

Tagungsbeitrag zu: Jahrestagung der  
DBG, Kom. I  
Titel der Tagung: Böden – eine endliche  
Ressource  
Veranstalter: DBG, September 2009, Bonn  
Berichte der DBG (Nicht begutachtete online  
Publikation)  
<http://www.dbges.de>

## Uran in Böden und Sickerwässern – gibt es Indizien für eine Phosphordünger-bürftige Uran-Anreicherung?

Utermann, J.<sup>1</sup>, Duijnsveld, W.H.M.<sup>1</sup>, Godbersen, L.<sup>2</sup>, Fuchs, M.<sup>1</sup>

Keywords: Uran, Hintergrundwerte, Uran-Anreicherung, Uran-Verlagerung

### 1. Einleitung

Uran findet sich als natürliches Spurenelement in geringer Konzentration in allen Gesteinen, Böden und Wässern. Als Quellen für Uran in Böden sind neben der Verwitterung U-haltiger Minerale der diffus-ubiquitäre Eintrag z.B. über Immissionen aus Verbrennungsprozessen (z.B. Kohlekraftwerke) und Bergbauaktivitäten von Bedeutung. Auf landwirtschaftlich genutzten Böden wird zudem ein signifikanter U-Eintrag als Folge der Verwendung U-haltiger Phosphordünger in der Größenordnung von 2.8 bis 16.8 g U ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> postuliert (Kratz & Schnug, 2006).

Vor diesem Hintergrund wurde auch mit Blick auf die laufenden Arbeiten zur Novellierung der BBodSchV (Erfordernis eines Vorsorgewertes für Uran?) an einem repräsentativen Datenkollektiv zu U-Gehalten in Ober- und Unterböden geprüft, inwiefern es Hinweise auf eine U-Anreicherung in landwirtschaftlich genutzten Oberböden ggf. als Folge der zurückliegenden P-Düngung gibt. An einem ausgewählten

<sup>1</sup>Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Stilleweg 2, D-30655 Hannover, [Jens.Utermann@BGR.de](mailto:Jens.Utermann@BGR.de)

<sup>2</sup>Institut für Physische Geographie und Landschaftsökologie, Leibniz Universität Hannover, Schneiderberg 50, D-30167 Hannover

Datensatz zu U-Konzentrationen im Sickerwasser/oberflächennahen Grundwasser (SW/oGW) wurde zudem der Frage nachgegangen, ob es Hinweise auf eine U-Verlagerung in das Grundwasser gibt.

### 2. Material & Methoden

Für die bodenseitigen Auswertungen wurde auf Daten zurückgegriffen, die von den Ländern über die Ad-hoc-AG Boden und den stA2 der LABO sowie von der BGR für die Ableitung von Hintergrundwerten bereitgestellt wurden (Utermann et al. 2008). Die auf den ländlichen Raum bezogene Auswertung folgt einem Stratifizierungskonzept, das für Ober- und Unterböden sowie Untergrund in erster Priorität nach 14 Gruppen von Bodenausgangsgesteinen differenziert. Untergeordnet erfolgt für Oberböden eine Unterteilung nach den Landbedeckungsklassen Acker, Grünland und Forst. Oberböden werden aufgefasst als alle A-Horizonte, die im Falle von Grünland und Forst innerhalb der obersten 10 cm bzw. unter Ackernutzung in den obersten 30 cm liegen. Der Untergrund definiert sich als alle C-Horizonte und die G und S Horizonte unterhalb von 120 cm. Der Unterboden deckt alle dazwischen liegenden Horizonte ab. Die Analysen sind auf den Königswasserausgang bezogen. Gebiete mit bekannten geogen oder bergbaubedingten Anomalien insbesondere im sächsischen Raum wurden von der Auswertung ausgeschlossen. Die Verschneidung von Punkt- und Flächendaten erfolgte unter der Maßgabe, dass die Punktinformationen im Hinblick auf die Bodenausgangsgesteinsgruppen mit den Flächendaten im bundesweiten Maßstab übereinstimmen. Extremwerte wurden als Ausreißer eliminiert. Zur Vermeidung regionaler Übergewichtungen wurden Verdichtungsgebiete soweit ausgedünnt, dass ein Punkteabstand von minimal 2 km sichergestellt ist. Die so homogenisierten Stichproben wurden für Straten mit minimalen Datenumfängen von  $n \geq 20$  statistisch ausgewertet.

