

## Akkumulation von Schadstoffen in europäischen Böden durch alternative Phosphordünger

### *Accumulation scenarios of contaminants in European soil through alternative phosphorus fertilizers*

Lina Weissengruber<sup>1\*</sup>, Jürgen K. Friedel<sup>1</sup> und Kurt Möller<sup>2</sup>

#### **Einleitung**

Phosphor (P) stammt aus Lagerstädten, die sich auf wenige Länder konzentrieren und die zunehmend mit Cadmium und Uran belastet sind, sowie aus importierten Futter- und Lebensmitteln. Nach der Nutzung geht der Großteil des P durch die Verbrennung von Klärschlamm und Tiernebenprodukten zusammen mit Müll oder in Zementwerken verloren. Um einen Kreislauf für P zu schaffen, gibt es neue Methoden, die P aus diesen Stoffströmen gewinnen und als Dünger wieder der Landwirtschaft zugänglich machen, z.B. als Struvite und gereinigte Klärschlammaschen. In dieser Untersuchung werden diese P-Dünger sowie im ökologischen Landbau nicht oder wenig genutzte Quellen wie Gärrest, Speiserestkompost, Fleisch- und Knochenmehl und Klärschlamm mit klassischen Düngern wie Kompost, Wirtschaftsdünger, Rohphosphat und Triple superphosphat verglichen und die jeweilige potenzielle Schadstoffanreicherung wird berechnet. Untersuchte Schwermetalle sind Cadmium, Chrom, Kupfer, Nickel, Blei und Zink. Von den organischen Schadstoffen wurden die langlebigen Verbindungen polychlorierte Biphenyle (PCB), polychlorierte Dibenzodioxine und -furane (PCDD/F) und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAH) untersucht.

#### **Material und Methoden**

Szenarien: In den Berechnungen wurde eine Düngung über 200 Jahre hinweg angenommen. Pro Jahr wurden in den Szenarien  $11 \text{ kg P ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$  mit dem jeweiligen Dünger gedüngt und damit auch die je nach Phosphor-Schadstoffverhältnis enthaltenen Schadstoffe mitausgebracht. Für die Schwermetalle wurden vier Modelle mit Kombinationen der Boden-pH-Werte 5 und 7 und hohem ( $F = 0,3 \text{ m yr}^{-1}$ ) und niedrigem ( $F = 0,1 \text{ m yr}^{-1}$ ) Sickerwasserabfluss (precipitation excess F) berechnet. Die Berechnung startete mit der mittleren Bodenausgangskonzentration an Schadstoffen in europäischen Ackerböden. Es wurde angenommen, dass jedes Jahr dieselbe Menge an Schadstoffen über die Atmosphäre und über Kalkung eingebracht wurde, siehe Tabelle 1. Alle Berechnungen beziehen sich auf eine Bodenmasse von  $3250 \text{ t ha}^{-1}$ , was sich aus der Bodendichte von  $1,3 \text{ kg dm}^{-3}$  und des Pflughorizonts von 25 cm ergibt. Da es keine europäischen Grenzwerte für Schadstoffe im Boden gibt, wurden für die Schwermetalle die vorgeschlagenen Grenzwerte aus einer europäischen Studie (Gawlik & Bidoglio, 2006) verwendet. Für die organischen Schadstoffe wurden die Vorsorgewerte der ÖNORM S2088-2, 2004 entnommen.

Berechnung Schwermetalle: In einer Massenbilanz (Smolders, 2013) wurde die potentielle Schwermetallakkumulation über 200 Jahre berechnet. Input waren der Schadstoffeintrag über Dünger, Atmosphäre und Kalk, der Output fand über das Erntegut (Weizen) und Ausschwemmung statt. Die Schwermetalle sind je nach ihrer Eigenschaft und dem pH-Wert im Boden löslich und können verlagert und ausgewaschen werden, was mit dem Verteilungskoeffizienten KD berücksichtigt wurde. Für die Schwermetallaufnahme in die Pflanze wurde der Transferfaktor für Weizenkorn und für das jeweilige Element verwendet. Die Schadstoffaufnahme in die Pflanze und die Verlagerung mit dem Sickerwasser wurden in Abhängigkeit der Bodenkonzentration gesetzt, die Abfuhr mit der Ernte und Auswaschung nahm daher bei Abreicherung im Boden ab.

Berechnung organische Schadstoffe: Für die Berechnung der langlebigen, organischen Schadstoffe wurde eine Massenbilanz mit der jeweiligen Halbwertszeit der Verbindung berechnet (Amlinger, 2004). Die Angaben zur Halbwertszeit sind in der Literatur sehr unterschiedlich. Die verwendete, mittlere Zeit ist in Tabelle 1 angegeben.

