

Einfluss von Parametern der Bodenfruchtbarkeit und Düngung auf den Uran-Transfer Boden-Pflanze

Susanne Schroetter, Maria Rivas, Maria Lamas, Ewald Schnug und Jürgen Fleckenstein

Institut für Pflanzenernährung und Bodenkunde, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL), Bundesallee 50, D-38116 Braunschweig

Zusammenfassung

Uran ist ein toxisches Schwermetall, das als natürlicher Bestandteil von Gesteinen ubiquitär vorkommt. Daher enthalten nahezu alle Böden Uran in unterschiedlichen, meist jedoch sehr geringen Mengen. Uran wird vornehmlich in den A-Horizonten der Böden akkumuliert; seine Pflanzenverfügbarkeit wird zum einen von den vorherrschenden Bodeneigenschaften bestimmt, zum anderen spielen anthropogene Einflüsse eine nachhaltige Rolle. Bekannte Ursachen für überproportionale Anreicherungen von Uran in Böden sind Bergbau und erzverarbeitende Industrie. Des Weiteren wurde erst kürzlich der Beitrag der P-Düngung bei der Anreicherung von Uran in Böden erkannt.

Eine neue, nicht zu unterschätzende Gefährdung des Ökosystems Boden-Pflanze geht von militärischen Operationen aus, bei denen Munition, die unter Verwendung von „Depleted Uranium“ (DU) hergestellt wurde, zum Einsatz kam. In den betroffenen Krisengebieten sind nachweislich weite Regionen durch fehlgeschlagene Geschosse, die sich in unterschiedlichen Tiefen im Boden befinden, kontaminiert. Sie sind langfristig eine potentielle Quelle für toxische, pflanzenaufnehmbare Uranverbindungen. Ein Teil des von den Wurzeln absorbierten Urans wird im Verlauf des Pflanzenwachstums in die oberirdischen Organe verlagert. Gelangen uranbelastete Pflanzen oder Pflanzenteile in die Nahrungskette, geht von ihnen neben der Schwermetalltoxizität auch eine radiologische Gefahr durch α -Strahlung aus. Anhand von zwei mehrfaktoriellen Gefäßversuchen mit verschiedenen landwirtschaftlichen Nutzpflanzen, die unter kontrollierten Bedingungen im Gewächshaus durchgeführt wurden, wurden Faktoren evaluiert, die den Uran-Transfer_{Boden-Pflanze} beeinflussen können. Der Urangehalt im Spross von *Lolium perenne*, *Helianthus annuus*, *Zea mays* und *Vicia faba* wurde maßgeblich von der Bodenfruchtbarkeit, dem pH-Wert und dem Phosphorgehalt des Kultursubstrates beeinflusst. Die Versorgung der Pflanzen mit Stickstoff und Schwefel hatte mittelbaren Einfluss über die Wachstumsförderung.

Schlüsselwörter: *Bodenkontamination, Düngung, Helianthus annuus L., Lolium perenne L., Uran, Uranaufnahme, Vicia faba L., Zea mays L.*

Summary

Uranium (U) is a toxic heavy metal. It is a natural component of rocks. Therefore, more or less all soils

contain U in different amounts. The background values of natural soils differ between 0.8 and 11 mg kg⁻¹ U. U is accumulated in the A horizons of soils and its plant availability is influenced by both natural soil properties and anthropogenic activities. Mining and ore processing industry are well known for causing over-proportional enrichments of U in soils. Recently, the use of phosphorus fertilizers in agriculture has been identified as a key factor for the accumulation of U in soils. An alien source of environmental pollution results from military operations. In the operational zones large areas are contaminated by DU containing penetrators, which did not hit a target and are distributed in the soil in different depths. Uranium incorporated into the soil by industrial wastes, fertilization, or use of uranium containing ammunition is potentially plant available. Uranyl ions will be released over longer periods by decomposition and conversion processes with the soil solution, organic soil compounds, plant roots, and microorganisms. Plants are able to absorb uranyl ions by their roots, to translocate them into assimilation and storage organs. The result is that U finally enters the food chain. The risk for human's health consists in the strong heavy metal toxicity of U, but there are also risks from radiation. Factors affecting the soil/plant transfer of U were evaluated in pot experiments with different crops. The soil content of plant available U depended on the soil fertility status. The phosphorus content of the soil proved to be a relevant parameter influencing the plant available U content. The U content of the aboveground parts of *Lolium perenne*, *Helianthus annuus*, *Zea mays*, and *Vicia faba* was related to both factors, soil fertility and phosphorus level. The soil pH value and a sufficient nutrient supply (nitrogen and sulfur) yielded a dilution effect by growth promotion.

Keywords: *fertilization, Helianthus annuus L., Lolium perenne L., soil contamination, uranium, uranium uptake, Vicia faba L., Zea mays L.*

Einleitung

Uran (U) ist ein natürlicher Bestandteil von Gesteinen der Erdkruste und infolge von Bodenbildungsprozessen durch Verwitterung in den meisten Böden enthalten. Die natürlichen Hintergrundwerte liegen in Abhängigkeit vom Ausgangsgestein im Bereich von 0,8 bis 11 mg kg⁻¹ U (Kabata-Pendias & Pendias, 2001). Uran wird vornehmlich im A-Horizont der Böden angereichert, d.h. genau in den

oberen 25 Zentimetern, die am intensivsten durchwurzelt sind (Schroetter et al., 2005). Die Pflanzenverfügbarkeit von Uran wird sowohl durch natürliche Bodeneigenschaften, als auch ackerbauliche Maßnahmen beeinflusst.

Zu dem seit langem bekannten Problem der hohen Urangelhalte von Böden im Bereich von Uranabbaugebieten und Erzaufbereitungsstätten kamen neue, nicht zu unterschätzende Kontaminationsquellen. Verstärktes Augenmerk wird auf die Landwirtschaft selbst gelegt: die Versorgung der Pflanzenbestände mit Phosphordüngern, die aus uranhaltigen Rohphosphaten hergestellt werden, kann langfristig zu einer Uran-Anreicherung auf intensiv bewirtschafteten Böden führen.

In der jüngsten Vergangenheit tritt eine zwar regional begrenzte, aber ungleich ernstere Gefährdung des Ökosystems Boden auf: seit mehr als zehn Jahren wird bei militärischen Auseinandersetzungen (Irak, Kosovo, Afghanistan) Munition eingesetzt, deren Penetratoren unter Verwendung von abgereicherten Uranabfällen aus der Kernspaltung hergestellt wurden. Das sogenannte „Depleted Uranium“ (DU) ist ein Abfallprodukt der Uran-Anreicherung zur Kernkraftgewinnung. Es ist wie natürliches Uran ein instabiles Element, das noch bis zu 0,3 % des spaltbaren Isotops ^{235}U enthält, hoch giftig ist und α -Strahlung abgibt.