Die Auswertungen zu U-Konzentrationen im SW/oGW beziehen sich auf Daten, die im Rahmen eines durch das UBA geförderten F&E-Vorhabens auf insgesamt 50 aus-

schließlich diffus-ubiquitär belasteten Standorten in Norddeutschland - vornehmlich der Boden-Dauerbeobachtung – ermittelt wurden (Duijnisveld et al. 2008). Dabei handelt es sich um 33 Sandstandorte, 7 Löss- und 10 Geschiebelehmstandorte (die letzten beiden ausschließlich unter Acker-nutzung). Die Grundwasserflurabstände schwanken zwischen < 1 m bis ca. 15 m, in den meisten Fällen liegen sie zwischen 1 und 3 m unter Flur. Auf jedem Standort wurden 10 – 20 Bohrungen bis zum Grundwasser niedergebracht. Das Sickerwasser wurde im Übergangsbereich der ungesättigten zur gesättigten Bodenzone mittels sorptionsinertter Nylon-Saugkerzen gewonnen und mittels hochauflösender ICP-MS auf Uran analysiert.

### 3. Ergebnisse und Diskussion

#### Uran in Ober- und Unterböden:

In Abb. 1 sind auf der Basis von insgesamt ca. 1000 Profilinformatoren die U-Gehalte in Form von Whisker-Boxplots für die in Deutschland flächenmäßig bedeutsamen Ausgangsgesteinseinheiten dargestellt: Die höchsten U-Gehalte mit Median-Werten von ca. 2,5 bis > 3 mg/kg weisen die Böden über Sauren Magmatiten und Metamorphiten sowie Ton- und Carbonatgesteinen auf. Für die Lössen werden Mediane von ca. 2 mg/kg ausgewiesen. In Böden über Sandstein, aus Sandlössen und Geschiebelehmen liegen die Mediane der U-Gehalte zwischen 1 und 1,5 mg/kg. Die Böden aus Sanden weisen mit Medianwerten von ca. 0,5 mg/kg die niedrigsten Gehalte auf. Die 90. Perzentilwerte für Uran liegen zwischen 0,9 und 6,2 mg/kg, wobei die Tongesteine und Sauren Magmatite des Erzgebirges für den oberen Wertebereich stehen. Signifikante Unterschiede zwischen den Gehalten in Ober- und Unterböden lassen sich bei dieser stratenbezogenen Auswertung nicht nachweisen.

Um die Hypothese einer P-düngerbürtigen U-Anreicherung in landwirtschaftlich genutzten Oberböden zu prüfen, wurden profilweise die U-Gehalte der Oberböden mit den gewichteten mittleren Gehalten der Unterböden verglichen. Ein Vergleich auf der Basis volumenbezogener Konzentrationen konnte in Ermangelung geeigneter

Begleitparameter zu den U-Gehalten (v.a. Lagerungsdichte, Feinbodenanteil) nicht vorgenommen werden.

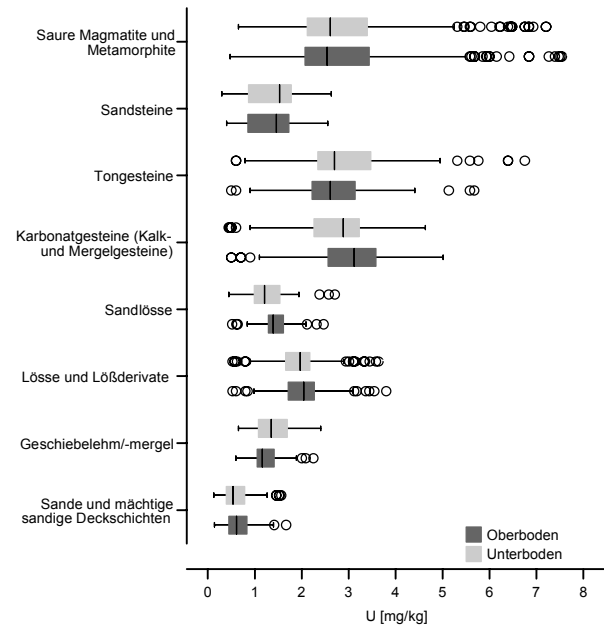


Abb. 1: Boxplots für Uran in Ober-/Unterböden differenziert nach Bodenausgangsgesteinen

