

BULLETIN

29

Peter Fitze – Ehrenmitglied der BGS

Jean-Auguste Neyroud – membre d'honneur de la SSP

Stofftransport in Böden und Gewässern

**Gemeinsame Jahrestagung der
Bodenkundlichen Gesellschaft der Schweiz BGS und der
Schweizerischen Gesellschaft für Hydrologie und Limnologie SGHL
vom 30. und 31. März 2006 in Zürich**

Referate, Texte zu den Postern

BODENKUNDLICHE GESELLSCHAFT DER SCHWEIZ

SOCIÉTÉ SUISSE DE PÉDOLOGIE

Adresse: Geographisches Institut der Universität Zürich (GIUZ)
Winterthurerstrasse 190
CH-8057 Zürich

Telefon 044 635 51 14 od. 044 635 51 21 (Sekretariat) Fax 044 635 68 48

E-Mail megli@geo.unizh.ch

Internet <http://www.soil.ch>

Postcheck-Konto: BGS Bern 30-22131-0 Bern

Vorstand / Comité 2007

Präsidentin / Présidente:	S. Tobias, Birmensdorf	044 739 23 49	silvia.tobias@wsl.ch
Vizepräsidentin / Vice-présidente:	E. Havlicek, Neuchâtel	032 718 39 44	elena.havlicek@unine.ch
Beisitzer / Assesseur:	M. Achermann, Luzern	041 228 64 58	matthias.achermann@lu.ch
	R. Krebs, Wädenswil	044 789 97 90	r.krebs@hsw.ch
Sekretär / Secrétaire:	M. Egli, Zürich	044 635 51 14	megli@geo.unizh.ch
Rechnungsführer / Comptable:	A. Kayser, Frauenfeld	052 724 24 79	bgs.calssier@soil.ch
Redaktor / Rédacteur	M. Müller, Zollikofen	031 910 21 24	moritz.mueller@shl.bfh.ch

Geschäftsstelle / bureau exécutif

BGS Geschäftsstelle, Nicole Näf
c/o Umwelt und Energie Kt. Luzern, Libellenrain 15, Postfach 3439, 6002 Luzern
Telefon 041 228 60 60 E-Mail bgs.gs@soil.ch

Dokumentationsstelle / Service des documents

Landwirtschaftliche Lehrmittelzentrale LmZ, Länggasse 79, 3052 Zollikofen
Telefon 031 910 50 60 Fax 031 910 50 70
E-Mail lmz@edition-lmz.ch Internet <http://www.edition-lmz.ch>

Vorsitzende der Arbeitsgruppen / Président(e)s des groupes de travail

Klassifikation und Nomenklatur:	M. Zürrer, Uster	043 399 03 80	zuerrer@myx.ch
Bodenschutz und Werthaltung:	M. Kaufmann, Zürich	044 362 47 43	manfred.kaufmann@agrl.ethz.ch
Bodenkartierung:	M. Knecht, Zürich	044 383 70 71	ambio@bluewin.ch
Reflexion/Strategie	P. Germann, Bern	031 631 38 54	germann@giub.unibe.ch

Redaktion / Rédaction

M. Müller
Schweizerische Hochschule für Landwirtschaft, 3052 Zollikofen
Telefon 031 910 21 24/11 Fax 031 910 22 99/96 E-Mail moritz.mueller@shl.bfh.ch

Redaktionskomitee / Comité de rédaction

M. Egli, Zürich	megli@geo.unizh.ch
C. Keller, Aix-en-Provence	keller@cerege.fr
J.-A. Neyroud, Lausanne	lytj-neyroud@bluewin.ch
H. Sticher, Zug	hans.sticher@bluewin.ch
S. Zimmermann, Birmensdorf	stefan.zimmermann@wsl.ch

BODENKUNDLICHE GESELLSCHAFT DER SCHWEIZ

SOCIETE SUISSE DE PEDOLOGIE

BULLETIN 29

2006

**Gemeinsame Jahrestagung der
Bodenkundlichen Gesellschaft der Schweiz BGS
und der
Schweizerischen Gesellschaft für Hydrologie und Limnologie SGHL
vom
30. und 31. März 2006
in Zürich**

STOFFTRANSPORT IN BÖDEN UND GEWÄSSERN

Referate, Texte zu den Postern

Schriftleitung: Moritz Müller, Zollikofen

ISSN 1420-6773

ISBN 3-03888-111-2

Landwirtschaftliche Lehrmittelzentrale
Zollikofen 2007

Druck und Verlag: LmZ, Landwirtschaftliche Lehrmittelzentrale, 3052 Zollikofen

ISSN 1420-6773

ISBN 3-03888-111-2

Copyright: 2007 Bodenkundliche Gesellschaft der Schweiz

Peter Fitze - Ehrenmitglied der BGS	6
Jean-Auguste Neyroud – membre d'honneur de la SSP	7
<i>"Stofftransport in Böden und Gewässern"</i>	
Bodenkundliche Gesellschaft der Schweiz BGS	
Schweizerische Gesellschaft für Hydrologie und Limnologie SGHL	
Referate und Posterbeiträge der gemeinsamen Jahrestagung vom 30. und 31. März 2006	
R. KOCH Topsoil nutrient distribution in riparian area of a first order creek on the Swiss Jura Plateau	8
P. SCHLEPPI, I. MORIER & I. PROVIDOLI Saturation en azote et lessivage de nitrate dans une forêt subalpine soumise pendant 10 ans à des dépôts d'azote expérimentalement accrus	15
E. SPIESS & V. PRASUHN Einfluss der Ökologisierung in der Landwirtschaft auf den Nitratgehalt des Grundwassers	21
O. NESTROY Das unerwartete Ansteigen der Nitratwerte in Grundwässern des Leibnitzer Feldes (Steiermark)	27
J. LUSTER, S. ZIMMERMANN, P. LÜSCHER, L. WALTHERT, CH. ZWICKY, P. LIENEMANN & P. BLASER Tiefenverteilung von Chrom, Nickel, Kupfer, Zink und Blei in Schweizer Waldböden und Implikationen für die Mobilität dieser Schwermetalle	31
A. PECCOUX & N. DAKHEL Distribution du cuivre utilisé en viticulture dans le sol et les sous-produits de la vinification: Bilan sur une exploitation	35
A.-K. LEUZ & C. A. JOHNSON The geochemical behaviour of antimony in natural waters and soils	41
F. KERBOUA, M. ELHADEFF EL OKKI & O. RACHED Teneurs des micro-polluants métalliques des sols des bordures de l'Oued Boumerzoug (Constantine, Algérie)	47
K. REHBEIN, A. KELLER & A. DESAULES Räumliche Interpolation von Zinkgehalten im Boden des Kantons Thurgau	53
E. GRAF PANNATIER, M. SCHMITT, A. THIMONIER, P. WALDNER, L. WALTHERT & P. BLASER Monitoring de la composition chimique de l'eau dans les sols forestiers: un outil pour évaluer leur acidification	59

P. SPATZ, R. OLSCHESKI, M. MARTIN & H. SCHIRG Sickerwasserbeschaffenheit von Rückstandshalden des historischen Bergbaus	65
M. WESSELS, H. HETZENAUER & H. ROßKNECHT Schadstoffe in den Sedimenten des Bodensees	71
J. ABRECHT Ausbreitung von Tetrachlorethen im gesättigten Bereich - eine Fallstudie	77
J. CORBONNOIS Transfert d'éléments solides et dissous dans de petits bassins versants (superficie inférieure à 10 km ²).	81
R. CESARZ, TH. HÖLSCHER, K. MÜLLER-SÄMANN & E. UNTERSEHER Simulation von Bodenerosion auf landwirtschaftlichen Flächen mit dem Modell EROSION-3D	89
R. A. MAILÄNDER Handbuch Gefährdungsabschätzung Boden des Bundesamts für Umwelt (BAFU) – Leitlinien und neue Vorgehensweisen	93
A. DESAULES, A. KELLER, P. SCHWAB, J. BRUNNER, S. AMMANN & K. REHBEIN Nationale Bodenbeobachtung (NABO) – Stand, Erkenntnisse und Perspektiven	97
D. HARTMANN & R. MURALT Nationale Grundwasserbeobachtung Schweiz - erste Ergebnisse und Perspektiven	103
R. ZANELLI, M. EGLI, D. GIACCAI & A. MIRABELLA Geochemische und tonmineralogische Untersuchung einer Catena im Südtessin	109
I. HINCAPIÉ & P. GERMANN Collapse of capillary head during infiltration	115

Peter Fitze - Ehrenmitglied der BGS



Mit grosser Freude und uneingeschränkter Zustimmung aller Anwesenden wurde Peter Fitze an der GV 2006 in den angesehenen kleinen Kreis der Ehrenmitglieder der BGS gewählt. Die Einstimmigkeit ist begründet, ist doch Peter nicht nur Gründungsmitglied und langjähriger Sekretär der BGS, sondern auch ein Bodenkundler und Bodenschützer der ersten Stunde in der Schweiz.

Als Geograph verleiht Peter der Individualität eines einzelnen Standortes und seiner Genese ein grosses Gewicht. Genauso spricht er ein Bodenprofil, individuell auf den Standort bezogen, systematisch im Kontext der bodenbildenden Faktoren und Prozesse an. Mit dieser Grundhaltung war er auch massgeblich in der BGS-Arbeitsgruppe „Klassifikation und Nomenklatur“ an der Publikation „Klassifikation der Böden der Schweiz“ (1992) beteiligt, die ja für viele von uns sozusagen zur „Feld-Bibel“ geworden ist und für die er auch den entsprechenden „Bestimmungsschlüssel“ (1996) erarbeitet hat. Neben diesem Engagement für bodenkundliche Aspekte hat Peter der BGS auch zur ersten Homepage verholfen und diese während langer Jahre betreut.

Peter Fitzes berufliche Schwerpunkte waren immer auch mit intensiver Feldarbeit und Feldforschung verbunden. Waren es anfänglich Arbeiten mit geomorphologischen Inhalten (Dissertation "Untersuchungen von Solifluktionerscheinungen im Alpenquerprofil zwischen Säntis und

Lago di Como"), kamen am Geographischen Institut der Universität Frankfurt am Main bei Prof. A. Semmel Vertiefungen in den Gebieten Bodenkunde, Quartärmorphologie und Gewässerkunde dazu. Am Geographischen Institut der Universität Zürich war Peter bis 2005 als Titularprofessor für den Bereich "Boden" im Grund- und Fachstudium mit Vorlesungen, Geländepraktika, Seminarien und dem Laborpraktikum zuständig (Habilitation "Zur Relativedatierung von Moränen aus der Sicht der Bodenentwicklung in den kristallinen Zentralalpen"). Bei ihm konnten die Studierenden noch vor In-Kraft-Treten der VSBo (Verordnung über Schadstoffe im Boden, 1986) Diplomarbeiten und Dissertationen mit spezifisch bodenschützerischen Fragestellungen ausführen. Er hat auch immer wieder gerne neue Unterrichtsmethoden und Kommunikationsmöglichkeiten mitentwickelt und aufgenommen. Besuchen wir dazu beispielsweise den Bodenlehrpfad Meggerwald bei Luzern oder klicken wir in den interaktiven Lehrgang „Do it your soil“ im Swiss Virtual Campus.

Peter Fitze ist aber nicht nur ein wissenschaftlich aktives Mitglied der BGS, sondern er freut sich auch am gesellschaftlichen Teil unserer Anlässe. Am Abend, nach Stunden in der Profilgrube, geniesst er die freundschaftliche Tafelrunde und leistet auch hier seinen Beitrag. Dieses vielseitige Engagement ist es doch, das eine schweizerische Fachgesellschaft, die sich als Kenner und „Anwalt“ unserer Böden oft exponiert und hart im Wind steht, langfristig stärkt, und das uns zu den gesetzten, ehrgeizigen aber notwendigen Zielen führt.

Matthias Achermann

Jean-Auguste Neyroud – membre d'honneur de la SSP



Jean Auguste Neyroud a pris sa retraite à fin 2006. Tous ses collègues et amis tiennent à le remercier pour tout le travail qu'il a accompli pour la communauté de la science du sol en Suisse et son rayonnement à l'étranger.

Voilà quelques repères de sa carrière au sein de la Société Suisse de Pédologie:

- Dès 1978: président (-fondateur) du groupe de travail Matière organique (Jusqu'en 1983);
- 29 septembre 1978 à Liebefeld: organisation du symposium public "Stand der Humusforschung in der Schweiz" avec plus de 60 participants;
- 1981-1983: vice-président de la Société;
- 7 octobre 1982: symposium "Sols organiques menacés de Suisse" dans le cadre de l'assemblée annuelle de la SHSN à Bâle;
- 1983-1985: président de la Société;
- 1985-1987: assesseur de la Société;
- 1989-1994: président du groupe de travail Granulométrie et structure;
- dès 2002: membre du comité de rédaction des publications.

Durant toute sa carrière J.-A. s'est très engagé dans la Société. Il a plusieurs fois (et pas seulement comme président) dirigé des discussions et des débats lors de nos assemblées annuelles. En 2000 il a élargi la vision très "terre à terre" en invitant le rabbin Krief qui a ouvert nos regards sur les relations spirituelles que les hommes entretiennent avec la terre. Il a participé très intensément à la publication de plusieurs documents. Loin de Zürich, nœud de la pédologie et de la cartographie des sols, il a sans cesse défendu celles-ci et tenté d'introduire les études régionales des sols auprès des milieux qui auraient pu en bénéficier.

Dès 1971, il a fait œuvre de pionnier en mettant sur pied un réseau d'observation de 250 parcelles agricoles dans le canton de Vaud qui débouchera sur la publication d'une "enquête sur la fertilité des sols vaudois" en 1978 dans la revue suisse d'agriculture. Il a mis sur pied à la station fédérale de Changins un laboratoire d'analyse physique des sols et dénonce très tôt les effets néfastes de la compaction des sols.

En 1973/74, il faisait un stage d'étude au Canada chez M. Schnitzer, où il acquit des connaissances spécialisées sur la matière organique et l'azote lui permettant par la suite d'aborder les problèmes de fertilisation d'une manière très nuancée dans le cadre de diverses commissions chargées de la mise au point de méthodes d'analyse, de conseils de fumure et de mesures en faveur de la protection des eaux.

Ses derniers travaux signalent que les sols agricoles suisses sont pour la plupart sur-fertilisés et que les méthodes traditionnelles d'analyse et d'interprétation des teneurs des sols en phosphore présentent des lacunes.

Il est l'auteur d'une soixantaine de publications dans des revues suisses et étrangères.

Luc-François Bonnard, Michel Gratier

Topsoil nutrient distribution in riparian area of a first order creek on the Swiss Jura Plateau

Randy Koch

University of Basel, Physical Geography & Landscape Ecology, Klingelbergstrasse 27, CH-4056 Basel

Résumé: Répartition des éléments nutritifs sur les rives d'une petite banlieue de la région bâloise dans le plateau jurassien

Cette étude analyse les rapports entre l'usage du terrain et les éléments nutritifs dans la couche supérieure du sol du rivage considéré. Les cartes des paramètres ponctuels d'analyses des produits chimiques du sol ont été réalisées au moyen d'un procédé d'interpolation SIG. – Les exploitations statistiques de l'étude montrent que les paramètres dépendants tendent non seulement à la « réduction » (pour N & P_{total}) mais également à « l'enrichissement » (pour BAP & C_{org}).

La teneur en azote dans la couche supérieure du sol a une plus grande corrélation avec l'intensité de l'usage du terrain que les fractions de phosphore analysées. Le phosphore indique en revanche un rapport plus fort avec le relief. Cependant les corrélations sont plutôt faibles, car les variations spatiales du sol interviennent.

Keywords: riparian zone, topsoil, heterogeneity, nutrients, nitrogen, phosphorus, GIS, spatial interpolation.

Zusammenfassung: Nährstoffverteilung im Uferbereich eines Kleineinzugsgebietes im Baselbieter Tafeljura

In dieser Studie werden die Zusammenhänge zwischen Landnutzung und Nährstoffen im Oberboden des Uferbereichs hinterfragt. Mittels GIS-Interpolationsverfahren werden aus punktuellen bodenchemischen Analyseparametern Karten angefertigt. Die statistischen Auswertungen der Studien zeigen, dass es parameterabhängig im Uferzonen-Oberboden sowohl zur „Reduktion“ (für N & P_{total}) als auch zur „Anreicherung“ kommt (für BAP & C_{org}).

Der Stickstoff-Gehalt im Oberboden korreliert stärker mit der Landnutzungsintensität als die untersuchten Phosphor-Fractionen. Phosphor weist hingegen einen stärkeren Zusammenhang mit der Ausprägung des Mesoreliefs auf. Die Korrelationen werden von einer ausgeprägten kleinräumigen Heterogenität der Bodeneigenschaften abschwächend beeinflusst.

1. Introduction

Riparian zones are important connectors between agriculture areas and watercourses. These areas play a key role in soil and water protection (CORREL 1997). The Basel research group "Applied landscape ecology" investigates different landscape elements in small catchments of the Basel region. The overall objectives of these projects are a better understanding of nutrient dynamics within a catchment and the interactions between different landscape elements.

The presented study is a part of a dissertation project (KOCH 2007). Subprojects showed dissimilar results and a distinctive heterogeneity for properties and nutrient reduction in the topsoil of test sites in different riparian areas on the Swiss Jura Plateau and in the Black Forest. Therefore, the main aim of this study is to broaden our understanding of topsoil nutrient distribution in different landscape elements of a multifaceted structured riparian area on both sides of the creek. By contrast to previous studies (e.g. GARTEN et al. 1994, LOWRANCE 1997).

This paper suggests that research with a high spatial resolution is a prerequisite to find out more about the local influence parameters of these spatial variations, such as mesorelief and land-use characteristics.

2. Research Area

The studied site is situated nearly 30 km east of Basel in Northwest Switzerland (Fig. 1). The *Länenbach Valley* (2.61 square km, first order) is located in the low mountain range of the Swiss Jura Plateau, which is characterised by high plateau areas and deeply incised valleys. The subsurface Jurassic limestones and the resulting soils – primary calcareous Cambisols and Planosols – influence the chemical characteristics of the investigated topsoil. The general land-use of the catchment comprises forestry (on the plateau surface and steeper slopes) and agriculture, i.e. predominantly pastures, but also

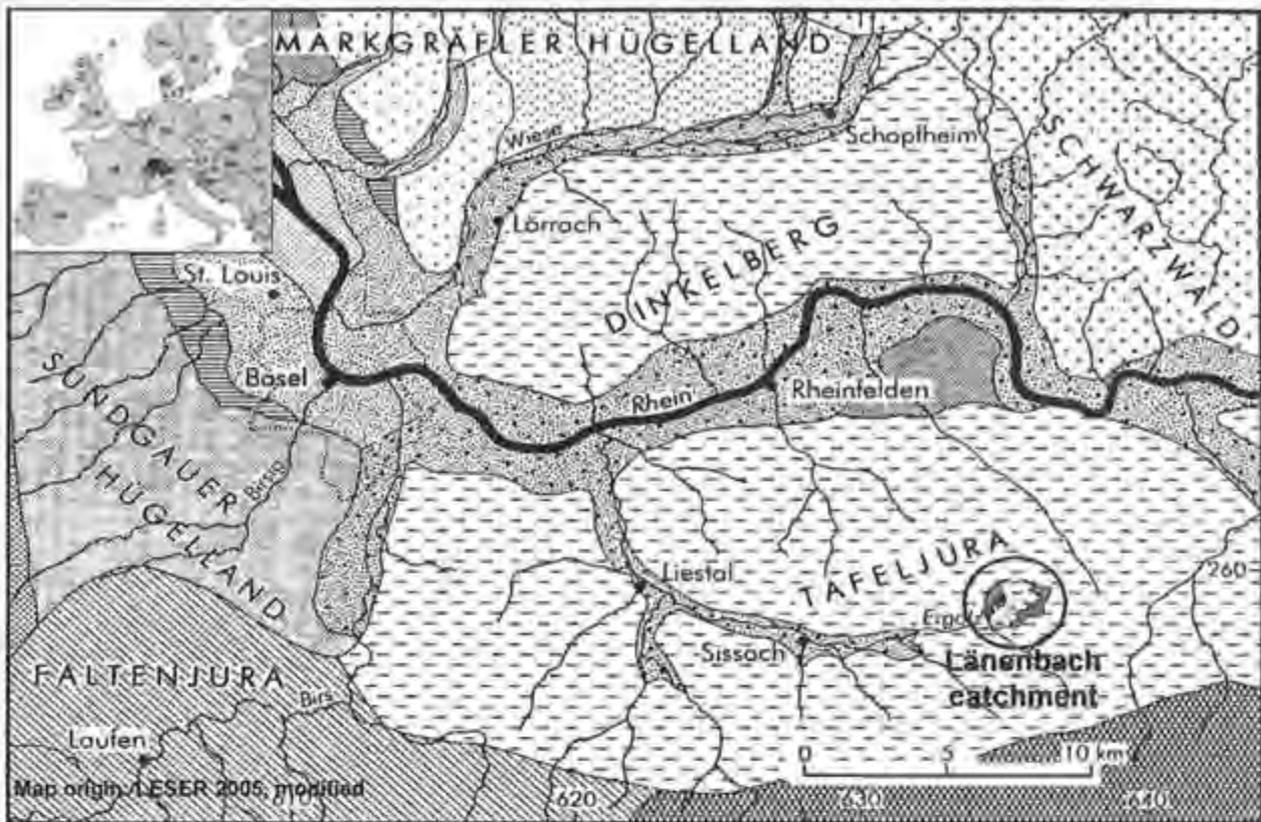


Fig. 1: General map of Northwest Switzerland with location of Länenbach catchment.

cropland and meadows (on the valley bottom). A high anthropogenic influence in the riparian area can be observed: dense artificial drainage networks, deepening of streamlets and local bank protection.

The river crossing test area with a size of 40 x 40 m is situated in the lower catchment of the Länenbach. The site consists of the streamlet, different land-use with a cornfield, artificial meadow, pasture and also a wide multifaceted riparian zone, which includes different structure elements and some punctiform land-uses, such as scorch marks and grass compost.

Two typical local soil types – studied on this test area – are Cambisol (Braunerde) on the cornfield and Eutric Planosol (Kolluvisol-Pseudogley), located in the riparian wood. The soils are calcareous and comprise high clay and skeleton contents. Soil horizons and types were genetically identified according to the German pedological nomenclature (AG BODEN 1994).

3. Methods

To evaluate the correlation of the small-scale location characteristics and nutrient contents in this riparian area, a map of land-use and geomorphologic structures was drawn as a first step in spring 2005. The punctiform land-use intensity was evaluated, and after that 58 topsoil samples were taken in 10 cm depth along five cross sections (catenae) and some additional

locations. Moreover, topsoil pH-values and location characteristics (e.g. vegetation cover, slope angle and curvature) were recorded. After chemical analysis the results were evaluated with GIS and with the interpolation method "Kriging spherical" (SHEPARD 1968 and OLIVER 1990). Statistical analyses were used to study nutrient reduction in the riparian zone topsoil and connections between landscape properties and soil data.

The soil samples were analyzed in view of their contents of parameters such as N, P_{total} , BAP (bio-available phosphorus), C_{org} and C_{inorg} in the laboratory. Two different phosphorus values were measured: the total phosphorus (Swiss standard method by HORT et al. 1998; using potassium-sodium-nitrate, salt acid and nitric acid) and the bio-available phosphorus (extraction with "ammonium-lactate acetic acid" according to EGNÉR et al. 1960). Nitrogen and organic carbon were analysed with an CHN-Gas-Analyzer (CHN 1000, Leco, USA) and additional equipment (CC 100, Leco, USA) for inorganic carbon analysis.

Another methodological aspect involves the definition of the structure elements in riparian areas. As the terms for structure elements are used in various meanings in most publications, it is essential to use well-defined terms with sharp borderlines. This is especially important when data is used for comparison of different structure elements:

- RIPARIAN AREA is a superordinate term without clearly defined spatial limits. A riparian area borders directly on a river channel on the "middle-water-line". Neighbouring areas outside the riparian zone are also part of the riparian area.

- The RIPARIAN ZONE is situated between croplands and streamlets. It has sharp borderlines on both sides and it is (horizontally measured) 0-25 m wide. Riparian zones are the inner parts of the riparian area. They can be re-divided into structure elements like the "riparian buffer strip", "riparian wood", "herbaceous riparian zone" and "riparian slope" (KOCH 2007).

4. Results

The results of this project consist of three parts: Firstly nutrient distribution in riparian area soils, secondly lateral reduction or enrichment in the riparian zone topsoil and thirdly local influence factors of spatial variations.

1. The spatial nutrient distribution is visualized with GIS interpolation maps.

Examples of the nutrient distribution maps are shown in Figure 2 for the parameters total phosphorus and nitrogen. The maps show different results.

High total phosphorus contents can be found at locations near the "artificial meadow" and its neighbouring riparian zone in the northern part of the map and, thereby, showing the influence of fertilisations. In contrast, the lowest P_{total} values are located in the topsoil of the inner riparian zone and the streamlet sediments. The cornfield on the western side shows medium concentrations. Anthropogenic influence and the natural reduction processes in riparian zones generate these spatial variations. The topsoil nitrogen distribution is different to P_{total} .

Organic material on the soil surface generates higher topsoil contents. The landside and herbaceous riparian zones and areas of punctiform deposits (e.g. compost) therefore show the highest concentrations. Punctiform maxima could be considered as "hot spots" of topsoil nutrient distribution. On the other hand, results are lower for the cornfield topsoil (southwest side), its neighbouring riparian zone and streamlet samples. Lower N values in the topsoil can be attributed to intensive consumption of the triticale plants in later spring. The small-scale spatial nitrogen distribution looks more homogeneous when compared to the neighbouring sampling points. In addition, no general reduction of nutrients in the riparian zone and streamlet is visible. It is possible that the lateral nitrogen transport plays a key role in these results.

Similar results can be found for the most of the

other investigated parameters. In particular bio-available phosphorus and organic carbon data generate similar interpolation maps like nitrogen (Fig. 2).

The topsoil pH-value is the only parameter which illustrates the "buffer function of riparian zone" (ZILLGENS 2001) best: highest values found on ploughed land and lowest values in pasture topsoil are buffered by the riparian zone soils and streamlet sediments in between.

In general the grass-compost-location in the borderland between pasture and riparian zone shows the highest topsoil values of the whole test area for all measured nutrients. Unfortunately it is situated in a dominant geomorphologic depression and close to the creek.

The GIS mapping shows no general reduction or enrichment in the topsoil of riparian zones. It is obvious that punctiform values influence the interpolation process.

2. Statistics of reduction and enrichment in the topsoil of riparian zones.

The 58 topsoil samples were summarized in their local land-use types or riparian zone structure elements. This enables a calculation of mean value and median for these landscape units. For nine different land-use types no "lateral rule" for nutrient behaviour can be identified. No obvious order is visible for the measured soil parameters. The results are "oscillating" along the virtual catena from the cropland to the river channel. A striking result is the increase of phosphorus in the riparian grass-strip and the higher values found in the herbaceous riparian zone. The difference between the riparian slope and the streamlet data shows enrichment in the channel-sediments. Only nitrogen is characterised by reduction there, which is an expected result.

Hence, it is possible to calculate median values of "reduction" or "enrichment" in the topsoil by comparing the three important landscape elements: agriculture land, riparian zone and streamlet. In the following, the results for the comparison of "agriculture land" and "riparian zone" values are presented. A trend to ENRICHMENT (+) in riparian zone topsoil (median value) is observed:

Skeleton grains (>2 mm):	+ 43%
BAP:	+ 42%
C_{org} :	+ 3%.

A REDUCTION trend (-) in the riparian zone topsoil (median value) can only be identified for the following two values;

Nitrogen:	- 10%
Total phosphorus:	- 5%.

If we compare the reduction effects of the different parameters, it can be identified that BAP increases in the riparian zone soils, but total phosphorus and nitrogen slowly decrease there.

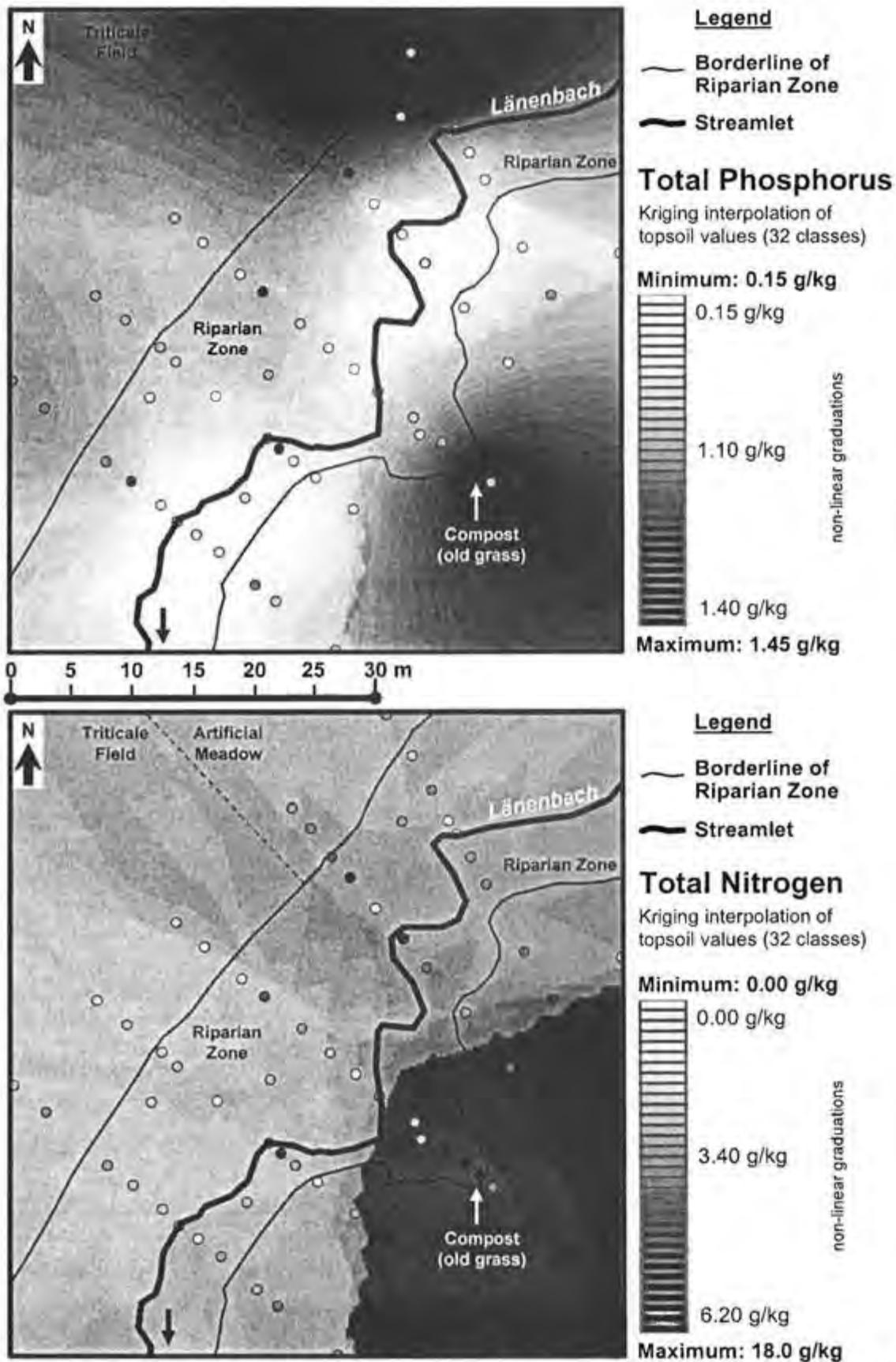


Fig. 2: "Kriging interpolated" maps of phosphorus and nitrogen distribution in the riparian area topsoil. **Total phosphorus** shows a partial reduction in the riparian zone topsoil and streamlet sediment. The maxima can be seen in the samples from the grass-compost (southeast) and artificial meadow (north). The **nitrogen distribution** is influenced by high values of compost soil, other special locations and the soil of the pasture (southeast side of the creek). Therefore, we observe a distinctive graduation on the eastern side. The map gives the impression of the riparian zone "buffering" the lateral nitrogen input.

3. These results lead to the question of which parameters influence these spatial variations. In Table 1 the results of the correlation of the topsoil parameters with the small-scale location-properties regarding land-use, vegetation-cover and geomorphology are summarised. They are remarkable in two ways: phosphorus correlates with relief-parameters. In contrast, nitrogen, carbon and pH-value depend much more on land-use and vegetation cover and do not strongly correlate with geomorphologic location characteristics.

It follows that topographic flattening and geomorphologic depressions generate an increase of topsoil phosphorus content. On the other hand, herbaceous ground vegetation and organic litter on the soil surface support nitrogen and organic carbon enrichment.

All measured soil nutrients increase as a result of punctiform land-uses or deposits like compost and deadwood. The land-use intensity therefore has a significant influence on the total phosphorus, nitrogen and pH values. In contrast, the easily soluble BAP does not significantly correlate with the factor land-use intensity.

Table 1: Correlation (Spearman) of topsoil values with punctiform location properties in the riparian area.

Soil-parameter:	Intensity of land-use ¹	Cumulative vegetation cover ¹	Vegetation cover of herb layer ¹	Slope angle (°)	Meso-relief or curvature ¹
P _{total} (g/kg)	0.29 **	-0.01	0.31 **	-0.24 *	0.42 ***
BAP (mg/kg)	0.03	0.01	0.12	-0.28 **	0.41 ***
BAP/P _{total} (%)	0.01	0.06	0.04	-0.25 **	0.36 **
N (%)	0.34 ***	0.24 *	0.52 ***	0.16	0.05
C _{org} (%)	0.16	0.32 **	0.38 ***	0.13	-0.05
pH-value	-0.34 **	0.01	-0.42 ***	-0.17	0.28
Median	0.10	0.04	0.22	-0.21	0.32

Error probability: * P<0.10; ** P<0.05; *** P<0.01

¹ Qualitative field data, categorised into 7 intensity classes (0-6) according to AG BODEN 1994.

5. Discussion

"Hot spots" of topsoil nutrients – especially under punctiform land-uses (e.g. compost) – influence the adjacent areas not only in reality, but also the digital interpolation process. "Kriging spherical" is based on the mean value. Therefore, in the interpolated maps are results of these mean value calculations from the surrounding sampling points. But, how extensive is the "hot spot" in reality? The interpolation method is limited in this case. As a result we produce not only local but also widespread differences between punctiform measured nutrient concentrations and the calculated laminar data of our interpolation model.

Another problematic aspect – not only for interpolation, but also for statistics – is the process of calculating average values. Different results occur by using mean value and median. Which parameter is more suitable? – It is often an advantage to use the median, because the extreme values that can also be the consequence of different errors receive less weight. On the other hand, the mean value statistics explain the spatial effect of anomalies in a better way. They

are useful in understanding geocological processes and nutrient dynamics. Last but not least the nutrient balance depends on the whole data set including extreme values. In this paper differences between GIS interpolation maps and statistic results can be recognised. This is a "visual consequence" of the above discussed problems. Concerning nutrient reduction in riparian zone soils, the quality of conclusions relies on the location heterogeneity and extreme values of measured parameters.

There are different models describing the nutrient distribution in topsoil of riparian areas: (1) enrichment in the riparian zone topsoil, (2) reduction in the riparian zone soil, and (3) equalization between the topsoil of riparian zone and the neighbouring cropland. The questions remains as to which of the three models describes the actual nutrient distribution in riparian soils best. This study shows that all of these models are useful analysing tools, yet provide different results depending on location and structure of the riparian zone, the scale of observation and the studied parameters.

As a result of the scrutinized "retention function of riparian zones" regarding lateral water and nutrient transport (e.g. ZILLGENS 2001), nutrient enrichment in the riparian zone topsoil is the first consequence. Typically, riparian zones are not additionally fertilized. Of course, exceptions are the consequence of intensive punctiform land-uses. Natural vegetation and nutrient dynamic generate a "consumption" and reduction of these lateral inputs. The reduction functions efficiently, if the natural nutrient cycle is disturbed and organic material from the riparian zone removed out of it (NIEMANN 1988).

It is a question of balance. If the input and retention of nutrients in the riparian zones are smaller than the consumption of the vegetation and the general reduction in the riparian zone soil, it will result in a reduction of nutrients. On the other hand, a nutrient enrichment will result if the lateral input is higher than the consumption processes. Agriculture land-use controls the effectiveness of the riparian zones. If the lateral input into the riparian zone is small, nutrients will be reduced easier. If the lateral transport into the riparian zone is intensive, a higher risk for water pollution will result. Additional interpretations are currently undertaken by KOCH (2007).

Comparable results have been described by NIEMANN 1988. In addition he investigated which plant species increase the effectiveness of the consumption of nutrients inside riparian zones. NIEMANN also calculated the financial consequences of planting and tending riparian woods in comparison with the harm of water pollution. As a main result he advocates wide riparian zones with riparian woods along the stream. There are other detailed studies which support the general trend of this research study: ZILLGENS (2001) explored the retention function of riparian zones regarding lateral water and nutrient transport. HEFTING and DE KLEIN (1998) investigated the nitrogen removal in riparian buffer strips. GARTEN et al. (1994) investigated the role of topographic variations for soil nitrogen dynamics. Detailed model studies to N and P flow paths and transformations in riparian areas were discussed by NATIONAL RESEARCH COUNCIL (2002: 72 ff.).

6. Conclusion

Local heterogeneity dominates the nutrient distribution in the riparian topsoil of the Länenbach Valley on the Swiss Jura Plateau. Nitrogen is enriched in the grass-overgrown topsoil. Higher values can therefore be measured in the topsoil of the landside and herbaceous riparian zone. In general we can observe a "spatial" reduction of nitrogen in the topsoil of the riparian zones when compared to the neighbouring agriculture land. Total phosphorus

is also reduced in the riparian zone topsoil.

The bio-available phosphorus content (BAP) shows a clear enrichment in the riparian zone soil. Anthropogenic punctiform land-uses as well as lateral nutrient transport and "soil sediment" accumulation in the flat areas of the riparian zones are the main reasons for these enrichments. The "retention function" of the riparian buffer strips effects the topsoil nutrient enrichment.

The results of correlation statistics confirm that the phosphorus distribution in the topsoil depends on geomorphology. Phosphorus enriches on flat areas and in geomorphologic depressions. Lower values can be found on steeper slopes and on geomorphologic ridges. The influences of land-use and vegetation cover do not seem to be as important for P parameters. In contrast, nitrogen and organic carbon show significant correlations with the intensity of land-use and the density of ground vegetation (grass and triticale, no leguminous plants). The influence of geomorphology on their topsoil concentrations can be ignored for these parameters.

The retention function of the overgrown riparian zones generates a nutrient enrichment as a first consequence. In contrast to this, the consumption of nutrients by the riparian vegetation reduces the topsoil nutrients. Most of these consumed nutrients stay in the metabolic cycle of the riparian zone, because they only become "stored" in the biomass. According to NIEMANN (1988: 95), sustainable nutrient reduction in soils will only be achieved, if we "tend and harvest" the riparian zones in a selective and cyclic way.

As a result of these research conclusions, we can also give more detailed instructions for agriculture land use regarding water protection. The areas of prohibited fertilization ("buffer zones") should be expanded along the rivers (not less than double width of local riparian zone, which means 10-50 m according to KOCH 2007).

Furthermore, as a trivial method pasturing should be done less intensively near the rivers and cattle watering places should not be situated along these watercourses. The nutrient input in the riparian zones could be reduced with these simple measures. Last but not least, riparian zones should be extensive enough to develop a natural vegetation structure (5-25 m width, according to KOCH and AMHOF 2007 it depends on location characteristics). Especially the parts of riparian zones in geomorphologic depressions should be protected and if possible extended to avoid surface runoff and "direct inputs" in the rivers there.

Precise and conclusive results of continuative studies will be published by KOCH (2007). For instance, the optimal site specific width of riparian zone can be calculated by empirical formula.

7. References

- AG BODEN (1994) (ed.): *Bodenkundliche Kartieranleitung*, 4. ed. E. Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Hannover, 392 p.
- CORREL, D.L. (1997): Buffer zones and water quality protection: general principles. In: HAYCOCK, N., T. BURT, K. GOULDING, and G. PINAY (ed.): *Buffer zones: Their processes and potential in water protection*. Quest Environmental, Hertfordshire, pp. 7-20.
- EGNÉR, H., H. RIEHM, and W.R. DOMINGO, 1960: Untersuchungen über die chemische Bodenanalyse als Grundlage für die Beurteilung des Nährstoffzustandes der Böden. II. Chemische Extraktionsmethoden zur Phosphor- und Kaliumbestimmung. *Kunigl. Landbrukshögsk. Ann.* 26, 199-215.
- GARTEN, C.T., M.A. HUSTON, and C.A. THOMES, 1994: Topographic variation of soil nitrogen dynamics at Walker Branch Watershed, Tennessee. *Forest Science* 40 (3), 497-512.
- HEFTING, M.M., and J.J.M. DE KLEIN, 1998: Nitrogen removal in buffer strips along a lowland stream in the Netherlands: a pilot study. *Environmental Pollution* 102, S1, 521-526.
- HORT, R., S. GUPTA, and, H. HÄNI, 1998: *Methodenhandbuch für Boden-, Pflanzen- und Lysimeterwasseruntersuchungen*. Schriftenreihe der FAL 27, Eidg. Forschungsanstalt f. Agrarökologie u. Landbau, Zürich-Reckenholz, 96-98.
- KOCH, R. (2007): *Uferzonen von Fließgewässern in Kleinzugsgebieten der Region Basel – Geoökologische Prozesse, Nährstoff- und Wasserhaushalt, Bodendynamik, Kartierung, Funktionen und Zielbreitenermittlung*. Dissertation, Universität Basel (in press).
- KOCH, R. and S. AMHOF, 2007: *Geoökologische Kartierung von Uferbereichen an Fließgewässern – Kartiersystematik und Talvergleich in der Region Basel*. Mitteilungen der Naturforschenden Gesellschaften beider Basel 10. (in press).
- LOWRANCE, R. (1997): The potential role of riparian forests as buffer zones. In: HAYCOCK, N., T. BURT, K. GOULDING, and G. PINAY (ed.): *Buffer zones: Their processes and potential in water protection*. Quest Environmental, Hertfordshire, pp. 128-133.
- NATIONAL RESEARCH COUNCIL (2002) (ed.): *Riparian Areas, Functions and Strategies for Management*. National Academy Press, Washington D.C., 428 p.
- NIEMANN, E., 1988: *Ökologische Lösungswege landeskultureller Probleme*. Schriftenreihe des Österreichischen Instituts für Raumplanung, Reihe A, Band 1, 1-220.
- OLIVER, M.A., 1990: Kriging: A Method of Interpolation for Geographical Information Systems. *International Journal of Geographic Information Systems* 4 (4), 313-332.
- SHEPARD, D., 1968: A two-dimensional interpolation function for irregularly-spaced data. *Proceedings ACM National Conference 1968*, 517-524.
- ZILLGENS, B., 2001: *Simulation der Abflussverminderung und des Nährstoffrückhaltes in Uferstreifen*. *Boden und Landschaft* 34, 1-123.

Saturation en azote et lessivage de nitrate dans une forêt subalpine soumise pendant 10 ans à des dépôts d'azote expérimentalement accrus

Patrick Schleppei¹, Isabelle Morier^{1,2}, Isabelle Providoli¹

¹ Institut fédéral de recherches sur la forêt, la neige et le paysage (WSL), CH-8903 Birmensdorf

² Ecole polytechnique fédérale de Lausanne (EPFL), CH-1015 Lausanne

Résumé

Dans une forêt d'épicéas sur gley à Alptal (Suisse centrale, altitude 1200 m), un petit bassin versant reçoit depuis 10 ans des apports d'azote simulant des dépôts atmosphériques supplémentaires de $25 \text{ kg ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Par rapport à un bassin témoin, ce traitement a en quelques semaines déjà provoqué un doublement du nitrate entraîné avec l'écoulement de l'eau vers le ruisseau. Grâce en particulier à des marquages avec l'isotope ^{15}N , ces pertes ont pu être attribuées à un contact insuffisant entre l'eau des précipitations et le sol dû à un écoulement latéral rapide. Cet effet du traitement s'est ensuite accentué avec les années, parallèlement à une accumulation de la plus grande partie de l'azote déposé dans le sol et donc à une réduction du rapport C/N. La végétation n'est que peu affectée par ces apports. Après plusieurs années, les aiguilles des épicéas ont augmenté en taille et en concentration en azote, mais jusqu'ici sans effet sur la croissance des troncs.

Abstract: N saturation and nitrate leaching in a sub-alpine forest subjected to 10 years of experimentally increased nitrogen deposition

Nitrogen is added since 10 years to simulate a $25 \text{ kg ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ increase in atmospheric deposition to a small catchment in a Norway spruce forest at Alptal (central Switzerland). Compared to a control catchment, this addition doubled nitrate losses in runoff water to the brook within weeks. Especially by ^{15}N labelling, these losses could be attributed to an insufficient contact between soil and precipitation water because of a fast lateral flow. This effect of the addition increased then with the year, in parallel with an accumulation of most deposited N in the soil, lowering its C/N ratio. The vegetation was not much affected. After several years spruce needles became larger, with higher N concentrations, but so far without effect on tree growth.

Keywords: nitrogen deposition, nitrate leaching, forest, ^{15}N , Gleysol, immobilisation

1. Introduction

L'azote est un élément nutritif indispensable à la croissance des plantes. Il peut toutefois aussi avoir des effets négatifs sur la végétation: déséquilibres avec d'autres nutriments, sensibilité accrue aux facteurs de stress (biotiques et abiotiques), enracinement réduit, modification de la concurrence entre espèces (SCHULZE & FREER-SMITH, 1991; BOXMAN et al., 1998). L'azote présent sous forme de nitrate peut en outre être lessivé du sol vers les eaux d'infiltration ou de ruissellement. Un tel excès d'azote en tant qu'élément nutritif constitue une eutrophisation (VITOUSEK et al., 1997). Un autre effet de l'azote découle de ses formes chimiques et de leurs réactions: la contribution des dépôts d'ammonium et du lessivage de nitrate à l'acidification des sols et des eaux. Sur ce thème, nous renvoyons le lecteur à un autre article de la présente revue (GRAF PANNATIER et al., 2006), pour ne retenir ici que les problèmes spécifiquement liés à l'azote en tant qu'élément nutritif.

Ces dernières décennies, en Europe, les dépôts atmosphériques d'azote ont nettement augmenté avant de se stabiliser. Ces dépôts trouvent leur origine dans la pollution de l'air: tous les processus de combustion (trafic, chauffages, industries) sont responsables d'émissions sous forme d'oxydes d'azote alors que l'élevage d'animaux s'accompagne d'émissions d'azote ammoniacal. Après avoir été transporté par les courants atmosphériques et en partie modifié chimiquement, l'azote se redépose, surtout sous forme de nitrate et d'ammonium dans les précipitations.

Le risque d'eutrophisation par l'azote dépend à la fois des dépôts et de la sensibilité de l'écosystème, les plus sensibles étant ceux qui sont naturellement pauvres et peu productifs. Une des conséquences de l'eutrophisation est le lessivage de nitrate. Dans le cas des forêts, ce lessivage est considéré comme un symptôme de saturation en azote, c'est-à-dire de dépôts dépassant les capacités d'absorption par le sol et la végétation (ÅGREN et BOSATTA, 1988; ABER et al., 1989).

Dans le but d'étudier les effets des dépôts d'azote sur des forêts de conifères, le projet européen NITREX a entrepris une série d'expériences dans lesquelles les dépôts ont été manipulés expérimentalement (WRIGHT et RASMUSSEN, 1998). Dans ce cadre, nous avons mis en place une expérience d'addition d'azote dans une forêt subalpine d'épicéas, expérience commencée en 1995 et qui est toujours en cours.

2. Matériel et méthodes

Les expériences sont conduites dans la vallée d'Alptal, canton de Schwytz, à une altitude de 1200 m. Le site est exposé à l'ouest avec une pente d'environ 20%. Des sols de type gley recouvrent un sous-sol de flysch. Le climat est frais et humide (en moyenne 6°C, et 2300 mm de précipitations annuelles). La forêt forme une mosaïque avec des prairies à litières (coupées une fois par an comme litière pour les animaux) dont la plupart sont en friche. L'épicéa (*Picea abies*) est la principale essence, accompagnée par quelques sapins (*Abies alba*). Les arbres ont jusqu'à 260 ans d'âge. Le peuplement est peu dense: son indice de surface foliaire est de 3,8. Cela autorise un bon développement des espèces du sous-bois. Les sols et la végétation sont répartis en fonction de la topographie: les arbres se trouvent plutôt sur les bosses au sol plus acide, alors que les dépressions portent une végétation herbacée indiquant un sol mouillé et moins acide (SCHLEPPI et al., 1999a). Les dépôts bruts d'azote sur le site sont de 12 kg ha⁻¹ an⁻¹, à peu près également répartis entre nitrate (NO₃⁻) l'ammonium (NH₄⁺). En forêt, les pluviollessivats sont de 19 kg N ha⁻¹ an⁻¹. Deux petits bassins versants (environ 1500 m²) ont été créés dans la forêt et un dans une ancienne prairie à litières en creusant des tranchées. D'une profondeur de 80 cm environ, ces tranchées écartent l'eau en provenance de l'amont. D'autres, en aval, collectent l'eau provenant du bassin versant vers une station de mesure. Grâce au sous-sol très peu perméable, ce dispositif permet de quantifier le ruissellement et d'obtenir des échantillons représentatifs pour l'analyse chimique (SCHLEPPI et al., 1998). Chacun de ces deux bassins expérimentaux forestiers est équipé d'une quarantaine d'aspenseurs rotatifs permettant leur traitement par irrigation. Alors que l'un sert de témoin et ne reçoit qu'un supplément d'eau, du nitrate d'ammonium (NH₄NO₃) en solution est ajouté à l'autre. L'eau pour ce traitement provient d'un film en polyéthylène placé sur le sol en dehors de la forêt. L'aspersion se fait en fonction de l'eau des précipitations ainsi récoltées. Ce système permet des apports réduits mais très fréquents, ce qui simule bien les dépôts d'origine atmosphérique. A cause du gel, les apports par irrigation n'ont pas

lieu en hiver. Ils sont remplacés par des traitements sur la neige à l'aide d'un pulvérisateur à dos. En moyenne annuelle, ce traitement apporte 25 kg N ha⁻¹ an⁻¹ et un supplément de précipitations de 7%. Le bassin en friche ne reçoit aucun traitement.

Les précipitations et eaux d'écoulement sont analysées toutes les 2 semaines. Le débit des bassins est enregistré par des déversoirs en V. Ces mesures servent aussi à la commande de l'échantillonnage de l'écoulement, ce qui permet d'obtenir des échantillons proportionnels aux débits, donc représentatifs (SCHLEPPI et al., 2006). Les mesures ont commencé en mars 1994, soit une année avant le début du traitement, afin de comparer les bassins expérimentaux dans leur état initial. Durant la première année de traitement, l'azote apporté était marqué avec du ¹⁵NH₄⁺ et ¹⁵NO₃⁻. Il a ainsi été possible de déterminer le devenir de cet azote dans l'écosystème (SCHLEPPI et al., 1999b). Les bassins témoins ont aussi été marqués au ¹⁵N par environ 40 applications à la pompe à dos sur une année. Dans ce cas, ¹⁵NO₃⁻ et ¹⁵NH₄⁺ ont été apportés séparément, en 2000-2001, resp. 2002-2003 (PROVIDOLI et al., 2005).

Des échantillons de sol et d'aiguilles d'épicéas ont été prélevés et analysés. La croissance des arbres a été suivie à l'aide de dendromètres posés à demeure et de photos pour mesurer la croissance en hauteur des cimes. Des relevés botaniques du sous-bois ont été effectués annuellement (SCHLEPPI et al., 1999a).

3. Résultats et discussion

Alors qu'il était équivalent dans les deux bassins forestiers avant traitement, le lessivage de nitrate a augmenté dans les semaines qui ont suivi les premiers apports sur le bassin traité (SCHLEPPI et al., 2004). Les mécanismes de ce lessivage rapide ont été mieux compris grâce au marquage des bassins témoins (fig. 1, PROVIDOLI et al., 2005). Pendant les premières pluies qui suivent un apport initial de ¹⁵NO₃⁻, on observe des pics de concentration en nitrate au début de chaque épisode d'écoulement. Au cours du premier épisode, plusieurs pics très marqués de ¹⁵NO₃⁻ ont été détectés dans l'eau d'écoulement, montrant que le lessivage du nitrate récemment déposé se fait en quelques vagues successives. Chacune de ces vagues correspond à un pic d'écoulement et à un moment où la nappe d'eau monte dans le sol (SCHLEPPI et al., 2004). Cela peut s'expliquer par les flux préférentiels et latéraux de l'eau, tels qu'ils prévalent dans ce type de sol (FEYEN et al., 1999). Du 3 au 6 juillet, le lessivage a représenté 2,4% (forêt) resp. 1,9% (friche) de l'apport initial. Déjà au cours de l'épisode du 7 au 9 juillet, le nitrate lessivé n'est pratiquement plus marqué au ¹⁵N.

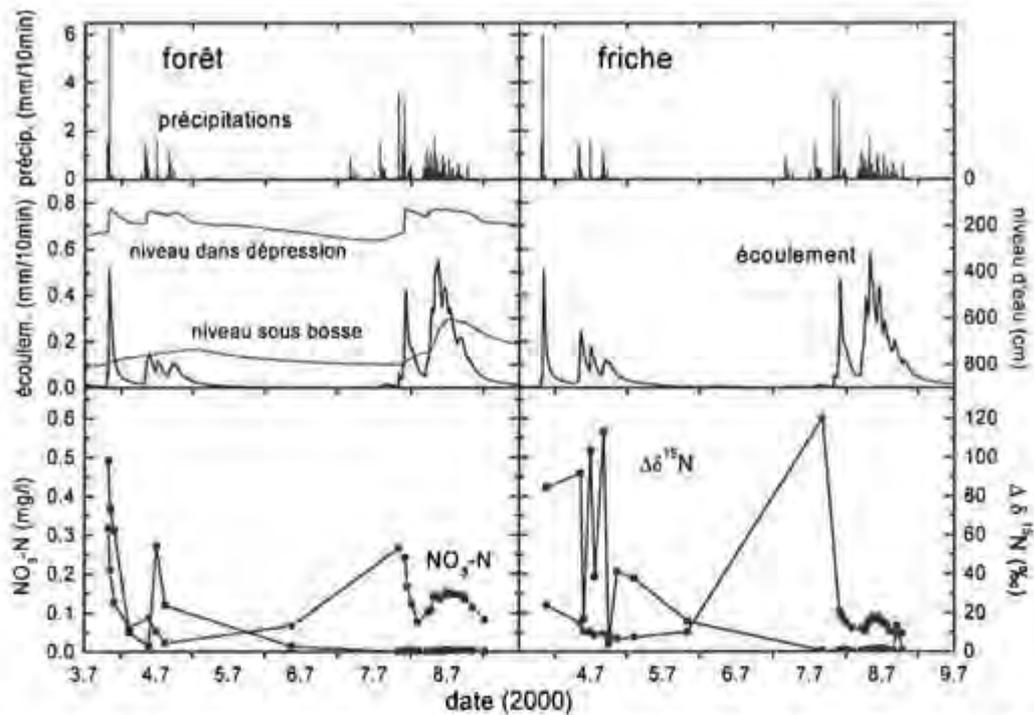


Fig. 1: Ecoulement des bassins témoins et concentrations en nitrate et en isotope ^{15}N lors d'épisodes pluvieux suivant le premier marquage au $^{15}\text{NO}_3$ ainsi que niveau d'eau à deux endroits du terrain.

Cette dynamique implique d'une part une rétention à court terme du nitrate dans les pores grossiers du sol (HAGEDORN et al., 1999, 2001), d'où il peut être de nouveau entraîné quand la nappe monte. D'autre part, la plus grande partie du nitrate est rapidement immobilisée dans le sol: déjà après une semaine, il en reste moins de 3% sous forme extractible (PROVIDOLI et al., 2006). L'analyse de différents éléments en solution dans l'eau d'écoulement montre qu'on peut la considérer comme un mélange variable entre précipitations et eau du sol au sommet de la nappe (HAGEDORN et al., 2001). Ce modèle prédit assez bien les concentrations en nitrate, mais les sous-estime. Le nitrate produit par nitrification explique probablement le reste, bien que la nitrification nette soit négative car l'immobilisation est dominante (HAGEDORN et al., 2001). Mais, durant la première année de traitement, 90% de l'augmentation du lessivage de nitrate venait directement du N apporté (donc marqué au ^{15}N) (SCHLEPPI et al. 2004). Cela implique que le nitrate lessivé provenant de la nitrification contient, lui aussi, surtout du N récemment déposé. Il s'agit donc de N qui a subi des transformations microbiologiques rapides, sans entrer dans des compartiments contenant beaucoup d'azote, auquel cas il aurait perdu plus de son signal en ^{15}N . Sur de grands bassins versants forestiers, MAYER et al. (2002), ont utilisé des abondances naturelles en ^{15}N et ^{18}O pour montrer que le nitrate emporté vient surtout de la nitrification. Dans un sol à perméabilité entravée, nos expériences montrent au contraire que la nitrification joue un rôle limité, et encore

plus pour ce qui est de la minéralisation de l'ancienne matière organique.

Entre la première et la septième année de traitement, nous avons pu montrer que le lessivage de nitrate augmente progressivement parce que sa rétention dans le sol diminue. Nous avons attribué cela à un enrichissement en N dans le sol, qui se traduit par un rapport C/N en diminution (SCHLEPPI et al., 2004). Toutefois, entre les années 8 et 10, l'effet du traitement sur le lessivage a un peu diminué (fig. 2). Mais les deux années correspondantes (2003-2004) étaient particulièrement sèches, ce qui a forcément limité le lessivage. Comme le traitement par aspersion est dépendant de l'eau de pluie disponible, ce sont aussi deux années où les apports ont été inférieurs au but à long terme (environ 20 au lieu de 25 kg N ha⁻¹ an⁻¹). Il faut donc s'attendre à une nouvelle augmentation dans les prochaines années.

Les analyses de ^{15}N effectuées dans l'année suivant le marquage avaient montré que la plus grande partie des dépôts azotés récents étaient retenus dans le sol (SCHLEPPI et al., 1999b). Cinq ans plus tard (tableau 1), le taux de recouvrement global n'était plus que de 75%. Aucune perte de ^{15}N sous forme de nitrate lessivé n'ayant été détectée pendant ce temps, il est aussi très improbable que du nitrate marqué ait été dénitrifié. Les 25% non retrouvés ne s'expliquent donc que par une accumulation d'imprécisions expérimentales, ce qui arrive souvent dans ce genre d'essai (PROVIDOLI et al., 2005). On peut toutefois noter une nette progression du marqueur dans les arbres.

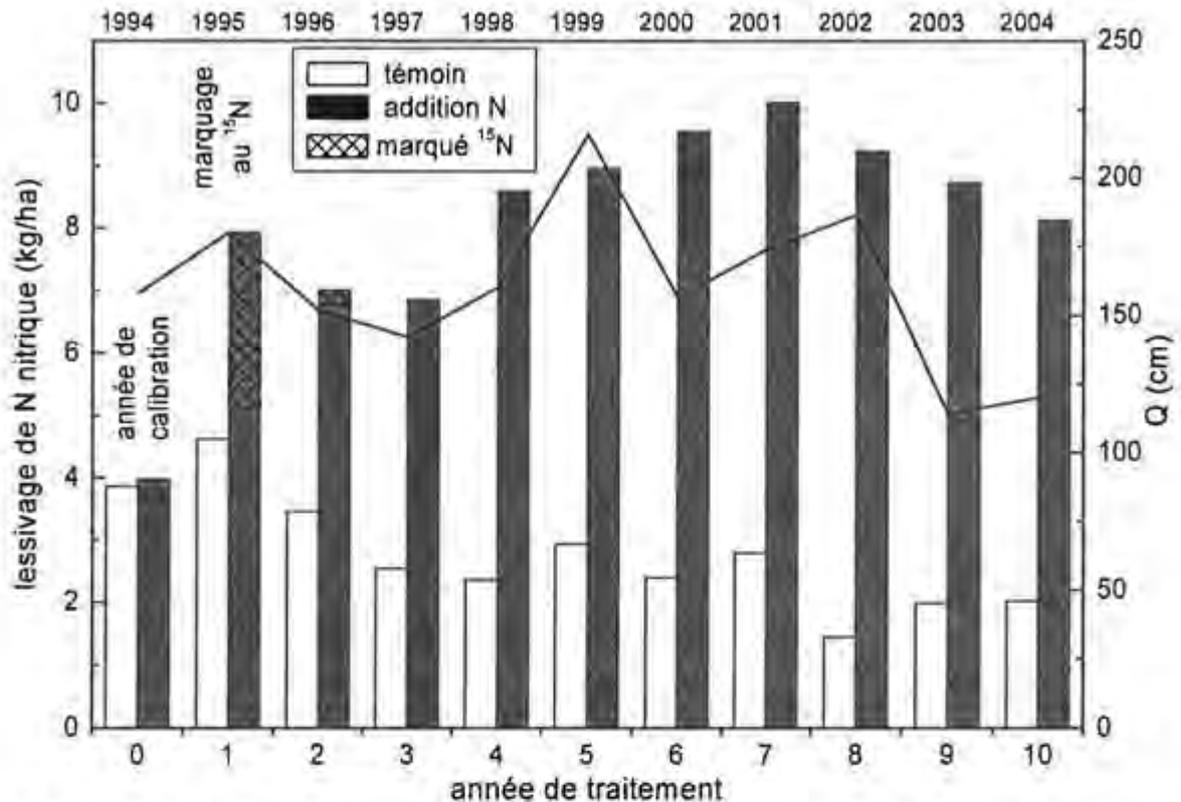


Fig. 2: Ecoulement (Q) et lessivage de nitrate des bassins expérimentaux forestiers une année avant et pendant 10 ans de traitement au NH_4NO_3 ($25 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ en moyenne). Les apports étaient marqués au ^{15}N la première année.

Tableau 1: Taux de recouvrement en ^{15}N (%) en 1997 et 2002, 1 et 6 ans après le marquage.

compartiment ou flux	1997	2002
arbres	8	13
sous-bois	5	1
litières	} 13	3
racines		4
sol: LF	42	27
sol: A et Bg	21	17
nitrate lessivé	10	10

Bien que l'azote apporté ne soit rapidement plus lessivable, il reste donc en partie disponible à long terme pour les arbres. Comme l'azote déposé (nitrate ou ammonium) est rapidement immobilisé dans le sol (PROVIDOLI et al., 2006), nous avons comparé son hydrolysabilité avec celle du N déjà présent dans le sol. L'hydrolysabilité est liée à la disponibilité potentielle pour les plantes (STEVENSON, 1982). Alors que le N natif est 2/3 à 3/4 hydrolysable, le N récemment déposé l'est plutôt un peu plus (fig. 3, MORIER et al., 2006). Une année après déposition, l'hydrolysabilité est proche de 80%. Ces résultats sont donc compatibles avec une lente mais durable absorption par les arbres. Les arbres n'absorbent chaque année qu'une

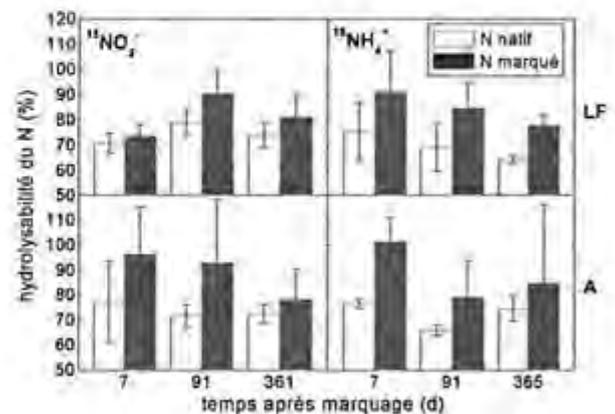


Fig. 3: Hydrolysabilité dans le sol (horizons LF et A) du N natif et du N marqué, déposé comme $^{15}\text{NH}_4^+$ resp. $^{15}\text{NO}_3^-$. Moyennes et erreurs-types de 4 répétitions.

petite partie de leur azote, le reste étant recyclé à l'intérieur de la plante, y compris entre aiguilles de différentes classes d'âge (SCHLEPPI et al., 1999b). Pour cette raison, aucun effet du traitement sur les arbres n'avait été détecté durant les premières années (SCHLEPPI et al., 1999a). Ce n'est qu'après six ans d'addition d'azote que les premiers effets sont apparus, avec une augmentation de la concentration en azote dans les aiguilles (fig. 4). Cette lenteur d'action a été notée aussi sur d'autres sites du projet NITREX (BOXMAN et al., 1998).