Berichten des UNEP (2001) zufolge wurden z.B. während der Gefechte im Kosovo mehr als 30.000 DU-haltige Geschosse abgefeuert. Der weitaus größte Teil verfehlte nachweislich sein Ziel und drang in den Boden ein. Die Projektile liegen nahezu unauffindbar, umgeben von Pflanzenwurzeln, Bodenwasser und Bodentieren in unterschiedlichen Bodenschichten. In unmittelbarer Umgebung dieser Geschosse wurden Bodengehalte von bis zu $400 \text{ mg kg}^{-1} \text{ U}$ festgestellt (UNEP, 2001). Sie sind deshalb als permanente Quelle für unkontrollierbare Schwermetallkontamination anzusehen. Infolge fortschreitender Korrosion werden toxische Uranverbindungen freigesetzt, die von den Pflanzenwurzeln aufgenommen werden können.

Uran ist im Hinblick auf seine physiologische Wirkung als ein für Pflanzen nicht essenzielles Element einzustufen. Nicht-essenzielle Elemente beeinflussen schon beim Vorhandensein in geringsten Mengen den normalen Ablauf von Stoffwechselprozessen in der Pflanze. Für die tatsächliche toxische Wirkung eines Elements in der Umwelt spielt sein chemisches Verhalten, das heißt seine Löslichkeit und die seiner Verbindungen eine entscheidende Rolle (Bliefert, 1994). Hier ist bei der Einschätzung der Gefahren, die von DU ausgehen, schwerpunktmäßig anzusetzen: Uran ist ein toxisches Schwermetall. Gefahr für die menschliche Gesundheit entsteht, wenn dieses Schwermetall in den Nahrungskreislauf gelangt. Das kann direkt über Trinkwasser, Gemüse und Obst erfolgen oder auf indirektem Weg mit dem Verzehr von

belastetem Fleisch, Milch oder Eiern. Das toxische Uranyl-Ion (UO_2^{2+}) lagert sich an körpereigene Proteine an. Der Urantransport innerhalb des menschlichen Körpers erfolgt mit dem Blut; vornehmlich in Leber und Nieren wird Uran akkumuliert (Cothorn & Lappenbusch, 1983; Milvy & Cothorn, 1990).

Da Uran ubiquitär in der Umwelt vorkommt, ist es in Spuren auch in Pflanzen enthalten. Daher ist die Aufnahme kleinster Mengen mit der Nahrung unvermeidlich. Diese Mengen richten sich nach den regionalen Ernährungsgewohnheiten der Menschen: bis zu $2,7 \mu\text{g U}$ werden in Deutschland täglich mit der festen Nahrung aufgenommen (Anke et al., 2003). Hinzu kommt Uran, das mit dem Trinkwasser, insbesondere mit Mineralwasser, aufgenommen wird (Schnug et al., 2005).

Die Aufnahme von Schwermetallen durch die Pflanze hängt von der Löslichkeit der im Boden vorliegenden Verbindungen ab und ist als Funktion von Interaktionen der Metall-Ionen der flüssigen und festen Phase im Bodensystem zu verstehen (Wallnöfer & Engelhardt, 1988). Das Prinzip der Dynamik von Schwermetallen im Boden wird in Abb. 1 vereinfacht dargestellt.

Schwermetallodynamik
im System Boden -Pflanze
(in Anlehnung an Schilling, 2000)

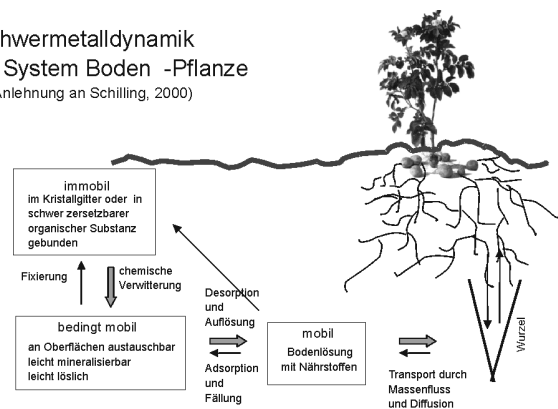


Abb. 1: Schwermetallodynamik im System Boden – Pflanze
(in Anlehnung an Schilling, 2000)

Die Menge an freien, pflanzenaufnehmbaren Schwermetallen in der Bodenlösung wird durch Adsorptions- und Desorptionsvorgänge an Bodenkolloiden bestimmt, wobei Größe und Ladung der Ionen sowie die Austauschkapazität des Bodens entscheidend sind. In der Bodenlösung vorhandene Anionen und der pH-Wert sind maßgeblich für die Ausfällung stabiler Metallkomplexe. Die Pflanze trägt aktiv durch Wurzelexsudate zu chemischen Veränderungen im Bereich der Rhizosphäre bei, diese können die Konzentration pflanzenaufnehmbarer Schwermetall-Ionen im Wurzelbereich erhöhen. Gleiche Effekte sind durch bodenlebende Mikroorganismen und deren Stoffwechsel zu erwarten. Die ausgeschiedenen organischen Verbindungen, wie Phenol- und Aminosäuren, bilden mit Kationen (hier auch UO_2^{2+}) aus

schwerlöslichen Verbindungen Chelate (metallorganische Komplexe), die über einen weiten pH-Bereich wasserlöslich und damit pflanzenaufnehmbar sind (Finck, 1991). Die solchermaßen gebundenen UO_2^{2+} -Ionen können direkt durch die Wurzelrinde in die Pflanze diffundieren oder mit Hilfe von pflanzenbürtigen Enzymen aus den organischen Komplexen gelöst und als Kationen von der Wurzel aufgenommen werden. Die Verteilung des Urans aus den Wurzeln in den Stängel- und Blattapparat, in Blüten und Speicherorgane erfolgt über das Xylem (Richter, 1988). Uran wird vorwiegend in Zellmembranen und Vakuolen eingelagert. Pflanzliche Chelatkomplexe, die eine hohe Affinität zu Schwermetall-Ionen haben, sind z.B. Cytochrome und Chlorophyll.

In der deutschen Bundesbodenschutzverordnung (1999) werden bodenartenabhängige maximal tolerierbare Gesamtgehalte für bedenkliche Schwermetalle wie Cadmium, Blei, Quecksilber oder Nickel in ackerbaulich genutzten Böden angegeben. Einen aktuellen Vorsorgewert für Uran gibt es bislang nicht. Von Cramer et al. (1981) wurde für Kulturböden ein bodenartenunabhängiger tolerierbarer Urangehalt von höchstens 5 mg kg^{-1} vorgeschlagen.