In Abb. 2a, b sind die Häufigkeitsverteilungen der profilweise berechneten Differenzen im U-Gehalt zwischen den Ober- und Unterböden über alle Straten (ohne Auenböden) der forstlich und ackerbaulich genutzten Standorte dargestellt.

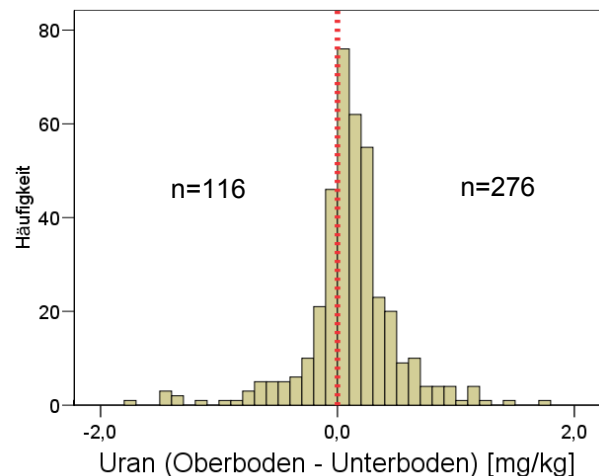


Abb. 2a: Histogramm der Differenzen im U-Gehalt [mg/kg] zwischen Ober- und Unterböden für ackerbaulich genutzte Standorte

In den Böden unter Acker weisen 276 Profile höhere U-Gehalte im Oberboden auf,

während in 116 Fällen die U-Gehalte in den Unterböden höher sind. Im Mittel liegen die U-Gehalte in den Oberböden um 0,11 mg/kg über denen der Unterböden. Im Vergleich hierzu zeigen die Böden unter Wald das umgekehrte Bild. In 214 Fällen liegen die Unterbodengehalte über denen der Oberböden, höhere Gehalte in den Oberböden finden sich hingegen nur in 153 Fällen. Im Mittel über das gesamte Kollektiv weisen die Oberböden unter Forst gegenüber den Unterböden eine U-Abreicherung um 0,04 mg/kg auf.

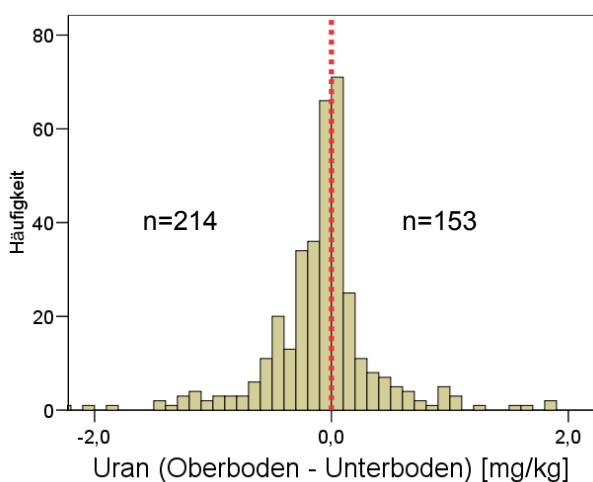


Abb. 2b: Histogramm der Differenzen im U-Gehalt [mg/kg] zwischen Ober- und Unterböden für Forststandorte

Gegenüber Forstböden, für die ein langjähriger U-Eintrag über den Düngerpfad ausgeschlossen werden kann, lässt sich folglich in den ackerbaulich genutzten Böden trotz der Verdünnung durch die größere Bezugstiefe (Ap-Horizont) eine Tendenz zu höheren U-Gehalten möglicherweise als Folge der U-Einträge über die P-Düngung nachweisen (mittlere Anreicherung gegenüber Forst: 0,15 mg/kg). Bezogen auf die mittleren U-Gehalte in Sanden und Geschiebelehm bestätigen diese Befunde den im Rahmen der geochemischen Inventur der Ostsee-Anrainerstaaten (Reimann et al., 2003) für Norddeutschland ausgewiesenen Anreicherungsfaktor von ca. 1,2.

