 P) in mg kg^{-1} Boden	Jährliche Zunahme der U Konzentrationen (gegenüber 0 P) in $\text{mg kg}^{-1} \text{a}^{-1}$	Gesamteintrag kg P	rechnerische Zunahme in g U ha^{-1} und Tiefenstufe (Lagerungsdichte $1,5 \text{ g cm}^{-3}$)	rechnerische Zunahme in g U ha^{-1} 0-50 cm
Fuchsenbigl P-Formen 1956-2004	44	0-25	0,08	0,002	2156	300	413
		25-50	0,03	0,001		113	
	175	0-25	0,32	0,007	7527	1200	1950
		25-50	0,20	0,004		750	
Rottenhaus P-Formen 1954-2004	44	0-25	0,13	0,003	2244	488	750
		25-50	0,07	0,001		263	
	175	0-25	0,33	0,007	8008	1238	2025
		25-50	0,21	0,004		788	
Rutzendorf P-Vorrat, 1982-2012	33	0-25	0,04	0,001	1015	150	300
		25-50	0,04	0,001		150	
	66	0-25	0,19	0,006	2029	713	938
		25-50	0,06	0,002		225	
	131	0-25	0,37	0,012	4059	1388	2063
		25-50	0,18	0,006		675	
Grabenegg P-Vorrat, 2012 1986-2012	33	0-25	0,11	0,004	884	413	750
		25-50	0,09	0,003		338	
	66	0-25	0,25	0,009	1767	938	1350
		25-50	0,11	0,004		413	
	131	0-25	0,45	0,017	3535	1688	2400
		25-50	0,19	0,007		713	

Die in Tabelle 15 ausgewiesenen Steigerungen der U Konzentrationen im Oberboden (gesamt und pro Jahr) entsprechen Werten von P Düngungsversuchen in Deutschland bzw. Mitteleuropa (Rogasik et al., 2008; Liesch et al., 2015).

Tabelle 16: Durchschnittliche rechnerische U-Konzentrationen der verwendeten P Düngemittel in der höchsten P Düngungsstufe (175 bzw. 131 kg P ha⁻¹ a⁻¹) in g U pro kg P und im Durchschnitt der verwendeten Düngerstufen (mg U pro kg P₂O₅)

Versuch	rechnerische U Konzentrationen in der höchsten Düngerstufe (175 bzw. 131 kg P ha ⁻¹ a ⁻¹)	rechnerische U Konzentrationen im Durchschnitt der verwendeten Düngerstufen
	g pro kg P	mg pro kg P ₂ O ₅
P-Formen Marchfeld/Fuchsenbigl	0,26	98
P-Formen Alpenvorland/Rottenhaus	0,25	128
P-Vorrat Marchfeld/Rutzendorf	0,51	184
P-Vorrat Alpenvorland/Grabeneegg	0,68	333

Die Tabelle 16 zeigt die aufgrund der rechnerisch ermittelten Urananreicherung in der Tiefe 0-50 cm abgeleiteten U-Konzentrationen der verwendeten P Düngemittel, einerseits in der jeweils höchsten Düngungsstufe (175 bzw. 131 kg P ha⁻¹ a⁻¹) bezogen auf ein kg P und im Durchschnitt der in einem Versuch verwendeten Düngerstufen (P-Formen: 44 und 175 kg P ha⁻¹ a⁻¹; P-Vorrat: 33, 66, 131 kg P ha⁻¹ a⁻¹) in mg pro kg P₂O₅. Letztere bewegen sich mit 98 bis 333 mg U pro kg P₂O₅ im Rahmen der in dieser Studie gemessenen U-Konzentrationen bzw. Literaturwerten (Kratz et al., 2016). Diese Werte sind allerdings Minimalwerte, da etwaige P-Verluste nicht berücksichtigt sind. Aus den Zahlen geht hervor, dass die Düngemittel der Versuche mit kürzerer Dauer - 27/31 versus 49 Jahre - höhere U Konzentrationen aufwiesen. Daher kann geschlossen werden, dass die U Gehalte der Düngemittel in den letzten Jahren angestiegen sind.

Zusammenfassung:

In beiden P-Düngungsversuchen (jeweils an zwei Standorten im Marchfeld und im Alpenvorland) finden durch langjährige Superphosphat-Düngung Anstiege der U Konzentrationen im Boden statt. Die U Anreicherungen steigen mit der Höher der P-Düngung. Im Versuch „P-Formen“ sind diese nur mit unrealistisch hohen Düngegaben (175 kg P ha⁻¹a⁻¹) im Ober- und Unterboden statistisch signifikant nachweisbar. Auch im Versuch „P-Vorrat“ können im Marchfeld bei höheren Super-P-Aufwandmengen (66 und 131 kg P ha⁻¹a⁻¹) statistisch signifikante Anstiege festgestellt werden, nicht aber bei sachgerechten P-Düngungsmengen (33 kg P ha⁻¹ a⁻¹). In 25-50 cm Bodentiefe kommt es nur bei sehr hoher P-Düngung („worst-case scenario“) zu einer statistisch signifikanten Erhöhung der U Konzentrationen. Am Standort Alpenvorland (Grabeneegg) treten sowohl im Oberboden (0-25 cm) als auch im Unterboden (25-50 cm) geringfügige, aber statistisch signifikante Anstiege der U Konzentrationen mit der P-Düngung auf (auch mit der praxisnahen Düngungsaufwandmenge). Im

Gegensatz zu Ergebnissen von anderen Europäischen Langzeitfeldversuchen (z.B. Rogasik et al., 2008) sind signifikante U Anstiege auch im Unterboden feststellbar. Diese Anreicherungen könnten auch auf eine – fallweise - tiefere Bodenbearbeitung als 25 cm zurückzuführen sein. Aus Untersuchungen der Tiefenstufe 45-50 im P-Formenfeldversuch findet sich kein Hinweis auf eine Verlagerung bis an die Unterkante der Tiefenstufe 25-50 cm oder darüber hinaus.

Die U Erhöhungen im Boden sind in den Versuchen, die später begonnen haben – bezogen auf die angewendete P-Aufwandmenge - im Durchschnitt höher. Dies weist auf eine höhere U Belastung der Superphosphat-Dünger der letzten Jahre hin.

Langzeitversuche Gumpenstein

Zusätzlich zu den Langzeitversuchen der AGES wurden Proben aus auch Düngungsversuchen der HBLFA Raumberg Gumpenstein im Grünland und auf Ackerstandorten analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 17 zusammengefasst. In diesem Fall konnte kein Einfluss der Düngung festgestellt werden.

Tabelle 17: Urangelhalte der Böden aus Langzeit-Düngungsversuchen in Admont

Düngung	Tiefe	Uran mg kg ⁻¹
1300 kg CaO jedes 3. Jahr	0-10 cm	1,7
	10-30 cm	1,78
80 N (40 + 40) jährlich	0-10 cm	1,63
	10-30 cm	1,83
80 P ₂ O ₅ + 80 N jährlich	0-10 cm	1,65
	10-30 cm	1,76
80 P ₂ O ₅ + 120 K ₂ O jährlich	0-10 cm	1,75
	10-30 cm	1,8
150 dt Stallmist jährlich	0-10 cm	1,72
	10-30 cm	1,94
150 dt Stallmist / 400 dt Jauche	0-10 cm	1,76
	10-30 cm	1,89

Fazit

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Urangelhalte der österreichweit untersuchten landwirtschaftlich genutzten Böden zwischen 0,35 und 3,3 mg U pro kg Boden lagen und damit den in der Literatur bekannten Gehalten unbelasteter Böden entsprechen. Höhere Werte wurden lediglich an Sonderstandorten im Seewinkel (Hanság) gefunden. Bei früheren Messungen wurden auch im Wald- und Mühlviertel erhöhte Werte gefunden. Dies ist ebenso wie die erhöhten Gehalte im Grundwasser geologisch bedingt. Diese Gebiete weisen auch im Geochemischen Atlas (GBA, 1989) höhere U Konzentrationen auf.

In Langzeit - Düngeversuchen auf Ackerstandorten kam es bei steigender P – Düngung zu einem Anstieg der Urangelhalte, wobei dies nur bei stark erhöhten Düngemengen statistisch signifikant war, nicht jedoch bei praxisüblichen Gaben. Am Standort Alpenvorland (Grabenegg) traten sowohl im Oberboden (0-25 cm) als auch im Unterboden (25-50 cm) geringfügige, aber statistisch signifikante Anstiege der U Konzentrationen mit der P-Düngung auf. Allerdings ergaben sich keine Hinweise auf eine Verlagerung in tiefere Bodenschichten (45 – 50cm). Eine Aufnahme von Uran in die Kartoffelknolle und in das Winterweizenkorn konnte nicht festgestellt werden. Dies bestätigt die aus der Literatur bekannte geringe Mobilität von Uran im System Boden-Pflanze. Weiters ergaben sich Hinweise, dass die Urangelhalte der P-Dünger eine zunehmende Tendenz zeigen. In Grünland - Dauerversuchen konnte kein Einfluss der P-Düngung festgestellt werden

4 Uranaufnahme von Pflanzen in erdeloser Kultur

Bei erdeloser Kulturführung kann nicht mit puffernden Einfluss des Bodens gerechnet werden. Sofern Uran in Düngelösungen enthalten ist, könnte eine unmittelbare Aufnahme durch die Pflanze erfolgen. Um eine mögliche Belastungssituation zu identifizieren, wurden Untersuchungen von Nährlösungen (Stammlösungen und Drainlösungen) sowie Blättern und Früchten von Gemüsepflanzen, die in diesen Nährlösungen kultiviert wurden, untersucht. Im Folgenden sind die Ergebnisse zusammengestellt:

Tabelle 18: Cadmium- und Urangelhalte von Früchten aus erdeloser Kultur (Werte bezogen auf Frischmasse) und Gehalte der Stamm- und Drainlösungen

	Cadmium mg kg ⁻¹	Uran mg kg ⁻¹	Stammlösung		Drainlösung	
			Cadmium µg L ⁻¹	Uran µg L ⁻¹	Cadmium µg L ⁻¹	Uran µg L ⁻¹
Tomate 1	< 0,001	< 0,001	8,5	2,2	n.b.	n.b.
Tomate 2	< 0,001	< 0,001	21,1	1,0	0,1	< 0,1
Tomate 3	< 0,001	< 0,001	1,8	2,9	0,2	0,4
Tomate 4	< 0,001	< 0,001	13,2	3,4	0,6	0,1
Tomate 5	< 0,001	< 0,001	16,5	4,4	1,1	< 0,1
Tomate 6	< 0,001	< 0,001	42,8	2,7	0,1	< 0,1
Tomate 7	< 0,001	< 0,001	40,9	4,4	0,0	< 0,1
Paprika 1	< 0,001	< 0,001	3,9	5,6	n.b.	n.b.
Paprika 2	< 0,001	< 0,001	17,9	0,8	0,2	< 0,1
Paprika 3	< 0,001	< 0,001	31,1	3,4	0,1	< 0,1
Paprika 4	< 0,001	< 0,001	13,7	16,3	0,0	< 0,1
Paprika 5	< 0,001	< 0,001	8,3	7,3	0,1	1,9
Gurke 1	< 0,001	< 0,001	8,2	2,1	n.b.	n.b.
Gurke 2	< 0,001	< 0,001	17,9	0,8	0,2	0,6
Gurke 3	< 0,001	< 0,001	19,3	6,1	0,3	0,3
Gurke 4	< 0,001	< 0,001	24,1	3,2	0,1	0,1
Gurke 5	< 0,001	< 0,001	13,7	16,3	0,1	< 0,1
Gurke 6	< 0,001	< 0,001	27,5	3,3	0,1	0,2
Gurke 7	< 0,001	< 0,001	24,9	6,0	n.b.	n.b.

In den Früchten konnte kein Uran nachgewiesen werden. Die Urangelhalte der Stammlösungen lagen mit zwei Ausnahmen (je $16,3 \mu\text{g L}^{-1}$) deutlich unter dem Grenzwert für Trinkwasser ($15 \mu\text{g L}^{-1}$). Die Gehalte in der Drainlösung lagen knapp über bzw. unter der Bestimmungsgrenze.

Tabelle 19: Cadmium- und Urangelhalte von Blattproben aus erdeloser Kultur (Werte bezogen auf Trockenmasse) und Gehalte der Stamm- und Drainlösungen

			Stammlösung		Drainlösung	
	Cadmium mg kg^{-1}	Uran mg kg^{-1}	Cadmium $\mu\text{g L}^{-1}$	Uran $\mu\text{g L}^{-1}$	Cadmium $\mu\text{g L}^{-1}$	Uran $\mu\text{g L}^{-1}$
Tomate 1	0,024	0,017	8,5	2,2	n.b.	n.b.
Tomate 2	0,008	0,004	21,1	1,0	0,1	< 0,1
Tomate 3	0,019	0,018	1,8	2,9	0,2	0,4
Tomate 4	0,065	0,004	13,2	3,4	0,6	0,1
Tomate 5	0,059	0,005	16,5	4,4	1,1	< 0,1
Tomate 6	0,030	0,002	42,8	2,7	0,1	< 0,1
Tomate 7	0,178	0,006	40,9	4,4	0,0	< 0,1
Paprika 1	0,070	0,007	3,9	5,6	n.b.	n.b.
Paprika 2	0,024	0,006	17,9	0,8	0,2	< 0,1
Paprika 3	0,017	0,010	31,1	3,4	0,1	< 0,1
Paprika 4	0,017	0,012	13,7	16,3	0,0	< 0,1
Paprika 5	0,008	0,002	8,3	7,3	0,1	1,9
Gurke 1	0,033	0,004	8,2	2,1	n.b.	n.b.
Gurke 2	0,015	0,010	17,9	0,8	0,2	0,6
Gurke 3	0,046	0,004	19,3	6,1	0,3	0,3
Gurke 4	0,071	0,007	24,1	3,2	0,1	0,1
Gurke 5	0,006	0,006	13,7	16,3	0,1	< 0,1
Gurke 6	0,046	0,002	27,5	3,3	0,1	0,2
Gurke 7	0,072	0,008	24,9	6,0	n.b.	n.b.

In den Blättern der Gemüsepflanzen konnten Spuren von Uran nachgewiesen werden. Dementsprechend wurden in einer weiteren Untersuchung Stichproben von Kräutern und Blattgemüse analysiert.

Urangelhalte in Kräutern und Blattgemüse

Wie oben erwähnt, konnte bei der Analyse von Gemüsepflanzen aus erdeloser Kultur Uran nicht in den Früchten, aber in Spuren in den Blättern nachgewiesen werden. Es wurden daher zusätzlich stichprobenartig Proben von Kräutern und Blattgemüse untersucht, um den Gehalt in den vegetativen Pflanzenteilen zu erheben, die unmittelbar für den Verzehr vorgesehen sind. Für Uran existieren derzeit keine Grenzwerte für Lebensmittel, als Orientierungshilfe erfolgte ein Vergleich mit den aktuell für Cadmium geltenden Werte für Gemüse. Diese und die Grenzwerte für Düngemittel sind in Tabelle 20 zusammengefasst.

Tabelle 20: Grenzwerte für Cadmium in Gemüse und Düngemitteln

Grenzwert Fruchtgemüse:	0,05 mg kg ⁻¹ Frischmasse
Grenzwert Stängelgemüse, Kartoffel:	0,1 mg kg ⁻¹ Frischmasse
Grenzwert Blattgemüse:	0,2 mg kg ⁻¹ Frischmasse
Grenzwert Düngemittel	3 mg kg ⁻¹ Trockenmasse, 75 mg kg ⁻¹ P ₂ O ₅

Die Gehalte der Pflanzenproben sind in Tabelle 21 wiedergegeben. Dabei ist zu beachten, dass diese Werte auf Trockenmasse bezogen sind, ein unmittelbarer Vergleich mit den gesetzlichen Grenzwerten ist daher nicht möglich.

Tabelle 21: Gehalte an Cd und U in Kräutern, Spinat und Salat, bezogen auf Trockenmasse

	Cadmium mg kg ⁻¹ TM	Uran mg kg ⁻¹ TM
Petersilie	0,085	0,005
Basilikum	0,126	n.n.
Blattsenf	0,368	0,007
Spinat	0,224	0,010
Kopfsalat groß	0,255	0,016
Kopfsalat klein	0,234	0,020
Kopfsalat rötlich	0,318	0,018

Die festgestellten Gehalte an Uran lagen um das 10 bis 20fache unter den Cadmiumgehalten. Diese ermittelten sehr geringen Gehalte in Blattgemüse (Spinat, Salat) führen zu einer Exposition, die nur etwa 0,1 - 0,2 % des EFSA-TDI (tolerable daily intake 0,6 µg/kg Körpergewicht und Tag) betragen (EFSA 2009). Unter Heranziehung des neueren Wertes der WHO (2011) von 60 µg/Person liegt die Auslastung in ähnlicher Größenordnung (0,05 - 0,12 %). Zusätzlich sind im Vergleich zum Parameterwert von 15 µg L⁻¹ in Trinkwasser die Gehalte vernachlässigbar gering. Diese Abschätzung erfolgte auf Basis der ermittelten Einzelwerte und berücksichtigt keine etwaige Kumulation über mehrere Jahre hinweg im Boden oder Wasser und eine dadurch eventuell erhöhte Aufnahme sowie eine Exposition über andere Lebensmittel.

5 Urangelhalte in Sickerwasser und Bodenlösung

Beprobte Standorte - IKT

Die Messstellen LW1, LW2 und LW6 sind östlich von Lichtenwörth (NÖ) und südlich von Neufeld (BGLD) gelegen. Die Lage der 3 Messstellen ist in der Abbildung 15 eingezeichnet. Die blaue Linie markiert die politische Grenze von Niederösterreich und Burgenland. Bei allen 3 Messstellen wurden mittels Saugkerzen in 150 cm unter Geländeoberkante Bodenlösungen gewonnen.

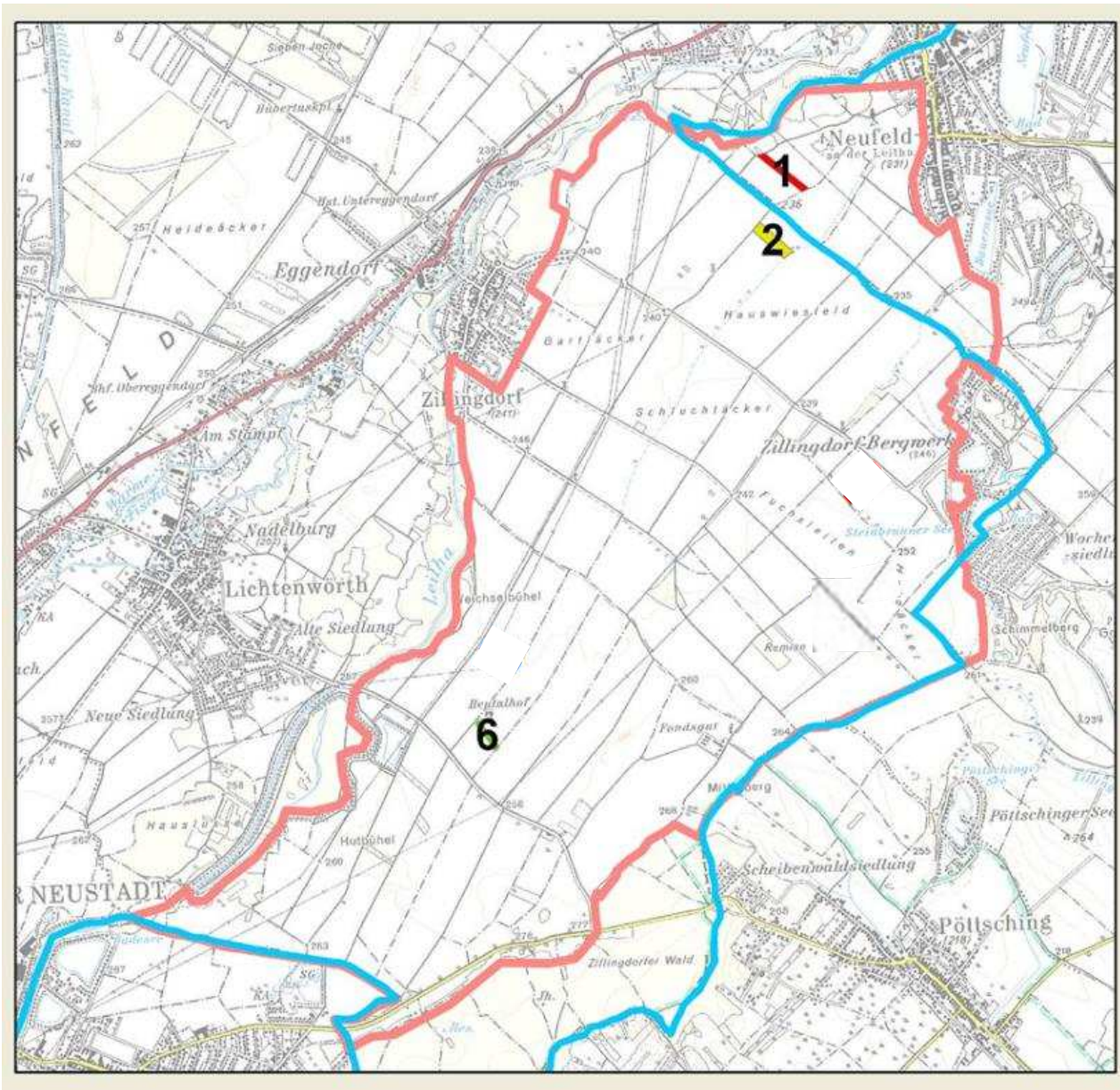


Abbildung 15: Standorte der 3 Messstellen

Abbildung 16 zeigt die Bodenprofile der 3 Messstellen.