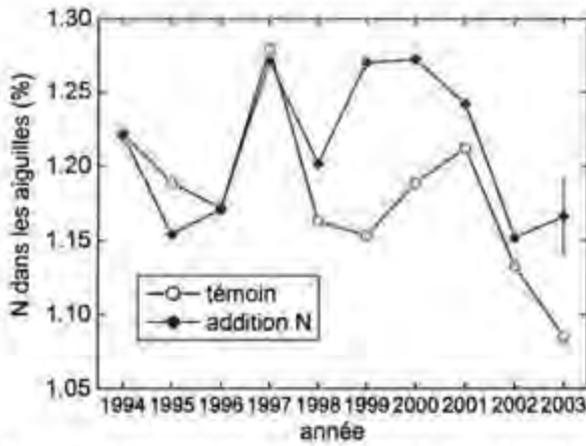


Fig. 4: Concentration en N dans les aiguilles d'épicéas (moyennes de 5 classes d'âge et de 4 à 5 arbres et erreur-type globale) en fonction de l'addition de N (dès 1995).

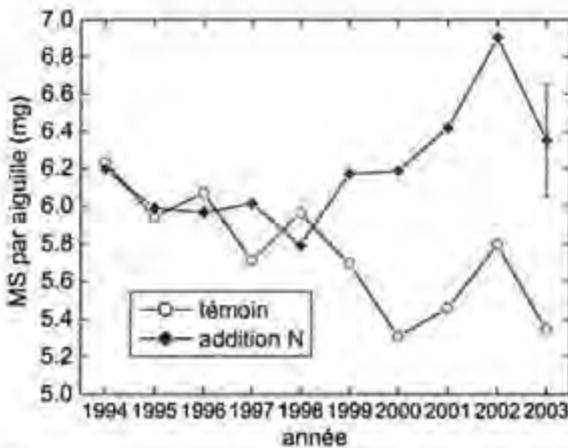


Fig. 5: Masse sèche des aiguilles d'épicéas (moyennes de 5 classes d'âge et de 4 à 5 arbres et erreur-type globale) en fonction de l'addition de N (dès 1995).

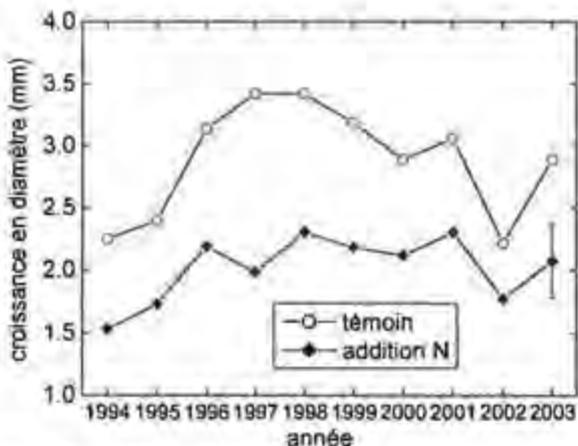


Fig. 7: Croissance annuelle en diamètre des épicéas sur les bassins forestiers. Moyennes et erreur-type globale de 24 (addition N) et 29 arbres (témoin) avec dendromètres.

Malgré de fortes variations entre années, les concentrations sur la parcelle traitée se détachent avec le temps du témoin (interaction: $p < 0.001$). Dans le même temps, les aiguilles sont devenues un peu plus larges et longues, donc plus lourdes (fig. 5). L'interaction entre traitement et temps est ici aussi significative ($p = 0.007$). Ces effets sur les aiguilles n'ont par contre pas encore eu de répercussion mesurable sur l'indice de surface foliaire (ISF) ou sur la croissance en hauteur et en diamètre (fig. 6) des arbres. Pour chacun de ces paramètres, une différence existait déjà avant l'essai, mais elle ne s'est pas modifiée avec l'addition d'azote. Une augmentation de la taille des aiguilles sans augmentation de l'ISF peut s'expliquer par le fait que la taille des aiguilles n'est mesurée que dans la partie supérieure des couronnes (7ème verticille). Il est probable que les parties inférieures des couronnes, qui sont végétativement moins actives, réagissent moins au traitement.

A ce jour, aucun effet significatif n'a été observé sur la composition botanique de la végétation herbacée ou des mousses.

4. Conclusions

Dans l'écosystème étudié, sur un sol de type gley, les dépôts atmosphériques d'azote entraînent une augmentation en deux temps du lessivage de nitrate. A l'échelle d'un épisode hydrologique, une partie du nitrate déposé est directement entraînée par flux préférentiel et latéral. Mais le sol retient tout de même la plus grande partie des dépôts. Cette rétention entraîne une accumulation à long terme qui, en abaissant le rapport C/N dans le sol, diminue progressivement la capacité de rétention pour les dépôts subséquents. A moyen terme, cela provoque une augmentation supplémentaire du lessivage de nitrate. On assiste donc à une saturation progressive en azote. Mais, contrairement à la théorie habituelle de la saturation (ABER et al. 1989), il apparaît que ce n'est toujours que l'azote récemment déposé qui est lessivé. Le nitrate produit par minéralisation de la matière organique puis nitrification apparaît bien retenu dans le sol; cela peut s'expliquer par le fait que la minéralisation et nitrification se font dans des microsites du sol biologiquement actifs, où le nitrate peut donc être efficacement recyclé. Après dix ans de mesures, les effets sur la végétation se limitent à une augmentation de la taille des aiguilles des épicéas et de leur concentration en azote. Il faut s'attendre à ce que cela entraîne à plus long terme un effet positif sur la croissance des arbres. Des changements de composition botanique du sous-bois pourraient aussi intervenir à l'avenir, avec potentiellement une perte de biodiversité, mais nous n'en voyons encore aucun indice.

5. Bibliographie

- ABER, J.D., K.J. NADELHOFFER, P. STEUDLER and J. MELILLO, 1989: Nitrogen saturation in northern forest ecosystems. *BioScience* 39, 378-386.
- ÅGREN, G.I. and E. BOSATTA, 1988: Nitrogen saturation of terrestrial ecosystems. *Environmental Pollution* 54, 185-197.
- BOXMAN, A.W., K. BLANCK, T.E. BRANDRUD, B.A. EMMETT, P. GUNDERSEN, R.F. HOGERVORST, O.J. KJØNAAS, H. PERSSON and V. TIMMERMANN, 1998: Vegetation and soil biota response to experimentally-changed nitrogen inputs in coniferous forest ecosystems of the NITREX project. *Forest Ecology and Management* 101, 65-79.
- FEYEN, H., H. WUNDERLI, H. WYDLER and A. PAPRITZ, 1999: A tracer experiment to study flow paths of water in a forest soil. *Journal of Hydrology* 225, 155-167.
- GRAF PANNATIER, E., M. SCHMITT, A. THIMONIER, P. WALDNER, L. WALTHERT et P. BLASER, 2006: Monitoring de la composition chimique de l'eau dans les sols forestiers: un outil pour évaluer l'acidification des sols. *Bulletin SSP* 29.
- HAGEDORN, F., J. MOHN, P. SCHLEPPI and H. FLÜHLER, 1999: The role of rapid flow paths for nitrogen transformation in a forest soil - a field study with micro suction cups. *Soil Science Society of America Journal* 63, 1915-1923.
- HAGEDORN, F., P. SCHLEPPI, J.B. BUCHER and H. FLÜHLER, 2001: Retention and leaching of elevated N deposition in a forested ecosystem with Gleysols. *Water Air and Soil Pollution* 129, 119-142.
- MAYER, B., E.W. BOYER, C. GOODALE, N.A. JAWORSKI, N. VAN BREEMEN, R.W. HOWARTH, S. SEITZINGER, G. BILLEN, K. LAJTHA, K. NADELHOFFER, D. VAN DAM, L.J. HETLING, M. NOSAL and K. PAUSTIAN, 2002: Sources of nitrate in rivers draining sixteen watersheds in the northeastern U.S.: isotopic constraints. *Biogeochemistry* 57-58, 171-197.
- MORIER, I., P. SCHLEPPI, M. SAURER, I. PROVIDOLI, C. GUENAT, 2006. Retention of atmospherically deposited N in two contrasting soils in Switzerland. *European Journal of Soil Science* (submitted).
- PROVIDOLI, I., H. BUGMANN, R. SIEGWOLF, N. BUCHMANN and P. SCHLEPPI, 2005: Flow of deposited inorganic N in two Gleysol-dominated mountain catchments traced with $^{15}\text{NO}_3^-$ and $^{15}\text{NH}_4^+$. *Biogeochemistry* 76, 453-475.
- PROVIDOLI, I., H. BUGMANN, R. SIEGWOLF, N. BUCHMANN and P. SCHLEPPI, 2006: Pathways and dynamics of $^{15}\text{NO}_3^-$ and $^{15}\text{NH}_4^+$ applied in a mountain *Picea abies* forest and in a nearby meadow in central Switzerland. *Soil Biology and Biochemistry*, in press.
- SCHLEPPI, P., N. MULLER, H. FEYEN, A. PAPRITZ, J.B. BUCHER and H. FLÜHLER, 1998: Nitrogen budgets of two small experimental forested catchments at Alptal, Switzerland. *Forest Ecology and Management* 101, 177-185.
- SCHLEPPI, P., N. MULLER, P.J. EDWARDS and J.B. BUCHER, 1999a: Three years of increased nitrogen deposition do not affect the vegetation of a montane forest ecosystem. *Phyton* 39, 199-204.
- SCHLEPPI, P., I. BUCHER-WALLIN, R. SIEGWOLF, M. SAURER, MULLER and J.B. BUCHER, 1999b: Simulation of increased nitrogen deposition to a montane forest ecosystem: partitioning of the added ^{15}N . *Water Air and Soil Pollution* 116, 129-134.
- SCHLEPPI, P., F. HAGEDORN and I. PROVIDOLI, 2004: Nitrate leaching from a mountain forest ecosystem with Gleysols subjected to experimentally increased N deposition. *Water Air and Soil Pollution Focus* 4, 453-467.
- SCHLEPPI, P., P.A. WALDNER and B. FRITSCHI, 2006: Accuracy and precision of different sampling strategies and flux integration methods for runoff water: comparisons based on measurements of the electrical conductivity. *Hydrological Processes* 20, 395-410.
- SCHULZE, E.-D. and P.H. FREER-SMITH, 1991. An evaluation of forest decline based on field observations focused on Norway spruce *Picea abies*. *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh* 97, 155-168.
- STEVENSON, F.J., 1982. Organic forms of soil nitrogen. In: STEVENSON, F.J. (ed.): *Nitrogen in agricultural soils*. *Agronomy* 22, American Society of Agronomy, Madison, USA, pp. 67-122.
- VITOUSEK, P.M., J.D. ABER, R.W. HOWARTH, G.E. LIKENS, P.A. MATSON, D.W. SCHINDLER, W.H. SCHLESINGER and D.G. TILMAN, 1997. Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences. *Ecological Applications* 7, 737-750.
- WRIGHT, R.F. and L. RASMUSSEN, 1998: Introduction to the NITREX and EXMAN projects. *Forest Ecology and Management* 101, 1-7.

Einfluss der Ökologisierung in der Landwirtschaft auf den Nitratgehalt des Grundwassers

Ernst Spiess und Volker Prasuhn

Agroscope Reckenholz-Tänikon (ART), CH-8046 Zürich

Zusammenfassung

Im Rahmen der Evaluation der Ökomassnahmen in der Landwirtschaft wurde die zeitliche Entwicklung der Nitratgehalte von Trinkwasserfassungen im Kanton Bern verfolgt. Das vom Bundesamt für Landwirtschaft gesetzte Ziel einer Reduktion um 5 mg NO₃/l zwischen 1990-92 und 2005 wurde vermutlich nur im Mittelland und in den Voralpen erreicht, nicht aber im Kanton als Ganzes. Eine Abschätzung mit dem Stoffflussmodell MODIFFUS zeigt, dass der Rückgang der Getreide- und der Kartoffelfläche, der geringere N-Düngereinsatz im Ackerbau sowie der vermehrte Anbau von Zwischenkulturen am meisten zur Verringerung der Nitratauswaschung beigetragen haben. Über die Hälfte der Reduktion dürfte eine Folge der 1993 eingeführten Ökomassnahmen sein.

Abstract: Impact of ecological measures in agriculture on nitrate contents of groundwater

A survey of nitrate contents of groundwater in the canton of Berne has been carried out within the framework of the evaluation of ecological measures in Swiss agriculture. The goal of the Swiss Federal Office for Agriculture of an average reduction by 5 mg NO₃/l between the period of 1990/92 and 2005 is likely to be reached only in the Bernese Central Plain and in the Prealps, but not in the canton of Berne as a whole. An assessment made with the substance flow model MODIFFUS shows that decreasing surfaces of cereals and potatoes, lower inputs of N fertilizers in arable land and a larger proportion of catch crops contributed most to the reduction in nitrate leaching. It is suggested that more than half of the reduction is a result of the ecological measures introduced in 1993.

Keywords: nitrate, leaching, groundwater

1. Einleitung

In der zweiten Hälfte des letzten Jahrhunderts kam es infolge der Intensivierung in der Landwirtschaft zu einem starken Anstieg der Nitratgehalte im Grundwasser (BUWAL 1993). Dieser führte dazu, dass der Nitratgehalt des Trinkwassers in den achtziger Jahre an vielen Orten über dem Anforderungswert der Gewässerschutzverordnung von 25 mg NO₃/l lag. Bei einigen Wasserfassungen wurde auch der in der Fremd- und Inhaltsstoffverordnung festgelegte Toleranzwert für Trinkwasser von 40 mg NO₃/l überschritten.

Mit den 1993 eingeführten Direktzahlungen und den damit verbundenen Ökomassnahmen hat sich das Bundesamt für Landwirtschaft unter anderem zum Ziel gesetzt, den Nitratgehalt des Grundwassers um durchschnittlich 5 mg NO₃/l zu reduzieren. Dies soll an ausgewählten, insgesamt repräsentativen Fassungen zwischen den Referenzjahren 1990-92 und dem Jahr 2005 beobachtet werden (FORNI et al. 1999).

Zum Bezug von allgemeinen Direktzahlungen ist berechtigt, wer den ökologischen Leistungsnachweis erfüllt. Dieser beinhaltet unter anderem eine ausgeglichene Stickstoffbilanz, eine gezielte Fruchtfolge, einen angemessenen Anteil

an ökologischen Ausgleichsflächen und einen geeigneten Bodenschutz. Ökobeiträge werden auch für verschiedene Typen von ökologischen Ausgleichsflächen, den extensiven Anbau von Getreide und Raps sowie für den Biolandbau ausgerichtet.

Im Rahmen der Evaluation der Ökomassnahmen, die aufgrund der Nachhaltigkeitsverordnung durchzuführen ist, wurde in drei Projekten untersucht (HERZOG und RICHNER 2005), ob das oben genannte Ziel erreicht wird. Nachfolgend werden Resultate aus dem Projekt "Nitratauswaschung im Kanton Bern" vorgestellt, in dem a) die zeitliche Entwicklung der Nitratgehalte von Trinkwasserfassungen verfolgt (Nitratdatenreihe) und b) der Einfluss verschiedener Faktoren auf die Reduktion der Nitratauswaschung mittels des Stoffflussmodells MODIFFUS (PRASUHN und MOHNI 2003) untersucht wird.

2. Material und Methoden

a) Auswahl der Wasserfassungen und statistische Auswertung der Nitratdatenreihe

Zur Verfolgung der zeitlichen Entwicklung der Nitratgehalte von Trinkwasserfassungen im Kanton Bern wurden Nitratanalysen ausgewertet,

die im Kantonalen Laboratorium im Rahmen der Trinkwasserkontrolle durchgeführt worden waren. Analysen von Probenahmestellen, welche Mischwasser enthielten und deshalb nicht einer einzelnen Wasserfassung zugeordnet werden konnten, wurden ausgeschlossen. Zudem wurden nur Fassungen berücksichtigt, von denen in den Perioden 1990-92, 1993-95, 1996-98, 1999-2001 und 2002-04 mindestens je eine Nitratanalyse vorhanden war. Einige Fassungen, welche in der Untersuchungsperiode infolge zu hoher Nitratgehalte oder anderer Gründe abgestellt worden waren und deren Wasser nicht mehr analysiert wurde, wurden nicht einbezogen.

Die ausgewählten Wasserfassungen wurden einer der vier Regionen Alpen, Voralpen, Mittelland und Jura zugeordnet und aufgrund der Bodennutzung im vermuteten oberirdischen Einzugsgebiet in zwei Nutzungskategorien eingeteilt: Die Kategorie "Landwirtschaft" umfasst 182 Wasserfassungen, deren Einzugsgebiet vollständig oder teilweise landwirtschaftlich genutzt wird. Im Gegensatz dazu setzt sich das Einzugsgebiet der 41 Wasserfassungen in der Kategorie "Wald" ausschliesslich aus Wald und unproduktiven Flächen zusammen. Bei letzteren Wasserfassungen soll geprüft werden, ob der Verlauf des Nitratgehaltes in der Untersuchungsperiode ähnlich war wie bei den Fassungen in Gebieten mit landwirtschaftlicher Bewirtschaftung.

Für die statistische Auswertung wurde für jede Fassung eine lineare Regression vom Jahresmittel des Nitratgehaltes auf das Jahr berechnet. Der Regressionskoeffizient gibt an, wie stark der Nitratgehalt pro Jahr zu- oder abnimmt. Mit Hilfe eines t-Tests gegen 0 mg NO₃/l und Jahr wurde für jede Nutzungskategorie geprüft, ob eine allfällige Abnahme des Nitratgehaltes signifikant oder nur zufällig ist. Ein zweiter t-Test gegen -0,36 mg NO₃/l und Jahr zeigte, ob das Ziel einer Reduktion des Nitratgehaltes um 5 mg NO₃/l bis 2005 erreicht werden konnte, wenn der Trend des Nitratgehaltes gleich blieb wie zwischen 1990 und 2004. Eine Abnahme um 0,36 mg NO₃/l und Jahr entspricht dem Ziel einer Reduktion von 5 mg NO₃/l in 14 Jahren. Zuletzt wurde mit einer einfachen Varianzanalyse abgeklärt, ob bei den beiden Kategorien "Landwirtschaft" und "Wald" eine unterschiedliche Entwicklung der Nitratgehalte beobachtet werden kann.

b) Stoffflussmodell MODIFFUS

MODIFFUS ist ein Modell zur Abschätzung der diffusen Einträge von Stickstoff und Phosphor in die Gewässer und wurde detailliert in PRASUHN und MOHNI (2003) beschrieben. Für die vorliegende Arbeit wurden nur die Module "Wasserhaushalt" und "NitratAuswaschung" von MODIFFUS verwendet (SPIESS und PRASUHN 2006). Das Modell beruht auf diversen naturräumlichen, klimatischen, pedologischen und landwirtschaft-

lichen Eingangsdaten, welche mittels eines geographischen Informationssystems miteinander verknüpft wurden. Als räumliche Einheit dienen Rasterzellen von einer Hektare Grösse.

Für die beiden Berechnungsjahre 1990 und 1999 lagen von den Flächendaten nur für die Ackerkulturen unterschiedliche Datensätze aus der landwirtschaftlichen Betriebszählung vor. Die Erhebungen der Arealstatistik 1992/97 wurden im Kanton Bern in den Jahren 1992 bis 1994 durchgeführt. Da keine neueren Daten existieren, konnten Änderungen in der Landnutzung deshalb nur beim Ackerland berücksichtigt werden.

In einem ersten Schritt wurden die Wasserflüsse für jede Rasterzelle mit MODIFFUS berechnet. Die Sickerwassermenge ergab sich aus der Differenz zwischen dem Niederschlag einerseits und der Evapotranspiration, dem Oberflächenabfluss und dem Drainageabfluss andererseits. Infolge der Verwendung von langjährigen Mittelwerten wurde für 1990 und 1999 mit den gleichen Sickerwassermengen gerechnet.

In einem zweiten Schritt erfolgte die Berechnung der ausgewaschenen Nitratmenge. Ein nutzungsspezifischer Ausgangswert für die NitratAuswaschung wurde mit den in PRASUHN und MOHNI (2003) beschriebenen Korrekturfaktoren für Unterschiede in der Sickerwassermenge, der Höhenlage, des Bodens, der Hofdüngermenge, der Denitrifikation und der Drainage verrechnet.

Bei Wald und unproduktiver Vegetation wurde für das Jahr 1999 ein Auswaschungsausgangswert von 9,0 kg N/ha verwendet. 1990 war die N-Deposition gesamtschweizerisch rund 3 kg/ha höher als 1999. Unter der Annahme, dass 10% der aus der Luft abgelagerten N-Menge ausgewaschen werden, wurde der Auswaschungsausgangswert für 1990 um 0,3 kg N/ha erhöht. Bei Grasland (Naturwiesen, Heimweiden, alpwirtschaftliche Nutzflächen) und Obstbau wurde angenommen, dass die Höhe der N-Düngung im Bereich von 70 bis 130% der Düngungsnorm keinen Einfluss auf die NitratAuswaschung hat; deshalb wurde für 1990 und 1999 mit dem gleichen Ausgangswert von 13 kg N/ha gerechnet. Für die extensiv und wenig intensiv genutzten Ökowieden wurde dieser Wert um 20% reduziert. Im Ackerbau wurde für jeden der über 10'000 Landwirtschaftsbetriebe je eine Fruchtfolge für 1990 und 1999 aufgrund der Flächenanteile der einzelnen Kulturen in diesen Jahren nach der von K. Grünig in PRASUHN und MOHNI (2003) beschriebenen Methode konstruiert. Für jede Kulturkombination (Vorkultur – Nachkultur) wurde zusätzlich festgelegt, ob eine Zwischenkultur möglich und praxisüblich ist. Die Zwischenkulturfläche des gesamten Kantons wurde aufgrund der verkauften Saatgutmengen und der empfohlenen Saatmenge pro Hektare geschätzt.

Vielen der rund 500 möglichen Kulturkombinationen (mit oder ohne Zwischenkultur) konnte in

einer Datenbank für das Jahr 1999 ein aus in- und ausländischen Lysimeterversuchen abgeleiteter, durchschnittlicher Nitratauswaschungswert zugeordnet werden, der überwiegende Teil musste jedoch anhand von Analogieschlüssen abgeschätzt werden. Die Fruchtfolgen aller Betriebe wurden mit dieser Datenbank verknüpft. Dadurch erhielt jede Kulturkombination in der Fruchtfolge einen Nitratauswaschungswert. Bei allen Kulturkombinationen mit Extensogetreide oder -raps als Vorkultur wurde der Ausgangswert um 5% reduziert. Dieser Wert wurde aus Lysimeterversuchen von NIEVERGELT (2002) abgeleitet.

1990 wurden gesamtschweizerisch 30% mehr Stickstoff mit Mineraldüngern und 8% mehr mit Hofdüngern ausgebracht als 1999 und die N-Deposition war im Mittel 3 kg/ha höher (SPIESS 2005). Es wurde angenommen, dass 10% des zusätzlichen mineralischen Stickstoffs und 15% des organischen Stickstoffs ausgewaschen wurden. Da die Werte für den Mineraldünger-

verbrauch und die N-Deposition nur für die gesamte Schweiz vorlagen, konnte keine regionale Differenzierung vorgenommen werden.

3. Resultate und Diskussion

a) Aktuelle Nitratgehalte und zeitliche Entwicklung

In der Periode 2002-04 betrug der Nitratgehalt der 182 Wasserfassungen, deren Einzugsgebiet mindestens zu einem Teil oder ausschliesslich landwirtschaftlich genutzt wird, im Durchschnitt 16,5 mg NO₃/l (Tab. 1). Im Mittelland lag er mit 24,4 mg NO₃/l über, im Jura und insbesondere in den Alpen dagegen mit 7,9 bzw. 2,6 mg NO₃/l deutlich unter dem Durchschnitt. Bei den 41 Fassungen mit bewaldeten und vegetationlosen Flächen im Einzugsgebiet betrug der durchschnittliche Nitratgehalt 6,9 mg NO₃/l und die Unterschiede zwischen den Regionen fielen weit geringer aus.

Tab. 1: Durchschnittliche Nitratgehalte der Wasserfassungen mit bzw. ohne landwirtschaftlichen Einfluss im Einzugsgebiet.

Kategorie Region	Anzahl Fassungen	Nitratgehalt (mg NO ₃ /l)					Differenz ¹⁾
		1990-1992	1993-1995	1996-1998	1999-2001	2002-2004	
<i>Landwirtschaft</i>	182	19,7	20,2	18,7	17,8	16,5	-3,2
Alpen	39	2,3	2,5	2,6	2,3	2,6	0,3
Voralpen	53	20,6	20,8	18,7	17,3	16,2	-4,4
Mittelland	81	28,8	29,6	27,6	26,7	24,4	-4,4
Jura	9	9,0	8,9	9,1	7,9	7,9	-1,1
<i>Wald</i>	41	7,0	7,2	7,2	6,8	6,9	-0,1
Alpen	16	2,9	2,8	2,8	2,7	3,0	0,1
Voralpen	10	10,8	11,1	11,1	10,2	9,9	-0,9
Mittelland	13	9,8	10,3	10,0	9,5	9,9	0,1
Jura	2	2,9	2,7	4,8	4,6	4,4	1,5

¹⁾ Differenz zwischen den Perioden 2002-04 und 1990-92

Bei den Fassungen mit landwirtschaftlich genutztem Einzugsgebiet wurde im Mittelland in der Periode 2002-04 der Toleranzwert von 40 mg NO₃/l bei zwei Fassungen und der Anforderungswert der Gewässerschutzverordnung von 25 mg NO₃/l bei fast der Hälfte der Fassungen überschritten. In den Voralpen traten nur noch Überschreitungen des Anforderungswertes bei 10% der Fassungen auf. Im Jura und in den Alpen sowie bei der Nutzungskategorie «Wald» lagen die Mittelwerte bei allen Fassungen deutlich unter 25 mg NO₃/l.

Zwischen den Perioden 1990-92 und 2002-04 hat der Nitratgehalt bei den Wasserfassungen mit landwirtschaftlich genutztem Einzugsgebiet im Mittel um 3,2 mg NO₃/l abgenommen (Tab. 1). Während zwischen 1990-92 und 1993-95 noch ein leichter Anstieg beobachtet wurde, konnte danach bis zur letzten Periode 2002-04 eine stärkere Abnahme verzeichnet werden. Im Mittelland

und in den Voralpen war der Rückgang über die ganze Untersuchungsperiode mit je 4,4 mg NO₃/l am höchsten. In den Alpen und im Jura waren dagegen nur geringe Veränderungen festzustellen. Im Jura betrug der durchschnittliche Nitratgehalt in der Periode 1990-92 9 mg NO₃/l; eine Zielerreichung dürfte hier deshalb sehr schwierig sein. In den Alpen lag der Ausgangswert von 1990-92 bei fast allen Fassungen schon unter 5 mg NO₃/l. Somit ist eine Reduktion um 5 mg NO₃/l unmöglich. Damit das Ziel für den gesamten Kanton Bern erreicht werden kann, muss deshalb der Nitratgehalt im Mittelland und in den Voralpen um mehr als 5 mg NO₃/l zurückgehen. Bei der Nutzungskategorie "Wald" war gesamt-haft nur eine geringfügige Abnahme um 0,1 mg NO₃/l zu verzeichnen. Die durchschnittlichen Nitratgehalte waren bei diesen Fassungen allerdings weniger als halb so hoch als bei den Fassungen mit landwirtschaftlicher Nutzung im Einzugsgebiet.

Der t-Test der Regressionskoeffizienten gegen 0 mg NO₃/l und Jahr ergab, dass nur die Abnahme des Nitratgehaltes der Nutzungskategorie "Landwirtschaft" im Mittelland und in den Voralpen signifikant ist ($p < 0,001$; Abb. 1). Mit dem t-Test gegen -0,36 mg NO₃/l und Jahr konnte festgestellt werden, dass bei gleich bleibendem Trend das Ziel einer Reduktion des Nitratgehaltes um 5 mg NO₃/l in diesen beiden Regionen erreicht werden kann. Die einfache Varianzanalyse ergab, dass sich die beiden Nutzungskategorien "Landwirtschaft" und "Wald" ebenfalls nur in diesen beiden Regionen unterscheiden. Ein Unterschied weist darauf hin, dass die Abnahme des Nitratgehaltes auf Änderungen in der landwirtschaftlichen Bewirtschaftung zurückgeführt werden kann. Neben den Ökomass-

nahmen waren diese Änderungen auch durch weitere Einflussfaktoren bedingt: Geringere Produktpreise infolge veränderter agrarpolitischer und wirtschaftlicher Rahmenbedingungen dürften an den Verschiebungen in den Kulturanteilen mitbeteiligt sein (z.B. Abnahme der Getreideproduktion). Die veränderten Ernährungsgewohnheiten haben zu einem sinkenden Fleischkonsum geführt, wodurch die Tierzahlen und damit der N-Anfall in den Hofdüngern abgenommen haben. Dank Leistungssteigerungen in der Landwirtschaft wie z.B. der höheren Milchleistung pro Kuh werden weniger Kühe zur Produktion der gleichen Milchmenge benötigt. Die einzelne Kuh scheidet zwar etwas mehr Stickstoff aus, durch die geringere Tierzahl sinkt aber gesamthaft der N-Anfall in den Hofdüngern.

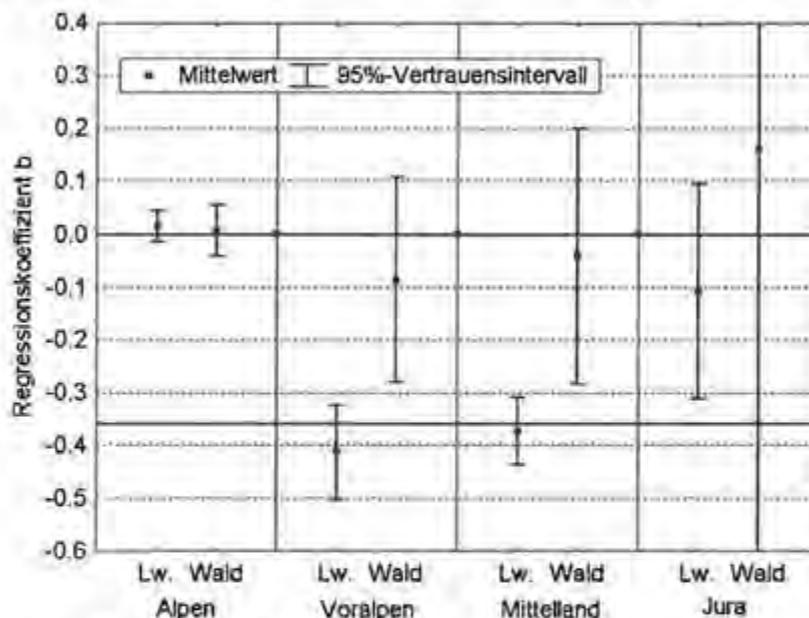


Abb. 1: Regressionskoeffizienten der einzelnen Gruppen von Fassungen (Lw. = Landwirtschaft). Die durchgezogene Linie bei 0 stellt den Zustand bei konstantem Nitratgehalt während der ganzen Periode dar, diejenige bei -0,36 die Zielgrösse mit der Abnahme um 5 mg NO₃/l in 14 Jahren. Wenn sich die Vertrauensintervalle zweier Verfahren nicht überschneiden, besteht ein signifikanter Unterschied.

Diese Einflussfaktoren haben dazu geführt, dass der N-Überschuss der schweizerischen Landwirtschaft schon seit 1980 rückläufig ist und bis 2000 von rund 152'000 t N um ein Viertel auf 113'000 t N abgenommen hat (SPIESS 2005). Als Folge davon müssen auch die N-Verluste beträchtlich abgenommen haben, weil eine grössere N-Anreicherung im Boden als einziger weiterer Senke unwahrscheinlich ist. Stickstoff geht hauptsächlich über die Ammoniakverflüchtigung, die Denitrifikation und die Nitratwaschung verloren. Die Ammoniakverluste haben gesamtschweizerisch zwischen 1980 und 2000 etwa gleich stark abgenommen haben wie der N-Überschuss (MENZI et al. 1997, MENZI 2005), die Lachgasverluste dagegen bedeutend weniger (SCHMID et al. 2000, LEIFELD 2005). Somit müssten die Nitratverluste aus der Landwirtschaft

infolge des sinkenden N-Überschusses um mindestens ein Viertel zurückgegangen sein.

Bei der Interpretation der vorliegenden Resultate muss berücksichtigt werden, dass das im Boden versickernde Wasser im Durchschnitt mehrere Jahre benötigt, bis es in eine Wasserfassung gelangt. Die Auswirkungen der 1993 eingeführten Ökomassnahmen auf den Nitratgehalt des Trinkwassers können folglich erst mit einer Verzögerung von einigen Jahren festgestellt werden.

b) Abschätzung mit MODIFFUS

Die Abschätzungen mit dem Stoffflussmodell MODIFFUS ergaben, dass eine bedeutende Reduktion der ausgewaschenen Nitratmenge zwischen 1990 und 1999 vor allem unter den Ackerflächen im Mittelland und in den Voralpen erreicht worden ist (Abb. 2).

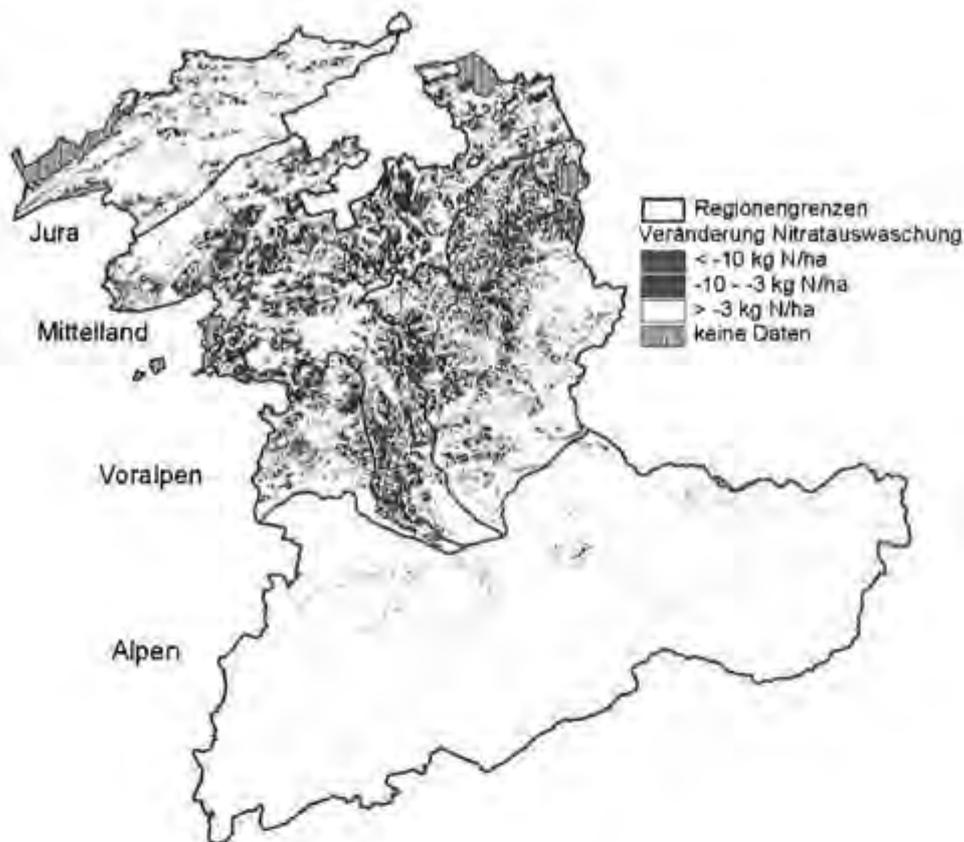


Abb. 2: Veränderung der mit MODIFFUS berechneten ausgewaschenen Nitratmengen im Kanton Bern zwischen 1990 und 1999 (in kg N/ha).

Fünf Einflussfaktoren (Tab. 2), welche sich zwischen 1990 und 1999 verändert haben, konnten in MODIFFUS berücksichtigt werden. Nach der Modellrechnung haben veränderte Kulturanteile im Ackerbau, der geringere Einsatz von N-Düngern im Ackerbau sowie der vermehrte Anbau von Zwischenkulturen am meisten zu den tieferen Nitratgehalten im Grundwasser beigetragen. Die Auswirkungen der restlichen Faktoren waren dagegen gering. Insgesamt dürfte über die Hälfte der 12-prozentigen Reduktion der Nitratauswaschung zwischen 1990 und 1999 eine Folge der verschiedenen Ökomassnahmen sein.

Tab. 2: Geschätzte Reduktion der Nitratauswaschung zwischen 1990 und 1999 durch verschiedene Einflussfaktoren (in % der 1990 ausgewaschenen N-Menge).

Einflussfaktor	Beitrag
veränderte Kulturanteile im Ackerbau	4%
geringerer N-Düngereinsatz im Ackerbau	4%
davon bei Extensiogetreide und -raps	1%
vermehrter Anbau von Zwischenkulturen	3%
geringere N-Deposition	1%
Extensivierung im Futterbau	< 1%
Total	12%

➤ Veränderung der Kulturanteile im Ackerbau
Während die Ackerfläche zwischen 1990 und 1999 nahezu konstant blieb, traten bei einzelnen

Kulturen zum Teil grosse Flächenänderungen auf. Bezogen auf den gesamten Kanton verzeichneten das Getreide (-16%) sowie die Kartoffeln (-27%) bedeutende Abnahmen, Zunahmen wurden dagegen vor allem bei den Kunstwiesen (+18%) und den Rüben (+32%) beobachtet. Die Nitratauswaschung wurde durch diese Entwicklung reduziert. Bei der Kartoffelernte wird der Boden intensiv bearbeitet und viel Sauerstoff gelangt in die oberste Bodenschicht. Dies fördert die N-Mineralisierung. Da im Spätherbst die N-Aufnahme durch die Nachkultur häufig gering ist, können hohe N-Verluste entstehen. Dies ist zum Beispiel bei Wintergetreide nicht nur nach Kartoffeln, sondern auch nach dem Umbruch einer Kunstwiese der Fall. Zuckerrüben dagegen nehmen bis spät in den Herbst Stickstoff auf und hinterlassen nach der Ernte geringe N_{min} -Mengen im Boden. Die grössere Kunstwiesenfläche dürfte die bedeutendste Auswirkung auf die Nitratauswaschung gehabt haben. Durch den dauernden Bodenbewuchs wird wenig Nitrat ausgewaschen. Zu grösseren Verlusten kommt es erst nach dem Umbruch der Kunstwiese.

➤ Geringerer N-Düngereinsatz im Ackerbau
Lysimeterversuche zeigen, dass die Nitratauswaschung unter Ackerkulturen mit steigender N-Düngung zunimmt (NIEVERGELT 2002, STAUFER und SPIESS 2005). Durch die Suisse-Bilanz

wird die Höhe der N-Düngung begrenzt. Seit der Einführung der Ökomassnahmen hat deshalb der Einsatz von N-Mineraldüngern (-23% in der Schweiz zwischen 1990 und 1999) und die Hofdüngermenge (-9% im Kanton Bern) weiter abgenommen. In den Voralpen und im Mittelland war der Rückgang im Hofdüngeranfall überdurchschnittlich hoch.

➤ **Vermehrter Anbau von Zwischenkulturen**

Die Fläche mit Zwischenkulturen war 1990 mit 12'636 ha und 1999 mit 12'864 ha fast gleich gross. Da aber die Fläche der im Frühjahr gesäten Kulturen, vor denen Zwischenkulturen normalerweise angebaut werden, abnahm, war dies mit weniger Winterbrache und einer geringeren Nitratauswaschung verbunden. Dies ist vermutlich zu einem grossen Teil auf die Einführung des Bodenschutzindex zurückzuführen.

➤ **Geringere N-Deposition**

Die N-Deposition aus der Luft geht seit 1980 kontinuierlich zurück, weil die Tierbestände und die damit verbundenen Ammoniakverluste abgenommen haben und die Stickoxid-Emissionen aus Verkehr und Industrie reduziert werden konnten. Dadurch verminderte sich der atmosphärische N-Eintrag in den Boden.

➤ **Extensivierung im Futterbau**

Durch die Förderung der Ökologischen Ausgleichsflächen wird auf vielen Wiesen weniger oder kein N-Dünger ausgebracht. Dies dürfte mit einer geringeren Nitratauswaschung verbunden sein, wobei die Reduktion pro Flächeneinheit vermutlich wesentlich geringer ausfällt als bei der Extensivierung im Ackerbau.

4. Schlussfolgerungen

Zusammenfassend lässt sich somit folgendes festhalten:

- Die Nitratgehalte haben im Kanton Bern zwischen den Referenzjahren 1990-92 und dem Jahr 2004 um durchschnittlich 3,2 mg NO₃/l abgenommen. Die Abnahme war mit je 4,4 NO₃/l im Mittelland und in den Voralpen am höchsten. Das Ziel einer Reduktion um 5 mg NO₃/l bis 2005 wurde vermutlich nur in diesen beiden Regionen erreicht, nicht aber im Kanton Bern als Ganzes.
- Im Mittelland und in den Voralpen trug der Rückgang der Getreide- und der Kartoffelfläche, der grösstenteils durch den vermehrten Anbau von Kunstwiesen und Rüben kompensiert wurde, wesentlich zur Verminderung der Nitratauswaschung bei.
- Neben der Veränderung der Kulturanteile haben der geringere N-Düngereinsatz im Ackerbau sowie der vermehrte Anbau von Zwischenkulturen am meisten zur Verringerung der Nitratgehalte im Grundwasser beigetragen.

5. Literatur

- BUWAL (Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft) (1993): Situation der Trinkwasserversorgung. Schriftenreihe Umweltschutz Nr. 212. Bern, 128 S.
- FORNI D., GUJER H.U., NYFFENEGGER L., VOGEL S. und GANTNER U. (1999): Evaluation der Ökomassnahmen und Tierhaltungsprogramme. *Agrarforschung* 6, 107-110.
- Fremd- und Inhaltsstoffverordnung (1995): Verordnung des EDI über Fremd- und Inhaltsstoffe in Lebensmitteln. SR 817.021.23.
- Gewässerschutzverordnung (1998). SR 814.201.
- HERZOG F und RICHNER W. (Hrsg.) (2005): Evaluation der Ökomassnahmen – Bereich Stickstoff und Phosphor. Schriftenreihe der FAL Nr. 57, 132 S.
- LEIFELD J. (2005): Lachgas-Emissionen aus der Schweizer Landwirtschaft. Schriftenreihe der FAL Nr. 57, 66-69.
- MENZI H. (2005): Ammoniak-Emissionen aus der Schweizer Landwirtschaft. Schriftenreihe der FAL Nr. 57, 59-65.
- MENZI H., FRICK R. und KAUFMANN R. (1997): Ammoniak-Emissionen in der Schweiz: Ausmass und technische Beurteilung des Reduktionspotentials. Schriftenreihe der FAL Nr. 26, 107 S.
- Nachhaltigkeitsverordnung (1998): Verordnung über die Beurteilung der Nachhaltigkeit in der Landwirtschaft. SR 919.118.
- NIEVERGELT J. (2002): Nitrat und Fruchtfolgen 20 Jahre lang beobachtet. *Agrarforschung* 9, 28-33.
- PRASUHN V. und MOHNI R. (2003): GIS-gestützte Abschätzung der Phosphor- und Stickstoffeinträge aus diffusen Quellen in die Gewässer des Kantons Bern. Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau (FAL), Zürich-Reckenholz, 223 S. www.reckenholz.ch/doc/de/forsch/umwelt/wasser/wasser.html; 10.01.07.
- SCHMID M., NEFTEL A. und FUHRER J. (2000): Lachgasemissionen aus der Schweizer Landwirtschaft. Schriftenreihe der FAL Nr. 33, 131 S.
- SPIESS E. (2005): Stickstoffbilanz. Schriftenreihe der FAL Nr. 57, 24-29.
- SPIESS E. und PRASUHN V. (2006): Weniger Nitrat im Grundwasser dank Ökomassnahmen. *Agrarforschung* 13, 4-9.
- STAUFFER W. und SPIESS E. (2005): Einfluss unterschiedlicher Nutzung und Düngung auf Sickerwassermenge und Nitratauswaschung. In: Gebietsbilanzen bei unterschiedlicher Landnutzung. Bericht über die 11. Gumpensteiner Lysimetertagung, *Irdning*, 213-215.

Das unerwartete Ansteigen der Nitratwerte in Grundwässern des Leibnitzer Feldes (Steiermark)

Othmar Nestroy

Institut für Angewandte Geowissenschaften, Technische Universität Graz, Rechbauerstraße 12, A 8010 Graz

Zusammenfassung

Im Leibnitzer Feld, einem intensiv landwirtschaftlich genutzten Gebiet südlich von Graz, dominieren leichte und mittelgründige Carbonatfreie Braunerden (Haplic Cambisols) aus fluviatilen Deckschichten über kristallinen Schottern der Mur; die begleitenden Auböden (Umbric Fluvisols) bleiben bei den folgenden Überlegungen ausgeklammert. Vor allem wegen der intensiven Düngung mit Mineraldüngern und Gülle dieser relativ sorptionsschwachen Böden, auf denen vorwiegend Körnermais und Feldgemüse kultiviert werden, stehen die Sicker- wie auch Grundwässer hinsichtlich ihres Nitratgehaltes seit Jahrzehnten unter genauer Beobachtung. Dank umfassender Beratung seitens der Landwirtschaftskammer sowie Aufweitung der Fruchtfolge bei gleichzeitiger Reduzierung der Düngung wiesen fast alle Messungen in Brunnen dieses Gebietes bezüglich der Nitratwerte eine fallende Tendenz auf. Doch seit Beginn des Jahres 2003, mit einem Höhepunkt in den Jahren 2004 und 2005, ist bei rund 15 Brunnen ein Anstieg der Nitratkonzentration festzustellen, die oftmals den Grenzwert von 50 mg/l überschritten hat. Daten, die bei der Mehrzahl der Brunnen den Zeitraum von Jänner 1992 bis Mai 2006 umfassen und anhand von Messwerten am Brunnen in Wagner dargestellt werden, dokumentieren diese Fakten. Es wird versucht, den möglichen Ursachen für diesen unerwarteten Anstieg nachzugehen, wobei eine endgültige Aussage derzeit noch verfrüht wäre.

Abstract: Unexpected increase in nitrate levels in the groundwater of the Leibnitz field (Styria)

The Leibnitz field, an intensely cultivated area south of Graz, is made of a dominance of light soils with a medium depth, consisting of Carbonatfreie Braunerden (Haplic Cambisols) from fluviatile sediments; the accompanying Auböden (Umbric Fluvisols) will be precluded from the following considerations. In view of the intensive use of mineral fertilizers and semi-liquid manure on these soils of relatively low sorption capacity, which maize and field vegetables as main crops, infiltration water and groundwater have been kept under close examination for their nitrate concentration over the past decades.

Thanks to comprehensive advice from the Chamber of Agriculture as well as expansion of the crop rotation along with a reduction in the use of fertilizers, almost all data from wells in this area uses to show a decrease in nitrate values. But since the beginning of 2003, with a peak in 2004 and 2005, nitrate concentrations have increased in about 15 wells, in many cases even exceeding the statutory limit of 50 mg/l. Records covering the period from January 1992 to May 2006, discussed on the basis of the data from the well at Wagner, support these facts.

The author attempt to seek potential causes for this unexpected rise, but it is too early to draw a final conclusion.

Keywords: Leibnitz Field, nitrate in groundwater, Lysimeter station Wagner.

1. Einleitung

Nitrat im Grundwasser und somit im Trinkwasser ist ein für die Bevölkerung äußerst sensibles Thema, das meistens sofort mit der Überdüngung landwirtschaftlicher Flächen, die darüber hinaus noch meist in Form von Monokultur bewirtschaftet werden, in Zusammenhang gebracht wird. Zweifelsohne gibt es in Österreich Regionen, wo der Nitratgehalt des Grundwassers die kritische Marke von 50 mg/l überschritten hat. Zu diesen Regionen zählen die Flächen von Wien, das Marchfeld, Tullner Feld, nördliche Burgenland, Teile des Oberpullendorfer Beckens, das

Machland, die Traun-Enns-Platte, das Zollfeld, Teile des Raab- und Feistritztales sowie die Niederterrasse der Mur unterhalb von Graz.

Diese Niederterrasse (ZÖTL 1968) formt einen großen Teil des Leibnitzer Feldes, das nun in den Mittelpunkt der Betrachtungen gerückt werden soll. Mit einer Fläche von knapp 100 km² erstreckt sich dieses Feld zwischen dem Südrand von Graz und dem Wildoner Berg im Süden sowie den älteren (höheren) Terrassen im Osten wie auch im Westen.

Geomorphologisch besteht es aus den Austufen der Mur, die hier teils als zwei, teils als drei Teilstufen ausgeformt sind, und der Niederterrasse,

die rund 2/3 der oben genannten Fläche einnimmt (FANK 1999). Diese besteht im Liegenden aus kristallinen Schottern wie auch dazwischen liegenden Sanden und Schluffen und schließt im Hangenden mit fluvialen sandigen Deckschichten ab; das gesamte Solum in einer Mächtigkeit von rund 35 cm liegt textuell im Bereich der lehmigen Sande.

Ein für diesen Raum charakteristisches Bundesmusterstück (WIENER ZEITUNG 1997) liegt in der Katastralgemeinde Kalsdorf, Ortsgemeinde Kalsdorf bei Graz, Gerichtsbezirk Graz, in 316 m Seehöhe. Bei einer mittleren Jahresniederschlagsmenge von 830 mm weist dieser Standort eine mittlere Jahrestemperatur von 9,0°C, eine 14-Uhr-Temperatur in der Zeit von April bis August von 20,0°C, eine Vegetationszeit von 243 Tagen sowie eine Wärmesumme von 3.466°C auf. Eingeschätzt wurde dieser Standort als Acker/Grünland in der Klasse (IS/Scho 3 D) mit einer Bodenzahl von 39. Durch Klimazuschläge und Abschläge infolge Nebel- und Frostgefahr liegt die Ackerzahl bei 44 Punkten.

Das Profil dieser Carbonatfreien Braunerde (NESTROY et al. 2000) zeigt folgenden Aufbau:

Ap 0-25/30 cm: lehmiger Sand, schwach kiesig, humos, carbonatfrei, normal gelagert, porös, mittel-krümelig, gut durchwurzelt, gute Regenwurmtätigkeit, allmählich übergehend

AB 25/30-40 cm: lehmiger Sand, kiesig und schottrig, schwach humos, carbonatfrei, normal gelagert, undeutlich blockig-kantengerundet, porös, durchwurzelt, mäßige Regenwurmtätigkeit, übergehend

C 40-80 cm und tiefer: Kies und Schotter in schwach lehmiger Sandpackung, carbonatfrei, locker, porös, Wurzel auslaufend; ab etwa 9 m Tiefe beginnen die neogenen Sedimente.

2. Problemstellung

Infolge der ebenen Lage, günstigen klimatischen Bedingungen und der Nähe zur steirischen Landeshauptstadt mit ihren rd. 250.000 Einwohnern, einer optimalen Verkehrslage (Eisenbahn, Autobahn und weitere gut ausgebaute Straßen) ist dieser Raum nicht nur ein traditionell intensiv genutzter Agrarraum – im Jahre 1990 standen 48% der Katasterfläche unter landwirtschaftlicher Nutzung - mit Anbau von Körnermais bis Feldgemüse, sondern steht – ebenfalls traditionell – im Konfliktfeld des Verbauungsdrucks durch Wohnbauten, industrielle Anlagen und Anlagen des Handels und Transports zu einer landwirtschaftlichen Nutzung.

Bei Feldgemüsebau muss neben einer Konstanterhaltung des Nährstoffanbots auch eine eventuelle Bewässerung einkalkuliert werden, denn die leichten und bestenfalls mittelgründigen

Böden weisen limitierte Sorptionskapazitäten für Wasser und Nährstoffe auf.

Die intensiven Maiskulturen dienen hauptsächlich der Schweinemast, deshalb fallen auch große Mengen von Gülle an, die auf die Maisfelder aufgebracht werden müssen. Die wirtschaftseigenen Dünger wie auch stickstoffhaltige Mineraldünger wurden als Hauptursachen für die Nitratanreicherung Ende der 60er-Jahre in der ungesättigten Zone wie auch letztlich im Grundwasser angesehen.

3. Lösungsansätze und erste Erfolge

Das Problem erhöhter Nitratwerte im Grundwasser wurde schon vor Jahrzehnten erkannt und Maßnahmen, wie Reduzierung der Düngung und der Maisanbauflächen, Aufteilung der Düngemengen auf mehrere Teilgaben unter Berücksichtigung der Jahreszeit und des Zustands der Vegetation sowie der Anbau von Zwischenfrüchten und die Anlage von überwinternden Gründecken, wurden in Zusammenarbeit von Landwirtschaftskammer und Bauern eingeleitet. Der Gesetzesgeber (Stammfassung LGBl. Nr. 86/1990) fixierte als Grenzwert für Nitrat 50 mg/l, der Schwellenwert liegt bei 45 mg/l (HOLZERBAUER und HOLZNER 2005). Zur Erreichung dieser Ziele ist in Österreich das Nitrat-Aktionsprogramm erstellt worden. Dieses legt u. a. fest, dass auf Flächen ohne Gründecke und ohne Stickstoff zehrende Fruchtfolge maximal 175 kg Stickstoff, auf Flächen mit Gründüngung oder Stickstoff zehrender Fruchtfolge maximal 210 kg Stickstoff je Hektar aufgebracht werden dürfen. Aus Wirtschaftsdüngern ist die zulässige Menge mit 170 kg Stickstoff je Hektar begrenzt (HOLZERBAUER und HOLZNER 2005). Neben diesen gesetzlichen Vorschriften sind noch Bodeneigenschaften, wie z.B. die Bodenart und Zustandsstufe nach der Österreichischen Bodenschätzung sowie der Stickstoffbedarf einzelner Kulturen zu berücksichtigen. Weiters bestehen noch Verbotszeiträume für die Ausbringung stickstoffhaltiger Düngemitteln bei Brache, Brache mit Mais-Anbau, winterharter Gründecken sowie Getreide und Raps. Ich darf an dieser Stelle auf die enge und erfolgreiche Zusammenarbeit zwischen der Landeskammer für Land- und Forstwirtschaft Steiermark und den Bauern hinweisen. War es einerseits dank fachlich fundierter Hinweise möglich, durch eine reduzierte bzw. auf mehrere Teilgaben durchgeführte Düngung sowie winterharte Zwischenfrüchte den Nitratanteil im Sickerwasser zu senken, so war es auch die Bereitschaft der betroffenen Bauern, diesen Empfehlungen nachzukommen, obwohl diese mit Ertragseinbußen einhergehen. Der Erfolg ist nicht ausgeblieben. Die Auswertung

der in 3,5 bis 5,5 m Tiefe entnommenen Wasserproben (Abbildung 1) von der in rund 35 km südlich von Graz gelegenen Lysimeterstation Wagna - eine detaillierte Beschreibung dieser Anlage möge FANK (1999) entnommen werden - verdeutlichen diesen zunächst positiven Trend, wie auch die überraschende Zunahme der Nitratkonzentrationen.

4. Unerwarteter Anstieg der Nitratwerte

Diese positive (wie auch beruhigende) Entwicklung erfuhr jedoch zu Beginn des Jahres 2003 eine überraschende Wende: Es kam zu einem gleichermaßen unerwarteten wie auch unerklärlichen starken Anstieg des Nitrats in vielen Brunnen. Als Ursachen dafür kommt nicht nur eine gesteigerte Nitratzufuhr durch Mineraldünger oder Wirtschaftsdünger in Frage, sondern es dürfte sich um ein komplexeres Phänomen handeln.

Seit Beginn des Jahres 2005 kann eine leicht fallende Tendenz der Nitratwerte festgestellt werden; es bleibt abzuwarten, ob und wie sich dieser positive Trend weiter entwickelt.

5. Ursachenforschung und Lösungsansätze

Zunächst wurden die Ursachen in den trockenen Jahren - speziell im das Trockenjahr 2003 - und der damit verbundenen Erhöhung der Konzentration von Nitrat im Sickerwasser vermutet, ferner eine geänderte Wirtschaftsweise in der Form, dass Gülle im Herbst nach der Ernte ausgebracht wurde. Diese Maßnahme ist nach BERNSTEINER (2005) infolge des engen C:N-Verhältnisses nicht erforderlich und wegen der geringen N-Aufnahme von spät angebauten Begrünungen oder Winterkulturen sogar bedenklich.

Wie wir aber jüngsten Arbeiten von FANK et al. (2006) entnehmen können, darf nicht von einem einfachen Rechenmodell ausgegangen werden,

bei dem nur aufgrund des bodenkundlichen Standorts mit einer bestimmten Fruchtfolge, der Infiltrationsrate und der Sickerwasserbewegung auf die Grundwasserneubildung und eventuelle Anreicherung mit Nitrat geschlossen werden kann. Die Jahre 2003 bis 2005 zeigen, wie uns Abbildung 1 verdeutlicht, einen beachtlichen Anstieg. Als Ursache dafür wurde eine mikrobielle Nitrifizierung angenommen, die im Schotterpaket stattfindet und so direkt Nitrat in das Grundwasser gelangen lässt. Neueste Untersuchungen, so FANK et al. (2006), lassen zweifellos erkennen, dass in diesem komplexen System zwar das Düngemanagement einen deutlichen Rückgang der Nitratkonzentration im Sickerwasser bewirkt, dieses aber nur rund ein Zehntel des Grundwasserzustroms unter dem Versuchsfeld Wagna ausmacht. So ist auch durch lokale landwirtschaftliche Maßnahmen nur eine geringfügige Reduzierung der Nitratkonzentration zu erwarten. Nur durch Ausweitung des Schongebietes sowie flankierende Maßnahmen, wie eine generelle Reduzierung der Nährstoffzufuhr im gesamten Einzugsgebiet, könnte es gelingen, diesen Anstieg von Nitrat im Grundwasser unter Kontrolle zu bringen. Witterungsschwankungen dürften nach diesen Untersuchungen kaum Auswirkungen auf die Nitratkonzentration im Grundwasser haben.

Die vom Lysimeter in Wagna gewonnenen Daten sind eine unentbehrliche Hilfe, einen Weg zur Gebietssanierung zu finden, doch wird noch eine Reihe von Untersuchungen erforderlich sein, dieses komplexe Gefüge zu analysieren und umzusetzen, um dann die Erfassung und optimale Bewirtschaftung von Schongebieten einzuleiten. Der Stellenwert von Schutz- und Schongebieten sowie aller Grundwasserschutzmaßnahmen erscheint so in einem neuen Licht. Die Auswertung von vorhandenen Bodenkarten (EISENHUT 1973, NESTROY 1995) in bodenphysikalischer wie auch -chemischer Sicht sind als erster Schritt für diese Neubewertung von Ursachen für den Nitratanstieg im Leibnitzer Feld zu sehen.

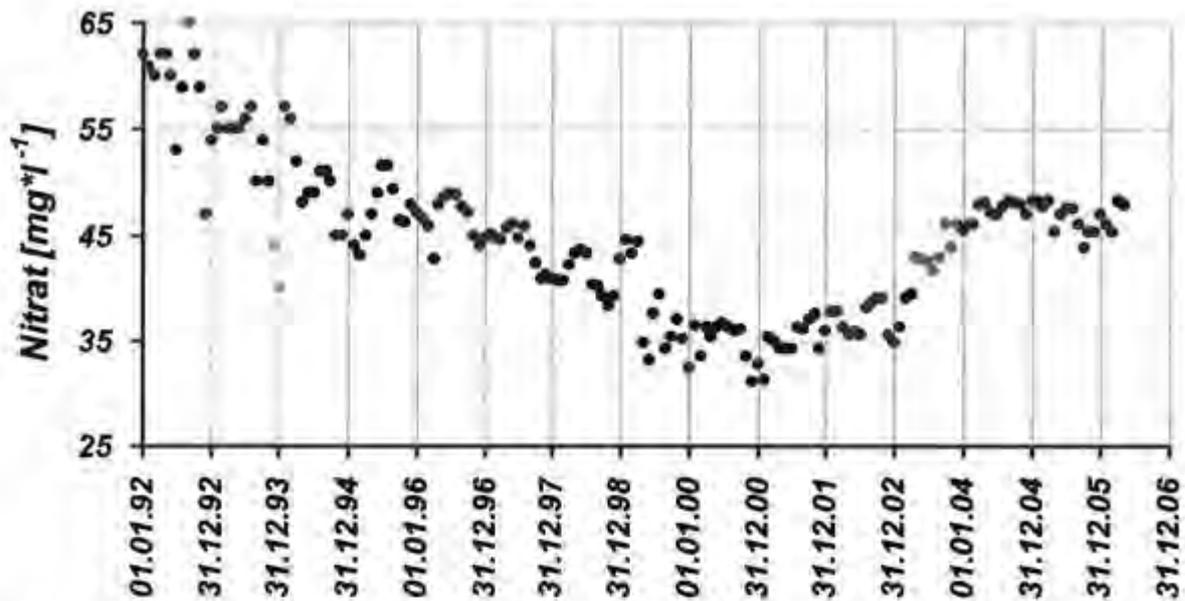


Abb. 1. Veränderungen der Nitratkonzentration im Grundwasser an der Lysimeterstation Wagna in den Jahren von 1992 bis 2006 (FANK et al 2006).

6. Literatur

BERNSTEINER, A., 2005: Nitratwerte müssen runtergehen. Landw. Mitteilungen, 22, Graz, 4. Das Land Steiermark (Hrsg.): Landesgesetzblatt Nr. 86/1990, Stammfassung. Novellen LGBl. Nr. 92/1991, LGBl. Nr. 12/1992, LGBl. Nr. 38/1995, LGBl. 93/1996, LGBl. 93/1998, LGBl. 88/2000, LGBl. 46/2005. Graz.

EISENHUT, M. (1973): Die Böden des nordöstlichen Leibnitzer Feldes. In: Grundwasseruntersuchungen im nordöstlichen Leibnitzer Feld. Ber. d. wasserwirtschaftlichen Rahmenplanung, Bd. 23. Amt d. Steierm. Landesreg., Graz.

FANK, J. (1999): Die Bedeutung der ungesättigten Zone für die Grundwasserneubildung und Nitratbefrachtung des Grundwassers in quartären Lockersediment-Aquiferen am Beispiel des Leibnitzer Feldes (Steiermark, Österreich). Beitr. zur Hydrogeologie, Jahrg. 1998/99, Graz, S. 101-388.

FANK, J., G. FASTL, H. KUPFERSBERGER und G. ROCK (2006): Die Bewirtschaftung des Versuchsfeldes Wagna – Auswirkung auf die Grundwassersituation. Berichte über die Seminare Umweltprogramme für die Landwirtschaft und deren Auswirkungen auf die Grundwasserqualität. HBLFA Raumberg-Gumpenstein, Irtding, S. 43-48.

HOLZERBAUER, A. und H. HOLZNER, 2005: Stickstoffdüngung und Nitrat: Gesetzliche Schranken. Landw. Mitteilungen, 145, 17, 7.

NESTROY, O., 1995: Möglichkeiten und Grenzen einer intensiven Bodennutzung in einem Wasserschongebiet, dargestellt am Leibnitzer Feld

(Steiermark): Mitt. d. Deutschen Bodenkundl. Ges., 76, 895-898.

NESTROY, O. O.H. DANNEBERG, M. ENGLISCH, A.GESSL, H. HAGER, E. HERZBERGER, W. KILIAN, P. NELHIEBEL, E. PECINA, A. PEHAMBERGER, W. SCHNEIDER, J. WAGNER, W.E.H. BLUM, M. EISENHUT, H. FRIEDL, W. FRIEDRIGER, F. HIESBERGER, S. HUBER, H. LÜFTENEGGER, H. RICHTER und L. STEINER, 2000: Systematische Gliederung der Böden Österreichs (Österreichische Bodensystematik 2000). Mitt. d. Österr. Bodenkundl. Ges., 60, 1-98.