Material und Methoden

Die Untersuchungen zur Pflanzenverfügbarkeit von Uran in Abhängigkeit von Bodenfruchtbarkeit und Düngung wurden in zwei mehrfaktoriellen Gefäßversuchen unter kontrollierten Bedingungen durchgeführt. Geprüft wurden drei Urankontaminationsstufen in Bodensubstraten unterschiedlicher Herkunft, die Wirkung von Phosphorversorgung, Kalkung, sowie Stickstoff- und Schwefeldüngung auf den pflanzenverfügbaren Urangehalt (U_{PV}) im Boden und die Urankonzentration im oberirdischen Pflanzengewebe von vier landwirtschaftlichen Nutzpflanzenarten. Die Abstufungen in der Bodenfruchtbarkeit der Prüfsubstrate wurden durch Entnahme von Bodensubstraten aus einem extensiv bewirtschafteten Wiesenstandort bzw. aus einem Waldstandort, jeweils aus dem Oberboden (0 bis 25 cm) und dem darunter liegenden Horizont (25 bis 50 cm), erreicht. Vor Entnahme des Bodensubstrates wurden Grasnarbe bzw. Waldstreu entfernt. Die qualitätsbestimmenden Bodeneigenschaften wurden nach standardisierten Analyseverfahren bestimmt: pH-Wert - potentiometrisch in 1:2,5 Suspension mit 0,01 M $CaCl_2$ -Lösung; Gesamtkohlenstoff (C_t) - trockene Verbrennung, Kohlenstoffanalysator LECO EC 12; Gesamtstickstoff (N_t) - nach *Kjeldahl*; pflanzenverfügbares P und K (P_{CAL} , K_{CAL}) - Calcium-Acetat-Lactat-Extraktion (nach

Schüller, 1969); pflanzenverfügbares Uran (U_{PV}) - AAAC-EDTA-Extraktion (Lamas et al., 2002; modifiziert nach Silanpää, 1982).

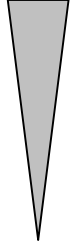
Die Urankontamination der Bodensubstrate erfolgte vor Versuchsbeginn mit einer speziell für dieses Experiment aus Uranylнитrat nach dem Verfahren von Fleckenstein (1972) hergestellten grünen Modifikation von U_3O_8 . Entsprechend der Urankontaminationsstufen (Tab. 1) wurde das pulverisierte U_3O_8 portioniert und separat für jedes Gefäß mit dem Bodensubstrat vermischt. In gleicher Weise erfolgte die Zugabe der meliorativen P-Düngung. Im ersten Experiment (Tab. 1) wurde ein langsamwüchsiges, ausdauerndes und krankheitsresistentes Weidelgras (Sorte „Lisuna“) untersucht, das trotz der limitierenden Bedingungen (geringes Gefäßvolumen: Fassungsvermögen 1,5 kg lufttrockener Boden, Überwintern im Gewächshaus) mehrere Ernten gewährleistete.

Im darauffolgenden zweiten Experiment wurden die obengenannten Bodensubstrate, getrennt nach den beiden P-Versorgungsstufen und den Urankontaminationsstufen, erneut gemischt, um ein Substrat von einheitlicher Qualität zu erhalten. Mais, Sonnenblumen und Ackerbohnen wurden bis zum BBCH-Stadium 32 (Streckungsphase) (Meier, 2001) mit differenzierter Stickstoff- und Schwefelversorgung in Gefäßen mit einem Fassungsvermögen von 800 g lufttrockenem Boden herangezogen und vor Eintritt in die generative Phase geerntet (Tab. 2). Alle anderen essenziellen Nährstoffe sowie die Wasserversorgung der Pflanzen wurden in beiden Versuchen durch entsprechende Zufuhr im Optimum gehalten.

Nach der Ertragsermittlung auf Trockensubstanzbasis wurden die Pflanzen fein vermahlen und anschließend mit Salpetersäure/Wasserstoffperoxid in der Mikrowelle aufgeschlossen. Die Urangelte wurden mittels ICP-QMS (induktiv gekoppelte Quadrupol Plasma Massenspektrometrie, experimentelle Nachweisgrenze: 15 ng L^{-1} (Sparovek et al., 2001)) gemessen.

Nach der Ernte der Pflanzen wurden in beiden Versuchen die Gesamt-U- (U_t) und -P-Gehalte (P_t) und die jeweiligen pflanzenaufnehmbaren Fraktionen U_{PV} und P_{PV} in den Bodensubstraten bestimmt. U_t und P_t wurden mit Aqua regia, U_{PV} und P_{PV} mit AAAC-EDTA-Lösung extrahiert. Die Messung selbst erfolgte mit der ICP-QMS.

Tab. 1: Zusammenstellung der Prüffaktoren und ihrer Abstufungen für Gefäßversuch 1, Braunschweig, 2000 bis 2002 (detaillierte Versuchsbeschreibung bei Lamas, 2005)

Gefäßversuch 1: <i>Lolium perenne</i> L.; Dauer: 2 Jahre							
Bodenfruchtbarkeit 	hoch	Grünland Oberboden	U-Kontamination mit U ₃ O ₈ [mg kg ⁻¹ U]	ohne	P-Düngung mit CaHPO ₄ [mg kg ⁻¹ P]	ohne	Kalkung mit CaCO ₃ [mg kg ⁻¹ Ca]
		Grünland Unterboden		250			
		Wald Oberboden		500			
	gering	Wald Unterboden		1.000			

Tab. 2: Zusammenstellung der Prüffaktoren und ihrer Abstufungen für Gefäßversuch 2, Braunschweig, 2003 (detaillierte Versuchsbeschreibung bei Rivas, 2005)

Gefäßversuch 2: <i>Zea mays</i> L., <i>Helianthus annuus</i> L., <i>Vicia faba</i> L.; Dauer: 6 Wochen									
P _t im Boden [mg kg ⁻¹ P]	334	U-Kontamination [mg kg ⁻¹ U]	auf niedrigem P _t -Level	auf hohem P _t -Level	N-Düngung [mg kg ⁻¹ N]	250	S-Düngung [mg kg ⁻¹ S]		
			ohne	ohne					
	1.558		166	173				500	50
			329	385					
			660	644					

Für *Vicia faba* L. entfällt der Prüffaktor „N-Düngung“

Ergebnisse und Diskussion

Einfluss von Bodenfruchtbarkeit, P-Düngung und Kalkung auf den Gehalt an pflanzenverfügbarem Uran im Boden

Die vier untersuchten Bodensubstrate unterschieden sich entsprechend ihrer Herkunft deutlich in der natürlichen Bodenfruchtbarkeit. Die qualitätsbestimmenden Eigenschaften sind in Tab. 3 beschrieben.