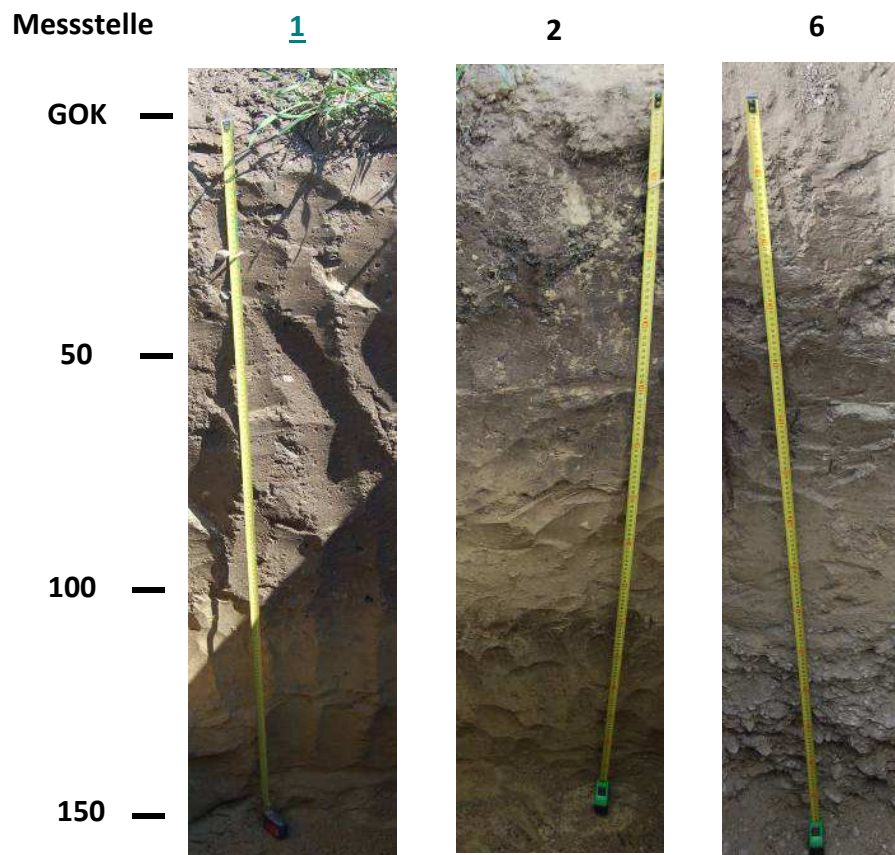


Abbildung 16: Bodenprofile der Messstellen LW1, LW2 und LW6

Bei den Messstelle LW1, LW2 und LW6 handelt es sich um stark kalkhaltige Tschernoseme. Im Oberboden weisen sie einen mittleren Gehalt an Humus auf, im unteren Horizont sind sie schwach humos. Die Ergebnisse von Korngrößenverteilung, Bodenart, Humus- und Karbonatgehalt sind in Tabelle 22 ersichtlich.

Tabelle 22: Analyseenergebnisse der Bodenuntersuchungen

Messstelle	Entnahmetiefe [cm]		Humus [Masse%]	CaCO ₃ [Masse%]	Korngrößenverteilung im Feinboden				Bodenart [< 2mm]
	von	bis			% Ton	% Schluff	% Sand	% Grobstoff	
LW1	0	30	2,5	17,0	14,5	32,3	53,2	2,3	IS/sL
LW1	30	90	1,9	28,9	20,5	30,0	49,5	3,6	sL
LW1	90	120	0,4	42,2	11,1	58,9	30,0	0	sU
LW1	120	155	0,2	30,1	1,4	26,3	72,3	0	S
LW2	0	30	3,6	22,7	19,5	45,5	35,0	1,1	sL
LW2	30	60	1,1	40,1	21,9	59,5	18,6	0	IU
LW2	60	100	0,3	40,8	13,6	64,4	22,0	0	sU
LW2	100	155	0,4	33,8	3,4	20,2	76,4	0	S
LW6	0	35	4,2	10,6	25,3	37,9	36,8	1,4	sL/L
LW6	35	70	2,7	10,6	24,0	38,4	37,6	0	sL
LW6	70	90	0,5	11,4	9,8	30,2	60,0	0	IS
LW6	90	155	0,4	36,2	3,1	27,7	69,2	65,9	S

Beprobte Standorte – HBLFA Raumberg-Gumpenstein

Mineraldüngerversuch Gumpenstein:

Von November 2013 bis Mai 2014 wurden 7 Sickerwasserproben der Variante 2a (Lysimeter - unbegast und unbeheizt) gezogen. Zusätzlich wurden noch 2 Proben nach dem neuen Probenahme-Schema im September und Oktober 2014 gezogen.

Versuchsplan:

Düngung: N: 90kg/ha NAC; 3 Gaben: 30 - 30 - 30
P: 65kg/ha Superphosphat; 2 Gaben: 32,5 - 32,5
K: 170kg/ha Kali 40%; 2 Gaben: 85 - 85

Nutzung: 3. Schnitte jährlich 1. Schn. 25. Mai, 2. Schn. 20. Juli, 3. Schn. 30. Sept.

Ernteparzelle: 1m²

Die detaillierte Versuchsbeschreibung ist in Anlage 1 Versuchsbeschreibung_Mineraldüngerversuch.pdf wiedergegeben.

Wirtschaftsdüngerversuch Gumpenstein:

Von November 2013 bis Mai 2014 wurden 7 Sickerwasserproben von der Variante 5 (Gülle 1,8 GVE) gezogen. Zusätzlich wurden noch 2 Proben nach dem neuen Probenahme-Schema im September und Oktober 2014 gezogen.

Schlag XI/3

Düngungs- und Nutzungsversuch Umweltökologie

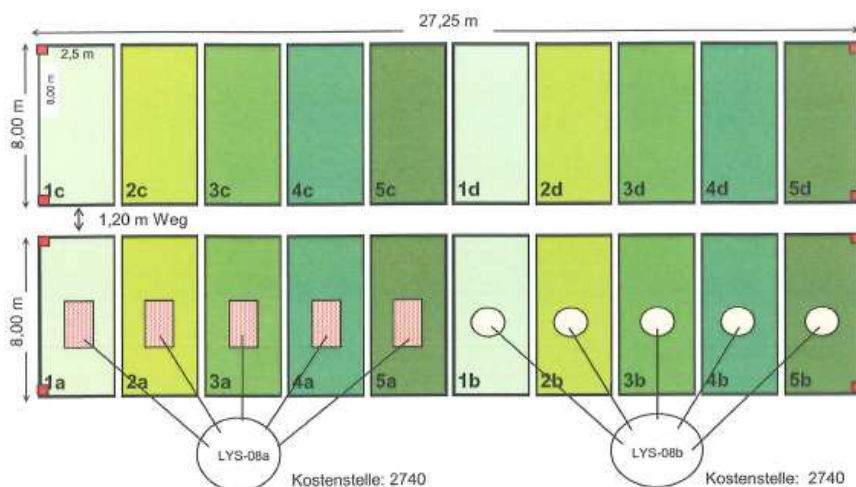
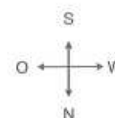
Vers.-Nr.: UM-08

(alt BK-02)

Versuchsbeginn 2007

Gumpenstein

Kostenstelle: 2309
2740



LYS-08a 1 bis 5 Wdhlg. a Sickerwassersammler
LYS-08b 1 bis 5 Wdhlg. b Monolithysimeter

Lysimeterringe
fast deckungsgleich mit Bodenniveau

Prüfnummernverzeichnis:

Kulturarten:

- 1 Dauerwiese B (34)
- 2 Dauerwiese B (24)
- 3 Dauerwiese B (23)
- 4 Dauerwiese B (13)
- 5 Dauerwiese B

Düngung:

- | | |
|-----------------------------|---------------------------------------|
| Rottemist, Jauche (0,5 GVE) | Rottemist + Jauche i.Frj. |
| Rottemist, Jauche (1,0 GVE) | Rottemist i.Frj. + Jauche n.1.Schnitt |
| Gülle (1,0 GVE) | Frj. + n.1.Schnitt |
| Gülle (1,4 GVE) | Frj. + n.1.Schnitt + n.2.Schnitt |
| Gülle (1,8 GVE) | Frj. + n.1. + n.2. + n.3.Schnitt |

Schnitte:

- | | |
|------------|------------------------------------|
| 1 Schnitt | 25. Aug. |
| 2 Schnitte | 20. Jun. 30.Sep. |
| 2 Schnitte | 20. Jun. 30.Sep. |
| 3 Schnitte | 25. Mai. 20. Jul. 30.Sep. |
| 4 Schnitte | 13. Mai. 20. Jun. 5. Aug. 30. Sep. |

() Prüfnr. von GL-433 (Schnitt- und Düngungstermine identisch)

Parzellengröße: 8,00 m x 2,50 m = 20,00 m²

Fräswegerl: 25 cm

Gumpenstein, 2007 04 19

Abbildung 17: Versuchsplan Wirtschaftsdüngerversuch Gumpenstein

Die detaillierte Versuchsbeschreibung ist in Anlage 2

(Versuchsbeschreibung_Wirtschaftsdüngerversuch.pdf) wiedergegeben.

Methodik und Ergebnisse

Die Konservierung und Handhabung der Wasserproben wurde gemäß ÖNORM EN ISO 5667-3 durchgeführt. Eine Ausnahme stellen die Sickerwässer aus den Beprobungen vor Mai 2014 dar, welche nach einiger Lagerzeit ohne Säurestabilisierung zur Uran-Analytik an das Labor des Umweltbundesamt übermittelt wurden. In diesen Proben könnten die Wiederfindungen für Uran geringer sein. In vergleichenden Versuchen zur Stabilität von Uranlösung in Reinstwasser in mehrfach gebrauchten, vorgereinigten Kunststoffgebinden ohne Säurestabilisierung zeigte sich, dass die Wiederfindung von Uran auf weit unter 50 % sinken kann (Ausgangskonzentration: 30 µg L⁻¹).

In einem Zeitreihenversuch wurden zwei Uranlösungen mit jeweils 30 µg L⁻¹ Urangelgehalt über einen Zeitraum von 1 Jahr in Glasgebinden gelagert. Die normgemäß stabilisierte Lösung wurde gekühlt gelagert, die nicht stabilisierte Lösung lagerte bei Raumtemperatur. Die Lösungen wurden in etwa monatlichen Abständen mittels ICP-MS analysiert, um Konzentrationsänderungen zu erfassen. Erwartungsgemäß blieb die Urankonzentration in der stabilisierten Lösung konstant, wohingegen es zu einer Abnahme der Urankonzentration in der nicht Säure-stabilisierten Probe kam. Die Abnahme beträgt etwa 2 % und ist weitaus geringer als die in gebrauchten Kunststoffgebinden beobachtete Konzentrationsabnahme.

Die Sickerwässer aus den Beprobungen ab Mai 2014 wurden beim Abfüllen mit konzentrierter Salpetersäure (HNO₃) auf pH 1-2 stabilisiert (Vorgabe: 1 ml HNO₃ konz. auf 100 ml Probe) und bis zur

Analyse am Umweltbundesamt kühl gelagert. Die Bestimmung von Uran erfolgte mittels ICP-MS gemäß ÖNORM EN 17294-2, die Bestimmungsgrenze lag bei $0.02 \mu\text{g L}^{-1}$.

In den Sickerwässern von HBLFA Raumberg-Gumpenstein konnte kein Uran über der Bestimmungsgrenze gemessen werden; dies galt auch für die normgemäß für die Uranbestimmung stabilisierten Proben (Tabelle 23)

Tabelle 23: Urangelhalte von Sickerwasser der Proben aus Gumpenstein; Proben ohne Datum: Probenahme erfolgte vor Mai 2014, nicht normgemäß stabilisiert (BG: $0,02 \mu\text{g L}^{-1}$)

Probenbezeichnung	U ($\mu\text{g L}^{-1}$)
LFZ Raumberg 1	< 0.020
LFZ Raumberg 2	< 0.020
LFZ Raumberg 3	< 0.020
LFZ Raumberg 4	< 0.020
LFZ Raumberg 5	< 0.020
LFZ Raumberg 6	< 0.020
LFZ Raumberg 7	< 0.020
LFZ Raumberg 8	< 0.020
LFZ Raumberg 9	< 0.020
LFZ Raumberg 10	< 0.020
LFZ Raumberg 11	< 0.020
LFZ Raumberg 12	< 0.020
LFZ Raumberg 13	< 0.020
LFZ Raumberg 14	< 0.020
LFZ - CG/3 16.9.2014	< 0.020
LFZ - CG/3 16.9.2014	< 0.020
LFZ - CG/3 24.10.2014	< 0.020
LFZ - CG/3 24.10.2014	< 0.020
LFZ - 29/5 16.9.2014	< 0.020
LFZ - 29/5 16.9.2014	< 0.020
LFZ - 29/5 24.10.2014	< 0.020
LFZ - 29/5 24.10.2014	< 0.020

In den Sickerwässern der Proben des IKT Petzenkirchen (Tabelle 24) lag der Urangelhalt im Bereich von $0,7$ bis $1,4 \mu\text{g L}^{-1}$ Uran für die Lysimeter in Pettenbach. Bei den 3 ausgewählten Lysimetern in Lichtenwörth (L1, L2, L6) lagen die Urangelhalte zwischen $2,2$ und $4,6 \mu\text{g L}^{-1}$. Die Gehalte je Lysimeter liegen in einem ähnlichen Bereich, das heißt, es ist keine deutliche zeitliche Variation erkennbar.

Tabelle 24: Urangelhalte von Sickerwasser der Proben des IKT

Standort	Lysimeter	Datum	U ($\mu\text{g L}^{-1}$)
Pettenbach	1	12.04.2014	0,7
	3	10.04.2014	1,1
	4	13.04.2014	1,4
Lichtenwörth	1	17.12.2013	2,7
		13.01.2014	2,5
		19.01.2014	2,4
		25.01.2014	2,3
		02.02.2014	2,3
		02.02.2014	2,3
		11.02.2014	2,3
		15.02.2014	2,4
		17.02.2014	2,3
		23.02.2014	2,3
		02.03.2014	2,3
		09.03.2014	2,2
		09.03.2014	2,2
		09.03.2014	2,2
	16.03.2014	2,3	
	16.03.2014	2,4	
	30.03.2014	2,5	
	30.03.2014	2,4	
	30.03.2014	2,2	
	06.04.2014	2,4	
	13.04.2014	2,3	
	2	05.01.2014	2,6
		02.02.2014	4,6
		09.03.2014	4,6
		16.03.2014	4,2
		30.03.2014	4,2
		06.04.2014	4
13.04.2014		4,1	
17.04.2014		4,1	
20.05.2014		4	
20.04.2014		4	
23.05.2014	4		
3	13.04.2014	0,25	
4	13.04.2014	0,64	
5	13.04.2014	0,58	
6	09.03.2014	3,5	
	30.03.2014	2,3	
	06.04.2014	2,3	

Standort	Lysimeter	Datum	U ($\mu\text{g L}^{-1}$)
Lichtenwörth	6	13.04.2014	2,2
		17.04.2014	2,3
		20.05.2014	2,4
		16.03.2014	2,7
		20.04.2014	2,2
		27.04.2014	2,1
		23.05.2014	2,2
		03.05.2014	2,7

Um etwaige Uran-Adsorption an den Glas-Sammelgefäßen bei den Feldlysimetern zu erfassen, wurden (ab Mai 2014) sogenannte Desorptionsversuche durchgeführt. Nach Vorreinigung der Sammelgefäße mit verdünnter Salpetersäure wurden die Sickerwässer gesammelt. Nach der Abfüllung der Sickerwässer in die Probenfläschchen wurde das Glasgefäß mit 100 ml verdünnter HNO₃ (1 ml konzentrierte HNO₃ (67-68 %) auf 100 ml Reinstwasser/Deionat) gefüllt, gut geschüttelt und 1-2 Stunden stehen gelassen. Diese verdünnte Säurelösung („Desorptionslösung“) wurde anschließend abgefüllt und auf den Urangehalt untersucht (Tabelle 25). Die mittlere Urankonzentration in diesen Spüllösungen lag bei 0,5 $\mu\text{g L}^{-1}$. In einem Einzelfall wurden 2,5 $\mu\text{g L}^{-1}$ Uran in der Spüllösung gefunden. Addiert man die Urangehalte aus den Desorptionslösungen zu den Sickerwasser-Gehalten, so würden sich die Maximalwerte für Lysimeter L2 auf 4,6 $\mu\text{g L}^{-1}$ Uran und für Lysimeter L6 auf 5,6 $\mu\text{g L}^{-1}$ erhöhen (Tabelle 26).

Tabelle 25: Ergebnisse der Desorptionsversuche

Probenbezeichnung	Probe	Desorptionsprobe U ($\mu\text{g L}^{-1}$)	Anteil desorb. Uran % Gesamturan	Summe U ($\mu\text{g L}^{-1}$)
L1/02.06.2014	2,6	0,095	3,5	2,695
L1/17.06.2014	2,5	0,094	3,6	2,594
L2/02.06.2014	3,9	1,5	27,8	5,4
L2/17.06.2014	4,0	0,097	2,4	4,097
L2/24.06.2014	4,0	0,2	4,8	4,2
L6/02.06.2014	3,1	2,5	44,6	5,6
L6/17.06.2014	3,1	0,12	3,7	3,22
L6/24.06.2014	3,1	0,22	6,6	3,32
L6/08.07.2014	3,0	0,26	8,0	3,26
L6/23.07.2014	3,0	0,26	8,0	3,26
L6/26.09.2014	2,7	0,24	8,2	2,94

Median desorbiertes Uran 0,22 $\mu\text{g L}^{-1}$ Uran
Mittelwert desorbiertes Uran 0,51 $\mu\text{g L}^{-1}$ Uran

Tabelle 26: zusammenfassendes Ergebnis der Sickerwasserproben IKT unter Berücksichtigung der Desorption

	Min U $\mu\text{g L}^{-1}$	mit Desorption Max U $\mu\text{g L}^{-1}$	ohne Desorption Max U $\mu\text{g L}^{-1}$	Erhöhung in $\mu\text{g L}^{-1}$ 1
Lichtenwörth L1	2,2	2,7	2,7	
Lichtenwörth L2	2,6	5,4	4,6	0,8
Lichtenwörth L6	2,1	5,6	3,5	2,1

Weiters wurde an Flächen mit hohem Nährstoffgehalt der Urangehalt des Drainagewassers untersucht. Uran konnte zwar nachgewiesen werden, allerdings lagen auch hier die Werte um einen Faktor 50 – 100 unter dem für Trinkwasser geltenden Grenzwert von $15 \mu\text{g L}^{-1}$ (Tabelle 27)

Tabelle 27: Ergebnisse von Drainagewasser von Flächen mit hohen Nährstoffgehalten

Probenbezeichnung	U ($\mu\text{g L}^{-1}$)
OÖ31 - Dr_Sipbach	0,28
OÖ71 - Dr_Sipbach	0,23
OÖ91 - Dr_Sipbach	0,087
OÖ94 - Dr_Sipbach	0,12
OÖ100 - Dr_Sipbach	0,12
OÖ119 - Dr_Sipbach	0,12
OÖ124 - Dr_Sipbach	0,11
OÖ133 - Dr_Sipbach	0,11

Um die Vergesellschaftung von Uran mit anderen Schwermetallen zu prüfen, wurden in ausgewählten Sicker- und Drainagewässern auch die Gehalte von Cadmium, Chrom, Nickel, Blei und Vanadium (mittels ICP-MS gemäß ÖNORM EN 17294-2) bestimmt. Es zeigten sich keine Korrelationen zum Urangehalt. Cadmium lag in allen untersuchten Proben unter der Bestimmungs- ($0,1 \mu\text{g L}^{-1}$ Cd) bzw. Nachweisgrenze. Die Höchstwerte waren für Chrom $4,2 \mu\text{g L}^{-1}$, Nickel $16 \mu\text{g L}^{-1}$, 6,9 Blei $\mu\text{g L}^{-1}$ und Vanadium $5,7 \mu\text{g L}^{-1}$. Auch die übrigen Werte wie Ca, K, Mg, N (ICP-OES gemäß ÖNORM EN ISO 11885), Chlorid, Nitrat und Sulfat (Ionenchromatographie gemäß ÖNORM EN ISO 10304⁻¹), der Gesamtphosphorgehalt (UV/VIS-Spektroskopie nach Aufschluss mit Kaliumperoxodisulfat gemäß ÖNORM EN ISO 6878) oder die Alkalinität (Autotitrator gemäß DIN 38409 Teil 7) weisen in den 11 untersuchten Sickerwässern aus den Lysimetern in Lichtenwörth keinen mit dem Urangehalt gekoppelten Trend auf.

6 Adsorptionsverhalten von Uran – Mikrolysimeteranlage

Aufbau der Mikrolysimeteranlage (MLA)

Vorversuche

Um sicherzustellen, dass die Materialien, die für den Aufbau der Mikrolysimeteranlage verwendet werden, auch geeignet sind (keine Absorption von Uran), wurden Vorversuche durchgeführt:

1. Vorversuch: Überprüfung einer Keramikplatte (als wesentlicher Bestandteil eines Unterdrucksystems)

Es wurde eine Lösung mit $35 \mu\text{g U l}^{-1}$ durch die Keramikplatte bei einem Unterdruck von 60 hPa gesaugt. Diese Lösung wurde einmal über eine Kunststoffleitung in einer Glasflasche und einmal direkt über eine kurze Schlauchverbindung in einer Plastikflasche aufgefangen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 28 ersichtlich. Aufgrund der hohen Absorption innerhalb der Keramikplatte wurden sowohl dieses Material als auch das angedachte Unterdruckprinzip verworfen. Der Eignungstest der Keramikplatte wurde leider durchgeführt, bevor die korrekte Vorgehensweise der Probenstabilisierung mit verdünnter Salpetersäure ausgearbeitet war. Es kann als sehr wahrscheinlich angenommen werden, dass das Ergebnis durch die fehlende Stabilisierung verfälscht wurde und daher von einer Verwendung von absoluten Werten Abstand genommen werden muss. Wird das Ergebnis allerdings in Relation zum Kontrollstandard des Batchverfahren (siehe unten) gesetzt, kann von einer deutlichen Absorption in der Keramikplatte ausgegangen werden.

Tabelle 28: Beprobung des Beschickungswassers und des Eluats aus der Keramikplatte

Durchführungsdatum	Probenbezeichnung	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Sollwert	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Istwert
23.04.2014	Ent. Wasser IKT		0.08
23.04.2014	Ent. Wasser IKT		< 0.02
23.04.2014	über Keramikplatte direkt in Plastikflasche	35	0.26
23.04.2014	über Keramikplatte über Glasflasche	35	0.15

2. Vorversuch: Batchverfahren

Um das Adsorptionsverhalten von Uran an Bodenbestandteilen abschätzen zu können, wurden je 20 g Boden von der Messstelle Lichtenwörth (LW1) mit 200 ml Lösung ($60 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$, $40 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$, $30 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$, $10 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$) versetzt, 24 Stunden geschüttelt, anschließend zentrifugiert und in Plastikflaschen abgefüllt. Ein Kontrollstandard mit $30 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$ und eine Blindprobe wurde mitgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 29 dargestellt. Wie beim Test der Karamikplatten wurden auch hier die Proben nicht stabilisiert, womit eine Überschätzung des Adsorptionsverhaltens sehr wahrscheinlich ist. Das Ergebnis des Kontrollstandards gibt Auskunft über die Größenordnung der Lagerungsproblematik bei fehlender Stabilisierung.