WIENER ZEITUNG (1997): Kundmachung der Ergebnisse der Schätzung von Bundesmusterstücken. Nr. 281, S. 13-18, Wien.

ZÖTL, J. (1968): Das Grundwasser im Leibnitzer Feld (Steiermark). Steir. Beiträge zur Hydrogeologie, S. 99-151, Graz.

Tiefenverteilung von Chrom, Nickel, Kupfer, Zink und Blei in Schweizer Waldböden und Implikationen für die Mobilität dieser Schwermetalle

Jörg Luster¹; Stefan Zimmermann¹; Peter Lüscher¹; Lorenz Walther¹; Christoph Zwicky²; Peter Lienemann²; Peter Blaser¹

¹Eidg. Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft, WSL, CH-8903 Birmensdorf

²Eidg. Materialprüfungsanstalt, EMPA, CH-8600 Dübendorf

Zusammenfassung

An 96 Waldstandorten der Schweiz wurden Schwermetallgehalte in verschiedenen Bodentiefen bestimmt. Die Berechnung von An- bzw. Abreicherungen gegenüber Zirkonium diente der Abschätzung der relativen Schwermetallmobilität sowie dem Nachweis atmosphärischer Einträge. Blei-Anreicherungen im Oberboden praktisch aller Böden interpretieren wir als Resultat weiträumiger anthropogener Einträge. Nickel und Kupfer wurden insbesondere in sauren Böden intensiv verlagert. Als Konsequenz werden die entsprechenden Richtwerte der VBBo in Unterböden häufiger überschritten als in Oberböden. Zudem besteht bei Böden, die im untersten Horizont sauer sind, das Risiko einer Auswaschung von Ni und Cu in den Untergrund. Aber auch Blei wurde in sauren Böden aus dem Oberboden deutlich in den Unterboden verlagert. Chrom und Zink wurden weniger stark verlagert, wobei es sich bei Zink nur um eine scheinbare Reduktion der chemisch grossen Zink-Mobilität als Folge des Nährstoffkreislaufes handelt.

Chromium, Nickel, Copper, Zinc, and Lead in Swiss Forest Soils

Heavy metal contents at various soil depths were determined for soils at 96 forest sites in Switzerland. The calculation of enrichment factors relative to Zirconium allowed to estimate relative mobilities of the metals and to detect atmospheric input. Lead was enriched in the topsoil of almost all soils which was interpreted as result of long-range input of anthropogenic origin. Nickel and copper were intensively translocated in acid soils. As a consequence, guide levels of the VBBo were exceeded more often in subsoils than in topsoils. In soils which are acidic in the lowest horizon, there is a risk of Ni or Cu leaching to the underground. In acid soils, also lead was translocated strongly from top to subsoil. Chromium and zinc were translocated to a lesser degree. However, for Zinc this is interpreted as an apparent reduction of the chemically high mobility due to nutrient cycling.

Keywords: heavy metals, forest soils, mobility, guide values

1. Einleitung

Im Zusammenhang mit der Publikation « Waldböden der Schweiz » (WALTHERT et al. 2004; BLASER et al. 2005; Zimmermann et al. 2006) wurden für eine grosse Anzahl von Waldböden die Gehalte an Chrom (Cr), Nickel (Ni), Kupfer (Cu), Zink (Zn) und Blei (Pb) in verschiedenen Tiefen bestimmt. Im Folgenden werden ausgewählte Resultate aus dieser Untersuchung präsentiert und bezüglich ökologischer Risiken interpretiert.

2. Methoden

Insgesamt wurden Bodenprofile an 96 Waldstandorten der Schweiz untersucht (Abb. 1). Eine Übersicht über Geologie, Klima, Relief und Waldgesellschaft an den Profilorten findet sich bei WALTHERT et al. (2004).

Die Profile wurden, wenn möglich, bis zum unverwitterten Ausgangsgestein ausgehoben und nach pedogenetischen Horizonten beprobt.



Abb. 1. Übersicht über die 96 Waldstandorte

Die getrockneten (60° C) und gesiebten (2 mm) Proben wurden bei konstanten Bedingungen (14 - 20 °C; 40 - 50 % Luftfeuchtigkeit) aufbewahrt.

In den Bodenproben wurden einerseits die mit 2 molarer Salpetersäure extrahierbaren Schwermetallgehalte als auch die Totalgehalte an Schwermetallen (Röntgenfluoreszenz an fein gemahlene Pulverproben) bestimmt. Für detaillierte Methodenbeschreibungen sei auf WALTHERT et al. (2004) verwiesen.

Um ein Schwermetall in einem bestimmten Bodenhorizont bezüglich Quelle und Mobilität beurteilen zu können, wurde seine Anreicherung oder Verarmung im Vergleich zum verwitterungsresistenten Spurenelement Zirkonium (Zr) berechnet. Der Anreicherungsfaktor $AF_{M,y}$ für das Schwermetall M im Horizont y berechnet sich wie folgt:

$$AF_{M,y} = (M_{t,y}/Zr_{t,y}) / (M_{t,u}/Zr_{t,u})$$

Wobei $M_{t,y}$ und $Zr_{t,y}$ für die Totalgehalte des Schwermetalls bzw. Zr im Horizont y und $M_{t,u}$ und $Zr_{t,u}$ für die Totalgehalte im untersten Bodenhorizont stehen. Ein $AF < 1$ bedeutet, dass das Schwermetall M gegenüber Zr im betreffenden Horizont abgereichert ist, was durch pedogenetische Prozesse wie Verlagerung gebunden an gelöste organische Substanz verursacht werden kann. Ein $AF > 1$ bedeutet, dass M im Vergleich zu Zr angereichert ist. Eine Anreicherung im Oberboden kann entweder auf atmosphärischen Eintrag zurückgeführt werden oder mit der Rückführung von den Bäumen aufgenommener Nährstoffe mit der Streu erklärt werden. Eine Anreicherung im Unterboden ist in der Regel das Resultat einer Verlagerung im Verlauf der Bodenbildung in einen Horizont mit starker Bindungskraft für das Schwermetall (z.B. Illuvialhorizont in Parabraunerden). Mehr Informationen zur Herleitung und Verwendung von Anreicherungsfaktoren findet der Leser bei BLASER et al. (2000), WALTHERT et al. (2004) und LUSTER et al. (2006).

Die Tiefenverteilungen der totalen und Salpetersäure-extrahierbaren Schwermetallgehalte sowie der Anreicherungsfaktoren für die einzelnen Bodenprofile sind in den drei Bänden « Waldböden der Schweiz » dargestellt und diskutiert (WALTHERT et al. 2004; BLASER et al. 2005; ZIMMERMANN et al. 2006). Ebenso finden sich dort zusammenfassende und interpretierende Darstellungen der Schwermetallbelastungen in einzelnen Regionen.

3. Chrom

In Abb. 2 wird für Gruppen von Böden, die bestimmten Bodentypen zugeordnet werden können, die Streuung der Anreicherungsfaktoren für Cr in Horizontgruppen in Form von Boxplots abgebildet. Diese Darstellung erlaubt es, typische Verlagerungsmuster in verschiedenen Profilen des gleichen Bodentyps unabhängig von den

effektiven Gehalten zu erkennen (LUSTER et al., 2006). Für eine bestimmte Gruppe von Böden wurden nur Profile mit eindeutig ausgeprägten Merkmalen berücksichtigt. Insbesondere wurden jene Profile nicht ausgewählt, in denen Charakteristika mehrerer Bodenbildungsprozesse erkennbar sind (z.B. Tonverlagerung und Podsolierung). Der Vergleich der Verlagerungsmuster in den verschiedenen Bodentypen zeigt, dass Cr nur in jenen Horizonten mobil ist, die sauer sind und in denen ein zusätzlicher mobilisierender Effekt durch Verlagerung mit Ton oder gelösten organischen Substanzen (Auswaschungshorizonte von Parabraunerden, Abb. 2c, bzw. podsollierten Böden, Abb. 2d) oder durch Freisetzung von mit Eisenoxiden assoziiertem Cr bei Wassersättigung (Auswaschungshorizonte von pseudovergleyten Böden, ox_a-Horizonte vergleyter Böden) auftritt. Dabei muss beachtet werden, dass die Tonverlagerung in den Parabraunerden bei den heute stark sauren Verhältnissen nicht mehr stattfindet, also lediglich in einer früheren Phase der Bodenbildung die Mobilität von Cr erhöhte.

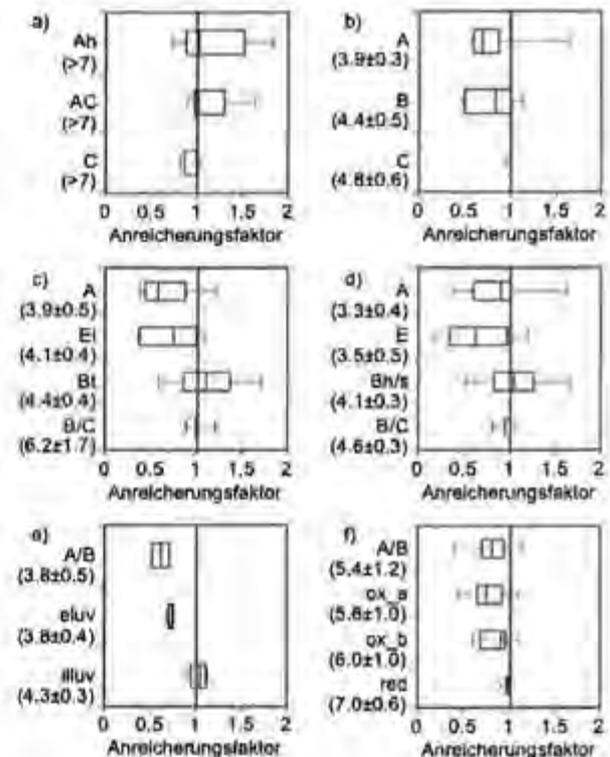


Abb. 2. Anreicherungsfaktoren für Cr in Horizontgruppen von Rohböden (a), sauren Braunerden (b), Parabraunerden (c), podsollierten Böden (d), stark pseudovergleyten Böden (e) und vergleyten Böden (f; ox: Horizonte mit hydromorphen Merkmalen für mehrheitlich oxidierende Bedingungen; red: Horizonte mit Merkmalen für mehrheitlich reduzierende Bedingungen); in Klammern: mittlere pH-Werte mit Standardabw..

Tab. 1. Anzahl Überschreitungen von Richtwerten der VBBö (1998) in Ober- und Unterböden der untersuchten Profile

(Anzahl Profile)	total	Rohböden (18)	Braunerden (16)	Para- braunerden (10)	podsolierte Böden (23)	vernässte Böden (29)
Cr Oberboden	4		2		1	1
Cr Unterboden	11	1	4		4	2
Ni Oberböden	5	2	1			2
Ni Unterböden	16	3	3		4	6
Cu Oberboden	1	1				
Cu Unterboden	8	1	6		1	
Zn Oberboden	0					
Zn Unterboden	0					
Pb Oberboden	10	2	2		4	2
Pb Unterboden	6	2	1		3	

Die Bindung an Ton, Eisen- und Aluminiumoxide oder an feste organische Bodensubstanz führt in tiefer gelegenen Profilmereichen saurer Böden zu einer Immobilisierung und Anreicherung von Cr. Die geringfügige Anreicherung von Cr in den oberen Profilmereichen der karbonathaltigen Rohböden ist möglicherweise ein Hinweis auf eine langfristige Akkumulation diffuser atmosphärischer Einträge. Trotzdem gehen wir davon aus, dass der grösste Teil des Cr in den untersuchten Böden lithogen ist.

Eine Folge der Verlagerungen in sauren Böden ist, dass die Salpetersäure-extrahierbaren Cr-Gehalte die Richtwerte der VBBö (1998) in Unterböden häufiger überschreiten als in Oberböden (Tab. 1).

4. Nickel und Kupfer

Diese beiden Schwermetalle sind bei sauren Verhältnissen viel mobiler als Cr und sind deshalb insbesondere in Auswaschungshorizonten saurer Böden stark abgereichert. Die entsprechenden Verlagerungsmuster können bei LUSTER et al. (2006) nachgesehen werden. Nickel ist bei gleichem pH-Wert viel besser löslich als Cr, weshalb die grosse Mobilität dieses Schwermetalls nicht erstaunt. Bei Cu, welches eine ähnliche pH-abhängige Löslichkeit hat wie Cr, kann dieses Verhalten aber nur mit der besonders starken Bindung an gelöste und kolloidale organische Substanzen erklärt werden, mit denen Cu zusammen verlagert wird. Wie bei Cr tritt in den oberen Profilmereichen der karbonathaltigen Rohböden eine geringfügige Anreicherung von Ni auf, die als Hinweis auf einen kleinen Anteil at-

mosphärischer Einträge an den Gehalten gedeutet werden kann. Kupfer ist auch in diesen Böden wegen der Bildung löslicher Karbonat- und Hydrogenkarbonat-Komplexe relativ mobil, weshalb diffuse atmosphärische Einträge kaum zu einer sichtbaren Anreicherung führen würden. Deshalb kann im Fall von Cu keine Aussage zu Beiträgen solcher Einträge gemacht werden.

Bei Ni ist das Verhältnis von Anzahl Überschreitungen des VBBö-Richtwertes in Unterböden zu Anzahl Überschreitungen in Oberböden mit etwa 3 ähnlich gross ist wie bei Cr (Tab. 1.). Bei Cu ist dieses Verhältnis mit 8 deutlich grösser und reflektiert die besonders grosse Mobilität dieses Schwermetalls.

5. Zink

Das Verhalten von Zink ist durch seine Rolle als wichtiger Nährstoff für die Pflanzen geprägt. Die Bäume nehmen Zink aus dem ganzen Wurzelraum auf und führen es mit dem Streufall in den Oberboden zurück. Wegen des im Vergleich zum Bedarf relativ geringen Vorrats führt dies bei den karbonathaltigen Rohböden zu einer deutlichen Anreicherung in den Ah-Horizonten (LUSTER et al. 2006). In den sauren Böden, in welchen Zink eine ähnlich gute Löslichkeit wie Nickel aufweist, ist die Folge des Nährstoffkreislaufes eine scheinbare Reduktion der Mobilität, so dass die Verlagerungsmuster von Zn eher denjenigen von Cr als denjenigen von Ni entsprechen (LUSTER et al. 2006).

Die Salpetersäure-extrahierbaren Zn-Gehalte überschreiten den Richtwert der VBBö in den untersuchten Böden in keinem Fall (Tab. 1.).

6. Blei

Blei ist in den obersten Horizonten aller Bodentypen deutlich angereichert (LUSTER et al. 2006). Im Einklang mit anderen Untersuchungen (VOGEL et al. 1992; NOWACK et al. 2001) führen wir dies auf die Akkumulation atmosphärischer Einträge aus menschlichen Aktivitäten, insbesondere der Verwendung von Bleizusätzen im Benzin, zurück. Von grosser Bedeutung ist die starke Verlagerung des eingetragenen Pb in den sauren Böden, welche durch Anreicherungsfaktoren grösser 1 bis in die Einwaschungshorizonte der Parabraunerden und podsolierten Böden bzw. in die ox_a-Horizonte der vergleyten Böden angezeigt wird (LUSTER et al. 2006). Da Pb im Vergleich zum Beginn der Bodenbildung erst vor relativ kurzer Zeit eingetragen wurde, deuten diese Verlagerungen an, dass die Mobilität dieses Schwermetalls in sauren Böden grösser ist als allgemein angenommen. Der Grund dürfte wie bei Cu vor allem die grosse Stabilität von Komplexen mit gelösten und kolloidalen organischen Substanzen sein.

Als Folge der Akkumulation atmosphärischer Einträge wird der VBBö-Richtwert für Pb in Oberböden öfter überschritten als in Unterböden (Tab. 1.). Richtwertüberschreitungen im Unterboden sind entweder auf aussergewöhnlich hohe lithogene Gehalte, auf Anreicherung im Rückstand der Karbonatverwitterung oder die starke Verlagerung grosser Einträge zurückzuführen (WALTHERT et al. 2004; BLASER et al. 2005; ZIMMERMANN et al. 2006).

7. Risiko für Trinkwasser

Grundsätzlich besteht bei allen Böden, die im untersten Horizont sauer sind, die Gefahr, dass mobile Schwermetalle vertikal in den Untergrund ausgewaschen werden. In vernässten Böden besteht zudem bei allen sauren Horizonten, die temporär wassergesättigt sind, das Risiko einer lateralen Auswaschung. Mit einer solchen Auswaschung ist aber nicht automatisch eine Gefährdung von Grundwasser oder Oberflächengewässern verbunden. Für eine Beurteilung des entsprechenden Risikos müssen auch die Mineralogie des Untergrundes (Grundwasser) bzw. die Eigenschaften des Bodens in dem zwischen Profil und Oberflächengewässer liegenden Bereich berücksichtigt werden. So gehen wir insbesondere davon aus, dass im Mittelland und Jura der Untergrund praktisch überall Karbonat enthält, weshalb aus einem Bodenprofil vertikal ausgewaschene Schwermetalle dort abgefangen werden, bevor sie das Grundwasser erreichen. Andererseits kann das Risiko einer Grundwasserbelastung auf der Alpensüdseite mit meist saurem Untergrund nicht ausgeschlossen werden.

8. Literaturverzeichnis

BLASER, P., S. ZIMMERMANN, J. LUSTER und W. SHOTYK, 2000 : Critical examination of trace element enrichments and depletions in soils : As, Cr, Cu, Ni, Pb, and Zn in Swiss forest soils. *The Science of the Total Environment* 249, 257-280.

BLASER, P., S. ZIMMERMANN, J. LUSTER, L. WALTHERT und P. LÜSCHER (2005). *Waldböden der Schweiz Band 2. Regionen Alpen und Alpensüdseite*. Eidg. Forschungsanstalt WSL, Birmensdorf. Hep Verlag, Bern, 768 S.

LUSTER, J., S. ZIMMERMANN, C. ZWICKY, P. LIENEMANN und P. BLASER (2006) : Heavy metals in Swiss forest soils: modification of lithogenic and anthropogenic contents by pedogenetic processes and implications for ecological risk assessment. In: FROSSARD, E., W.E.H. BLUM und B. WARKENTIN (Hrsg.): *Function of soils for human societies and the environment*. Geological Society, London, Special Publications 266, 63-78.

NOWACK, B., J.-M. Obrecht, M. Schluemp, R. Schulin, W. Hansmann und V. Köppel, 2001. Elevated lead and zinc contents in remote alpine soils of the Swiss national park. *Journal of Environmental Quality* 30, 919-926.

VOGEL, H., A. DESAULES und H. HÄNI, 1992. Heavy metal contents in the soils of Switzerland. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry* 46, 3-11.

WALTHERT, L., S. ZIMMERMANN, P. BLASER, J. LUSTER und P. LÜSCHER (2004). *Waldböden der Schweiz Band 1. Grundlagen und Region Jura*. Eidg. Forschungsanstalt WSL, Birmensdorf. Hep Verlag, Bern, 920 S.

ZIMMERMANN, S., J. LUSTER, P. BLASER, L. WALTHERT und P. LÜSCHER (2006). *Waldböden der Schweiz Band 3. Regionen Mittelland und Voralpen*. Eidg. Forschungsanstalt WSL, Birmensdorf. Hep Verlag, Bern, 847 S.

Distribution du cuivre utilisé en viticulture dans le sol et les sous-produits de la vinification: Bilan sur une exploitation

Anthony Peccoux et Nathalie Dakhel
École d'ingénieurs de Changins, CH-1260 Nyon

Résumé

Le cuivre est utilisé comme fongicide depuis plus d'un siècle en viticulture. Cependant, il est de plus en plus sujet à polémiques, car il s'accumule dans les sols et peut contaminer les eaux. Peu de données ont été publiées sur l'exportation de cuivre par la vendange ou par les effluents de caves.

Ce travail s'est donc attaché à réaliser un bilan de la dynamique du cuivre au niveau d'une exploitation viticole, au niveau du sol et des exportations par la récolte. Nous nous sommes intéressés aux teneurs de cuivre dans le sol et aux exportations par la récolte. Ces essais ont été effectués sur des parcelles en faible pente, plantées en 1958 en Pinot noir (cépage rouge), et conduites en production intégrée.

Des zones homogènes ont été définies dans les parcelles en fonction des caractéristiques géomorphologiques et pédologiques, afin de déterminer la répartition spatiale et le stock de cuivre.

Pour la récolte, les teneurs en cuivre ont été mesurées dans les sous-produits de la vendange (rafles, marcs et vins), et dans les effluents de vinification (lies) pendant 2 ans.

Abstract: Dynamic of copper used in viticulture. Case study in a wine-growing farm

Since the end of the 19th century, copper has been used to control vine downy mildew. However, copper usage is controversial because it accumulates in soils and can contaminate water. Currently, little information is mentioned in literature about copper exportations by cellar effluents.

The aim of this work is to realise a copper dynamic balance on a wine-farm. Copper content was measured in soil (according to Osol, 1998) and crop exportations. These investigations were realised in low slope plots, planted with a red grape variety (*Pinot noir*), cultivated since 1958.

Homogeneous zones were defined in the field, according to geomorphologic and pedologic characteristics, in order to determine copper spatial distribution and stock.

Copper content was also measured in harvest products (stalk, pomace and wines) and winemaking effluents (lees) for two years.

Keywords: copper, vine growing, soil, balance

1. Introduction

La vigne est une plante sensible à de nombreuses maladies cryptogamiques. Au cours du 19^{ème} siècle, le mildiou (*Plasmopara viticola*), déjà connu aux États-Unis, a envahi presque la totalité des régions viticoles mondiales (GALET, 1977). Il fut observé pour la première fois en Suisse en 1886 (QUINCHE, 1985). Dès la fin 1885, l'action du sulfate de cuivre contre le mildiou était démontrée empiriquement, et les traitements par pulvérisation foliaire se sont généralisés dans l'ensemble des régions viticoles (GALET, 1977).

Depuis plus d'un siècle, l'utilisation répétée de produits cupriques contribue à la contamination des sols (CAMBIER et MENCH, 1988). Les sols viticoles représentent la plus grande surface concernée par cette pollution : environ 7 876 000 hectares dans le monde, dont 15 000 hectares en Suisse, avec des teneurs en cuivre allant de 100 à parfois plus de 1500 mg/kg de sol (QUINCHE,

1985 ; LOUÉ, 1993 ; FLORES-VÉLEZ, 1996). L'importance des pollutions dans les vignobles, entraînant un risque de phytotoxicité à long terme, a conduit les autorités suisses et européennes à limiter l'usage du cuivre. Cette limitation est justifiée, surtout en Suisse, où la valeur indicative de l'ordonnance sur les atteintes portées aux sols (Osol, 1998) est très souvent dépassée dans les vignobles (QUINCHE, 1985 ; CÉLARDIN et CHATENOUX, 1990).

La littérature sur le cuivre dans les sols et ses influences agronomiques est très riche. Cependant, il existe peu de données sur les exportations par les récoltes. Dans ce contexte, l'objectif général de ce travail était de réaliser un bilan de la dynamique du cuivre sur une exploitation viticole. Il s'agissait d'analyser la répartition du cuivre dans le sol, de déterminer les quantités de cuivre exportées par la vendange, et enfin, de suivre son devenir au cours de la vinification.

2. Matériels et méthodes

2.1. Site d'étude

Ce travail a été réalisé dans le canton de Genève, sur la commune viticole de Peissy.

L'étude a été réalisée sur deux parcelles, BPn1 et BPn2, d'une superficie de 3612 et 2587 m², plantées en Pinot Noir greffé sur 5BB. Les deux parcelles, distantes d'une quinzaine de mètres, sont séparées par un terrain appartenant à un autre viticulteur. Plusieurs facteurs ont déterminé le choix des parcelles :

- la possibilité de réaliser un suivi du cuivre dans le sol et dans la vendange ; la récolte des deux parcelles étant vinifiée dans une seule cuve,
- la situation géomorphologique relativement plane, avec des pentes comprises entre 2 et 6%,
- l'âge de replantation de la vigne (1958), qui permet d'estimer l'accumulation de cuivre due aux fongicides pendant pratiquement 50 ans.

D'après la carte géologique, les deux parcelles sont localisées sur un faciès morainique nommé « Moraines de Laconnex » (DONZEAU et al, 1997). En réalité, les sondages et les profils de sols ont révélé que la couverture morainique était relativement peu épaisse, puisque, mis à part dans le bas des parcelles, la molasse d'eau douce inférieure, peu altérée, a été observée entre 50 et 70 cm de profondeur.

2.2. Échantillonnage du sol et des sous-produits de la vendange

2.2.1 Échantillonnage du sol

Des prélèvements ont été effectués à la surface et dans les sols.

A la surface des sols, les sarments en décomposition ont été prélevés, à l'aide d'un gabarit de 1 m², à raison d'un échantillon par rang, selon une répartition systématique, en alternant la placette de prélèvement (haut, milieu et bas de parcelle).

L'échantillonnage des sols a été réalisé selon une répartition aléatoire (OFEFP, 2003), à raison de 50 à 60 carottages par parcelles. Les échantillons ont été prélevés à différentes profondeurs : 0-5 cm, 5-10 cm, 10-20 cm, 20-30 cm, 30-50 cm, 50-70 cm et si possible, 70-90 cm. Les échantillons de surface (0 à 10 cm) ont été prélevés à l'aide d'une spatule sur une surface de 10 x 30 cm. Les échantillons plus profonds ont été prélevés à l'aide d'une tarière Edelman. Tous les prélèvements ont été décrits visuellement (couleur, test HCl, teneur en matière organique, taches d'oxydoréduction), et stockés

individuellement dans des sacs en plastique neufs. Les sondages ont permis de définir des zones de sol homogène dans les parcelles, et de regrouper, pour chaque profondeur, les échantillons simples pour former un échantillon composé représentatif de la zone.

Dans chaque zone homogène, des fosses pédologiques ont ensuite été creusées, afin de décrire de manière détaillée le type de sol et son fonctionnement. Les analyses classiques ont été réalisées dans les profils (granulométrie, pH, calcaire, matière organique), et la densité apparente de chaque horizon a été déterminée par la méthode des cylindres.

2.2.2 Échantillonnage des sous-produits de la vendange

Les sous-produits de la vendange, composés à la fois d'échantillons solides (rafles et marcs de pressurage) et liquides (moûts, vins et lies), ont été échantillonnés au cours de deux années consécutives.

Les échantillons solides ont été prélevés de manière fractionnée à différents moments du processus de traitement, afin d'obtenir un échantillon représentatif. Les échantillons liquides ont été prélevés après brassage, lorsque le contenu de la cuve était homogène.

Mis à part les vins et les moûts, qui ont été analysés directement, tous les autres échantillons ont été stockés à -20°C jusqu'au moment de leur analyse.

2.3. Méthodes analytiques

Les analyses de cuivre ont été réalisées par spectrométrie d'absorption atomique à flamme. (Perkin-Elmer n° 3110), à raison de 3 répétitions par échantillon.

Pour les sols, l'extraction du cuivre a été effectuée à l'aide de HNO₃ 2M, selon la méthode décrite par l'Osol (1998).

En ce qui concerne les sous produits de la vendange, les protocoles d'extraction du cuivre différaient selon le type d'échantillon : solides (sarments, rafles, marcs de pressurage), liquides peu visqueux (moûts, vins) et liquides visqueux (lies).

Les échantillons liquides peu visqueux ont été analysés directement par absorption atomique, en utilisant des standards internes pour la calibration de l'appareil, afin de minimiser les effets de matrice dus à la présence d'alcool ou de sucres.

Les échantillons liquides visqueux ont subi une hydrolyse acide (HNO_3 65% ; 1/1) à chaud (bain-marie bouillant) durant 2 h. Après refroidissement et dilution appropriée, les extraits ont été filtrés, et leur teneur en cuivre déterminée. Le rendement d'extraction a été déterminé pour chaque type d'échantillon par ajout d'une quantité connue de cuivre.

Enfin, pour les échantillons solides (sarments, rafles et marcs de pressurage), la méthode de référence pour le contrôle des composts (FAC, 1995) a été utilisée. Elle consiste en une minéralisation par voie sèche à 500°C ($\pm 25^\circ\text{C}$), suivie d'une mise en solution par HCl 37%.

3. Résultats et discussion

3.1. Distribution et stock de cuivre dans les sarments des deux parcelles

Les sarments à la surface des deux parcelles présentent des concentrations en cuivre similaires (figure 1), ce qui était relativement prévisible, vu que les traitements phytosanitaires ont été strictement identiques sur les deux parcelles. Ces concentrations, relativement élevées, dépassent les valeurs limites fixées pour les composts dans l'ordonnance sur les substances dangereuses pour l'environnement (Osubst, 1986).

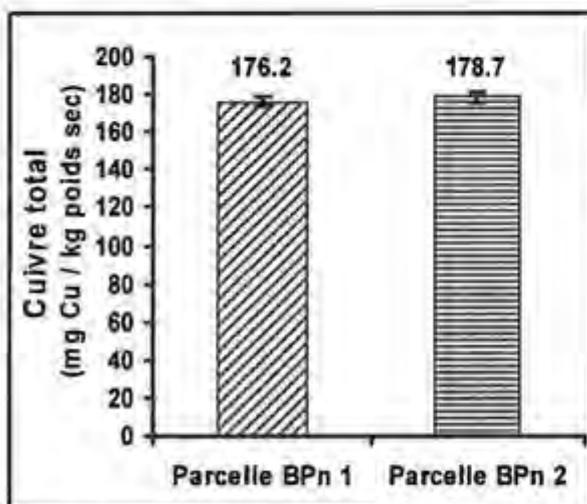


Figure 1 : Concentration en cuivre total (mg Cu/kg poids sec) dans les sarments des parcelles BPn 1 et 2.

Les sarments sont directement exposés aux pulvérisations cupriques durant la période de végétation, sont taillés puis broyés en hiver avant de se retrouver au niveau du sol. Le cuivre est généralement fortement retenu à la surface de ces matières organiques peu décomposées, par le biais de liaisons physico-chimiques, et/ou par

absorption par les microorganismes qui y sont associés (BESNARD, 1999).

En terme de stock sur l'ensemble de la surface, la parcelle BPn1 présente des quantités de cuivre plus faibles que la parcelle BPn2, respectivement 313 et 491 g/ha. Ceci est lié à une masse de sarments au sol globalement plus faible sur BPn1 que sur BPn2. Cette différence peut être imputée à des exportations différentes de sarments par le ruissellement et l'érosion. Le sol est dans les deux cas entièrement désherbé, ce qui se traduit par une structure superficielle battue, probablement associée à une légère érosion diffusée. Cependant, la première parcelle présente une pente plus forte que la seconde, ce qui explique une exportation plus élevée de sarments par le ruissellement.

3.2. Distribution et stock de cuivre dans les sols des deux parcelles

Sur les deux parcelles, la description des sondages a permis de définir des zones de sol homogène. Leurs surfaces ont été estimées à l'aide d'un système d'information géographique (Manifold system[®]). Dans chacune de ces zones, des profils de sol ont été réalisés et décrits selon le référentiel pédologique français (AFES, 1995).

Pour BPn1, trois zones ont été définies :

- haut de parcelle (498 m^2), où le sol est entièrement décarbonaté,
- milieu de parcelle (2339 m^2), où le sol est carbonaté sur toute la profondeur,
- bas de parcelle (775 m^2), où le sol, faiblement carbonaté, présente des signes d'hydromorphie dès 40 cm de profondeur.

Pour BPn2, quatre zones ont été définies :

- haut de parcelle (157 m^2), où le sol est partiellement décarbonaté en surface mais fortement calcaire en profondeur,
- haut de parcelle (179 m^2), où le sol est entièrement décarbonaté,
- milieu de parcelle (1810 m^2), où le sol est calcaire sur toute la profondeur,
- bas de parcelle (441 m^2), où le sol, entièrement décarbonaté, présente des signes d'hydromorphie dès 40 cm de profondeur.

Les sols majoritaires de ces deux parcelles sont des CALCOSOLS plus ou moins carbonatés, et en bas de pente des REDOXISOLS réductiques colluvionnés.

3.2.1 Distribution du cuivre dans les sols des deux parcelles

La figure 2 présente les concentrations en cuivre (extractible à HNO_3 2 M) dans chaque zone

homogène des parcelles BPn1 et BPn2, déterminées sur les échantillons composés réalisés par regroupement des carottes de sol obtenues lors des sondages.

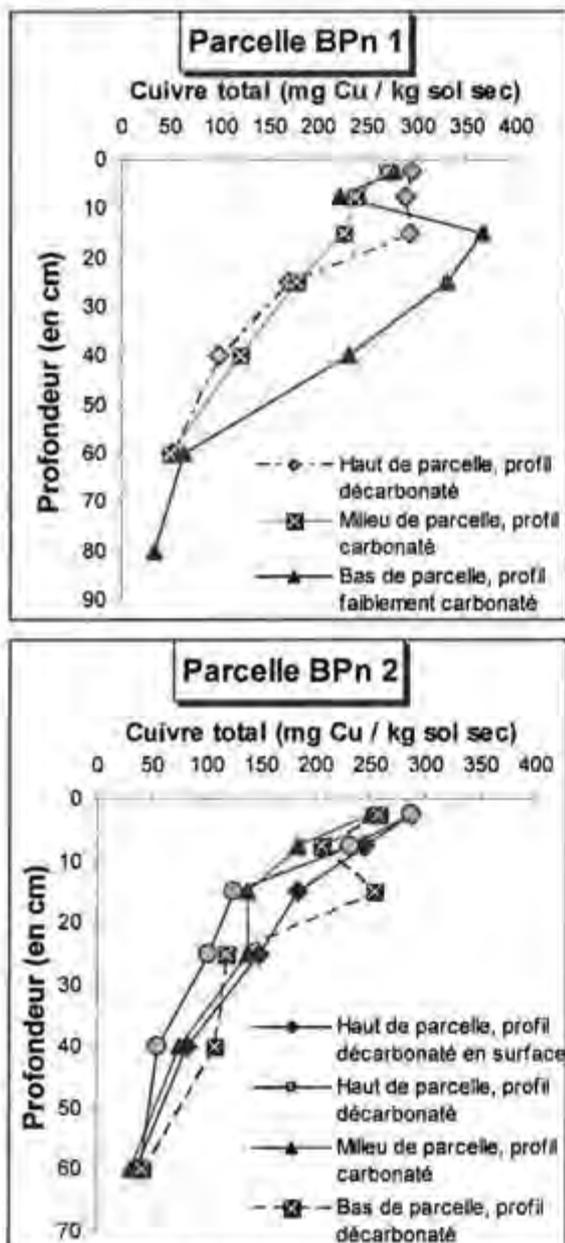


Figure 2 : Distribution verticale du cuivre dans les zones homogènes des parcelles BPn 1 et 2. Les écarts-types ne sont pas représentés car ils sont plus petits que les symboles des courbes.

Dans les deux parcelles, quelle que soit la zone concernée, les teneurs en cuivre sont élevées jusqu'à 50 cm de profondeur, et dépassent la valeur du seuil d'investigation (Osol, 1998). La présence de cuivre en profondeur est certainement due à un défoncement de la parcelle avec une charrue vigneronne, après le dernier arrachage des vignes. D'autres auteurs (QUINCHE, 1985 ; BRUN, 1998) soulignent que cette pratique culturale est à l'origine d'une redistribution en profondeur des métaux.

La répartition du cuivre est différente entre le haut, le milieu et le bas des parcelles, surtout jusqu'à 30 cm. Par ailleurs, dans le bas des parcelles, les concentrations de cuivre présentent systématiquement une distribution en escalier (0-20 cm). La description des fosses pédologiques a révélé que les sols de bas de pente étaient fortement colluvionnés et présentaient des signes d'hydromorphie. Par ailleurs, à l'analyse, les teneurs en matières organiques se sont révélées relativement élevées en profondeur (1% à 50 cm). Les concentrations élevées de cuivre en profondeur proviennent donc probablement d'une redistribution horizontale de cet élément par le biais des apports de colluvions au fil des années. Ce genre de distribution a déjà été observé dans les sols de bas de pente, à cause des apports de colluvions, et/ou des phénomènes d'hydromorphie (FLORES-VÉLEZ, 1996). La teneur en cuivre du bas de la parcelle BPn2 (pente de 2%) est moins élevée que la parcelle BPn1 (pente de 6%), certainement à cause d'un colluvionnement plus faible.

3.2.2 Stock de cuivre des deux parcelles

Les stocks de cuivre dans les sols ont été calculés sur une profondeur de 50 cm à partir des concentrations de cuivre extrait à HNO₃ 2M, de la densité et de l'épaisseur des différents horizons. Sur l'ensemble de la surface, le stock est estimé à 1659 kg/ha pour la parcelle BPn1 ; et 1215 kg/ha pour la parcelle BPn2.

Les stocks de cuivre sont élevés, avec une nette différence entre les deux parcelles. Puisque ces parcelles ont reçu approximativement les mêmes quantités de cuivre depuis 1958, il est probable que la différence de stock est due aux influences anthropiques précédant cette période, et/ou aux exportations différentes par les eaux de ruissellement.

Sachant que la pente de BPn 2 est en moyenne plus faible que BPn 1, l'exportation par érosion et ruissellement a sans doute été moins importante. Le stock plus faible de BPn 2 ne peut donc pas être expliqué par l'érosion. Cela amène à conclure que de plus grosses quantités de cuivre ont été apportées sur BPn 1, soit sous forme de fertilisant (composts, boues...), et/ou soit par les traitements cupriques, et/ou simplement par une mise en culture plus précoce au début des années 1900.

Cependant, dans les deux parcelles, l'effet de l'érosion des sols s'observe en bas de pente, puisque dans ces zones les stocks de cuivre sont nettement plus élevés que dans autres zones et représentent 2359 kg/ha pour BPn1 et 1483 kg/ha pour BPn2.

3.3. Distribution et exportation de cuivre par les vendanges 2004 et 2005

3.3.1 Apports de cuivre par les traitements

Les apports de cuivre pendant la période de végétation influencent directement les concentrations retrouvées dans les différentes fractions de la vendange.

Tous les traitements cupriques ont été effectués à l'aide d'un pulvérisateur pneumatique équipé d'un canon à oscillations hydrauliques Berthoud[®], porté sur un enjambeur. Chaque appareil a été réglé selon la méthode Caliset (Viret et Siegfried, 2005), afin de connaître le volume réel de bouillie apporté à l'hectare. La quantité de cuivre (en kg/ha) apportée sur chaque parcelle a ainsi été estimée avec une bonne fiabilité. Les apports de cuivre métal ont été estimés à 1,32 kg/ha en 2004, et 1,64 kg/ha en 2005. Ces valeurs serviront de base pour les calculs d'exportation par la vendange.

3.3.2 Distribution et exportation du cuivre par les vendanges 2004 et 2005

La distribution du cuivre dans la vendange est sous la dépendance de nombreux paramètres, à la fois viticoles (pluviométrie, apports par les traitements, type de pulvérisateur, rendement de la récolte) et œnologiques (mode de récolte, temps de macération, température de fermentation, souche de levure) (HSIA et al, 1975 ; FOURNIER et al, 1998 ; BRANDOLINI et al, 2002 ; MOLOT, 2003 ; VIRET et al. 2003).

Dans cette expérimentation, les paramètres œnologiques ont été tous identiques d'une année à l'autre, et seuls les paramètres viticoles (pluviométrie, rendement et apports) ont varié.

La figure 3 présente la distribution du cuivre dans les sous-produits de la vendange 2004 et 2005. Ces résultats montrent que le cuivre est essentiellement localisé dans les marcs et les lies. Sachant que durant la fermentation alcoolique, la majeure partie du cuivre (généralement plus de 80 %) précipite en s'adsorbant sur les parois cellulaires des levures (RIBÉREAU-GAYON et al, 1998 ; VALAT et ALEXANDRE, 2005), il est normal que ces fractions œnologiques soient les plus riches. Les rafles et le vin représentent une très faible proportion du cuivre exporté par la vendange. Les analyses de cuivre dans les vins finis sont très nombreuses et montrent que les concentrations sont généralement faibles, comprises entre 0,1 et 0,5 mg/L (VALAT et ALEXANDRE, 2005). En ce qui concerne les rafles, il faut préciser que, dans cette étude, les vendanges ont été effectuées

mécaniquement. Ceci contribue à laisser la majorité des rafles sur les souches. Le stock de cuivre contenu dans les rafles est donc sous-estimé.

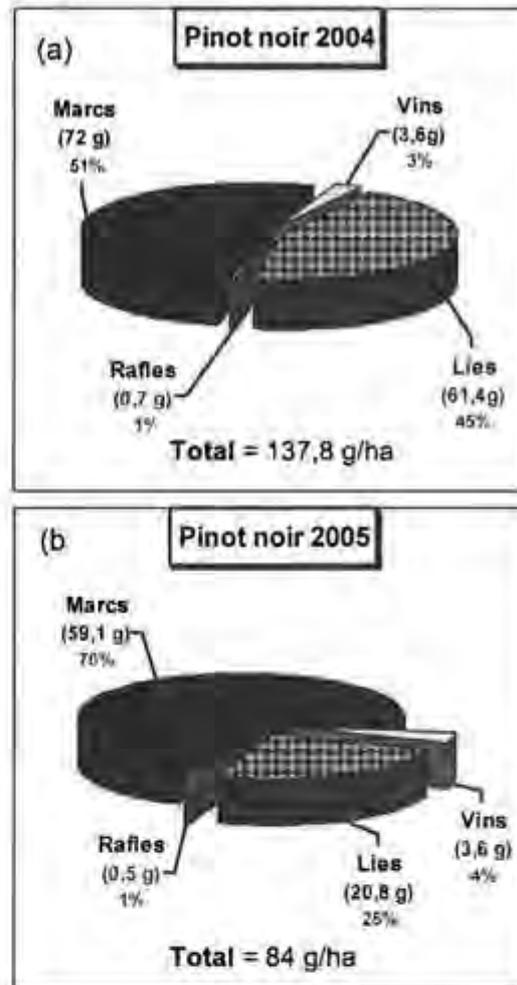


Figure 3 : Distribution du cuivre (g/ha) dans les sous-produits de la vendange (a) 2004 et (b) 2005

La comparaison des deux millésimes, montre une distribution variable entre les marcs et les lies. Elle est influencée, d'une part, par des poids et des volumes de récolte différents, liés au facteur millésime (rendement de récolte). D'autre part, une pluviométrie plus ou moins importante modifie le lessivage des produits de traitements sur le végétal.

La vendange 2004 a prélevé 137,8 g de cuivre par hectare et les traitements ont apporté 1,32 kg/ha. La vendange n'a donc exporté que 10,4 % du cuivre. En 2005, les prélèvements par la vendange ont été de 84 g/ha tandis que les traitements ont apporté 1,64 kg/ha. Au final, l'exportation de cuivre par la récolte n'a été que de 5,1 %. Cette exportation plus faible en 2005, malgré des apports plus importants, est essentiellement due aux conditions climatiques différentes. En effet, en 2005, la pluviométrie plus

importante après les traitements a contribué à lessiver une plus grande quantité de cuivre sur le sol.

4. Conclusion

La vendange n'exporte qu'une infime partie du cuivre apporté à la vigne, la majeure partie finissant au sol. Ceci explique la pollution généralisée des sols viticoles par ce métal lourd.

Afin de limiter la contamination des sols et dans une moindre mesure des sous-produits de la vendange, il serait nécessaire de raisonner l'utilisation du cuivre en fonction de la pression parasitaire. Dans les vignes où l'usage des produits phytosanitaires organiques est autorisé (production intégrée), une alternance des divers fongicides permettrait de diminuer les doses de cuivre apportées à l'hectare. La situation est plus délicate pour les vignes menées en culture biologique puisque les pesticides de synthèse sont prohibés. Dans tous les cas, certaines techniques de pulvérisation (panneaux récupérateurs) permettent de limiter les pertes de produit au moment du traitement, ce qui permet au final de diminuer les quantités apportées.

Enfin, la lutte contre l'érosion est une nécessité à elle seule pour maintenir la fertilité des sols à long terme. Cependant, comme l'a montré BESNARD (1999), le fait de limiter l'érosion des parcelles viticoles diminue les risques de dissémination du cuivre dans l'environnement, mais augmente l'accumulation du métal dans les sols.

Bibliographie

AFES, 1995. Référentiel pédologique. INRA éditions, Paris, 332 p.

BESNARD E., 1999. Influence d'amendements organiques sur la rétention du cuivre dans les sols du vignoble de Champagne : conséquences environnementales. *Thèse de doctorat*, Université de Reims Champagne-Ardenne, 102 p.

BRANDOLINI V., TEDESCHI P., CAPECE A., MAIETTI A., MAZZOTTA D., SALZANO G., PAPARELLA A., ROMANO P., 2002. *Saccharomyces cerevisiae* wine strains differing in copper resistance exhibit different capability to reduce copper content in wine. *World Journal of Microbiology and Biotechnology*, **18** (6), 499-503.

BRUN L.A., MAILLET J., RICHARTE J., HERMANN P., REMY J.C., 1998. Relationships between extractable copper, soil properties and copper uptake by wild plants in vineyard soils. *Environmental Pollution*, **102** (2-3), 151-161.

CAMBIER P., MENCH M., 1998. Contamination des sols par les métaux lourds et autres éléments traces. Le sol : interface fragile. INRA édition, collection « Mieux comprendre », 161-172.

CÉLARDIN F., CHATENOUX L., 1990. Répartition en profondeur des métaux lourds dans les sols genevois.

Archives des Sciences, Genève, **43** (2), 265-272.

DONZEAU M., WERNLI R., CHAROLLAIS J., MONJUVENT G., 1997. Carte géologique spéciale de la Suisse n°124 Saint-Julien-en-Genevois à 1/50000. Département de l'intérieur : Service hydrologique et géologique national (Berne, Suisse) et Bureau de recherches géologiques et minières (Orléans, France). Éditions du BRGM, 144 p.

FAC, 1995. Travaux dans le laboratoire pour le contrôle du compost. Station fédérale de recherches en chimie agricole et sur l'hygiène de l'environnement, Liebefeld-Berne.

FLORES-VÉLEZ L.M., 1996. Essais de spéciation des métaux dans les sols : cas du Cu dans les vignobles. *Thèse de doctorat*, Université Paris XII, Val-de-Marne, 132 p.

FOURNIER J.B, EL HOURCH M., MARTIN G.J., 1998. Analyse du zinc, du cuivre et du plomb dans le vin. Rapport entre les concentrations totales analysées par spectrométrie d'absorption atomique et les concentrations des ions libres déterminées par polarographie. *Journal International des Sciences de la Vigne et du Vin*, **32** (1), 45-50.

GALET P., 1977. Les maladies et les parasites de la vigne. Tome 1 : Les maladies dues à des végétaux. Le Paysan du midi, Montpellier. 872 p.

HSIA C. L., PLANCK R. W., NAGEL C. W., 1975. Influence of must processing on iron and copper contents of experimental wines. *American Journal of Enology and Viticulture*, **26** (2), 57-61.

LOUÉ A., 1993. Oligo-éléments en agriculture, 2^{ème} édition. SCPA-Nathan, 577 p.

MOLOT B., 2003. Étude du renouvellement d'une protection cuprique selon pluviométrie, dose et croissance dans le cadre de la lutte contre le mildiou de la vigne. Recherche de produits de remplacement. *Progress Agricole et Viticole*, **120** (19), 410-414.

OFEFP, 2003. Manuel de prélèvement sol (Osol). Prélèvement et préparation d'échantillons de sols pour l'analyse de substances polluantes. Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage, Berne. 104 p.

OSOL, 1998. Ordonnance sur les atteintes portées aux sols du 1^{er} juillet 1998. RS 814.12, Conseil fédéral suisse.

OSUBST, 1986. Ordonnance sur les substances dangereuses pour l'environnement. RS 814.013. Conseil fédéral suisse.

QUINCHE J.P, 1985. Teneurs en cuivre, zinc, plomb, cadmium et mercure des sols de quelques vignes de la Suisse romande et du Tessin. *Revue suisse de Viticulture, Arboriculture, Horticulture*, **17** (6), 341-344.

RIBÉREAU-GAYON P., GLORIES Y., MAUJEAN A., DUBOURDIEU D., 1998. *Traité d'œnologie*. Tome 2 : Chimie du vin. Stabilisation et traitements. Dunod édition, Paris, 519 p.

VALAT W., ALEXANDRE H., 2005. Le cuivre en viticulture et en œnologie : état des lieux, partie 1/4. *Revue des œnologues*, **117**, 15-18.

VIRET O., SIEGFRIED W., HOLLIGER E., RAISIGL U., 2003. Comparison of spray deposits and efficacy against powdery mildew of aerial and ground-based spraying equipment in viticulture. *Crop Protection*, **22**, 1023-1032.

VIRET O., SIEGFRIED W., 2005. Réglage du pulvérisateur, la méthode Caliset. *Revue suisse de Viticulture, Arboriculture, Horticulture*, **37** (1), 18-19.

The geochemical behaviour of antimony in natural waters and soils

Ann-Kathrin Leuz and C. Annette Johnson

Swiss Federal Institute of Aquatic Science and Technology (Eawag), 8600 Dübendorf, Switzerland and
Institute of Biogeochemistry and Pollutant Dynamics, ETH Zurich, 8092 Zürich, Switzerland

Zusammenfassung

Die Verwendung von Antimon (Sb) in industriellen Produkten nahm über das letzte Jahrhundert zu. Es wird vor allem in Flammschutzmitteln für Plastik, Bremsbelägen und in Bleilegerungen für Autobatterien und Munition verwendet. In der Umwelt kommen vor allem 2 Oxidationszustände vor: Sb(III) und Sb(V). Die Löslichkeit von Sb(III) in der Umwelt wird wahrscheinlich durch die Ausfällung von schwerlöslichem Oxid und der Sorption an Eisenoxide über einen grösseren pH-Bereich stärker kontrolliert als von Sb(V). Oxidationsprozesse können daher Sb in der Umwelt mobilisieren. In Gewässern kann Sb durch Wasserstoffperoxid und Fentonreaktion ($\text{Fe(II)} + \text{H}_2\text{O}_2$) oxidiert werden. Im Boden und in Sedimenten wird Sb vor allem an der Oberfläche von Eisen- und Manganoxiden oder durch die Co-oxidation von Fe(II) oxidiert werden. Über die Spezierung von Sb im Boden ist bis jetzt wenig bekannt, aber es deutet darauf hin dass Sb(III) im Boden nicht stabil ist. Extraktionen mit Oxalat-Ascorbinsäure haben gezeigt, dass Sb(V) zwischen 25 und 55% höchst wahrscheinlich gebunden an Eisenoxide vorkommt. Spektroskopische Methoden an Bodenproben von Schiessplätzen, EXAFS („extended x-ray fine structure“) und Elektronen Mikrosonde Messungen deuten ebenfalls darauf hin, dass Sb als Sb(V) gebunden an Eisenoxide oder als metallisches Sb vorkommt. In einem sauren organischreichen Boden war Sb hauptsächlich als Metall vorhanden, wohingegen bei neutralen pH Werten Sb(V) überwiegt. Das deutet darauf hin, dass der pH-Wert einen grossen Einfluss auf die Löslichkeit von Sb in der Umwelt haben kann. Andere Faktoren, wie z.B. organisches Material, die ebenfalls die Löslichkeit kontrollieren könnten müssen weiter untersucht werden.

Abstract

The consumption of antimony (Sb) in industrial products increased over the last century. It is used in flame retardants formulation for plastics, brake pads and in lead alloys for storage batteries and ammunition. In the environment two oxidation states occur, Sb(III) and Sb(V). It appears that Sb(III) is less mobile than Sb(V) due to the formation of insoluble oxide and the strong sorption to Fe oxides over a wider pH range. Therefore, oxidation processes are critical with regard to mobilization of Sb in the environment. In natural waters, Sb(III) can be oxidized by H_2O_2 or the Fenton reaction ($\text{Fe(II)} + \text{H}_2\text{O}_2$), whereas in soils and sediments the co-oxidation with Fe(II) and O_2 and the reaction of Sb(III) adsorbed to mineral surfaces such as Fe and Mn oxides play a major role. Very little is known about the speciation of Sb in soils, however it appears that Sb(III) is not stable in soils. Extractions of soil samples from shooting ranges with oxalate-ascorbic acid have shown that between 25 to 55% of the total Sb is Sb(V), probably associated to Fe oxides. Spectroscopic methods of similar samples, EXAFS (extended x-ray adsorption fine structure) and EPMA (electron probe microanalysis), also indicate that Sb occurs as Sb(V) bound to Fe oxides or as elemental Sb. In an organic rich acidic soil sample Sb(0) was the dominant species whereas Sb(V) dominates in soils with neutral pH values. This indicates that pH is one important factor, which influences the solubility of Sb in soils. The knowledge about other factors that may influence the solubility such as organics has to be investigated further.

Keywords: antimony, oxidation, sorption, soils, extraction

1. Introduction

Antimony (Sb) is coming into use in ever increasing quantities in a variety of industrial products. In total, 140'000 t were mined worldwide in 2001. In that year, Sb was the 9th most consumed metal after Fe, Al, Cu, Pb, Zn, Cr, Ni and Sn in the United States (CARLIN JR. 2000). Approximately 60% of Sb, as Sb_2O_3 , is used as a synergist in combination with

halogenated hydrocarbons in flame retardant formulations for plastics and textiles (CARLIN JR. 2000). Therefore, different products such as electric-wire insulation, computer cabinets, telephone cases and interiors of planes and cars contain 2-6 wt% of Sb (ERNST et al. 2000). Other important applications for Sb(III) compounds are in brake pads, lubricants or as a catalyst in plastics (e.g. PET bottles) (MATHYS et al. 2006). Large quantities of elemental Sb are used in lead-

alloys for acid-lead batteries, accumulators and ammunition to increase the strength and inhibit corrosion. In rubber products, such as in car tires, Sb_2S_5 is employed as a vulcanizing agent (ONISHI 1978; HERBST et al. 1985; CARLIN JR. 2000).

In Switzerland, the major emission pathways of Sb to the environment are via shooting practice (~16.5 t in 2001) at shooting ranges and via the abrasion of car brake pads and tires along road sides (18 t in 2001) (MATHYS et al. 2006). Another possible source of groundwater contamination is leaching from landfill ashes, which are enriched in Sb (JOHNSON and MOENCH 2001). This source will gain importance with increasing Sb concentration in consumer products.

Antimony compounds are classified as priority pollutants by the European Union (COUNCIL OF THE EUROPEAN COMMUNITIES 1976) and the Environmental Protection Agency of the United States (UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY 1979). The World Health Organization has set a provisional drinking water guideline of 5 µg/L for Sb (WORLD HEALTH ORGANIZATION 2003). It is assumed that the toxicity of Sb is similar to that of As, i.e. Sb(III) compounds are approximately 10 times more toxic than Sb(V) compounds (HERBST et al. 1985; GEBEL 1997). There is evidence that Sb_2O_3 is genotoxic and possibly carcinogenic (GEBEL 1997; WORLD HEALTH ORGANIZATION 2003). Yet very little is known about the ecotoxicity of Sb. In order to be able to assess the risk posed to humans and the environment, the geochemical behavior of Sb must be better understood.

2. Antimony species in the aquatic environment

Typical background concentrations of Sb in natural waters are in the range of 0.03-10 ng/L in freshwaters, 10-300 ng/L in estuarine waters and 120-430 ng/L in seawater (STROHAL et al. 1975; ANDREAE et al. 1981; ANDREAE and FROELICH 1984; MIDDELBURG et al. 1988; CUTTER 1991; CUTTER and CUTTER 1995; FILELLA et al. 2002). Elevated Sb concentrations of a few µg/L were measured in waters close to industrial or mining areas ((FILELLA et al. 2002) and references therein). Concentrations of Sb in leachate of landfills and shooting ranges can be up to 30 µg/L and 200 µg/L, respectively.

The prevalent oxidation states of Sb in the environment are Sb(III) and Sb(V). Generally, more than 90% of the total dissolved Sb concentration is Sb(V) in the oxic aquatic environment and occurs as an anion ($Sb(OH)_6^-$) above pH 2.7 (BAES and MESMER 1976;

FILELLA et al. 2002). Antimony(III) is present as a neutral hydroxo complex ($Sb(OH)_3$) in natural waters (BAES and MESMER 1976; FILELLA et al. 2002). There is evidence that Sb(III) favors complexation with humic acids (PILARSKI et al. 1995; BUSCHMANN and SIGG 2004) and it is estimated that approximately 30% of dissolved Sb(III) is bound to humics under environmental conditions (BUSCHMANN and SIGG 2004).

The low concentrations of Sb(III) and the high percentage of dissolved Sb(V) in natural waters either indicate that the solubility of Sb(III) is stronger controlled by precipitation and sorption compared to Sb(V) or that Sb(III) is rapidly oxidized to Sb(V).

3. Processes that control the solubility of Sb in the environment

Natural minerals containing Sb, in particular Sb(III), are sulphides (e.g. stibnite (Sb_2S_3), tetrahedrite ($(Cu,Fe)_{12}Sb_4S_{13}$), jamesonite ($Pb_4FeSb_6S_{14}$), boulangerite ($Pb_5Sb_4S_{11}$), pyrargyrite (Ag_3SbS_3)) and oxides (e.g. senarmontite (Sb_2O_3), stibiconite ($Sb^{+3}Sb_2^{+6}O_6(OH)$), kermesite (Sb_2S_2O), bindheimite ($Pb_2Sb_2O_6(O,OH)$) (BOYLE and JONASSON 1984). Stibnite is the predominant Sb mineral, which is mined commercially (BOYLE and JONASSON 1984; HERBST et al. 1985; CARLIN JR. 2000). The above mentioned minerals are associated with ore bodies. Secondary minerals that form in sediments and soils under ambient conditions and may control the solubility of Sb are less known. It is possible that the solubility of Sb(III) is limited by Sb_2O_3 to 60 µg/L under oxic conditions (BAES and MESMER 1976) and this may explain the low Sb(III) concentrations found in natural waters. In contrast, Sb(V) concentrations range up to 20 mg/L in equilibrium with Sb_2O_5 (BAES and MESMER 1976). Thermodynamically more stable phases, which might control the solubility of Sb(V), are likely to be Ca and Fe antimonates ($Ca[Sb(OH)_6]_2$ and $FeSb(OH)_6$) (VON HEFFTER 1852; JOHNSON et al. 2005). In deposits, triphuyite ($FeSbO_4$), a Fe antimonate, was identified (BERLEPSCH et al. 2003) and leaching experiments of contaminated soils from shooting ranges suggest that Ca-antimonates can play a role (JOHNSON et al. 2005).

Sequential extractions and extended X-ray absorption fine structure (EXAFS) measurements provide evidence for a strong preference of Sb binding to Fe (hydr)oxides (BLAY 2000; MERGENTHALER and RICHNER 2002; SCHEINOST et al. 2006). Therefore, the sorption of Sb to Fe (hydr)oxides may influence the solubility of Sb in sediments and soils. Sorption studies available in literature report that Sb

strongly binds to Fe oxides and weakly to clay minerals (AMBE 1987; THANABALASINGAM and PICKERING 1990; ENDERS 1996; BLAY 2000; TIGHE et al. 2005; LEUZ et al. 2006b). However, the sorption of Sb is dependent on pH and speciation of antimony. Sb(V) only strongly adsorbs on goethite below pH 7, whereas Sb(III) strongly adsorbs on goethite over a wide pH range. In the Sb(III) experiments above pH 7, some desorption occurs as a result of oxidation to Sb(V) (Fig. 1, (LEUZ et al. 2006b)). This indicates that oxidation processes can mobilize Sb.

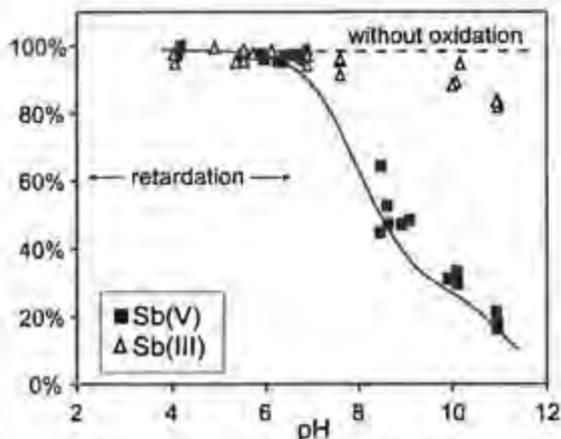


Fig. 1: Adsorption of Sb(III) and Sb(V) on goethite ($[Sb(III)]_0 = 2 \mu M$, $[Sb(V)]_0 = 4 \mu M$, $[goethite]_0 = 0.5 \text{ g/L}$ and $I = 0.01 \text{ M}$). Dashed line represents Sb(III) sorption without oxidation.

4. Oxidation processes

From a thermodynamic point of view H_2O_2 , O_2 , Mn and Fe oxides are potential natural occurring oxidants. The reaction of Sb(III) with O_2 as sole oxidant is very slow. In aqueous solution, no oxidation of Sb(III) was observed within 200 days in the pH range 4-10 and only occurred above pH 10.9 (LEUZ and JOHNSON 2005). The reaction with H_2O_2 , which is formed by photochemical reactions in natural waters, is much faster. The oxidation rates increased inversely proportional to the H^+ concentration in a pH range of 8 to 11.7 in aqueous solutions. In sunlit surface waters, estimated half-lives are 117 days and 32 years for H_2O_2 concentrations of $1 \mu M$ and 10 nM , respectively, at pH 8 (LEUZ and JOHNSON 2005). Another reaction in sunlit surface waters is the reaction with humic acids. There is evidence that humic acids (5 mg/L DOC) photochemically oxidize Sb(III) to Sb(V) with a half-life of 17 min at pH 7.2 (BUSCHMANN and SIGG 2004; BUSCHMANN et al. 2005). Oxidation of Sb(III) to Sb(V) by Mn oxides has been observed under both oxic and anoxic conditions (BLAY 2000; BELZILE et al. 2001). Under oxic conditions Sb(III) is completely oxidized within 3 days in the pH range 6.5 to 8.6 (BELZILE et al. 2001).

Antimony(III) is also oxidized by O_2 while Sb(III) is adsorbed to Fe oxides (LEUZ et al. 2006b). This indicates that adsorption may catalyze the Sb(III) oxidation by O_2 as it is known for other metals Fe(II), Mn(II) and V(IV) (TAMURA et al. 1976; WEHRLI and STUMM 1988; DAVIES and MORGAN 1989; WEHRLI 1990). The most powerful oxidation is in the presence of Fe(II). Within a few minutes at pH 7, Sb(III) is oxidized indirectly by Fe(II) as the latter is oxidized to Fe(III) by O_2 , as was reported for As(III) (HUG and LEUPIN 2003; LEUZ et al. 2006a). The Fe(II) oxidation by O_2 produces reactive intermediates, such as H_2O_2 , $^{\bullet}OH$ radicals and possibly Fe(IV) which can react with Sb(III). This reaction can play a role during weathering of bullets at shooting ranges. Bullets consist of a Pb-Sb core and a steel mantle. During the corrosion of the steel, Fe(0) is oxidized via Fe(II) to Fe(III) and Sb can be co-oxidized.

5. Sb speciation in contaminated soils

The average soil concentration of Sb is 1 mg/kg (FILELLA et al. 2002). Contaminated soils are found at shooting ranges, close to roads and mining, smelter and industrial areas. Very little is known on the speciation of Sb in soils. Sequential extractions according to Zeien and Brümmer applied to Sb contaminated soils have shown that Sb is mainly found in the fractions of amorphous and crystalline Fe oxides (ZEIEN and BRÜMMER 1989; BLAY 2000; MERGENTHALER and RICHNER 2002). Up to 90% of the total Sb was measured in the two fractions, indicating the association of Sb to Fe (hydr)oxides in soils. An investigation of the typical extraction agents ammonium-oxalate and ammonium-oxalate-ascorbic acid used for amorphous and crystalline Fe oxides, respectively, showed that the ammonium-oxalate extraction is not specific for the Sb fraction associated to amorphous Fe oxides (ENGLERT 2006). During the oxalate extraction elemental Sb was completely dissolved due to oxidation of Sb(0) to Sb(III) and Sb, which was bound to crystalline Fe oxides is desorbed. In contrast, the ammonium-oxalate-ascorbic acid extraction is a suitable extraction method that provides information on the Sb association to Fe oxides and the oxidation state of Sb. Extractions of 7 soil samples from shooting ranges showed that between 25% and 55% of the total Sb was Sb(V) and possibly bound to Fe oxides. Thus, the above described oxidation processes take place in soils, most probably due to the oxidation of adsorbed Sb and co-oxidation with Fe(II) and O_2 . EXAFS measurements of the same soil samples showed that Sb(V) bound to Fe oxides occurs between 26 and 90% at shooting ranges

(SCHEINOST et al. 2006). According to the investigation of EXAFS and electron probe microanalysis (EPMA), Sb(0) is less oxidized in an acidic organic rich soil than in neutral soils (EICHINGER 2005; SCHEINOST et al. 2006).