Die pH-Werte aller Ausgangssubstrate lagen im sauren bis stark sauren Bereich, wobei der Waldboden mit pH 3,5 und 3,8 erwartungsgemäß niedriger lag als der Wiesenboden (5,9 und 4,8). Beide Oberbodensubstrate (Grünlandoberboden, Waldoberboden) wiesen, verglichen mit den jeweiligen Unterbodensubstraten (Grünlandunterboden, Waldunterboden), höhere C- und N-Gehalte auf. Der Oberboden (0 bis 25 cm) des Grünlandstandorts enthielt mit 108 mg kg⁻¹ P_{CAL} doppelt soviel pflanzenverfügbares P wie der Waldober-

boden. Die 25 bis 50 cm-Bodenschicht enthielt auf beiden Standorten mit 20 mg kg⁻¹ P_{CAL} weniger als ein Fünftel bzw. die Hälfte des Gehaltes des Oberbodens. Der Gehalt an K_{CAL} in den Grünlandsubstraten lag weit über dem des Waldbodens.

Die Menge an pflanzenverfügbarem U lag bei Werten um 0,03 mg kg⁻¹ U_{PV} und unterschied sich für die einzelnen Bodensubstrate nur geringfügig (Tab. 3). Im Gefäßversuch mit *Lolium perenne*, der insgesamt 58 Wochen dauerte, wurde in den Varianten ohne P-Düngung und Kalkung für alle geprüften Bodensubstrate ein mit steigender Ausgangskontamination nahezu proportional ansteigender U_{PV}-Gehalt im Boden nachgewiesen (Tab. 4).

Der Vergleich der Bodensubstrate auf gleicher Kontaminationsstufe zeigt, dass im Grünlandoberboden stets signifikant weniger pflanzenverfügbares U vorlag als in den Substraten mit geringerer Bodenfruchtbarkeit.

Tab. 3: Bodenkundliche Merkmale der Versuchsböden

Standort	Bodenart	FAO-Boden- klassifikation	Bodentiefe		pH	C _t [%]	N _t [mg g ⁻¹]	P _{CAL} [mg kg ⁻¹]	K _{CAL} [mg kg ⁻¹]	U _{PV} [mg kg ⁻¹]
			[cm]							
Grünland	schluffig- lehmiger Sand	Dystric Cambi- sol/ Orthic Lu- visol	Ober- boden	0-25	5,9	1,2	1,0	108	261	0,02
			Unter- boden	25-50	4,8	0,5	0,4	20	246	0,03
Wald	anlehmiger Sand	Leptic Podzol	Ober- boden	0-25	3,5	2,0	1,1	48	25	0,04
			Unter- boden	25-50	3,8	0,6	0,4	20	5	0,04

Tab. 4: Einfluss der Bodenfruchtbarkeit auf den pflanzenverfügbaren Urangelgehalt (U_{PV}) [mg kg⁻¹] im Boden. Gefäßversuch 1; *Lolium perenne*, ungedüngt, 58 Wochen nach der Kontamination mit U₃O₈

Bodensubstrat ungedüngt	Uran-Kontamination [mg kg ⁻¹ U]			
	0	250	500	1.000
	U _{PV} [mg kg ⁻¹]			
Grünland Oberboden	0,02	25	54	117
Grünland Unterboden	0,03	79	130	309
Wald Oberboden	0,04	78	160	297
Wald Unterboden	0,04	86	148	317
Mittelwert (GD _{0,05} : 32,2)	0,03	67	123	260

Im Mittel wurden etwa dreifach höhere U_{PV}-Gehalte in diesen Bodensubstraten (Grünlandunterboden, Waldober- und -unterboden) gemessen.

Die Ursache dafür ist zuerst in der unzureichenden P-Versorgung in Verbindung mit der sauren Bodenreaktion zu sehen. Bei den beiden Substraten aus den unteren Bodenschichten kommt der nur geringe Gehalt an organischer Substanz verstärkend hinzu (Tab. 3). Die Untersuchungen von Schönbuchner (2002) an Haldenböden zeigten ebenfalls eine deutliche Bindungs-Präferenz von U an die organische Substanz.

Die meliorative P-Düngung (1.500 mg kg⁻¹) in Form von CaHPO₄ zu Versuchsbeginn führte zu erheblich niedrigeren U_{PV}-Gehalten in allen Substraten (Tab. 5). Im Grünlandoberboden wurden für alle Kontaminationsstufen um etwa die Hälfte geringere U-Gehalte im Boden gemessen. Der reduzierende Effekt der P-Zugabe war in den weniger fruchtbaren Substraten sehr ausgeprägt: bis zu 89% niedrigere U_{PV}-Gehalte wurden hier ermittelt. Die Zugabe von CaCO₃ im 2. Versuchsjahr bewirkte nur im Grünlandoberboden-Substrat eine deutliche Senkung des U_{PV}-Gehaltes um 20% bei allen Uran-Kontaminationsstufen (Tab. 6).

Sowohl im Grünlandunterboden- als auch im Waldoberboden-Substrat war lediglich für die niedrigste Kontaminationsstufe (250 mg kg⁻¹ U) ein geringer Effekt zu verzeichnen. In den anderen Varianten stieg nach der Kalkung der Gehalt an U_{PV} im Substrat an. Dieser Effekt ist auf den Anstieg der Ca²⁺-Ionen in den Bodensubstraten zurückzuführen. Metall-Ionen (hier UO₂²⁺-Ionen), die an die Bodenkolloide gebunden sind, werden durch freie Ca²⁺-Ionen ersetzt und gehen in die Bodenlösung über (Schroeder, 1992). Sie liegen somit in pflanzenaufnehmbarer Form vor.

Tab. 5: Einfluss der P-Düngung auf den pflanzenverfügbaren Urangehalt (U_{PV}) [mg kg^{-1}] in unterschiedlichen Bodensubstraten, Gefäßversuch 1, *Lolium perenne*, 58 Wochen nach der Kontamination mit U_3O_8

Bodensubstrat mit P-Düngung	U-Kontamination [mg kg^{-1} U]			
	0	250	500	1.000
	U_{PV} [mg kg^{-1}]			
Grünland Oberboden	0,01	12	27	55
Grünland Unterboden	0,01	15	27	77
Wald Oberboden	0,02	29	18	78
Wald Unterboden	0,03	13	33	61
Mittelwert (GD _{0,05} : 9,7)	0,02	18	26	68

Tab. 6: Einfluss der Kalkung auf den pflanzenverfügbaren Urangehalt (U_{PV}) [mg kg^{-1}] in unterschiedlichen Bodensubstraten, Gefäßversuch 1, *Lolium perenne*, 58 Wochen nach der Kontamination mit U_3O_8

Bodensubstrat mit Kalkung	U-Kontamination [mg kg^{-1} U]			
	0	250	500	1.000
	U_{PV} [mg kg^{-1}]			
Grünland Oberboden	0,01	21	42	92
Grünland Unterboden	0,03	69	145	260
Wald Oberboden	0,02	70	159	307
Wald Unterboden	0,03	87	172	313
Mittelwert (GD _{0,05} : 13,0)	0,03	62	130	243

Einfluss von Bodenfruchtbarkeit, P-Düngung und Kalkung auf den Urangehalt in Pflanzen

Das Wachstum der Graspflanzen wurde maßgeblich durch die natürliche Bodenfruchtbarkeit beeinflusst. Erhöhte U-Kontaminationen der Bodensubstrate wirkten sich negativ auf die Blattmasseentwicklung aus. Dieser Effekt der Wachstumshemmung war auf dem Waldunterboden-Substrat am stärksten ausgeprägt (Abb. 2).