#### Uran in Bodensickerwässern:

Die Auswertung der im SW/oGW gemessenen U-Konzentrationen erfolgt für die fünf Standorttypen Acker/Sand, Acker/Geschiebelehm, Acker/Löss, Wald/Sand und

Grünland/Sand. In Abb. 4 sind die U-Konzentrationen für die fünf Standorttypen in Form von Whisker-Boxplots abgetragen.

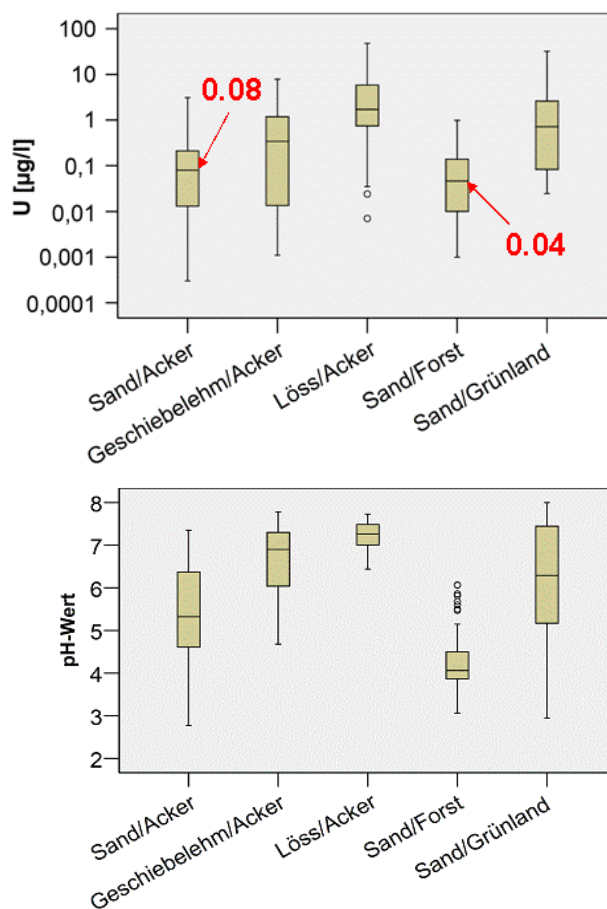


Abb. 4: U-Konzentrationen und pH-Werte im SW/oGW von 50 Standorten in Norddeutschland, differenziert nach Standorttypen

Im Falle der Standorte unter ackerbaulicher Nutzung steigen die U-Konzentrationen von Sand mit einem Median < 0,1 µg/l über Geschiebelehm mit einem Median von ca. 0,5 µg/l hin zu Löss mit einem Median > 1 µg/l deutlich an. Diese Reihenfolge korrespondiert mit der Rangfolge der Gesamtgehalte gemessen im Königswasser. Ein direkter Vergleich der U-Konzentrationen im Sickerwasser zwischen Acker und Forst ist nur für das Substrat Sand möglich: Mit Medianwerten von ca. 0,8 µg/l unter Acker gegenüber ca. 0,4 µg/l unter Forst bestätigt der direkte nutzungsbezogene Vergleich einen Trend zu höheren U-Konzentrationen unter Ackernutzung, allerdings auf sehr niedrigem Konzentrationsniveau.

Die Unterschiede in den U-Konzentrationen zwischen den Standorttypen korrespondieren deutlich mit den pH-Werten der Sickerwässer (vgl. Abb. 4). In einem weiteren Schritt wurde mittels PhreeqC-Modellierung untersucht, welche U-Spezies bei den einzelnen Standorttypen in Abhängigkeit vom pH-Wert dominieren (Abb. 5).