It appears that pH is a master variable which controls the mobility of Sb in soils from shooting ranges. Very little is known about other factors such as organics or competition for surface sites that may also have an influence on Sb mobility and have to be further investigated.

References

- AMBE S., 1987: Adsorption-kinetics of antimony(V) ions onto alpha-Fe₂O₃ surfaces from an aqueous-solution. *Langmuir* 3, 489-493.
- ANDREAE M. O., ASMODE J. F., FOSTER P., and VANTDACK L., 1981: Determination of antimony(III), antimony(V), and methylantimony species in natural-waters by atomic-absorption spectrometry with hydride generation. *Analytical Chemistry* 53, 1766-1771.
- ANDREAE M. O. and FROELICH P. N., 1984: Arsenic, antimony, and germanium biogeochemistry in the Baltic Sea. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology* 36, 101-117.
- BAES C. F. and MESMER R. E. (1976): *The Hydrolysis of Cations* Wiley, New York, 489 p.
- BELZILE N., CHEN Y. W., and WANG Z. J., 2001: Oxidation of antimony(III) by amorphous iron and manganese oxyhydroxides. *Chemical Geology* 174, 379-387.
- BERLEPSCH P., ARMBRUSTER T., BRUGGER J., CRIDDLE A. J., and GRAESER S., 2003: Tripuyite, FeSbO₄, revisited. *Mineralogical Magazine* 67, 31-46.
- BLAY K. (2000) Sorption wässriger Antimon-Spezies an bodenbildende Festphasen und Remobilisierung durch natürliche Komplexbildner. (Sorption of aqueous Sb species to soil forming minerals and remobilization by natural ligands). Ph.D. Thesis, Technical University of Munich.
- BOYLE R. W. and JONASSON I. R., 1984: The geochemistry of antimony and its use as an indicator element in geochemical prospecting. *Journal of Geochemical Exploration* 20, 223-302.
- BUSCHMANN J., CANONICA S., and SIGG L., 2005: Photoinduced oxidation of antimony(III) in the presence of humic acids. *Environmental Science & Technology* 39, 5335-5341.
- BUSCHMANN J. and SIGG L., 2004: Antimony(III) binding to humic substances: Influence of pH and type of humic acid. *Environmental Science & Technology* 38, 4535-4541.
- CARLIN JR. J. F. (2000): *Antimony U.S. Geological Survey Mineral Commodity Summaries*, p.
- COUNCIL OF THE EUROPEAN COMMUNITIES, 1976: "Council directive 76/464/EEC", 4. Mai 1976 on pollution caused by certain dangerous substances discharged into the aquatic environment of the community. *Official Journal L* 129, 23-29.
- CUTTER G. A., 1991: Dissolved arsenic and antimony in the Black-Sea. *Deep-Sea Research Part a-Oceanographic Research Papers* 38, S825-S843.
- CUTTER G. A. and CUTTER L. S., 1995: Behavior of dissolved antimony, arsenic, and selenium in the Atlantic-Ocean. *Marine Chemistry* 49, 295-306.
- DAVIES S. H. R. and MORGAN J. J., 1989: Manganese(II) oxidation-kinetics on metal-oxide surfaces. *Journal of Colloid and Interface Science* 129, 63-77.
- EICHINGER F. (2005) *Geochemistry and Mineralogy of Antimony in Soils of Shooting Ranges*. Diploma Thesis, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg i. Br.
- ENDERS R. (1996) *Untersuchung und Modellierung der Antimonentfernung aus wässrigen Lösungen durch Fällung, Mitfällung und Adsorption*. (Investigation and modelling of Sb removal from aqueous solutions by precipitation and adsorption.). Ph.D. Thesis, Technical University of Berlin.
- ENGLERT A. (2006) *Untersuchung der Antimonspezierung in Kugelfängen von Schiessanlagen mit nasschemischen Extraktionen*. (Investigation of Sb speciation in embankment materials of shooting ranges with wet chemical extractions.). Diploma Thesis, Fachhochschule Weihenstephan.
- ERNST T., POPP R., and VAN ELDIK R., 2000: Quantification of heavy metals for the recycling of waste plastics from electrotechnical applications. *Talanta* 53, 347-357.
- FILELLA M., BELZILE N., and CHEN Y. W., 2002: Antimony in the environment: a review focused on natural waters I. Occurrence. *Earth-Science Reviews* 57, 125-176.

- GEBEL T., 1997: Arsenic and antimony: comparative approach on mechanistic toxicology. *Chemico-Biological Interactions* 107, 131-144.
- HERBST K. A., ROSE G., HANUSCH K., SCHUMANN H., and WOLF H. U. (1985): Antimony and antimony compounds. In: W. Gerhartz, S. Yamamoto, F. T. Campbell, and H.-J. Arpe (ed.): *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, Vol. A3 (ed. W. Gerhartz, S. Yamamoto, F. T. Campbell, and H.-J. Arpe). Wiley-VCH, Weinheim. pp. 55-76.
- HUG S. J. and LEUPIN O., 2003: Iron-catalyzed oxidation of arsenic(III) by oxygen and by hydrogen peroxide: pH-dependent formation of oxidants in the Fenton reaction. *Environmental Science & Technology* 37, 2734-2742.
- JOHNSON C. A. and MOENCH H. (2001) Personal Communication.
- JOHNSON C. A., MOENCH H., WERSIN P., KUGLER P., and WENGER C., 2005: Solubility of antimony and other elements in samples taken from shooting ranges. *Journal of Environmental Quality* 34, 248-254.
- LEUZ A.-K., HUG S. J., WEHRLI B., and JOHNSON C. A., 2006a: Iron-mediated oxidation of antimony(III) by oxygen and hydrogen peroxide compared to arsenic(III) oxidation. *Environmental Science & Technology* 40, 2565-2571.
- LEUZ A.-K. and JOHNSON C. A., 2005: Oxidation of Sb(III) to Sb(V) by O₂ and H₂O₂ in aqueous solutions. *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 69, 1165-1172.
- LEUZ A.-K., MOENCH H., and JOHNSON C. A., 2006b: Sorption of Sb(III) and Sb(V) to goethite: influence on Sb(III) oxidation and mobilization. *Environmental Science & Technology* 40, 7277-7282.
- MATHYS R., DITTMAR J., and JOHNSON C. A. (2006) Antimony in Switzerland: a substance flow analysis. BAFU.
- MERGENTHALER B. and RICHNER T. (2002) Mobilität und geochemisches Verhalten von Antimon im Boden von Schiessanlagen. Diploma Thesis, Swiss Federal Institute of Technology Zürich.
- MIDDELBURG J. J., HOEDE D., VANDERSLOOT H. A., VANDERWEIJDEN C. H., and WIJKSTRA J., 1988: Arsenic, antimony and vanadium in the North-Atlantic Ocean. *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 52, 2871-2878.
- ONISHI H. (1978): Antimony. In: K. H. Wedepohl (ed.): *Handbook of Geochemistry*, Vol. II/4 (ed. K. H. Wedepohl). Springer-Verlag, Berlin. pp.
- PILARSKI J., WALLER P., and PICKERING W., 1995: Sorption of antimony species by humic-acid. *Water Air and Soil Pollution* 84, 51-59.
- SCHEINOST A. C., ROSSBERG A., VANTELON D., XIFRA I. O., KRETZSCHMAR R., LEUZ A.-K., FUNKE H., and JOHNSON C. A., 2006: Quantitative antimony speciation in shooting-range soils by EXAFS spectroscopy. *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 70, 3299-3312.
- STROHAL P., HULJEY D., LULIC S., and PICER M., 1975: Antimony in coastal marine environment, North Adriatic. *Estuarine and Coastal Marine Science* 3, 119-123.
- TAMURA H., GOTO K., and NAGAYAMA M., 1976: Effect of ferric hydroxide on oxygenation of ferrous-ions in neutral solutions. *Corrosion Science* 16, 197-207.
- THANABALASINGAM P. and PICKERING W. F., 1990: Specific sorption of antimony(III) by the hydrous oxides of Mn, Fe, and Al. *Water Air and Soil Pollution* 49, 175-185.
- TIGHE M., LOCKWOOD P., and WILSON S., 2005: Adsorption of antimony(V) by floodplain soils, amorphous iron(III) hydroxide and humic acid. *Journal of Environmental Monitoring* 7, 1177-1185.
- UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. (1979) Water Related Fate of the 129 Priority Pollutants. Vol. 1. USEPA., pp. EP-440/4-79-029A.
- VON HEFFTER L., 1852: Über einige Verbindungen der Antimonsäure mit Basen. *Poggendorf's Annalen der Physik und Chemie*. 86, 418-451.
- WEHRLI B. (1990): Redox reactions of metal ions at mineral surfaces. In: W. Stumm (ed.): *Aquatic Chemical Kinetics* (ed. W. Stumm). John Wiley & Sons, Inc., New York. pp. 311-336.
- WEHRLI B. and STUMM W., 1988: Oxygenation of vanadyl(IV) - Effect of coordinated surface hydroxyl-groups and OH⁻. *Langmuir* 4, 753-758.
- WORLD HEALTH ORGANIZATION. (2003) "Drinking Water guidelines".
- ZEIEN H. and BRÜMMER G. W., 1989: Chemische Extraktion zur Bestimmung von Schwermetallbindungsformen in Böden. *Mitteilgn. Dtsch. Bodenkundl. Gesellsch.* 59/1, 505-510.

Teneurs des micro-polluants métalliques des sols des bordures de l'Oued Boumerzoug (Constantine, Algérie)

KERBOUA F, laboratoire de biologie et environnement, faculté des sciences, Univ. Mentouri, Constantine Algérie, f.kerboua@voila.fr

ELHADEFF EL OKKI M, Dept SNV, Univ, Hadje lakdar, Batna, Algérie

RACHED O, laboratoire de biologie et environnement, faculté des sciences, Univ. Mentouri, Constantine Algérie

Résumé

L'Oued Boumerzoug, effluent de l'oued Rhumel, est soumis à un flux considérable de rejets domestiques et industriels. Il est de ce fait, exposé à une importante pollution chimique et biologique et à de grands problèmes toxicologiques.

L'objectif majeur de cette étude est de mettre en évidence la présence d'une éventuelle contamination des sols des bordures de l'Oued Boumerzoug par les métaux lourds (Cd, Cu, Pb et Zn).

Les mesures chimiques effectuées sur les sols des cinq stations le long de l'Oued boumerzoug ont révélé des teneurs totales moyennes de 2.5 ppm en cadmium, 40.5 ppm en cuivre, 126 ppm en plomb et 90 ppm en zinc. L'évolution spatiale des teneurs des sols des bordures de l'Oued en métaux lourds, a mis en évidence les secteurs de l'oued les plus exposés aux rejets domestiques et industriels.

Mots clés

Oued Boumerzoug, pollution, eau, sol, métaux lourds.

Abstract

The Boumerzoug wadi, effluent of the Rhumel wadi, is the endpoint of a large flow of industrial and domestic wastes. It is also exposed to an important chemical and biological pollution and to major ecotoxicological problems.

The major objective of this paper is to highlight the presence of a possible contamination of soils of the edges of the Boumerzoug wadi by heavy metals such as (Cd, Cu, Pb and Zn).

The chemical measures that were done on the soils of the five sites, for along Boumerzoug wadi, revealed average contents of 2.5 ppm for cadmium, 40.5 ppm for copper, 123 ppm for lead and 90 ppm for zinc. The special variation of metal concentration in soils of the wadi highlighted the wadi sectors that are the most exposed to the domestic and industrial wastes.

Key words

Heavy metals, Boumerzoug wadi, soil, pollution, water.

1. Introduction

Le sol est normalement le réceptacle le plus exposé aux contaminants d'origines naturelles et humaines, y compris les éléments traces métalliques (ETM), qui sont le résultat direct et indirect de l'activité agricole, industrielle et domestiques.

Les ETM sont susceptibles d'être déposés à la surface des sols, repris par la végétation, accumulés dans les animaux, lessivés vers les eaux souterraines, pour aboutir finalement à l'homme.

Si certains éléments traces (Cu, Zn, Fe,...) sont nécessaires à faibles teneurs aux fonctionnements biologiques des organismes vivants, d'autres sont par contre considérés comme toxiques tels le plomb et le cadmium (Kabata-Pendias et Pendias, 1992; Alloway, 1995).

Les éléments traces suivent dans la nature des cycles biogéochimique intégrant également toute la chaîne trophique. Les activités humaines minières, industrielles ou agricoles ont un impact sur ces cycles naturels et perturbent la

répartition des ETM dans les différents compartiments du milieu du milieu (Ramade; 1992 et Miquel, 2001).

La toxicité des éléments traces est liée principalement à leur mobilité dans le sol. Cette dernière est définie comme leur aptitude à être transférée vers des compartiments où ils sont de moins en moins énergiquement retenus, le compartiment ultime étant représenté par la solution du sol (Robert et Juste, 1997). Cette mobilité est contrôlée par un certain nombre de facteurs et de conditions du milieu, qui modifient la distribution des éléments traces entre les phases constitutives du sol. Ces facteurs sont: le pH du sol, le potentiel d'oxydo-réduction, les teneurs en matière organique et les échanges ioniques de la solution du sol (Alloway, 1995).

2. Matériels et Méthodes.

La région d'étude est localisée au niveau du sous bassin du Boumerzoug (bassin versant Kabir-Rhumel), sur les bordures de l'oued Boumerzoug qui prend sa source au Sud-est de la ville de Sigus. Il traverse les hautes plaines constantinoises selon une orientation sud-nord jusqu'à la ville de Constantine, où il se déverse dans le Rhumel. Elle est délimitée en aval par la confluence de l'oued Boumerzoug avec l'oued El-Berda, et en amont, par sa confluence avec l'oued Rhumel (figure 1).

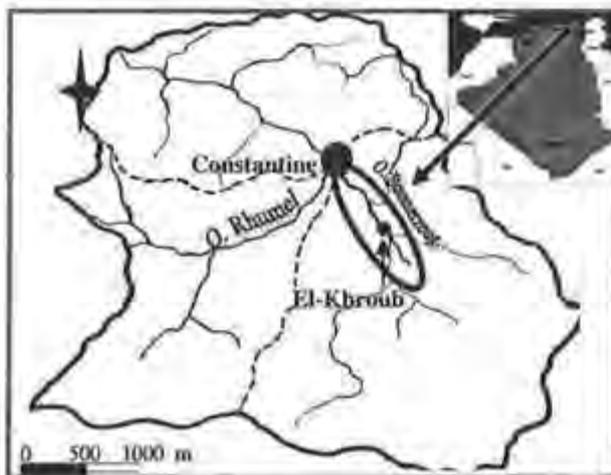


Figure 1: Localisation de la région d'étude (Constantine, Algérie)

La région a connu, depuis ces dernières décennies, une extension difficilement contrôlée de l'urbanisme (79 % de la population vit dans des agglomérations urbaines) et du secteur industriel, qui n'est pas toujours accompagnée de la mise en place de réseaux d'évacuation des eaux usées. Les cours d'eaux, situés au

voisinage de l'agglomération, deviennent alors des égouts à ciel ouvert chargés de différents contaminants. Plusieurs unités industrielles évacuent leurs rejets, sans traitement préalable, dans l'oued Boumerzoug : eaux usées chargées d'huiles et de graisses, de matières organiques, de nitrites, de lait de chaux, d'huiles de vidanges, ainsi que de matières solides et d'eaux de lavages de grains de céréales.

La teneur des sols en ETM est aussi le résultat direct ou indirect de l'activité humaine agricole qui conduit à l'utilisation des matières fertilisantes comme les engrais, les amendements organiques traditionnels, les fongicides et les insecticides.

La région des hautes plaines constantinoises est une importante zone d'activité agricole. De vastes superficies sont consacrées aux cultures céréalières. La vallée de l'oued Boumerzoug est attribuée aux cultures intensives maraîchères, qui utilisent de grandes quantités d'engrais.

La wilaya (département) de Constantine, traversée par sept routes nationales, une série de voies de contournement, 21 chemins de wilaya et une multitude de chemins communaux, atteint un taux de 1.59 Km pour mille habitants.

Le choix des stations d'étude a été effectué selon un gradient d'urbanisation, le long de l'oued Boumerzoug. Cinq stations ont été retenues en tenant compte de leurs situations vis-à-vis des sources supposées polluantes. Dans chaque station nous avons effectué un échantillonnage systématique et linéaire, correspondant à 9 répétitions à une centaine de mètres de distance le long de la bordure de l'Oued Boumerzoug. Le sol est prélevé jusqu'à 25 cm de profondeur.

Les caractéristiques suivantes ont été déterminées: l'humidité du sol, la porosité, pH, granulométrie, matière organique, conductivité électrique (CE), capacité d'échange cationique (CEC), azote total, calcaire total et les concentrations en Cd, Cu, Pb et Zn.

3. Résultats et discussion

3.1. Caractéristiques générales des sols

Les caractéristiques pédologiques (tab. 1 et 2) montrent que les sols des bordures de l'Oued Boumerzoug présentent un taux moyen d'humide et qu'ils poreux. Ils ont une CEC moyenne. Ils sont calcaires, avec un taux en matière organique normal, moyennement riches en azote et de texture à dominance limoneuse.

Tableau 1 : Paramètres physico-chimiques.

	H %	Porosité %	pH	CE $\mu\text{S}/\text{cm}^2$	CEC meq/100g
Min	24.6	11.3	7.3	120	14.4
Moy	34.6	30.4	7.7	372.4	26.1
Max	45.3	40.9	7.9	964	38.6
Et	5.4	7.7	0.18	168.5	5.7
	CT %	MO %	N %	C/N	
Min	8.0	0.7	0.04	8.2	
Moy	18.1	2.4	0.13	10.8	
Max	39.6	3.8	0.19	13.8	
Et	9	0.7	0.03	1.4	

Tableau 2: Les résultats granulométriques des sols étudiés pour les cinq stations.

Stations	St 1	St 2	St 3	St 4	St 5	Total	
A	Min	1	14	20	14	15	1
	Max	40	30	37	32	30	40
	Moy	25.22	23.78	25.67	23.33	20.67	23.73
	Et	10.87	4.68	5.45	5.55	4.82	40
L	Min	4	23	17	29	21	4
	Max	38	46	45	43	64	46
	Moy	25.44	38.11	35.0	37.22	32.89	33.73
	Et	10.25	6.41	8.41	4.92	9.85	9.04
S	Min	36	27	26	32	38	25
	Max	92	49	53	51	65	92
	Moy	49.56	36.67	37.67	39.44	49.33	42.53
	Et	17.52	7.52	8.66	5.66	10.83	11.84

3.2. Les teneurs des sols en éléments traces métalliques :

Les résultats du dosage des quatre ETM étudiés sont consignés dans le tableau 3. Ces résultats sont comparés aux seuils de la norme NF U 44-041 (AFNOR, 1998 cité par Baize 2000).

Tableau 3: Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols étudiés (en ppm).

	Cd	Cu	Pb	Zn
Min	1.01	19.19	34.72	16.60
Moy	2.58	40.52	126.91	90.85
Max	6.48	95.97	176.39	231.0
Et	1.29	18.63	41.75	64.03
VL	2	100	100	300

VL: seuil de la norme NF U 44 - 041 (1998).

3.2.1. Le cadmium

Les teneurs totales varient d'un minimum de 1 ppm à un maximum de 6.5 ppm, avec une moyenne de 2.5 ppm (tab. 3). Les stations 3 et 4 présentent les moyennes les plus élevées (fig. 2), avec respectivement 3.5 ppm et 3 ppm, alors que la moyenne la plus faible (1.84 ppm) est enregistrée dans la station 1. L'effet station est d'ailleurs significatif ($F = 2.830$; $p < 0.05$).

Les sols des stations localisées entre El-Khroub et Constantine (stations 2, 3, 4 et 5), renferment des teneurs dépassant la valeur limite de 2 ppm. Ceci est probablement dû aux différents rejets anthropiques, en particulier ceux provenant du trafic routier qui est responsable de la pollution des sols en zone urbaine par les éléments traces, dont le Cd et le Pb (Miquel, 2001). L'utilisation des engrais phosphatés n'est pas à exclure d'une telle responsabilité (Page, 1981; Ftaïssa, 1998).

3.2.2. Le cuivre

L'examen du tableau 3 montre que les teneurs totales en Cu varient de 19 ppm et 96 ppm, avec une moyenne de 80.5 ppm. Ainsi, les sols de la région d'étude ont des teneurs inférieures à la valeur limite (100 ppm).

L'analyse de la variance fait ressortir un effet station significatif ($F = 3.417$; $p < 0.05$). La station 3 possède les teneurs en Cu les plus élevées, alors que les autres stations présentent des teneurs moyennes presque égales en cet élément (fig. 2). Selon Miquel (2001), l'activité agricole et urbaine, est à l'origine de la pollution des sols par le Cu.

3.2.3. Le plomb

D'après le tableau 3, les teneurs totales en Pb, varient de 35 ppm à 176 ppm, avec une teneur moyenne de 127 ppm. Toutefois, la majorité des sols ont des teneurs supérieures à la valeur seuil de 100 ppm, excepté les sols de la station 1 (48 ppm en moyenne). L'analyse de la variance fait apparaître un effet station très significatif ($F=113.419$; $p < 0.001$). Selon Miquel (2001), Kawalska-pykka *et al.* (1995) et Pižl et Josens (1995) le transport automobile constitue, avec les rejets urbains (industriels et domestiques) la principale source d'enrichissement des sols Pb. Et d'après Gulson *et al.* (1981) et Santos (1986), la détermination des concentrations en Pb dans les sols est importante dans l'évaluation de la pression urbaine sur les écosystèmes. Or la station 1, à l'inverse des autres stations est en amont de la presque totalité des rejets urbains et des principaux axes routiers. Ainsi, les teneurs en Pb de nos sols, supérieures à la norme, peuvent donc être attribuées aux sources citées précédemment.

3.2.4. Le zinc

Les teneurs totales en zinc extrêmes sont de 17 ppm et 231 ppm, avec une teneur moyenne de 91 ppm (tab. 3). Toutes les sols de la région d'étude renferment des teneurs inférieures à la valeur limite de 300 ppm.

La figure 2 montre que la moyenne des teneurs totales des sols en zinc est assez variable d'une station à l'autre. La station 3 renferme les teneurs les plus élevées avec une moyenne de 175 ppm, alors que la station 1 renferme les teneurs les plus faibles, avec une moyenne de 38 ppm. L'effet station est très significatif ($F = 13.753$; $p < 0.001$).

La station 3 étant localisée au niveau de la confluence de l'oued Boumerzoug avec l'oued Hamimime, les valeurs élevées, qui y sont enregistrées sont probablement dues aux rejets de l'ENPMA et l'ENPMO (Entreprise Nationale de matériaux de travaux publics) dans les eaux de l'Oued Hamimime, ainsi qu'aux différents déchets solides repérés à ce niveau. En effet, d'après Miquel (2001), les huiles des moteurs, les usures des pneus et de caoutchouc et les revêtements de la chaussée, constituent les sources possibles de la contamination des sols par le zinc.

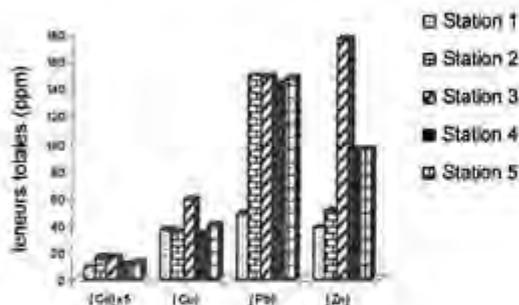


Figure 2: Les teneurs moyennes en éléments traces métalliques des sols des cinq stations.

3.3. Corrélations entre les teneurs en ETM et les paramètres physico-chimiques du sol

D'une manière générale, les sols étudiés présentent la séquence suivante des teneurs totales en éléments traces métalliques: $Pb > Zn \gg Cu \gg Cd$ (tab. 3).

Les principales corrélations qui résument les relations entre les différents paramètres physico-chimiques déterminés dans le sol sont présentées dans le tableau 4. L'examen de ce dernier révèle des liaisons classiques entre les propriétés du sol. Ainsi, la capacité d'échange cationique présente des corrélations significatives et positives avec les teneurs totales en Zn ($p < 0.05$), en Cd ($p < 0.05$) et en Pb ($p < 0.01$). Une telle liaison a déjà été mise en évidence par plusieurs auteurs (Bruggenwert et Kamphorst 1979; Abdul Rida, 1992 ; Coullery, 1997 ; Alloway, 1995 ; Baize, 2000). Elle représente un élément important dans la compréhension de l'adsorption des éléments traces dans les sols (Ahumada *et al.* 1984)

Une liaison éléments traces-texture du sol est également à signaler. Les teneurs totales en Pb sont liées positivement à la fraction limoneuse ($p < 0.05$), tandis que celles du Cd sont liées négativement à la fraction sableuse ($p < 0.05$). Les teneurs totales en Pb semblent donc augmenter avec la fraction fine des sols et celle de Cd diminue avec la fraction grossière. Il est bien connu que les teneurs en éléments traces augmentent avec la fraction fine des sols, tandis que la fraction sableuse se comporte comme un diluant vis-à-vis des éléments traces (Tyler 1981, Aubert et Pinta 1971). Ceci peut être attribué aux propriétés colloïdales que possède ces fractions fines (argile et limons) (Duchaufour 1965, Ahumada *et al.* 1984, Tyler 1981).

D'autre part, l'absence de corrélations significatives entre ETM et d'autres paramètres physico-chimiques des sols, comme le pH, la matière organique, le taux d'argile (Abdul Rida 1992, Coullery 1997, Alloway 1995, Baize 2000), pourrait être expliquée par les faibles variations des valeurs de ces fractions obtenues pour les sols de la région d'étude.

Par ailleurs, des liaisons entre les quatre éléments étudiés sont à signaler. Les teneurs totales en Cd sont liées aux teneurs totales en Zn et Cu ($p < 0.05$). Celles de Pb ne sont liées qu'aux teneurs totales en Zn ($p < 0.001$). De telles liaisons peuvent être attribuées, soit au fait que ces éléments ont les mêmes origines, soit qu'ils se trouvent dans la nature sous forme d'éléments associés (Sclomer, 2001). L'origine commune de ces éléments dans la région d'étude, serait le responsable de la corrélation observée entre les concentrations métalliques des sols.

Des résultats semblables sont mis en évidence par Pižl et Josens (1995a, 1995b); El-Hadef El-Okki (2002) et Tebbani (1998) travaillant dans des régions homogènes.

Conclusion

Nos résultats montrent que les sols des bordures de l'Oued Boumerzoug présentent des variations dans les teneurs en matière organique, en azote total, et surtout en éléments métalliques.

Les cinq stations étudiées montrent une contamination variable en fonction de l'origine des ETM et de l'intensité de l'activité humaine. En effet, les sols les moins contaminés sont ceux qui se situent loin des activités industrielles ou des axes routiers principaux. Tandis que les sols à proximité des rejets industriels et domestiques ou de circulations intenses d'automobiles entre la ville d'El-Khroub et

Constantine montrent des teneurs élevées, en particulier en Pb et en Cd.

La contamination des sols des bordures de l'Oued Boumerzoug par les éléments traces

métalliques constitue un problème sérieux, et un risque d'intoxication des réseaux trophiques des écosystèmes environnants.

Tableau 4: Coefficients de corrélation entre les paramètres physico-chimiques des sols et leurs teneurs en éléments traces métalliques (n = 90)

(* : p < 0.05, ** : p < 0.01, *** : p < 0.001)

	H	P	pH	CE	CEC	CT	MO	N	C/N	A	L	S
Cd	0.125	0.340*	0.154	0.095	0.332*	0.302*	0.326*	0.257	0.240	0.05	0.279	-0.30*
Cu	-0.21	0.067	0.213	-0.11	-0.16	0.293*	0.008	0.170	-0.27	0.074	0.002	-0.01
Pb	0.060	0.852***	-0.20	-0.09	0.482**	0.107	0.531***	0.479**	0.425**	-0.19	0.420**	-0.23
Zn	0.203	0.294*	0.175	-0.05	0.302	0.26	0.033	0.066	-0.02	-0.01	0.106	-0.13

Bibliographie

ABDUL RIDA A.M.M., 1992 – Biosurveillance de la contamination du sol: Apport de l'étude des lombriciens à l'évaluation des risques liés aux éléments traces. *Document pédozoologique*, Lab. de Zooécologie du sol, I.N.R.A., Montpellier, 233 pp.

AHUMADA I.A., SCHALSCHA E.B., PRATT P.F., & MATTIGOD S.V., 1984 – Extraction by barium salts of heavy metals from two Chilean Soils. *Soil Sci. Am. J.*, 48, 1240-1243.

ALLOWAY B.J., 1995 – The mobilisation of trace elements in soils. In: *Contaminated soil. 3rd International Conference on the Biogeochemistry of Trace elements*, Paris 15 – 19 May 1995, 133 – 146.

AUBERT H. & PINTA M., 1971 – Les éléments traces dans les sols. *Trav. Doc. O.R.S.T.O.M.*, Paris, 11, 1-97

BAIZE D., 2000 – Teneurs totales en "métaux lourds" dans les sols français résultats généraux du programme A.S.P.I.T.E.T. *Le courrier de l'environnement*, 39, 23 – 35.

BRUGGENWERT M.G.M. & KAMPHORST A., 1979 – Survey of experimental information on cation exchange in soil systems. In Bolt G.H. (ed) "Soil chemistry. B. Physico-chemical models". Elsevier Scientific Publishing Company, 141 – 203.

COULLERY P., 1997 – Comportement des métaux lourds en agrosystèmes tempérés à faibles taux de pollution métallique. *Thèse Doc. és. Sci. Techn.* EPF Lausanne, Suisse, 139 pp.

DUCHAUFOR P., 1965 – Précis de Pédologie. Ed. Masson, Paris. 481 pp.

EL-HADEF EL-OKKI M., 2002 – Evaluation de la pollution métallique (cadmium, cuivre, plomb et zinc) des sols des bords de l'Oued Rhumel par les Lumbricidae. Thèse de Magister. ISN, Université de Constantine, 91 pp.

FTAISSA R., 1998 – Etude de la contamination de la tomate (*Lycopersicum esculentum* Mill) par le cadmium et le plomb dans la région d'El-Hadjar (W. Annaba). Thèse de Magister. ENATA, Université de Constantine, 149 pp.

GULSON B.L., TILLER, K.G., MIZON K.J., & MERRY R.H., 1981 – Use of lead isotopes in soils to identify the source of lead contamination near Adelaide, South Australia. *Environ. Sci. Technol.*, 15, 691-6

KABATA-PENDIAS A. & PENDIAS H., 1992 – Traces elements in soils and plants. 2^e Ed. CRC press, 365 pp.

KAWALSKA-PYKKA H., KOT A., WIERCINSKI J., KURSA K., WALKUSKA G. & CYBULSKI W., 1995 – Lead, cadmium, copper and zinc content in vegetables, gooseberry fruit and soil from gardening plots Lublin. *Rocz-Panstw-Zaki-Hig.* 46 (1), 3-12.

MIQUEL G., 2001 – Les effets des métaux lourds sur l'environnement et la santé. Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques. *Onzième législature, N° 261, sénat - session ordinaire de 2000-2001*, 104 pp.

PAGE A.L., 1981 – Cadmium in soils and its accumulation by food corps. international Conference: Heavy metals in the environment, Amsterdam. C.E.C, 206 – 123.

PIŽL V. & JOSENS G., 1995 – The influence of traffic pollution on earthworms and their heavy metal contents in an urban ecosystem. *Pedobiologia*, 39, 442 - 453.

RAMADE F., 1992 – Précis d'écotoxicologie. Ed. Masson, Paris, 280 pp.

ROBERT M. & JUST C., 1997 – Stocks et flux d'éléments traces dans les sols du territoire. In "Aspects sanitaires et environnementaux de l'épandage agricole des boues d'épuration urbaines" ADEME éd., 320 pp.

SANTAS P., 1986 – Soil communities along a gradient of urbanization. *Rev. Ecol. Biol. Soil.*, 23, 367 – 80

SCLOMER G., 2001 – Heavy metals concentrations in stream sediments of the south dry sac river. Geochemical technics (GLG 581), Dr Erwin. Mantei 9 pp.

TEBBANI D.T., 1998 – contribution à l'étude de la biosurveillance des métaux lourds (Cd, Cu, Ni, Pb et Zn) par les lombriciens dans la région industrielle ENMTP d'Ain Smara. Mémoire de fin d'étude pour l'obtention du diplôme d'ingénieur d'état en Ecologie. ISN, Université de Constantine, 93 pp.

TYLER K.G., 1981 – Heavy metals in soil biology and biochemistry. In Paul E.A. & Ladd J.N. (eds) "Soil biochemistry". Marcel Dekker, Inc., Bekerley, USA, 5, 371 – 414.

TYLER K.G., GERTHE J. & BRUMMER G., 1984 – The sorption of Cd, Zn and Ni by soil clay fractions: procedures for partition of bound forms and their interpretation. *Geoderma*, 34, 1 – 16.

Räumliche Interpolation von Zinkgehalten im Boden des Kantons Thurgau

Kirsten Rehbein, Armin Keller, André Desaules

Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, CH-8046 Zürich

Zusammenfassung

Im Rahmen einer Fallstudie wurde ein Vorgehen für die Erstellung von Bodenschadstoffkarten im Schweizer Mittelland erarbeitet. Ziel war die Darstellung der grossräumigen diffusen Hintergrundgehalte der Böden im Kanton Thurgau, welcher über einen qualitativ und quantitativ sehr guten Bodenschadstoffdatensatz verfügt. Für die räumliche Auswertung wurde ein Kriging in Verbindung mit einer robusten Regressionsmethode eingesetzt. Auf Acker-, Grünland- und Waldstandorten wurden überwiegend Zinkgehalte geschätzt, die niedriger waren als der Richtwert der Verordnung über Belastungen des Bodens von 150 mg/kg. Die Karten bilden Schadstoffgehalte ab, die regional häufig vorkommen und dienen als Referenz für die Beurteilung von Bodenbelastungen. Sie sind maximal bis zu einem Massstab von 1:50.000 darstellbar, als sinnvoller wird ein Massstab von 1:100.000 erachtet. Die Ergebnisse der Fallstudie dienen als Beispiel für mögliche weitere Kartierungen im Schweizer Mittelland.

Summary

In the context of a case study an approach was developed to produce soil pollution maps for heavy metals in the Swiss Midland. The aim was to illustrate the regional diffuse background pollution in the soils of the canton of Thurgau, for which a very good soil pollution dataset exists, both in terms of quality and quantity. For the spatial statistics a Kriging was used in combination with a robust regression. Zinc concentrations on agricultural and forestry sites were mostly estimated at levels below the recommended guide value of 150 mg/kg specified in the ordinance relating to impacts on the Soil. The maps show regionally common pollutant concentrations, and act as a reference for the evaluation of soil pollution. They can be presented up to a scale of 1:50.000, however, a scale of 1:100.000 would be better. The results serve as an example for potential future surveys in the Swiss Midland.

Keywords: soil pollution maps, heavy metals

1. Einführung

Der gesetzliche Auftrag der Schweizer Nationalen Bodenbeobachtung (NABO) umfasst neben der zeitlichen auch die landesweite räumliche Erfassung von Bodenbelastungen (VBBO 1998). Zu diesem Zweck werden derzeit Bodendaten in einer nationalen Bodenschadstoffdatenbank zusammengeführt. Mit dieser wird es erst möglich landesweite Bodenschadstoffkarten zu erstellen, die Anhaltspunkte über die diffusen grossräumigen Bodengehalte in der Schweiz liefern. Mit den Karten können folglich Regionen mit erhöhten Hintergrundgehalten identifiziert oder lokal verursachte Bodenbelastungen mit den regionalen Hintergrundgehalten der Karten verglichen werden. Lokal anthropogen verursachte Belastungsflächen im Sinne von Alllasten(verdachts)flächen können und sollen mit den Karten nicht abgebildet werden.

Für die räumliche Interpolation von Bodendaten gibt es kein Standardverfahren, wohl aber Werkzeuge und Kriterien für deren Anwendung. Aufgrund der Heterogenität des Mediums Boden und der Komplexität der beteiligten Prozesse und Einflussfaktoren sind räumlich-statistische Analysen bei bodenkundlichen Fragestellungen zudem eine besondere Herausforderung (DOBLER et al.

2003). Da jede geostatistische Analyse für ein bestimmtes Gebiet einen Einzelfall darstellt, können lediglich allgemeine Kriterien und Überlegungen für regionale Erhebungen von Schadstoffbelastungen in Böden gegeben werden (DOBLER et al. 2003; SCHULIN et al. 1994).

In der Schweiz wurden in den letzten Jahren einige Anwendungsstudien zur Interpolation von Schadstoffgehalten durchgeführt (GOOVAERTS et al. 1997; MEULI 1997; MEULI et al. 1998; VON STEIGER et al. 1996). Zudem wurden methodische Grundlagen weiterentwickelt (PAPRITZ und WEBSTER 1995a; PAPRITZ und WEBSTER 1995b). In diesen Studien wurden Bodengehalte von kleineren – teils belasteten – Gebieten geostatistisch ausgewertet. Grossräumige Aussagen im kantonalen Massstab wurden bisher aber nicht durchgeführt.

Im Rahmen einer Fallstudie wurden die Möglichkeiten und Grenzen einer flächendeckenden Bodenschadstoffkartierung im Schweizer Mittelland erarbeitet. Ziel war die Entwicklung von Karten, deren Massstabsbereich für nationale und eingeschränkt auch kantonale Belange von Interesse ist (1:50.000 bis 1:500.000). Als Untersuchungsgebiet hat sich hierfür der Kanton Thurgau mit einer umfangreichen Bodendatenbank angeboten. In diesem Artikel werden am Beispiel des

Schwermetalls Zink das Vorgehen der geostatistischen Analyse und einzelne Ergebnisse präsentiert. Für weitergehende Informationen wird auf REHBEIN et al. (2007a; 2007b) verwiesen.

2. Untersuchungsgebiet und Datenlage

Der Kanton Thurgau erstreckt sich über eine Fläche von 863 km². Zur Charakterisierung des Gebietes lassen sich vielfältige Informationen aus diversen Kartengrundlagen ableiten. So stehen digital verfügbare kantonale Karten, wie die Bodenübersichtskarte des Kanton Thurgau (PRESLER et al. 2005), und nationale Karten, wie die Arealstatistik oder der hydrologische Atlas der Schweiz, zur Verfügung. Rund 80 % der kantonalen Fläche werden land- und forstwirtschaftlich genutzt, gefolgt von Siedlungsflächen (12,6 %) und Obst- und Gemüsebauflächen (6,7 %).

In der Datenbank des Kantons Thurgau liegen Bodenschadstoffdaten zu 34 Untersuchungskampagnen vor, die sich über 1660 Standorte verteilen. In erster Linie wurden Schwermetalle und in einzelnen Kampagnen auch polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) und polychlorierte Biphenyle (PCB) analysiert. Je nach Zielsetzung des Projektes wurden die Probenahmepunkte zufällig, zufällig stratifiziert oder gezielt ausgewählt. Insbesondere wurden umfangreiche Rasterbeprobungen in land- und forstwirtschaftlichen Gebieten und in Siedlungsbereichen durchgeführt (Abbildung 1). Gezielte Probenahmen erfolgten bei Nachbeprobungen der Rasteruntersuchungen, entlang von Strassen, in Rebbaugebieten, auf ehemaligen Schiessplätzen, im Umfeld geplanter oder existierender Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA), Abwasserreinigungsanlagen (ARA), Verzinkereien, Bitumenfabriken, Deponiestandorten oder im Rahmen von Baugesuchen.

3. Vorgehen, Methodik

Die konzeptionelle Vorgehensweise der geostatistischen Auswertung ist in Abbildung 2 skizziert. Zunächst müssen die Bodendaten validiert werden. Dieser Arbeitsschritt umfasst eine Kontrolle der Daten auf Lesbarkeit und Vollständigkeit, die Prüfung, ob alle zwingend benötigten Metainformationen vorliegen sowie eine Plausibilitätskontrolle der Messwerte. Eine wichtige Voraussetzung für die räumliche Interpolation von Bodendaten ist die Homogenität und Stationarität der Stichprobe. Die Stationarität ist dann erfüllt, wenn die Wahrscheinlichkeit einen bestimmten Messwert bei beliebig vielen Wiederholungen zu erhalten an jedem Ort des Untersuchungsgebietes gleich hoch ist (WEBSTER und OLIVER 2001). Ist die Stationarität gewährleistet, gilt es zu prüfen, ob die Daten ebenfalls homogen sind, d.h. hinsichtlich ihrer Probenahme und Analytik vergleichbar. Man spricht von Homogenität, wenn man annehmen kann, dass die einzelnen Messungen einer Grundgesamtheit entstammen.

Neben den Punktdaten sind für räumliche Auswertungen auch vorhandene digitale Flächendaten von grosser Bedeutung, die es zusammenzutragen und aufzubereiten gilt. In erster Linie interessant sind thematische Karten wie z.B. Landnutzung oder Geologie. Diese und andere Faktoren beeinflussen den Schadstoffgehalt im Boden entscheidend und müssen daher zu den Messwerten – soweit möglich – in Beziehung gesetzt werden. Sie werden als erklärende Variablen bezeichnet. Im Rahmen der Fallstudie wurde der Einfluss von Nutzung, Siedlungsnähe, Geologie, Hauptbodentyp, -art, Höhe, Hangneigung, Exposition, Niederschlag, pH-Wert und organischer Kohlenstoff geprüft.

In unserer Studie wurden nur die anorganischen Totalgehalte berücksichtigt, welche gemäss VBBo beprobt wurden. Für die PAK und PCB lagen zu wenig Daten vor, um diese räumlich

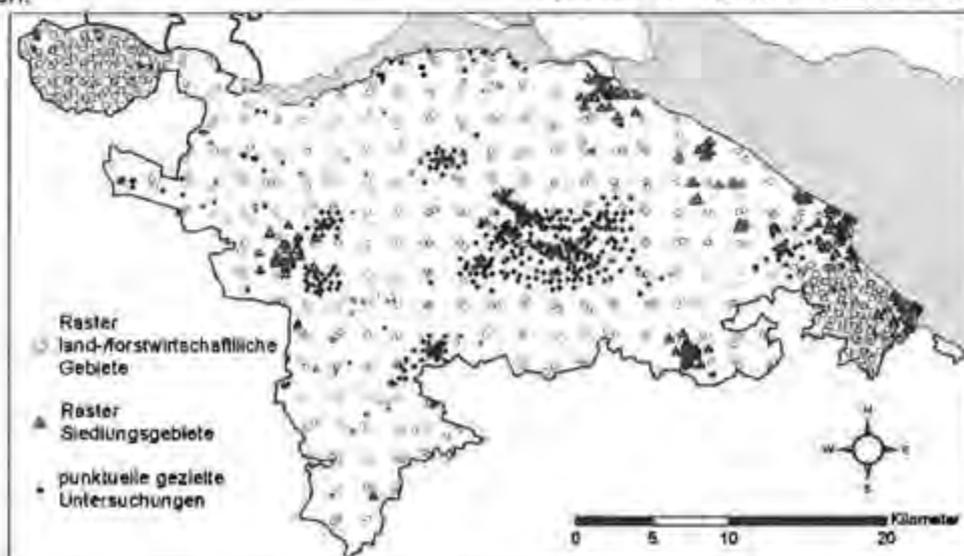


Abb. 1: Standorte der Untersuchungskampagnen im Kanton Thurgau

auswerten zu können. Aus Gründen der Homogenität und Stationarität der Schadstoffdaten wurden verschiedene Datensätze selektiert und ausgewertet, die sich in Bezug auf Nutzungs- und Belastungscharakteristiken unterscheiden. Im vorliegenden Artikel werden Ergebnisse von Datensätzen auf Acker, Grünland und Wald gezeigt. Daten aus Untersuchungskampagnen mit explizitem Belastungsverdacht wurden nicht berücksichtigt. Ausnahme waren Untersuchungskampagnen im Umfeld von Verzinkereien und KVAs, da diese zu grossräumigen Zn-Belastungen führen können, die mit hinreichend genügend Beprobungen räumlich interpolierbar sind. Die Auswertung weiterer Datensätze ist Rehbein et al. (2007a) zu entnehmen.

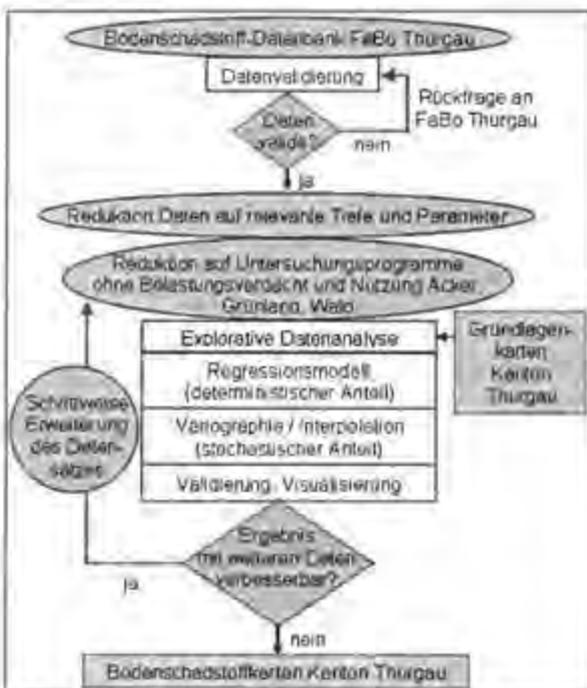


Abb. 2: Ablaufschema zur Erstellung der Bodenschadstoffkarten für den Kanton Thurgau

Im Zuge der explorativen räumlichen Datenanalyse wurden statistische Kenngrössen und Häufigkeitsverteilungen der Zielvariable, Box-and-Whisker-Plots und Streudiagrammen der erklärenden Variablen erstellt sowie die räumliche Verteilung der Daten visualisiert. Anschliessend wurde zur Zerlegung des deterministischen und des stochastischen Anteils das räumliche Interpolationsverfahren Kriging in Verbindung mit einer Regression durchgeführt. Diskutiert wird diese Methode unter anderem von Hengl et al. (2005; 2003; 2004), Moyeed und Papritz (2002), Papritz und Moyeed (1999), Papritz und Dubois (1999) sowie Papritz und Stein (1999). Der deterministische Trend der Zielvariablen, die Zn-Gehalte im Oberboden, wurde mit einer robusten multiplen linearen Regression erfasst und die Residuen der Regression mit der Kriging-

Methode räumlich interpoliert (stochastischer Anteil).

Im Gegensatz zu anderen Interpolationsverfahren wie der Bildung von Thiessen Polygonen oder der Inverse-Distance-Weighted (IDW) Methode (ISAACS und SRIVASTAVA 1989), wird beim Kriging die räumliche Korrelation benachbarter Punkte mit einbezogen, ermittelt in Form eines Semivariogramms. Ein besonderer Vorteil der Kriging-Methode besteht darin, dass neben dem Schätzwert auch der Schätzfehler ausgegeben wird.

Um die Genauigkeit der Interpolation zu illustrieren wurden Prognoseintervalle gebildet und Kreuzvalidierungen durchgeführt. Das Prognoseintervall auf Basis der Schätzvarianzen der Interpolation zeigt auf, in welchen Bereichen die geschätzten Gehalte im Boden aufgrund der geostatistischen Annahmen schwanken können.

Die Kreuzvalidierung liefert die Abweichung zwischen Mess- und Schätzwerten. Als Kenngrössen werden der mittlere Fehler ME (mean error) und die Variabilität der Vorhersage, RMSSE (root-mean-square standardized error), gebildet. Ersterer beträgt im Idealfall 0, letzterer 1. Bei einem RMSSE > 1 wird die Variabilität in der Vorhersage unterschätzt, bei < 1 überschätzt. Zudem wurden als robustes Mass der Kreuzvalidierung der Median des Fehlers MedE und der Median des Absolutbetrages der Fehler MAD (median absolute deviation) berechnet.

4. Ergebnisse und Diskussion

Aus der Validierung selektierten Datensätze (unbelastete Acker-, Grünland-, Waldstandorte plus Standorte in der Umgebung der Verzinkereien und KVAs) resultierten 793 Zinkmesswerte mit den benötigten Metainformationen. Tabelle 1 fasst die Kenngrössen dieser Zn-Gehalte zusammen.

Tabelle 1: Allgemeine statistische Kenngrössen der Zinkdaten (in mg/kg)

	Wert
Anzahl Datensätze	793
Median	47.0
Mittelwert	57.4
Minimum	13.6
Maximum	1570.0
25. Perzentil	37.1
75. Perzentil	59.0
95. Perzentil	100.0
99. Perzentil	260.4

Im Mittel lagen die Zinkgehalte deutlich unterhalb des Richtwertes der VBBö von 150 mg/kg, etwa ein Prozent der Werte darüber. Wie die Differenz zwischen Mittelwert und Median andeutet, waren die Zn-Gehalte rechtsschief verteilt. Nach Logarithmierung (\log_{10}) waren diese annähernd nor-

malverteilt. Im Zuge der räumlichen Datenanalyse wurden die für die Schiefe verantwortlichen hohen Zinkgehalte genauer betrachtet und eliminiert, wenn die Ursache der hohen Zn-Gehalte auf lokale Belastungen zurückgeführt werden konnte.

Die univariate Statistik der erklärenden Variablen zeigte Unterschiede in den Zinkgehalten, vor allem hinsichtlich der Nutzung und des pH-Wertes. Die Zinkgehalte im Wald lagen merklich tiefer als diejenigen auf den Nutzungen Acker und Grünland. Der pH-Wert korrelierte positiv mit den Zinkgehalten. Trotz der deutlichen Reduktion der Datensätze hinsichtlich Nutzungs- und Belastungscharakteristiken waren die 793 Beprobungsstandorte weiterhin gleichmässig über das Kantonsgebiet verteilt.

Im Regressionsmodell wurden die gemessenen Zinkgehalte am besten mit den erklärenden Variablen Nutzung und pH-Wert sowie Niederschlag erklärt. Es wurde ein Bestimmtheitsmass, R^2 , von 0,357 erreicht, d.h. knapp 36 % der Streuung der Zinkgehalte war auf diese drei erklärenden Variablen zurückzuführen (Tabelle 2).

Tabelle 2: Regressionsmodell der logarithmierten Zinkgehalte

Koeffizient	Kategorie	Wert
α		-0.043
β_1 Nutzung	AckGrü*	0
	Wal	-0.126
β_2 pH		0.022
$\beta_3 \log_{10}(\text{Niederschlag})$		0.533
Anzahl Freiheitsgrade		753
adjusted R^2		0.357

*Acker und Grünland nach Arealstatistik 92/97 nicht separierbar

Das Semivariogramm der Residuen des Regressionsmodells zeigte eine räumliche Korrelationsstruktur (Abbildung 3).

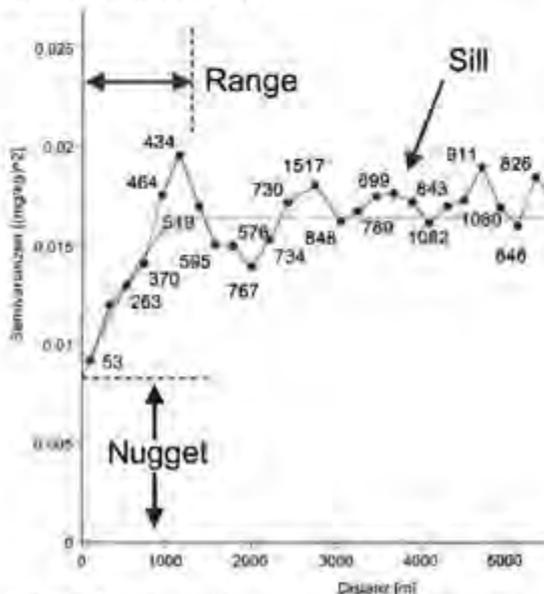


Abb. 3: Semivariogramm der Residualwerte

Die empirischen Varianzen wurden am besten mit einem anisotropen, sphärischen Variogrammmodell angepasst. Die Reichweite der Korrelation (Range) betrug 1300 m. Der Bereich der Semivarianzen im Grundrauschen (Nugget) von etwa $0,008 \text{ mg}^2/\text{kg}^2$ war etwa gleich gross wie derjenige der Streuungen der Semivarianzen bis zum Schwellenwert (Sill).

In Verbindung mit dem sphärischen Variogrammmodell wurden die Residuen mit der Simple Kriging Methode auf ein 1ha-Raster interpoliert. Diese Kriging-Methode setzt einen konstanten, bekannten Erwartungswert voraus, was für die Zn-Residuen des Regressionsmodells nahezu erfüllt ist. Abbildung 4 zeigt die mit der Interpolationsmethode geschätzten Zn-Gehalte im Oberboden des Kantons Thurgau. Verglichen mit dem Mittelwert der gemessenen Gehalte von $57,4 \text{ mg/kg}$ (Tabelle 2) betrug jener der geschätzten Zinkwerte $49,9 \text{ mg/kg}$. Die Streuung der gemessenen Zn-Gehalte wurde durch das Kriging merklich geglättet. Dennoch fiel vor allem die Umgebung einer Verzinkerei als Gebiet mit erhöhten Zinkgehalten bis oberhalb des Richtwertes auf.

Das räumliche Muster der interpolierten Zinkgehalte war geprägt durch die in der Regression verwendeten erklärenden Variablen bzw. deren Regressionskoeffizienten. In erster Linie prägte die Landnutzung das räumliche Muster. Bereiche mit geschätzten Zinkgehalten von $< 40 \text{ mg/kg}$ wurden zum Grossteil für Waldböden ermittelt. Höhere Zn-Gehalte zeigten sich lediglich in Regionen mit hohen mittleren Jahresniederschlägen, insbesondere im höher gelegenen Süden des Kantons. Dort wurde der Nutzungseinfluss durch den im Modell hohen Einfluss des Niederschlags überdeckt. Der pH-Wert spielte entsprechend seines geringen Regressionskoeffizienten nur eine untergeordnete Rolle. Gehalte von $> 70 \text{ mg/kg}$ wurden nur für wenige Stellen prognostiziert. Die Prognoseintervalle der geschätzten Zn-Gehalte von 22 mg/kg bis 206 mg/kg lagen mit 95 % Wahrscheinlichkeit im Bereich von 13 mg/kg und 328 mg/kg . Aufgrund der Verwendung der log-Transformation der Zn-Gehalte für die Interpolation und der entsprechenden Rücktransformation waren die Prognoseintervalle nicht symmetrisch. Der Richtwert der VBBö (1998) von 150 mg/kg Zink wird mit dem 95 % Intervall nicht nur im Umfeld der Verzinkerei, sondern auch in zwei weiteren kleineren Gebieten im Norden und Nordosten überschritten.

Die Ergebnisse der Kreuzvalidierung sind in Tabelle 3 dargestellt. Die sehr kleinen absoluten Fehler sind auf die log-Residualwerte als Ausgangsgrössen zurückzuführen. Verglichen mit anderen im Rahmen der Fallstudie ausgewerteten Datensätzen, Regressionsmodellen, Variogrammfunktionen und Interpolationsmethoden zeigte die Kreuzvalidierung der hier demonstrierten Schätzwerte ein gutes Ergebnis. Der mittlere

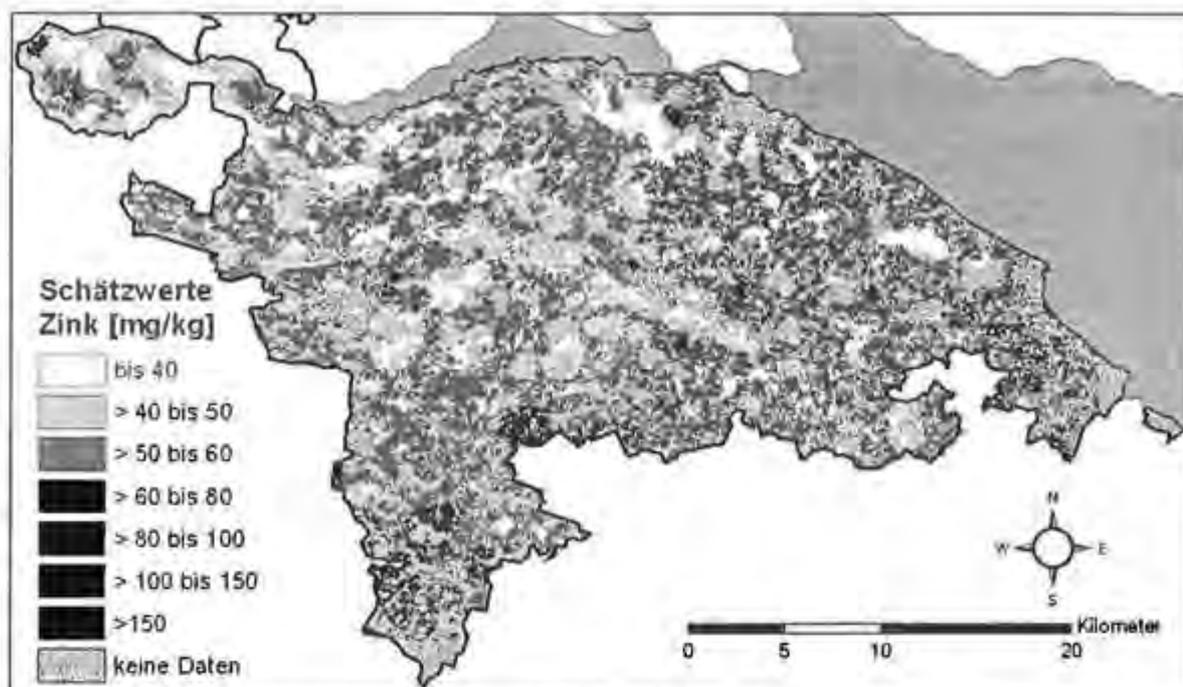


Abb. 4: Interpolierte Zinkgehalte (Simple Kriging)

Fehler und die Mediane tendierten deutlich gegen 0 und die Variabilität der Vorhersage wurde vergleichsweise wenig überschätzt.

Tabelle 3: Kenngrößen der Kreuzvalidierung (in log mg/kg)

Kenngrößen	Wert
Mittlerer Fehler, ME	0.003862
Median des Fehlers, MedE	0.0098
Variabilität der Vorhersage, RMSSE	0.9731
MAD	0.0680

5. Schlussfolgerungen, Empfehlungen und Ausblick

Mit den dargestellten und den gesamthaft in der Fallstudie ermittelten Ergebnissen wurde ein Vorgehen für die Erstellung einer Bodenschadstoffkarte entwickelt, welche die grossräumige diffuse Hintergrundkonzentration der Böden widerspiegelt. Die interpolierten Schadstoffgehalte der Karten bilden somit regional häufig vorkommende Bodengehalte ab, die als Referenz für die Beurteilung von Bodenbelastungen herangezogen werden können. Parzellenscharfe Informationen können und sollen mit diesen Karten nicht dargestellt werden. Die Voraussetzungen im Kanton Thurgau für eine Bodenschadstoffkarte sind hinsichtlich Quantität und Qualität der vorhandenen Daten aussergewöhnlich gut. Wichtigster Baustein sind Rasteruntersuchungen im land- und forstwirtschaftlichen Bereich.

Die gewählte Interpolationsmethodik eines Krigings in Verbindung mit einer Regression erfordert eine vertiefte statistische Analyse. Die in

Frage kommenden erklärenden Variablen liegen nicht immer als Metainformationen direkt vor, sondern müssen aus Kartengrundlagen aufbereitet und den Messpunkten zugeordnet werden. Im Falle der Zinkgehalte konnte aber gezeigt werden, dass die Daten eindeutig einen Trend besaßen (R^2 bis zu 0,57) und damit der grosse Aufwand gerechtfertigt war, um den deterministischen Anteil bestmöglich vom stochastischen zu trennen.

Als erklärende Variablen für die Zinkgehalte im Boden im Kanton Thurgau haben sich vor allem Nutzung, pH-Wert und Niederschlag herausgestellt. Die Einbeziehung oder der Ausschluss einzelner erklärender Variablen konnte das Ergebnis, vom Modell bis zur Aussagegenauigkeit der Karte, entscheidend beeinflussen.

Die durchgeführte Interpolation des Datensatz 793 zeigte, dass das 95 % Prognoseintervall der geschätzten Zinkgehalte im land- und forstwirtschaftlichen Bereich im Kanton Thurgau die Richtwerte der VBBo selten überschreitet. Im Umfeld der Verzinkereien oder KVAs hingegen wurden die Richtwerte lokal teilweise deutlich überschritten.

Abgebildet werden sollten die Karten in einem Massstab von maximal 1:50.000, aufgrund der Datenlage sind aber Karten 1:100.000 realistischer. Mit diesen Massstäben sind alle notwendigen Details für die Ausweisung der diffusen Hintergrundbelastung gut darstellbar, erlauben aber gleichzeitig keine zu kleinräumigen Interpretationen.

Um eine ähnlich gute Schätzung der Schadstoffgehalte auch in anderen Kantonen zu erzielen bedarf es eines geeigneten Beprobungsmusters und einer Homogenität der Daten. Für das Be-

probungsmuster ist neben der Anzahl der Messpunkte deren Verteilung über das Untersuchungsgebiet ausschlaggebend. Eine gleichmässige Verteilung der Beprobungsstandorte über das Untersuchungsgebiet mit einzelnen verdichteten Teilgebieten ist für die räumliche Analyse günstiger als einzelne intensiv beprobte Teilgebiete. Allerdings sind Rasterbeprobungen in den Kantonen – wie im Kanton Thurgau – die Ausnahme, was die Ausgangslage erschwert. Eine wichtige Rolle wird in diesem Zusammenhang zukünftig die im Aufbau begriffene nationale Bodenschadstoffdatenbank spielen. Mit dieser sollen valide interpretierbare, d.h. mit den nötigen Metainformationen versehene Daten, zusammengestellt und vor allem für die kantonalen und nationalen Fachstellen verfügbar gemacht werden.