Der U-Gehalt in den Blättern von *Lolium perenne* stieg mit zunehmender U-Kontamination der Bodensubstrate deutlich an. Besonders ausgeprägt war das

bei den Pflanzen, die auf den Substraten mit der geringsten Bodenfruchtbarkeit wuchsen (Abb. 3). Zum Zeitpunkt des intensivsten Wachstums, im Juni des 2. Versuchsjahres (4. Schnitt), wurden auf dem mit 1.000 mg kg^{-1} U kontaminierten Waldunterboden-Substrat in den Blättern von *Lolium perenne* bis zu 44 mg kg^{-1} U (TM) bestimmt. Die Qualität der Bodensubstrate selbst hatte nachhaltigen Einfluss auf die U-Gehalte der Pflanzen. Je höher die natürliche Fruchtbarkeit der Substrate war, desto geringere U-Konzentrationen waren im Gras nachweisbar.

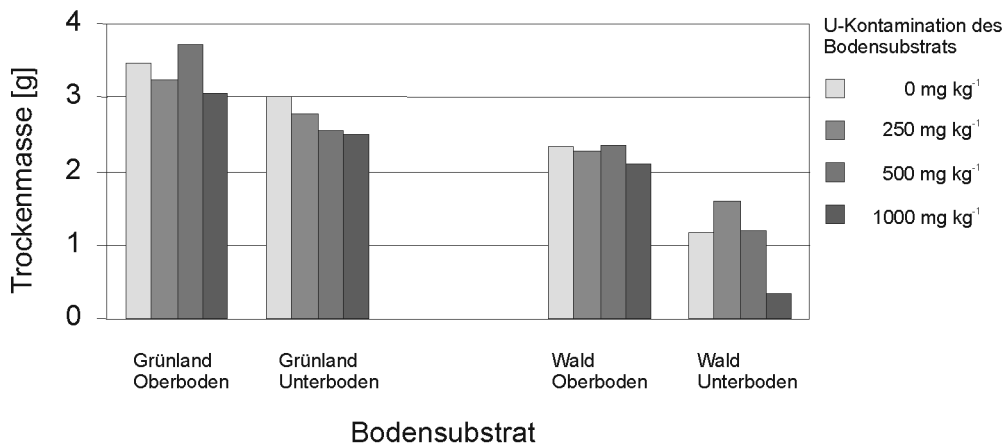


Abb. 2: Einfluss von Bodenfruchtbarkeit und Urankontamination des Bodens auf den Trockenmasseertrag [g] von *Lolium perenne*. Gefäßversuch 1, 40 Wochen nach der Kontamination mit U₃O₈, 4. Schnitt

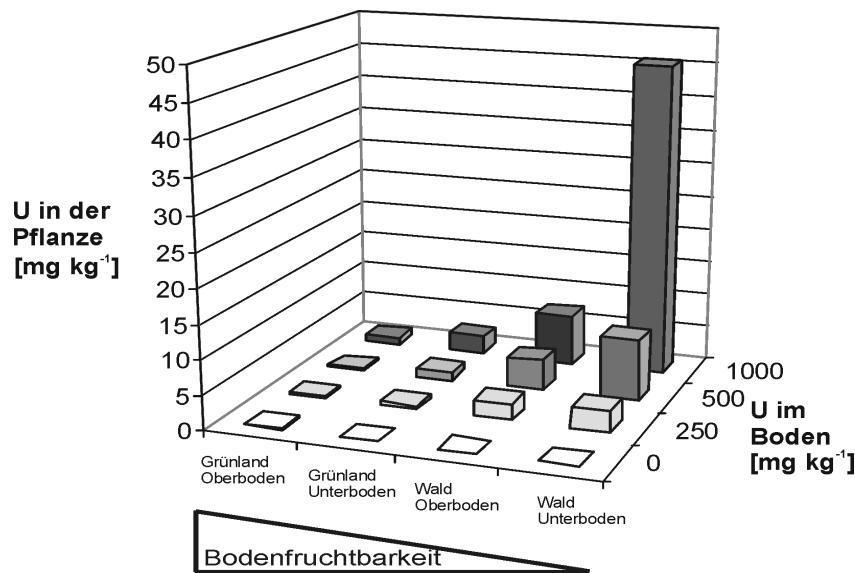


Abb. 3: Einfluss der Bodenfruchtbarkeit auf den Uragehalt [mg kg⁻¹] in *Lolium perenne*. Gefäßversuch 1, 40 Wochen nach der Kontamination mit U₃O₈, 4. Schnitt

In Tab. 7 sind die in den Blättern von *Lolium perenne* gemessenen U-Gehalte in Abhängigkeit von P-Zufuhr und Kalkung als Mittelwerte über alle U-Kontaminationsstufen zusammengestellt.

Die meliorative P-Düngung führte auf allen Bodensubstraten und U-Kontaminationsstufen zu einer vergleichbaren Senkung der U-Gehalte in der Pflanzensubstanz. Ursache sind die in den P-gedüngten Varianten weitaus niedrigeren U_{PV}-Gehalte im Bodensubstrat (Tab. 5), da pflanzenaufnehmbare Uranyl-Ionen wahrscheinlich an Phosphatkomplexe gebunden wurden.

Die Kalkung in Form von CaCO₃ ging mit einer Anhebung der pH-Werte in den jeweiligen Bodensubstraten einher (Tab. 7). Die Kalkzufuhr bewirkte vor

allem in den Varianten mit weniger fruchtbaren Bodensubstraten und hoher U-Kontamination eine Senkung der U-Gehalte in *Lolium perenne* im Vergleich zu den ungedüngten Varianten. Das Gras reagierte hier auf die Kalkung mit nachweislich besserem Wachstum, die nachfolgenden Schnitte lieferten im Mittel zweifach höhere Trockenmasseerträge. Die verminderten U-Konzentrationen in den Pflanzen sind daher als Verdünnungseffekt zu interpretieren.

Die höchsten U-Blattgehalte wurden auf Waldunterboden ohne P-Düngung und Kalkung gemessen.