Tabelle 29: Ergebnisse der Batchverfahrens:

Durchführungsdatum	Probenbezeichnung	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Sollwert	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Istwert
23.04.2014	Batch - Blindprobe		0.06
23.04.2014	Batch - Kontrollstandard	30	7.20
23.04.2014	Batch - $10 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	10	1.00
23.04.2014	Batch - $30 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	30	1.70
23.04.2014	Batch - $40 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	40	2.30
23.04.2014	Batch - $60 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	60	2.80

3. Vorversuch: Überprüfung eines Kunststoffsystems

Das System bestehend aus Trichter (PE), darinliegender Lochplatte (PE), aufgelegtem Gitter (PVC) und aufgesetztem Zylinder (PVC) wurde mit 500 ml einer Beschickungslösung ($30 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$) gespült. Die Beschickungslösung wurde nach dem Systemdurchlauf im Glaskolben aufgefangen, 99 ml wurden in PE-Flaschen abgefüllt und mit 1 ml konzentrierter Salpetersäure stabilisiert. Die Ergebnisse aus Tabelle 30 zeigen einerseits die Wirksamkeit der Probenstabilisierung, zum anderen die Eignung der Kunststoffmaterialien für den Aufbau der Lysimeteranlage.

Tabelle.30: Ergebnisse des Versuches 3

Durchführungsdatum	Probenbezeichnung	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Sollwert	$\mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$ Istwert
14.05.2014	Kontrollstandard $30 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	30	28
14.05.2014	HNO_3 1:10		n.n.
14.05.2014	Stammlösung $1000 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	1000	910
14.05.2014	Standardlösung $30 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	30	29
14.05.2014	Systemprüfung $30 \mu\text{g U} \cdot \text{l}^{-1}$	30	26

Finales Design der Anlage

Aufgrund der Ergebnisse der Vorversuche wurde folgender Aufbau der Microlysimeteranlage ausgeführt (Abbildung 18).

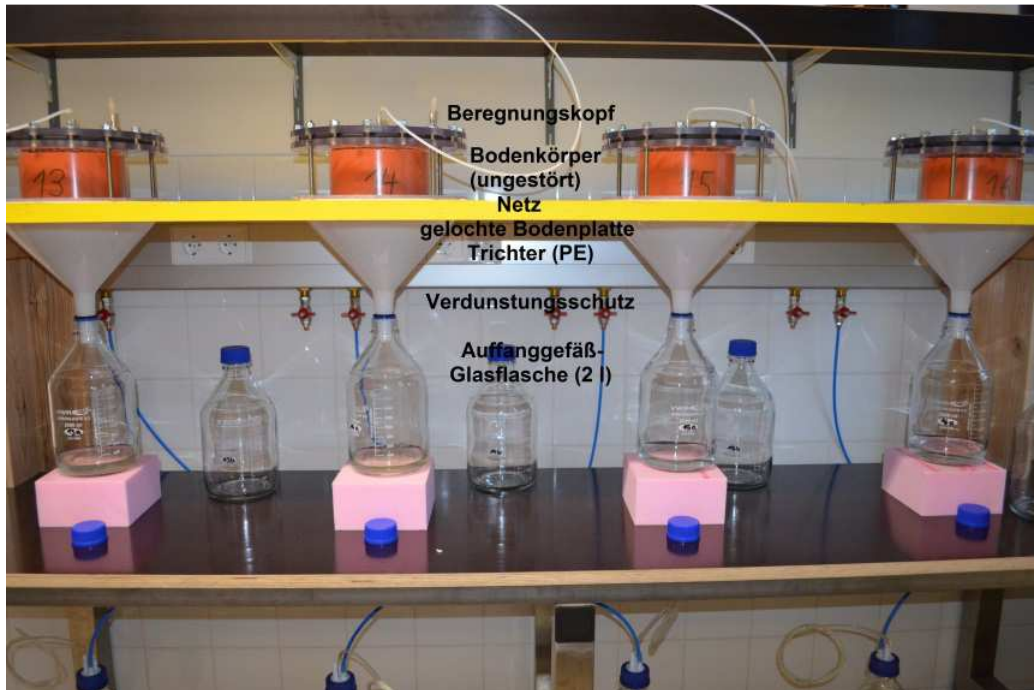


Abbildung 18: Aufbau der Mikrolysimeteranlage (eine Variante zu vier Wiederholungen).

In einer stabilen Platte (gelbe Linie) sind Löcher für die Aufnahme der Trichter eingefräst. Die Trichter münden in Glasflaschen, deren Tausch durch eine entfernbare Bodenplatte aus XPS ermöglicht wird. Dichtungsringe zwischen Glasflaschen und Trichter dienen dem Verdunstungsschutz. Beim Übergang von Trichter auf Zylinder sind kreisrunde Lochplatten aus PE mit der Stärke von 10 mm eingelegt, um das Gewicht der Bodensäulen zu tragen. Die Bodensäulen, ungestört in einem PVC-Zylinder vom Standort Lichtenwörth (LW2) entnommen, werden von oben mittels Beregnungsköpfe beschickt. Zwischen Bodensäule und Lochplatte wurden Kunststoffnetze gelegt, um ein Ausrieseln des Bodens möglichst zu reduzieren. Auf Filterpapier wurde aufgrund der unbekannteten Adsorptionseigenschaften verzichtet. Da der Durchmesser der Bodensäulen kleiner als der Trichterdurchmesser ist, wurden die resultierenden Zwischenräume mit einem Verdunstungsschutz versehen. Die Beregnungsintensität wird über eine Schlauchquetschpumpe (Abbildung 19) reguliert, welche das Beschickungswasser über einen Vorratsbehälter bezieht. Die Verteilung des Wassers auf den Bodensäulen erfolgt über jeweils 19 gleichmäßig verteilte Nadeln (Abbildung 20).

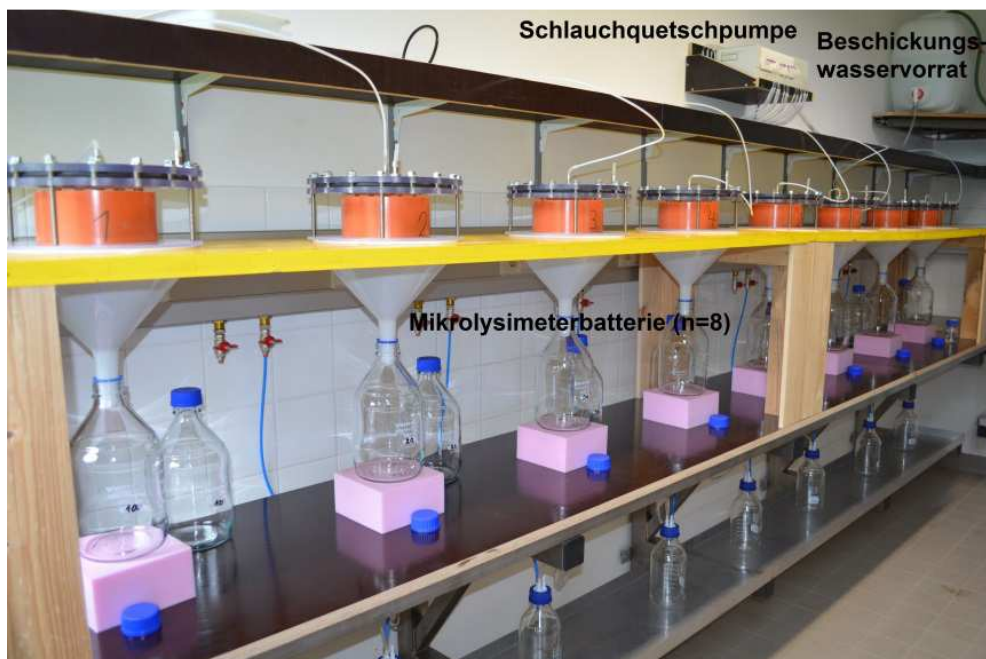


Abbildung 19: Mikrolysimeteranlage mit Schlauchquetschpumpe und Beschickungswasservorrat.

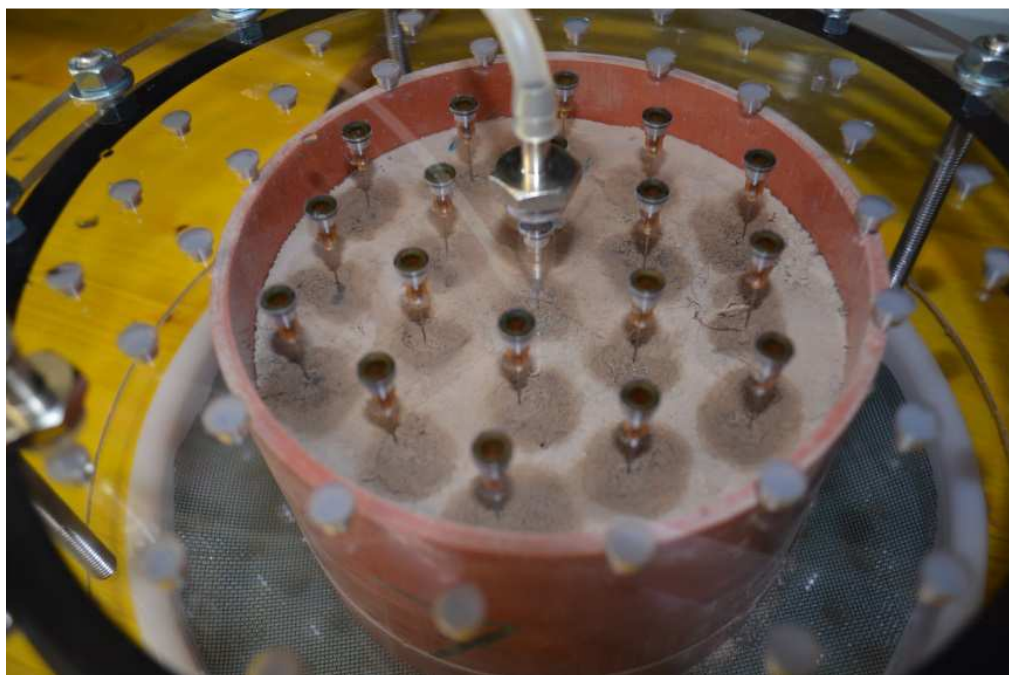


Abbildung 20: Verteilung des Beregnungswassers an der Bodensäulenoberfläche mit 19 Nadeln (kurz nach dem Start der Beregnung)

Insgesamt wurden 16 Mikrolysimeter in vier Varianten zu je vier Wiederholungen hergestellt. Die vier Varianten unterscheiden sich durch die unterschiedliche Entnahmetiefe der Bodensäulen (20-27.5 cm, 60-67.5 cm, 90-97.5 cm und 130⁻¹37.5 cm). Die Bodensäulen haben einen Durchmesser von 15 cm und eine Höhe von 7.5 cm. Die vier Bodensäulen der ersten Tiefenstufe erhielten die Zylindernummer eins bis vier, jene der zweiten Tiefenstufe die Nummern fünf bis acht, jene der dritten Tiefenstufe neun bis zwölf und jene aus dem tiefsten Entnahmebereich 13 bis 16. Die wichtigsten Bodenkenwerte sind in nachfolgender Tabelle 31 zusammengefasst.

Tabelle 31: Bodenkennwerte des Profils LW2 als Entnahmestandort der Bodensäulen

Bezeichnung der Probe	Entnahmetiefe (cm) von - bis		pH-Wert im Boden	CaCO ₃ (nach Scheibler) (Masse%)	organ. Kohlen- stoff (TOC) (Masse%)	Bodenart (< 2mm)	Urangehalt (mg · kg ⁻¹)
LW2 0-10	0	10	7.62	27.6	2.1	sL/L	1.0
LW2 10-20	10	20	7.66	27.9	2.1	sL	1.0
LW2 20-30	20	30	7.66	26.3	2.3	sL/L	1.0
LW2 30-40	30	40	7.78	32.4	1.4	L	0.9
LW2 40-50	40	50	7.85	38.8	1.1	L	0.9
LW2 50-60	50	60	7.92	41.7	1.0	IU	0.9
LW2 60-70	60	70	7.99	39.8	0.4	sU	1.1
LW2 70-80	70	80	8.06	44.9	0.5	IU	1.2
LW2 80-90	80	90	8.07	43.5	1.2	IU	1.3
LW2 90-100	90	100	8.04	37.7	0.8	sL	1.1
LW2 100-110	100	110	8.02	39.2	0.6	IS	1.0
LW2 110-120	110	120	8.02	40.1	0.3	IS	0.9
LW2 120-130	120	130	7.99	35.5	0.9	IS	0.9
LW2 130-140	130	140	7.93	38.1	0.5	S	0.8
LW2 140-150	140	150	7.94	38.5	0.4	S	0.8

Versuchsdurchführung

Nach der Positionierung der Bodensäulen im Messsystem wurden sie bis zum Erreichen eines konstanten Durchflusses beregnet. Als Beregnungsmedium wird entionisiertes Wasser verwendet. Die Beregnungsintensität wurde mit 15 mm pro Tag so gewählt, sodass beim am wenigsten durchlässigen Boden kein Überstau entsteht. Aufgrund der Reibungsverluste in den Leitungen ergibt diese einen Durchfluss von ca. 12,5 mm pro Tag. Alle Varianten werden mit der gleichen Intensität beregnet. Da für eine gleichmäßige Verteilung des Beregnungswassers an der Zylinderoberfläche eine Mindestdrehzahl der Schlauchquetschpumpe erforderlich ist, wurde eine Intervallschaltung mit 1 Minute Beregnung und dazwischenliegender 19-minütiger Pause eingestellt. Nach Erreichen des konstanten Durchflusses wurde bei jedem Zylinder das Eluat quantitativ bestimmt und eine Probe für eine spätere Untersuchung auf den Urangehalt stabilisiert und rückgestellt (=Nullprobe).

Erst danach wurde eine Uran haltige Dotationslösung direkt auf die Bodensäulenoberfläche appliziert. Pro Zylinder wurden möglichst flächig verteilt 0.62 mg gelöstes Uran (als Uranylнитrat) mit 3.1 ml destilliertem Wasser mittels Kolbenhubpipette aufgebracht. Die Aufbringungsmenge entspricht der Fünfjahresfracht, welche bei der Verwendung des Phosphordüngers mit höchstem Urangehalt (517.5 mg U · kg⁻¹ P₂O₅) und einer Düngemenge von 90 kg P₂O₅ · ha⁻¹ entstehen würde. Diese hohen Mengen wurden gewählt, um im vorgegebenen Zeitraum eine deutlich messbare Durchbruchkurve zu erhalten. Anschließend wurde die Beregnung unter den oben genannten Bedingungen fortgeführt.

Fortan wurde von jeder Bodensäule wöchentliche der Durchfluss kontrolliert und eine Probe für die Uran-Analyse stabilisiert und rückgestellt. Die Stabilisierung erfolgte, indem das Eluat (=Sickerwassermenge) in einer 2000 ml Glasflasche aufgefangen wurde. Nach Abschluss der Sammelzeit wurde die Sickerwassermenge über das Gewicht bestimmt und anschließend die nötige Menge an konzentrierter HNO₃ zur Stabilisierung zugegeben (1 ml HNO₃ konz. auf 100 ml Sickerwasser). Die

Glasflasche mit dem Eluat wurde mind. 2 Stunden stehen gelassen, um etwaige Anlagerungen von Uran an den Glaswänden zu lösen. Anschließend wurde ca. 100 ml Probe abgefüllt und analysiert.

Um eine möglichst hohe Auflösung der Durchbruchkurve bei vorgegebener Analyseanzahl zur erreichen, wurde jeweils eine Probe pro Variante im dreiwöchigen Rhythmus, im späteren Verlauf des Versuchs im vierwöchigen Rhythmus analysiert, die restlichen wöchentlichen Proben rückgestellt. Die Proben des Zylinders 13 – jener Zylinder mit der höchsten Durchlässigkeit – wurden wöchentlich analysiert. Da die Ergebnisse keine eindeutige Durchbruchkurve erkennen ließen, wurden die wöchentlich rückgestellten Proben für jeden Zylinder separat zu vierteljährlichen Mischproben zusammengefasst.

Durchfluss

Entsprechend den Einstellungen der Pumpe betrug der mittlere wöchentliche Abfluss zwischen 11,5 und 12,9 $\text{mm} \cdot \text{d}^{-1}$ (Abbildung 21). Am 1. August 2015 ab ca. 15 Uhr war die Mikrolysimeteranlage durch einen Stromausfall außer Betrieb gesetzt. Durch einen Neustart der Anlage am 2. August 2015 um 07:30 konnte die Beregnungspause auf 16,5 Stunden begrenzt werden. In der betreffenden Woche war der Durchfluss gegenüber ungestörter Beregnungswochen im Mittel um 9,5 % reduziert.

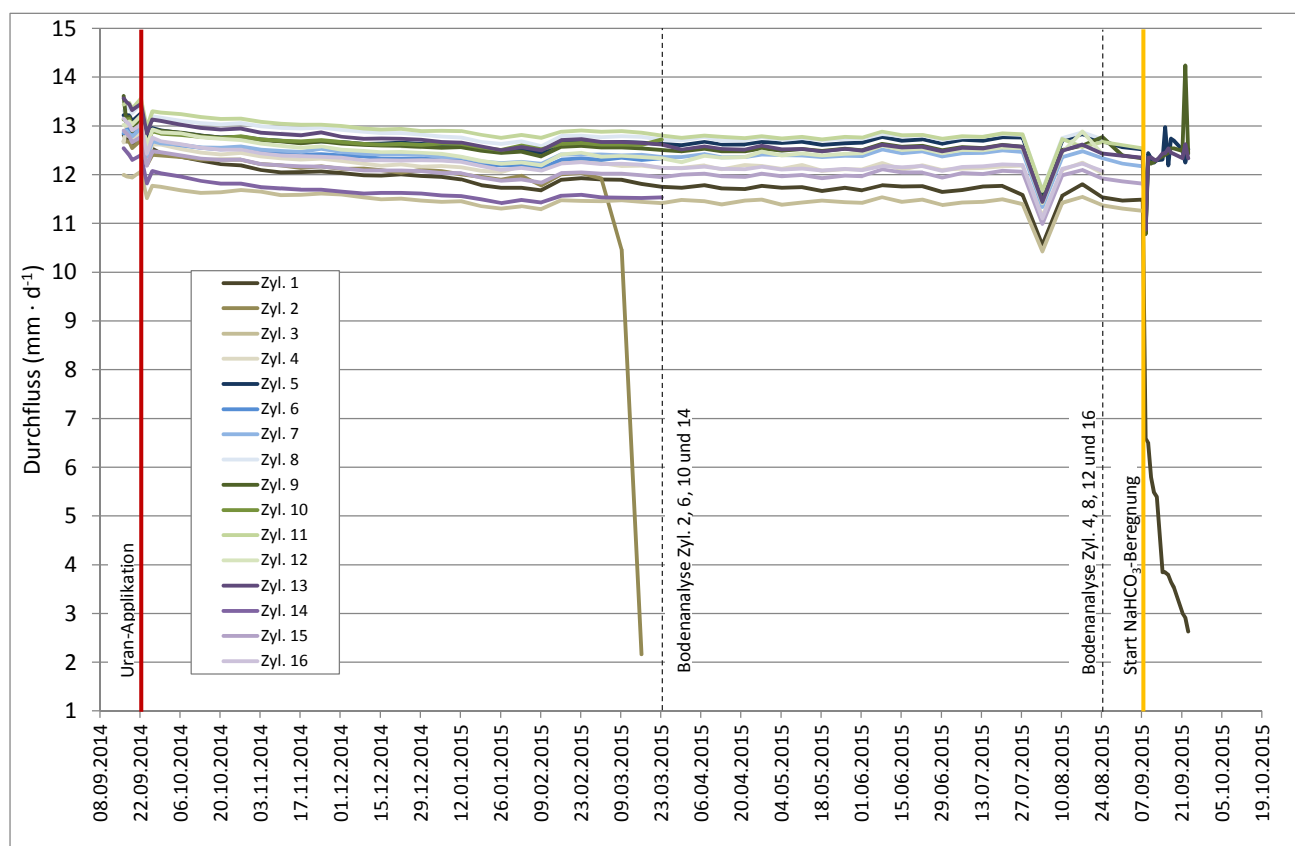


Abbildung 21: Durchfluss aller 16 Zylinder über den gesamten Versuchszeitraum mit eingezeichnetem Datum der vorzeitigen Bodenanalysen.

Beim Zylinder 2 kam es ab dem 23.02.2015 zu deutlich herabgesetzten Durchfluss und zu Rückstau des Beregnungswassers an der Oberfläche. Seit dem Start der Beregnung konnte bei allen Zylindern der Tiefenstufe 20-27,5 cm (1,2, 3 und 4) ein geringfügiger Sedimentaustrag und eine Färbung des

Sickerwassers beobachtet werden (Abbildung 22). Während bei den Zylindern 1,3 und 4 nach ca. 1 Monat kein Sedimentaustrag mehr zu beobachten war, wurde bei Zylinder 2 weiterhin Sediment ausgetragen. Offenbar wurden durch die hohe Beregnungsintensität und dem damit verbundenen hohen Wasseranteil nahe der Sättigung anoxische Verhältnisse erzeugt, die Veränderungen im Bodengefüge hervorriefen. Diese führten zur Verlagerung von feinen Bodenbestandteilen an die Zylinderunterseite. Am 23.3.2015 musste der Zylinder 2 schließlich vom System genommen werden, da kein Durchfluss mehr erfolgte. Gleichzeitig mit Zylinder 2 wurden auch die Zylinder 6, 10 und 14 vom System genommen. Der Grund hierfür lag einzig darin zum gleichen Zeitpunkt von jeder Tiefenstufe eine schichtenweise Bestimmung des Urangehalts im Boden durchzuführen (siehe Subkapitel Urangehalte Bodensäulen).