6. Literatur

- DOBLER, L., A. HINTERDING, A. MÜLLER, N. GERLACH und F. GABEL, 2003: Geostatistische und statistische Methoden und Auswerteverfahren für Geodaten mit Punkt- bzw. Flächenbezug. Abschlussbericht Teil 3: Empfehlungen für die Anwendung statistischer und geostatistischer Methoden zur flächenbezogenen Auswertung von Daten über Stoffgehalte in Böden. Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Bodenschutz (LABO), 55 S.
- GOOVAERTS, P., R. WEBSTER und J.-P. DUBOIS, 1997: Assessing the risk of soil contamination in the Swiss Jura using indicator geostatistics. *Environmental and Ecological Statistics* 1997(4), 31-48.
- HENGL, T., G.B.M. HEUVELINK und A. STEIN, 2003: Comparison of kriging with external drift and regression-kriging. Technical note. ITC, 17 S. (Available on-line at http://www.itc.nl/library/Academic_output/)
- HENGL, T., G.B.M. HEUVELINK und A. STEIN, 2004: A generic framework for spatial prediction of soil variables based on regression-kriging. *Geoderma* 120 (2004), 75-93.
- HENGL, T., G.B.M. HEUVELINK und D.G. ROS-SITER, 2005: About regression-kriging: from theory to interpretation of results.
- ISAAKS, E.H. and R.M. SRIVASTAVA (1989): An Introduction to Applied Geostatistics. Oxford University Press, 561 S.
- MEULI, R., 1997: Geostatistical Analysis of Regional Soil Contamination by Heavy Metals. Diss. ETH No. 12121. Swiss Federal Institute of Technology Zürich, 191 S.
- MEULI, R., R. SCHULIN und R. WEBSTER, 1998: Experience with the replication of regional survey of soil pollution. *Environmental Pollution* 101, 311-320.
- MOYEED, R.A. and A. PAPRITZ, 2002: An empirical comparison of kriging methods for nonlinear spatial point prediction. *Mathematical Geology* 34, 365-386.
- PAPRITZ, A. and R. WEBSTER, 1995a: Estimating Temporal Change in Soil Monitorin: I. Statistical Theory. *European Journal of Soil Science* 46(1), 1-12.
- PAPRITZ, A. and R. WEBSTER, 1995b: Estimating Temporal Change in Soil Monitoring: II. Sampling from Simulated Fields. *European Journal of Soil Science* 46(1), 13-27.
- PAPRITZ, A. and J.-P. DUBOIS (1999): Mapping Heavy Metals in Soil by (Non-)Linear Kriging: An empirical validation. Kluwer Academic Publishers.
- PAPRITZ, A. and R.A. MOYEED (1999): Linear and Non-Linear Kriging Methods: Tools for Monitoring Soil Pollution. In: V. BARNETT, A. STEIN und K.F. TURKMAN (Editors): *Statistics for the Environment 4: Pollution Assessment and Control*. John Wiley & Sons, Ltd, S. 303-336.
- PAPRITZ, A. and A. STEIN (1999): Spatial prediction by linear kriging. In: A. STEIN, F. VAN DER MEER und B. GORTE (Editors): *Spatial Statistics for Remote Sensing*. Kluwer Academic Publishers, S. 83-113.
- PRESLER, J., M. ZÜRERER und G. KAUFMANN, 2005: Bodenübersichtskarte Kanton Thurgau: Schlussbericht. Amt für Umwelt des Kantons Thurgau, Amt für Raumplanung des Kantons Thurgau, Frauenfeld. 104 S. (vorläufige Version)
- REHBEIN, K., A. KELLER und A. DESAULES, 2007a: Digitale Kartierung von Schwermetallgehalten in den Böden des Kantons Thurgau. Teil 1: Methodik. Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, Zürich. (im Druck)
- REHBEIN, K., A. KELLER und A. DESAULES, 2007b: Digitale Kartierung von Schwermetallgehalten in den Böden des Kantons Thurgau. Teil 2: Ergebnisse und Diskussion. Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, Zürich. (im Druck)
- SCHULIN, R., R. WEBSTER, R. MEULI, O. ATTEIA, J.-P. DUBOIS, B. STEIGER VON und J.-C. VÉDY, 1994: Regional Soil Contamination Surveying. *Environmental Documentation No. 25 - Soil*. Federal Office of Environment, Forests and Landscape (FOEFL), Berne. 60 S.
- VBBO, 1998. Verordnung über Belastungen des Bodens (VBBo) vom 1. Juli 1998. SR 814.12.
- VON STEIGER, B., R. WEBSTER, R. SCHULIN und R. LEHMANN, 1996: Mapping heavy metals in polluted soil by disjunctive kriging. *Environmental Pollution* 94(2), 205-215.
- WEBSTER, R. and M. OLIVER (2001): *Geostatistics for Environmental Scientists*. Statistics in Practice. John Wiley & Sons, Ltd, 271 S.

Monitoring de la composition chimique de l'eau dans les sols forestiers: un outil pour évaluer leur acidification

Elisabeth Graf Pannatier, Maria Schmitt, Anne Thimonier, Peter Waldner, Lorenz Walthert, Peter Blaser

Institut fédéral de recherches sur la forêt, la neige et le paysage

Résumé

Afin d'évaluer l'impact des dépôts atmosphériques acides sur les sols forestiers, l'eau du sol est analysée à intervalles de temps réguliers sur neuf placettes d'observation en Suisse. Le rapport entre les cations basiques et l'aluminium (BC/Al) est mesuré dans l'eau afin d'évaluer l'acidification du sol et les risques écologiques associés. A Copera au Tessin, on observe une forte diminution des rapports BC/Al depuis 1987, indiquant une rapide acidification du sol. Sur les deux placettes situées au Tessin, les risques écologiques dus à la toxicité de l'Al paraissent élevés. Sur les autres placettes, en observation depuis 1999, les rapports BC/Al sont restés stables en moyenne, suggérant une faible acidification. Bien que les valeurs BC/Al atteignent parfois la valeur critique de 1, les risques écologiques semblent limités, compte tenu des faibles concentrations des formes d'Al toxiques (Al^{3+} et $AlOH^{2+}$).

Monitoring of water chemistry: a tool to assess acidification in forest soils

The soil water chemistry has been monitored in nine plots in Switzerland to measure the soil response to atmospheric acid deposition. The ratio of base nutrient cations to dissolved aluminium (BC/Al) was used to assess soil acidification and the associated ecological risks. At Copera in Ticino, a significant decrease in BC/Al ratios has been observed since 1987, indicating a rapid soil acidification. In both plots located in Ticino, the ecological risk due to Al toxicity seems to be high. In the other plots, monitored since 1999, the BC/Al ratios have been stable on average, suggesting a weak acidification. The ecological risks are limited, because of low concentrations of toxic Al.

Keywords: soil acidification, soil solution, BC/Al, aluminium

1. Introduction

Les dépôts atmosphériques acides peuvent modifier la chimie des sols et des eaux de percolation dans les écosystèmes forestiers et accélérer leur acidification naturelle. Dans les sols acides en particulier, les apports de substances acidifiantes augmentent la mobilité de l'aluminium (Al) dans le sol, toxique à haute concentration pour les espèces végétales sensibles. Ils entraînent également un lessivage accru des cations basiques (Ca, Mg, K). Ces éléments sont essentiels pour la nutrition des plantes. Un déficit en nutriments peut affecter la production de la biomasse, la santé des arbres ainsi que leur sensibilité aux maladies. Une nutrition déséquilibrée peut nuire à la formation des racines et à leurs fonctions.

Afin d'évaluer l'impact des dépôts atmosphériques sur les sols forestiers, on analyse la composition chimique de l'eau du sol au cours du temps. Le monitoring représente une méthode prometteuse, car l'eau du sol réagit de

manière sensible et rapide aux processus d'acidification. Il est par contre difficile de mettre en évidence des changements dans la phase solide des sols en les analysant à plusieurs reprises. En effet, les variations des concentrations au cours du temps sont faibles par rapport aux valeurs mêmes des concentrations. La variabilité spatiale est aussi souvent plus grande que les fluctuations temporelles.

Dans le cadre du projet de recherches à long terme sur les écosystèmes forestiers (LWF) (Thimonier et al. 2001), l'eau du sol a été échantillonnée sur huit placettes d'observation réparties dans différentes régions de Suisse. Le même type d'analyses a également été effectué depuis 1987 dans une forêt de châtaigniers au Tessin (Blaser et al. 1999). Cette série constitue l'enregistrement probablement le plus long disponible en Suisse.

Depuis la moitié des années 1980, les apports atmosphériques d'acides, sous forme de précipitations et de dépôts secs, ont diminué en Suisse comme en Europe, suite aux dispositions prises par les pays européens pour réduire les

émissions de dioxyde de soufre. Une des questions majeures est de savoir si l'acidification des sols se modifie suite à l'amélioration de la qualité de l'air. Dans cet article, nous utilisons le rapport BC/Al, soit le rapport molaire entre les cations basiques (BC) et l'aluminium (Al) dans l'eau du sol. Cet indicateur, employé dans le calcul des charges critiques d'acidité, permet d'évaluer l'acidification du sol et les risques écologiques associés. Un rapport supérieur à 1 préserverait les arbres d'effets négatifs.

Finalement, nous vérifions si les charges critiques d'acidité, calculées au moyen du modèle SMB, sont dépassées.



Figure 1 : Localisation des sites d'observation où l'eau du sol est échantillonnée.

2. Méthodes

L'eau du sol est prélevée dans différents écosystèmes forestiers : le climat, le type de sol, la végétation diffèrent (Table 1). L'eau du sol est échantillonnée tous les 15 jours depuis 1999 ou 2000 sur huit placettes LWF, ainsi qu'à Copera depuis 1987 (Fig. 1). L'échantillonnage sur l'un des sites, Othmarsingen, a été interrompu après une année.

L'eau du sol est prélevée par succion (500 hPa) à trois profondeurs différentes à l'aide de lysimètres (Graf Pannatier et al. 2004).

Table 1 : Caractéristiques des sites d'observation

Région	Site	Altitude (m)	Type de sol (selon les caractéristiques morphologiques)	Essence principale	Zone des racines (cm)
Jura	Bettlachstock	1200	Sol brun calcaire	<i>Fagus sylvatica</i>	> 120
Plateau	Lausanne	800	Sol brun, pseudogley	<i>Fagus sylvatica</i>	> 240
	Vordemwald	480	Stagnogley	<i>Abies alba</i>	> 120
	Othmarsingen	500	Sol brun lessivé	<i>Fagus sylvatica</i>	> 190
Pré-alpe	Beatenberg	1500	Podzol humique (pseudogley)	<i>Picea abies</i>	55
	Schänis	700	Sol brun, pseudogley	<i>Fagus sylvatica</i>	> 160
Alpes	Celerina	1850	Podzol ferrugineux	<i>Pinus cembra</i>	> 120
Tessin	Novaggio	950	Sol brun	<i>Quercus cerris</i>	> 150
	Copera	650	Podzol	<i>Castanea sativa</i>	> 130

Des plaques gravitationnelles collectent l'eau percolant à travers la litière (0 cm). L'eau est échantillonnée à huit endroits différents selon une grille régulière. Au laboratoire, les huit échantillons prélevés à chaque profondeur sont mélangés et filtrés (0.45 µm). Les paramètres suivants sont ensuite analysés : pH, conductivité électrique, cations et anions majeurs, carbone organique dissous. La spéciation de l'Al dissous a été calculée à l'aide de WHAM 6.0 (2001), en tenant compte des réactions de complexation avec OH⁻, SO₄²⁻, F⁻, Si et les acides fulviques.

La force de succion du sol pour l'eau, ou le potentiel matriciel, a été mesuré au moyen de tensiomètres à plusieurs profondeurs sur les placettes LWF.

Les caractéristiques physico-chimiques des sols, ainsi que les méthodes d'échantillonnage et d'analyse sont décrites dans Walthert et al. (2003).

Les dépôts atmosphériques sont estimés selon la méthode décrite dans Thimonier et al. (2005).

3. Les rapports BC/Al

Les rapports BC/Al mesurés dans l'eau du sol à différentes profondeurs sont illustrés dans la Fig. 2 et la Table 2. Les rapports à Schänis et Bettlachstock sont supérieurs à 100 aux quatre profondeurs analysées, compte tenu du pH élevé dans l'eau du sol. Nous ne reviendrons plus sur ces deux sols car ils ne présentent aucun risque de phytotoxicité de l'Al et possèdent une large capacité à neutraliser les dépôts acides (Walthert et al., 2003).

Sur les autres placettes, les rapports sont supérieurs à 10 sous la litière (0 cm), à l'exception de Vordemwald, du fait des hautes concentrations de cations basiques fournis par la décomposition de la litière et des faibles teneurs en Al. A Vordemwald, les rapports relativement bas s'expliquent par la présence d'Al. Celui-ci provient des horizons inférieurs (Ah et ESw), amené par la remontée hivernale d'une nappe

d'eau perchée (Zimmermann et al., 2006). Les rapports BC/Al atteignent une valeur minimale à 15 cm de profondeur sur toutes les placettes sauf à Beatenberg, car ce sont les horizons minéraux superficiels qui sont le plus acidifiés. A Beatenberg, l'eau prélevée à 15 cm provient des horizons H et Ah, ce qui explique les concentrations relativement basses d'Al par rapport aux teneurs des horizons sous-jacents (horizon E3). Les rapports minimaux se trouvent à 50 cm et 80 cm. Sur les autres placettes, les rapports augmentent en profondeur. Bien qu'on observe des variations saisonnières

ou annuelles, nous n'avons pas décelé de tendance significative à la baisse ou à la hausse des rapports BC/Al sur les placettes LWF, suggérant une faible acidification pendant la période d'observation.

A Copera, on distingue par contre une nette diminution des rapports BC/Al entre 1987 et 2004, indiquant une accélération de l'acidification (Blaser et al., 1999). Une analyse temporelle détaillée montre que les rapports BC/Al se stabilisent à la fin des années 90, suggérant un ralentissement de l'acidification (Graf Pannatier et al., 2005).

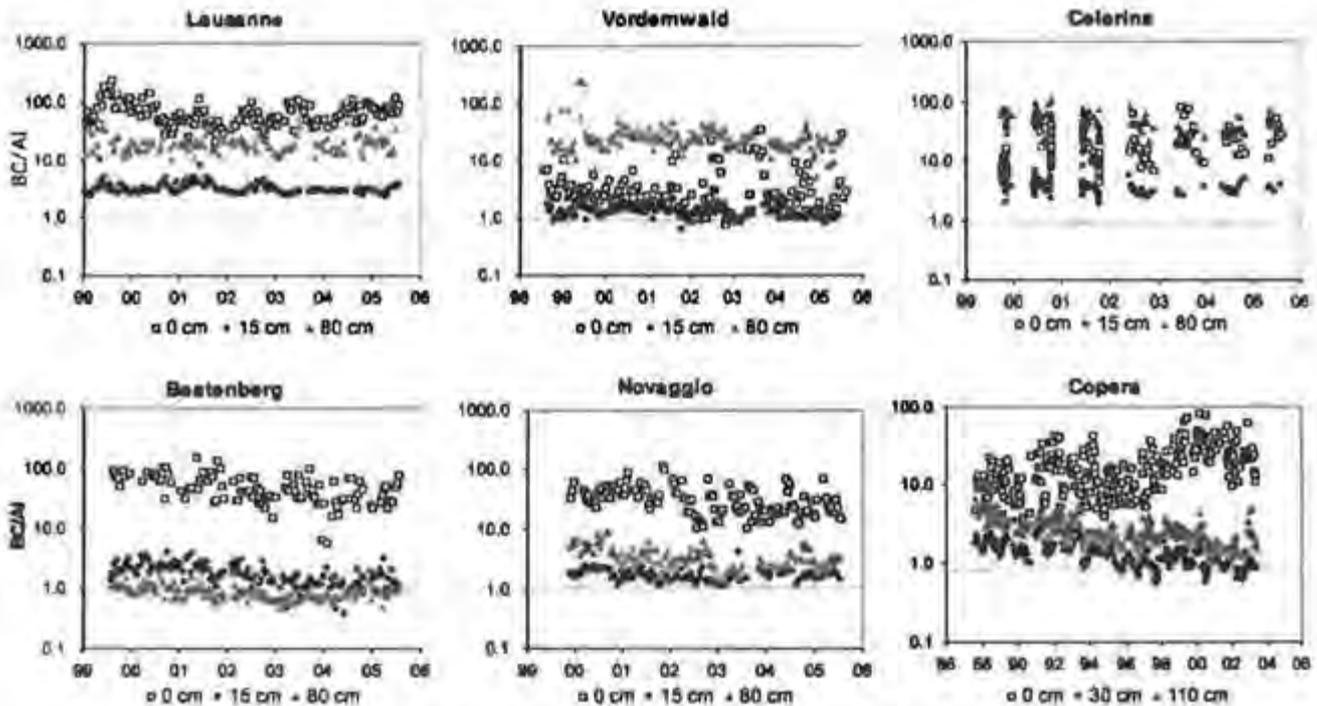


Figure 2 : Rapports BC/Al dans l'eau du sol sur les placettes LWF (Lausanne, Vorderwald, Celerina, Beatenberg, Novaggio) et à Copera sous la litière (0 cm), à 15 cm et 80 cm de profondeur.

4. Les risques écologiques

Le rapport BC/Al est un indicateur fréquemment employé dans le calcul des charges critiques d'acidité pour évaluer les risques écologiques associés à la toxicité de l'Al (Sverdrup et Warfvinge, 1993). Un rapport supérieur à 1 ne devrait pas causer de dommages aux racines des arbres à long terme.

Les rapports BC/Al sont généralement calculés en utilisant les concentrations d'Al total dissous dans l'eau du sol. Or, il s'agit surtout de l'ion Al^{3+} et de l'ion hydroxylé $AlOH^{2+}$ qui sont toxiques pour les racines (Løkke et al. 1996).

Les concentrations des différents complexes d'Al ont été estimées à l'aide d'un programme de spéciation (Wham 6.0, 2001).

A Beatenberg, où les rapports BC/Al à 50 cm et 80 cm sont proches de la valeur critique de 1, l'Al se trouve principalement complexé à la matière organique dissoute (Table 2). Par conséquent, ils ne devraient pas constituer de risque pour la végétation. De plus, les racines des épicéas se situent essentiellement dans la couche organique (horizons F et H), riche en cations basiques et caractérisés par des rapports BC/Al élevés.

Table 2 : Caractéristiques chimiques de l'eau du sol (moyenne 1999-2005)

Site	Horizon	Profondeur (cm)	pH	DOC (mg/L)	BC ($\mu\text{mol/L}$)	Al ($\mu\text{mol/L}$)	BC/Al	$\text{Al}^{3+} + \text{AlOH}^{2+}$ ($\mu\text{mol/L}$)	Al-FA ($\mu\text{mol/L}$)	$\text{BC}/(\text{Al}^{3+} + \text{AlOH}^{2+})$
Bettlachstock	L	0	6.5	27.4	471	1.0	> 100	- ²⁾	- ²⁾	- ²⁾
	A	15	8.3	12.4	1505	< i.d. ¹⁾	> 100	-	-	-
	B	50	8.4	6.1	1620	< i.d.	> 100	-	-	-
	IIBC	80	8.4	5.2	1640	< i.d.	> 100	-	-	-
Lausanne	L	0	5.1	33.5	284	4.7	67.4	-	-	-
	A(Sw)3	15	4.6	4.5	135	44.6	3.2	26.7	6.8	5.2
	B(Sd)1	50	5.0	1.4	112	20.7	5.9	13.5	1.6	9.7
	B(Sd)1	80	5.8	1.0	118	6.4	22.3	-	-	-
Vordemwald	L+F+Ah	0	4.3	38.9	83	28.5	4.2	1.4	32.0	> 100
	ESw	15	4.8	5.6	31	23.4	1.3	10.4	7.9	3.6
	Sw	50	4.9	1.4	55	18.4	3.1	9.8	1.5	6.7
	Sd1	80	5.7	1.2	92	4.1	29.2	-	-	-
Othmarsingen	L	0	5.8	28.9	417	2.2	> 100	-	-	-
	AEI2	15	4.3	12.9	313	60.1	5.4	40.1	15.1	7.4
	Bt	50	4.7	4.1	282	32.5	9.1	17.7	5.1	14.6
	Bt	80	6.1	3.2	335	2.4	> 100	-	-	-
Beatenberg	L+F	0	4.2	34.1	98	2.1	51.4	-	-	-
	H + Ah1	15	3.8	47.5	27	16.4	1.7	< 0.1	16.4	> 100
	E3	50	4.1	31.8	28	34.9	0.8	6.8	29.6	5.1
	E3, Bs,h1	80	4.4	22.3	35	39.3	0.9	11.5	26.9	3.6
Schänis	L	0	7.0	14.6	327	< i.d.	> 100	-	-	-
	AB	15	7.7	4.8	430	< i.d.	> 100	-	-	-
	B(Sd)	50	7.9	1.3	500	< i.d.	> 100	-	-	-
	B(Sd)	80	8.0	1.1	660	< i.d.	> 100	-	-	-
Celerina	L	0	5.1	43.6	195	12.4	22.7	-	-	-
	(E)1	15	5.7	19.4	76	21.2	4.1	< 0.1	20.8	> 100
	B	50	6.6	4.3	51	7.7	17.8	-	-	-
	BC	80	6.8	3.3	63	1.5	47.2	-	-	-
Novaggio	L+F	0	5.0	35.2	213	7.6	33.3	-	-	-
	Ah3+A	15	4.7	6.9	53	31.1	1.7	15.1	10.1	3.6
	AB	50	5.3	2.7	36	13.9	2.6	5.7	3.6	6.7
	B	80	5.2	1.8	35	11.0	3.5	4.1	2.4	13.4
Copera (1999-2002)	L	0	5.0	19.0	191	7.4	30	-	-	-
	(AE)	30	4.7	3.6	48	32.3	1.5	27.6	3.0	1.6
	(Bh)Bs	57	4.8	2.2	76	33.7	2.4	27.3	1.3	2.8
	B(s)C	110	5.1	1.9	64	28.6	2.7	23.6	1.0	2.9

¹⁾ < i.d. = inférieur à la limite de détection (0.56 $\mu\text{mol/L}$)

²⁾ - = pas calculé car rapport BC/Al élevé (> 10)

Sur les placettes du Plateau (Lausanne, Vordemwald, Othmarsingen) ainsi qu'à Celerina, les rapports BC/Al les plus faibles se situent à 15 cm de profondeur (Table 2). Lorsqu'on considère uniquement les formes toxiques de l'Al, les rapports $\text{BC}/(\text{Al}^{3+} + \text{AlOH}^{2+})$ atteignent des valeurs supérieures à 3 (Table 2). De ce fait, ils constituent aujourd'hui un risque limité pour les racines. En outre, les rapports diminuent en profondeur. A 80 cm, toujours dans l'espace racinaire, les rapports $\text{BC}/(\text{Al}^{3+} + \text{AlOH}^{2+})$ sont supérieurs à 100, indiquant que les risques écologiques sont minimes. Il faudra cependant observer leur évolution temporelle, notamment sur les placettes du Plateau, car ces sols sont sensibles aux dépôts atmosphériques acides et leur saturation en bases pourrait diminuer sous leur influence (Walther et al. 2003). Une accélération de l'acidification du sol à Celerina

paraît improbable, car cette placette est située dans une vallée alpine où les dépôts acides sont minimes (Waldner et al., 2006).

A Copera, les formes toxiques de l'Al constituent plus de 80 % de l'Al dissous total à 30 cm, 57 cm et 110 cm de profondeur. Les rapports $\text{BC}/(\text{Al}^{3+} + \text{AlOH}^{2+})$ sont faibles et varient de 1.6 à 2.9 (Table 2), suggérant que le risque d'impacts négatifs dû à l'Al sur les racines est élevé.

A Novaggio, les rapports BC/Al sont plus élevés qu'à Copera, le sol étant moins acidifié (Graf Pannatier et al., 2004). Les valeurs actuelles ne sont pas critiques. Cependant, à long terme, le risque d'impacts négatifs est élevé, comme à Copera. Ces deux sols, perméables et développés à partir de substrat acide, sont sensibles aux dépôts acides. Ces derniers retombent en quantité importante sur ces deux placettes, compte tenu des émissions locales et de longue distance d'azote et de soufre et des

fortes précipitations dans la région (Graf Pannatier et al., 2005 ; Waldner et al., 2006).

5. Les charges critiques d'acidité

Les charges critiques d'acidité ont été calculées avec le modèle SMB (« simple mass balance ») sur les placettes LWF (Waldner et al. 2006). Ce modèle a été appliqué à l'échelle de la Suisse pour les sols forestiers (Rihm 1994). Il considère un espace racinaire de 50 cm d'épaisseur pour les sites situés en dessous de 1600 m d'altitude et de 35 cm pour les sites entre 1600 m et 2000 m (Rihm, 1994). Comme les racines ont été observées à de plus grandes profondeurs sur les placettes LWF, nous avons également calculé les charges critiques en utilisant un espace racinaire de 120 cm qui est la profondeur minimale observée, à l'exception de Beatenberg. Pour cette dernière placette, nous avons utilisé un espace de 55 cm (Table 1).

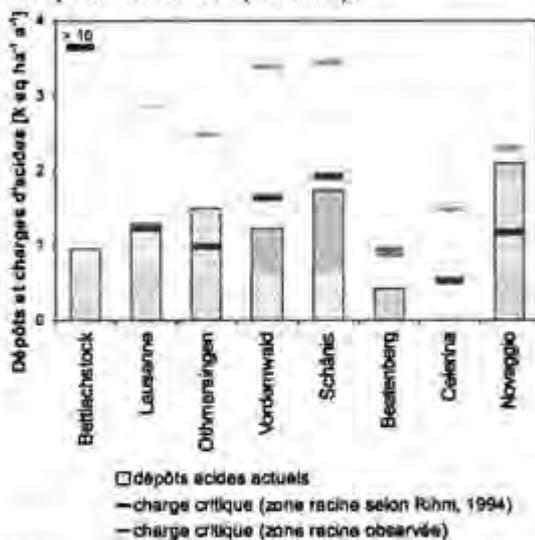


Figure 3 : Dépôts atmosphériques acides actuels sur les placettes LWF et charges critiques (Waldner et al., 2006).

Les charges critiques d'acidité calculées avec les estimations de Rihm (1994) sont relativement basses (0.5- 2.0 keq ha⁻¹ a⁻¹), à l'exception de Bettlachstock où la charge critique est supérieure à 10 (Fig. 3). Le sol à cet endroit est calcaire (Table 1) et, par conséquent, peut tamponner de larges quantités de dépôts acides. Lorsqu'on compare les dépôts atmosphériques d'acides avec les charges critiques, on s'aperçoit que celles-ci sont dépassées à Lausanne, à Othmarsingen et à Novaggio (Fig. 3). Ces estimations suggèrent qu'il existe un risque élevé d'impacts négatifs sur les racines si les dépôts acides continuent à tomber en excès. A Vordemwald, Schanis et Beatenberg, les dépôts acides ne sont que légèrement inférieurs aux seuils critiques et pourraient aussi constituer un risque écologique à long terme.

Lorsqu'on introduit dans le modèle l'espace

racinaire observé, on obtient des charges critiques presque deux fois plus élevées, à l'exception de Beatenberg où l'estimation de Rihm (1994) correspond aux observations (Fig. 1). Les dépôts atmosphériques acides sont inférieurs aux seuils critiques sur toutes les placettes LWF. Ils sont toutefois très proches des valeurs critiques à Novaggio. Ces estimations nous montrent que l'épaisseur de l'espace racinaire joue un rôle important pour le calcul des charges critiques.

Les processus de diffusion de cations basiques vers les horizons supérieurs peuvent également modifier la composition chimique de l'eau du sol (Grigal et Ohmann, 2005) et diminuer les risques écologiques. Ces processus ne sont pas pris en compte dans le modèle SMB.

Ils pourraient toutefois jouer un rôle important dans les sols hydromorphes, développés à partir d'un substrat calcaire et caractérisés par un fort gradient du taux de saturation en cations basiques dans l'espace racinaire. C'est le cas de plusieurs placettes LWF situées sur le Plateau suisse. A Vordemwald, le taux de saturation augmente de 5% dans l'horizon Sd1 (60 - 100 cm) à 63% dans l'horizon sous-jacent Sd2 (100 - 155 cm) (Fig. 4). Le gradient du taux de saturation est également marqué à Lausanne, ainsi qu'à Othmarsingen (Walthert et al., 2003). La présence d'horizons peu perméables sur ces trois sites réduit le lessivage des nutriments en profondeur. Les cations basiques provenant de la partie supérieure du sol enrichissent les horizons inférieurs où l'eau de pluie s'accumule, compte tenu de leur faible conductivité hydraulique. Lorsque le sol en surface s'assèche en été, les eaux accumulées en profondeur remontent par capillarité et apportent des nutriments provenant des horizons inférieurs. Ces processus causent une augmentation des concentrations de cations basiques dans l'eau du sol à 80 cm de profondeur (Table 2).

6. Les travaux futurs

Compte tenu des limitations du modèle SMB, des modèles dynamiques sont utilisés pour prédire l'impact de différents scénarios de réduction d'émissions sur les sols forestiers. Le modèle SAFE a été utilisé à l'échelle suisse (Kurz et al., 1998), mais les résultats n'ont pas pu être confrontés à la réalité du terrain. Le monitoring de la composition chimique de l'eau du sol offre la possibilité de valider ces modèles. Afin d'obtenir une meilleure estimation des risques écologiques au niveau suisse, il nous faut également déterminer la proportion et la distribution géographique des sols acides développés à partir d'un substrat calcaire. Ceux-ci peuvent avoir une influence positive sur les rapports BC/Al dans l'espace racinaire.

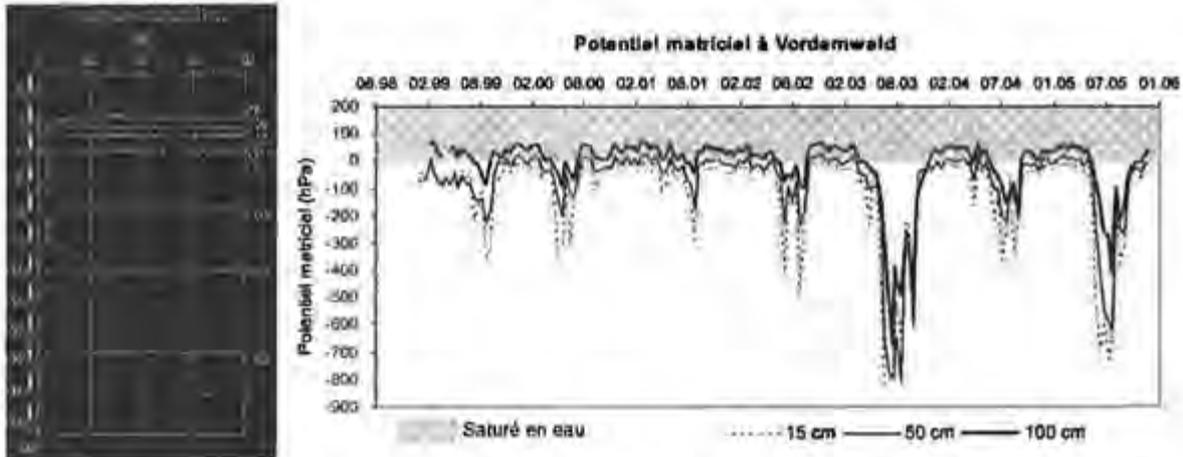


Figure 4 : A gauche : taux de saturation en cations basiques à Vordemwald (Walther et al. 2003).
A droite : Potentiel matriciel à 15 cm, 50 cm et 100 cm de profondeur à Vordemwald.

Bibliographie

- Blaser, P., M. Zysset, S. Zimmermann et J. Luster, 1999: Soil Acidification in Southern Switzerland between 1987 and 1997: A Case Study Based on the Critical Load Concept. *Environmental Science & Technology* 33, 2383-2389.
- Graf Pannatier, E., J. Luster, S. Zimmermann et P. Blaser, 2005: Acidification of Soil Solution in a Chestnut Forest Stand in Southern Switzerland: Are There Signs of Recovery? *Environmental Science and Technology* 39, 7761-7767.
- Graf Pannatier, E., L. Walther et P. Blaser, 2004: Solution chemistry in acid forest soils: Are the BC: Al ratios as critical as expected in Switzerland? *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* 167, 160-168.
- Grigal, D. F. et P.R. Ohmann, 2005 : Calcium and forest systems: diffusion from deep sources. *Soil Science* 170, 129-136.
- Kurz, D., M. Alveteg et H. Sverdrup, 1998 : Integrated assessment of soil chemical status. 2. Application of a regionalized model to 622 forested sites in Switzerland. *Water, Air and Soil Pollution* 105 (1-2), 11-20.
- Løkke, H., J. Bak, U. Falkengren-Grerup, R. D. Finlay, H. Ilvesniemi, P. H. Nygaard et M. Starr, 1996: Critical Loads of Acidic Deposition for Forest Soils: Is the Current Approach Adequate? *Ambio* 25, 510-516.
- Rihm, B. (1994): Critical loads of acidity for forest soils and alpine lakes. Steady state mass balance method. *Environmental Series* 234, Office fédéral de l'environnement, Berne, 68 pp.
- Sverdrup, H. et P. Warfvinge, 1993: The effect of soil acidification on the growth of trees, grasses and herbs as expressed by the $(Ca + Mg+K)/Al$ ratio. *Reports in Ecology and Environmental Engineering* 1993:2, Department of Chemical Engineering II, Lund University.
- Thimonier, A., M. Schmitt, P. Cherubini et N. Kräuchi (2001): Monitoring the Swiss forest: building a research platform. In T. Anfodillo and V. Carraro: *Monitoraggio ambientale: metodologie ed applicazioni*. Atti del XXXVIII Corso di Cultura in Ecologia, S. Vito di Cadore, Centro Studi per l'Ambiente Alpino, Università degli Studi di Padova, p.121-134.
- Thimonier, A., M. Schmitt, P. Waldner et B. Rihm, 2005 : Atmospheric deposition on Swiss long-term forest ecosystem research (LWF) plots. *Environmental Monitoring and Assessment* 104, 81-118.
- Waldner, P., M. Schaub, E. Graf Pannatier, M. Schmitt, A. Thimonier, L. Walther, 2006 : Atmospheric deposition and ozone in Swiss forests. Are critical values exceeded? *Environmental Monitoring and Assessment* (accepté).
- Walther, L., P. Blaser, P. Lüscher, J. Luster, et S. Zimmermann (2003): *Langfristige Waldökosystem-Forschung LWF. Kernprojekt Bodenmatrix. Ergebnisse der ersten Erhebung 1994-1999*. Internet < <http://e-collection.ethbib.ethz.ch/cgi-bin/show.pl?type=bericht&nr=276> >. Zürich, Eidg., Techn. Hochschule. 340 pp. + Anhang 153 pp. [pdf].
- WHAM 6 (2001): *Windermere Humic Aqueous Model, Equilibrium chemical speciation for natural waters, Version 6.0*. @Natural Environment Research Council.
- Zimmermann, S., J. Luster, P. Blaser, L. Walther et P. Lüscher, 2006: *Waldböden der Schweiz. Band 3. Regionen Mittelland und Voralpen*. - Birmensdorf, Eidg. Forschungsanstalt WSL; Bern, hep Verlag. 848 pp.

Sickerwasserbeschaffenheit von Rückstandshalden des historischen Bergbaus

Peter Spatz, solum büro für boden + geologie, Freiburg i. Brg., peter.spatz@solum-freiburg.de
Rainer Olschewski, Landratsamt Ortenaukreis, Rainer.Olschewski@ortenaukreis.de
Manfred Martin, Regierungspräsidium Freiburg, Abt. 9, manfred.martin@rpf.bwl.de
Hartmut Schirg, Regierungspräsidium Freiburg, Abt. 5, Hartmut.Schirg@rpf.bwl.de

Zusammenfassung

Rückstandshalden des historischen Erzbergbaus stellen auf Grund hoher Schwermetallgehalte eine potentielle Gefährdung für das Schutzgut Grundwasser dar. Ziel der Untersuchung war, die Prognosesicherheit bei der Gefährdungsabschätzung durch in situ-Messungen von Bodensickerwasser mittels Saugkerzen zu verbessern.

Trotz hoher Feststoffgehalte in den Rückstandshalden wurden im Sickerwasser nur für Cadmium und Zink Konzentrationen gemessen, die über den Prüfwerten nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) lagen.

Die Untersuchungen zeigten, dass die Herkunft des Haldenmaterials (Gangtyp) einen entscheidenden Einfluss auf die Mobilität der Schwermetalle hat (z.B. durch hohe Pufferkapazität von Karbonaten aus Siderit).

Auf Grundlage der im Modellvorhaben gewonnenen Erkenntnisse wurde eine Konzeption zur schematischen Erkundung und Bewertung von Bergbaurückstandshalden entwickelt.

Abstract

Waste rock piles of historic ore mining are a potential risk for groundwater. Aim of the investigation was to improve prediction for risk assessment in using suction cups for in-situ sampling seepage water.

In spite of high heavy metal concentrations in soil and rock the concentrations in seepage water were very low, except for cadmium and zinc which exceeded trigger values according to the Federal Soil Protection and Contaminated Sites Ordinance (BBodSchV).

The investigation showed that the mobility of heavy metals depends in a high grade on the type of lode (e.g. high buffering capacities of carbonate from siderite).

Based on results of this showcase a conception for a schematic investigation and assessment was developed.

Key words: historic mining, heavy metal, risk assessment, seepage water, in situ sampling

Einleitung

In Baden-Württemberg sind im Rahmen einer vom Umweltministerium beauftragten Erhebung ca. 400 Rückstandshalden mit erheblichem Schadstoffpotential erfasst worden (FRITSCH und SCHMITZ, 1996). Etwa 170 dieser Rückstandshalden liegen im Regierungsbezirk Freiburg.

Eine große Zahl dieser Rückstandshalden ist bisher lediglich einer vorläufigen, aber nicht abschließenden Bewertung entsprechend der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV, 1999) unterzogen worden.

Für die Gefährdungsabschätzung beim Wirkungspfad Boden-Grundwasser werden in der Praxis i.d.R. Eluatkonzentrationen nach DEV-S4 oder Bodensättigungsextrakt herangezogen. Da diese Analysenmethoden teilweise mit Unsicherheiten verbunden sind (LICHTFUSS 1997, LICHTFUSS und BORCHERT 2003), wurde in diesem

Modellvorhaben die Methodik der in-situ Sickerwasserbeprobung mittels Saugkerzen eingesetzt.

Von dem Modellvorhaben werden im Hinblick auf die Betrachtung des Wirkungspfades Boden bzw. Halde – Grundwasser verallgemeinerungsfähige Erkenntnisse erwartet, die zukünftig bei der technischen Erkundung und Bewertung von Rückstandshalden helfen sollen, die Prüfschritte der Altlastenbearbeitung zu erleichtern bzw. im Aufwand zu reduzieren.

Standort

Das ca. 4 ha große Untersuchungsgebiet liegt im Naturraum "Mittlerer Schwarzwald" in einem Seitental der Kinzigniederung auf der Gemarkung Biberach (TK 25 Blatt 7614 Zell a. H.). Die Pingereihe entstammt der frühesten Abbauperiode, deren Anfang in das 13. Jhd. gestellt werden kann. Mit Unterbrechungen wurde der Abbau bis ins 18. Jhd. betrieben (BLIEDTNER und

MARTIN, 1986). Der Erzgang gehört zu der im Kinzigtal häufig auftretenden Gruppe der Baryt-Fluorit-Gänge mit Blei- und Zinkerzen. Der Ganginhalt besteht in der Reihenfolge abnehmender Häufigkeit aus Baryt (BaSO₄), Quarz, Goethit (FeOOH), Siderit (FeCO₃), Dolomit, Bleiglanz (PbS), Zinkblende (ZnS), Fahlerz (Cu₃AsSbS_{3,25}), Pyrit (FeS₂), Pyromorphit (Pb₅Cl(PO₄)₃) und Cerussit (PbCO₃).

Im Rahmen der bodenkundlichen Kartierung wurden im Untersuchungsgebiet insgesamt 6 Bodeneinheiten unterschieden (SOLUM, 2003). Bei den natürlichen Böden handelt es sich überwiegend um mittlere bis mäßig tiefgründige Braunerden aus mittel bis stark grushaltigem, schluffigem bis lehmigem Sand (40 – 50 cm) über stark bis sehr stark grushaltigem, schluffi-

gem bis lehmigen Sand mit Steinen (40 – 80 cm) über Festgestein oder Hangschutt.

Die anthropogenen Böden der Halden, Pingen und Terrassenverebnungen sind als Regosole und Braunerde-Regosole, selten als mittel bis mäßig tiefe Braunerden zu bezeichnen. Die Bodenarten wechseln von mittel bis stark grushaltigem, schluffigem bis lehmigem Sand (20 – 30 cm) über stark bis sehr stark grushaltigem, schluffigem bis lehmigen Sand mit Steinen (80 – > 100 cm) über Grus und Steinen.

Die pH-Werte (CaCl₂) im Oberboden schwanken zwischen 3,3 und 3,5. In den Halden steigen die pH-Werte im Unterboden auf Grund der carbonatischen Mineralien auf bis zu 5,6 an. Für einen ausgewählten Haldenstandort sind in den Tabellen 1-2 die bodenphysikalischen und – chemischen Basisdaten dargestellt.

Tabelle 1: Korngrößenverteilung „Halde oben“

	Tiefe	Grobboden				Summe	Verteilung Feinboden (Summe =100%)			Bodenart
		> 63	20-63	6,3-20	2-6,3		>2mm	S	U	
Horizont	[cm]	Gew. %					Gew. %			(KA4)
jjAh	0-10	0	7,0	24,1	20,9	34,5	47,0	41,4	11,7	Slu,gr3
jjBv-Cv	10-30	3,3	30,6	21,9	17,0	68,1	61,3	30,6	8,1	Sl3,gr5,x2
jjlCv1	30-60	0	16,1	33,3	18,7	68,8	60,0	32,2	10,8	Sl3,gr5
jjlCv2	60-90	0	45,1	32,8	9,0	87,4	56,6	31,5	11,8	gmGr,s,u
jjlCv3	90-140	5,4	36,4	33,3	13,7	88,9	65,4	26,9	7,7	gGr,s,u

Tabelle 2: Standort „Halde oben“, KAK_{eff} n. MEIWES et al. (1984) [cmolc/kg], Basensättigung (BS) und Kationenbelegung [%]

Horizont	Tiefe [cm]	pH (CaCl ₂)	KAK eff	BS [%]	Ca	Mg	Na	K	Al	H
jjAh	0-10	3,34	4,6	29,8	17,5	3,8	1,0	3,9	70,2	3,6
jjBv-Cv	10-40	4,53	1,3	100	71,7	14,8	3,3	10,3	< 4	0,0
jjlCv1	40-60	5,45	4,5	100	83,1	11,0	0,8	5,1	< 1	0,0
jjlCv2	60-90	5,63	6,3	100	81,9	12,2	0,6	4,5	< 1	0,0

Methodik

Feststoff

Zur Erfassung des Stoffbestandes wurden 4 Leitprofile (2 Haldenstandorte: „Halde oben“, „Halde unten“, sowie 2 natürliche Standorte: „Granit“, „Gneis“) angelegt und horizontbezogen beprobt. Analysenumfang und -methoden werden in Tabelle 3 dokumentiert. An repräsentativen Proben der Rückstandshalden wurden zusätzlich spezifische mikroskopische und analytische Untersuchungen zur Bestimmung der Gangart durchgeführt.

Sickerwasser

Zur Erfassung des Sickerwassers wurden insgesamt 4 Saugkerzenstationen (2 in Rückstandshalden, 2 in natürlichen Böden) installiert. In den Bergbauhalden wurden Glassinterkerzen (Porendurchmesser 1-1,6 µm) lotrecht in Tiefen von ca. 3,6 m und 4,6 m eingebaut. Bei den natürlichen Standorten wurden Nylon/PE-Saugkerzen (Porendurchmesser min. 0,45 µm) eingesetzt, die im 30°-Winkel in ca. 60-70 cm Tiefe eingebaut wurden.

Die Messdauer (wöchentliche Probennahme, 14-tägige Mischprobe zur Analyse) erstreckte sich über ein halbes Jahr vom 1.1.04 bis 30.06.04.

Tabelle 3: Parameterumfang und Analysenmethodik der Feststoffproben

Parameter	Methode	untersuchte Bodenfraktion
Schwermetalle und Arsen	Extraktion in Königswasser gemäß DIN ISO 11465	Feinboden < 2 mm Grobboden > 2 mm
	Sequentielle Extraktion in Anlehnung an ZELEN und BRÜMMER (1989)	Feinboden < 2 mm der Haldenstandorte
pH-Wert	DIN ISO 10 390 (CaCl ₂ -Methode)	Feinboden < 2 mm
Effektive Kationenaustauschkapazität (KAK eff.) + Kationenbelegung	Ammoniumchloridextraktion nach MEIWES et al. (1984)	Feinboden < 2 mm

Ergebnisse

Feststoffgehalte

Sowohl in Fein- und Grobfraktion beider Haldenstandorte sind Arsen, Blei, Cadmium und Zink mit hohen Gesamtgehalten im Feststoff vertreten. Die Schadstoffgehalte der Feinfraktionen (<2mm) sind i.d.R. überwiegend höher als die der Grobfraktionen. Die Konzentrationen erreichen Maximalwerte von 15'000 mg/kg für Blei, 44 mg/kg für Cadmium, 460 mg/kg Arsen und 5'000 mg/kg bei Zink (Tabelle 4). An den natürlichen Standorten wurden Schwermetallkonzentrationen im Hintergrundbereich ermittelt.

Die Ergebnisse der sequentiellen Extraktionen weisen deutlich auf eine in den obersten Haldenhorizonten ablaufende Abreicherung von Cadmium und Zink hin. Die in mobilisierbarer und leicht nachlieferbarer Bindungsform vorliegenden Cadmium- und Zinkanteile nehmen mit der Tiefe zu, wobei insbesondere beim Cadmium die Anteile der Fraktion I dominieren. In den untersten analysierten Horizonten ist Zink bis zu 40 %, und Cadmium teilweise zu mehr als 60 % in den Fraktionen I und II gebunden. Die in der Feinfraktion festgestellten Cadmium- und Zinkgehalte nehmen nicht nur zur Haldenoberfläche hin ab, gleichzeitig steigen zur Haldenoberfläche hin auch die prozentualen Gehaltsanteile der stabil in amorphen und kristallinen Eisenoxiden bzw. residual gebundenen Schwermetallanteile (Fraktionen V – VII) auf 60 bzw. 80 % an.

Bemerkenswert ist der Gehalt an Siderit (FeCO₃), der neben einer sehr geringen Komponente von Dolomit für den Carbonatgehalt des Haldenmaterials verantwortlich ist. Versauerungsreaktionen im Haldenmaterial werden also zunächst durch die Auflösung von Siderit und – untergeordnet – von Dolomit abgepuffert.

Sickerwasserbeschaffenheit

Die pH-Werte der Sickerwässer zeigen einen deutlichen Unterschied zwischen den natürlichen Böden und den Haldenstandorten (Abb. 1). Die relativ hohen Werte bei den Halden sind auf die Carbonatpufferung im Haldenmaterial zurückzuführen.

Die Sickerwasserkonzentrationen schwankten im halbjährlichen Untersuchungszeitraum in der Regel in vergleichsweise engen Bereichen. Tabelle 5 zeigt die Mittelwerte sowie die MIN und MAX-Werte der Messperiode.

Nur Cadmium und Zink werden in relevanten Konzentrationen aus den Halden ausgetragen (Abb 2). Die Konzentrationen für Blei schwanken zwischen 0,2 µg/l und 15,3 µg/l, wobei der höchste Wert an einem natürlichen Standort gemessen wurde (Abb. 3). Die Arsenkonzentrationen sind durchgängig vernachlässigbar klein (max. 0,8 µg/l). Der Verlauf der Aluminiumkonzentrationen zeigt den Einfluss der versauerten Unterböden an den natürlichen Standorten (Abb.4). Prüfwerte nach BBodSchV werden nur bei Cadmium und Zink überschritten.

Tabelle 4: Analysenergebnisse „Standort Halde oben“, Grob- und Feinbodenfraktion [in mg/kg]

Horizont	Tiefe [cm]	Fein/Grob Gew. %		Pb	Cd	Zn	Cr	Cu	Ni	Hg	As
		fein	grob								
Ah	0-10	fein	65,53	6.300	2,1	1.050	27,0	64,0	26,0	0,55	185
		grob	34,47	11.000	5,9	1.650	22,0	105,0	35,0	0,55	130
jJBv-IIcV	10-30	fein	31,88	16.500	13,5	3.300	16,0	240,0	55,0	1,45	460
		grob	68,12	12.500	21,0	3.500	15,0	125,0	41,0	0,82	220
IIcV1	30-60	fein	31,21	10.000	26,0	4.000	24,0	145,0	65,0	0,72	280
		grob	68,79	5.900	21,0	3.000	19,0	80,0	47,0	0,44	175
IIcV2	60-90	fein	12,61	4.000	44,0	4.100	35,0	82,0	89,0	0,36	195
		grob	87,39	7.800	24,0	3.500	16,0	89,0	45,0	3,00	230
IIcV3	90-140	fein	11,15	14.500	28,0	5.000	14,0	280,0	58,0	1,20	370
		grob	88,85	9.800	29,0	4.600	14,0	160,0	45,0	0,23	135

Tabelle 5: Sickerwasserkonzentrationen (ausgewählte Parameter): MIN- MAX- und Mittelwerte [µg/l]

Standort	Pb			Cd			Zn			As		
	Min	Mittel	Max	Min	Mittel	Max	Min	Mittel	Max	Min	Mittel	Max
	µg/l			µg/l			µg/l			µg/l		
Halde oben	3,7	7,8	13,2	14,2	16,7	20,5	1.990	2.331	3.031	0	0,1	0,7
Halde unten	0,9	1,6	3,2	1,3	2,8	4,8	109	956	5.660	0,5	0,7	0,8
Gneis	0,2	0,8	5,1	0,3	0,4	0,5	22	157	759	0	0	0
Granit	0,3	7,4	15,3	0,1	0,3	0,6	24	102	276	0	0	0
Quelle	2,7	3,4	4,4	3,2	3,9	4,1	463	1.088	4.170	0,8	0,9	1
Prüfwert BBodSchV	25			5			500			10		

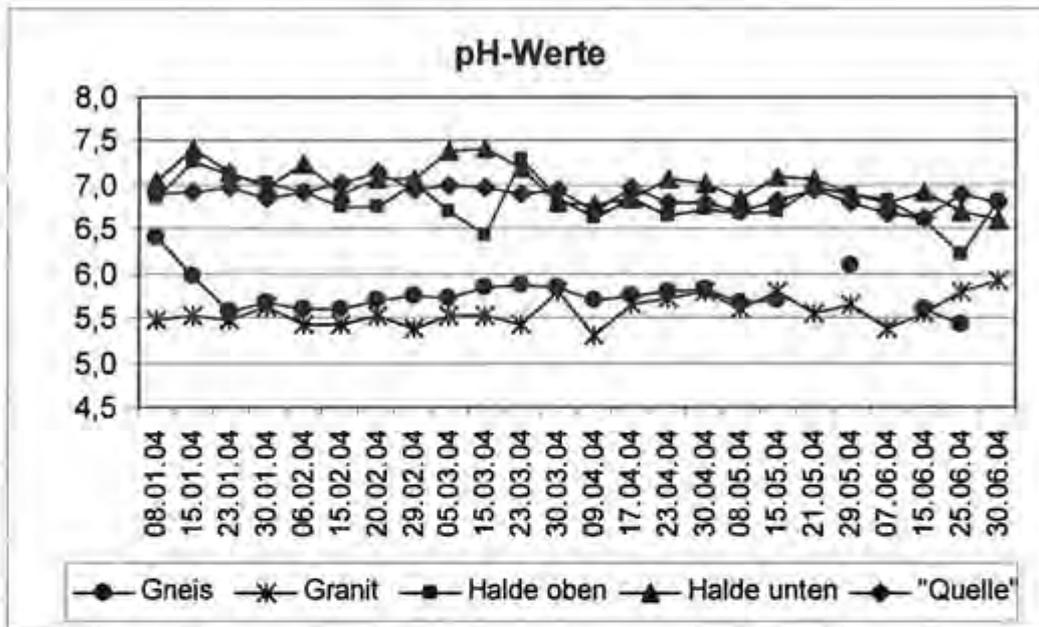


Abbildung 1: Verlauf der pH-Werte

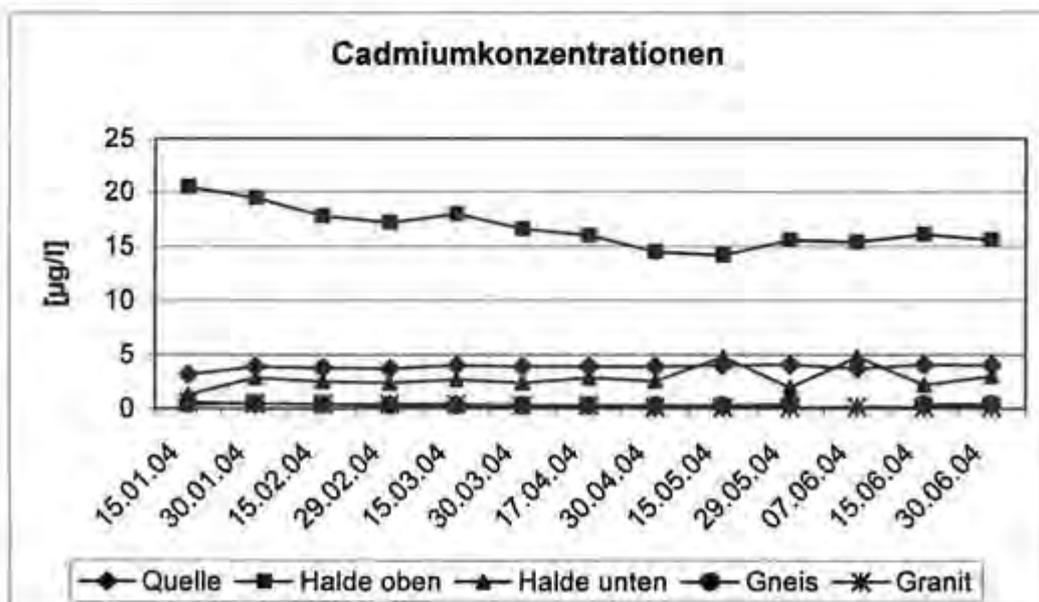


Abbildung 2: Verlauf der Cd-Konzentrationen

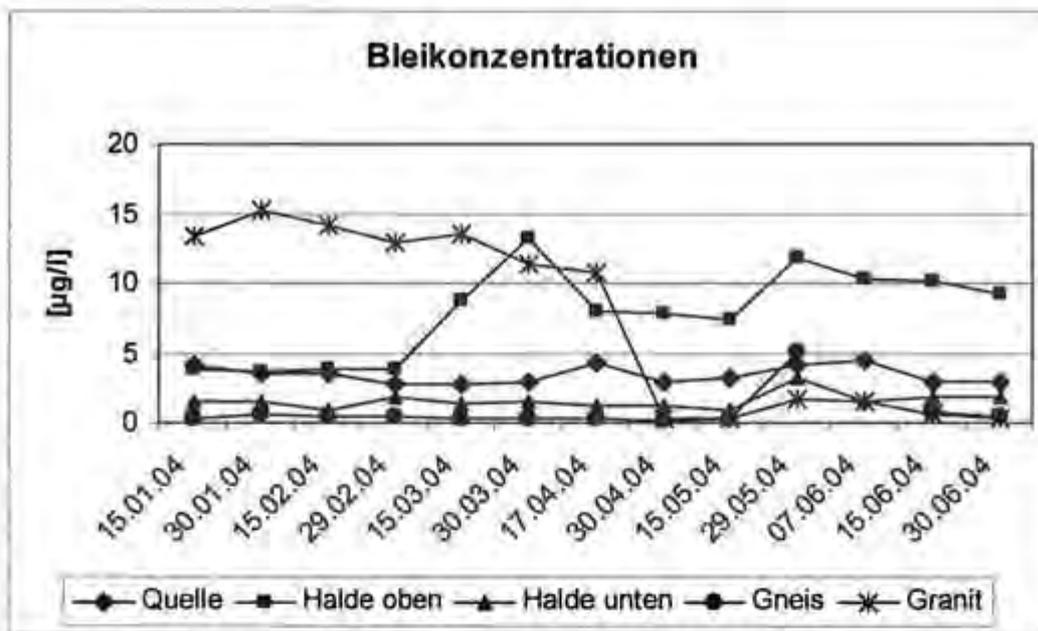


Abbildung 3: Verlauf der Bleikonzentrationen

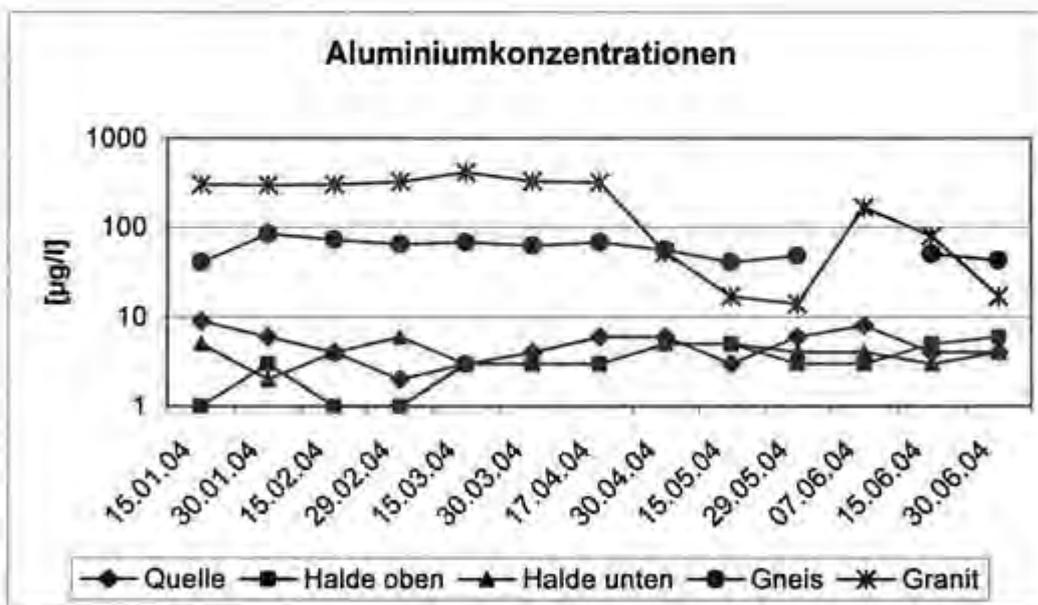


Abbildung 4: Verlauf der Aluminiumkonzentrationen

Fazit

Entgegen der Annahme, dass hohe Gesamtgehalte auch zu hohen Sickerwasserkonzentrationen führen, wurden außer bei Zink und Cadmium keine Prüfwertüberschreitungen n. BBodSchV festgestellt. Arsen wird unter den gegebenen Standortverhältnissen (oxidierende Bedingungen) trotz hoher Feststoffgehalte nicht ausgetragen.

Am Granitstandort (natürlicher Boden) wurden auf Grund tiefergründiger Versauerung im Sicker-

wasser für Blei kurzzeitig höhere Konzentrationen als in den Bergbauhalden gemessen.

Die Herkunft (Gangtyp) des Haldenmaterials hat entscheidenden Einfluss auf die Mobilität der Schwermetalle (z.B. durch Carbonatpufferung im Untergrund).

Das Gefährdungspotential für das Grundwasser ist demnach als gering einzustufen, da die Konzentrationen der problematischen Schwermetalle entweder unter den Prüfwerten n. BBodSchV lagen oder die überschlägig berechneten Frachten kleiner als der Emax-Wert waren (VwV, 1993).

Die Sickerwasserbeprobung mittels Saugkerzen lieferte plausible Werte für eine verbesserte Gefährdungsabschätzung. Die Saugkerzenmethode empfiehlt sich damit für den Einsatz sowohl bei Erkundungen wie auch beim Monitoring zur Beweissicherung von ähnlich gelagerten Fällen.

Auf Grundlage der im Modellvorhaben gewonnenen Erkenntnisse und Auswertung von Literatur (u. a. WIEBER 2000, 2003) wurde eine Konzeption zur schematischen Erkundung und Bewertung von Bergbaurückstandshalden entwickelt.

Literatur

- BBODSCHV (1999): Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung. – Bundesgesetzblatt, Nr. 36, Teil I, Seite 1554 ff., 16.07.1999
- BLIEDTNER, M., und M. MARTIN (1986): Erz- und Minerallagerstätten des Mittleren Schwarzwaldes - eine bergbaugeschichtliche und lagerstättenkundliche Darstellung, S. 190-192, Geologisches Landesamt Baden-Württemberg, Freiburg
- FRITSCH, R. und J. SCHMITZ (1996): Bestandsaufnahme von Rückstandshalden aus Bergbau und Erzaufbereitung in Baden-Württemberg. Wissenschaftliche Berichte FZKA 5769B, Forschungszentrum Karlsruhe, im Auftrag des Umweltministeriums Baden-Württemberg
- LICHTFUSS, R. (2003): Verfahren zur Abschätzung von anorganischen Schadstoffkonzentrationen im Sickerwasser nach der Bundesbodenschutzverordnung. Vergleichbarkeit, Messunsicherheit, Aussagefähigkeit. in: Münchner Beiträge zur Abwasser-, Fischerei- und Flussbiologie, Tagungsband der 56. Fachtagung Stoffbewertung und Gewässerökologie, Sickerwasserprognose Forschung und Praxis am 08./09.10.2002, Seiten 1-24, Oldenburg Verlag, München
- LICHTFUSS, R. und U. BOCHERT (1997): Methodische Probleme bei der Gewinnung von Bodenelektroden (DEV S4) für die Schwermetallanalytik – Ergebnisse von Ringversuchen. – Mitteilgn. Dtsch. Bodenkundl. Gesellschaft, Band 85/1, S. 283 – 286, Oldenburg
- MEIWES, K.J., KÖNIG, N., KHANNA, P.K., PRENZEL, J. und B. ULRICH (1984): Chemische Untersuchungsverfahren für Mineralböden, Auflagehumus und Wurzeln zur Charakterisierung und Bewertung der Versauerung in Waldböden. – Berichte des Forschungszentrum Waldökosysteme/ Waldsterben, Band 7, Seiten 1 – 76
- SOLUM, büro für boden + geologie (2003): Haldenfeld Teufelswald, Bericht zu den bodenkundlichen Untersuchungen, im Auftrag des Regierungspräsidiums Freiburg; unveröffentlicht
- SPATZ, P., OLSCHESKI, R., MARTIN, M., SCHIRG, H. (2005): Sickerwasserbeschaffenheit von Rückstandshalden des historischen Bergbaus, in: Freiburger Forstliche Forschung, Wasserversorgung in bewaldeten Gebieten, Berichte, Heft 62, Freiburg
- WIEBER, G. (2003): Die Beschaffenheit von Grubenwässern des ehemaligen Erzbergbaus: hydrogeochemische Grundlagen und Praxisbeispiele aus dem westlichen Rheinischen Schiefergebirge. – Giessener Geologische Schriften, Nr. 70: S. 21 – 57
- WIEBER, G. (2000): Bergbaufolgelandschaften: Buntmetallanreicherungen und Stoffausträge am Beispiel ehemaliger Blei-Zink-Erzbergwerke an der unteren Lahn, Rheinisches Schiefergebirge. - in: Umwelt, Geowissenschaften Bergbau und Umwelt (Hrsg. Wippermann, Th.) - langfristige geochemische Einflüsse
- VwV (1993): Gemeinsame Verwaltungsvorschrift des Umweltministeriums und des Sozialministeriums über Orientierungswerte für die Bearbeitung von Altlasten und Schadensfällen vom 16.9.1993; GABl. 41 Jg., Nr. 33 vom 30.11.1993, S. 1115 - 1123
- ZEIEN, H. und G.W. BRÜMMER (1989): Chemische Extraktionen zur Bestimmung von Schwermetallbindungsformen in Böden. – Mitteilgn. Dtsch. Bodenkundl. Gesellschaft, Band 59/1, S. 505 – 510, Oldenburg

Dieses Modellvorhaben wurde finanziert durch: Ministerium für Umwelt und Verkehr, Baden-Württemberg

SCHADSTOFFE IN DEN SEDIMENTEN DES BODENSEES

Martin Wessels, Harald Hetzenauer, Henno Roßknecht

Institut für Seenforschung an der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg (LUBW), Postfach 4253, D-88081 Langenargen

Zusammenfassung

Im Bodensee wurden anorganische und organische Schadstoffe in datierten Sedimentkernen und Oberflächensedimenten analysiert. Die Konzentrationen der meisten organischen Schadstoffe haben ein deutliches Maximum in den 60er und 70er Jahren des letzten Jahrhunderts und nehmen zur Oberfläche hin ab (z.B. Dioxine, Organozinnverbindungen). In den heutigen Sedimentoberflächen lassen sich einige Stoffgruppen nicht nachweisen (z.B. Pharmazeutika) oder liegen nur wenig über den Bestimmungsgrenzen (Bromierte Flammenschutzmittel, PCB's). Andere toxikologisch sehr bedenkliche Einzelverbindungen (Benzo(a)pyren, Nonylphenol, Oktylphenol, DEHP) sind gut nachweisbar, liegen jedoch in Konzentrationen ohne akute Toxizität vor. Die Konzentrationen fast aller Metalle liegen heute auf dem Niveau des geogenen Hintergrundes und zeigen eindrucksvoll den Erfolg der Bemühungen zur Gewässerreinigung im Einzugsgebiet des Bodensees.