Die Kombination von P-Düngung und Kalkung reduzierte die U-Gehalte in der Blattschicht in allen Kontaminationsstufen auf Werte, die als tolerabel gelten (< 0,4 mg kg⁻¹; nach Dreesen & Marple, 1979).

Pulhani (2005) fand ebenfalls eine Reduzierung der U-Aufnahme nach mineralischer bzw. organischer Düngung; der U-Gehalt in Getreidekörnern wurde durch Düngung um mehr als zwei Drittel reduziert.

Ein zweiter Gefäßversuch mit Mais (*Zea mays* L.), Sonnenblumen (*Helianthus annuus* L.) und Ackerbohnen (*Vicia faba* L.) dokumentierte, dass Unterschiede im U-Aufnahmevermögen zwischen diesen Fruchtarten im vegetativen Stadium bestehen (Tab. 8).

Die Untersuchungen erfolgten ebenfalls an den oberirdischen Pflanzenteilen: Stängel und Blätter. Nach sechs Wochen wiesen Sonnenblume und Ackerbohne in der höchsten U-Kontaminationsstufe höhere U-Gehalte in der Pflanzensubstanz auf als Mais, obwohl die U_{PV} -Gehalte der durchwurzelteten Bodensubstrate relativ ausgeglichen waren. Bei den relativ hohen Temperaturen während der Versuchsdurchführung (mittlere Temperatur 20,1° C, bei Tagesmaxima bis zu 34° C und bis zu 14 Stunden Sonnenscheindauer) zeigte die C₄-Pflanze Mais gegenüber den C₃-Pflanzen Sonnenblume und Ackerbohne deutliche Wachstumsvorteile (von Sengbusch, 1989). Die im Vergleich erhöhte Nettosyntheserate der Maispflanzen hatte einen gesteigerten Zuwachs an Biomasse zur Folge, was zu geringeren U-Konzentrationen im Pflanzengewebe führte. Ein weiterer Grund für die höheren U-Gehalte im Spross von Sonnenblumen und

Ackerbohnen ist darin zu sehen, dass blattreiche, dikotyle Pflanzen in der Regel mehr Mineralstoffe einlagern als monokotyle Pflanzen (Bargagli, 1998) Auch Entry et al. (1996) beschreiben für Sonnenblumen ein starkes U-Aneignungsvermögen.

Erhöhte P-Gehalte im Boden gingen auch in diesem Versuch mit der Senkung des U_{PV} -Gehaltes im Substrat einher. In der Folge war auch im Pflanzengewebe weniger U enthalten. Bei erhöhtem N-Angebot wurden höhere U-Gehalte in Mais und Sonnenblumen gemessen. Die in diesen Varianten geringeren U_{PV} -Gehalte in den Substraten weisen darauf hin, dass bei höherem N-Angebot durch Anregung des pflanzlichen Stoffwechsels der Stofffluss aus dem Boden in die Pflanze ansteigt und auf diesem Wege die Uranyl-Ionen verstärkt aufgenommen werden.

Die bedarfsgerechte S-Ernährung der Pflanzen wirkte sich positiv auf das Pflanzenwachstum aller Fruchtarten aus. Die U-Konzentrationen, die im Pflanzengewebe gemessen wurden, waren deutlich niedriger als in den Varianten ohne zusätzliche S-Düngung, was auch in diesem Fall als Verdünnungseffekt infolge einer geförderten Biomasseentwicklung interpretiert werden kann. Eine andere mögliche Ursache ist nach McLaughlin (2002) auch in der Bindung von Uran an Sulfatkomplexe im Bodensubstrat zu sehen.

Tab. 7: Einfluss von Bodenfruchtbarkeit, P-Düngung, Kalkung und pH-Wert auf den U-Gehalt [mg kg^{-1}] von *Lolium perenne*, Gefäßversuch 1, 50 Wochen nach der Kontamination mit U_3O_8 , 6. Schnitt

U-Gehalt von <i>Lolium perenne</i> , Prüfgliedmittelwerte [mg kg^{-1} U]				pH-Wert im Bodensubstrat	
Bodensubstrat	P-Düngung		Kalkung		
Grünland Oberboden 0,27	ohne	0,35	ohne	0,44	6,3
			mit	0,25	6,9
	mit	0,18	ohne	0,20	6,5
			mit	0,16	6,8
Grünland Unterboden 0,90	ohne	1,63	ohne	1,72	5,0
			mit	1,55	6,7
	mit	0,18	ohne	0,14	5,6
			mit	0,21	6,6
Wald Oberboden 1,19	ohne	2,22	ohne	3,72	3,6
			mit	0,71	5,6
	mit	0,16	ohne	0,17	4,4
			mit	0,15	6,1
Wald Unterboden 1,64	ohne	3,17	ohne	4,89	4,2
			mit	1,45	5,6
	mit	0,11	ohne	0,11	4,9
			mit	0,11	6,3

Auf der Grundlage der Gesamt-U-Gehalte (U_t) des Bodens bzw. dem pflanzenverfügbaren Anteil (U_{PV}) und den in den Pflanzen gemessenen U-Gehalten wurden die Transferfaktoren (CF) für U aus dem Boden in die Pflanze nach folgenden Formeln berechnet:

$$CF = \frac{\text{mg kg}^{-1} U_{\text{Pflanze}}}{\text{mg kg}^{-1} U_t \text{ Boden}} \quad \text{bzw.}$$

$$CF = \frac{\text{mg kg}^{-1} U_{\text{Pflanze}}}{\text{mg kg}^{-1} U_{PV} \text{ Boden}}$$

Tab 8: Einfluss der U-Kontamination des Bodens und der P-, N- und S-Ernährung auf den verfügbaren U-Gehalt im Boden (U_{PV}) und die U-Gehalte [mg kg^{-1}] von *Zea mays*, *Helianthus annuus* und *Vicia faba*, Gefäßversuch 2, 6 Wochen nach der Aussaat

Prüffaktoren	[mg kg^{-1}]	U _{PV} -Gehalt im Bodensubstrat [mg kg^{-1} U]			U-Gehalt in den Pflanzen [mg kg^{-1} U]		
		Mais	Sonnenblume	Ackerbohne	Mais	Sonnenblume	Ackerbohne
U-Wirkung	166/173	39,1	37,6	33,5	1,21	0,95	1,82
	329/385	78,1	76,6	74,6	1,66	2,31	1,60
	660/664	180	176	178	3,72	4,34	5,28
P-Wirkung	334	156	154	154	2,27	3,02	2,92
	1.558	41,6	39,2	37	2,00	2,04	2,89
N-Wirkung	250	101	98,1	95,3	1,71	2,01	2,90
	500	97,3	95,6		2,59	3,05	
S-Wirkung	0	99,6	98,2	92,8	3,10	3,02	3,31
	50	98,5	95,4	97,9	1,25	2,04	2,50
fruchtartspezifische Wirkung		99,1	96,8	95,3	2,13	2,53	2,90