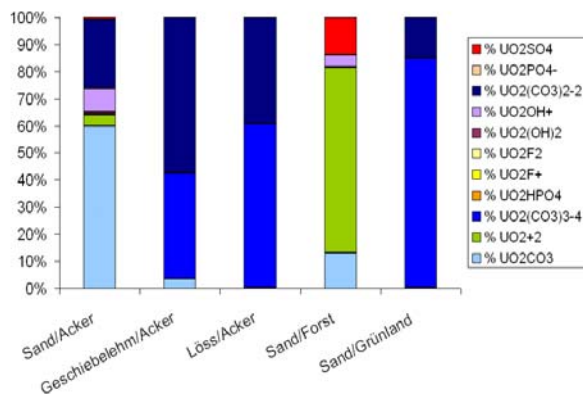


Abb. 5: Mittlere U-Speziesverteilung im SW/oGW von 5 Standorttypen

Während im Falle der Sandstandorte unter Forst mit mittleren pH-Werten von 4,2 das zweiwertige Uranyl-Kation dominiert mit geringen Anteilen an Uranylkarbonat und –sulfat, dominieren unter landwirtschaftlicher Bodennutzung ungeladene sowie negativ geladene Uranylkarbonate, die unter den gegebenen physiko-chemischen Randbedingungen deutlich mobiler sind als Uranyl-Kationen.

#### 4. Fazit

Der Vergleich von U-Gehalten (Königswasserextrakt) in Ober- und Unterböden von ca. 1000 Standorten in Deutschland zeigt eine tendenzielle U-Anreicherung in landwirtschaftlich genutzten Oberböden gegenüber Oberböden unter Forst (mittlere Anreicherung: 0,15 mg/kg). Die U-Konzentrationen im SW-oGW von 50 norddeutschen Lockergesteins-Standorten variieren um 4 - 5 Zehnerpotenzen in Abhängigkeit von Landnutzung (U-Gehalte im SW-oGW unter Forst < Acker) und Substrat (U-Gehalte im SW-oGW Sand < Geschiebelehm < Löss). Die dominierenden Uran-Spezies variieren v.a. als Funktion des pH-Wertes: unter Acker überwiegen mobile Uranyl-Carbonatspezies während unter Forst zweiwertige Uranyl-Kationen domi-

nieren. Insgesamt stützen die Befunde dieser Auswertung die Hypothese einer schleichenden Befruchtung von landwirtschaftlich genutzten Böden mit P-düngerbürtigem Uran und einer Verlagerung in das Grundwasser.

#### Literatur:

- Duijnsveld, W.M., Godbersen, L., Dilling, J., Gäbler, H.E., Utermann, J., Klump, G. & Scheeder, G. (2008): Ermittlung flächenrepräsentativer Hintergrundkonzentrationen prioritärer Schadstoffe im Bodensickerwasser. Endbericht UBA-Forschungsvorhaben 204 72 264, 163 pp.
- Kratz, S., Schnug, E. (2006): Rock phosphates and P-fertilizers as sources of U contamination in agricultural soils. In: Merkel, B.J. and Hasche-Berger, A. (eds) Uranium in the environment. Springer Berlin Heidelberg 2006. pp. 57-68
- Reimann, C. et al. (2003): Agricultural soils in northern Europe: A geochemical atlas. Geol. Jb: Sonderhefte, SD 5, 279 pp. ISBN 3-510-95906-x
- Rogasik, J., Kratz, S., Funder, U., Panten, K., Barkusky, D., Baumecker, M., Gutser, R., Lausen, P., Scherer, H.W. (2008): Uranium in soils of German long-term fertilizer experiments. In: De Kok, L.J. & Schnug, E. (Eds) (2008) Loads and Fate of Fertilizer-derived Uranium. Backhuys Publishers, Leiden, The Netherlands, ISBN/EAN 978-3-8236-1546-0, 157-168
- Utermann, J., Fuchs, M., Düwel, O. (2008): Fortschreibung der Vorsorgewerte für Böden nach BBodSchV – Ableitung flächenrepräsentativer Hintergrundwerte für As, Sb, Be, Sb, Co, Se, Ti, U und V in Ober-, Unterböden und Untergrund, Bericht BGR, Archiv Nr. 10040/08, 71 pp.