Nach dem Start der Beregnung mit NaHCO_3 -Lösung nahm der Abfluss bei Zylinder 1 und 3 deutlich ab. Durch den Rückstau des Beregnungswassers an der Oberfläche musste die Beregnungsintensität bei den Zylindern 1 und 3 zunächst auf die Hälfte, später auf ein Drittel reduziert werden, indem die Zubringerschläuche des Beregnungswassers dieser beiden Zylinder tageweise manuell von der Pumpe ab- und wieder angeschlossen wurden.

14 Tage nach dem Start der Beregnung mit NaHCO_3 -Lösung wurde die Beregnung allgemein gestoppt. Nachtropfendes Wasser (über Feldkapazität) wurde noch gesammelt und für die Analyse im Umweltbundesamt vorbereitet. Die Bodenzylinder wurden in 2,5 cm Schichten geschnitten und an die AGES zur Uranbestimmung übergeben.

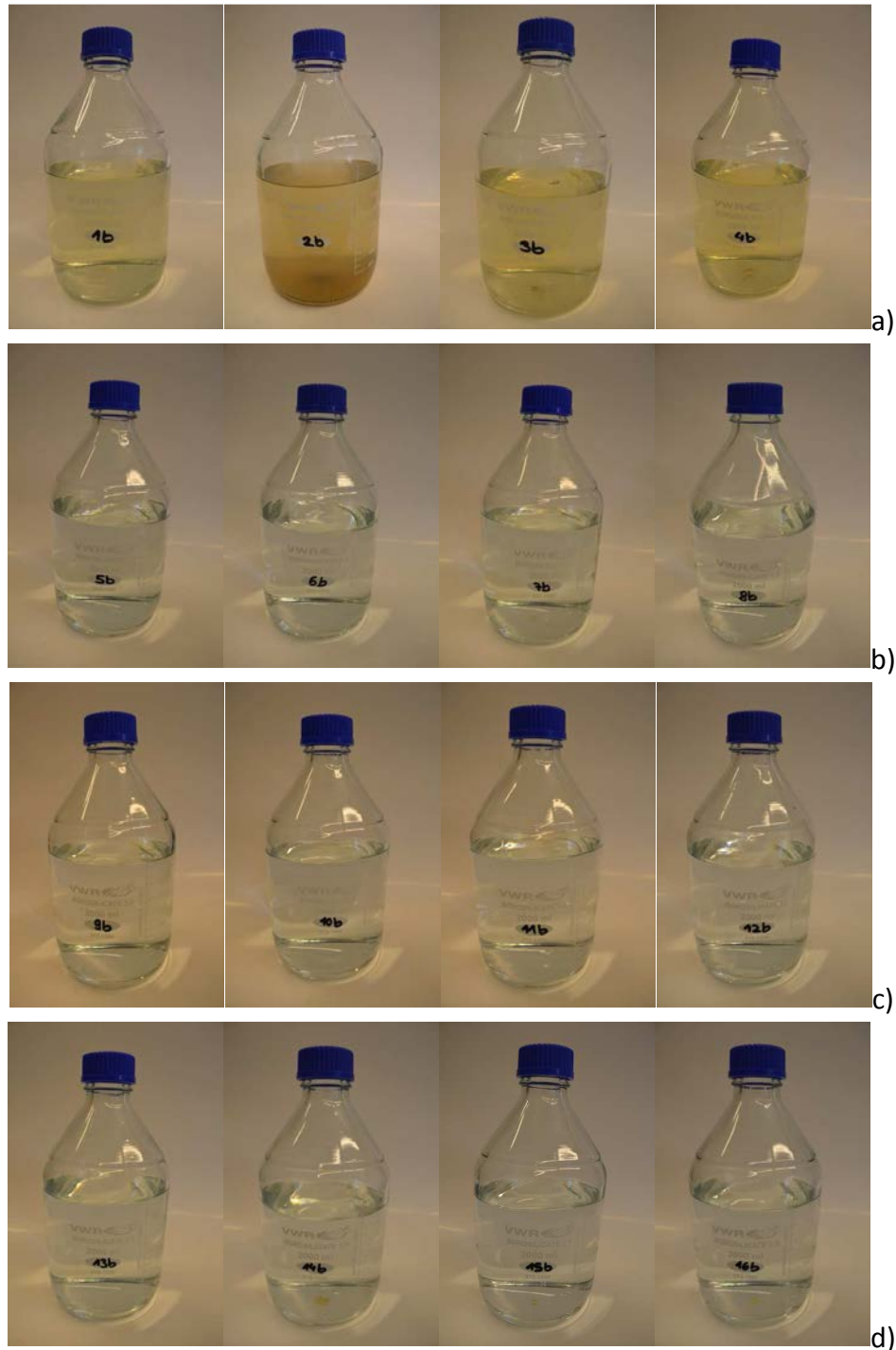


Abbildung.22: Färbung des Sickerwassers nach der zweiten Beregnungswoche aller 16 Zylinder, geordnet nach der jeweiligen Tiefenstufe der Bodenentnahme (a: 20-27,5 cm, b: 60-67,5 cm, c: 90-97,5 cm, d: 130-137,5 cm)

Urankonzentrationen im Sickerwasser

Bei den Zylindern der ersten Tiefenstufe (TS1 - Zyl. 1, 2, 3 und 4), wurden trotz Uranapplikation im Vergleich zur Nullprobe (vor Uranapplikation) keine Erhöhungen der Urankonzentration im Sickerwasser festgestellt (Abbildung 23-a). Im Gegenteil nahm die Urankonzentration im Laufe der Beregnung sowohl bei den Einzelmessungen des Zylinder 1 als auch bei den vierteljährlichen, zylinderreinen Mischproben ab.

Die Zylinder der Tiefenstufe 2 (TS2 - Zyl. 5, 6, 7 und 8) zeigten nach einem stabilen ersten Quartal eine leichte Erhöhung der Urankonzentrationen (Abbildung 23-b). Am stärksten ausgeprägt war diese bei Zylinder 8, bei dem es zu einem Anstieg von $1,20 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$ (Nullprobe) auf $3,30 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$ in der Mischprobe des dritten Quartals kam.

Die größte Auswirkung der Uranapplikation wurde bei den Zylindern der Tiefenstufe 3 (TS3 - Zyl. 9, 10, 11 und 12) beobachtet (Abbildung 23-c). Bereits die erste Probe (2 Wochen nach der Uranapplikation) des Zylinder 9 erreichte eine Urankonzentration von $5,60 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$ und damit das Maximum dieses Zylinders. Auch die Mischproben der Zylinder 9, 10, 11 und 12 sowie zusätzliche Einzelbestimmungen bestätigten den raschen Anstieg der Urankonzentrationen in der Tiefenstufe 3. Im zweiten Quartal pendelten die Werte wieder um den Wert der Nullprobe ($2,70 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$) und nahmen im weiteren Verlauf der Beregnung kontinuierlich ab.

Die Analysen der Sickerwässer der vierten Tiefenstufe (TS4 - Zyl. 13, 14, 15 und 16) zeigten ein konträres Bild im Vergleich zur Tiefenstufe 3 (Abbildung 23-d). Zuerst kam es im ersten Quartal zu einer Abnahme der Urangehalts im Vergleich zur Nullprobe ($0,94 \mu\text{g U} \cdot \text{L}^{-1}$). Im restlichen Verlauf der Beregnung waren die Urankonzentrationen deutlich erhöht, wobei eine erhebliche Streuung bei den Einzelmessungen des Zyl. 13 festzustellen war. Es konnte nicht festgestellt werden, wodurch einerseits die Abweichung zur Tiefenstufe 3 und andererseits die starke Streuung hervorgerufen wurde.

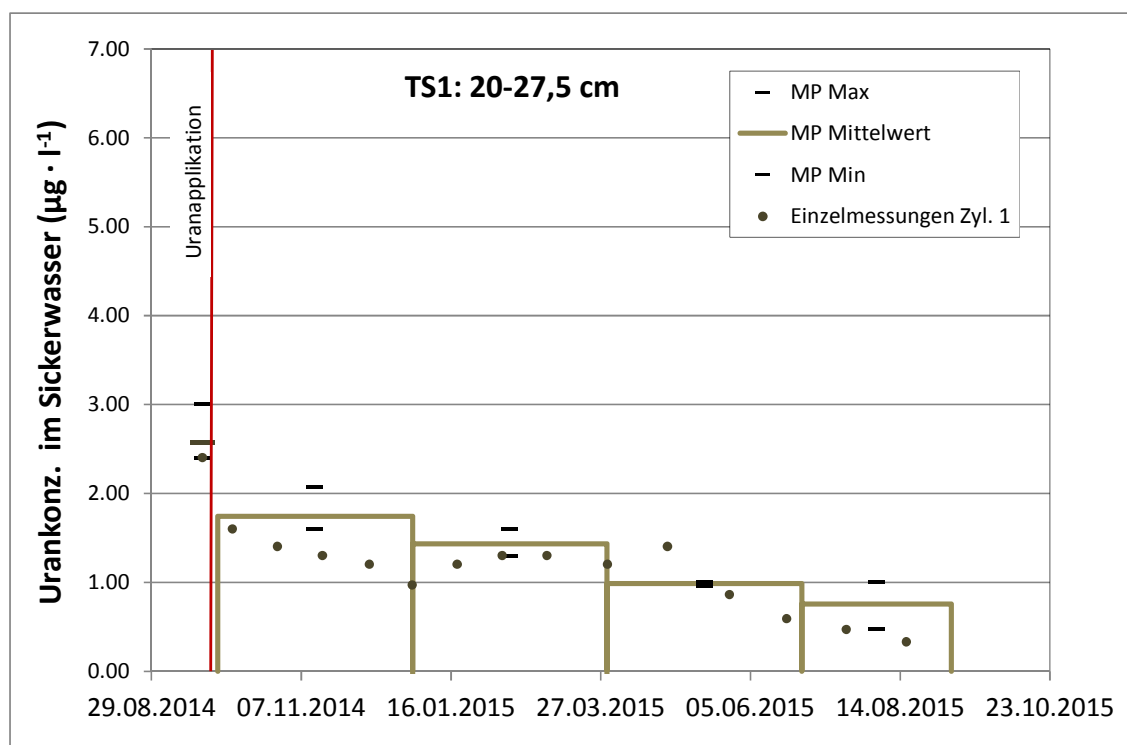


Abbildung 23-a: Urankonzentrationen im Sickerwasser der Tiefenstufe 1 vor und nach der Uranapplikation im drei- bzw. vierwöchigem Entnahmerhythmus des Zylinder 1 (Punkte) sowie als Mittelwert (MP Mittelwert), Maximum (MP Max) und Minimum (MP Min) der zylinderreinen Mischproben der Zylinder 1, 2, 3 und 4. Die Breite der Balken für den Mittelwert spiegelt den entsprechenden Zeitraum der Mischproben wider.

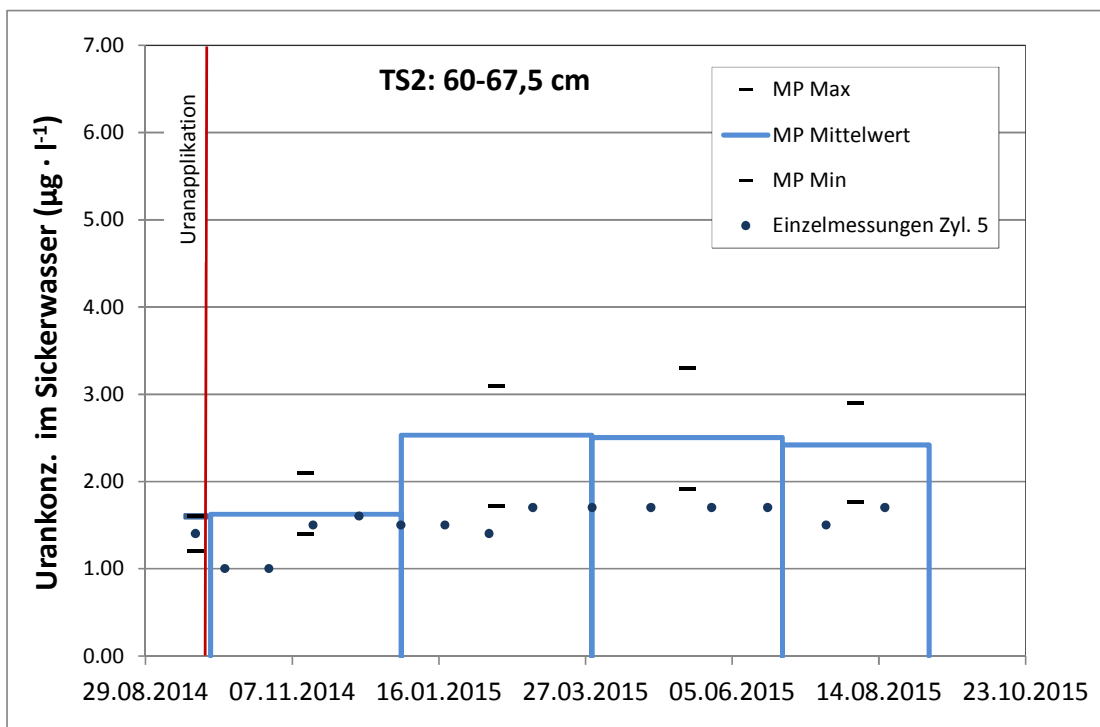


Abbildung 23-b: Urankonzentrationen im Sickerwasser der Tiefenstufe 2 vor und nach der Uranapplikation im drei- bzw. vierwöchigen Entnahmerhythmus des Zylinder 5 (Punkte) sowie als Mittelwert, Maximum und Minimum der zylinderreinen Mischproben der Zylinder 5, 6, 7 und 8. Die Breite der Balken für den Mittelwert spiegelt den entsprechenden Zeitraum der Mischproben wider.

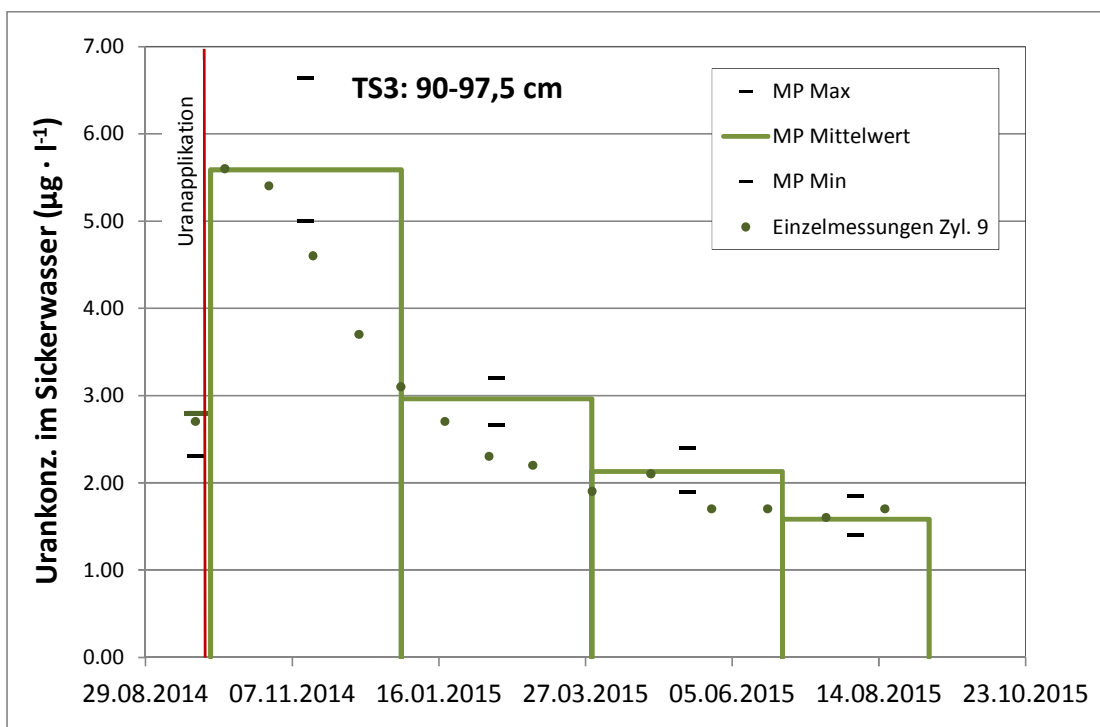


Abbildung 23-c: Urankonzentrationen im Sickerwasser der Tiefenstufe 3 vor und nach der Uranapplikation im drei- bzw. vierwöchigen Entnahmerhythmus des Zylinder 9 (Punkte) sowie als Mittelwert, Maximum und Minimum der zylinderreinen Mischproben der Zylinder 9, 10, 11 und 12. Die Breite der Balken für den Mittelwert spiegelt den entsprechenden Zeitraum der Mischproben wider.

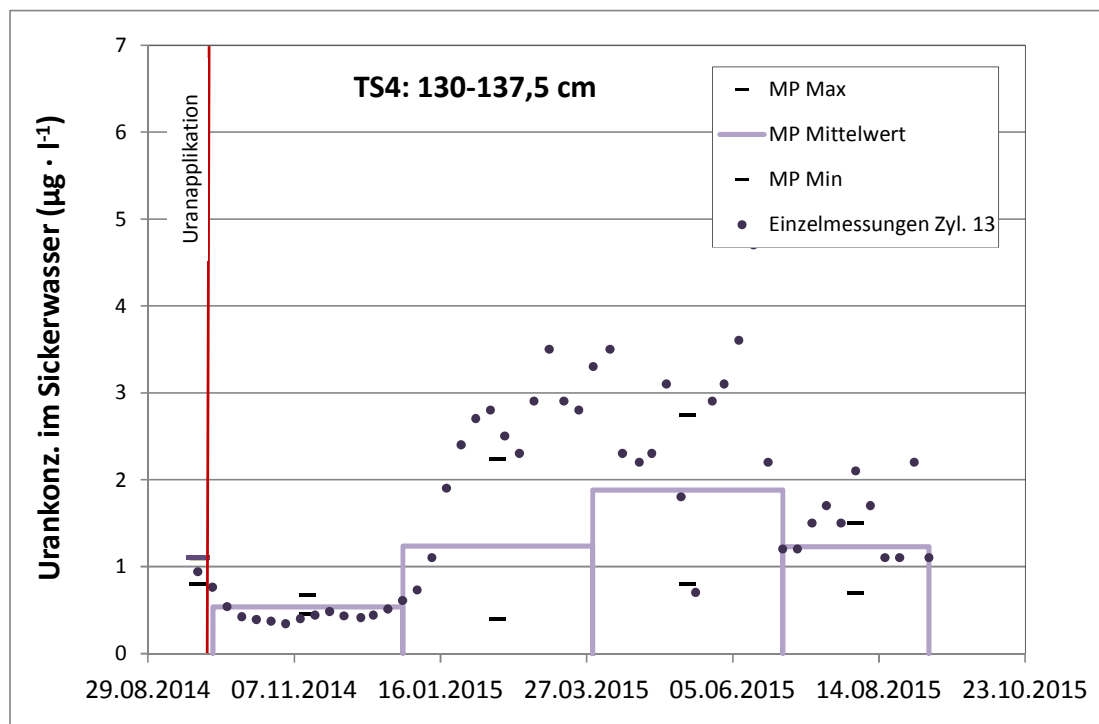


Abbildung 23-d: Urankonzentrationen im Sickerwasser der Tiefenstufe 4 vor und nach der Uranapplikation im einwöchigen Entnahmerhythmus des Zylinders 13 (Punkte) sowie als Mittelwert, Maximum und Minimum der zylinderreinen Mischproben der Zylinder 13, 14, 15 und 16. Die Breite der Balken für den Mittelwert spiegelt den entsprechenden Zeitraum der Mischproben wider.

Frachten

Werden die gemessenen Urankonzentrationen mit den Sickerwasservolumina verrechnet, kann die aufgebrachte Uranmenge mit durch das Sickerwasser ausgetragenen Frachten und adsorbierten Mengen (schichtenweise Bodenanalyse) verglichen werden. Die aufgebrachte Uranmenge war bei allen 16 Zylindern mit 620 µg gleich. Im Durchschnitt über alle Zylinder wurden 21,6 % der aufgebrachten Uranmenge über das Sickerwasser ausgetragen, wobei deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Tiefenstufen, aber auch zwischen den Wiederholungen innerhalb einer Tiefenstufe zu erkennen sind (Tabelle 32). Letztere sind hauptsächlich durch unterschiedliche Beregnungsdauern bedingt. Jeweils der zweite Zylinder jeder Tiefenstufe wurde nach 6 Monaten Beregnung vom System genommen, während die restlichen zwölf Zylinder fünf weitere Monate beregnet wurden.

Tabelle 32 : Uranaustrag und Austragsrate aller 16 Zylinder durch die sechs- bzw. elfmonatige Beregnung mit entionisiertem Wasser.

	TS 1				TS 2				TS 3				TS 4			
	Zyl.1	2	3	4	Zyl. 5	6	7	8	Zyl. 9	10	11	12	Zyl. 13	14	15	16
Austrag über SW (µg U)	91	60	88	90	135	103	161	203	229	166	268	242	136	19	113	43
Austragsrate (%)	14.7	9.6	14.2	14.5	21.7	16.6	26.0	32.8	37.0	26.7	43.3	39.0	21.9	3.0	18.2	7.0

Urangehalte der Bodensäulen

Für die Bodenanalysen wurden die 7,5 cm hohen Bodenzylinder in 5 Schichten zu je 2,5 cm geschnitten und in der AGES auf den Urangehalt des Bodens untersucht (Abbildung 24-a bis 24-d). Die Zylinder 2, 6, 10 und 14 wurden am 23.3.2015 nach 6 Monaten Beregnung von System genommen. Die Zylinder 4, 8, 12 und 16 folgten am 24.8.2015 nach 11 Monaten Beregnung. Die letzten acht Zylinder wurden mit einer $0,5 \text{ Mol} \cdot \text{L}^{-1}$ Natriumhydrogencarbonat-Lösung beregnet um eine gezielte Auswaschung von Uran aus dem Boden zu erreichen (Mason, 1997). Die Aufbringung erfolgte mittels Schlauchquetschpumpe über die bestehenden Beregnungsköpfe mit einer Intensität von ca. $12,5 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$. Die Dauer dieser Applikation betrug 2 Wochen.