Abstract: harmful substances in sediments of Lake Constance

In Lake Constance, organic and inorganic pollutants were analyzed in dated sediment cores and sediment surface samples. Concentrations of most organic pollutants have a prominent maximum in the 1960's-1970's and decrease to the sediment surface (e.g. dioxins, organotin compounds). In present day sediment surfaces, some analytical groups are not detected (e.g. pharmaceuticals) or have values close to the detection limit (brominated flame retardants, PCB). Other toxic substances as (Benzo(a)pyrene, Nonylphenole, Oktylphenole, DEHP), are well detected, but have concentrations below critical toxic levels. Today, concentrations of almost all metals are close to geogenic background values which impressively indicates the success in water protection measures at Lake Constance.

Keywords: Lake Constance, sediment, persistent organic pollutants, pop, PBDE

1. Einleitung

Seesedimente sind Lebensräume für viele Organismen, Reaktor mit komplexen chemischen Umsetzungsprozessen und nicht zuletzt ein nützliches Archiv zur Rekonstruktion vergangener Umweltbedingungen. Im Bodensee wurde seit Beginn der 1960er Jahre die Eutrophierung und Reoligotrophierung intensiv beobachtet. Mit umfangreichen und langfristigen Untersuchungsprogrammen wurden viele chemische (Nährstoffe, Schadstoffe) und biologische Parameter (Algen, Zooplankton, z.T. auch Makrobenthos) untersucht (IGKB 2004). Diese Entwicklung lässt sich mit Hilfe von Sedimentkernen sehr gut nachvollziehen und in Zeiträume extrapolieren, die weniger gut mit Daten aus der Wassersäule dokumentiert sind (FÖRSTNER und MÜLLER 1974, WESSELS et al. 1998, WESSELS und SCHRÖDER 1998).

Neben diesen „klassischen“ Parametern der Gewässerbelastung lassen sich in jüngerer Zeit sogar in hochalpinen Seen und deren Einzugsgebieten persistente organische Verbindungen („POP“) und Schwermetalle nachweisen, die in der Regel über die Luft eingetragen werden und

im Ökosystem See bzw. Seeboden akkumulieren (z.B. GRIMALT et al. 2004, SCHEFFKNECHT et al. 2003).

Auch im Bodensee wurden Untersuchungen zu Arzneimittelrückständen und organischen Spurenstoffen im Sediment und Wasser vorgenommen, die allerdings analytisch und räumlich wenig umfassend waren (MÜLLER 1977, ROßKNECHT, 1992, ROßKNECHT et al. 2001). Zu Dioxinen im Sediment liegen wenige Daten aus einer älteren Studie vor (HAGENMAIER 1987, unveröffentlicht).

Das Institut für Seenforschung der Landesanstalt untersuchte im Projekt „Bodensee-Untersuchung-Seeboden“ (BUS) den derzeitigen Zustand des Seebodens. Wesentliche Fragestellungen sind die Bestandsaufnahme der Lebensgemeinschaften, der grundlegenden sedimentologischen Parameter und der chemischen Charakterisierung des Ablagerungsraumes (ISF 2006). Hier interessieren insbesondere, welche Nährstoffe und Schadstoffe in den Ablagerungen vorhanden sind und ob diese gegebenenfalls remobilisiert werden können. Die wichtigsten Resultate für die organischen und anorganischen chemischen Schadstoffe werden in diesem Beitrag umrissen.

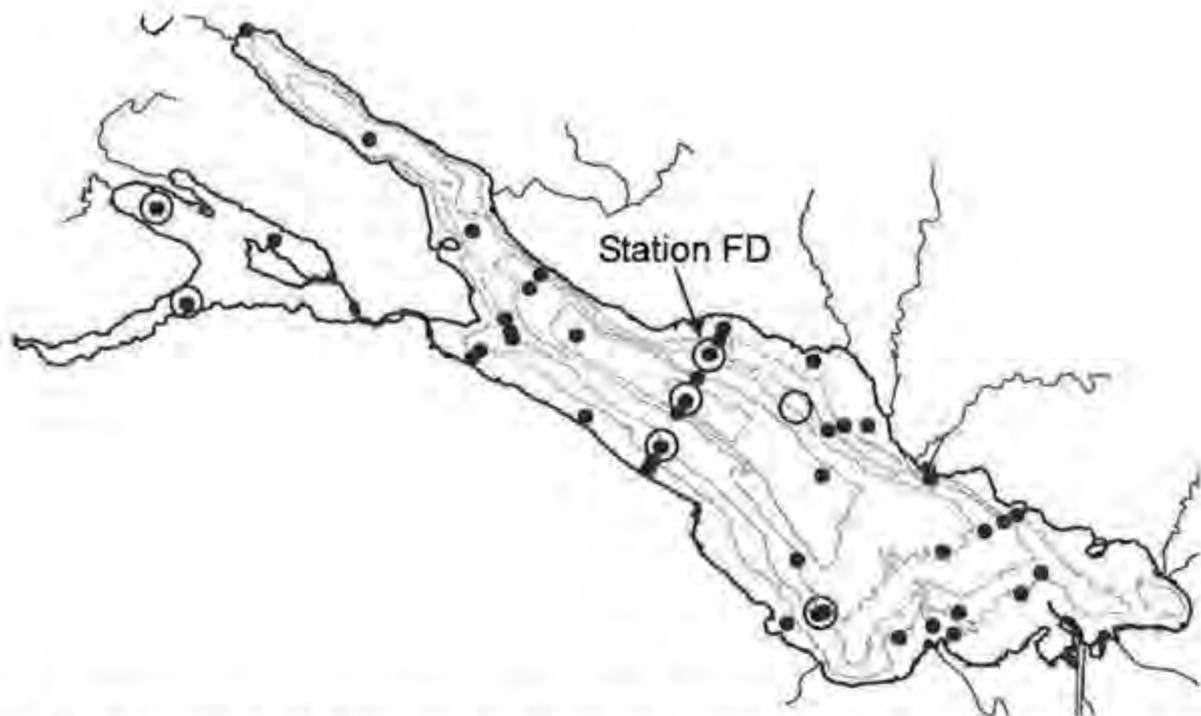


Abb. 1: Probenstellen im Bodensee für das Projekt „Bodensee-Untersuchung-Seeboden“ (BUS). Ausgefüllte kleine Kreise zeigen die Oberflächenproben (0-1 cm) des Jahres 2004. Große Kreise zeigen die Positionen der Sedimentkerne aus dem Jahr 2005.

2. Material und Methoden

Zwischen Januar und März 2004 wurden an insgesamt 48 Stationen im Bodensee mit einem selbst konstruierten Probenahmegerät bis zu 12 Sedimentkerne je Station entnommen (Abb. 1). Die Probenahmestellen wurden ausgewählt, um unterschiedliche Bereiche des Sees zu erfassen (z.B. Ufernähe, Wassertiefe, Beeinflussung durch Flussmündungen, unterschiedliche Seeteile, Nähe zu Siedlungen), vorhandene Informationen aus älteren Arbeiten einzubeziehen, und um möglicherweise vorhandene Gradienten verfolgen zu können (z.B. entlang von Zuflüssen, vom Nordufer zum Südufer).

Für die chemische Analytik wurde je Station aus einem Kern das Tiefenintervall 0-1 cm entnommen und gefriergetrocknet. Fünf Teilmengen zwischen 1 g und 50 g der getrockneten Proben wurden an externe Labore verschickt oder im eigenen Labor untersucht. Von jeweils drei Parallelkernen bestimmten wir zur Beschreibung der Lithologie Korngrößen, Mineralbestand sowie die Kohlenstoff- und Schwefelgehalte. Die restlichen Kerne waren der Bestimmung biologischer Parameter vorbehalten.

Zur Erfassung der langfristigen Trends bei den Schadstoffgruppen entnahmen wir im Frühjahr 2005 insgesamt sieben Sedimentkerne und beprobten diese in Zentimeterschritten. Die Datierung erfolgte bei vier Kernen mit ^{137}Cs , drei andere konnten über das Abzählen von Hoch-

wasserlagen auf ein bis zwei Jahre genau datiert werden. Danach wurden die Einzelproben zu möglichst gleichen, ca. 10-20 Jahre repräsentierenden Zeitintervallen zusammengemischt und analog den Oberflächenproben an die Labore verteilt. Die sedimentologischen Analysen an den Sedimentkernen wurden an den zentimetermächtigen Einzelproben vorgenommen, um die möglicherweise vorhandene Variabilität (z.B. Hochwasser-einträge) innerhalb des Zeitintervalls bei der Interpretation berücksichtigen zu können. Sämtliche Stoffgruppen, Analyseverfahren, beteiligte Labore und die verwendeten Methoden sind an anderem Ort ausführlicher beschrieben (ISF 2006, IGKB 2007) bzw. bei den Autoren erhältlich.

3. Ergebnisse und Diskussion

Metalle

Die Analyse der Metallkonzentrationen in den Sedimentoberflächen zeigt, dass insgesamt keine flächendeckenden grösseren Kontaminationen im See vorhanden sind. Lediglich lokal lassen sich einzelne Belastungsschwerpunkte erkennen (z.B. Chrom in der Rorschacher Bucht).

Im Vergleich mit den Resultaten von drei, etwa 5000 Jahre alten Sedimentproben aus der Friedrichshafener Bucht am Nordufer des Sees (WESSELS 1995) liegen die heutigen Metallgehalte in der Grössenordnung der Schwan-

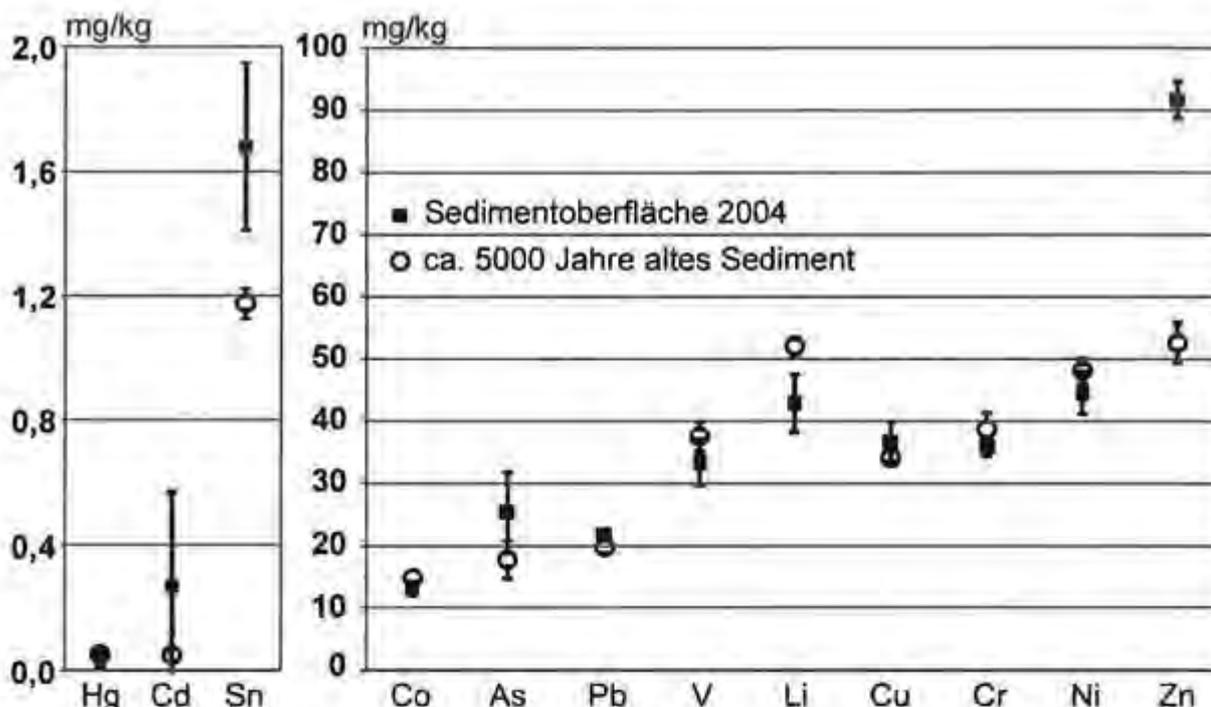


Abb. 2: Metallgehalte in Sedimentoberflächen der Friedrichshafener Bucht am Nordufer des Sees liegen wie etwa 5000 Jahre alte Ablagerungen in der Grössenordnung des geogenen Hintergrundes.

kungsbreite des geogenen Hintergrundes (Abb. 2). Nur bei Zink liegen die Maximalkonzentrationen mit ca. 100 mg/kg etwa doppelt so hoch wie der Hintergrundwert.

In den Sedimentkernen findet sich das Maximum der Metallkonzentrationen um 1960, was in etlichen älteren Arbeiten und präziser beprobten Kernen bereits festgestellt wurde (z.B. FÖRSTNER und MÜLLER 1977, WESSELS und SCHRÖDER 1998).

Mit den flächendeckenden Untersuchungen der Sedimentoberflächen konnte gezeigt werden, dass der anthropogene Schwermetalleintrag erheblich zurückgegangen ist und man bei nur sehr wenigen, lokal eng begrenzten Arealen noch erhöhte Stoffkonzentrationen findet. Diese Stoffgruppe ist somit im Regelfall kein Problem für die aquatische Umwelt im Bodensee.

Organische Schadstoffe

Organische Schadstoffe in den Oberflächensedimenten zeigen ein uneinheitliches Bild (Tab. 1). Einige Stoffgruppen mit toxikologisch bedenklichen Einzelverbindungen konnten häufig und gut quantifizierbar nachgewiesen werden (z.B. Phthalate (DEHP), PAH's (Benzo(a)pyren) und Phenole (Nonylphenol, Oktylphenol). Die mittlere Konzentration bei den nachweisbaren Einzelverbindungen reicht von 30 ng/kg (BDE 180) bis knapp 3 mg/kg (DEHP). Andere Stoffgruppen, wie die Trialkylphosphate, lagen nur geringfügig über der Nachweisgrenze, aber unterhalb der Bestimmungsgrenze (Werte unter der Bestimmungsgrenze können identifiziert aber

nicht aber nicht hinreichend genau quantifiziert werden). Pharmazeutika und Duftstoffe, die sich im Wasser nachweisen liessen (ROßKNECHT et al. 2001), fanden wir nicht im Sediment. Die in der Vergangenheit häufig bei Schiffsanstrichen oder auch als Pflanzenschutzmittel verwendeten Organozinnverbindungen (Triphenylzinn, Tributylzinn) wurden nur in jeweils einer Oberflächenprobe nachgewiesen. In der Regel ist die Verteilung der organischen Schadstoffe in den Oberflächensedimenten vom Gehalt an organischem Kohlenstoff abhängig. Höhere Konzentrationen sind insbesondere in der Nähe von Flussmündungen (Argen und Schussen am Nordufer) bzw. in Buchten zu finden (Steinacher und Rorschacher Bucht am Südufer).

In den Sedimentkernen liegt bei fast allen Parametern das Konzentrationsmaximum der organischen Schadstoffe zwischen etwa 1950 und 1980. Dieses Maximum ist von Vorgängeruntersuchungen im Wesentlichen bekannt (MÜLLER 1977, ROßKNECHT 1992), und wurde für diese Untersuchung mit einer grossen Anzahl zusätzlicher Parameter an weiteren Kernen aus unterschiedlichen Seeteilen bestätigt und präzisiert.

Stellvertretend sollen hier Konzentrationen der Dioxine und Furane, DDE, PBDE sowie die Korngrössen in einem durch Abzählen von Jahreslagen gut datierten Kern aus der Friedrichshafener Bucht gezeigt werden (Abb. 3).

Tabelle 1: Organische Stoffe in den Oberflächensedimenten des Bodensees. Aufgeführt sind lediglich Stoffe mit mindestens einem Messwert über der Bestimmungsgrenze (BG). Bei **fett gedruckten** Verbindungen sind mehr als 90 % der Messwerte grösser oder gleich der Bestimmungsgrenze, bei kursiv gesetzten Stoffen sind weniger als 10 % der Messwerte grösser oder gleich der BG. Aus finanziellen Gründen konnten nicht an allen Proben alle Parameter bestimmt werden (N = 23 bzw. N = 43).

Stoffgruppe		BG (µg/kg)	Anzahl N	N ≥ BG	Mittelwert (µg/kg)	Max. (µg/kg)
Halogenbenzole	Pentabrombenzol	0.1	23	9	0.08	0.5
	Pentabromtoluol	0.1	23	6	0.11	1.0
	1,2,4,5-Tetrabrombenzol	0.1	23	15	0.42	2.0
	Hexabrombenzol	0.1	23	12	0.46	1.8
Halogenphenole	2,4-Dibromphenol	0.1	23	21	0.21	0.6
	2,4,6-Tribromphenol	0.1	23	22	1.59	5.3
Organozinn-Verbindungen	<i>Triphenylzinn</i>	20	23	1		23.0
	<i>Tributylzinn</i>	20	23	1		26.0
Polycyclische Aromatische Kohlenwasserstoffe (PAH)	Anthracen	5	43	10	3.84	16.1
	<i>Acenaphthen</i>	65	43	4		121
	Benzo(k)fluoranthren	10	43	30	20.0	124
	Benzo(a)anthracen	15	43	35	26.5	88.6
	Indeno(1,2,3-cd)pyren	50	43	6	26.9	428
	Benzo(a)pyren	13	43	30	30.8	138
	Chrysen	15	43	34	32.9	102
	Benzo(ghi)perylen	15	43	30	34.5	260
	Benzo(b)fluoranthren	8	43	40	46.6	331
	Phenanthren	45	43	28	48.2	116
	Pyren	40	43	34	70.6	191
Fluoranthren	35	43	38	79.5	220	
Polybromierte Diphenylether (PBDE)	<i>BDE180</i>	0.4	23	1		0.4
	BDE154	0.1	23	8	0.11	0.4
	BDE153	0.1	23	11	0.16	0.5
	BDE100	0.1	23	20	0.39	1.3
	BDE28	0.1	23	23	0.75	6.0
	BDE99	0.1	23	23	1.27	3.5
	BDE47	0.1	23	23	4.65	46.7
Polychlorierte Biphenyle (PCB)	PCB-28	0.2	43	16	0.20	1.1
	PCB-52	0.2	43	26	0.27	1.0
	PCB-101	0.2	43	41	0.74	1.8
	PCB-180	0.2	43	42	0.74	2.1
	PCB-153	0.2	43	43	1.34	3.0
	PCB-138	0.2	43	43	1.42	3.1
Phenolische Desinfektionsmittel	Triclosan	0.1	23	23	19.4	64.4
Phenolische Xenoestrogene	Bisphenol A	0.1	23	23	29.5	75.1
	Octylphenol	0.1	23	23	29.6	198
	Nonylphenole	0.1	23	23	139	553
	Butylphenol	0.1	23	23	174	640
	Butylhydroxytoluol	0.1	23	23	933	3698
Phthalate	Benzylbutylphthalat	1	23	23	53.1	172
	Diethylphthalat	1	23	23	93.3	478
	Di-isobutylphthalat	1	23	23	345	1102
	Di-n-butylphthalat	1	23	23	639	2332
	Di(ethylhexyl)phthalat	1	23	23	2899	12972
Sonstige Polymerkomponenten	Tetrabrombisphenol A	0.1	23	23	1.39	5.3
	Terephthalsäure	1	23	23	473	1534
	4-Hydroxybenzoesäure	1	23	23	476	1226

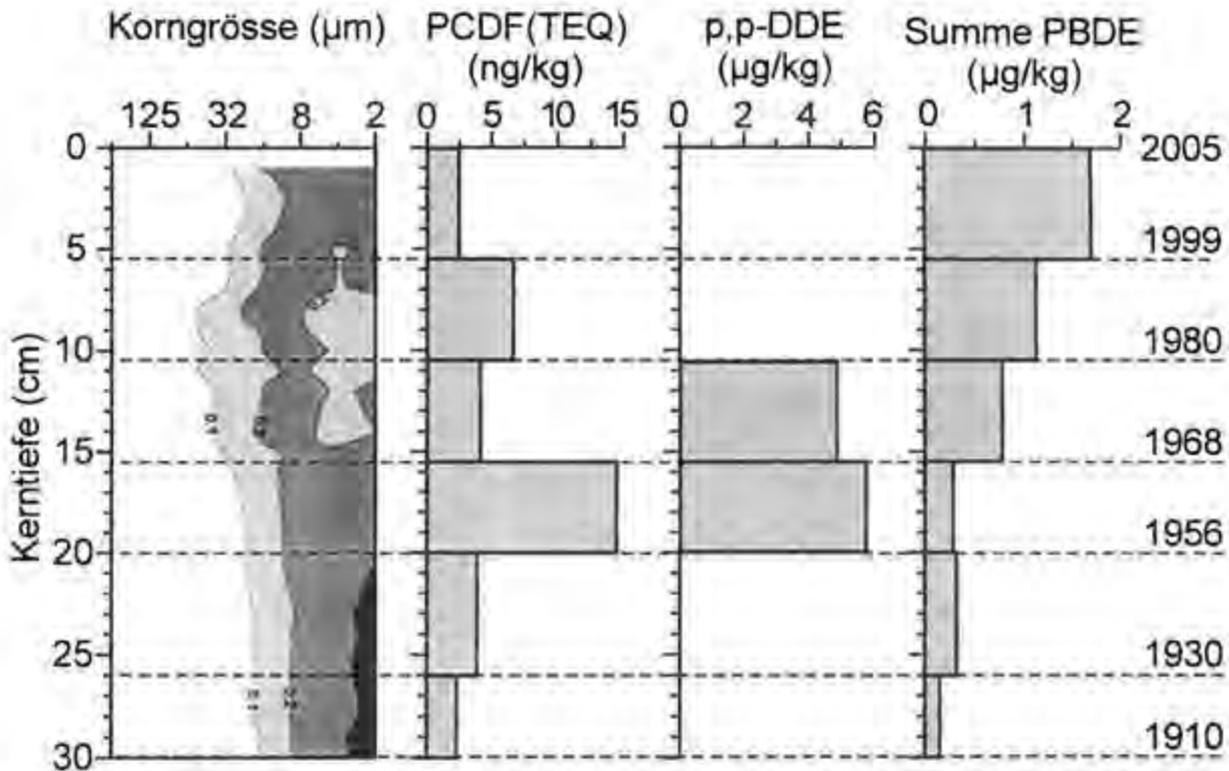


Abb. 3 : Korngrößen und organische Schadstoffe eines Sedimentkerns von der Stelle FD am Nordufer des Bodensees (s. Abb. 1). Dioxine/Furane (PCDF) sowie das DDT-Abbauprodukt DDE weisen wie die meisten anderen organischen Schadstoffe maximale Konzentrationen in den 1960er-70er Jahren auf. Nur bei den polybromierten Diphenylethern (PBDE) ist eine kontinuierliche Zunahme bis in die heutige Zeit zu beobachten.

Das Sediment an der Probenstelle FD (vgl. Abb. 1) ist ein fein laminiertes Silt, in dem die als visuelle Datierungshilfe verwendeten Hochwasserlagen (WESSELS et al. 1998) keinen deutlichen Korngrösseneffekt hinterlassen. Lediglich zwischen etwa 1965 und 1988 ist eine geringfügige Kornvergrößerung erkennbar. Die Konzentrationsänderungen sind darum nicht auf Korngrößen- oder Akkumulationseffekte zurückzuführen.

Das DDT-Abbauprodukt DDE wurde in allen Kernen nachgewiesen, die Ausgangssubstanz hingegen liess sich im gesamten See lediglich in drei Proben bestimmen. Da DDE etwa fünfmal wasserlöslicher als DDT ist, sind die im Sediment vorhandenen DDE-Konzentrationen demnach sowohl ein Hinweis auf einen vergangenen DDT-Eintrag als auch den Abbau dieser problematischen Stoffgruppe im Sediment. Dioxine und Furane (PCDF) waren in sämtlichen Proben nachweisbar und erreichen wie DDE ihre maximale Konzentration im Zeitabschnitt 1956-1967 (Abb. 3). In anderen Kernen liegt das jeweilige Maximum in der darüber liegenden Probe (ca. 1965-1978), was auf lokale Beeinflussungen der Probenstationen hindeutet.

Einzige Ausnahme von dem generellen zeitlichen Verteilungsbild sind die polybromierten Diphenylether (PBDE); als einzige Stoffgruppe zeigen sie eine Zunahme zur Sedimentober-

fläche. PBDE werden als Flammschutzmittel in Kunststoffen eingesetzt, und sind in der Umwelt persistent. Sie reichern sich in der Nahrungskette an und wurden beispielsweise in einer schwedischen Studie in der Muttermilch oder auch im Fettgewebe von marinen und terrestrischen Säugetieren in Australien nachgewiesen (NORÉN und MEIRONTYÉ 1998, SYMONS et al. 2004). Diese Stoffgruppe wird kritisch beobachtet, da nur wenig über die langfristigen ökotoxikologischen Wirkungen bekannt und eine stete Zunahme zu beobachten ist (EEA 1999). Die im Bodensee-Sediment beobachtete alleinige Zunahme dieser Stoffgruppe unterstreicht die Notwendigkeit eines Monitorings dieser Stoffgruppe an ausgewählten Standorten.

Schlussfolgerungen

Eine akut toxische Wirkung der im Bodensee-Sediment gefundenen organischen Schadstoffe ist auf Grund der gefundenen Konzentrationen nicht zu erwarten. Eine chronische, endokrine oder gentoxische Wirkung an einzelnen Stellen ist aber nicht auszuschliessen und sollte näher untersucht werden. Polybromierte Diphenylether sind am Bodensee die einzige Stoffgruppe, die trotz aufwändiger Abwasserreinigung und Umweltgesetzgebung zur Emissionsvermeidung eine langfristige und kontinuierliche Zunahme zeigen.

Literatur

- EEA (1999): Environment in the European Union at the turn of the century. European Environment Agency, Report.
- FÖRSTNER, U. und MÜLLER, G., 1974: Schwermetallanreicherungen in datierten Sedimentkernen aus dem Bodensee und aus dem Tegernsee. *TMPM Tschermaks Min. Petr. Mitt.* 21, 145-163.
- GRIMALT, J.O., van DROOGE, B.L., RIBES, A., VILANOVA, R.M., FERNANDEZ, P. und APPLEBY, P., 2004: Persistent organochlorine compounds in soils and sediments of European high altitude mountain lakes. *Chemosphere* 54, 1459-1561.
- HAGENMAIER, H. (1987): Belastung der Umwelt mit Dioxinen. Unveröff. Abschlußbericht, Univ. Tübingen: 135 S.
- IGKB (2004): Der Bodensee. Zustand, Fakten, Perspektiven. 1.Auflage, IGKB, Bregenz, 177 S.
- IGKB (2007): Bodensee-Untersuchung-Seeboden – eine seeweite Bestandsaufnahme zum Zustand der Sedimente im Bodensee. Bericht IGKB 58, in Vorbereitung.
- ISF (2006): Bodensee-Untersuchung-Seeboden. Unveröff. Abschlußbericht zum Interreg-Projekt. Institut für Seenforschung der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg, 119 S.
- MÜLLER, G., 1977: Schadstoff-Untersuchungen an datierten Sedimentkernen aus dem Bodensee - II. Historische Entwicklung von Schwermetallen - Beziehung zur Entwicklung polycyclischer aromatischer Kohlenwasserstoffe. *Z. Naturforsch.* 32c, 913-919.
- NORÉN, K. und MEIRONTYÉ, D., 1998: Contaminants in Swedish human milk. Decreasing levels of organochlorine and increasing levels of organobromine compounds. *Organohalogen Compounds* 38, 1-4.
- ROßKNECHT, H., 1992: Chemische Untersuchungen des Wassers und der Sedimente von 44 Seen in Baden-Württemberg. *Wasserwirtschaftsverwaltung* 28, 1-109.
- ROßKNECHT, H.; HETZENAUER, H; und TERNES, T., 2001: Arzneimittel im Bodensee? *Nachr. Chemie* 49, 145-149.
- SCHEFFKNECHT, C., 2004: Umweltschadstoffe, Untersuchung schwer abbaubarer Schadstoffe in hochalpinen Regionen Vorarlbergs. *Schrr. Lebensraum Vorarlberg* 56, 1-32.
- SYMONS, R., BURNISTON, D., PIRO, N. und YATES, A., 2004: A Study of the Presence of Brominated Flame Retardants in Australian Fauna. *Organohalogen Compounds* 66, 3959-3956.
- WESSELS, M., 1995. Bodensee-Sedimente als Abbild von Umweltänderungen im Spät- und Postglazial. *Göttinger Arb. Geol. Paläont.* 66, 1-105.
- WESSELS, M. und SCHRÖDER, H.-G., 1998: Lead and Zinc in the Sediments of Lake Constance, SW Germany. - in: BÄUERLE, E. und GAEDKE, U.: Lake Constance. Characterization of an ecosystem in transition. *Archiv Hydrobiol. Suppl.* 53, 335-349.
- WESSELS, M.; MOHAUPT, K., KÜMMERLIN, R. UND LENHARD, A. 1998: Reconstructing Past Eutrophication Trends from Diatoms and Biogenic Silica in the Sediment and the Pelagic Zone of Lake Constance, Germany. - *J. Paleolimnol.* 21, 171-192.

Ausbreitung von Tetrachlorethen im gesättigten Bereich - eine Fallstudie

Jürgen Abrecht

GEOTEST AG, Birkenstrasse 15, 3052 Zollikofen

Zusammenfassung

Am Standort einer Firma zur Entsorgung und Verwertung von Schlachtnebenprodukten besteht als Folge der Anwendung von grossen Mengen Tetrachlorethen (Per) eine beträchtliche Grundwasserverschmutzung in Form einer mindestens 600 m langen Schadstoff-Fahne.

Der noch vorhandene Schadstoffherd (ein Herd ist bereits saniert) ist charakterisiert durch vorwiegend Per (bis $>10 \text{ mg/l}$) neben geringeren Anteilen Trichlorethen ($<30 \text{ } \mu\text{g/l}$) und cis-1,2-Dichlorethen ($<50 \text{ } \mu\text{g/l}$).

Der Grundwasserleiter mit einem Flurabstand von rund 2 m besteht aus sandig-kiesigen, gut durchlässigen Schottern ($k \sim 3 \times 10^{-3} \text{ m/s}$; Gefälle: 0.2%). Die Felsoberfläche (Molasse-sandstein) wirkt als Stauer und weist ein ausgeprägtes Relief auf.

Die Ausbreitung des Pers im Schadenherd erfolgte zuerst vorwiegend gravitativ. Dies führte zur Bildung von „Pools“ mit Per in Phase (DNAPL = dense nonaqueous phase liquid) in kleindimensionierten Vertiefungen in der Sandsteinoberfläche („Kolklöcher“). Eine hohe Per-Belastung liegt nur im untersten Teil des Leiters direkt über dem Stauer vor. Per hat auch den Sandstein, zumindest stellenweise, bis auf eine Tiefe von 30-50 cm infiltriert. Im Abstrom ist eine erhebliche laterale und vertikale Dispersion zu beobachten. Der wirksame Transportmechanismus ist hier konvektiv, zum Teil auch advektiv. Die GW-Belastung nimmt im Abstrom in 100 m Abstand auf ca. 300 - 500 $\mu\text{g/l}$ Per ab.

Der Schadenfall illustriert das Schadstoff-spezifische Ausbreitungsverhalten von Per und den Einfluss der lokalen hydrogeologischen Verhältnisse.

Abstract: Transport of tetrachlorethylene in the saturated zone - a case study

During 20 years considerable amounts of tetrachlorethylene (PCE) infiltrated the underground at an industrial site for the treatment and recovery of slaughterhouse wastes. A 600 m long contaminant plume of TCE has been formed. In the source region TCE-concentration exceeds 10 mg/l. Further contaminants of minor importance are trichlorethylene ($<30 \text{ } \mu\text{g/l}$) and cis-1,2-dichlorethylene ($<50 \text{ } \mu\text{g/l}$).

The unconfined aquifer has a high hydraulic permeability ($k \sim 5 \cdot 10^{-3} \text{ m/s}$; gradient: 0.2%). The water table is at approximately 2 m below surface.

Due to the primarily gravitative transport DNAPL pools did form in numerous small pits on the molasse rock surface. Hence high TCE concentrations (10% saturation) are only found within a short distance above the pools. TCE also infiltrated the sandstone down to a depth of 30-50 cms). TCE decrease to 300-500 $\mu\text{g/l}$ within 100 m distance downstream.

Keywords: DNAPL, chlorinated solvents, groundwater, transport, pools

1. Einführung, Situation

An einem seit 1964 existierenden Industriestandort wurden bis 1983 grosse Mengen an Tetrachlorethen (Per) eingesetzt. Vermutlich infolge von Verlusten in der Per-Abscheideranlage kam es zur Versickerung von erheblichen Mengen Lösungsmittel und zur Bildung von Per-Pools (DNAPL) an der Basis des Grundwasserleiters. Die bestehende Grundwasserbelastung mit Ausbildung einer Schadstofffahne (Abb. 1) wurde erst 1999 entdeckt und führte bereits zu einer Teil-

sanierung des Standorts mittels Dekontamination eines Teils des Schadenherdes. Diese Sanierungsarbeiten lieferten wertvolle Informationen über Art und Verteilung der Kontamination. Weitere wesentliche Erkenntnisse über die Schadstoffverteilung in der ungesättigten Zone ergaben die ergänzenden Untersuchungen im Hinblick auf die Sanierung der noch vorhandenen Verschmutzung. Dabei stand vor allem der Gewinn von Kenntnissen über die vertikale Schadstoffverteilung über die gesamte Grundwassermächtigkeit im Vordergrund.

2. Hydrogeologische Situation

Der Standort liegt am Rand eines grossen Lockergesteinsvorkommens quartären Alters, hier bestehend aus grobkörnigen sandigen Schottern mit hoher Durchlässigkeit. Die Schotter überlagern einerseits feinkörnige limnische Ablagerungen oder direkt den tertiären Molassefels aus Sandstein/Mergel-Wechsellagerungen.

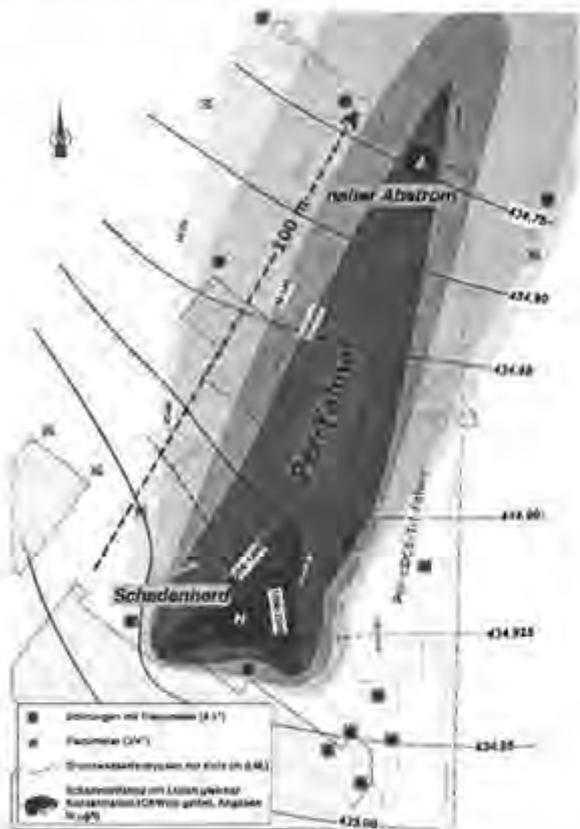


Abb. 1 Grundwasserisohypsen und Schadstoffahne im unmittelbaren Abstrom des Schadenherdes. Mit Messstellen H (Schadenherd) und A (Abstrom).

Der Aquifer ist ungespannt, hat eine Mächtigkeit von 3 – 6 m und weist hohe, variable Durchlässigkeitsbeiwerte zwischen etwa 3×10^{-4} und 5×10^{-3} m/s auf. Die Grundwasserneubildung erfolgt durch Infiltration aus Oberflächengewässern, Grundwasserzufluss von den östlich angrenzenden Zuströmbereichen und durch Niederschläge. Der maximale Schwankungsbereich des Grundwasserspiegels liegt um 1 m bei einem mittleren Flurabstand von 1.8 - 2.3 m. Die Fließgeschwindigkeit beträgt um 1-2 m/Tag, wobei Hinweise bestehen, dass wegen des teilweise ins Grundwasser reichenden Betriebsgebäudes die lokalen Strömungsverhältnisse gestört sind. Der ungesättigte Bereich weist am Standort gleiche Eigenschaften auf wie der gesättigte. Im Bereich des Schadstoffherdes ist die Oberfläche weitgehend versiegelt.

3. Die Grundwasserbelastung durch FCKW und ihre Entwicklung

Während der vermutlich sekundäre Schadstoffherd (Folge einer undichten Leitung?) bereits durch Auskoffern saniert wurde, sind die Arbeiten für die Sanierung des primären Herdes (direkte Versickerung aus den ehem. Absetzbecken) zur Zeit im Gang. Nachfolgende Daten beinhalten Ergebnisse aus der Detail- und Sanierungsuntersuchung sowie aus der ersten Sanierungsphase.

Die Grundwasserbelastung im Herd und im nahen Abstrom (ca. 100 m)

Nachfolgende Abbildungen 2 und 3 zeigen die Per-Belastung im Schadenherd und in ca. 100 m Abstand davon (abstromseitig). Die Daten wurden mittels einer hochauflösenden Grundwasserprobennahme ermittelt und erlauben eine Erfassung der vertikalen Per-Verteilung im Bereich der Verfilterung des Kleinfilterbrunnens.

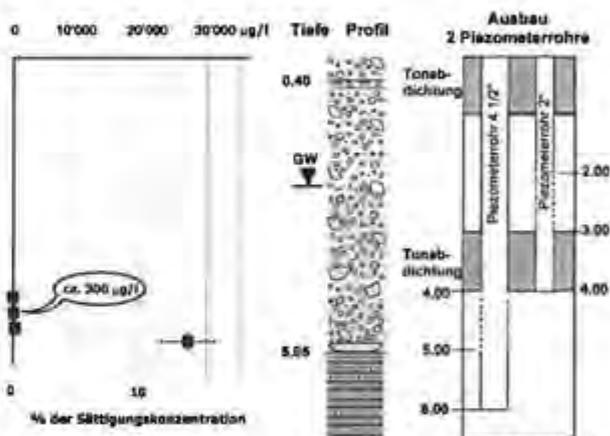


Abb. 2 Bohrprofil, Messstellenausbau und Per-Konzentration im Schadenherd (Messstelle H)

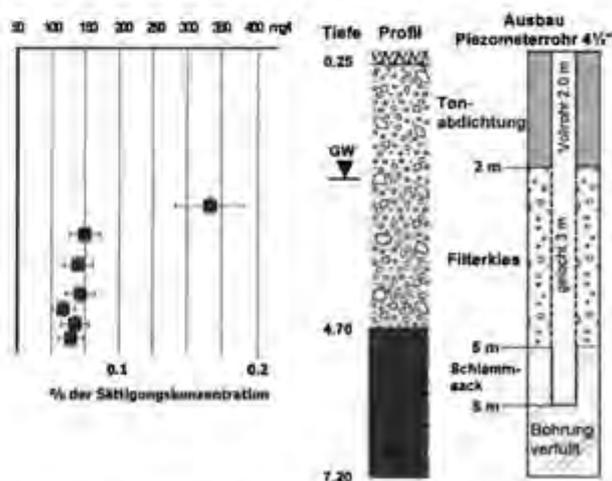


Abb. 3 Bohrprofil, Messstellenausbau und Per-Konzentration im Abstrom (Messstelle A).
Entwicklung des heutigen Schadenbildes

Die unterschiedlichen Konzentrationsprofile in Abb. 2 und 3 sind die Folge der unterschiedlichen Transportmechanismen der Lösungsmittel im Laufe der Entwicklung des Schadenbildes. Zahlreiche Analysen und ¹³C-Isotopenmessungen (EAWAG, 2004) belegen, dass ein nennenswerter Abbau des Pers nicht stattfindet

1. Phase: Versickerung

Wegen der besonderen baulichen Eigenheiten des Absetzbeckens, welches mit seinem unteren Teil – zumindest zeitweise – unter den Grundwasserspiegel reichte, gelangten vermutlich unbemerkt über eine lange Zeitdauer grössere Mengen an Per durch den undichten Beton direkt in den gesättigten Bereich. Dort migrierte das Lösungsmittel als DNAPL gravitativ bis auf den Stauer. Wegen der hohen Durchlässigkeit des Schotters und des Fehlens von gering durchlässigen Lagen bildete sich unter dem Absetzbecken ein DNAPL-Pool.

In den als Folge der quartären Flusserosion („Ausolkung“) zahlreichen Vertiefungen in der Oberfläche des Sandsteins (Abb. 4) wurde das Lösungsmittel zum wohl grösseren Teil zurückgehalten. Da deren Aufnahmekapazität (schätzungsweise insgesamt 1-2 Tonnen Per?) überschritten wurde, kam es zu einem gravitativen Wegfliessen des DNAPL unabhängig von der Grundwasserfliessrichtung in Senken in der Felsoberfläche.



Abb. 4 Felsoberfläche (Sandstein) mit Kolklöchern mit DNAPL („Pools“)

2. Phase: In-Lösung-gehen, advektiver Wegtransport

Bereits während der Versickerungsphase begann die Auflösung der im gesättigten Bereich entstandenen Residuale sowie der Pools in den Kolklöchern. Wegen der guten Durchlässigkeit, der relativ hohen Filtergeschwindigkeit und des Fehlens von feinkörnigen Einlagerungen innerhalb des Schotters wurden die Per-Residuale offen-

sichtlich vollständig gelöst und advektiv wegtransportiert. Dies dürfte erklären, warum heute die Belastung des Grundwassers im Herdbereich mit Ausnahme der untersten ca. 30 cm vergleichsweise gering ist (Abb. 2 und 5). Da einerseits das Lösen der DNAPL im Grundwasser ein diffusiver und somit langsamer Vorgang ist, andererseits Per mit rund 200 mg/l eine geringe Löslichkeit aufweist, vollzieht sich der Abbau der Pools durch In-Lösung gehen sehr langsam.

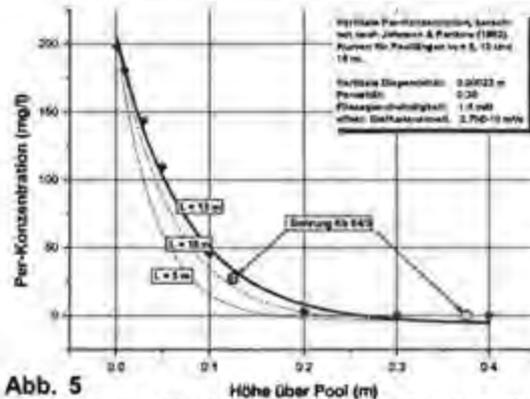


Abb. 5 Berechnung der Per-Konzentration im Herdbereich im Grundwasser über einem Pool von 15 m Länge an dessen Ende (nach JOHNSON und PANKOW, 1992)

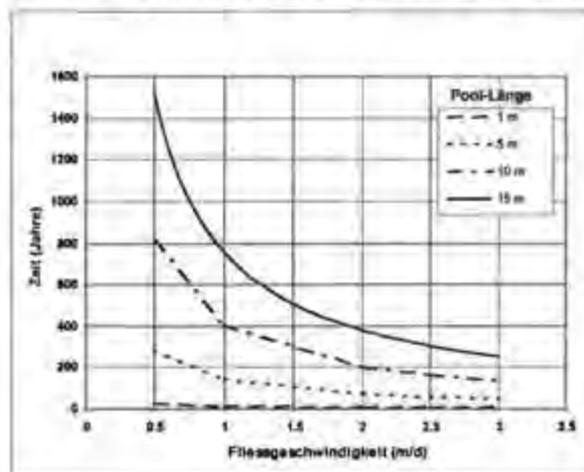


Abb. 6 Berechnung der Lösungszeitdauer für Pools unterschiedlicher Grösse und für unterschiedliche Fließgeschwindigkeiten (nach JOHNSON und PANKOW, 1992)

Per kann nur an der Grenzfläche zum überströmenden Grundwasser gelöst werden (sog. Filmdiffusion, FÖRSTNER und GRATHWOHL, 2003). Durch die „geschützte“ Lage in den Kolklöchern ist die Grenzfläche relativ klein, was den Lösungsprozess weiter verlangsamt.

Eine Berechnung der Zeitdauer für die Per-Lösung aus Pools unterschiedlicher Länge und für verschiedene Grundwasser-Fließgeschwindigkeiten zeigt Abb. 6. Für unseren Fall, wo aus Pump- und Tracerversuchen eine mittlere Fließgeschwindigkeit von 1.5 m/Tag ermittelt wurde,

ergibt sich für die geschätzte Poollänge von 15 m eine Zeitdauer von rund 500 Jahren. Eine einfache Abschätzung aufgrund der im unmittelbaren Abstrom gemessenen Konzentration und der Annahme eines Per-Reservoirs von 1'500 kg ergibt eine Lösungsrate von rund 8 kg/Jahr. Zur vollständigen Entfernung des Per-Pools wären somit rund 190 Jahre erforderlich. Auch wenn diese Zahlen mit einer erheblichen Unsicherheit behaftet sind, zeigen sie, dass ein vollständiger Wegtransport des DNAPL ohne äussere Einwirkung („natural attenuation“) nur über einen sehr langen Zeitraum möglich ist.

Im nahen Abstrom zeigt sich ein anderes Verteilungsmuster der Per-Konzentration im Grundwasser (Abb. 3). Die Konzentrationen sind infolge der Dispersion im Grundwasserleiter um rund zwei Grössenordnungen tiefer. Der ursprünglich starke vertikale Konzentrationsgradient ist praktisch nicht mehr feststellbar. Vielmehr zeigt sich über die Leitermächtigkeit eine annähernd homogene Verteilung. Die leichte Zunahme gegen oben könnte eine Folge des konvektiven Transports sein, indem wegen der intensiven Erwärmung des Grundwassers eine aufwärts gerichtete Strömungskomponente wirksam wird.

Ein Absinken von *gelösten* halogenierten Lösungsmitteln (FCKW) mit hohem spezifischem Gewicht im Grundwasser ist wegen der geringen Löslichkeit dieser Stoffe nicht zu erwarten. Entstehende Dichtedifferenzen zwischen FCKW-belastetem und unbelastetem Grundwasser liegen in der Grössenordnung der Unterschiede infolge von Temperaturdifferenzen und werden somit zumindest kompensiert.

4. Zusammenfassung und Folgerungen

Aufgrund von Grundwasseranalysen und Beobachtungen der lokalen hydrogeologischen und hydraulischen Gegebenheiten an einem Standort mit einer massiven Grundwasserbelastung durch Tetrachlorethylen (DNAPL) sowie von theoretischen Überlegungen kann geschlossen werden, dass die Auflösung von Per-Pools im gesättigten Bereich sehr lange Zeiträume erfordert. Der Lösungsvorgang ist Diffusions-kontrolliert und hängt von der Poollänge sowie auch von der Grundwasserfliessgeschwindigkeit ab.

Rechnerische Abschätzungen zeigten, dass im vorliegenden Fall Zeiträume von einigen hundert Jahren durchaus realistisch sind. Ohne Sanierungsmassnahmen kann ein solcher Schaden nicht behoben werden.

Hinsichtlich der Untersuchung von FCKW-belasteten Standorten ist zu schliessen, dass bereits bei Per-Konzentrationen, welche im Bereich von 1% der Sättigungskonzentration liegen, mit der Anwesenheit von DNAPL gerechnet werden

muss, worauf schon diverse Autoren hingewiesen haben (z.B. STUPP, 2000). Darauf und auf die zu erwartenden hohen Konzentrationsgradienten ist bei der Planung, Ausführung und Beprobung von Grundwassermessstellen gebührend zu achten. Bei der Evaluierung von Sanierungsmethoden (GEOTEST, 2006) war die Erkenntnis von Bedeutung, dass mittels rein hydraulischer Massnahmen („Pump and Treat“) ein derartiger Schaden nicht zu beheben sein würde. Ein wichtiger Grund dafür liegt in der Tatsache, dass nur FCKW in Lösung abgepumpt werden können und angesichts der geringen Lösungsrate die Sanierungsdauer den vertretbaren Zeitraum von 5-10 Jahren weit übersteigen würde.

5. Literatur

- EAWAG (2004): Tracerhydrologie und Isotopensignaturen von PER. Unveröffentlichter Zwischenbericht vom 27. Oktober 2004.
- FÖRSTNER, U. und GRATHWOHL, P. (2003): Ingenieurgeochemie. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York.
- GEOTEST AG (2006): FCKW-Grundwasserverschmutzung. Evaluation Sanierungsmöglichkeiten 2. Phase. Unveröffentlichter Bericht Nr. 99044, 13 vom 22.2.2006.
- JOHNSON, R.L. und PANKOW, J.F. (1992): Dissolution of dense chlorinated solvents into groundwater. 2. Source functions for pools of solvent. Environ. Sci. Technol. 26, 896-901.
- STUPP, H.D. (2000): Grundwassersanierung von FCKW-Schäden durch Pump and treat oder Reaktive Systeme?, TerraTech 2/2000, 34-38.

Les processus hydrologiques à l'origine du transfert d'éléments solides et dissous dans de petits bassins versants (superficie inférieure à 10 km²).

Jeannine Corbonnois

Université du Maine, GREGUM, UMR – ESO-, CNRS, Av. O. Messiaen 72085 LE MANS Cedex 9.
Tél. 02.86.54.61.09, email : jeannine.corbonnois@univ-lemans.fr

Résumé

Des mesures effectuées pendant plusieurs années à la sortie de 3 bassins versants situés en Lorraine (nord-est de la France), de 1, 2,8 et 9,3 km² ont permis de suivre, à leurs exutoires, les variations conjointes du débit, des teneurs de l'eau en éléments solides (MES mg/l) et des teneurs en éléments dissous (dureté de l'eau convertie en équivalent CaCO₃ mg/l). Leur représentation graphique dans l'ordre chronologique fait apparaître des boucles montrant les liaisons entre le débit et les éléments solides et dissous, traduisant l'hystérèse qui les affecte. Les boucles sont ouvertes et rondes (teneurs différentes à la montée et à la descente de crue) ou fermées et allongées (même teneur pour un débit donné quelque soit la phase de la crue) selon la saison qui influence l'état hydrique des sols et l'origine de l'eau arrivant aux exutoires (prédominance d'eau de surface ou ayant transité sous la surface).

Ces résultats qui se réfèrent à une échelle d'espace, intermédiaire entre la parcelle et le grand bassin permettent de comprendre le déroulement du transfert d'éléments solides et dissous. Issus du traitement de données déjà anciennes (les mesures ont été faites entre 1985 et 1990), ils restent applicables au fonctionnement d'autres bassins ou au transfert d'autres éléments.

Keywords : solid elements, dissolved elements, flow, small basin

Abstract: Transfer of solid and dissolved elements in small catchment areas (surface area inferior to 10 km²).

Measures carried out over several years at the exit of 3 catchment areas situated in Lorraine (north-east France) of 1, 2.8 and 9.3 km², have allowed us to follow at their outlets, joint variations of flow, the content of solid elements in the water (MES mg/l) and the content of dissolved elements (water hardness converted into equivalent CaCO₃ mg/l).

Their graphic representation in chronological order brings our attention to loops, showing the whatever the phase of the water level according to the season, which influences the hydrous state of the ground, and the origin of the water arriving at the outlet (predominance of surface water, or water having passed through the surface in connections between the parameters and translating the hysteresis which affects them. The loops are open and round (different contents at the rise and fall of water levels) or closed and lengthened (same content for a given flow, transit). Thus, at the basin outlets we determine four categories of events. These results, which refer to a scale of space, intermediary between the plot and the large basin, allow us to understand the progress of the transfer of solid and dissolved elements. The diagrams, defined from data that is already old (the measurements were taken between 1985 and 1990) remain applicable to the functioning of other basins, or to the transfer of other elements.

1. Introduction

Des mesures de débits et d'éléments solides et dissous, effectuées aux exutoires de trois petits bassins versants situés en région de plateau dans le nord-est de la France, permettent de définir les facteurs essentiels du fonctionnement hydrologique et hydrique de ces bassins. La comparaison des données moyennes annuelles, saisonnières et mensuelles fait apparaître la variabilité spatiale des

paramètres pris en considération. A l'échelle journalière et intra-journalière, les liaisons entre débit et éléments solides et dissous se réalisent sous l'influence de l'état de remplissage des réservoirs par lesquels l'eau transite (surface, sub-surface et souterrain). A partir de l'analyse d'une vingtaine de crues, il est possible de suivre le déroulement du transfert des éléments solides et dissous en relation avec le débit. La variation entre les paramètres est plus ou moins grande

selon les événements (phénomène d'hystérèse). Si ces phénomènes sont connus (Dupraz 1984, Martin et al. 2003), les modes de fluctuations des débits et des éléments solides et dissous pris en charge, nécessitant de nombreuses mesures, sont plus rarement étudiés. Ainsi détermine-t-on des schémas de fonctionnement, principaux et secondaires, applicables à d'autres bassins ou au transfert d'autres éléments.

2. Le cadre des travaux

2.1. Localisation et principales caractéristiques des bassins :

Situés dans le nord-est de la France (Lorraine), les trois bassins, établis dans un substratum carbonaté, formé de calcaire, de marnes ou d'argiles, reçoivent des précipitations de l'ordre de 800 mm par an (Tableau 1). Leur surface porte des terrains agricoles, secteurs toujours en herbe et cultures sur labours. Des différences apparaissent dans l'inclinaison des versants ainsi que dans les modes de l'écoulement, en surface et/ou par voie souterraine.

Chaque bassin est équipé d'une station climatologique (pluviographe et thermographe), d'une station hydrologique (limnigraphe et limnimètre) et d'un préleveur automatique d'eau installé près de la station hydrologique. Les teneurs en éléments solides et dissous sont déterminées en laboratoire sur des échantillons d'eau prélevés toutes les 8 heures. Chaque échantillon contient 4 prélèvements bihoraires. Des prélèvements horaires pour plus d'une vingtaine de crues complètent ces mesures pour le bassin versant de Vezon. Les teneurs en éléments solides correspondent aux matières en suspension. Elles sont obtenues par filtration de l'eau et pesée. Les teneurs en éléments dissous sont exprimées uniquement par le titre hydrotimétrique et traduits en mg/l de CaCO₃ (TH° F x 10). Les autres éléments dissous ne sont pas pris en compte.

Seules les teneurs en mg/l sont étudiées puisqu'elles constituent, par rapport aux charges, de meilleurs indicateurs des processus hydrologiques.

2.2. Quelques valeurs repères, annuelles et mensuelles :

Les variations principales des paramètres, liées à l'organisation saisonnière des débits, l'incidence des circuits de l'eau et l'état de la couverture végétale sont inscrites dans les moyennes annuelles (Tableaux 1 et 2) et mensuelles (Fig.1).

En moyenne sur l'année, les bassins écoulent des débits variant du simple au double selon leur superficie et les apports pluviométriques. Les teneurs moyennes annuelles en éléments dissous (Td mg/l) sont d'environ 300 mg/l. Les plus élevées sont mesurées dans le bassin de Vezon (317 à 352

mg/l) où l'eau transite par le manteau de gélifractions calcaires, agglomérés par de la calcite pulvérulente (héritage Quaternaire et pédogenèse actuelle), facile à dissoudre. Les teneurs en éléments solides (Ts mg/l) sont plus variables et ne présentent ni tendance moyenne, ni association avec les débits ou les précipitations comme le démontrent en particulier, les données des années 86 et 88, comprenant des précipitations et des débits proches, mais des teneurs moyennes Ts différentes.

Les rythmes saisonniers présentent peu d'originalité. On note à partir de l'exemple de la figure 1, des variations assez nettes commandées par les débits, avec une baisse voire un arrêt des transferts d'éléments solides en été, et une forte activité en hiver. A l'inverse, les éléments dissous sont moins abondants en hiver qu'en été selon la part de l'eau précipitée et livrée par les réservoirs souterrains et de subsurface.

3. Nature et actions des processus

L'action des processus mieux mise en évidence aux pas de temps horaires et octohoraires est soumise à une forte variabilité :

- dans le temps ; la continuité ou la discontinuité des précipitations et la structure des séquences pluvieuses déterminent les conditions du transfert des éléments solides et dissous vers l'exutoire (alternance de périodes de prise en charge et de dépôts des sédiments) (Dacharry et al. 1993)

- et dans l'espace ; l'occupation des sols (à nu ou couvert de végétation) (Cosandey 2003) et surtout l'état hydrique des bassins influencent la localisation des secteurs fonctionnels participant à l'écoulement (totalité des bassins ou fonds de vallées selon les saisons) et livrant des matériaux prélevés en surface, versants et/ou lit des cours d'eau, ou sous la surface, sols, formations superficielles ou roche selon les voies empruntées par l'eau.

3.1. Les voies de l'écoulement :

Ruissellement, infiltration et restitution par les sources produisent les débits et commandent dans les grandes lignes, les transferts de matières solides et dissoutes prélevées lors du cheminement de l'eau par trois réservoirs superposés (surface, subsurface et souterrain) reliés par des communications diversement organisées selon les bassins.

- **Les voies superficielles** sont empruntées par les eaux du ruissellement générées par les précipitations, qui prélèvent surtout des éléments solides à la surface du sol. Selon les caractéristiques et les moments des séquences

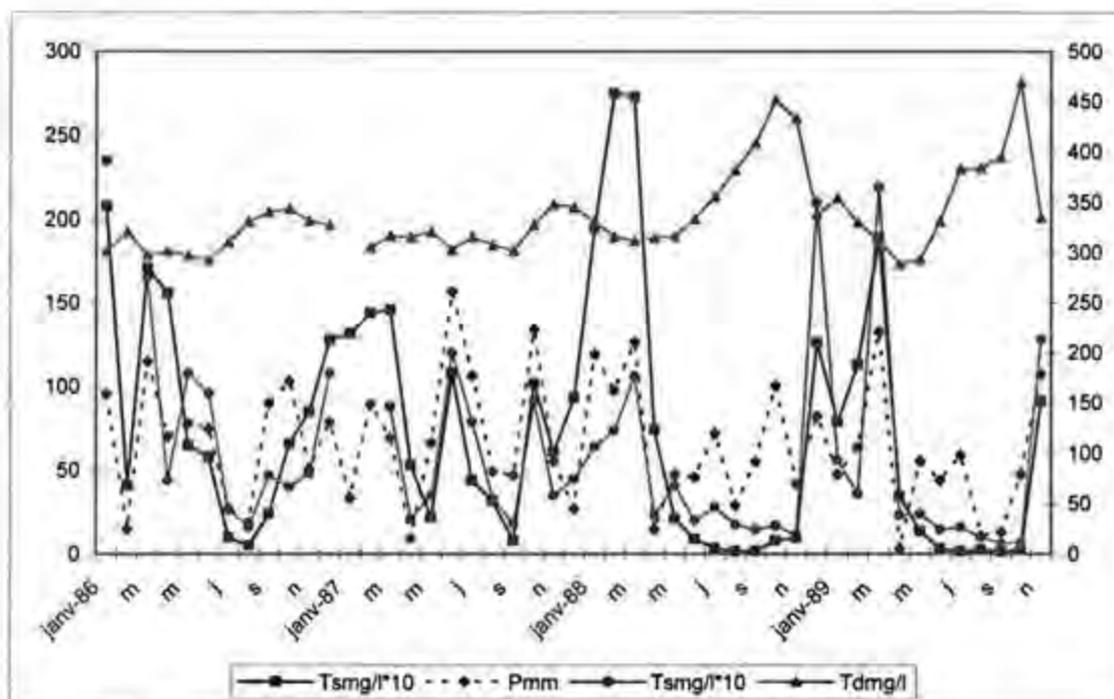


Fig 1 : Variation des paramètres mesurés à Vezon (moyennes mensuelles)

Tableau 1 : Caractéristiques générales des bassins versants

Bassin-versant	Localisation	Surf Km ²	Alt. maxi. m	Alt. mini. m	Pente %	Nature du substratum	Situation	P mm	Q l/s/km ²
VEZON	20 km au S de Metz	1	396	245	13,3	Calcaires/marnes	Front de Côte de Moselle	768 (1986-1989)	7,5 (1986-1989)
DAMUSSE	20 km au NE de Verdun	9,3	288	195	2,3	Marnes/calcaires	Dépression de la Woëvre	822,6 (1985-1990)	13,5 (1985-1990)
REMBERCOURT	30 km au NE de Bar le Duc	2,8	306	263	1,8	Calcaires	Revers de la côte du Barrois	1123 (1988-1990)	15,2 (1988-1990)

Tableau 2 : Données annuelles.

Année	Bassin-versant	P mm	Q l/s/ km ²	Ts mg/l	Td mg/l	Dégradation spécifique T/km ² /an	
						Solides	Dissous
1985	Damusse	687	9,3	54	333	28,6	75,8
1986	Damusse	984	15,1	75	309	66,9 (9 mois)	92,9 (9 mois)
	Vezon	815	8,5	78	317	44,3 (11 mois)	78,5
1987	Damusse		17	87	307	64,7	122
	Vezon	843	7,9	56	319	20,5 (10 mois)	72,1 (11 mois)
1988	Damusse	968	18,6	65	316	70,7	144
	Vezon	832	8,3	52	357	36,7	79,2
	Rembercourt	1292	18,1		292		
1989	Damusse	883	10,4	44	333	31,3	82,3
	Vezon	584	4,8	49	352	24	38
	Rembercourt	952	12,4	88	290	43	107
1990	Damusse	791	10,6	36	342	31	80
	Rembercourt	1126	15,1	35	294	21,7	104

pluvieuses, rythme et abondance des matériaux pris en charge sont très variables (Corbonnois 1998, Musy 2003).

- **L'écoulement de sub-surface** s'organise, à travers le sol et les matériaux superficiels (altérites en place, colluvions, alluvions, apports éoliens). Du volume en circulation ainsi et de la vitesse du renouvellement de cette eau, dépendent les quantités d'éléments pris en charge, majoritairement sous forme dissoute. S'y ajoute une livraison d'éléments solides dans les bassins de Rembercourt et de la Damusse, où la frange altérée du substratum comprend des fissures élargies par la dissolution (conduits karstiques).

- Dans les bassins versants étudiés, les **réserves souterraines** sont contenues dans des roches calcaires, siège de nappes libres ou semi-captives, surmontées dans le bassin de la Damusse par une nappe karstique. L'eau souterraine a une teneur en éléments dissous peu variable au cours de l'année. Le contact généralement prolongé permet une harmonisation entre la nature chimique des roches réservoirs, les volumes d'eau en circulation et leur vitesse de renouvellement. Dans le bassin karstifié de la Damusse, l'eau souterraine véhicule des éléments solides, abondants lorsque les circuits karstiques sont en charge (Corbonnois 1994).

3.2. Les fluctuations des paramètres mesurés

La représentation des paramètres mesurés (données journalières et intra-journalières) fait apparaître des situations variées selon les précipitations et la réponse des bassins. On observe le plus souvent des variations non synchronisées entre les pluies, les débits et les teneurs en éléments solides et dissous. En été, lorsque le ruissellement participe peu à l'écoulement et que l'infiltration prédomine on observe de brèves chasses d'éléments solides sous la pluie, provenant des drains en eau et une montée tardive du débit lorsque arrive à l'exutoire l'eau infiltrée (effet piston) légèrement diluée. En hiver, en revanche, lorsque tous les réservoirs sont humectés, voire saturés d'eau, les teneurs réagissent avec le débit, en sens inverse pour Td et dans le même sens pour Ts.

Ainsi, plusieurs modes de fluctuations sont mis en évidence que les corrélations entre les paramètres (analysées ci-après) permettent d'expliquer.

4. Les modes du transfert des éléments solides et dissous

Des mesures de débit, de teneurs en éléments solides et dissous, effectuées au pas de temps horaire pour une vingtaine de crues ont été complétées par des mesures au pas de temps octohoraire effectuées sur la Damusse et le ruisseau de Rembercourt. Les Ts et Td obtenus ont été corrélées aux débits dans leur ordre chronologique.

On construit ainsi des boucles qui traduisent les phénomènes d'hystérésis affectant les différents paramètres (Fig. 2 à 5). Les représentations obtenues ne sont pas toutes identiques et les boucles présentent différentes formes (arrondie ou aplatie) et sens de variation. Significatives de la provenance de l'eau à la montée et à la descente de crue, ces éléments servent à définir des types de crues.

4.1. Allure des boucles de corrélation :

Les boucles sont plus ou moins rondes ou aplaties selon les écarts de teneurs Ts ou Td pour un même débit à la montée et à la descente de crue. Ces variations sont déterminées par les conditions du milieu, identifiées précédemment.