Tabelle 1: Schadstoffkonzentration im Boden zu Beginn der Berechnung, deren jährlicher Eintrag durch Kalkung und über die Atmosphäre, sowie Vorsorgewerte im Boden

<b>Schwermetalle</b>		Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn	Referenz
Ausgangskonzentration Boden	mg kg <sup>-1</sup>	0,28	94,8	17,3	37,3	32,6	68,1	[5]
Atmosphärischer Eintrag	g ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup>	0,36	9,30	34,0	10,0	11,9	227,0	[6] [7]
Eintrag durch Kalk	g ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup>	0,14	0,92	1,38	0,78	4,0	0,0	[8]
Vorsorgewert	mg kg <sup>-1</sup>	1	75	50	50	70	150	[1]
<b>Organische Schadstoffe</b>		PCB	PAH	PCDD/F	Referenz			
Ausgangskonzentration Boden	mg kg <sup>-1</sup>	0,01	0,43	0,00000	[1]	[3]	[12]	[11]
Atmosphärischer Eintrag	g ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup>	0,35	2,67	0,00000	[9]	[11]	[3]	[1]
Halbwertszeit im Boden	years	14,2	12,2	29,7	[12]	[1]	[14]	[13]
Vorsorgewert	mg kg <sup>-1</sup>	0,30	1,00	0,01	[4]			

### Ergebnisse und Diskussion

Ergebnisse der Schwermetalle: Cadmium (Cd) ist bei pH-Wert 5 im Boden mobiler als bei pH 7 und wurde daher abgereichert, besonders beim Szenario pH 5,  $F = 0,3 \text{ m yr}^{-1}$ , bei dem der Cd-Gehalt für alle Dünger gegen Null ging. Bei pH 7 fand durch die Dünger Grüngutkompost OF, Rohphosphat, Wirtschaftsdünger und Biotonnenkompost OF eine leichte Akkumulation statt. Bei allen anderen Düngern hielten sich Cd-Eintrag und Austrag die Waage, der Cd-Gehalt entsprach auch nach 200 Jahren noch in etwa dem Ausgangswert. Bei Chrom (Cr) lag schon der Ausgangswert um 26 % über dem Vorsorgewert. Bei pH 5 wurde Cr abgereichert, nur durch Grüngutkompost OF lag der Cr-Gehalt bei pH 5  $F 0,1 \text{ m yr}^{-1}$  über dem Ausgangswert. Bei pH 5  $F 0,3 \text{ m yr}^{-1}$  wurde Cr ausgetragen und näherte sich dem Vorsorgewert. Bei pH 7 führten die Komposte, Wirtschaftsdünger und Gärrest OF zu einer Anreicherung, durch die anderen Dünger blieb der Cr-Gehalt ähnlich dem Ausgangsgehalt. Für Kupfer (Cu) war das Akkumulationsmuster in den vier Szenarien ähnlich, die Komposte und die unbehandelte Klärschlammasche führten zur höchsten Akkumulationsrate, Rohphosphat, Triplesuperphosphat, Struvit, Fleisch- und Konchenmehl zur geringsten. Die berechneten Akkumulationswerte lagen jedoch alle weit unter dem Vorsorgewert. Bei Nickel (Ni) war die Mobilität besonders pH-abhängig. Bei pH 5, zusammen mit hohem Sickerwasser ( $F 0,3 \text{ m yr}^{-1}$ ), führten alle Dünger zu deutlicher Ni-Auswaschung im Boden. Bei pH 7 akkumulierte Ni durch alle Komposte, in Kombination mit geringem Sickerwasser auch durch Wirtschaftsdünger. Der Vorsorgewert wurde jedoch nicht erreicht. Durch die anderen Dünger blieb die Ni-Konzentration ähnlich dem Ausgangswert oder verringerte sich leicht. Sickerwassermenge und pH-Wert hatten keinen starken Einfluss auf den Bleigehalt, er war nach 200 Jahren in den vier Szenarien sehr ähnlich. Die Komposte führten zu einer Akkumulation, vor allem der Grüngutkompost OF, vom Vorsorgewert war die Bleikonzentration aber deutlich entfernt. Durch die anderen Dünger blieb die Bleikonzentration in etwa auf dem Ausgangsniveau. In einem Boden mit pH 7 würden alle Dünger nach 200 Jahren zu einer Zinkakkumulation führen, unabhängig von der Sickerwassermenge. Bei pH 5 und  $F 0,3 \text{ m yr}^{-1}$  würde die Düngung zur Auswaschung von Zink und damit zu einer Abreicherung im Boden führen. Im Modell pH 5  $F 0,1 \text{ m yr}^{-1}$  führten die Komposte zu einer Anreicherung, die anderen Dünger zu einer gleichbleibenden oder geringeren Konzentration von Zink im Boden.