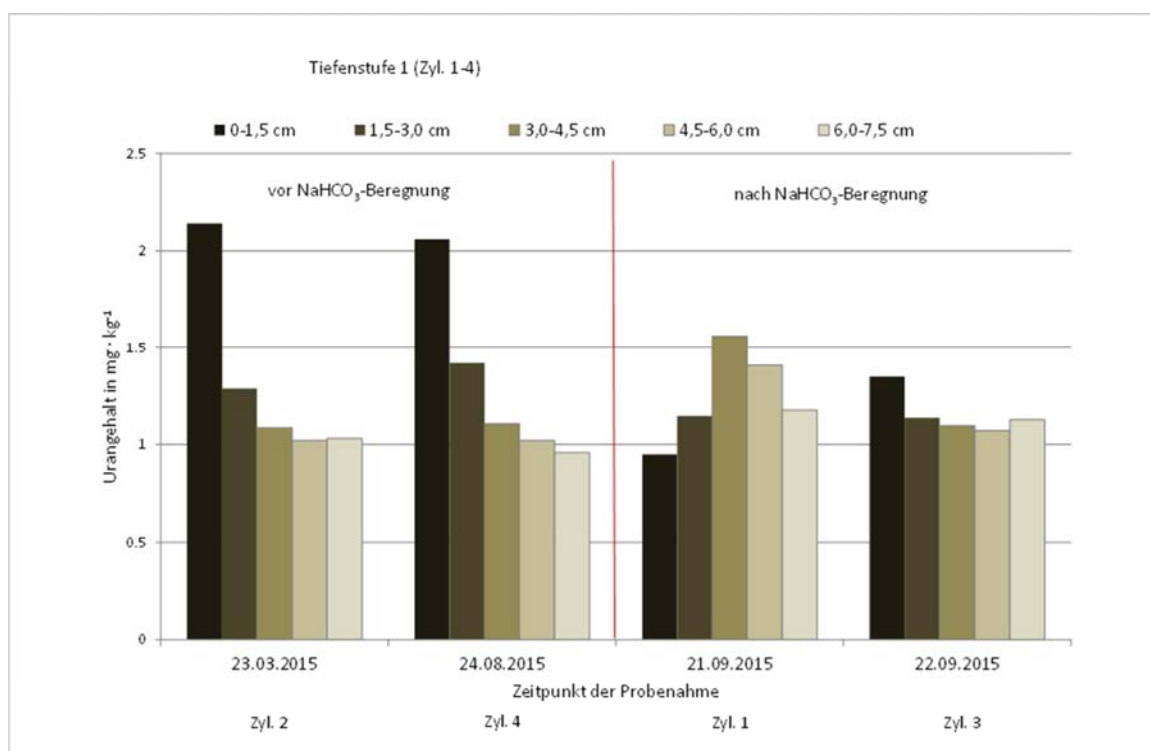


Abbildung 24-a: Urangehalt der fünf je 1,5 cm dicken Bodenschichten der Zylinder 1, 2, 3 und 4. Zylinder 2 und 4 wurden vor dem Start der Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat analysiert, die Zylinder 1 und 3 zwei Wochen danach.

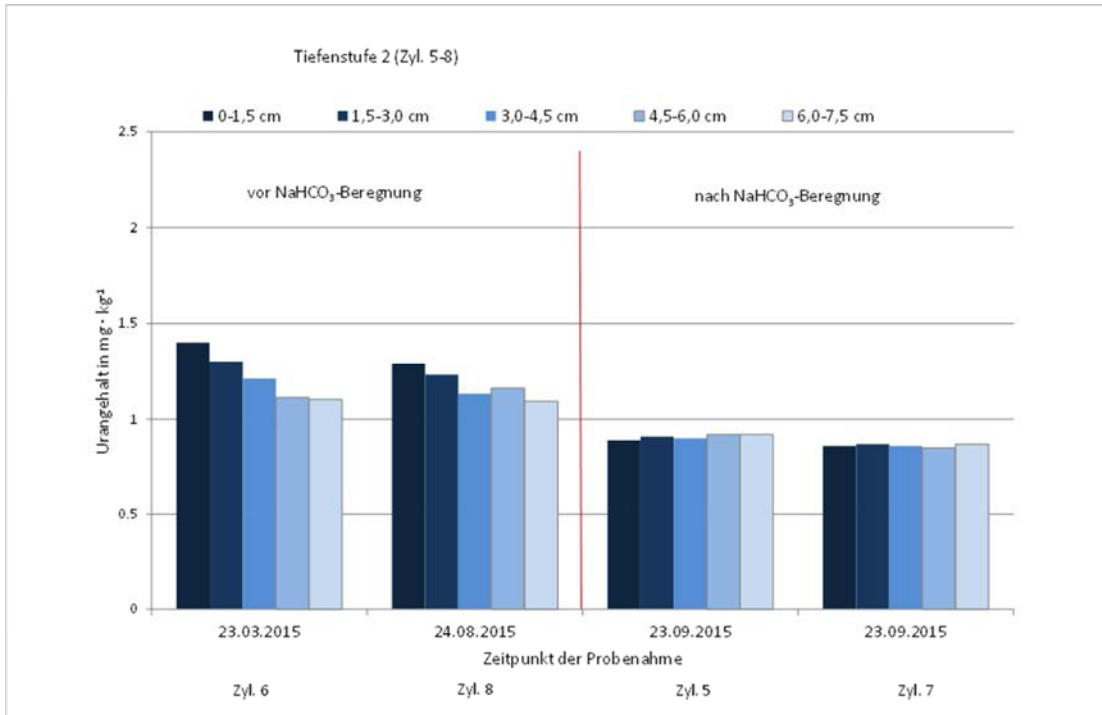


Abbildung 24-b: Urangehalt der fünf je 1,5 cm dicken Bodenschichten der Zylinder 5, 6, 7 und 8. Zylinder 6 und 8 wurden vor dem Start der Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat analysiert, die Zylinder 5 und 7 zwei Wochen danach.

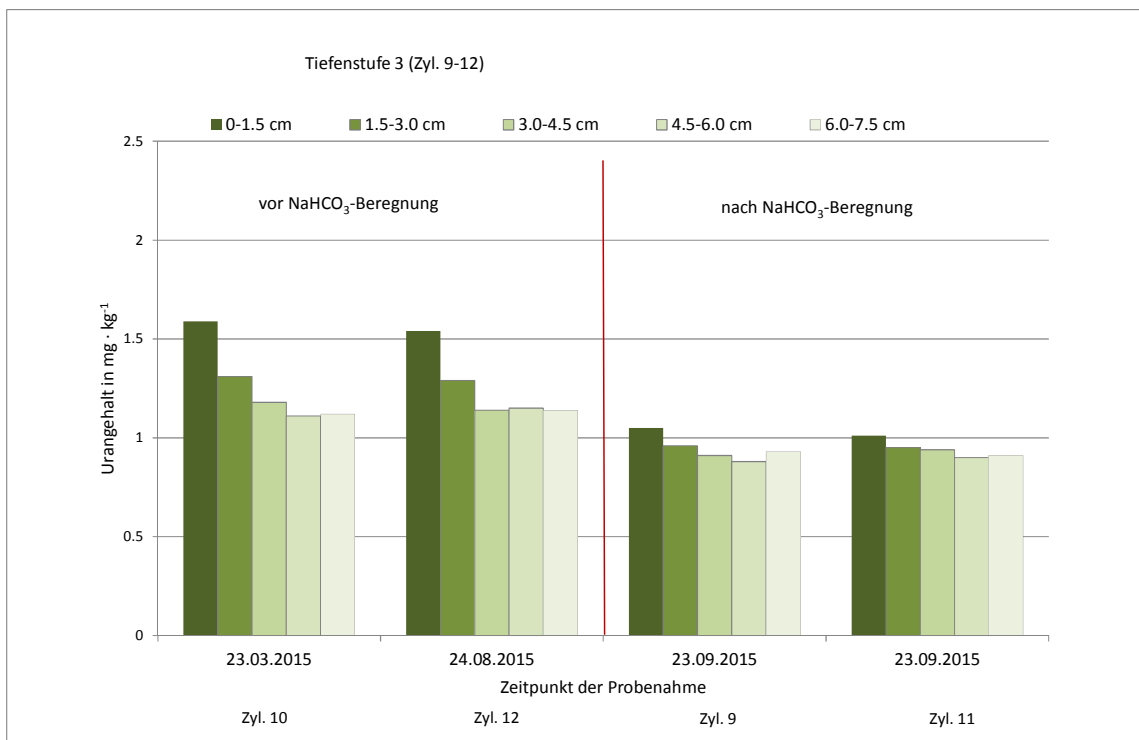


Abbildung 24-c: Urangehalt der fünf je 1,5 cm dicken Bodenschichten der Zylinder 9, 10, 11 und 12. Zylinder 10 und 12 wurden vor dem Start der Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat analysiert, die Zylinder 9 und 11 zwei Wochen danach.

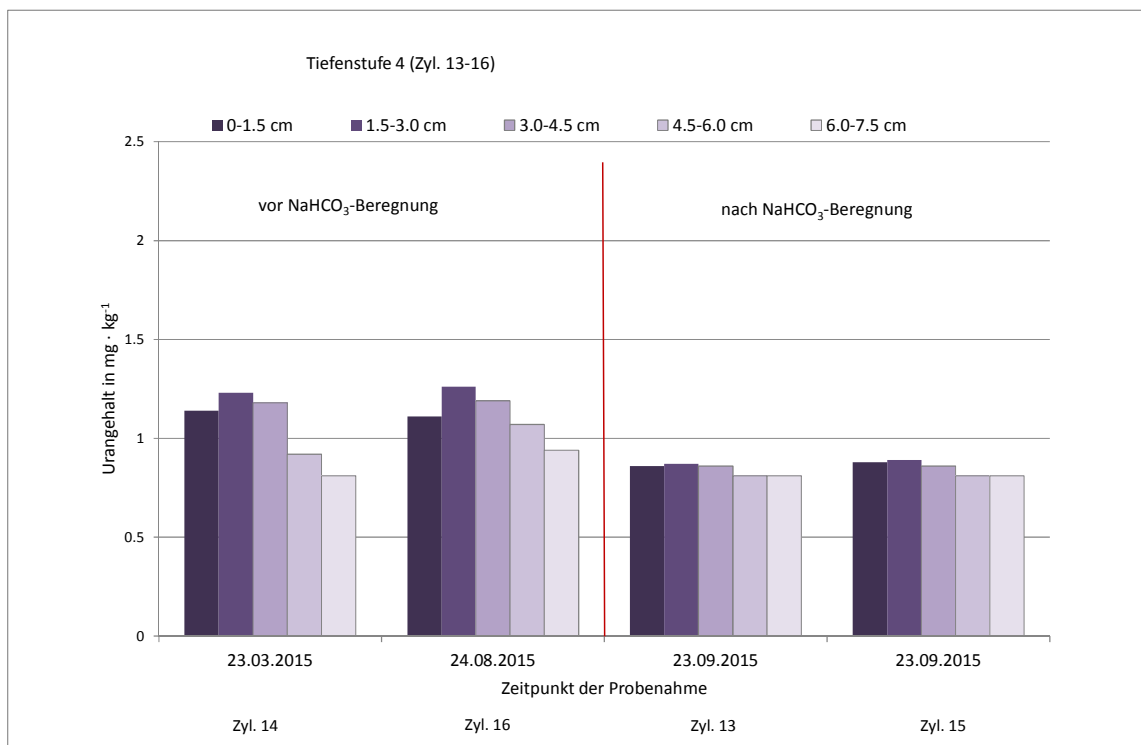


Abbildung 24-d: Urangehalt der fünf je 1,5 cm dicken Bodenschichten der Zylinder 13, 14, 15 und 16. Zylinder 14 und 16 wurden vor dem Start der Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat analysiert, die Zylinder 13 und 15 zwei Wochen danach.

Die ersten beiden Bodenanalysen vom 23.03.2015 und 24.08.2015 zeigen bei den ersten drei Tiefenstufen eine Anreicherung mit Uran in den obersten Bodenschichten. Mit zunehmender Tiefe innerhalb der Bodensäule nimmt der Urangehalt ab. Bei der vierten Tiefenstufe liegt das Maximum der Anlagerung in der 2. Bodenschicht. Es ist bei allen vier Tiefenstufen zu erkennen, dass der Schwerpunkt des Urangehaltes im Zeitraum vom 23.03.2015 und 24.08.2015 etwas nach unten gewandert ist, wenn auch nur sehr geringfügig. Erst nach dem Beginn der Auswaschung mit Natriumhydrogencarbonat am 07.09.2015 nahm der Urangehalt über alle Schichten ab und stabilisierte sich auf einem bestimmten Niveau, welches annähernd dem Ausgangsurangehalt des Bodens entsprach. Die Ausnahme hiervon ist die Tiefenstufe 1 (Zylinder 1 und 3). Dies ist bedingt durch die Reduktion des Durchflusses und der damit verbundenen Drosselung der Beregnung, wodurch die Auswaschung bei den beiden Zylindern nicht im gleichen Maße wie bei den anderen Tiefenstufen erfolgte (Tabelle 33).

Tabelle 33: Auswaschungsmenge und -rate durch die Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat-Lösung sowie Gesamtaustrag und -rate der gesamten Versuchsdurchführung (11 monatige Beregnung mit entionisiertes Wasser plus zweiwöchige Beregnung mit Natriumhydrogencarbonat-Lösung) der acht betroffenen Zylinder.

	TS 1		TS 2		TS 3		TS 4	
	Zyl.1	Zyl. 3	Zyl. 5	Zyl. 7	Zyl.9	Zyl.11	Zyl.13	Zyl.15
Auswaschung mit NaHCO ₃ (µg U)	18	84	536	776	474	632	196	489
Auswaschungsrate (%)	2.9	13.6	86.4	125.1	76.4	101.9	31.6	78.8
Gesamtaustrag (µg U)	109	173	670	937	703	900	332	601
Gesamtaustragsrate (%)	17.6	27.8	108.1	151.1	113.3	145.2	53.5	97.0

Auswaschungsraten über 100% sind möglich, da der Boden mit Uran vorbelastet war. Je nach Tiefenstufe waren vor der Uranapplikation im Boden zwischen 1,69 und 2,76 mg Uran pro Bodensäule gespeichert. Dies entspricht einem Urangehalt zwischen 0,85 und 1,21 mg U · kg⁻¹ Boden. Durch die starke Absenkung des pH-Wertes nicht nur das aufgebrachte Uran, sondern auch das zuvor im Boden gespeicherte Uran gelöst und über das Sickerwasser ausgetragen.

Bilanzen

Für die Bodensäulen mit geraden Zylindernummern (keine Auswaschung mit Natriumhydrogencarbonat) wurde eine Mengenbilanz berechnet (Abbildung 25). Die gesamte Kreisfläche symbolisiert die Applikationsmenge von 0,62 mg Uran. Die jeweiligen Teilflächen repräsentieren den Austrag über das Sickerwasser (blau), die Änderung des Urangehalts im Boden (braun) sowie die fehlende Menge auf 0,62 mg (rot). Bei der Tiefenstufen 2 wurde fast das gesamte applizierte Uran wiedergefunden (95%, 0,59 mg). Bei der Tiefenstufe 4 lag der nicht nachweisbare Anteil bei 21 % (0,13 mg), bei der Tiefenstufe 3 bei 47 % (0,29 mg). Einen Sonderfall stellen die Zylinder 2 und 4 der ersten Tiefenstufe dar. Hier wurde im Mittel um 0,01 mg mehr Uran nachgewiesen als appliziert wurde. Ein Grund hierfür könnte die Vorbelastung des Standortes sein.

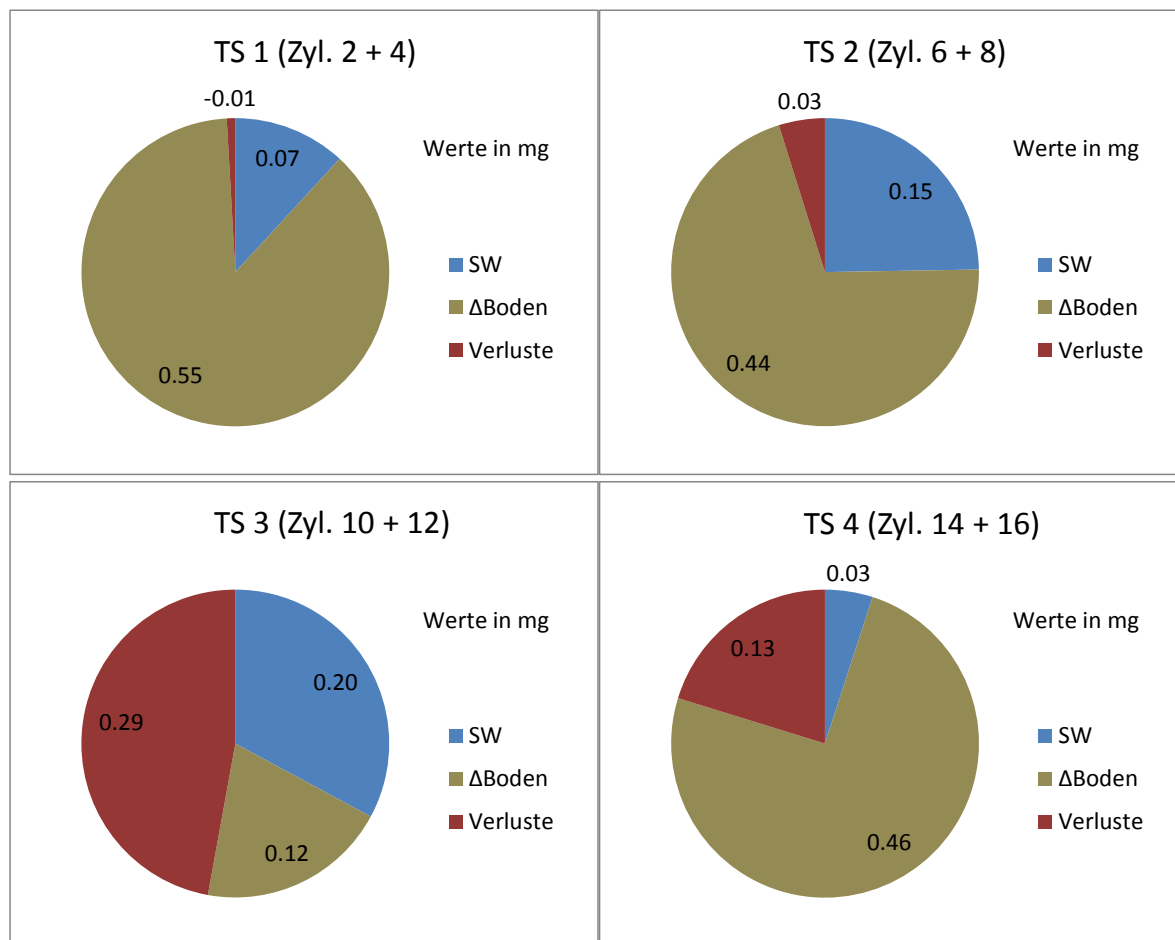


Abbildung 25: Mittlere Mengenbilanzen der Berechnung mit entionisiertem Wasser für die jeweiligen Tiefenstufen.

Modellierung

a) Parameteranpassung

Für die Ermittlung des Retardations- bzw. Diffusionskoeffizienten von Uran in Form von Uranylнитrat wurde der inverse Modus des Modells cxt.fit (Toride, 1995) verwendet. Als Eingangsdaten für die inverse Modellierung waren die Messergebnisse der Zylinder 1, 5, 9 und 13 vorgesehen, allerdings scheiterte eine Parameteranpassung bei den Zylindern 1 und 5 aufgrund der sehr schwach ausgeprägten Durchbruchkurve. Bei den Zylindern 9 und 13 war eine Anpassung möglich (Abbildung 26). Die Anpassung wurde im Modelltyp - deterministisch, zwei Regionen, physikalisches Ungleichgewicht - durchgeführt wodurch der Dispersionskoeffizient (D), der Retardationsfaktor (R), ein Gewichtungsfaktor für den Transport im Ungleichgewichtszustand (β) und ein Abbauparameter (μ) ermittelt wurden. Der Abbauparameter war in dieser Anwendung aufgrund der Wiederfindungsrate <1 erforderlich. Die ermittelten Transportparameter sind in Tabelle 34 zusammengefasst.

Tabelle 34: Güte der Anpassung (R^2) und ermittelte Transportparameter für die Zylinder 9 und 13. Dabei entsprechen D dem Dispersionskoeffizient, R dem Retardationsfaktor, β einem Gewichtungsfaktor für den Transport im Ungleichgewichtszustand und μ einem Abbauparameter.

Zylinder	R^2	D	R	β	μ
9	0.802	28.73	336	0.00018	3.42
13	0.684	2.372	117	0.00017	1.62

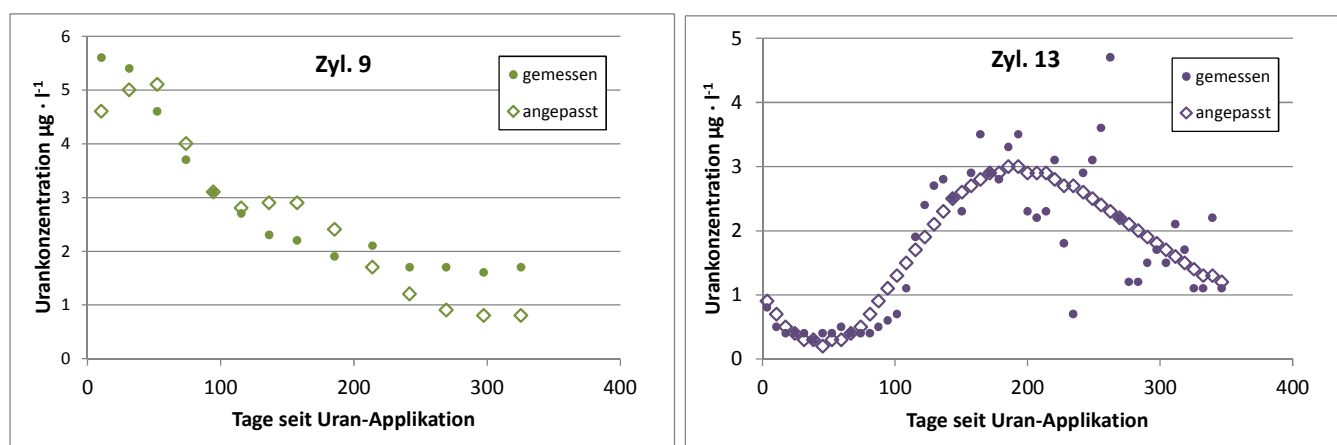


Abbildung 26: Anpassung an die Messwerte bei den Zylindern 9 und 13.

b) Simulation

Um den Transport von Uran aus phosphathaltigem Dünger bis ins Grundwasser abzuschätzen, wurde der direkte Modus des Modells cxt.fit mit den oben ermittelten Transportparametern verwendet. Es wurde zwei fiktive Einheitsböden mit den Eigenschaften der Zylinder 9 und 13 und einer Mächtigkeit von einem Meter ohne Vegetation modelliert. Der Jahresniederschlag entsprach dem durchschnittlichen Jahresniederschlag Österreichs von 1100 mm. Die jährliche Uranapplikation entsprach der Uranmenge, die bei einer jährlichen Düngung mit $90 \text{ kg P}_2\text{O}_5 \cdot \text{ha}^{-1}$ durch die Verwendung des Phosphordüngers mit dem höchsten gemessenen Urangelgehalt ($517.5 \text{ mg U} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ P}_2\text{O}_5$) aufgebracht wird. Die Ergebnisse sind in Abbildung 27 dargestellt.