Sur la Fig.2, la boucle débits/teneurs en solides est arrondie. Les éléments sont chassés dès le début de la montée de crue et atteignent leur maximum avant la pointe de crue. Les sédiments entraînés diminuent rapidement pendant la descente de crue. Pour le même événement, la boucle débit/teneurs en dissous est aplatie ou fermée ; les écarts de teneurs (Td mg/l) à la montée (dilution) et à la descente de crue (reconcentration) sont similaires.

La Fig.3 représente une situation inverse. La boucle débits/teneurs en solides est aplatie (faibles écarts de teneurs à la montée et à la descente de crue, et maximum des teneurs à la pointe de crue) ; celle des débits/teneurs en dissous est plus ouverte, en raison de teneurs différentes à la montée et à la descente de crue.

La Fig.4 montre des boucles de même allure, mais le déroulement des transferts est différent. Celui des éléments solides suit le sens de rotation des aiguilles de la montre ; celui des éléments dissous suit un sens inversé (rotation convergente).

Enfin la Fig.5 présente des formes de boucles proches de celles de la figure 4, mais le sens du déroulement des transferts est inversé (rotation divergente).

4.2. Les catégories de crues :

Ces différentes représentations peuvent être interprétées sous l'éclairage des variations du débit, de l'intensité des pluies et de l'état hydrique des sols associé à la saison et aux pluies antérieures.

Les résultats de l'interprétation de toutes les crues étudiées mènent à une classification en catégories ou en types, représentées selon leurs caractéristiques sur la Fig.6 ?

Les deux types principaux correspondent aux crues formées majoritairement par des écoulements de surface intervenant en période hivernale sur des sols saturés d'eau (boucle de Q/Td arrondie et boucle de Q/Ts aplatie), et à

des crues ou gonflements de nappe, alimentées par des écoulements de sub-surface et souterrains (boucle de Q/Ts aplatie et boucle de Q/Td arrondie). Les deux types secondaires correspondent à des crues mixtes, différenciées par le sens du déroulement des transferts, déterminés par l'état hydrique des sols ; ces crues surviennent après une période de ressuyage des sols avec assèchement en surface, ou interviennent sur des sols en début d'assèchement.

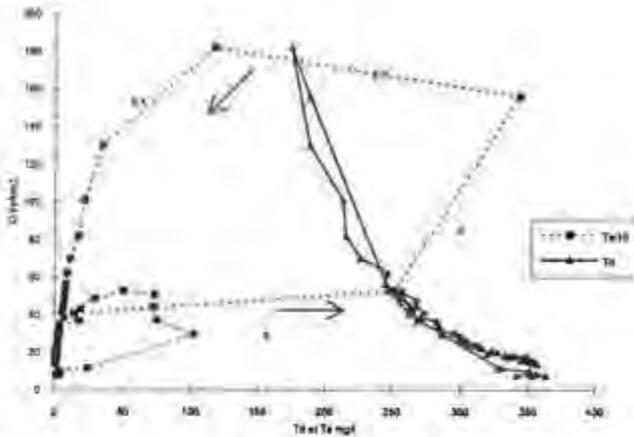


Fig.2 : Corrélation entre Q, Td et Ts. Exemple de Vezon (données horaires du 18/12/87 à 4h au 20/12/87 à 24h)

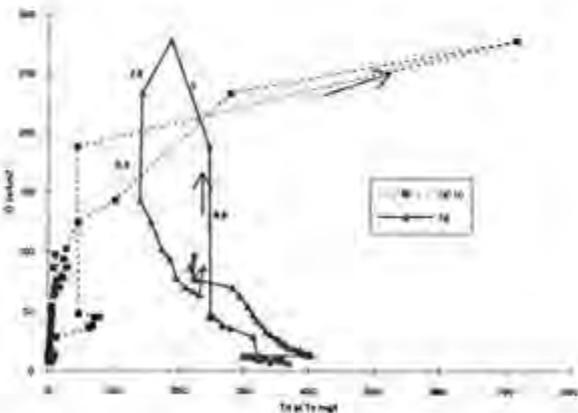


Fig.3 : Corrélation entre Q, Td et Ts. Exemple de Vezon, (données horaires du 21/10/86 à 22h au 24/10/86 à 23h)

Les particularités de chaque bassin apparaissent dans la fréquence des crues dans chaque type :

- dans le bassin de Vezon, le ruissellement représente toujours la part essentielle de l'eau à l'exutoire. Les crues ruisselantes y sont les plus fréquentes (boucle Q/Td le plus souvent fermée).
- dans le bassin de la Damusse, étant donné l'existence d'une nappe et la présence du karst, les crues associent de l'eau de ruissellement à une assez forte proportion d'eau de nappe (boucle Q/Td le plus fréquemment ouverte).

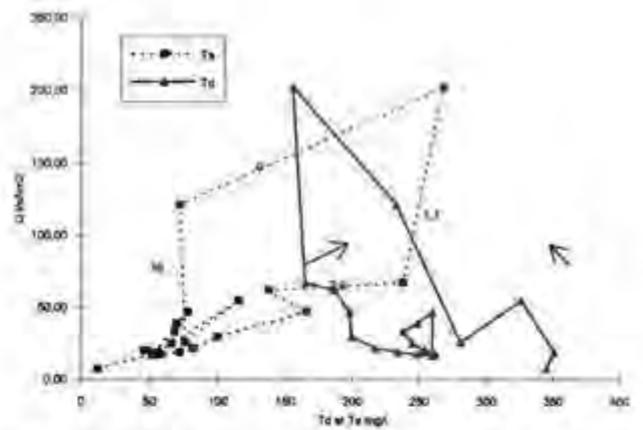


Fig.4: Corrélation entre Q, Td et Ts. Exemple de la Damusse, (données octohoraires, du 18/10/84 à 0h au 24/10/84 à 24h)

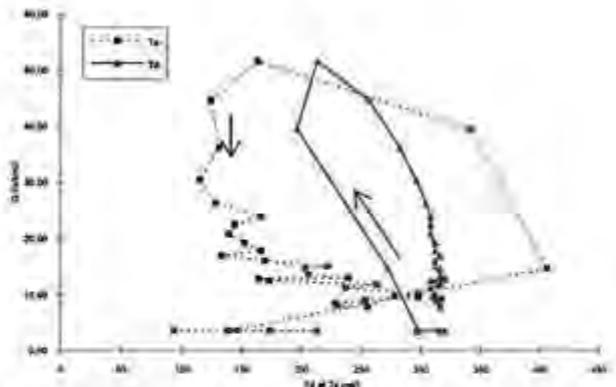
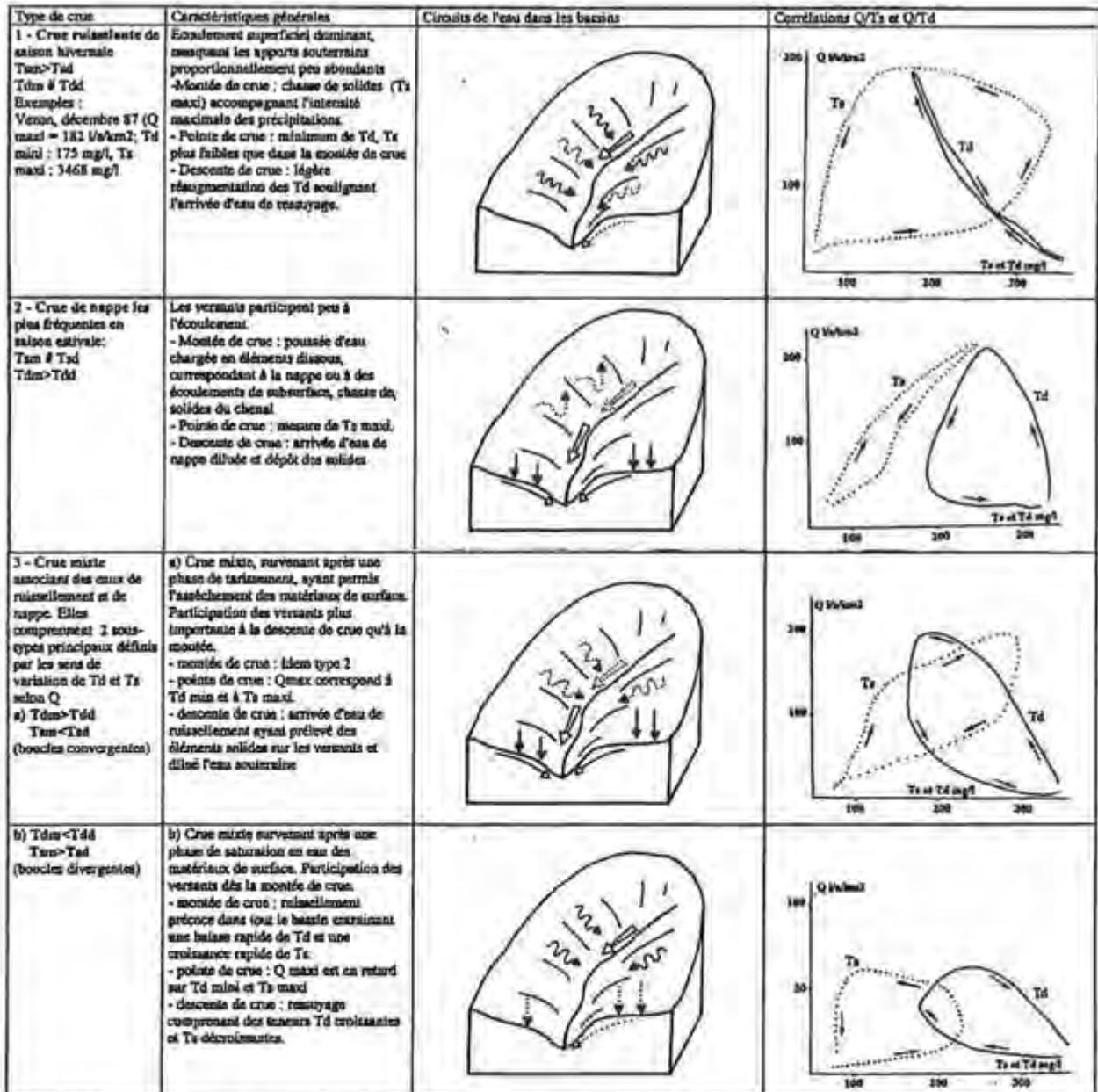


Fig.5 : Corrélation entre Q, Td et Ts. Exemple de Rembercourt (données octohoraires, du 4/1/89 à 0h au 15/1/89 à 16h)

- dans le bassin de Rembercourt, les types de crue sont tributaires de l'état de remplissage du réservoir souterrain.

La définition des types de crue par bassin est confirmée par les valeurs Ts et Td atteintes pendant les événements ainsi que par l'amplitude de leur variation. Les chasses de solides sont les plus fortes dans le bassin de Vezon où l'on mesure entre 5 et 9 g/l/s au cours de certaines montées de crue (pas de temps horaire). Dans les autres bassins, les moyennes octohoraires, qui ne dépassent qu'exceptionnellement 1 g/l/s masquent les pulsions les plus fortes.

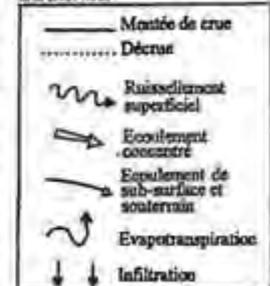
Les teneurs Td atteignent des valeurs plus ou moins basses. Les minima observés s'abaissent jusqu'à 120 - 150 mg/l pour les crues les plus fortes dans les trois bassins. Elles montrent dans tous les cas que même lorsque le ruissellement est important, la part de l'eau souterraine est élevée.



Exemples de crues dans chaque type :

Type	Bassin versant	Q à la pointe de crue l/s/km ²	T _d minimum mg/l	T _s maximum en mg/l
1	Vezon, décembre 1987	182	175	3438
1	Vezon, février 1988 (1)	180	170	1800
1	Vezon, mars 1988	250	154	9060
1	Rambercourt, février 1990	310	140	200
2	Damuse, avril 1989	134	174	210
2	Vezon, octobre 1986	260	140	7500
2	Vezon, février 1988 (2)	100	195	560
3a	Damuse, octobre 1984	202	156	768
3a	Damuse, 30/9 au 5/10/84	205	171	268
3b	Rambercourt, janvier 1990	55	155	400
3b	Vezon, 11/2 au 13/2/88	130	144	1380
3b	Vezon, 9/2 au 10/2/88	110	177	2051

LEGENDE :



(T_s : teneur en éléments solides, mg/l, T_d : teneur en éléments dissous, m : montée de crue, d : descente de crue)

Fig 6 : Catégories de crues

5. Conclusion

Dans les trois petits bassins versants, l'analyse du transfert d'éléments solides et dissous fait apparaître, à toutes les échelles, une grande variabilité des teneurs mesurées. Elle est liée au fonctionnement hydrologique et hydrique similaire, animé par des processus qui s'adaptent aux cheminements de l'eau caractérisant chacun des bassins. Ainsi, aux exutoires, l'eau est-elle formée, dans des proportions diverses, par des apports de surface et par des apports souterrains (la distinction eau de sub-surface et eau du substratum n'a pas été prise en compte).

Cette composition de l'eau des crues, par ailleurs bien connue, accroît les difficultés de la modélisation surtout lorsqu'il s'agit de simuler des valeurs aux pas de temps les plus courts. Les modèles utilisent plus fréquemment les charges transportées en fonction des volumes d'eau écoulés obéissant à des modalités moins complexes. Il s'agit donc d'être vigilant dans l'interprétation de mesures isolées ou effectuées lors de saisons particulières, anormalement humides ou sèches.

Les modes de fonctionnement et les catégories de crues qui ont pu être définies peuvent servir à mieux comprendre les transferts d'autres éléments, en particulier de charges polluantes, dont le transfert est influencé par les conditions naturelles et les interventions anthropiques qu'il faut prendre en considération.

6. Références

DACHARRY M., VEYRET Y., WICHEREK P., (1993): Remarks on flow for an evaluation of erosion risks (examples in the Parisien Bassin). I Land Farm Erosion in temperate plains environment and hills. Edit. S. Wicherek, Elsevier, 155-163.

CORBONNOIS J., (1994): Influence des voies d'écoulement de l'eau sur le régime des transports solides et dissous dans les calcaires du Portlandien. Exemple du bassin de Rembercourt (Lorraine, Nord-Est de la France). Hydrologie Continentale, vol 9, N°2, 123-138.

CORBONNOIS J., (1998): Les facteurs de la variation spatio-temporelle des transports solides et dissous (exemple de trois bassins versants de recherche situés en Lorraine). Géomorphologie, N°3.

COSANDEY C., (2003) : Les eaux courantes, Géographie et environnement. Belin Sup. Paris. 240 pp.

DUPRAZ C., (1984) : Bilan des transferts d'eau et d'éléments minéraux dans trois bassins versants comparatifs à végétations contrastées. Mont Lozère, France. Thèse Université d'Orléans. 323 pp.

MARTIN C., GASCUEL-ODOUX C., (2003) Mécanismes hydrologiques et hydrochimiques impliqués dans les variations saisonnières des teneurs en nitrate dans les bassins versants agricoles: approche expérimentale et modélisation. CAREN, Rennes (travaux en cours).

MUSY A., HIGY C., (2003): Hydrologie. Une science de la nature. Presses polytechniques et universitaires romandes. Lausanne. 314 pp.

Simulation von Bodenerosion auf landwirtschaftlichen Flächen mit dem Modell EROSION-3D

1. R. Cesarz, Th. Hölscher, K. Müller-Sämann, ANNA - Agentur für nachhaltige Nutzung von Agrarlandschaften, Klosterrunsstr. 17, D-79379 Müllheim; th@anna-consult.de
2. E. Unterseher, Landwirtschaftliches Technologiezentrum Augustenberg, Neßlerstr. 23-31, D-76217 Karlsruhe; Erich.Unterseher@ltz.bwl.de

Zusammenfassung:

Zur Absicherung einer Bodennutzungskonzeption für ein ackerbaulich intensiv genutztes Lössgebiet im badischen Friesenheim wurden mit dem Modell EROSION-3D Landnutzungsszenarien für ein Starkregeneignis simuliert. Es konnte gezeigt werden, dass mit einem Wechsel vom Pflugeinsatz hin zur konservierenden Bodenbearbeitung der Sedimentaustrag in den Vorfluter substantiell vermindert werden könnte. Um jedoch auch den Oberflächenabfluss so zu minimieren, dass die betroffene Ortschaft von Überschwemmungen verschont bleibt, sind neben der Etablierung von Begrünungen in Tiefenlinien weitergehende Maßnahmen zur Wasserretention unerlässlich.

Summary:

In order to revise a land use conception for an intensively cultivated loess area in Friesenheim (Baden), different land use scenarios for a mayor rain event were simulated, applying the EROSION-3D model. It could be demonstrated that a change from plow to conservation tillage would result in a substantial reduction of sediment discharge into receiving water courses. Besides the establishment of "grassed waterways", further water retention measures are essential to minimize surface runoff in order to protect a downstream positioned locality from flood events.

Keywords: Soil conservation concept, EROSION-3D, conservation tillage, grassed waterways, runoff

1. Einführung

In den Jahren 2000 und 2004 traten in der Gemeinde Friesenheim (Ortenaukreis/Baden) jeweils Ende Mai Gewitterregen auf, die zu starken Schäden auf Äckern, an der Infrastruktur und an Gebäuden (überflutete Keller) führten. Die Behörde für Bodenschutz und Wasserwirtschaft wandte sich daraufhin an das damalige Institut für umweltgerechte Landbewirtschaftung (seit dem Jahr 2007 Teil des LTZ Augustenberg) mit der Bitte, für das ausschließlich landwirtschaftlich genutzte Einzugsgebiet eine Konzeption zur Bodennutzung zu erstellen, in welcher Wege aufgezeigt werden sollen, wie derartige Schäden in Zukunft vermieden bzw. minimiert werden können. In einem ersten Schritt wurde für die Gemarkung Oberschopfheim das Kleineinzugsgebiet «Maier-tal» untersucht. Die erarbeitete Konzeption ist jedoch grundsätzlich auch auf ähnlich gelagerte naturräumlich-agrarstrukturelle Gebiete anwendbar.

2. Methodik

Zunächst wurde eine Geländebegehung durchgeführt und es wurde Material zur Historie der Landnutzung gesichtet. Damit war eine erste Ursachenanalyse möglich:

1. Das Substrat (Löss) ist naturgegeben stark erosionsanfällig.
2. Im langgestreckten Einzugsgebiet vereinigen sich im unteren Teil zwei Tiefenlinien. Diese bündeln das zuströmende Wasser und führen es direkt in ein Baugebiet.
3. Der agrarstrukturelle Wandel führte dazu, dass das einstmalig kleinstrukturierte Nutzungs mosaik (Saumbiotope, Terrassen u.ä.) durch große Schläge ersetzt wurde, auf denen hauptsächlich Mais nach Mais in „konventioneller“ Technik (Pflug) angebaut wird.

Als wichtigste Maßnahmen gegen Bodenerosion werden vorgeschlagen:

1. Die flächendeckende Einführung konservierender Bodenbearbeitung besitzt erste Priorität. Die Anlage von Dauergrünland ist i.d.R. aus betriebswirtschaftlichen Gründen nicht interessant und würde daher von den Bewirtschaftern abgelehnt.
2. Etablierung von Begrünungen in den Tiefenlinien („grassed waterways“).
3. Anlage einer Retentionsfläche vor dem Siedlungskörper, die dafür sorgen würde, dass Oberflächenabfluss/erodierter Boden abgefangen wird, der bei Extremereignissen trotz der getätigten Maßnahmen doch noch bis vor die Häuser gelangen könnte.

Von der Unteren Bodenschutzbehörde wird eine Anordnung gemäß Bundesbodenschutz-Verordnung (1999), die den Bewirtschaftern rechtliche Vorgaben macht, nicht ausgeschlossen. Zunächst wird jedoch der Weg von freiwilligen Vereinbarungen zwischen Behörde und Landwirten beschriftet. Da hier weitreichende rechtliche Fragen mit finanziellen Folgen angesprochen sind, wurde es für zweckmäßig gehalten, die Gegenmaßnahmen mittels eines Erosionsprognosemodells abzusichern. Die Wahl fiel auf das Modell „EROSION-3D“ (VON WERNER 2003), da es

- einzugsgebietsbezogene (hangbezogene) und ereignisbezogene Ergebnisse liefert sowie
- Abtrags- und Depositionsbereiche identifiziert.

Daneben ermöglicht die Modellierung, welche von der Agentur für Nachhaltige Nutzung von Agrarlandschaften (ANNA) durchgeführt wurde, eine anschauliche Darstellung der Auswirkungen unterschiedlicher Schutzmaßnahmen in Maß und Zahl. Damit ist mit einer steigenden Akzeptanz des Konzeptes bei den betroffenen Landwirten zu rechnen, so dass amtliche Anordnungen von Maßnahmen ggf. vermieden werden können.

3. Ausgewählte Ergebnisse

3.1 Einfluss der Bewirtschaftung

Zunächst wurde die bestehende Flurstruktur in Realnutzung (Parzellierung, Begleitbiotope, Feldfrüchte u.a.) erfasst. Für diesen Zustand und die bisherige konventionelle Bodenbearbeitung wurde zunächst ein Starkregenereignis (28 mm in 60 Minuten) modelliert (Abb. 1).

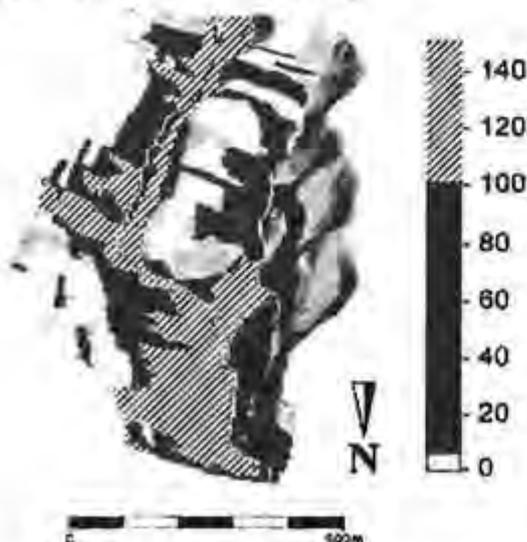


Abb. 1: Nettoerosion (t/ha) bei wendender Bodenbearbeitung im Kleineinzugsgebiet «Maierthal».

Es ergibt sich für die Nettoerosion ein Gebietswert von 133,32 t/ha. Punktuell können in besonders exponierten Bereichen bis über 40 kg/m² abgetragen werden. SCHOB et al. (2004) kommen unter vergleichbaren Bedingungen eines Lössgebiets in Sachsen mit bis über 30 kg/m² zu ähnlich hohen Ergebnissen.

Dem wurde die Variante der konservierenden Bodenbearbeitung für Mais- und Weizenanbauflächen (Abb. 2) gegenüber gestellt. Es zeigt sich ein deutlicher Unterschied.

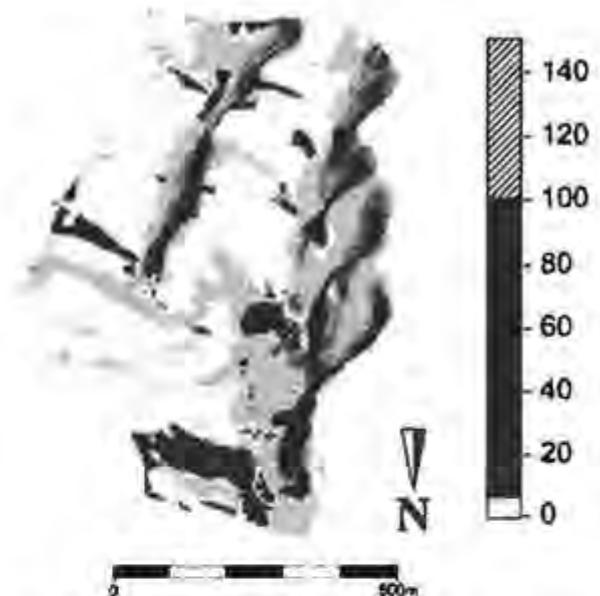


Abb. 2: Nettoerosion (t/ha) bei konservierender Bodenbearbeitung im selben Gebiet.

Dies spiegelt sich auch bei den Sedimentaustträgen in den Vorfluter wider (s. Abb. 3). Es kann also festgehalten werden, dass alleine durch die Umstellung der Bodenbearbeitung der Sedimentausttrag aus dem Einzugsgebiet deutlich reduziert werden kann. Damit wäre man zwei Hauptzielen - nämlich erstens dem des Substanzerhaltes von Böden und zweitens dem der Reduzierung der stofflichen Gewässerbelastung - ein großes Stück näher gekommen.

Das Ergebnis wird durch zahlreiche Studien bestätigt (s. ZIMMERLING et al. 2002; CHERVET et al. 2005). SCHMIDT & VON WERNER (2001) geben für die Umstellung auf pfluglose Bewirtschaftung für verschiedene Feldfrüchte Raten bei der Sedimentreduktion von 93-99 % an.

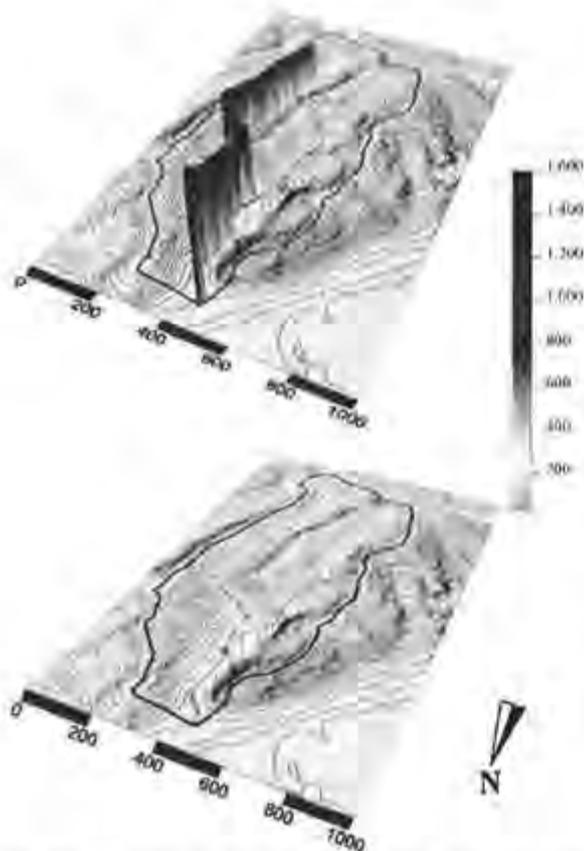


Abb. 3: Akkumuliertes Sediment (kg/m Fließstrecke) im Vorfluter für Pflug (oben) und bei konservierender Bodenbearbeitung (unten).

Der Beitrag konservierender Bodenbearbeitung zum dezentralen Hochwasserschutz zeigt sich beim kumulativen Vorfluterabfluss (s. Tab. 1), die Unterschiede sind hier äußerst gering. Um eine spürbare Entlastung der Vorfluter zu erreichen, sind also weitergehende Maßnahmen erforderlich.

Tab. 1: Kumulativer Vorfluterabfluss für die Varianten der wendenden und konservierenden Bodenbearbeitung.

Niederschlagsereignis: 1 h mit 28 mm	Einzugsgebietsfläche [m ²]	619'500
	Niederschlagsvolumen [m ³]	17'346
Oberflächenabfluss		
	[m ³]	[% des Niederschlags]
Pflug	9'905.74	57.1
Konservierend	8'705.17	50.2

3.2 Anlage von begrünten Tiefenlinien

Insbesondere in den USA und in Kanada hat sich die Anlage von Begrünungen in Tiefenlinien («grassed waterways») als integraler Bestandteil des landwirtschaftlichen Boden- und Gewässer-

schutzes fest etabliert (s. etwa OREGON DEPARTMENT OF AGRICULTURE 2006). In Mitteleuropa hingegen beschränken sich diesbezügliche Erfahrungen fast ausschließlich auf Begrünungen von Tiefenlinien, die im Rahmen von Forschungsarbeiten angelegt wurden (s. BAADE 1994; FIENER & AUERSWALD 2003). Von Seiten des Berufsstandes begegnet man dieser Maßnahme hierzulande wg. des Verlustes an Fläche, die der „landwirtschaftlichen Urproduktion“ entzogen würde, i.d.R. mit wenig Akzeptanz.

Tab. 2: Vergleich Erosion/Deposition* für jede Rasterzelle ohne Zufluss aus dem Einzugsgebiet für die Varianten Pflug mit und ohne begrünte Tiefenlinien (GWW) sowie konservierend mit und ohne begrünte Tiefenlinien.

	kg/m ²		kg/m ²
Pflug		Konservierend	
Min.	-7'689.84	Min.	-235.452
25%-tile	-11.32	25%-tile	-0.392
Median	-0.014	Median	-0.007
75%-tile	0	75%-tile	0
Max.	375.704	Max.	23.539
Pflug + GWW		Konserv. + GWW	
Min.	-1'431.86	Min.	-50.822
25%-tile	-9.396	25%-tile	-0.35
Median	0	Median	0
75%-tile	0	75%-tile	0
Max.	375.704	Max.	23.539

*Positive Werte=Deposition, negative. Werte=Erosion)

Die Wirkung von begrünten Tiefenlinien als isolierter Maßnahme darf jedoch nicht überschätzt werden. Wie Tab. 2 zeigt, weisen sie, wenn sie nicht Element eines Gesamtkonzeptes sind, einen geringen Zielerreichungsgrad auf.

Erst bei flächendeckender konservierender Bodenbearbeitung stellt sich eine entscheidende Verminderung beim Bodenabtrag und beim Oberflächenabfluss ein (s. Tab. 2 u. 3). Dies bestätigt auch eine Fallstudie von SCHMIDT et al. (2001), wonach durch begrünte Tiefenlinien lediglich eine Abtragsminderung von 124,3 t/ha auf 100,2 t/ha erreicht wird. Die SLL (2006) spricht sogar von einer nur 10%-igen Reduzierung von Sedimenteinträgen durch diese Maßnahme, die erst durch die konservierende Bodenbearbeitung auf 90 % erhöht werden kann.

Tab. 3: Sedimentaustrag im Vorfluter [t] und Nettoerosion [t/ha] für die Varianten Pflug mit und ohne begrünte Tiefenlinien (GWW) sowie konservierend mit und ohne begrünte Tiefenlinien.

Niederschlagsereignis: 1 h mit 28 mm	Einzugsgebietsfläche [m ²]	619'500
	Niederschlagsvolumen [m ³]	17'346
	Sedimentaustrag [t]	Nettoerosion [t/ha]
Pflug	8'221.40	133.32
Pflug + GWW	4'272.05	69.28
Konservierend	296.85	4.81
Konservierend + GWW	176.65	2.87

4. Ausblick

Die Bodennutzungskonzeption für die weitgehend ackerbaulich genutzten Einzugsgebiete basiert auf der Anwendung der bewährten Methode der empirischen Erhebung von eingetretenen Schäden gem. DWWK (1996) und der im Feld abgeleiteten Ursachen sowie der Auswertung von Luftbildmaterial. Die Modellierung mittels „EROSION-3D“ erlaubt die Prognose der Wirksamkeit der abgeleiteten Maßnahmen.

Darüber hinaus haben sich die kartografischen Darstellungen der Modellierung im Kommunikationsprozess zwischen den beteiligten Forschungs- und Verwaltungseinrichtungen und den Landwirten als überzeugende didaktische Hilfsmittel erwiesen. Mittlerweile haben sich alle Bewirtschafter des Einzugsgebiets vertraglich zur konservierenden Bodenbearbeitung verpflichtet. Es ist nun vorgesehen, das Instrument der Modellierung verstärkt in der landwirtschaftlichen Beratung und Schulung einzusetzen.

5. Literatur

BAADE, J. (1994): Geländeexperiment zur Verminderung des Schwebstoffaufkommens in landwirtschaftlichen Einzugsgebieten. Heidelberger Geographische Arbeiten 95, Heidelberg, 215 S.
 BBodSchV v. 12.07.1999; BGBl 1.
 CHERVET, A., RAMSEIER, L., STURNY, W.G. & S. TSCHANNEN (2005): Der Boden braucht Zeit für die Umstellung. Landwirtschaft ohne Pflug 6, 29-35.
 DWWK (1996): Bodenerosion durch Wasser – Kartieranleitung zur Erfassung aktueller Erosionsformen. Merkbl. z. Wasserwirtschaft 239, Bonn, 62 S.
 FIENER, P. & K. AUERSWALD (2003): Effectiveness of Grassed Waterways in Reducing Runoff and Sediment Delivery from Agricultural Watersheds. J. of Environmental Quality 32, 927-936.
 OREGON DEPARTMENT OF AGRICULTURE (2006): Grassed waterways & Vegetated Filters.
 SLL (SÄCHSISCHE LANDESANSTALT FÜR LANDWIRTSCHAFT)(2006): Verbesserte Ansätze für Wasser- und Stoffstrommanagement in intensiv

genutzten kleinen Einzugsgebieten auf der Grundlage von integrierten Nutzen- und Risikobewertungen. Abschlussbericht, Dresden, 148 S.
 SCHMIDT, J. & M. VON WERNER (2001): Estimating off-site effects of soil erosion and evaluating the effectiveness of control measures using a distributed simulation model. www.web-j-schmidt.de/publikationen
 SCHMIDT, J., SCHMIDT, W., VON WERNER, M. & A. MICHAEL (2001): Actions against soil erosion at the single field and the catchment scale guided by computer simulation. - In: SCOTT, D.E., MOHTAR, R.H. & G.C. STEINHARDT (Eds.): Sustaining the Global Farm. Selected papers from the 10th Intern. Soil Conserv. Org. Meeting, 24.-29.05.1999, 973-978
 SCHOB, A., SCHMIDT, J. & R. TENHOLTERN (2004): Derivation of site-related measures to minimize soil erosion on the catchment scale in the Saxonian loess belt using the model EROSION-3D. - In: WÖHRLE, N. & M. SCHEURER (Eds.): Eurosoil 2004, 04.-12.09.2004 in Freiburg/Germany; Abstracts and Full Papers; CD
 UNIVERSITY OF ILLINOIS EXTENSION (2003): Plant Vegetative Filter Strips or Make Critical Area Plantings. 60 ways.
 VON WERNER, M. (2003): EROSION-3D, Version 3.1.1, Benutzerhandbuch GeoGnostics Software, Berlin, 86 S.
 ZIMMERLING, B., SCHMIDT, W., NITZSCHKE, O. & D. WILCKE (2002): Wasserspeicher Boden. Konservierende Bodenbearbeitung als Beitrag zum vorbeugenden Hochwasserschutz. Neue Landwirtschaft 10, Sonderdruck, 4 S.

Handbuch Gefährdungsabschätzung Boden des Bundesamts für Umwelt (BAFU) – Leitlinien und neue Vorgehensweisen

Reiner A. Mailänder

AWEL Amt für Abfall, Wasser, Energie und Luft, Abteilung Abfallwirtschaft und Betriebe, Sektion Altlasten, Weinbergstrasse 34, Postfach, CH-8090 Zürich. Email: reiner.mailaender@bd.zh.ch

Zusammenfassung

Schadstoffbelastungen des Bodens zwischen Prüf- und Sanierungswerten können eine Gefährdung für die Schutzgüter Menschen, Tiere und Pflanzen darstellen. Das neue Handbuch Gefährdungsabschätzung Boden zeigt auf, wie Gefährdungen geprüft und welche Massnahmen nötigenfalls ergriffen werden sollen. Dabei stehen folgende Inhalte im Mittelpunkt:

- Für Regelfälle ermöglichen so genannte Expertensysteme (Punktesysteme) eine Ersteinschätzung mit wenig Aufwand. Detaillierte Untersuchungen sind nur dort angezeigt, wo Expertensysteme kein ausreichendes Ergebnis liefern.
- Das Handbuch gibt einen Rahmen vor und soll damit zu einer Vereinheitlichung des Vollzugs im Bodenschutz beitragen.
- In begründeten Fällen (besondere Umstände) besteht dagegen die Möglichkeit, Massnahmen zu modifizieren (Ermessensspielraum).
- Die Anwendung wird durch vorgefertigte Tabellenkalkulationen, orientierende Regelungswerte für ein breites Schadstoffspektrum und zahlreiche Verweise auf Fachliteratur erleichtert.

Abstract: Manual on risk assessment for soils – Guidelines and new approaches

Levels of soil pollution lying between the trigger and clean-up values may pose a risk to humans, animals and plants (subjects of protection). The new manual (available in English as well) shows how to assess this risk and how to take risk reduction measures, thereby focusing on the following subjects:

- In general, so-called expert systems (point systems) enable an initial assessment with minor effort. Investigations in detail are required only in case of insufficient conclusions drawn by using an expert system.
- The manual provides a framework, aiming at a consistent execution of soil protection law.
- If well-founded by uncommon circumstances, however, measures can be modified (area of discretion)
- Prefabricated spreadsheets, reference values for additional pollutants, and numerous references facilitate the application of the manual.

Keywords: pollutants, risk assessment, trigger values, expert systems

1. Einführung

Für die Beurteilung von Schadstoffkonzentrationen gibt die Verordnung über Belastungen des Bodens (VBBo) für verschiedenartige Nutzungen jeweils drei Regelungswerte vor: Richt-, Prüf- und Sanierungswerte in der Reihenfolge steigender Konzentration. Die Richtwerte dienen dem langfristigen Schutz des Bodens und seiner Fruchtbarkeit. Prüf- und Sanierungswerte sind dagegen auf Gefährdungen ausgerichtet, die für Menschen, Tiere und Pflanzen (Schutzgüter) mit der Nutzung belasteter Böden verbunden sind.

Sind Sanierungswerte überschritten, so ist die betreffende Nutzung ohne Gefährdung nicht mehr möglich und wird daher nicht mehr zugelassen (Art. 10 VBBo). Eine spezielle Gefährdungsabschätzung ist dann nicht mehr erforderlich. Aber schon wenn Prüfwerte überschritten sind, ist – je nach Umständen – eine Gefährdung möglich. In diesem Fall ist durch die Behörde zu prüfen, ob

eine Gefährdung von Schutzgütern tatsächlich vorliegt. Genauere Vorgaben dafür macht die VBBo aber nicht, so dass für die Behörden bisher ein breiter Spielraum, aber auch grosse Unsicherheiten in Bezug auf ein korrektes Vorgehen blieben. Wie die Prüfung zu bewerkstelligen ist, wird nun im neuen Handbuch „Gefährdungsabschätzung Boden“ des Bundesamts für Umwelt BAFU¹ aufgezeigt (MAILÄNDER und HÄMMANN 2005).

2. Vorgehen und Grundsätze

Das Handbuch kommt da zur Anwendung, wo eine Überschreitung eines Prüfwerts entweder feststeht oder erhärtete Hinweise darauf vorliegen.

¹ Bis Dezember 2005 Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL)

Die Beurteilung einer belasteten Fläche erfolgt schrittweise. Im ersten Schritt werden die notwendigen Grundlagen erarbeitet bzw. ergänzt. Diese umfassen einerseits die Nutzung der betroffenen Fläche (Nahrungspflanzenanbau, Futterpflanzenanbau oder Nutzung mit möglicher direkter Bodenaufnahme) mit den relevanten Wirkungspfaden, das heisst den möglichen Wegen der Schadstoffe vom Boden zum Schutzgut. Andererseits geht es um Angaben zur Belastungssituation (Schadstoff, Belastungshöhe, räumliche Ausdehnung, Bodeneigenschaften usw.).

Der zweite Schritt ist die eigentliche Gefährdungsabschätzung. Diese umfasst eine Belastungsanalyse (Transfer von Schadstoffen zu den Schutzgütern Mensch, Tiere oder Pflanzen) und anschliessend die Belastungsbewertung (Zuweisung einer Gefährdungskategorie).

Im dritten und letzten Schritt erfolgt die Festlegung von Massnahmen, welche die Gefährdung der betroffenen Schutzgüter beseitigen, für die Betroffenen aber keine unnötigen Erschwernisse bringen sollen.

Bei der Gefährdungsabschätzung ist die Belastungsanalyse der Schritt, welcher die grössten Unsicherheiten beinhaltet. Grundsätzlich kann natürlich versucht werden, den Transfer der Schadstoffe zum Schutzgut analytisch möglichst genau zu bestimmen. Auch für solche detaillierten Gefährdungsabschätzungen stellt das Handbuch Methoden dar. Bei Berücksichtigung der meist hohen Variabilität können dazu aber grosse Probenzahlen und/oder komplizierte Modellrechnungen erforderlich sein, was den Aufwand schnell in die Höhe treibt. In bestimmten Fällen sind derartige Untersuchungen aber schon aus praktischen Gründen kaum möglich. So ist zwar die Messung der Schadstoffgehalte von Nahrungspflanzen, die auf einer belasteten Fläche angebaut werden, noch durchaus möglich, wobei im Einzelfall Anbauversuche erforderlich sein können. Nutztiere auf einer belasteten Fläche weiden zu lassen, ist dagegen faktisch eine Art von Tierversuch und ethisch kaum vertretbar. Undenkbar ist schliesslich, Kleinkinder versuchsweise auf einer belasteten Fläche spielen zu las-

sen und deren Schadstoffaufnahme zu messen. Es besteht daher Bedarf an vereinfachten, aber dennoch möglichst gut abgestützten Methoden, die gleichzeitig zu einem einheitlichen Vollzug beitragen. Zu diesem Zweck wurden die so genannten Expertensysteme entwickelt.

3. Expertensysteme

Die Expertensysteme erlauben für jede Nutzungsart eine stark vereinfachte Ersteinschätzung der Gefährdung mit Hilfe von Punktesystemen. Sie berücksichtigen die wichtigsten Einflussgrössen auf den Schadstofftransfer. Für die einzelnen Nutzungsarten sind dies die spezifischen Eigenschaften von Schadstoffen, die Belastungshöhe und, je nach Nutzungsart, folgende weitere Grössen:

1. Nahrungs- und Futterpflanzenanbau: Bodeneigenschaften (pH, Humus- und Tongehalt), Aufnahmeverhalten der Nutzpflanzen, beim Futterpflanzenanbau zusätzlich der Anteil direkter Bodenaufnahme und die unterschiedliche Empfindlichkeit von Nutztieren;
2. Nutzungen mit möglicher direkter Bodenaufnahme: Alter der Nutzenden, Nutzungshäufigkeit, Grad der Bodenbedeckung durch Pflanzen.

Den Einflussgrössen wird mit Hilfe von Tabellen jeweils eine Punktzahl zugewiesen, die zu einer Gesamtzahl, den Gefährdungspunkten, addiert werden. Dies entspricht der Belastungsanalyse. Anschliessend wird den Gefährdungspunkten eine Gefährdungskategorie zugewiesen (Belastungsbewertung, siehe Tabelle 1).

Die Expertensysteme wurden mit einer grossen Datengrundlage kalibriert, v. a. mit Hilfe einer Datenbank des Umweltbundesamts UBA, Berlin, und der deutschen Bundesländer (mehr als 300'000 Datenpaare zu Schadstoffgehalten von Böden und darauf wachsenden Pflanzen). Damit konnte insbesondere für die wichtigsten anorganischen Schadstoffe bei den Nutzungsarten Nahrungs- und Futterpflanzenanbau eine gute Abstützung geschaffen werden. Es ist aber zu be-

Tabelle 1: Zuordnung von Gefährdungskategorien zu Belastungen.

Belastung	Gefährdungskategorie
Es werden keine deutlich erhöhten Schadstoffgehalte (Nahrung/Futter) bzw. Schadstoffaufnahmen (Mensch und Tiere) festgestellt.	→ keine konkrete Gefährdung
Es liegen deutlich erhöhte Schadstoffgehalte (Nahrung/Futter) bzw. Schadstoffaufnahmen (Mensch und Tiere) vor. Eine Überschreitung von gesetzlichen Höchstgehalten oder wissenschaftlich anerkannten, toxikologisch begründeten Schwellenwerten wird jedoch nicht festgestellt.	→ konkrete Gefährdung möglich
Gesetzliche Höchstgehalten oder wissenschaftlich anerkannte, toxikologisch begründete Schwellenwerte (Nahrung/Futter bzw. Schadstoffaufnahmen durch Mensch und Tiere) werden überschritten.	→ konkrete Gefährdung

Tabelle 2: Zuordnung von Massnahmen zu Gefährdungskategorien.

Gefährdungskategorie	Massnahmen
Keine konkrete Gefährdung	→ Überwachung (Art. 4 Abs. 1 VBBo) sowie Quellenstopp (Art. 8 VBBo)
Konkrete Gefährdung möglich	→ Nutzungsempfehlungen; zusätzlich Überwachung (Art. 4 Abs. 1 VBBo) sowie Quellenstopp (Art. 8 VBBo)
Konkrete Gefährdung	→ Nutzungseinschränkungen und Nutzungsverbote, evtl. Dekontamination; zusätzlich Überwachung (Art. 4 Abs. 1 VBBo) sowie Quellenstopp (Art. 8 VBBo)

denken, dass die Streuung der Pflanzenaufnahme sogar bei vergleichbaren Bodeneigenschaften erheblich ist. Hier liegt der grösste Unsicherheitsfaktor, welcher die Ergebnissicherheit limitiert.

Die Datengrundlage für organische Schadstoffe und für Nutzungen mit möglicher direkter Bodenaufnahme ist dagegen wesentlich kleiner. Daher war es teilweise nicht durchführbar, Expertensysteme zu erstellen bzw. ausreichend zu kalibrieren. Bei Nutzungen mit möglicher direkter Bodenaufnahme wurden die Expertensysteme ganz bewusst stark auf die Vorsorge hin ausgelegt, d.h. es kommt bei einer Prüfwert-Überschreitung schnell zur Zuweisung in die Kategorie „konkrete Gefährdung“. Besonders bei Kinderspielplätzen dürfte es ohnehin angezeigt sein, Flächen eher zu sanieren, als mit aufwändigen und für die Öffentlichkeit schwer verständlichen Untersuchungen das Gefährdungspotential genau ermitteln zu wollen.

Im Regelfall ist eine Gefährdungsabschätzung mittels Expertensystem ausreichend. Nur wenn die Ersteinschätzung durch ein Expertensystem keine abschliessende Beurteilung ermöglicht (grosse Unsicherheiten) oder Betroffene eine genauere Überprüfung selbst vornehmen wollen, ist eine detaillierte Gefährdungsabschätzung angebracht. Das mittels Expertensystem ermittelte Ergebnis ist daher gültig, solange nicht detailliertere Untersuchungen ein anderes Resultat erbringen.

Unabhängig von der Vorgehensweise erhält man eine Belastungsbewertung in Form einer Gefährdungskategorie. Sie wird in drei Stufen gemäss den Grundsätzen in Tabelle 1 zugewiesen.

4. Festlegung von Massnahmen

Basierend auf der Gefährdungskategorie erfolgt die Festlegung von Massnahmen grundsätzlich gemäss Tabelle 2. An dieser Stelle ist aber zu bedenken, dass die Gefährdungsabschätzung gemäss Handbuch zunächst einmal vom Regelfall ausgeht, das heisst von typischen Nutzungssituationen. In der Realität liegen jedoch häufig besondere Verhältnisse vor, welche das Aus-

mass der Gefährdung wesentlich beeinflussen können. Das kann eine untypisch kurze Nutzungszeit, z. B. auf einer Alpweide, sein (mildernder Umstand), aber auch die Selbstversorgung mit Nahrungsmitteln von belasteten Flächen mit der Folge eines hohen Anteils belasteter Nahrung (verschärfender Umstand). Die Gefährdungsabschätzung kann nicht so ausgelegt werden, dass alle denkbaren Besonderheiten jedes Einzelfalls berücksichtigt werden. Das gilt insbesondere für die stark vereinfachten Expertensysteme. Solche Besonderheiten sind daher als Randbedingungen bei der Festlegung von Massnahmen zu berücksichtigen. Sie können die zu treffenden Massnahmen gegenüber dem Regelfall modifizieren. Vorwiegend darin liegt der begründete Ermessensspielraum für die Behörde im konkreten Einzelfall. Diese muss ausserdem die Verhältnismässigkeit von Massnahmen als allgemeinen Verwaltungsgrundsatz berücksichtigen. Zur Gefährdungsabwehr gibt das Handbuch daher abgestufte Massnahmen, d.h. mögliche Empfehlungen und verbindliche Massnahmen vor.

Entscheidend für Betroffene ist besonders, ob verbindliche Massnahmen (Nutzungseinschränkungen oder gar -verbote) nötig sind. Sie sind grundsätzlich nur beim Vorliegen einer konkreten Gefährdung erforderlich, was der Schwelle zur Überschreitung von gesetzlichen Höchstgehalten bzw. toxikologisch begründeten Schwellenwerten in Tabelle 1 entspricht. Konkret ist eine Gefährdung dann, wenn sie sich nach gewöhnlichem Lauf der Dinge früher oder später tatsächlich verwirklicht, das heisst ein Schaden an Gesundheit oder Umwelt eintritt. Die in Tabelle 2 aufgeführte Überwachung ist im Übrigen durch die Behörden bei sämtlichen Bodenbelastungen durchzuführen, welche die Bodenfruchtbarkeit gefährden können (Art. 4 VBBo).

5. Ergänzende Hilfen

Um die Expertensysteme in der Anwendung einfacher und übersichtlicher zu gestalten, wurden sie als Ergänzung zum Handbuch auch in Tabellenkalkulationen umgesetzt. Diese können, ebenso wie das Handbuch selbst, über das Internet bezogen werden (www.umwelt-schweiz.ch). Die Expertensysteme erlauben neben der Gefährdungsabschätzung auch eine erste (grobe) Beurteilung darüber, welche Bedeutung die Unsicherheit einzelner Faktoren haben kann. Dazu können die einzelnen Faktoren variiert und die Auswirkung auf die Gefährdungsabschätzung bestimmt werden (Sensitivität). Ausserdem kann so herausgefunden werden, mit welchen Mitteln der aktuellen Gefährdungslage am ehesten zu begegnen ist (Szenarien für Massnahmen).

Das Handbuch stellt den Bearbeitern für spezielle Fälle zahlreiche Verweise auf weitere Grundlagen zur Verfügung (ausführliche Literaturliste). Zudem wurden orientierende Regelungswerte zu einem grösseren Schadstoff-Spektrum als das in den Anhängen 1 und 2 VBBo enthaltene aufgenommen (Werte nach EIKMANN und KLOKE 1993). Auch dies soll zu einem einheitlichen und besser abgestützten Vollzug der kantonalen Fachstellen beitragen.

6. Literatur

a) Rechtserlasse:

Bundesgesetz vom 7. Oktober 1983 über den Umweltschutz (Umweltschutzgesetz, USG; SR 814.01).

Verordnung vom 1. Juli 1998 über Belastungen des Bodens (VBBo; SR 814.12).

b) Weitere Literatur:

EIKMANN, T. und KLOKE, A. (1993): «*Nutzungs- und schutzgutbezogene Orientierungswerte für (Schad-)Stoffe in Böden – Eikmann-Kloke-Werte*», in: Rosenkranz D., Bachmann G., König W., Einsele G. (Hrsg.), Bodenschutz, ergänzbares Handbuch der Massnahmen und Empfehlungen für Schutz, Pflege und Sanierung von Böden, Landschaft und Grundwasser, ISBN 3 503 02718 1, Kennzahl 3590, E. Schmidt Verlag, Berlin.

MAILÄNDER, R. A. und HÄMMANN, M. (2005): Handbuch Gefährdungsabschätzung und Massnahmen bei schadstoffbelasteten Böden – Gefährdungsabschätzung Boden. Vollzug Umwelt. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, Bern. 105 S.

7. Dank

Die Autoren des Handbuchs danken allen, die zur Erstellung des Handbuchs beigetragen haben, an dieser Stelle ganz herzlich. Insbesondere seien erwähnt:

- die Mitglieder der Begleitgruppe (BAFU und weitere Bundesstellen, Kantone, Universitäten, Forschungsanstalten);
- das Umweltbundesamt (Berlin) und die deutsche Bundesländer für die freundliche Bereitstellung der TRANSFER-Datenbank;
- die Geotechnisches Institut AG.

Nationale Bodenbeobachtung (NABO) – Stand, Erkenntnisse und Perspektiven

André Desaulles, Armin Keller, Peter Schwab, Johann Brunner, Stefan Ammann, Kirsten Rehbein
Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, CH-8046 Zürich

Zusammenfassung

Mit dem Aufbau des nationalen Referenznetzes zur Beobachtung von Bodenbelastungen in der Schweiz wurde 1984 begonnen. Daraus wurde im Laufe der Jahre ein modulares Konzept entwickelt (www.nabo.admin.ch).

'NABO-Quality' sichert die Qualität der Bodendaten durch methodische Wegleitungen sowie laufende Ringanalysen und ist die Grundlage für zuverlässige Aussagen und Interpretationen. Die grösste Herausforderung bedeutet die langfristige und kontinuierliche Qualitätssicherung in der ausgesprochen vielfältigen und heterogenen Bodenmatrix.

'NABO-Status' soll das Belastungsausmass raumbezogen erfassen. Nach quellenorientierten Studien sollen künftig die vorhandenen Bodendaten in einer nationalen Bodenschadstoff-Datenbank (NABODAT) mit GIS-Anbindung für landesweite Auswertungen verfügbar gemacht werden.

'NABO-Trend' misst und beurteilt vorläufig alle 5 Jahre die zeitliche Entwicklung der Bodenbelastung mit Schadstoffen. Seit 2005 läuft die 5. Erhebung der insgesamt 105 Dauerbeobachtungs-Standorte. Häufige Zickzack-Verläufe deuten auf multifaktorielle Ursachen und Artefakte hin. Das erhebliche Grundrauschen und die allgemein nur schleichenden anthropogenen Anreicherungen bedürfen langer bzw. intensiver Zeitreihen für gesicherte Trendaussagen.

'NABO-Flux' erfasst an verschiedenen Beobachtungsstandorten Schadstoffflüsse und trägt damit zur Früherkennung und Prognose von Schadstoffbelastungen bei. Vergleiche der zeitlichen Entwicklung von Schadstoffbelastungen im Boden aufgrund von direkten Bodenmessungen einerseits und erfassten Schadstoffflüssen andererseits zeigen eine noch ungenügende Übereinstimmung. Gefordert sind Verbesserungen von Prozessverständnis und Datenqualität, um eine genügende Aussagesicherheit für politische Entscheide zu erreichen.

Seit 2000 läuft ein Pilotprojekt zur langfristigen Beobachtung physikalischer und biologischer Bodeneigenschaften (LAZBO). Besondere Probleme stellen bei der Bodenphysik die räumliche Integration und bei der Bodenbiologie die Referenzstabilität dar. Als Perspektive wird auf ein umfassendes NABO-Konzept hingearbeitet, welches chemische, physikalische und biologische Bodenbelastungen erfassen soll.

Résumé

Observatoire national des sols – état, enseignements et perspectives

Le réseau national d'observation des sols suisses (NABO) a été mis en place à partir de 1984. Au fil des années, un concept modulaire a vu le jour (www.nabo.admin.ch).

'NABO-Quality' assure la qualité des données à l'aide de directives et d'un programme d'essai interlaboratoire continu. Le défi majeur consiste à fournir une assurance qualité continue dans la matrice du sol qui est extrêmement variée et hétérogène.

'NABO-Status' doit rendre compte de l'état de contamination des sols. Après plusieurs études ciblées, toutes les données de la Confédération et des cantons seront réunies dans la banque NABODAT, couplée à un SIG.

'NABO-Trend' mesure et évalue l'évolution de la pollution des sols tous les 5 ans. Le 5^e relevé des 105 sites est en cours depuis 2005. De fréquentes évolutions en zic-zac indiquent des causes multifactorielles et des effets d'artefacts. Le bruit de fond important et la faible charge anthropique nécessitent de longues et/ou intenses séries temporelles pour obtenir des tendances fiables.

'NABO-Flux' analyse les flux de polluants sur différents sites d'observation et contribue au dépistage précoce et aux prévisions de la pollution des sols. La comparaison des résultats de bilans et d'évolutions mesurées dans le sol est encore insuffisante. La connaissance des processus et la qualité des données devront être encore améliorées afin de fournir une base solide aux décisions politiques.

Depuis 2000, un projet pilote est en cours sur l'observation à long terme des propriétés physiques et biologiques du sol. Des problèmes spécifiques sont dus à l'intégration spatiale pour la physique des sols et à la stabilité référentielle pour la biologie du sol. L'élaboration d'un concept NABO intégral constitue une perspective importante et devrait permettre de recenser les atteintes chimiques, physiques et biologiques portées au sol.

Keywords: Soil monitoring, soil data quality, soil pollutants, heavy metal balances

1. Einführung

Mit dem Aufbau der Nationalen Bodenbeobachtung der Schweiz (NABO) wurde 1984 begonnen. Daraus wurde im Laufe der Jahre ein modulares Konzept entwickelt, das sich sowohl für die Arbeitsorganisation wie auch für die Kommunikation und Berichterstattung eignet. Die gesetzlichen Grundlagen stützen sich auf Art. 44 des USG (1983) zusammen mit Art. 3 der VBBo (1998) bzw. der Vorgängerverordnung (VSBö, 1986). Erläuterungen dazu finden sich in BUWAL (2001). Aktuelle und ausführliche Informationen

gibt die NABO-Website www.nabo.admin.ch, mit rund 3'000 Besuchen pro Monat und einer Bibliographie von 153 Titeln – oft zum Herunterladen (Stand Ende 2006).

Gemäss dem Kernauftrag betreibt das BAFU in Zusammenarbeit mit dem BLW ein nationales Referenznetz zur Beobachtung der Belastungen des Bodens. Der Zweck ist die landesweite räumliche und zeitliche Erfassung und Beurteilung der Bodenbelastungen zur Planung und Erfolgskontrolle von Bodenschutz-Massnahmen. Aus dem NABO-Referenznetz ging das nachstehend erläuterte modulare Konzept hervor (Fig. 1).

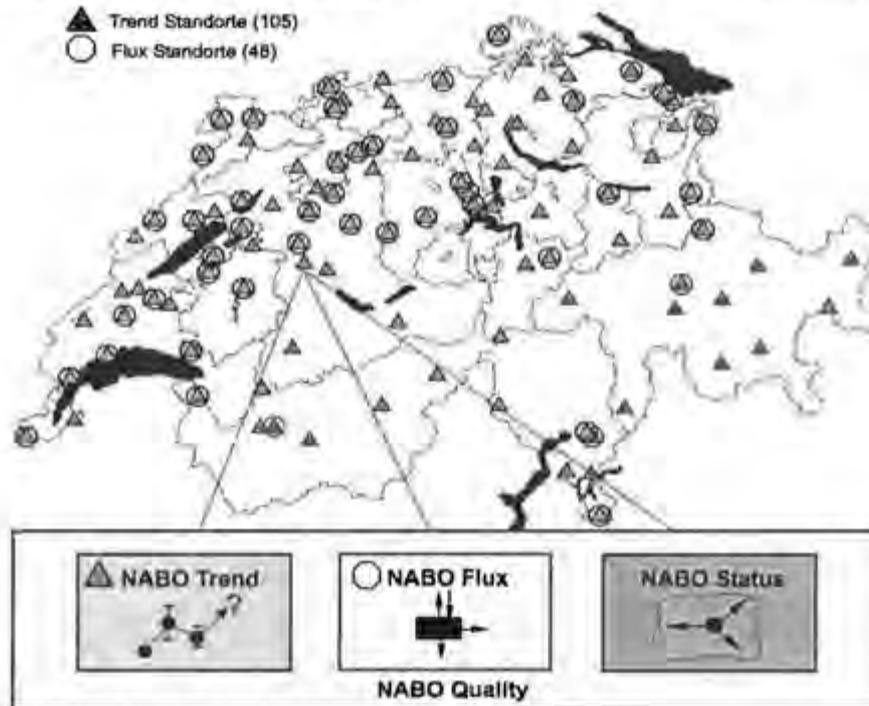


Fig. 1: NABO-Messnetz und modulares Konzept

2. Qualitätsmanagement (NABO-Quality)

NABO-Quality sichert und quantifiziert langfristig die Qualität der Bodendaten und ist damit die Grundlage für die Aussagesicherheit der Ergebnisse. Es geht darum, die bestmögliche Repräsentativität der Ergebnisse über zirka 14 Grössenordnungen zu gewährleisten (Fig. 2).

Die interne und externe Qualitätssicherung in der ausgesprochen vielfältigen und heterogenen Bodenmatrix muss kontinuierlich und langfristig ausgerichtet sein. Zum Instrumentarium gehören Wegleitungen zur Probenahme (Hämmann & Desaulles, 2003), interne Kontrollproben (Desaulles et al., 1996), Probenahme-Ringversuche (Desaulles & Dahinden, 1994) und seit 1989 jährliche Ringanalysen (Ammann & Desaulles, 2006). Mit Hilfe von Unsicherheitsbudgets soll der ganze Messprozess von der Probenahme hin zur Laboranalyse künftig quantifiziert und optimiert werden (Kurfürst et al., 2004).

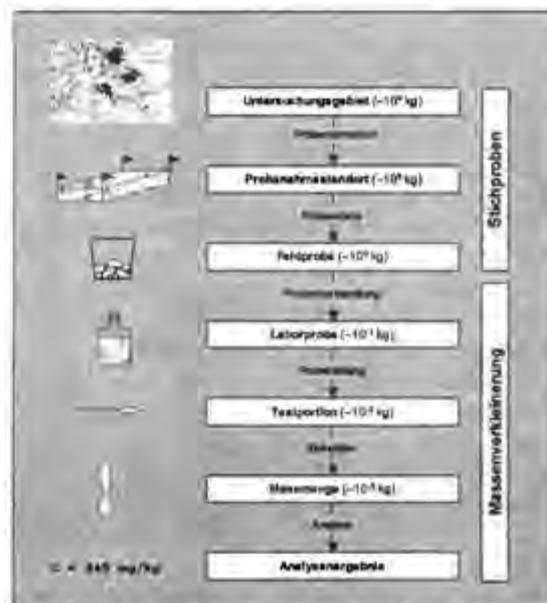


Fig. 2: Herausforderung der Probenahme und -vorbereitung – bestmögliche Repräsentativität über 14 Grössenordnungen (Hämmann & Desaulles, 2003)

3. Räumliche Belastung (NABO-Status)

NABO-Status soll das Belastungsausmass raumbezogen erfassen. Nach quellenorientierten Studien zu Verkehr (BUWAL, 1992), Kupferanwendung (Studer et al., 1995), Klärschlammdüngung (Keller & Desaulles, 1997) und Ausgangsgestein (Desaulles & Dahinden, 1996; Keller & Desaulles, 2001), sollen künftig auch die schweizweit vorhandenen Bodendaten in einer nationalen Bodenschadstoff-Datenbank (NABODAT) für landesweite Auswertungen für Fachpersonen via Internet verfügbar gemacht werden (Rehbein, 2004). Nach Genehmigung des Projektantrages Ende 2005 befindet sich das Projekt NABODAT momentan in der Entwicklung der Detailspezifikation mit dem Ziel erster Testläufe 2007. Als Basis der Datenbank wurde im Jahr 2005 ein systemneutrales Interlis-Datenmodell erstellt (Keller et al., 2005a).

Als mögliche Auswertung der NABODAT wird gegenwärtig eine Vorgehensweise für die Erstellung von Bodenschadstoffkarten zur Abbildung grossräumiger diffuser Schwermetallgehalte im Schweizer Mittelland am Beispiel des Kantons Thurgau erarbeitet (Rehbein et al., 2007a; Rehbein et al., 2007b). Ein zentraler Aspekt stellt hierbei die genügende Flexibilität der Auswertungsmethode dar, um die regional- und element-spezifischen Verteilungsmuster mit einem geeig-

neten statistischen Modell erfassen zu können. Dies erfordert Grundlagenkarten von möglichen erklärenden Faktoren der Bodenbelastung (z.B. Nutzung und Bodentyp), um räumliche Trends explorativ analysieren zu können. Die Interpolation der punktuellen Messungen erfolgt mit einer geeigneten Krigingmethode, die neben den geschätzten Bodenkonzentrationen auch deren Schätzgenauigkeit liefert. Die Aussagekraft von Karten zur Darstellung von grossräumigen Bodenkonzentrationen in Bezug zur Messpunktdichte muss für weitere Kantone geprüft werden.