Ergebnisse der organischen Schadstoffe: Die Berechnung der potenziellen Akkumulation der organischen Schadstoffe PCB, PAH und PCDD/F ergab eine Abreicherung im Boden. PCB-Werte lagen mit etwa  $0,002 \text{ mg kg}^{-1}$  für alle Dünger unter der Ausgangskonzentration. Auch für PAH (Halbwertszeit 12 Jahre) fand keine Anreicherung im Boden statt. Bei geringer PAH-Belastung der Dünger lag der Wert mit etwa  $0,02 \text{ mg kg}^{-1}$  deutlich unter dem Ausgangswert. Bei einer starken PAH-Belastung der

Dünger lag der Schadstoffgehalt im Boden durch Biotonnenkompost nur knapp unter dem Ausgangswert, dann folgten Grüngutkompost, Klärschlamm, Gärrest und Wirtschaftsdünger. Die PCDD/F-Konzentration nach 200 Jahren war der Berechnung nach deutlich unter der Ausgangskonzentration. Bei gering belasteten Düngern lag sie zwischen 0,08-0,3 ng TEQ kg<sup>-1</sup>, bei stark belasteten Düngern verringerte sich die Konzentration ebenfalls deutlich und lag zwischen 0,08-0,8 ng TEQ kg<sup>-1</sup>, wobei Klärschlamm den höchsten PCDD/F-Gehalt verursachte, dann folgten Wirtschaftsdünger, Grüngutkompost, Biotonnenkompost und Gärrest. Der geringste Gehalt ergab sich für Fleisch- und Knochenmehl.

### ***Zusammenfassung***

Der Vorsorgewert wurde nur von Cr überschritten. Es zeigt sich, dass das Verhältnis von Schadstoff zu Phosphor eine wichtige Rolle spielt. Von Düngern mit einem geringen P-Gehalt, wie den Komposten, muss eine größere Menge ausgebracht werden, was in dieser Berechnung zu einer höheren Schadstoffanreicherung führte. Grüngutkompost hatte das höchste Akkumulationspotenzial für alle Schwermetalle, nur bei Cadmium wurde er von Triplesuperphosphat übertroffen. Vermutlich ist die atmosphärische Schermetallbelastung von Grünschnitt in Städten und entlang von Straßen besonders hoch und konzentriert sich im Kompost. Die Schadstoffgehalte der Dünger können, je nach Ausgangssubstraten, unterschiedlich sein. Als Phosphordünger eingesetzt, hatten Struvite, Fleisch- und Knochenmehl und Aschen das geringste Schadpotential. Die Schadstoffe, auch bei geringer Anreicherung im Boden, stellen eine Belastung des Wassers, des Staubs und der Kulturpflanzen darstellen dar.

### ***Abstract***

The potential accumulation of the heavy metals Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, and Zn and the persistent organic pollutants PCB, PAH and PCDD/F in soil was calculated in a mass balance approach for 17 fertilizers: Compost green waste certified organic (OF), Compost biowaste OF, Composte catering waste, Cattle solid manure, Digestate OF, Digestate catering waste, Sewage sludge liquid, Sewage sludge solid, Meat and bone meal, Struvite Stuttgart, Struvite Airprex, sewage sludge untreated, sewage sludge ash (SSAsh) Leachphos, Na-SSAsh Ashtec, SSAsh Mephrec, Phosphate rock, Triplesuperphosphate. After 200 years of fertilizer application equivalent to 11 kg P ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup>, organic pollutants were lower than the soil background concentration at the beginning of the computation. For heavy metals four scenarios with soil pH 5 and pH 7 and the precipitation excess F 0,1 and F 0,3 m yr<sup>-1</sup> were calculated. Dependent on heavy metal mobility in soil due to pH and F, an accumulation or depletion was found. Composts had a lower P content compared to heavy metal load, what resulted in a higher pollution of soil than fertilizers with high P content like Struvite, Meat- and bone meal, Ashes and as well sewage sludge and digestate, rock phosphate and triplesuperphosphate (TSP). Only the Cd accumulation with TSP was higher than that with compost.

### ***Literatur***

Literaturverzeichnis bei den Autoren.

### ***Adressen der Autoren***

<sup>1</sup> Universität für Bodenkultur, Institut für Ökologischen Landbau, Augasse 2-6/I, 1090 Wien Wien

<sup>2</sup> Universität Hohenheim, Institut für Kulturpflanzenwissenschaften, Fruwirthstrasse 20, 70599 Stuttgart

\* Ansprechpartnerin: Mag. Lina WEISSENGRUBER, lina.weissengruber@boku.ac.at

Mit besonderem Dank an Stefan Hörtenhuber und Markus Puschenreiter