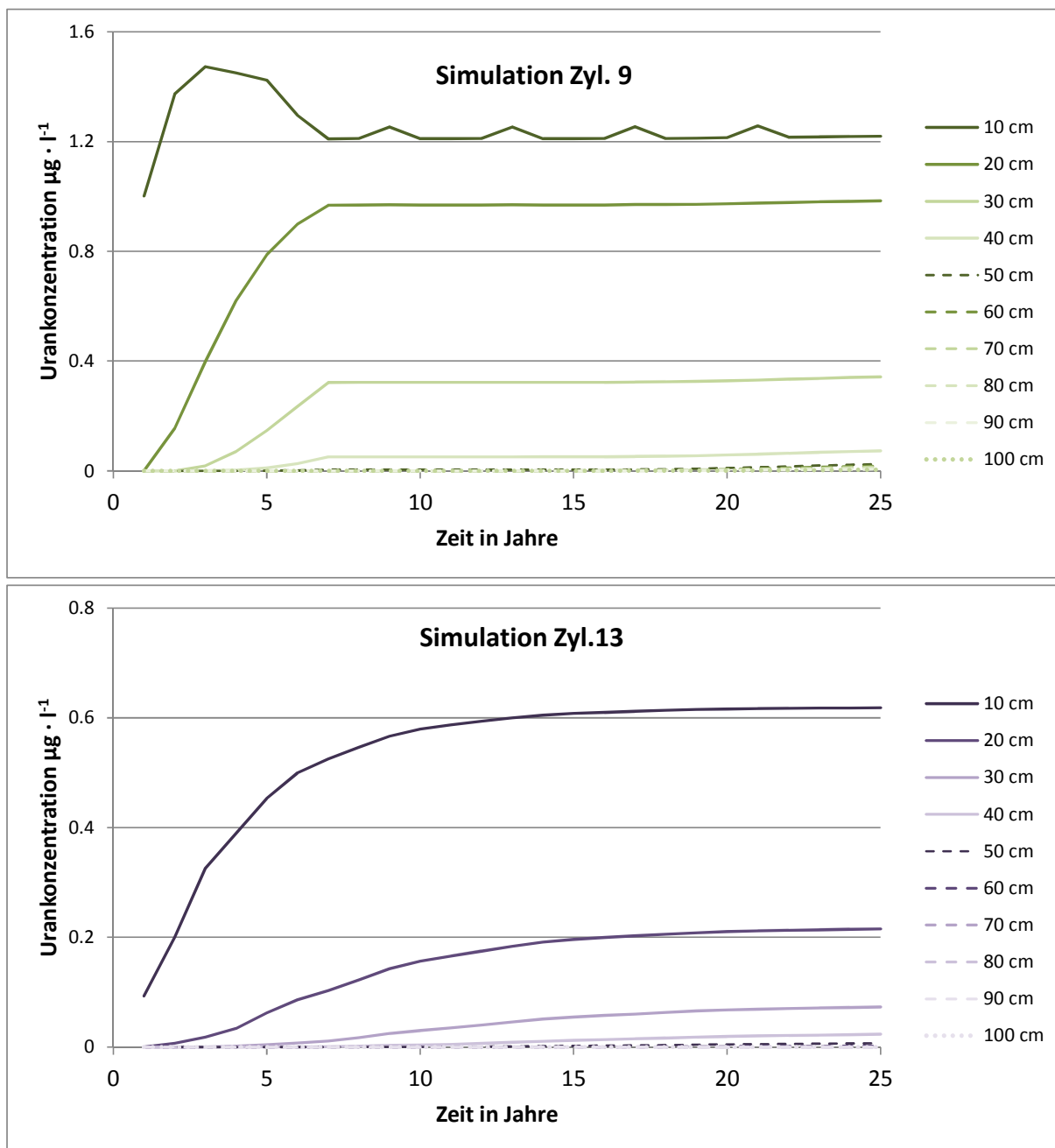


Abbildung 27: Simulation des Urantransports in zwei uniformen, ein Meter mächtigen Böden mit den Eigenschaften der Zylinder 9 und 13.

Es wird darauf hingewiesen, dass hier nur eine grobe Abschätzung erfolgen kann, da die Parameterermittlung im quasi-gesättigten Bereich erfolgte, ein Zustand, der in der Natur nur kurzfristig nach starken Niederschlagsereignissen auftritt. Weiter wurde eine mögliche Uran-Aufnahme durch die Pflanze in dieser Modellierung nicht berücksichtigt. Eine mögliche Temperatur- oder pH-Wert-Abhängigkeit der Transport-, Diffusions- und Adsorptionsprozesse blieb genauso wie eine mögliche direkte Verlagerung von Uran in Makroporen bei Starkniederschlägen ebenfalls unberücksichtigt.

Fazit

Nach der Uranapplikation (Uranylhydrat) und elfmonatiger Beregnung wurde für unterschiedliche Tiefenstufen, die durch verschiedene Bodeneigenschaften gekennzeichnet sind, zwischen 14,5 und 39,8 % der aufgebrauchten Uranmenge über das Sickerwasser ausgetragen. Der Austrag erfolgte über einen langen Zeitraum mit nur undeutlich erhöhter Konzentration im Vergleich zur Basisbelastung des Sickerwassers. Der höchste Austrag erfolgte in der Tiefenstufe 3 bei einem sandigen Lehm mit geringem Humusgehalt (0,8 %). Bei der gleichen Bodenart, aber höherem Humusgehalt (2,3 %) in der Tiefenstufe 1 wurde hingegen die geringste Austragsrate von 14,5 % gemessen. Eine Abhängigkeit des Austragsverhaltens von Uran vom Humusgehalt scheint somit gegeben. Ein Zusammenhang zwischen Bodenart und Uran-Austragsverhalten konnte nicht belegt werden. Ein Grund hierfür liegt möglicherweise darin, dass nur ein sehr enges Feld (vorwiegend sandige Bodenarten) vom gesamten Spektrum der Bodenarten verwendet wurde und schluff- und tonreiche, strukturierte Böden nicht untersucht wurden.

Trotz der hohen Beregnungsintensität, die einer Niederschlagsmenge von ungefähr 4560 mm pro Jahr entspricht, und der erhöhten Uranapplikationsmenge im Ausmaß der fünffachen Jahresfracht des am stärksten belasteten Düngers, konnte innerhalb der Projektlaufzeit (trotz Verlängerung) nur eine angedeutete Durchbruchskurve beobachtet werden, wodurch eine Ableitung von Retardation-, Diffusions- und Dispersionsparameter nur bedingt möglich war. Die im Vergleich zu natürlichen Sickerwässern nur unwesentlich erhöhten Urangelhalte im Sickerwasser der Mikrolysimeteranlage sowie die Simulationsergebnisse lassen kein unmittelbares Risiko für das Grundwasser durch die Anwendung uranhaltiger Phosphatdünger erkennen, auch wenn bei den Säulenversuchen bis zu 40% des applizierten Urans mit dem Sickerwasser ausgetragen wurden. Erstens muss hier auf die fünffache Uranaufbringungsmenge, die deutlich überhöhte Beregnungsmenge und die geringe Probenhöhe hingewiesen werden. Zweitens kam es aufgrund der hohen Adsorption, Dispersion und Diffusion zu einer deutlichen Streckung der Durchbruchskurve und daher nur zu einer geringen Erhöhung der Urankonzentrationen im Vergleich zu der natürlichen Belastung. Allerdings muss hier angeführt werden, dass Uran bei einem Starkregen unmittelbar nach der Düngeraufbringung und der Verwendung von schnell löslichen Düngern über Makroporen schneller in die Tiefe verlagert werden könnte, wodurch es kurzfristig zu Erhöhungen der Urankonzentration im Grundwasser kommen kann. Langsam lösliche Dünger wirken diesem Gefahrenpotential entgegen.

7 Allgemeine Diskussion der Einträge von Uran im Rahmen der Phosphatdüngung - eine Frachtenabschätzung

Im Rahmen eines Auftrages von Eurostat wurden vom Umweltbundesamt die Phosphorbilanzen für alle NUTS3 Gebiete Österreichs ermittelt (Statistik Austria 2010).

In den nachfolgenden Tabellen ist die durchschnittliche Versorgung mit Phosphat für Österreich (Tabelle 35), die Bundesländer (Tabelle 36) und die NUTS3 Gebiete (37) wiedergegeben. Dabei zeigte sich eine deutliche Unterversorgung. Diese wird durch die Ergebnisse der jährlich freiwillig zur Analyse des pflanzenverfügbaren Phosphors eingereichten Bodenproben der Landwirte bei der AGES auch bestätigt (AGES, 2011). Schwachstellen der Bilanzen sind die räumliche Verteilung und die wahrscheinlich

unvollständige Erfassung der P-Düngemengen. Die räumliche Verteilung wurde basierend auf den Bedarfsmengen der Kulturen geschätzt und der Bedarf einerseits durch Wirtschaftsdüngeraufkommen und andererseits bestmöglich durch die Verkaufsmengen an Düngern abgeschätzt.

Bekannt ist, dass in den 80-er Jahren des vorigen Jahrhunderts die meisten Ackerstandorte großzügiger mit P-Düngern versorgt wurden. Möglicherweise kann der Bedarf durch diesen Vorrat teilweise abgedeckt werden, sodass keine Mangelercheinungen auftreten. Gleichzeitig könnten aber auch die unvollständig erfassten Verkaufszahlen an Dünger dieses merkbare Defizit nur suggerieren.

Die Wahrscheinlichkeit ist daher groß, dass künftig vermehrt auf Standorten ohne Wirtschaftsdüngeranwendung die P-Versorgung über den Bedarf hinaus auch eine Grundversorgungskomponente enthalten wird. Dies bedeutet, dass die Bedarfszahlen in Tabelle 38 um einen Zuschlag zu erweitern wären.

Tabelle 35: Österreichische Phosphorbilanz 1995 bis 2007 in t P

Österreich	1995	1999	2003	2005	2007
Phosphor Input	67551,21	62499,92	56849,54	53011,85	54242,76
Mineraldünger	26160,00	23326,00	19707,20	15826,80	16524,40
exp. organ. Dünger	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Düngerinput					
Wirtschaftsdünger	36548,67	34505,01	31783,34	30927,84	30941,57
Deposition	3374,49	3315,01	3174,79	3158,42	3106,46
biolog. Fixierung	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Saatgut	647,74	630,02	615,18	607,14	615,76
Klärschlamm	559,00	559,00	624,53	624,53	624,53
Kompost	80,00	80,00	880,00	1713,16	1713,16
imp. organ. Dünger	181,31	84,87	64,50	153,95	716,88
Phosphor Output	68597,08	71627,11	57947,78	73857,77	65470,21
Pflanzenentzug	68139,72	71233,13	57416,47	73121,91	64981,75
Wein Obst Gemüse	457,36	393,98	531,32	735,86	488,46
Bilanz input - entzug	⁻¹ 045,87	⁻¹ 9127,20	⁻¹ 098,24	⁻¹ 20845,92	¹ 1227,46
	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Bilanz in kg /ha	-0,32	-2,80	-0,35	-6,73	-3,70

Tabelle 36: Phosphorbilanz der Bundesländer in kg P ha⁻¹

Bundesland	1995	1999	2003	2005	2007
B	16.6	12.9	12.3	3.8	9.0
NÖ	4.6	-0.1	4.5	-5.2	1.0
W	106.3	53.4	43.9	29.7	41.3
K	-5.2	-6.0	-4.5	-6.9	-6.3
St	-3.2	-3.0	⁻¹ 1.8	-6.5	-5.7
OÖ	-5.5	-8.9	-5.1	⁻¹ 2.9	⁻¹ 0.0
S	-4.2	-4.9	-3.9	-4.8	-4.0
T	-3.9	-4.3	-3.6	-5.6	-4.4
V	-3.7	-2.7	-2.8	-6.9	-4.7

Tabelle 17: Ergebnisse der P-Bilanzen in den NUTS3-Gebieten in kg P ha⁻¹

Bundesländer Nr	NUTS3 Bezeichnung	1995	1999	2003	2005	2007
1	AT111	2.5	21.0	24.2	9.9	17.3
1	AT112	35.8	24.6	21.2	10.3	19.5
1	AT112	35.8	24.6	21.2	10.3	19.5
1	AT113	⁻¹ 0.2	⁻¹ 1.6	-8.6	⁻¹ 0.3	⁻¹ 3.2
3	AT121	-4.5	-6.5	-2.1	-9.1	-6.4
3	AT122	-6.9	-7.9	⁻¹ 1.6	-9.5	-3.5
3	AT123	-8.8	⁻¹ 2.6	-5.7	⁻¹ 7.8	-9.8
3	AT124	-8.6	⁻¹ 0.1	-4.5	⁻¹ 1.1	-6.8
3	AT125	24.0	19.1	17.4	7.7	17.6
3	AT126	11.2	1.6	7.7	-5.1	1.0
3	AT127	33.5	17.4	26.3	8.3	16.6
9	AT130	106.3	53.4	43.9	29.7	41.3
2	AT211	-6.4	-7.8	-5.6	-9.4	-8.1
2	AT212	-4.7	-4.9	-3.8	-5.2	-5.0
2	AT213	-5.3	-6.8	-5.0	-8.2	-7.0
6	AT221	-6.0	-7.1	-2.3	-9.0	-6.7
6	AT222	-5.3	-4.6	-6.1	-5.2	-7.9
6	AT223	-6.5	-5.9	-3.4	-5.6	-6.6
6	AT224	0.8	0.7	1.6	-5.8	-3.5
6	AT225	-2.5	-2.5	⁻¹ 1.5	⁻¹ 0.1	-7.6
6	AT226	-5.2	-4.7	-2.6	-5.3	-4.7
4	AT311	⁻¹ 1.5	-4.2	⁻¹ 1.5	-9.3	-8.1
4	AT312	⁻¹ 3.4	⁻¹ 7.9	⁻¹ 4.8	-20.0	⁻¹ 9.4
4	AT313	-6.2	-8.5	-2.2	⁻¹ 5.4	-7.5

Bundesländer Nr	NUTS3 Bezeichnung	1995	1999	2003	2005	2007
4	AT314	-4.9	-7.9	-6.2	-9.8	-8.6
4	AT315	-3.1	-9.1	-4.6	⁻¹ 0.4	-7.3
5	AT321	-4.4	-4.9	-4.1	-4.1	-2.9
5	AT322	-4.6	-4.9	-4.6	-4.9	-4.3
5	AT323	-3.2	-5.0	-2.2	-4.8	-3.9
7	AT331	-6.2	-6.6	-8.8	-8.1	-7.3
7	AT332	-3.2	-5.0	-3.2	-5.6	-3.1
7	AT333	-4.5	-4.4	-3.6	-5.1	-4.7
7	AT334	-4.5	-4.7	-3.7	-6.0	-4.8
7	AT335	-2.9	-3.2	-2.8	-5.2	-4.0
8	AT341	-4.1	-3.2	⁻¹ .5	-5.8	-3.4
8	AT342	-2.6	⁻¹ .6	-5.8	-9.3	-7.4

Quelle: Statistik Austria (2010)

Gemäß den Richtlinien für die sachgerechte Düngung (BMLFUW, 2006) sind im Ackerland bei geringer Versorgung bis zu 50%, im Grünland bis zu 40% Zuschlag zur Düngemenge, die für optimal versorgte Böden (Gehaltsklasse C) vorgegeben ist, möglich.

Tabelle 38: Phosphatdünger-Bedarf bei Vorliegen der Gehaltsklasse C- Empfehlung für ausgewählte Kulturgruppen, zusammengefasst aus den Tabellen 30 und 34 der Richtlinie für die sachgerechte Düngung (BMLFUW, 2006):

Kultur	Empfehlung in kg P ₂ O ₅ /ha
Getreide	55
Hackfrüchte	60 bis 90
Öl- und Eiweißpflanzen	65 bis 75
Zwischenfrüchte ohne Leguminosen	25
Sonderkulturen	55 bis 60
Feldfutter klee- bzw. grasbeton	65 bis 70
Sämereien, Vermehrung Acker	60 bis 100
Dauer- und Wechselwiese je nach Schnitte	30 bis 85
Dauerweide	15 bis 60
Feldfutter	65 bis 70
Sämereien Grünland	60 bis 100
Feldgemüse	15 bis 60

Die in Tabelle 38 angeführten P-Düngerempfehlungen gelten für die Versorgungsstufe C. Die Einstufung der Standorte erfolgt mit Hilfe von Bodenanalysen. Sind Versorgungsstufen D und E gegeben, werden von den Empfehlungen Abschläge (50 bzw. 100%) gemacht, für die Versorgungsstufen A, B sind Zuschläge bis zu 50% der Empfehlungen zulässig.

Frachtenberechnung

Nachfolgend werden für Grünland und Ackerland zwei Szenarien für mögliche Frachten mit unterschiedlichen Annahmen für die Düngermenge, die Uranbelastung der P-Dünger und die Uran-Vorbelastung der Standorte berechnet.

A) Maximal ungünstige Annahmen:

Die maximal mögliche Düngung von 100 kg P_2O_5 mit einem 40%igen Zuschlag (niedrige P-Versorgung) ergibt eine Gesamtmenge von 140 kg P_2O_5 . Bei einem angenommenen Urangehalt von 517 mg U/kg P_2O_5 (Maximalwert der analysierten Düngerproben) ergibt sich ein jährlicher Eintrag von 72,4 g pro Hektar.

Als Vorbelastung des Bodens mit Uran wird der Maximalwert der analysierten Bodenproben angenommen (5,39 mg U/kg).

Die jährliche Anwendung der oben genannten Düngermenge würde in 100 Jahren im Ackerland den U-Gehalt bezogen auf 30 cm Krumentiefe um 41% erhöhen. Die U-Gehalte im Boden würden auf 7,6 mg U/kg Boden ansteigen.

Da für Grünland nur eine Krumentiefe von 10 cm angenommen wird, würde sich bei gleichen Aufwandmengen der Gehalt in 100 Jahren auf 10,9 mg U/kg Boden verdoppeln.

Dieses Szenario kann allerdings sowohl im Ackerland als auch im Grünland als sehr unrealistisch eingestuft werden. Einerseits ist nicht mit derart hohen P-Aufwandmengen über längere Zeiträume zu rechnen, da damit auch die P-Versorgung des Standortes unzulässig und unsinnig angehoben werden würde. Zusätzlich ist insbesondere für Grünland ein Einsatz von derart hohen Mengen mineralischer P-Dünger sehr unrealistisch. Basierend auf den Kalkulationsannahmen kann jedoch grundsätzlich gefolgert werden, dass U-Einträge ins Grünland aufgrund der geringeren Krumentiefe prinzipiell als sensibler eingestuft werden müssen.

B) Durchschnittliche Annahmen

Für dieses Szenario wurden wahrscheinlichere Annahmen für ertragreiche Standorten mit einer Düngung von 80 kg P_2O_5 und einem Urangehalt der Düngemittel mit 294 mg U /kg P_2O_5 als Grundlage für die Berechnung herangezogen. Die Vorbelastung mit Uran im Boden wurde mit 1,0 mg U/kg angenommen. Aus dieser Düngermenge ergibt sich in 100 Jahren für Ackerland auf 30 cm Krumentiefe eine Erhöhung des U-Gehalt auf 1,71 mg U/kg Boden, dies entspricht einem Anstieg um 71%.

Bei einer Krumentiefe von 10 cm im Grünland würde sich der Gehalt in 100 Jahren auf 2,8 mg U/kg Boden beinahe verdreifachen.

Auch in diesem Fall ist aber von einem lediglich geringen Einsatz mineralischer P-Dünger im Grünland auszugehen, sodass die Annahmen einen lediglich theoretischen Wert darstellen.

Das durchschnittliche Szenario zeigt auf sehr niedrigem Niveau die Sensitivität von Grünlandstandorten für U- Einträgen an. Da jedoch selbst bei den maximal ungünstigen Annahmen des Szenarios A der – im Fazit des Kapitels 3 angeführte – vorläufige Orientierungsbereich von 0,35 und 3,3 mg Uran/kg Boden

nicht deutlich überschritten wird, ist keine Gefährdung durch den Eintrag von Uran durch P-Dünger mit den derzeit festgestellten U-Gehalten zu erwarten.

Grundwasserbelastung durch Sickerwasser

Der Austrag von U ins Grundwasser wird im Boden von vielfältigen chemisch-physikalischen Faktoren gesteuert (siehe Kapitel 6), wobei sich auch in dieser Studie eine Akkumulation in den humusreichen Bodenschichten zeigte. Eine eindeutige Klärung der Mechanismen einer Verlagerung konnte allerdings auch durch die im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Versuche nicht erreicht werden. In den Freilanduntersuchungen wurden Konzentrationen im Sickerwasser von bis zu $4,6 \mu\text{g L}^{-1}$ gemessen. Die höchsten Konzentrationen traten auf einem eher durchlässigen Standort auf. Sickerwässer sind in Trockengebieten in der Regel immer mit hohen Konzentrationen an gelösten Stoffen befrachtet, die sich aber im Grundwasserkörper zumeist nicht in dieser Höhe feststellen lassen.

Da die in situ erfassten U-Konzentrationen im Sickerwasser deutlich unterhalb des Trinkwassergrenzwertes von $15 \mu\text{g U/L}$ lagen, kann über diesen Eintragspfad bis auf weiteres nicht von einer Gefährdung der Grundwasserqualität in Bezug auf Uran ausgegangen werden.