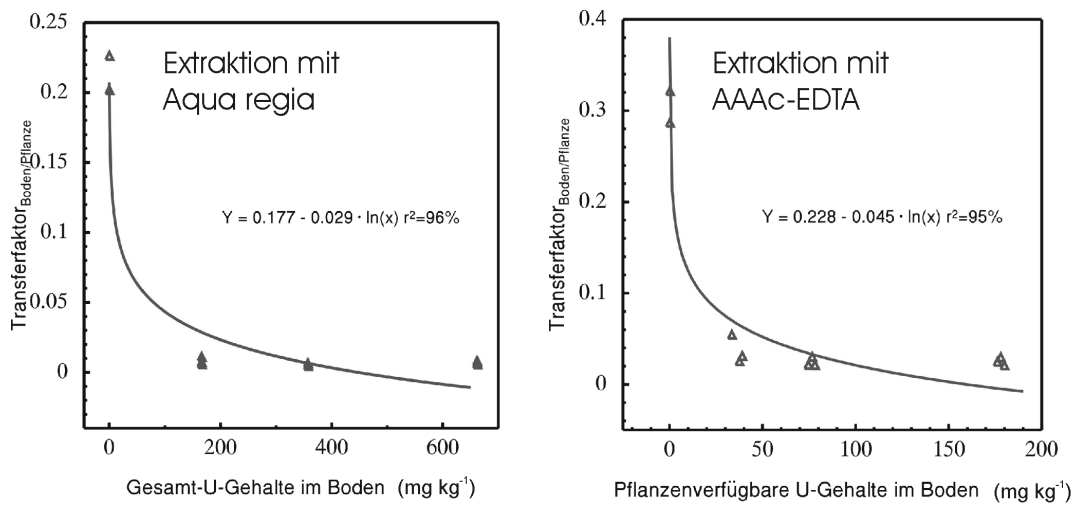


Abb 4: Höhe des U-Transferfaktors Boden/Pflanze in Abhängigkeit vom Gesamt-U-Gehalt bzw. vom pflanzenverfügbaren U-Gehalt im Bodensubstrat

In Abb. 4 sind die errechneten Transferfaktoren gegenübergestellt. Es wird deutlich, dass der U-Transfer vom Boden in die Pflanze grundsätzlich von der den Berechnungen zugrundeliegenden U-Fraktion im Boden abhängt. Bezogen auf U_{PV} ist die anteilige Aufnahme durch die Pflanzen höher als bezogen auf U_t .

Beide Berechnungen zeigen, dass mit steigenden U-Gehalten im Boden die Transferfaktoren kleiner werden, was darauf hinweist, dass die im Experiment untersuchten Pflanzenarten kein unbegrenztes Aufnahmevermögen für U hatten. Zu gleichen Ergebnissen kamen Meyer et al. (2004), die den U-Transfer aus DU-kontaminiertem Boden in verschiedene Grasarten untersuchten. Die Autoren stellten außerdem eine Beziehung zum Wasserangebot fest. Geringe Boden-Pflanze-Transfer-Faktoren trotz hoher U-Kontamination des Bodensubstrates werden auch von Mortvedt (1994) und Lakshmanan und Venkateswarlu (1988) beschrieben.

Schlussfolgerungen

Die Ergebnisse zeigen, dass U, einmal in den Boden gelangt, unter entsprechenden Bedingungen mobilisiert wird und dann offenbar in pflanzenaufnehmbarer Form vorliegt.

Die Aufnahme von U durch die Pflanze wird von verschiedenen Faktoren beeinflusst:

Die Gesamtmenge an U, die ein Boden enthält, und deren potenziell pflanzenverfügbarer Teil sind von grundlegender Bedeutung. Wie hoch der Anteil des pflanzenverfügbaren U letztendlich ist, wird sowohl von standorttypischen Bodeneigenschaften wie der natürlichen Bodenfruchtbarkeit, als auch von Bewirtschaftungsmaßnahmen bestimmt.

Das Redoxpotential eines Bodens beeinflusst die Ionenwertigkeit von Metallen. Unter oxidierenden Bedingungen ändern sich dadurch die Bindungen zu Tonmineralen und organischen Komplexen, instabile und lösliche Metallverbindungen entstehen. Unter reduzierenden Verhältnissen gehen Schwermetall-Ionen u.a. Bindungen mit nicht löslichen Sulfidkomplexen ein. Auch Änderungen in der Bodenreaktion verändern die Löslichkeit von Metallverbindungen (McLaughlin, 2002). Durch Austausch von UO_2^{2+} -Ionen durch Ca^{2+} -Ionen an der Oberfläche von Bodenkolloiden nach einer Kalkung gehen die pflanzenaufnehmbaren Uranyl-Ionen in die Bodenlösung über. Gleiches geschieht infolge von Bodenversauerung, in diesem Fall werden die UO_2^{2+} -Ionen durch H^+ -Ionen ersetzt.

Die Textur, der Humusgehalt, Nährstoffversorgung und Wasserangebot sowie die biologische Aktivität eines Bodens sind weitere fruchtbarkeitsbestimmende Eigenschaften, von denen die Verfügbarkeit des U für Pflanzen abhängt (Schroetter et al., 2005).

Pflanzenspezifische Eigenschaften wie genotypisch determiniertes Absorptionsvermögen für Schwerme-

talle, Transport und Einlagerung derselben innerhalb der Pflanze sowie physiologische Unterschiede z.B. bei der Photosynthese oder im Wasserhaushalt entscheiden über die Aufnahme von U durch die Pflanze. Von Durchwurzelungsintensität und Wurzeltiefgang ist abhängig, wie groß die theoretische U-Menge ist, die eine Pflanze im Bodengefüge tatsächlich erreichen kann. Auch Rhizosphäreneffekte spielen bei Veränderungen der kleinräumigen Bodenchemie eine nicht zu vernachlässigende Rolle.

Die Untersuchungen zeigen, dass Pflanzenwurzeln zugleich mit Nährstoffen und Wasser auch giftige Uranverbindungen aus der Bodenlösung aufnehmen und dass das aufgenommene U in die oberirdischen Pflanzenorgane eingelagert wird. Ein möglicher Transfer derartiger Substanzen aus dem Boden über die Pflanze in die Nahrungskette muss unterbunden werden. Der Bodenfruchtbarkeitszustand ist offenbar ausschlaggebend für die Menge an pflanzenaufnehmbarem U im Boden und die U-Konzentration im Gewebe der darauf wachsenden Pflanzen. Eine hohe Phosphatkonzentration im Boden sowie die ausreichende Schwefelversorgung der Pflanzen scheinen Möglichkeiten zu sein, den Boden-Pflanze-Transfer von U zu begrenzen. Zu beachten ist hier jedoch, wie bereits eingangs erwähnt, dass über die P-Zufuhr auch U in den Boden eingetragen werden kann.