Fazit

Basierend auf den derzeit vorliegenden Ergebnissen für Urangehalte in P-Düngern, den Aufwandmengen und den Gehalten in Sickerwässern ist von keiner unmittelbaren Gefährdung des Grundwassers auszugehen. Es kann allerdings zu Erhöhungen des Urangehalts in Böden kommen, was auch in den Feldversuchen der AGES gezeigt werden konnte (Kapitel 3). Wesentlich dabei ist allerdings auch der aktuelle Urangehalt des Bodens. Die Gehalte an Uran im Boden sollten daher in geogen vorbelasteten oder sensiblen Regionen erhoben werden. Die Vorbelastung der Standorte – insbesondere der Grünlandstandorte - ist entscheidend, ob ein hohes P-Düngerniveau mit U-belasteten Mineraldüngern langfristig für die Bodenbelastung mit U problematisch sein könnte.

Hohe Bedeutung kommt mittelfristig der U-Belastung der mineralischen P-Dünger zu, für die eine Tendenz einer Verschlechterung angenommen werden kann (siehe Kapitel 3). Ein Monitoring dieses Parameters bei den Mineraldüngeranalysen ist daher notwendig. Zur Einführung von U-Frachtbegrenzungen, U-Grenzwerten in Düngemitteln besteht anhand der vorliegenden Untersuchungen noch kein hinreichender Bedarf.

Ein Screening bzw. eine Beobachtung anderer U-Eintragspfade etwa über Kalkdünger und Recyclingmaterial sollte in einem Folgeprojekt durchgeführt werden.

Ursachen für existierende U-Belastungen von Grundwasser sind als gesonderte Fragestellung einer eingehenden Untersuchung zu unterziehen. Der Eintrag des U durch mineralische P-Düngeranwendung, Wirtschaftsdünger und Recyclingmaterialien sowie Kalkung sind dabei als potenziellen Quellen zu untersuchen. Die Schlüssigkeit solcher Untersuchungen ist aber davon abhängig, wie gut geogene und hydrologischen Basisinformationen zu ermitteln sind um die Ursachen beleuchten und bewerten zu können. Im folgenden Kapitel wird im speziellen auf die Situation im Seewinkel eingegangen.

8 Grundwassersituation Seewinkel

Kurz nach der Einführung des Grenzwertes für Uran in der Trinkwasserverordnung wurden im Rahmen der Gewässerzustandsüberwachungsverordnung (GZÜV, BGBL. II Nr. 479/2006 i.d.g.F.) im Jahr 2013, basierend auf einem Sondermessprogramm, erstmalig österreichweit an allen GZÜV-Grundwassermessstellen (oberflächennahe Grundwasserkörper und Tiefengrundwasserkörper) die Urankonzentrationen erhoben.

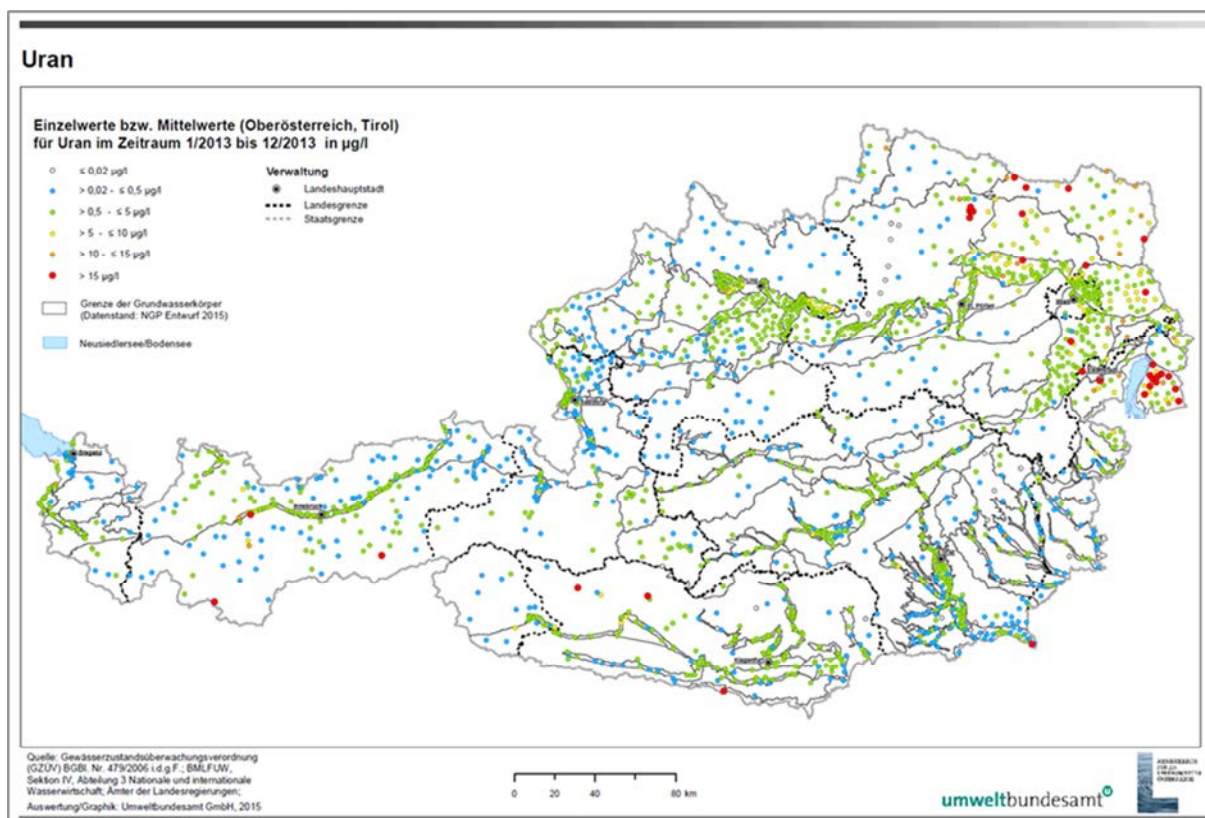


Abbildung 28: Uran im Grundwasser. Ergebnisse der Untersuchungen im Jahr 2013 (BMLFUW 2015).

Die Ergebnisse des GZÜV-Sondermessprogrammes zeigen, dass gemäß derzeitigem Kenntnisstand in Österreich keine nennenswerte großflächige Beeinträchtigung der Grundwasserqualität aufgrund von Uran vorliegt (siehe Abbildung 28). Überschreitungen des Parameterwertes der Trinkwasserverordnung ($15 \mu\text{g L}^{-1}$) sind im Wesentlichen auf Einzelfälle beschränkt.

Der Wassergüte-Jahresbericht 2014 beinhaltet eine umfassende Darstellung der Ergebnisse des Uran-Sondermessprogrammes. Dieser steht auf der Homepage des BMLFUW und des Umweltbundesamtes zum Download bereit:

BMLFUW

<http://www.bmlfuw.gv.at/publikationen/wasser.html>

Umweltbundesamt:

http://www.umweltbundesamt.at/umweltsituation/wasser/wasser_daten/wgev/

Die im Rahmen der GZÜV erhobenen Qualitätsdaten für das Grundwasser Österreichs sind über das Wasser-Informationssystem Austria (WISA) im Internet über die H2O-Fachdatenbank abrufbar: <http://wisa.bmlfuw.gv.at/>.

Im Jahr 2014 wurden jene Messstellen erneut untersucht, bei denen die Urangelhalte der Messkampagne 2013 eine Konzentration von $5 \mu\text{g L}^{-1}$ überschritten hatten.

Im Wesentlichen bestätigten sich dabei die Untersuchungsergebnisse des Jahres 2013. Demnach liegen in weiten Teilen des Bundesgebietes die Urankonzentrationen des Grundwassers deutlich unterhalb des Parameterwertes der Trinkwasserverordnung ($15 \mu\text{g L}^{-1}$).

Eine auffällige Häufung von Urangelhalten über $15 \mu\text{g L}^{-1}$ konnte im Osten Österreichs vor allem im Bereich des Grundwasserkörpers Seewinkel festgestellt werden (siehe Abbildung 29). Hier wurden an elf von 24 Messstellen Urankonzentrationen über dem Parameterwert der Trinkwasserverordnung ermittelt. Dies entspricht einem Drittel aller bundesweit beprobten Messstellen mit Urangelhalten $> 15 \mu\text{g L}^{-1}$.

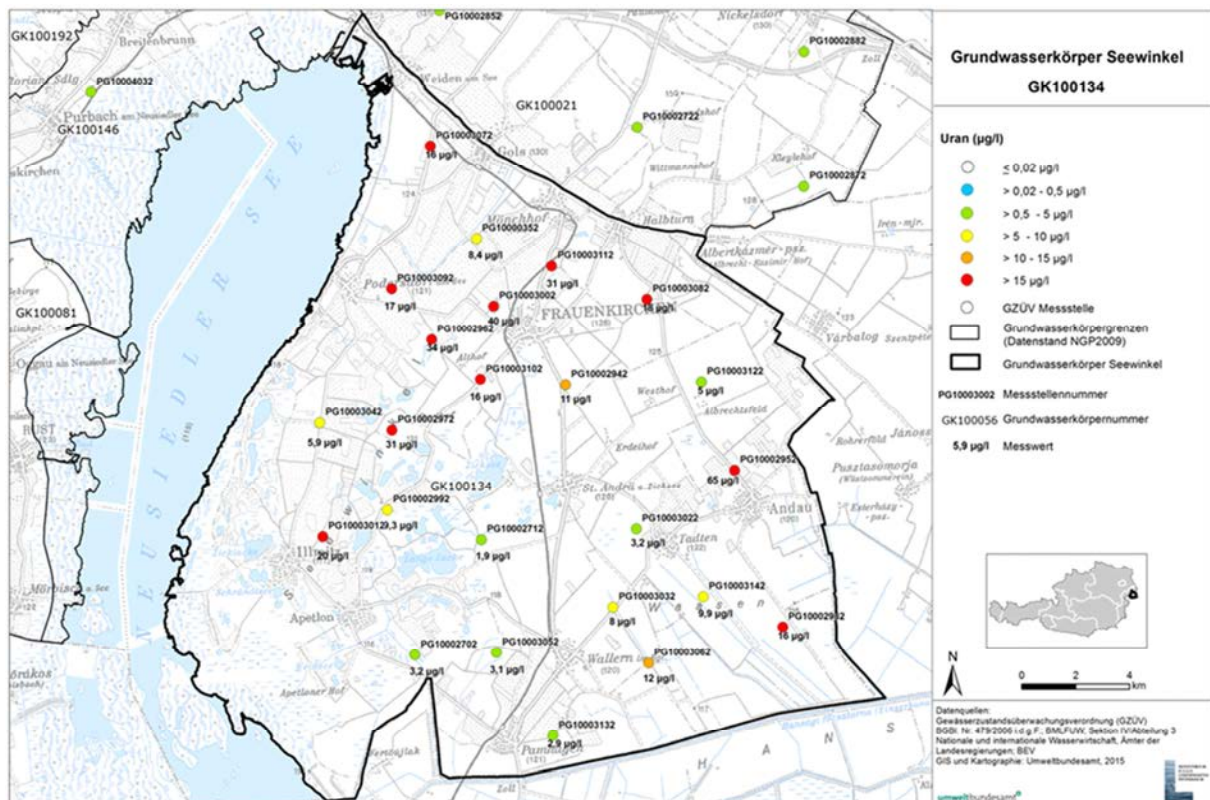


Abbildung 19: Seewinkel - Uran im Grundwasser (2013) (BMLFUW 2015).

Während die Überschreitung des Grenzwertes der Trinkwasserverordnung in einigen Regionen Österreichs aufgrund des geologischen Untergrundes geogen bedingt sein kann, erscheint dies im Seewinkel nicht unmittelbar plausibel.

Die Kenntnis, welche anderen Ursachen - wie beispielsweise anthropogene Aktivitäten - zu höheren Urangelhalten im Grundwasser führen können, spielt jedoch im Hinblick auf die Umsetzung allfälliger Sanierungsmaßnahmen eine bedeutende Rolle.

Aus diesem Grund wurden im Seewinkel im Rahmen dieser Studie umfangreiche Bodenuntersuchungen durchgeführt. Hierzu wurden Bodenproben auf landwirtschaftlich genutzten Flächen mit hohen

Phosphatgehalten aus drei Tiefenstufen (0-30 cm, 30-60 cm, 60-90 cm) entnommen und hinsichtlich einer Reihe von Parametern (Schwermetalle, Nährstoffe, TOC, Humusgehalt etc.) analysiert. Da eine repräsentative, flächendeckende Bodenprobenahme im Seewinkel im Rahmen des Projektes nicht möglich war, orientierte sich die Auswahl der Standorte für die Entnahme der Bodenproben vorrangig an Flächen, die im unmittelbaren Einzugsgebiet jener Grundwassermessstellen situiert sind, bei denen erhöhte Urangelhalte gemessen wurden und gleichzeitig leicht zugänglich waren (Abbildung 30).

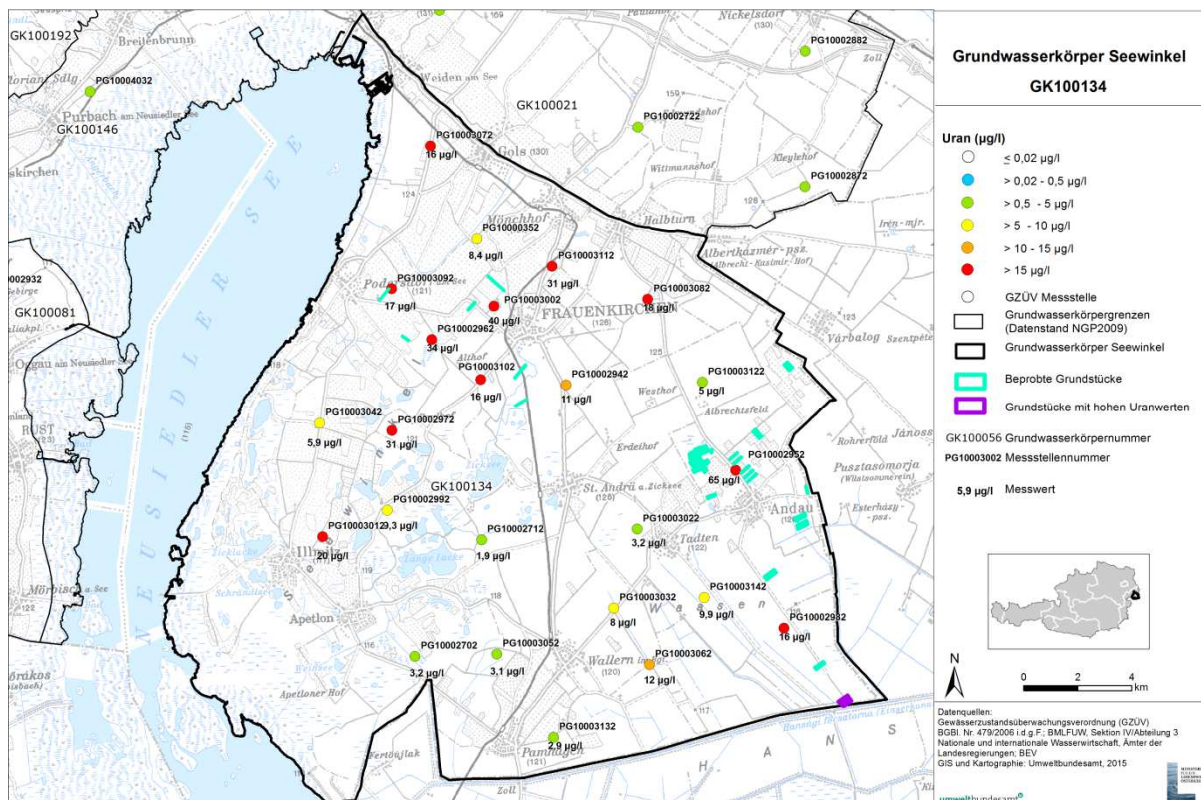


Abbildung 30: Seewinkel – Standorte Bodenprobenahme.

Die Einzugsgebiete aller Messstellen werden landwirtschaftlich genutzt, es dominieren ackerbaulich genutzte Flächen und Weingärten auf Schwarzerden mit überwiegend mittlerem Humusgehalt. In Abhängigkeit von Wasserverhältnissen und Ausgangsmaterial liegt in nahezu allen Einzugsgebieten ein Mosaik aus Tschernosemen, Feuchtschwarzerden und Paratschernosemen vor. Lediglich die südöstlich von Andau im Hanság situierte Messstelle bildet eine Ausnahme. Aufgrund des (an)moorigen Untergrundes wird das Einzugsgebiet durch landwirtschaftliche Nutzung in Form von Wiesen und Weiden geprägt. Der Gehalt des Bodens an organischer Substanz ist entsprechend hoch.

Eine Zusammenschau der pflanzenverfügbaren P-Gehalte in Acker- und Weingartenflächen im Seewinkel seit 1991 zeigte keinen signifikanten Zusammenhang zwischen Urankonzentration und Phosphorgehalt. Dies entspricht auch den Ergebnissen aus den übrigen Untersuchungen dieses Projektes (siehe Kapitel 2). Die Gehalte unterscheiden sich auch nicht von den Gehalten in den Acker- und Weingärten im Nordosten Österreichs. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass im Seewinkel

auch keine intensivere Düngung mit P als in anderen Regionen praktiziert wurde. Auch in der Analyse der im Rahmen dieses Projekts erhobenen Daten ergab sich keinerlei Zusammenhang (Abb. 31)

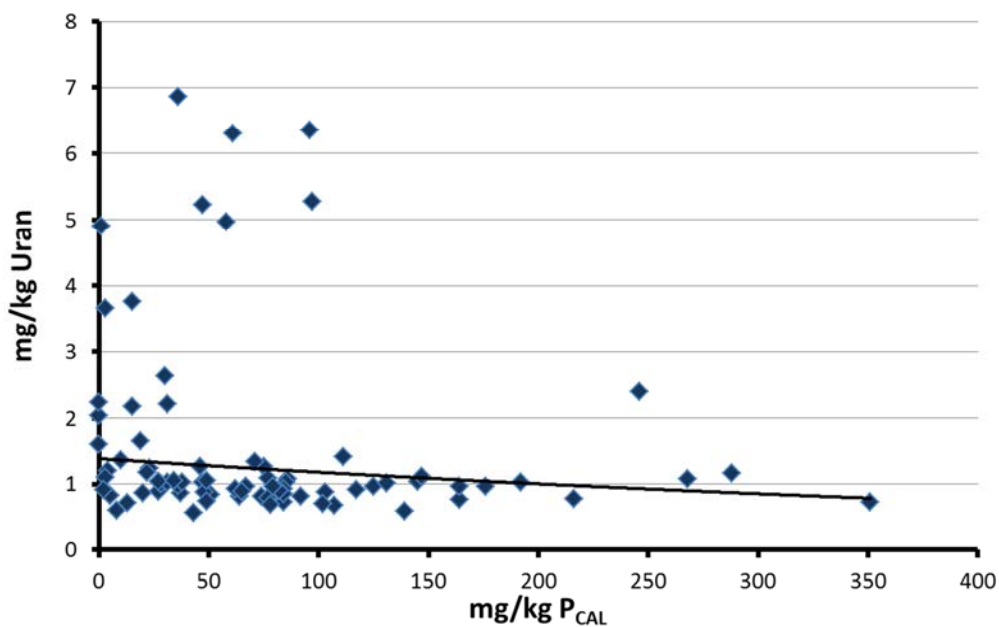


Abbildung 31: Gehalte an pflanzenverfügbarem P im CAL-Extrakt und Urangehalte in acker- und weinbaulich genutzten Böden im Seewinkel

Auch zum Humusgehalt konnte zunächst keine Beziehung festgestellt werden (Abbildung 32), ein Gradient der Urankonzentration hinsichtlich der Tiefenstufen war ebenfalls nicht feststellbar, es lagen in den Tiefen 0 - 30cm, 30 – 60 cm und 60 – 90 cm ähnliche Gehalte vor (Abbildung 32).

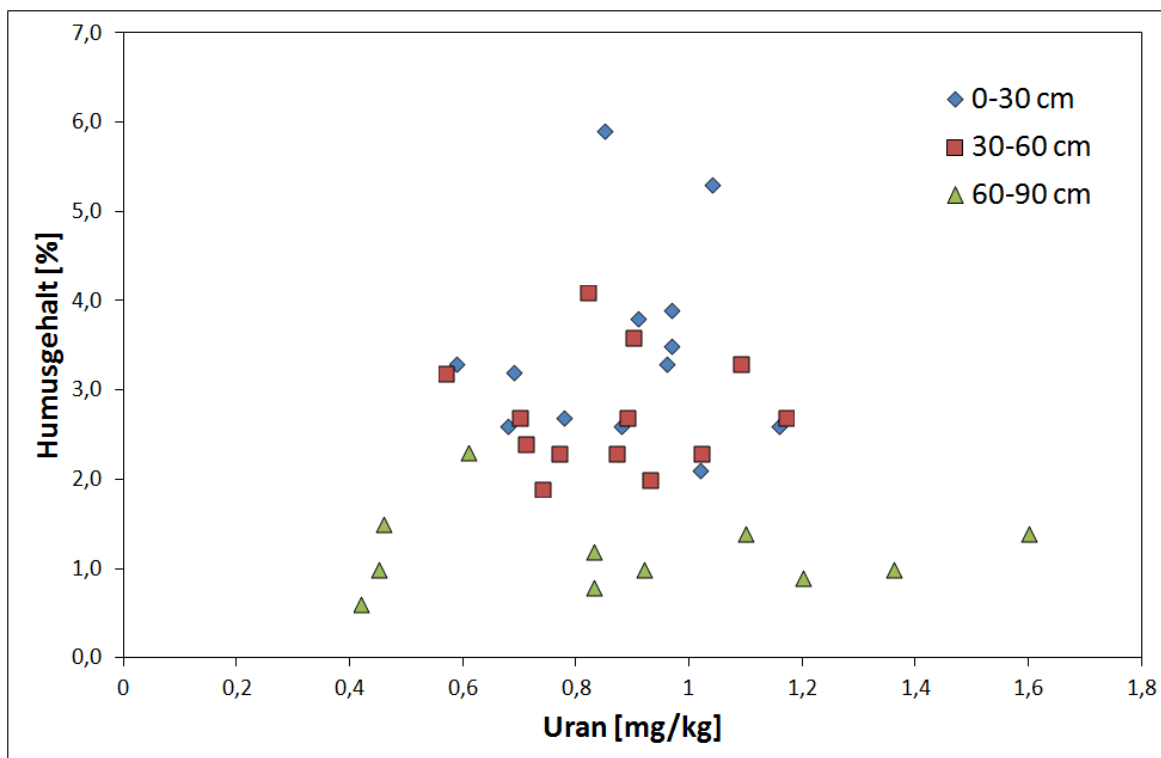


Abbildung 32: Uran- und Humusgehalte ausgewählter Böden im Seewinkel 2015

Mit Ausnahme weniger Ausreißerwerte bewegten sich die ermittelten Urankonzentrationen im Bereich natürlicher Hintergrundgehalte zwischen 0,4 und 1,6 mg kg⁻¹. Dies steht im Einklang mit den Ergebnissen der Hubschrauber-geophysik, die bereits seit 1982 in Österreich durchgeführt und durch die Geologische Bundesanstalt ausgewertet wird. Dabei wird mittels Radiometrie auch die terrestrische Strahlung gemessen und u.a. die Äquivalentkonzentrationen für Uran bestimmt (siehe Abbildung 33).

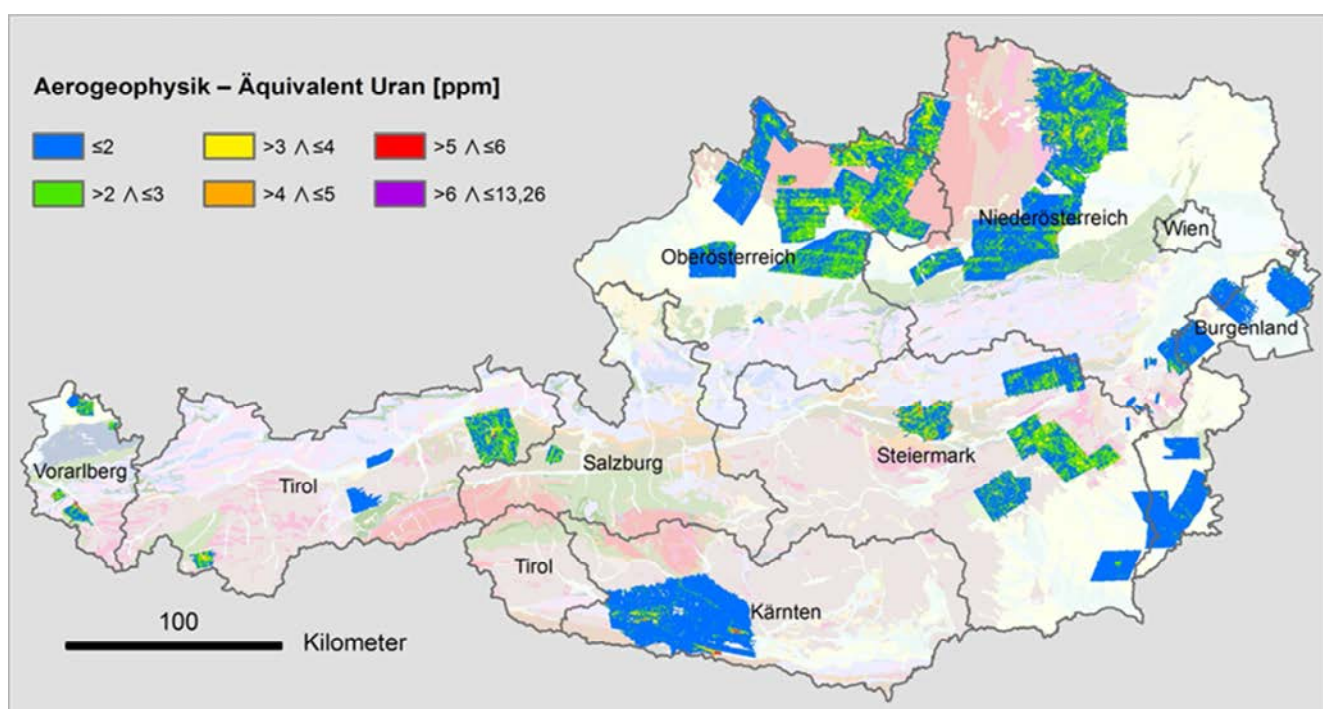


Abbildung 33: Äquivalentkonzentrationen für Uran aus terrestrischer Strahlung (BERKA et al. 2014).

In der Literatur wird immer wieder auf die erhöhte Adsorptionsfähigkeit von Uran an der organischen Substanz hingewiesen (z.B. Taylor, 2007; Yamaguchi et al., 2009). Um im Speziellen Standorte mit sehr hohen Humusgehalten zu überprüfen, wurden daher zusätzliche Bodenuntersuchungen an der südöstlichen Grenze des Seewinkels im an- und niedermoorigen Bereich des „Hanság“ durchgeführt. Wenngleich sich diese landwirtschaftlich genutzten Flächen nicht im Einzugsbereich einer Grundwassermessstelle mit erhöhten Urangehalten befinden, war dort aufgrund der sehr im Vergleich relativ hohen Humusgehalte mit einer stärkeren Fähigkeit der adsorptiven Bindung von Metallen - und somit auch Uran - auszugehen.

Die im Hanság ermittelten Uran-Konzentrationen waren in allen drei Tiefenstufen deutlich höher als bei allen anderen Bodenproben. Die Maximalgehalte lagen bei $6,86 \text{ mg kg}^{-1}$. Auch die Schwermetalle Kupfer, Nickel, Arsen, Molybdän, Zink und Vanadium weisen hier deutlich höhere Gehalte auf. Zusätzlich zeigte sich bei diesen Standorten auch ein deutlich erhöhter Gehalt an Sulfat. In der nachfolgenden Abbildung 34 sind die Uran- und Humusgehalte der Bodenproben aus dem Hanság den übrigen Bodenproben aus dem Seewinkel gegenübergestellt.

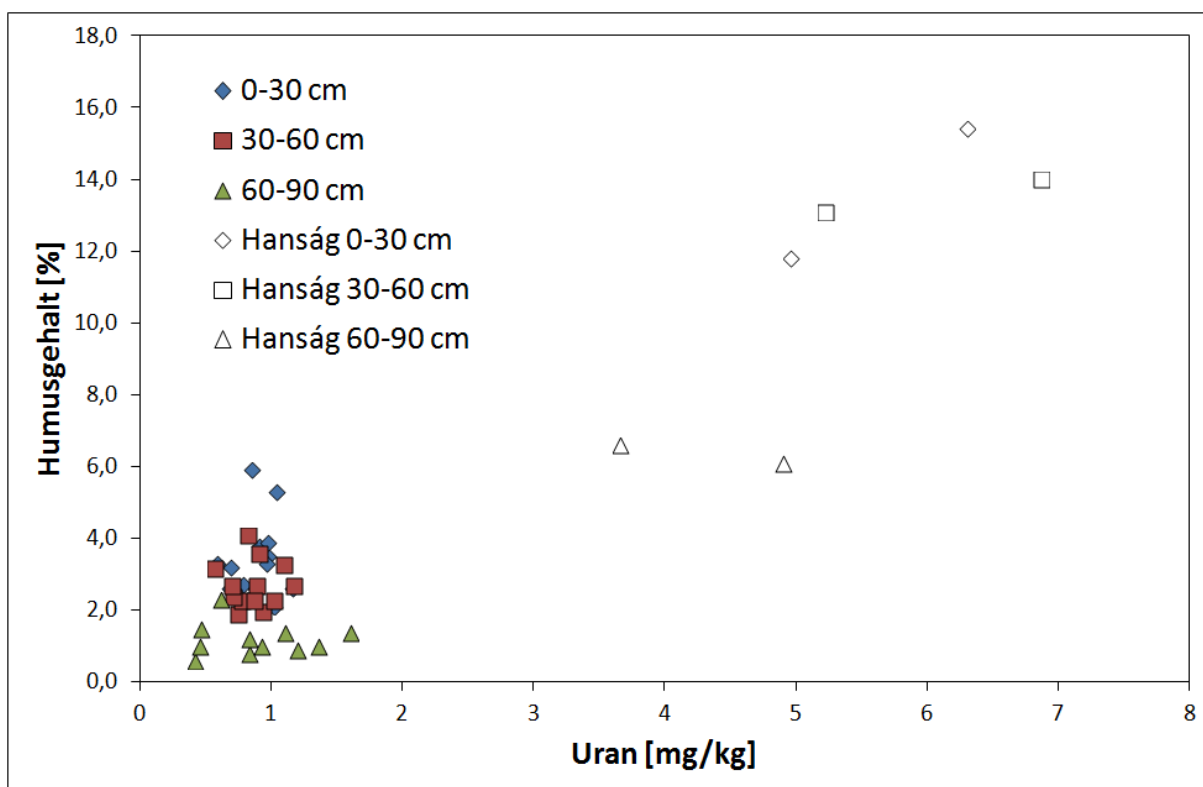


Abbildung 34: Uran- und Humusgehalte der untersuchten Böden im Seewinkel inkl. Hanság.

In weiterer Folge wurden im Seewinkel zusätzliche Flächen mit ebenfalls hohen Humusgehalten beprobt, um zu überprüfen, ob grundsätzlich ein Zusammenhang zwischen höheren Uran- und sehr hohen Humusgehalten gegeben ist. Hierzu wurden 28 Proben mit Humusgehalten über 7% in unterschiedlichen Tiefenstufen im gesamten Seewinkel entnommen. Der Zusammenhang zwischen den Urangehalten und dem Humusgehalt ist in Abbildung 35 dargestellt.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Urankonzentrationen in humusreichen Böden tendenziell erhöht sein können, wobei dies unabhängig von der Entnahmetiefe ist und sich in gleicher Weise auch auf andere Metalle übertragen lässt. Ein eindeutiger Zusammenhang konnte jedoch nicht festgestellt werden. Der Zusammenhang zwischen dem Humus- und dem Urangehalt scheint dementsprechend nur lokal begrenzt zu sein und nicht so sehr auf den Gehalt an organischer Substanz, sondern auf die speziellen Eigenschaften der an- und niedermoorigen, salzreichen Böden des Hanság zurückzuführen sein. Die Herkunft der hohen Urangehalte konnte im Rahmen dieser Untersuchung nicht geklärt werden.

Vergleichbar zu den anderen beprobten Regionen (siehe Kapitel 1) ergeben sich auch für den Seewinkel keinerlei Anhaltspunkte hinsichtlich eines Zusammenhanges der Urankonzentration und der Phosphatdüngung bzw. einer Verlagerung von Uran in tiefere Bodenschichten.

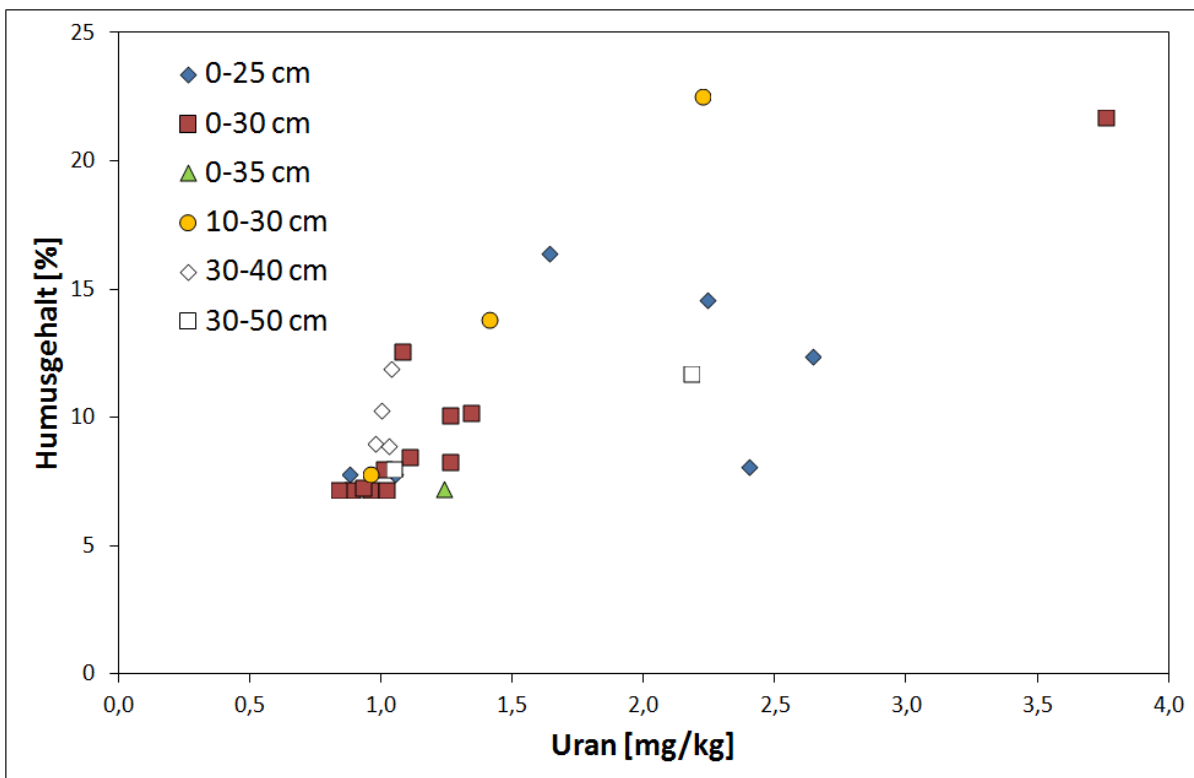


Abbildung 35: Urangehalte humusreicher Böden im Seewinkel.

Ausgehend vom Bericht zum Zustand der Grundwässer in Österreich (BMLFUW, 2015) können die hohen Urangehalte im Grundwasser des Seewinkels ohne bekannte geogene Quellen anhand der bislang verfügbaren Daten und Informationen derzeit nicht nachvollzogen werden. Komplexe hydrochemische Prozesse steuern die Spezierung und damit die Mobilität von Uran, das in jedem Umweltkompartiment ein anderes Verhalten aufweist. Ein vertieftes Verständnis des Verhaltens von Uran als Folge der Interaktion zwischen Boden und Grundwasser in Abhängigkeit von wechselnden Randbedingungen erscheint als Schlüssel zur Erklärung dieser hohen Urankonzentrationen.

Anzunehmen ist ein komplexes System mit verschiedenen Eintragspfaden, in dem sich natürliche und anthropogene Prozesse überlagern, die allerdings gegenwärtig nicht differenziert werden können. In

ihrer Gesamtheit tragen sie jedoch offensichtlich zu einer (zumindest temporären) Mobilisierung von Uran aus der Feststoffphase bei und bewirken langfristig dessen Akkumulation.

Redoxfronten nahe der Oberfläche können aufgrund wechselnder Mobilisierungs- und Festsetzungsprozesse Konzentrationsspitzen und letztlich eine Akkumulation von Uran bewirken. So können auch niedrige Urangelhalte im Wasser über längere Zeiträume hinweg in einer deutlichen Anreicherung von Uran resultieren. Insofern erscheint die Kombination aus (niedrig dosierten) Eintragsquellen von Uran in den Boden sowie permanent ablaufender Mobilisierungs- und Festsetzungsprozesse im Untergrund als ein plausibler Ansatz zur Erklärung der hohen Urankonzentrationen im Grundwasser, der allerdings weiter zu untersuchen wäre (BMLFUW 2015).

Da bislang für das Gebiet des Seewinkels keine mineralogische Charakterisierung des Untergrundes für die ungesättigte Zone und den oberflächennahen Aquifer vorliegt und das geogene Potenzial für Uraneinträge somit unbekannt ist, werden jedenfalls entsprechende mineralogische Untersuchungen (Analysen der Schwermineralfraktion uranhaltiger Minerale) empfohlen (BMLFUW 2015). Zusätzlich wäre auch der Zusammenhang mit den Torf bildenden Vegetationsschichten im Hanság sowie den bodenkundlichen Besonderheiten wie der stark erhöhten Sulfatkonzentration genauer zu analysieren.

Literatur

AGES (2011): ÖPUL-Evaluierung – Auswirkungen von ÖPUL-Maßnahmen auf die Nährstoffverfügbarkeit österreichischer Böden

BERKA, R.; KATZLBERGER, CH.; PHILIPPITSCH, R.; SCHUBERT, G.; KORNER, M.; LANDSTETTER, C.; MOTSCHKA, K.; PIRKL, H.; GRATH, J.; DRAXLER, A. & HÖRHAN, TH. (2014): Erläuterungen zur geologischen Themenkarte Radionuklide in den Grundwässern, Gesteinen und Bachsedimenten Österreichs 1 : 500.000. – 109 S., Wien.

BMLFUW – Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft (2006): Richtlinien für die sachgerechte Düngung. Anleitung zur Interpretation von Bodenuntersuchungsergebnissen. 6. Auflage. Fachbeirat für Bodenfruchtbarkeit und Bodenschutz, Wien. 80 p.

BMLFUW – Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft (2015): Wemhöner, U.; Humer, F.; Schubert, G.; Berka, R.; Philippitsch, R. & Hörhan, Th.: Uran in Grundwässern Österreichs. Bericht und Karte 1:500.000. Wien.

BMELV, Bundesministerium für Ernährung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz (2013): Standpunkt des Wissenschaftlichen Beirates für Düngungsfragen zur Problematik „Uran – Gesundheits- und Umweltrisiken durch den Einsatz von Phosphor (P)-Düngern in der Landwirtschaft“
https://www.bmel.de/SharedDocs/Downloads/Ministerium/Beiraete/Duengungsfragen/Uran.pdf?__blob=publicationFile

- De VOS, W., TARVAINEN, T. (Eds.) (2005): Geochemical Atlas of Europe. Part 2: Interpretation of Geochemical Maps, Additional Tables, Figures, Maps and Related Publications. Appendix. Statistical data of analytical results. Geol. Surv. Finland.
- EFSA (2009) Scientific Opinion of the Panel on Contaminants in the Food Chain on a request from German Federal Institute for Risk Assessment (BfR) on uranium in foodstuff, in particular mineral water. The EFSA Journal (2009) 1018, 1 - 59.
http://www.efsa.europa.eu/sites/default/files/scientific_output/files/main_documents/1018.pdf
- Geologische Bundesanstalt, (1989): Geochemischer Atlas der Republik Österreich - Bachsedimente. Böhmisches Masse und Zentralalpen' Geologische Bundesanstalt, Wien.
- GZÜV - Gewässerzustandsüberwachungsverordnung (BGBl. II Nr. 479/2006 i.d.g.F.): Verordnung des Bundesministers für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft über die Überwachung des Zustandes von Gewässern.
- MASON C.F.V., W.R. JR. TURNEY, B.M. THOMSON, N. LU, P.A. LONGMIRE and C.J. CHRISHOLM-BRAUSE (1997): Carbonate Leaching of Uranium from Contaminated Soils. Environ. Sci. Technol., 31, 2707-2711
- KRATZ, S., KNAPPE, F., ROGASIK, J. & SCHNUG, E. (2008): Uranium balances in agroecosystems. In: Loads and Fate of Fertilizer-derived Uranium. Edited by L.J. De Kok and E. Schnug. Backhuys Publishers, Leiden, The Netherlands, pp. 179-189.
- KRATZ S., SCHICK J., SCHNUG E. (2016): Trace elements in rock phosphates and P containing mineral and organo-mineral fertilizers sold in Germany. Science of The Total Environment, 542, 1013-1019.
- Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern (2012): Bestandsaufnahme zur Klärung erhöhter Uran-Gehalte im Grund- und Trinkwasser in Mecklenburg-Vorpommern. Stand 05.04.2012.
- LANDSTETTER C, KATZLBERGER, C. (2009): Determination of ^3H , ^{226}Ra , ^{222}Rn and ^{238}U in Austrian ground and drinking water. J. Radioanal Nucl Chem. 282:467-471.
- LANDSTETTER C, KATZLBERGER, C. (2011): RELEVANT RADIONUCLIDES FOR THE CALCULATION OF THE TOTAL DOSE IN AUSTRIAN DRINKING WATER, LSC 2010, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, ed. By P. Cassette, 73-79.
- LIESCH T., HINRICHSSEN S., GOLDSCHIEDER N. (2015): Uranium in groundwater — Fertilizers versus geogenic sources. Science of The Total Environment, 536, 981-995.

- LÖFFLER, H. (1982): Der Seewinkel. Die fast verlorene Landschaft. Verlag Niederösterreichisches Pressehaus St. Pölten-Wien.
- ROGASIK J., KRATZ S., FUNDER U., PANTEN K., BARKUSKY D., BAUMECKER M., GUTSER R., LAUSEN P., SCHERER H.W., SCHMIDT L., SCHNUG E. (2008): Uranium in soils of German long-term fertilizer experiments. In: Loads and Fate of Fertilizer-derived Uranium. Edited by L.J. De Kok and E. Schnug. Backhuys Publishers, Leiden, The Netherlands, pp. 135⁻¹46.
- SCHWERDTFEGGER, B. (2015): Uran und Co – die Folgen des Stickstoffeintrags. Erkenntnisse zur Ursachen-hypothese. Arbeitsgruppe Uran am Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern. Vortrag am Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie; Hannover.
- Statistik Austria (2010): Regionale Nährstoffbilanzen in Österreich für NUTS 3-Gebiete, Eurostat Grant 2008 / Thema 4.07
- TAYLOR, M.D. (2007): Accumulation of uranium in soils from impurities in phosphate fertilisers. Landbauforschung Völk. 57, 133–139 (2).
- TORIDE, N., LEIJ F.J. and vanGENUCHTEN M.Th. (1995): The CXTFIT Code for Estimating Transport Parameters from Laboratory or Field Tracer Experiments. Research Report 137. US Salinity Laboratory, Riverside, California.
- T. LIESCH, S. HINRICHSSEN, N. GOLDSCHIEDER (2015): Uranium in groundwater — Fertilizers versus geogenic sources. Science of the Total Environment 536, 981–995
- UMWELTBUNDESAMT, Claudia Dienemann, C. & Utermann, J. (2012): Uran in Boden und Wasser Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, Texte 37/2012
<https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/461/publikationen/4336.pdf>
- WELP G. (2010): Anorganische Stoffe In: Scheffer/Schachtschabel: Lehrbuch der Bodenkunde. Spektrum AkademischerVerlag.
- WHO (2011) Uranium in drinking-water. Background document for preparation of WHO Guidelines for drinking-water quality. Geneva, World Health Organization (WHO/SDE/WSH/03.04/118/Rev/1).
http://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/chemicals/uranium_forcomment_20110211_en.pdf
- YAMAGUCHI, N., KAWASAKI, A., IIYAMA, I., 2009. Distribution of uranium in soil components of agricultural fields after long-term application of phosphate fertilizers. Sci. Total Environ. 407, 1383–1390.