Literatur

- Anke M, Seeber O, Schäfer U** (2003) Uran in der Nahrungskette des Menschen, Verzehr, scheinbare Absorption und Bilanz. In: 19. GMS Jahrestagung, 6.-8. Nov. 2003 in Berlin, Zusammenfassung der Vorträge: p 30
- Bargagli R** (1998) Trace elements in terrestrial plants: an ecophysiological approach to biomonitoring and biorecovery. Springer-Verlag, New York: 324 pp
- BbodSchV** (1999) Anhang 2, BGBI I 1999, 1554
- Briefert C** (1994) Umweltchemie. VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim: 453 pp ISBN 3-527-28692-6
- Cothorn CR, Lappenbusch WL** (1983) Occurrence of Uranium in Drinking Water in the U.S. Health Physics: (45) 89-99
- Cramer HH, Kloke A, Jarczyk HJ, Kick H** (1981) Bodenkontamination. In: Uhlmanns Enzyklopädie der technischen Chemie. 4. Aufl., Bd. 6, VCH Weinheim: 506-517
- Dreesen DR, Marple ML** (1979) Uptake of Trace Elements and Radionuclides from Uranium Mill Tailings by Four-wing Saltbrush (*Altriplex canescens*) and Alkali Sacaton (*Sporobolus airoides*). Symposium on Uranium Mill Tailings Management. Colorado State University, Fort Collins, Colorado: 127-143

- Entry JA, Vance NC, Hamilton MA, Zabowski D, Watrud LS** (1996) Phytoremediation of soil contaminated with low concentrations of radionuclides. *Water Air Soil Pollut* 88: 167-176
- Finck A** (1991) Pflanzenernährung in Stichworten. 5. Aufl., Kiel, Hirth-Verlag: 200 pp ISBN 3-443-03100-5
- Fleckenstein J** (1972) Untersuchungen an Alkali-oxofluoruranaten. Dissertation. Universität Tübingen
- Kabata-Pendias A, Pendias H** (2001) Trace elements in soils and plants. Boca Raton, London, New York: CRC Press: 413 pp
- Lakshmanan AR, Venkateswarlu KS** (1988) Uptake of uranium by vegetables and rice. *Water Air Soil Pollut* 38: 151-155
- Lamas M** (2005) Factors affecting the availability of uranium in soils. *Landbauforschung Völkenrode, SH* 278: 102 pp ISBN 3-86576-002-3
- Lamas M, Fleckenstein J, Schroetter S, Sparovek RM, Schnug E** (2002) Determination of Uranium by Means of ICP-QMS. *Comm Soil Sci Plant Anal* 15-18(33): 3469-3479
- McLaughlin MJ** (2002) Heavy Metals. In: Lal, R. (Hrsg.) *Encyclopedia of Soil Science*. Marcel Dekker, New York, Basel: 650-653 ISBN 0-8243-0634-X
- Meier U** (2001) Entwicklungsstadien mono- und dykotyler Pflanzen, BBCH Monografie, 2. Auflage, Biologische Bundesanstalt für Land- und Forstwirtschaft
- Meyer M, McLendon T, Price D, Fleckenstein J, Schnug E** (2004) Uptake of Munitions-Derived Depleted Uranium by Three Grass Species. *J Plant Nutrition* 27/8: 1415-1429
- Milvy P, Cothorn CR** (1990) Scientific Background for the Development of Regulations for Radionuclides in Drinking Water. In: Cothorn, C. R.; Rebers, P. (Hrsg.) *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water*. Lewis Publishers, Chelsea, Michigan: 1-16
- Mortvedt JJ** (1994) Plant and soil relationships of uranium and thorium decay series radionuclides – a review. *J Environ Qual* 23: 643-650
- Pulhany VA** (2005) Uptake and distribution of natural radioactivity in wheat plants from soil. *J Environ Radioactivity* 79/3: 331 pp
- Richter G** (1988) Stoffwechselphysiologie der Pflanzen. 5. überarb. Aufl., Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York: 639 pp ISBN 3-13-442005-8
- Rivas M** (2005) Interactions between Soil Uranium Contamination and Fertilization with N, P and S on the Uranium Content and Uptake of Corn, Sunflower and Beans, and Soil Microbiological Parameters. *Landbauforschung Völkenrode, SH*: im Druck
- Schilling G** (2000) Pflanzenernährung und Düngung. Ulmer, Stuttgart (Hohenheim): 464 pp ISBN 3-8252-8189-2
- Schnug E, Sparovek RBM, Lamas M, Kratz S, Fleckenstein J, Schroetter S** (2005) Uranium Contamination. In: Lal, R. (Hrsg.) *Encyclopedia of Soil Science*. Marcel Dekker Inc.; New York, Basel: im Druck
- Schönbuchner H** (2002) Untersuchungen zu Mobilität und Boden-Pflanze-Transfer von Schwermetallen auf/in uranhaltigen Haldenböden. Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 168 pp
- Schroetter S, Rivas M, Lamas M, Fleckenstein J, Schnug E** (2005) Factors affecting the plant availability of uranium in soils. In: Merkel, B.; Hascheberger, A. (Hrsg.) *Uranium in the Environment. Mining Impact and Consequences*. Springer Berlin, Heidelberg: 885-894 ISBN 10-3-540-28363-3
- Schroetter S, Rogasik J, Schnug E** (2005) Root growth and agricultural management. In: Lal, R. (Hrsg.) *Encyclopedia of Soil Science – Soil Fertility and Plant Nutrients*. Marcel Dekker Inc.; New York, Basel: im Druck
- Sillanpää M** (1982) Micronutrients and the nutrient status of soils: a global study. *FAO Soils Bulletin* 48, Rome, 444 pp
- Sparovek RBM, Fleckenstein J, Schnug E** (2001) Issues of Uranium and Radioactivity in natural waters. *Landbauforschung Völkenrode* 4(51): 149-157
- UNEP** (2001) Depleted Uranium in Kosovo. *Post-Conflict Environmental Assessment*. Genf: SRO-KUNDIG: 186 pp
- von Sengbusch P** (1989) *Botanik*. McGraw-Hill, Hamburg, New York: 864 pp ISBN 3-89028-217-2
- Wallnöfer PR, Engelhardt G** (1988) Schadstoffe, die aus dem Boden aufgenommen werden. In: Hock, B.; Elstner, E.F. (Hrsg.) *Schadwirkungen auf Pflanzen. Lehrbuch der Pflanzentoxikologie*. 2. überarb. Aufl., BI-Wiss.-Verl. Mannheim, Wien, Zürich: 95-117 ISBN 3-411-03181-6