4. Zeitliche Entwicklung (NABO-Trend)

NABO-Trend misst und beurteilt vorläufig alle 5 Jahre die zeitliche Entwicklung der Bodenbelastung mit Schadstoffen im Referenznetz (Desaulles & Dahinden, 2000; Desaulles et al., 2006; Desaulles & Studer, 1993). Seit 2005 läuft die 5. Erhebung der insgesamt 105 Dauerbeobachtungs-Standorte. Häufige Zickzack-Verläufe deuten auf multifaktorielle Ursachen und Artefakte hin (Desaulles et al., 2004). Daraus resultiert ein erhebliches Grundrauschen (Vertrauensbereich). Deshalb kann nur eine statistisch hinreichende Anzahl Messungen bzw. Erhöhung der Messperiodizität zu gesicherten Trendaussagen führen (Fig. 3).

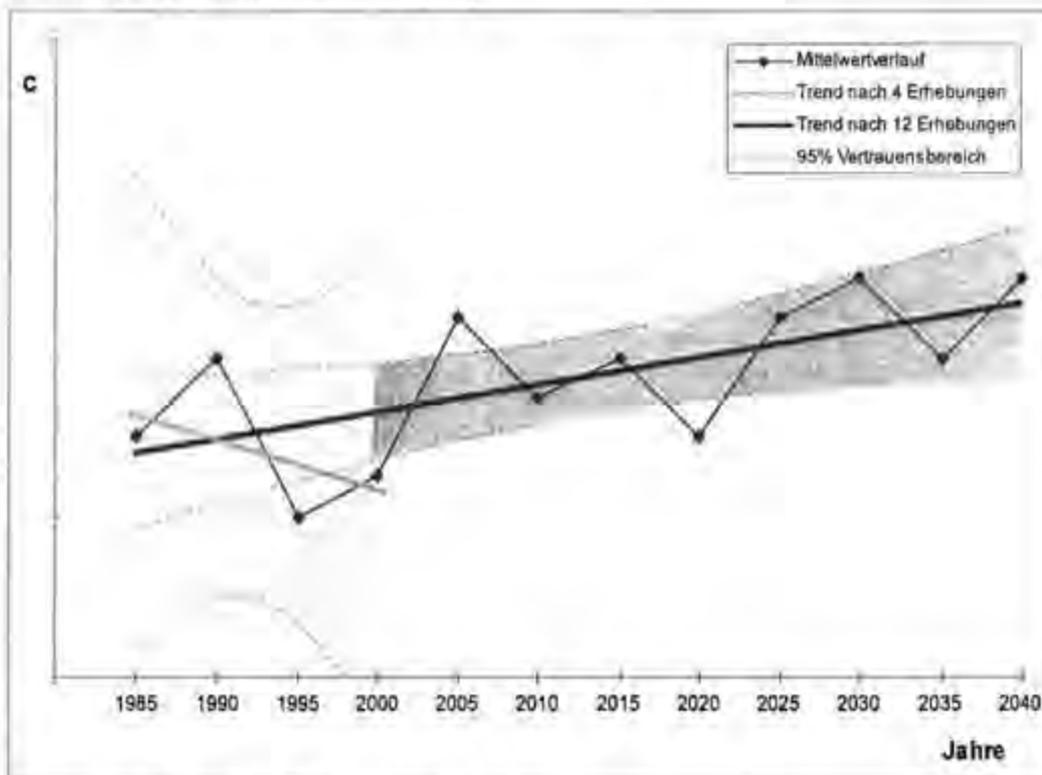


Fig. 3: NABO-Zeitreihe – gemessen und Szenario

5. Stoffbilanzen (NABO-Flux)

NABO-Flux erfasst an landwirtschaftlich genutzten Beobachtungsstandorten Stoffflüsse und trägt damit zur Früherkennung und Prognose von möglichen Schadstoffbelastungen bei. Für eine korrekte Interpretation ist es unerlässlich, dass die Unsicherheiten auch bei den Stoffbilanzen ausgewiesen werden. Aus diesem Grunde wird eine stochastische Bilanzierungsmethode angewendet (Keller et al., 2005b). Die Bilanzen für 48 Landwirtschaftsparzellen der Jahre 1996 bis 2003 wiesen auf eine schleichende Anreicherung von Zink, Kupfer und Cadmium im Oberboden hin. Die Variationskoeffizienten der Nettoeinträge lagen bei etwa 50 % bis 80 %. Handlungsbedarf zur Reduzierung von Einträgen besteht insbe-

sondere bei Spezialkulturen, z.B. Kupfer im Reb-
bau, und bei Veredelungsbetrieben bezüglich
dem Einsatz von kupfer- und zinkhaltigen Mine-
ralfuttermitteln.

Die mit den parzellenscharfen Stoffbilanzen prognostizierten Veränderungen der Gehalte im Oberboden für ein Jahrzehnt stimmten nur teilweise mit den gemessenen Veränderungen überein (Fig. 4). Es muss geprüft werden, ob mit der Erweiterung des Bilanzmodells mit möglichen relevanten Prozessen wie Erosion, Verlagerung oder Bioturbation die Übereinstimmung verbessert werden kann. Ziel ist ein validiertes Bilanzmodell zu entwickeln, das zuverlässige Aussagen für die zeitliche Veränderung von Schadstoffbelastungen im Boden erlaubt und die Ursachen der gemessenen Veränderungen identifiziert.

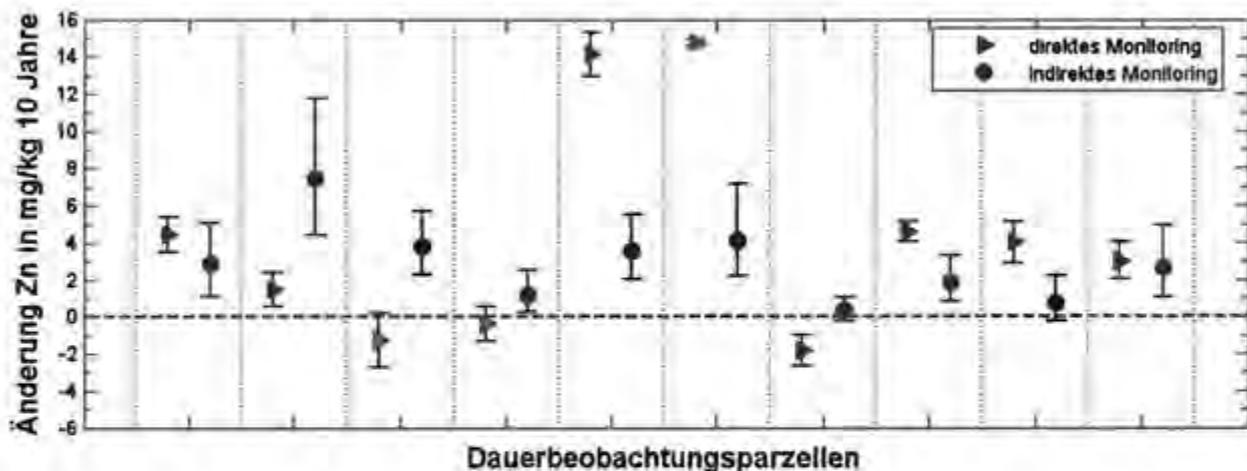


Fig. 4: Vergleich von gemessenen (direktes Monitoring) und mit der Stoffbilanzierung berechneten (indirektes Monitoring) Veränderungen der Zink-Konzentration im Oberboden 0-20 cm für zehn Graslandstandorte im NABO-Messnetz

6. Perspektiven

Seit 2000 läuft ein Pilotprojekt zur langfristigen Beobachtung physikalischer und biologischer Bodeneigenschaften (LAZBO). Das Ziel ist Beprobungs- und Analysenmethoden für die Langzeitbeobachtung von ausgewählten bodenphysikalischen und -biologischen Parametern zu validieren. Besondere Probleme stellen bei der Bodenphysik die räumliche Integration und bei der Bodenbiologie die Referenzstabilität dar (Oberholzer et al., 2006; Schwab et al., 2006a; Schwab et al., 2006b). Als Perspektive wird auf ein umfassendes NABO-Konzept hingearbeitet, welches sowohl chemische, physikalische und biologische Bodenbelastungen erfassen und beurteilen soll (Fig. 5).

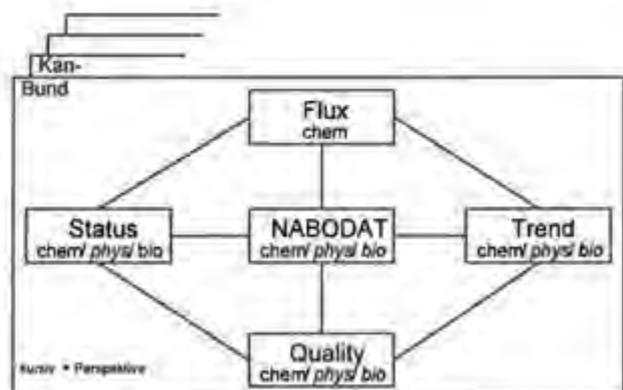


Fig. 5: Integrales NABO-Konzept als Perspektive

7. Literatur

- Ammann, S. & Desaulles, A., 2006. VBBo-Ringanalysenbericht 2005. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 54 pp.
- BUWAL, 1992. Bodenverschmutzung durch den Strassen- und Schienenverkehr in der Schweiz. Schriftenreihe Umwelt Nr. 185. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern. 144 pp. (Auch als Schlussbericht des Forschungsauftrags Nr. 57/90 beim Bundesamt für Strassenbau veröffentlicht.)
- BUWAL, 2001. Erläuterungen zur Verordnung über Belastungen des Bodens (VBBo). Vollzug Umwelt VU-4809-D. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern.
- Desaulles, A. & Dahinden, R., 1994. Die Vergleichbarkeit von Schwermetallanalysen in Bodenproben von Dauerbeobachtungsflächen - Ergebnisse eines Probenahmeringversuches. Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Umwelthygiene (FAC), 3097 Liebefeld. 25 pp.
- Desaulles, A. & Dahinden, R., 1996. Schadstoffgehalte von Böden in der Schweiz - Schlüssel zur Identifikation gesteinsbedingter Richtwertüberschreitungen. Vollzug Umwelt. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), 3003 Bern. 26 pp.
- Desaulles, A. & Dahinden, R., 2000. Nationales Boden-Beobachtungsnetz - Veränderungen von Schadstoffgehalten nach 5 und 10 Jahren. Schriftenreihe Umwelt Nr. 320. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), 3003 Bern. 129 pp.
- Desaulles, A., Dahinden, R. & Lischer, P., 1996. Untersuchungen zum Nachweis der zeitlichen Stabilität von Schwermetall- und Fluoranalysen in archivierten Bodenproben im Hinblick auf die Dauerbeobachtung. Mitt. Gebiete Lebensm. Hyg., 87: pp. 230-243.
- Desaulles, A., Keller, A., Schwab, P. & Dahinden, R., 2004. Analysen von Zeitreihen und Ursachen gemessener Konzentrationsveränderungen von Schwermetallen und Phosphor in Böden auf Dauerbeobachtungsflächen. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, 8046 Zürich. 107 pp.
- Desaulles, A., Schwab, P., Keller, A., Ammann, S., Paul, J. & Bachmann, H.J., 2006. Anorganische Schadstoffgehalte in Böden der Schweiz und Veränderungen nach 10 Jahren - Ergebnisse der Nationalen Bodenbeobachtung 1985-1999. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 139 pp.
- Desaulles, A. & Studer, K., 1993. NABO - Nationales Bodenbeobachtungsnetz Messresultate 1985-1991. Schriftenreihe Umwelt Nr. 200. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), 3003 Bern. 134 pp., Anhänge 175 pp.
- Hämmann, M. & Desaulles, A., 2003. Handbuch: Probenahme und Probenvorbereitung für Schadstoffuntersuchungen in Böden. Vollzug Umwelt (VU-4814-D). Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), CH-3003 Bern. 100 pp.
- Keller, A., Rehbein, K., Eisenhut, C. & Desaulles, A., 2005a. Datenmodell-NABODAT Ein systemneutrales INTERLIS-Datenmodell für die Zusammenführung, Verwaltung und Nutzung von digitalen Bodenschadstoffdaten in der Schweiz. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, 8046 Zürich. 31 pp.
- Keller, A., Rossier, N. & Desaulles, A., 2005b. Schwermetallbilanzen von Landwirtschaftspartzellen der Nationalen Bodenbeobachtung. Schriftenreihe der FAL Nr. 54. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 56 pp.
- Keller, T. & Desaulles, A., 1997. Flächenbezogene Bodenbelastung mit Schwermetallen durch Klärschlamm. Schriftenreihe der FAL 23. Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau - Institut für Umweltschutz und Landwirtschaft (FAL-IUL), CH-3003 Bern. 82 pp.
- Keller, T. & Desaulles, A., 2001. Kartiergrundlagen zur Bestimmung der Bodenempfindlichkeit gegenüber anorganischen Schadstoffeinträgen in der Schweiz. Nationale Bodenbeobachtung (NABO). Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau (FAL), CH-8046 Zürich. 81 pp.

- Kurfürst, U., Desaulles, A., Rehnert, A. & Muntau, H., 2004. Estimation of measurement uncertainty by the budget approach for heavy metal content in soils under different land use. *Accred. Qual. Assur.*, 9: pp. 64-75.
- Oberholzer, H., Scheid, S., Schwab, P., Bonvicini, A., Müller, S. & Brunner, H., 2006. Langzeitbeobachtung von physikalischen und biologischen Bodeneigenschaften - Pilotprojekt LAZBO - Teil 3 Bodenmikrobiologische Untersuchungen. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 83 pp.
- Rehbein, K., 2004. Machbarkeitsstudie für eine nationale Bodenschadstoff-Datenbank (NABODAT) mit GIS-Anbindung. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 97 pp. (interner Bericht)
- Rehbein, K., Keller, A. & Desaulles, A., 2007a. Digitale Kartierung von Schwermetallgehalten in den Böden des Kantons Thurgau. Teil 1: Methodik. Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, Zürich.
- Rehbein, K., Keller, A. & Desaulles, A., 2007b. Digitale Kartierung von Schwermetallgehalten in den Böden des Kantons Thurgau. Teil 2: Ergebnisse und Diskussion. Forschungsanstalt Agroscope Reckenholz-Tänikon ART, Zürich.
- Schwab, P., Weisskopf, P., Berli, M., Rehbein, K., Brunner, H., Scheid, S., Sommer, M. & Ropka, B., 2006a. Langzeitbeobachtung von physikalischen und biologischen Bodeneigenschaften - Pilotprojekt LAZBO - Teil 2 Bodenphysikalische Untersuchungen. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 107 pp.
- Schwab, P., Weisskopf, P., Oberholzer, H., Scheid, S. & Berli, M., 2006b. Langzeitbeobachtung von physikalischen und biologischen Bodeneigenschaften - Pilotprojekt LAZBO - Teil 4 Folgerungen, Empfehlungen und Ausblick für die Langzeitbeobachtung. Agroscope FAL Reckenholz, Eidg. Forschungsanstalt für Agrarökologie und Landbau, Zürich. 27 pp.
- Studer, K., Gsponer, R. & Desaulles, A., 1995. Erfassung und Ausmass der flächenhaften Kupferbelastung in Rebbergböden der Schweiz. Schriftenreihe der FAL-Liebefeld Nr. 20. Eidg. Forschungsanstalt für Agrikulturchemie und Umwelthygiene (FAC), 3097 Liebefeld. 44 pp.
- USG, 1983. Bundesgesetz über den Umweltschutz vom 7. Oktober 1983 (Stand am 30. Dezember 2003). SR 814.01.
- VBBö, 1998. Verordnung über Belastungen des Bodens (VBBö) vom 1. Juli 1998. SR 814.12.
- VSBo, 1986. Verordnung vom 9. Juni 1986 über Schadstoffe im Boden. SR 814.12. (ersetzt durch VBBö, 1998).

Nationale Grundwasserbeobachtung Schweiz - Erste Ergebnisse und Perspektiven

Daniel Hartmann und Reto Muralt

Bundesamt für Umwelt (BAFU), CH-3003 Bern

Zusammenfassung

Das seit 1997 aufgebaute NAtionale Netz zur QUAlitätsbeobachtung des Grundwassers NAQUA ermöglicht ab dem Jahr 2002 eine für die Schweiz repräsentative Übersicht über den Zustand der vornehmlich für die Trinkwassergewinnung genutzten Grundwasservorkommen in Bezug auf die wichtigsten anthropogenen Schadstoffe sowie die natürlichen Wasserinhaltsstoffe. NAQUA besteht aus zwei aufeinander abgestimmten Teilmessnetzen: dem vom Bund betriebenen Teilmessnetz NAQUA_{TREND} mit 50 Messstellen und dem in Zusammenarbeit mit den Kantonen betriebenen Messnetz NAQUA_{SPEZ} mit rund 500 Messstellen.

Erste Ergebnisse zeigen deutliche Belastungen zahlreicher wichtiger Grundwasservorkommen mit diversen Schadstoffen, jedoch ohne dass von einer alarmierenden Situation gesprochen werden muss. Sie zeigen aber auch auf, dass die Anstrengungen des Grundwasserschutzes unvermindert weitergeführt werden müssen.

Die Forschergemeinschaft ist ausdrücklich eingeladen, für ihre Projekte die Grundlagen und Ergebnisse des bestehenden NAQUA-Messnetzes zu nutzen und sie mit eigenen Erhebungen zu ergänzen.

Abstract: National groundwater-monitoring in Switzerland. First results and perspectives

Since 1997 the national network for groundwater monitoring NAQUA has been gradually set up. Since 2002 it provides data for a representative national overview of important Swiss groundwater resources with respect to natural constituents as well as the most important anthropogenic pollutants. The NAQUA network is split in two complementary parts: NAQUA_{TREND}, operated by the federal authorities, with 50 stations, and NAQUA_{SPEZ} which is operated in close collaboration with the cantonal authorities and consists of about 500 stations.

First results confirm the significant occurrence of various contaminants in several important groundwater bodies, although the situation is not yet alarming. Nevertheless, the results show that the efforts to protect the groundwater resources have to be continued.

The research community is invited to take advantage of the NAQUA network and its results and to supplement the latter with their own observations.

Keywords: groundwater monitoring, groundwater quality, Switzerland, NAQUA

1. Einleitung

Mit einem Anteil von über 80 Prozent ist das Grundwasser die mit Abstand wichtigste Ressource für die Trinkwasserversorgung der Schweiz. Düngemittel- und Arzneimittel, Pestizide und hormonaktive Stoffe im Grundwasser - und in der Folge auch im Trinkwasser - können zu einem Problem für die Gesundheit werden. Veränderungen des Klimas und Eingriffe aller Art in den natürlichen Wasserhaushalt beeinflussen auch unsere Grundwasserressourcen.

Behörden, Politik, Wirtschaft und Wissenschaft müssen über zuverlässige Grundlagen verfügen, um diese Risiken beurteilen und nötigenfalls die erforderlichen Gegenmassnahmen einleiten zu können, d.h. sie müssen die Grundwasservorkommen kennen und über deren Veränderungen rechtzeitig Bescheid wissen. Zudem verlangt

auch die breite Öffentlichkeit zu wissen, wie es um ihre wichtigste Trinkwasserressource steht. Aus diesen Gründen wurde das Messnetz NAQUA aufgebaut. Es liefert seit 2002 Daten für eine umfassende und für die Schweiz repräsentative Beurteilung der Qualität der vornehmlich für die Trinkwassergewinnung genutzten Grundwasservorkommen in Bezug auf die wichtigsten anthropogenen Schadstoffe sowie die natürlichen Wasserinhaltsstoffe.

2. Das Messnetz

Das Messnetz NAQUA besteht aus zwei sich ergänzenden Teilmessnetzen:

- dem Teilmessnetz zur Dauerbeobachtung NAQUA_{TREND} mit 50 Messstellen und

- dem Teilmessnetz für Spezialuntersuchungen **NAQUA_{SPEZ}** mit zurzeit 515 Messstellen.

Das Teilmessnetz **NAQUA_{TREND}** wird vom Bund in Eigenregie betrieben. Die Betreuung erfolgt durch das BAFU. Die Messstellen wurden so ausgewählt, dass sie einerseits möglichst gleichmässig über die stark genutzten Regionen der Schweiz

verteilt sind und andererseits die verschiedenen hydrogeologischen Grundeinheiten (Lockergesteins-, Kluft- und Karstgrundwasser) sowie die Bodennutzungen (Ackerbau, Wald, Siedlungsraum usw.) repräsentativ abdecken - soweit dies mit lediglich 50 Messstellen möglich ist (Tabelle 1).

Tab. 1: Auswahlkriterien der 50 Messstellen für das Teilmessnetz **NAQUA_{TREND}**

Kriterium	Eigenschaft	Anzahl Messstellen	
Erschliessungstyp	Quelle	15	
	Grundwasserpumpwerk	30	
	Piezometer	5	
Untergrund	Festgestein	Karst; z.B. Kalke	7
		klastische Gesteine; z.B. Sandstein	4
		kristalline Gesteine; z.B. Granit	3
	Lockergestein	Schotter in Talsohlen	32
		Schotter ausserhalb von Talsohlen	4
Hauptbodennutzung im Einzugsgebiet	Ackerbau	22	
	Gras- und Viehwirtschaft	6	
	Obst- und Rebbau	1	
	Wald	7	
	Alp- und Juraweiden	2	
	unproduktive Gebiete	2	
	Siedlungsraum und Verkehrswege	10	
Naturräumliche Gliederung	Mittelland und Randgebiete	29	
	Alpen	17	
	Jura	4	
Höhenlage über Meer	< 600 m	35	
	600 – 1000 m	9	
	1000 – 1500 m	3	
	1500 – 2500 m	3	
Trinkwassernutzung	genutzt	42	
	ungenutzt	8	

Für das Teilmessnetz **NAQUA_{TREND}** konnte ein erheblicher Aufwand betrieben werden, um die einzelnen Messstellen zu charakterisieren und zu dokumentieren. Mit einer detaillierten Studie wurde für jede Messstelle das Einzugsgebiet ermittelt, ebenso das Naheinzugsgebiet, definiert als derjenige Teil des Einzugsgebiets, dessen Wasser innerhalb von 10 Tagen in der Messstelle eintrifft. Mittels GIS-Auswertung konnte anschliessend eine detaillierte Statistik der Bodennutzung im Einzugsgebiet durchgeführt werden.

Beim Aufbau des Teilmessnetzes **NAQUA_{SPEZ}** wurde im Grundsatz genau gleich verfahren wie bei **NAQUA_{TREND}**. Es wurden die gleichen Auswahlkriterien angewendet. Auch hier findet sich eine Konzentration der Messstellen auf die dichter besiedelten und intensiv genutzten Regionen der Schweiz. Das **NAQUA_{SPEZ}**-Messnetz ist für die genutzten Grundwasservorkommen repräsentativ. Die ungenutzten Vorkommen hingegen werden nur zu Referenzzwecken miterfasst - deren repräsentative Beprobung ist mit den zur Zeit zur Verfügung stehenden Mitteln, aber auch aus operationellen Gründen nicht möglich.

Im Gegensatz zu **NAQUA_{TREND}** wird **NAQUA_{SPEZ}** nicht durch das BAFU in Eigenregie betrieben, sondern in enger Zusammenarbeit mit den Kantonen. Wegen der grossen Anzahl Messstellen musste der Aufwand zu deren Charakterisierung eingeschränkt werden. Dafür erlaubt die höhere Anzahl Messstellen statistische Aussagen über den Zustand der genutzten schweizerischen Grundwasservorkommen.

3. Beobachtungsprogramme

Die Grundwasserbeobachtung in der Schweiz ist mehrstufig organisiert. In Abbildung 1 ist mit dem Basisprogramm **NAQUA_{TREND}**, den Spezialprogrammen im Rahmen von **NAQUA_{SPEZ}** sowie den je nach aktueller Fragestellung flexibel durchgeführten Pilotprogrammen für Schadstoffe, über deren Auftreten in der Schweiz noch wenig bekannt ist, der Bereich des Bundes dargestellt.



Abb. 1: Situation der Grundwasserbeobachtung in der Schweiz

Der kantonale bzw. kommunale Teil der Grundwasserbeobachtung - teilweise in Überschneidung mit dem Bereich des Bundes - umfasst zusätzlich die individuellen kantonalen Beobachtungsprogramme sowie die eigentlichen Res-

ourcen- und Trinkwasserüberwachungsprogramme der einzelnen Wasserversorgungen. Im Rahmen des Basismessnetzes NAQUA_{TREND} werden 7 verschiedene Analytikmodule eingesetzt, die je nach den hydrogeologischen Eigenschaften der Messstelle und je nach der Landnutzung im Einzugsgebiet in unterschiedlichen Frequenzen angewendet werden.

In NAQUA_{SPEZ} werden zur Zeit zwei Standardprogramme durchgeführt (Abbildung 2): einerseits das Programm NS1 für typische Schadstoffe aus der landwirtschaftlichen Bodennutzung und andererseits das Programm NS2 mit den für Verkehr und Industrie typischen Substanzen aus der Gruppe der flüchtigen organischen Verbindungen (VOC).

Zu allen Untersuchungen gehören immer auch die Feldmessungen. Die Standard- und Zusatzprogramme werden abhängig von den Messstellencharakteristika in unterschiedlichen Frequenzen jeweils an einer definierten Messstellenauswahl durchgeführt.

1) Probennahmen und Feldmessungen	
Schüttung / Wasserstand Elektrische Leitfähigkeit	Wassertemperatur Sauerstoffgehalt
2) Standardprogramme	
NAQUA_{SPEZ} "Landwirtschaft" (NS1)	NAQUA_{SPEZ} "Verkehr und Industrie" (NS2)
Pflanzenschutzmittel	Treibstoffbestandteile
Atrazin Desethylatrazin	MTBE Benzol
Desisopropylatrazin Simazin	Toluol Ethylbenzol
Terbutylazin Isoproturon	Xylol
Diuron Metamifron	
Metolachlor Propazin	
Cyanazin Terbutryn	
Nitrat	30 halogenierte Kohlenwasserstoffe (PER, Trichlorethen, etc.)
3) Zusatzprogramme	
23 Pflanzenschutzmittel (Glyphosat, Bentazon, Metolachlor ESA, usw.) Weitere Pflanzenschutzmittel je nach Analytikmöglichkeiten der beteiligten Laboratorien	Diverse aliphatische, monozyklische und polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe je nach Analytikmöglichkeiten der beteiligten Laboratorien

Abb. 2: Die Messprogramme im Rahmen von NAQUA_{SPEZ}

4. Erste Ergebnisse

Nitrat

Die Ergebnisse der Jahre 2002/2003 sind detailliert in [1] beschrieben. Beim Nitrat zeigt sich sehr deutlich der enge Zusammenhang zwischen intensiver landwirtschaftlicher Bewirtschaftung und hohen Nitratgehalten. Im Mittelland finden sich fast nur erhöhte Nitratgehalten, viele davon

> 25 mg/l, der numerischen Anforderung der Gewässerschutzverordnung (GSchV) an genutztes Grundwasser. Je höher der Anteil offener Ackerfläche an der Gesamtfläche ist, umso höher sind in der Regel auch die maximalen Nitratgehalte im Grundwasser (Abbildung 3).

In den Alpen hingegen, aber auch im Jura, treten in den NAQUA-Messstellen nur Nitratgehalte unter 25 mg/l, mehrheitlich sogar unter 10 mg/l auf.

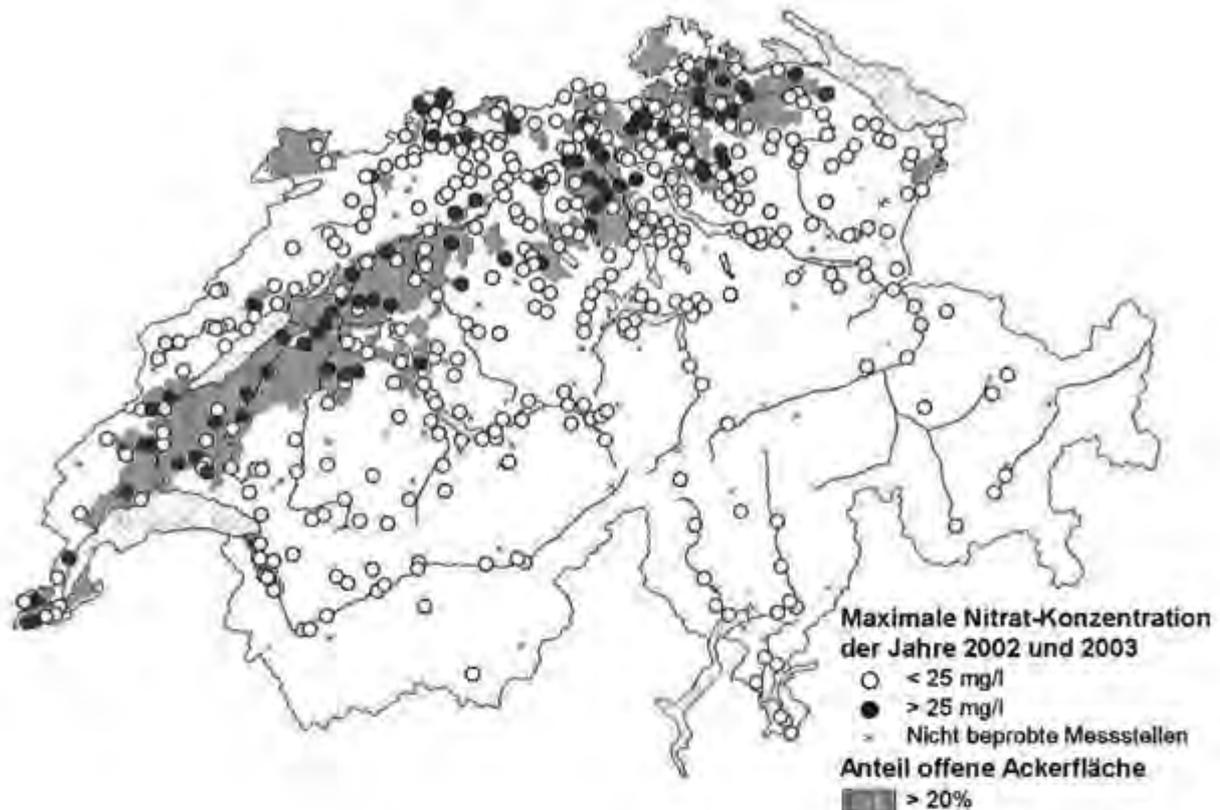


Abb. 3: Maximaler Nitratgehalt der untersuchten NAQUA-Messstellen 2002/2003

Die Abhängigkeit der Nitratgehalte von der vorherrschenden Bodennutzung im Einzugsgebiet einer Grundwasserfassung zeigt sich deutlich in Abbildung 4.

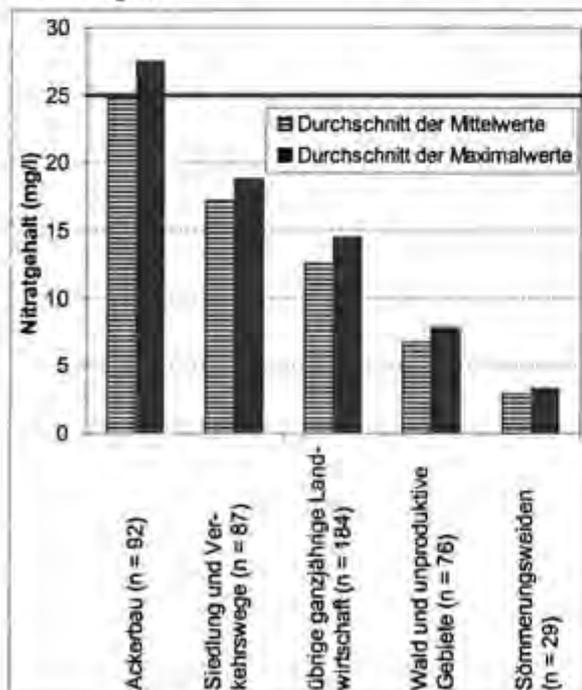


Abb. 4: Nitratgehalt in Abhängigkeit der Hauptbodennutzung im Einzugsgebiet der untersuchten Grundwasserfassungen (2002/03; n = Anzahl Messstellen).

Während unter Ackerland die maximalen Nitratgehalte im Durchschnitt die Anforderung der Gewässerschutzverordnung von 25 mg/l überschreiten, weisen als anderes Extrem die Grundwässer unter Sömmerungsweiden Nitratgehalte im Bereich der natürlichen Hintergrundwerte von einigen wenigen mg/l auf.

Nicht nur bezüglich der Durchschnittswerte, auch bezüglich der Anzahl Überschreitungen der Anforderung an genutztes Grundwasser (25 mg/l) bzw. des Trinkwassertoleranzwertes (40 mg/l) zeigt sich die Abhängigkeit von der Bodennutzung eindeutig: Während gesamtschweizerisch an rund 80% aller Messstellen die Anforderung der GSchV eingehalten ist, wird sie in Ackerbaugebieten in rund der Hälfte aller Fassungen überschritten, bei rund 10% wird sogar der Trinkwassertoleranzwert nicht eingehalten. Demgegenüber liegt unter Sömmerungsweiden keine einzige Überschreitung vor.

Von grossem Interesse ist auch die zeitliche Entwicklung der Gehalte verschiedener Stoffe. Hier stossen wir allerdings auf grosse Schwierigkeiten, da die nationale Grundwasserbeobachtung erst seit 2002 wirklich operationell ist und für die davor liegende Zeit keine schweizweit systematisch erhobenen Daten vorliegen. Das für eine Auswertung der zeitlichen Entwicklung vorhandene Datenmaterial aus der Zeit vor Beginn der nationalen Grundwasserbeobachtung beschränkt sich auf einige wenige Kantone. Auch dort stehen nur

wenige systematisch erhobene Daten zur Verfügung. Aus der Zeit vor 1990 fehlen Daten.

Die einzige anthropogen bedingte Substanz im Grundwasser, für welche ein wenigstens halbwegs erfolgreicher Blick zurück vor 2002 möglich ist, ist das Nitrat. Für alle übrigen Parameter, namentlich auch für die Pestizide, sind keine repräsentativen Daten vorhanden.

Selbst beim Nitrat bleibt der gesamtschweizerische Rückblick mit vielen Fragezeichen bezüglich der Repräsentativität der Daten behaftet. Es konnten lediglich für 158 NAQUA-Messstellen einigermaßen verlässliche und bis 1990 zurückreichende Daten gesammelt werden. Der Nitratgehalt hat in einer Mehrheit der Grundwasserfassungen seit etwa 1995 abgenommen. In den Jahren seit 2001 hat sich diese Abnahme sogar noch verstärkt. Insgesamt kann seit 1990 bis 2002/03 eine durchschnittliche Abnahme des mittleren Nitratgehalts von rund 15 - 20% bzw. 3.7 mg/l beobachtet werden (Abbildung 5).

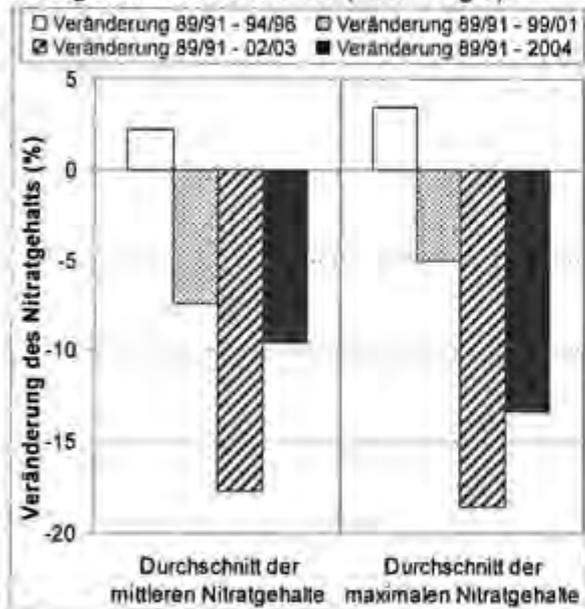


Abb. 5: Veränderung des Nitratgehalts in 158 Messstellen seit den Jahren 1989/1991

Wird der Beobachtungszeitraum bis 2004 verlängert, nimmt der Nitratgehalt deutlich geringer ab. Wird nur das Jahr 2004 betrachtet, beträgt der Rückgang seit 1990 nur noch insgesamt rund 2 statt 3.7 mg/l bzw. rund 10%.

Um zuverlässige Aussagen über die längerfristige Entwicklung des Nitratgehalts in den schweizerischen Grundwasservorkommen machen zu können, muss die intensive Beobachtung also noch etliche Jahre weitergeführt werden. Dies gilt natürlich noch viel mehr für die übrigen, historisch wesentlich schlechter dokumentierten Parameter,

MTBE

Ein Stoff der in letzter Zeit wegen der von ihm ausgehenden potentiellen Bedrohung des Grundwassers für Aufsehen gesorgt hat, ist MTBE, das in grossen Mengen als Bleiersatz im Benzin eingesetzt wird.

Aufgeschreckt durch zum Teil sehr massive Grundwasserverschmutzungen vor allem in Kalifornien entbrannte auch in der Schweiz eine Diskussion über die von diesem Stoff ausgehende Gefahr für das Trinkwasser. Noch vor 6 Jahren war die Datenlage in der Schweiz zu MTBE im Grundwasser äusserst dürftig. Einzig aus dem Kanton Zürich waren erste Daten vorhanden. Hier konnte in immer mehr Messstellen MTBE nachgewiesen werden, wenn auch nur im Spurenbereich. Es stellte sich konkret die Frage, ob MTBE schon bald in allen Grundwasservorkommen zu einer besorgniserregenden Dauerbelastung würde und ob die Zürcher Verhältnisse auch für die übrige Schweiz repräsentativ seien.

Dank NAQUA kann heute Entwarnung gegeben werden. Gesamtschweizerisch scheint sich die Anzahl Fassungen, in denen MTBE nachgewiesen werden kann, klar unter 20 % einzupendeln (Tabelle 2). Der Medianwert liegt dabei konstant bei rund 0.1 µg/l. Der tiefste Wert, ab welchem einzelne speziell empfindliche Menschen den Geruch oder Geschmack von MTBE im Trinkwasser feststellen können – und zwar lange bevor dies gesundheitsrelevant wäre – liegt bei rund 2 µg/l. MTBE-Gehalte > 2 µg/l in Grundwasserfassungen stellen bis anhin vorübergehende Einzelfälle dar. Bei der Fassung mit dem Rekordwert von 4.5 µg/l im Jahr 2004 handelt es sich um ein auch mit anderen Schadstoffen hoch belastetes Grundwasser in einer Grossstadt, welches selbstverständlich nicht als Trinkwasser genutzt werden kann.

Es lässt sich klar ersehen, dass auch MTBE ein zivilisatorisches Problem ist: Die meisten Befunde treten im dicht besiedelten Mittelland sowie in den verkehrsreichen Tälern des Wallis und des Tessins auf.

Von der mengenmässigen Belastung her sind beim MTBE jedoch bis heute kaum Probleme zu verzeichnen. Bei der einzigen Trinkwasserfassung, in welcher je ein MTBE-Gehalt > 2 µg/l nachgewiesen wurde, kann heute kein MTBE mehr festgestellt werden. Offensichtlich handelte es sich in diesem Fall um eine kleinere Menge ausgelaufenes Benzin, was nicht weiter erstaunlich ist, da die betroffene Grundwasserschutzzone zu einem grossen Teil von einer Industriezone belegt wird.

Tab. 2: Ergebnisse der MTBE-Bestimmungen im Rahmen von NAQUA (2005: provisorische Daten; n = Anzahl Messstellen)

Jahr	total	Messstellen mit positivem MTBE-Befund								Messwerte (nur positive)		
		≥ BG		≤ 0.1 µg/l		0.1 - 2 µg/l		> 2 µg/l		Maximalwert	Mittelwert	Median
	n	n	%	n	%	n	%	n	%	µg/l	µg/l	µg/l
2002	210	21	10.0	15	7.1	6	2.9	0	0	0.5	0.13	0.10
2003	400	72	18.0	45	11.2	26	6.5	1	0.3	2.1	0.15	0.09
2004	396	74	18.7	33	8.3	40	10.1	1	0.3	4.5	0.26	0.11
2005	469	73	15.5	48	10.2	25	5.3	0	0	0.5	0.11	0.10

5. Schlussfolgerungen und Ausblick

Das nationale Grundwasserbeobachtungsnetz NAQUA ermöglicht es, die Schlüsselfragen für einen erfolgreichen Grund- und Trinkwasserschutz zu beantworten:

- Wie ist die Grundwasserqualität in der Schweiz heute? (Zustand)
- Ist die Qualität besser oder schlechter geworden? (Entwicklung)
- Was sind die Ursachen von Qualitätsveränderungen? (anthropogene Einwirkungen)
- Sind die allgemeinen Massnahmen zum Schutz des Grundwassers und die speziellen Massnahmen zur Sanierung belasteter Grundwasservorkommen wirksam und ausreichend? (Erfolgskontrolle/Entscheidgrundlage)
- Tauchen neue Probleme auf? (Früherkennung)

Die Resultate der nationalen Grundwasserbeobachtung zeigen, dass vor allem im intensiv genutzten Mittelland zahlreiche Grundwasservorkommen mit anthropogenen Schadstoffen wie Pflanzenschutzmitteln, Nitrat oder flüchtigen organischen Verbindungen belastet sind. Die Schadstoffgehalte sind in der Regel zwar nicht Besorgnis erregend, sie mahnen aber zur Vorsicht und belegen, dass die Anstrengungen des Grundwasserschutzes unvermindert weitergeführt oder gar noch verstärkt werden müssen.

Da die Geschichte der schweizerischen Grundwasserbeobachtung erst sehr kurz ist, fehlen zur Zeit noch wesentliche Daten für die Beurteilung der langfristigen Entwicklung der Grundwasserqualität. Es ist daher unabdingbar, die Grundwasserbeobachtung über einen längeren Zeitraum intensiv weiter zu verfolgen.

Behörden aller Stufen, Wasserversorger und Öffentlichkeit erhalten so Informationen über den Zustand und die Entwicklung der wichtigsten Trinkwasserressource Grundwasser und sind damit in der Lage, rechtzeitig mit den allenfalls notwendigen administrativen, organisatorischen, technischen und politischen Massnahmen zu reagieren.

Nicht zu den Kernaufgaben der nationalen Grundwasserbeobachtung gehört die eigentliche Überwachung des Grundwassers bzw. des Trinkwassers. Diese Vollzugsaufgaben liegen in der Kompetenz der kantonalen Behörden (Umweltämter bzw. kantonale Laboratorien) und der Wasserversorger.

Die Identifikation neuer Problemstoffe und die Erarbeitung der Grundlagen für das Verständnis der grundwasserrelevanten Prozesse potentieller Schadstoffe (Abbauverhalten unter verschiedenen natürlichen Bedingungen, Mobilität der Schadstoffe und ihrer Metaboliten) wiederum sind Sache von Forschung und Wissenschaft. Natürliche Grundwassersysteme sind komplex, d.h. räumlich und zeitlich sehr variabel. Die Aufenthaltszeit des Grundwassers im Untergrund beträgt Stunden, Tage, ein Menschenleben bis tausende von Jahren. Meist stellt das in einer Grundwasserfassung geförderte Wasser eine Mischung verschiedener Komponenten mit unterschiedlicher Aufenthaltsdauer dar.

Diese Systeme zu erfassen und zu verstehen erfordert einen wissenschaftlichen Aufwand, der die finanziellen und personellen Ressourcen des BAFU bei weitem übersteigt. Dafür stellt das BAFU die Langzeitbeobachtung der schweizerischen Grundwasservorkommen sicher und kann mit seinen Daten relativ kurzfristig auch bei akuten Problemen einen ersten Überblick, gestützt auf repräsentative und gut charakterisierte Messstellen verschaffen.

Wissenschaftler/innen aller Forschungsrichtungen, deren Arbeiten sich mit dem Eintrag und Transport verschiedener Substanzen im Grundwasser befassen, sind eingeladen, vom Messnetz NAQUA bzw. den Ergebnissen der nationalen Grundwasserbeobachtung bei ihren Aufgaben und Untersuchungen Gebrauch zu machen.

6. Literatur

- [1] BUNDESAMT FÜR UMWELT, WALD UND LANDSCHAFT / BUNDESAMT FÜR WASSER UND GEOLOGIE (Hrsg.) 2004: NAQUA - Grundwasserqualität in der Schweiz 2002/2003. Bern. 204 S.

Geochemische und tonmineralogische Untersuchung einer Catena im Südtessin

Remo Zanelli^a, Markus Egli^a, Daniele Giaccai^b, Aldo Mirabella^b

^a Geographisches Institut, Universität Zürich, Winterthurerstrasse 190, 8057 Zürich

^b Istituto Sperimentale per lo Studio e la Difesa del Suolo, Piazza D'Azeglio 30, 50121 Firenze

Zusammenfassung:

Eine Bodensequenz bestehend aus nord- und südostexponierten Standorten mit unterschiedlichen Hangneigungen wurde in einem eng begrenzten Gebiet in der Nähe von Ascona in der Südschweiz untersucht. Gemessen wurden Totalgehalte an C und N, Anteil an Fulvo- und Huminsäuren, pH, KAK und selektiv lösliches Fe und Al. Die Bodenmineralogie wurde mittels Röntgendiffraktometrie und IR-Spektroskopie analysiert.

An den nordexponierten Standorten waren höhere Gehalte an Feinerde, org. C und oxalatlöslichem Fe feststellbar als an südostexponierten. Bei den Tonmineralien zeigten sich höhere Gehalte an Vermikulit, und an zwei Standorten konnte zudem auch Smektit in geringen Mengen gemessen werden. Mit zunehmender Hangneigung nahm der Anteil der Fraktion >2mm generell zu, während die Konzentration an org. C abnahm.

Da sich alle Standorte in einem eng begrenzten Gebiet befinden, dürfte die Niederschlagsmenge zwischen diesen kaum variieren und für die unterschiedliche Bodenbildung daher nicht ausschlaggebend sein. Die Exposition und somit die Temperatur scheint einen grösseren Einfluss zu haben in dem sie u.a. auch die Wasserverfügbarkeit im Boden beeinflusst. Generell sind trockeneren Böden an den südexponierten Standorten zu erwarten. Die Verwitterung verläuft an nordexponierten Standorten intensiver, wo eine höhere Bodenfeuchte die Verwitterung begünstigt.

Abstract: A catena in southern Ticino with respect to geochemistry and soil mineralogy

A soil sequence with respect to north- and southeast facing sites and to slope was investigated in a narrow area close to Ascona in southern Switzerland. Organic C, fulvic and humic acids, pH, CEC, oxalate dithionite and pyrophosphate extractable Fe and Al contents were determined. Clay mineralogy was studied using XRD and IR-spectroscopy. On north-facing sites, we measured generally higher organic C contents than on southeast-exposure, a higher CEC, oxalate extractable Fe content and more fine earth. Regarding the clay mineralogical characteristics we found higher contents of vermiculite and, at two sites, some smectite on north-facing sites. With a steeper slope a decrease of the total C content and a higher amount of the fraction >2mm was measured indicating an increase of erosion.

Precipitation is for all sites in a similar range and should, therefore, not be the determining factor. It seems that exposure and thus temperature has in our soils a greater influence as it also affects water availability. The southeast-facing sites are generally drier, due to the stronger evaporation. The degree of chemical weathering seems to be enhanced on north-facing sites that are supposed to have a higher soil moisture when compared to the southeast-facing sites.

Keywords: Catena, XRD, selective extractable elements, vermiculite

1. Einführung

Im Rahmen einer Studie, in welcher der Einfluss von immergrünen Pflanzen, sogenannten Laurphyllten, und Kastanien auf die Bodenverwitterung und Tonmineralogie untersucht wurde, liess sich im Raum Ascona eine grosse Variabilität von Bodeneigenschaften beobachten. Besonders auffällig waren Änderungen entlang einer Toposequenz in der Nähe von Ascona, die hier nun detailliert beschrieben wird. Nach JENNY

(1941) kann die Bodenbildung als Funktion von (mehr oder weniger) unabhängigen Faktoren beschrieben werden:

$$\text{Bodenbildung} = f(\text{pt}, \text{cl}, \text{tp}, \text{t}, \text{org})$$

mit *pt* für das Ursprungsmaterial, *cl* beschreibt das Klima, *tp* steht für Topographie, *t* für Zeit und *org* bezeichnet den Einfluss von Organismen.

Um den Einfluss eines einzelnen Faktors zu untersuchen, sollten die anderen möglichst konstant oder zumindest deren Einfluss untergeordnet sein. Bei der untersuchten Catena ändert die Topographie (Exposition und Hangneigung), während die anderen Faktoren gleich bleiben. Die Geologie im Untersuchungsgebiet wird primär durch Gneisse und Glimmerschiefer dominiert. Vereinzelt können auch basische Amphibolit-Gänge beobachtet werden. Das Klima ist mit einer jährlichen Niederschlagsmenge von 1700mm und einer Jahresmitteltemperatur von rund 11.5°C (Daten von Locarno, EDI, 1992) feucht und gemässigt. Während den trockenen Wintern kommt es regelmässig zu Waldbränden. Davon zeugen Kohlestücke, die sich verbreitet im Boden finden lassen. Der Frühling und der Herbst sind relativ feucht, während im Sommer sich gelegentlich Gewitter bilden. Unterhalb von 1000m.ü.M. dominieren im Südtessin Kastanien, welche die Römer eingeführt haben. Die Kastanie konnte oberhalb Ascona auf rund 2000 Jahre datiert werden (BURGA und PERRET 1998, ZOLLER 1960). Bei der Wahl der Standorte für die Catena wurden aber ausschliesslich Standorte mit der älteren und ursprünglicheren *Quercetum-Betuletum*-Vegetation gewählt (TINNER et al. 1999), welche heute noch vereinzelt in der Umgebung von Ascona vorkommt. Im Untersuchungsgebiet dominieren Trauben- und Stieleichen sowie Birken. Untergeordnet kommen auch kleine Grauerlen vor. Die Standorte sind seit der letzten Eiszeit eisfrei (HANTKE 1978, 1983), so dass das Alter der Böden auf rund 20'000 Jahren geschätzt werden kann (Zeit seit der letzten Vergletscherung).

Diese Toposequenz erlaubt nun den Einfluss der Exposition und Hangneigung auf die Bodenchemie und Tonmineralogie zu untersuchen. In den Schweizer und Italienischen Alpen existieren diesbezüglich nur wenig Daten.

2. Material and Methoden

Die Catena besteht aus je drei Standorten auf der Nord- beziehungsweise Südostseite sowie einem Standort im Tal (Abb. 1, Tabelle 1). Pro Standort wurden auf einer Fläche von rund 3 x 3 m rund 1.5-2kg Boden aus den obersten 10cm (ohne Streuschicht) gesammelt.

Die folgenden Analysen wurden an ofengetrockneter Feinerde durchgeführt: Totale Kohlenstoff- (= C_{org} , da kein karbonatisches C vorhanden) und Stickstoff-Gehalte mit einem C/H/N-Analyser (Elementar Vario EL, elementar Analysensysteme GmbH), Boden-pH in einer 0.01 M $CaCl_2$ -Lösung mit einem Boden Lösungsverhältnis von 1:2.5, Kationenaustauschkapazität (KAK) mit einer 0.1 M $BaCl_2$ -Lösung (nach FAC 1989). Die Fraktionierung in Fulvo- und Huminsäuren erfolgte anhand der unterschiedlichen Lösungseigenschaften in Basen und Säuren (TRUMBORE und ZHENG 1996). Dithionit-, oxalat- und pyrophosphatlösliches Al und Fe wurden nach MCKEAGUE et al. (1971) und FAC (1989) bestimmt. Die Elementkonzentrationen wurde anschliessend mit Atomabsorption-Spektroskopie gemessen.

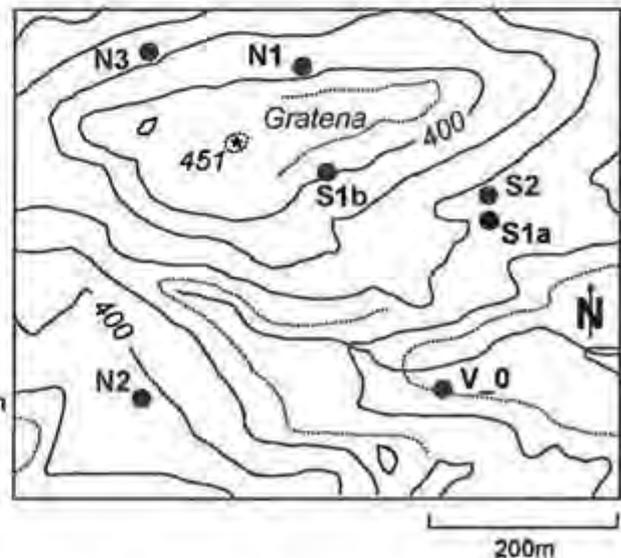


Abb. 1. Untersuchungsgebiet und schematische Übersicht der Catena. Die Äquidistanz beträgt 20m.

Tabelle 1. Übersicht der Standorte der untersuchten Catena (HA = Huminsäuren, FA = Fulvosäuren).

Standort	Exposition	Hang- neigung	Höhe m. ü. M.	Feinerde %	pH CaCl ₂	C _{org} g/kg	HA g/kg	FA g/kg	KAK mmol _c /kg
S2	SE	15-20°	400	55.0	3.7	110	24.15	8.78	9.5
S1a	SE	10-15°	390	72.6	3.6	109	38.83	5.74	10.5
S1b	SE	10-15°	420	90.3	3.8	120	33.93	5.39	9.3
V_0			350	88.3	3.2	158	33.95	8.13	16.5
N1	N	5°	410	97.6	3.0	194	66.07	6.71	20.4
N2	N	10°	410	98.5	3.5	175	53.93	6.52	15.3
N3	N	20-25°	390	84.7	3.4	140	44.95	5.81	14.7

Die Tonfraktion (< 2µm) wurde nach Zerstörung der organischen Substanz mittels verdünnter H₂O₂ Lösung, Dispersion mit Calgon mit anschließender Sedimentation in Wasser, gewonnen (CARNICELLI et al. 1997). Die Röntgendiffraktometrie-Messungen erfolgten an orientierten Proben mit Cu-Kα Strahlung von 2 to 15°2θ in Schritten von 0.02°2θ pro 2 Sekunden. Folgende Behandlungen wurden angewandt: Mg Sättigung, Ethylenglykol Bedampfung (EG) und K Sättigung mit anschließendem Heizen der Proben während 2 Stunden auf 335°C und 550°C. FT-IR Messungen der Tonfraktion wurden im Spektralbereich von 4000 bis 250cm⁻¹ aufgenommen. Verwendet wurden Pillen von 1mg Probe und 250mg KBr, welches zuvor auf 150°C erhitzt wurde.

3. Resultate

Organische Substanz

Viele Böden in dieser Region sind gekennzeichnet durch eine dunkle Farbe, die sich vorwiegend auf den hohen organischen C Gehalt zurückführen lässt. An den nordexponierten Standorten waren höhere Gehalte an C_{org}, eine höhere KAK und tiefere pH-Werte messbar (Tabelle 1). Während sich beim Fulvosäuren-Gehalt keine wesentlichen Unterschiede zeigten, waren bei den Huminsäuren deutlich höhere Konzentrationen an den nordexponierten Standorten feststellbar. Der Einfluss der Hangneigung war sehr ausgeprägt. Mit zunehmender Hangneigung, unabhängig von der Exposition, sank der Anteil der Feinerde und der organischen Substanz markant.

Selektiv lösliches Al und Fe

Im Gegensatz zu Al, wo kein Trend erkennbar war, fanden sich generell höhere Gehalt an selektiv löslichem Fe (Fe_d, Fe_o, Fe_p) an den nordexponierten Standorten (Abb. 2).

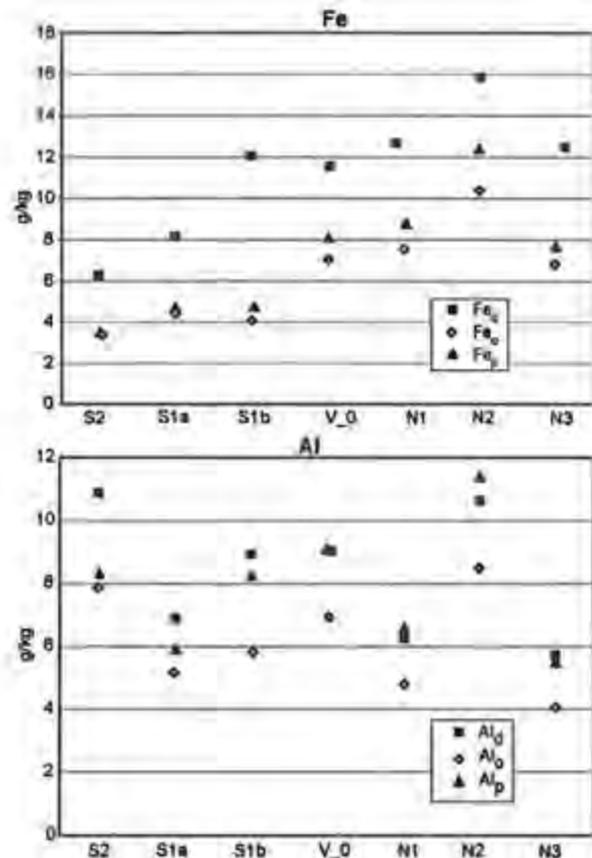


Abb. 2. Selektiv lösliches Aluminium und Eisen (d = dithionit-löslich, o = oxalat-löslich, p = pyrophosphat-löslich).

Tonmineralogie

Die Feinerde wird durch die Silt- und Sandfraktion dominiert. Der Tongehalt liegt generell unter 20%. Die Röntgendiffraktogramme sind in Abbildung 3 ersichtlich. Die südostexponierten Standorte wiesen ähnliche Spektren auf. Nach einer Mg-Sättigung zeigten sich Peaks bei 1.43, 1.01 und 0.71nm. Der Peak bei 1.01nm kann einem Glimmer und derjenige bei 0.71nm Kaolinit zugeordnet werden. Kaolinit ist in allen Proben vorhanden und wurde mit IR-Spektroskopie

bestätigt (Band bei 3695cm^{-1} , Abb. 4). Für die Interpretation des 1.43nm -Peaks waren weitere Behandlungen notwendig. Smektit kommt nicht vor oder nur in Spuren, da eine Behandlung mit Ethylenglykol (EG) zu keiner Änderung führte. Nach Sättigung mit K zeigte sich ein leichter Anstieg des Peaks bei 1.0nm , was auf Vermikulit hinweist. Heizen auf 335°C verursachte einen partiellen Kollaps des 1.43nm -Peaks, was typisch für Vermikulite mit chloritischen Zwischenschichten (HIV) ist. Ein gewisser Restpeak behielt die Position auch nach Heizen auf 550°C , was auf Chlorit hinweist. Mit zunehmender Hangneigung war ein schwacher Anstieg des Peaks bei 1.0nm feststellbar, welcher Mica (Glimmer, Illit) zugeordnet werden kann.

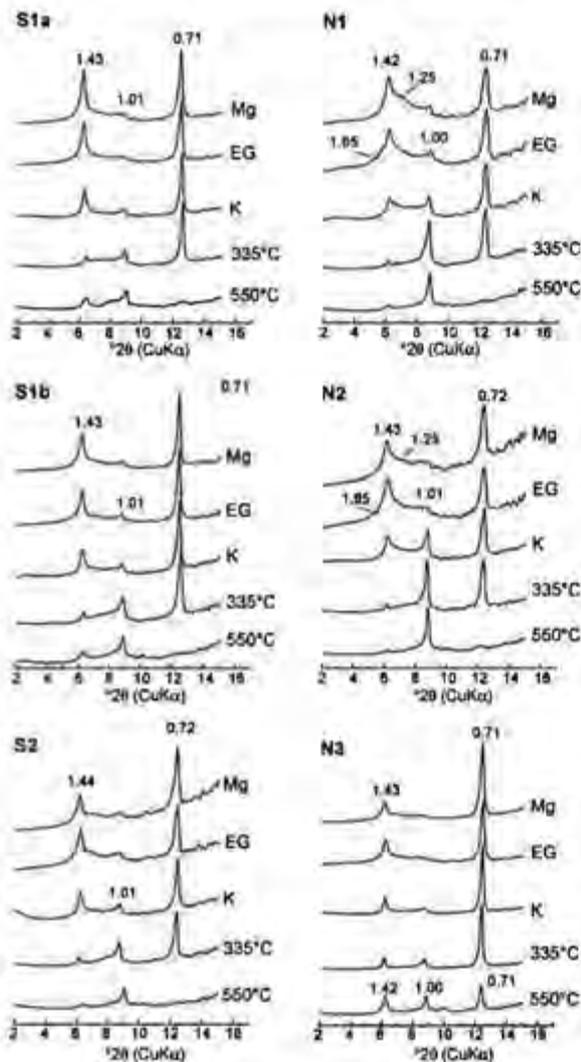


Abb. 3. Röntgendiffraktogramme der Tonfraktion der untersuchten Catena. Die Kurven sind geglättet, sowie korrigiert gemäss Lorentz- und Polarisationsfaktor. Die d -Werte sind in nm angegeben.

Die Diffraktogramme der nordexponierten Standorte wiesen unter sich gewisse Unterschiede auf. N1 und N2 waren vergleichbar,

während N3 deutlich abwich. Nach Mg-Sättigung zeigten sich Peaks bei 1.42 , 1.01 und 0.71nm . Der Peak bei 1.01nm kann Glimmer zugeordnet werden. Nach EG-Bedampfung war ein schwacher Peak bei 1.65nm erkennbar, was auf Smektit hinweist. N1 und N2 haben einen vergleichsweise hohen Anteil an Wechsellagerungsmineralien (Peaks zwischen 1.0 und 1.4nm , 1.25nm bei N1). Sättigung mit K führte bei allen Proben zu einem markanten Anstieg des Peaks bei 1.0nm . Daraus kann auf Vermikulit geschlossen werden. Der grösste Teil des 1.43nm Peaks kollabiert nach Aufheizen auf 335°C und deutet auf HIV hin. Chlorite lassen sich aufgrund des Restpeaks bei 1.4nm nach Heizen auf 550°C bestimmen. Im Gegensatz zu N1 und N2, liess sich bei N3 nur wenig Glimmer und HIV, aber viel Chlorit nachweisen.

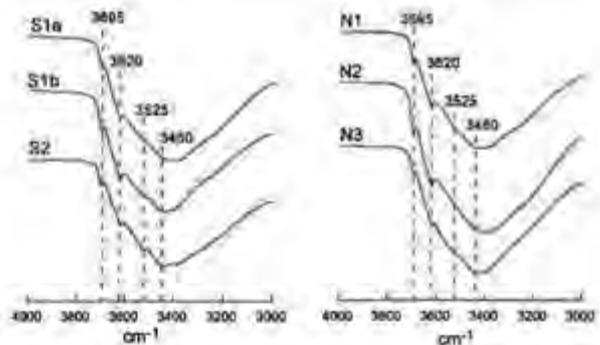


Abb. 4. Infrarot-Spektren der Tonfraktion.

Alle Infrarot-Spektren zeigten ein deutliches Adsorptionsband bei 3695cm^{-1} , welches charakteristisch für Kaolinit ist. Es waren keine wesentlichen Unterschiede in Bezug auf Kaolinit zwischen den einzelnen Standorten feststellbar. Banden bei 3620 , 3525 , 3460 und 3390cm^{-1} weisen auf das Al-Hydroxid Gibbsit hin. Diese Banden werden mit zunehmender Hangneigung deutlicher.

4. Diskussion

Bodencharakteristik

Die Böden in der Region sind gekennzeichnet durch einen hohen Gehalt an organischer Substanz und schlecht kristallinen Al- und Fe-Phasen, sowie einem tiefen pH-Wert. Die speziellen klimatischen Gegebenheiten zusammen mit dem sauren und Al-reichen Ursprungsmaterial sowie aufweitbare Tonminerale mit chloritischen Zwischenschichten können für die Stabilisierung der organischen Substanz verantwortlich sein (ZANELLI et al. 2006b). Die Kastanie mit ihrem schlecht abbaubaren Laub scheint nicht der hauptsächliche Grund zu sein, da unter Eichen/Birkenwäldern höhere Gehalte an organischer Substanz feststellbar waren (ZANELLI 2006a). In unmittelbarer Nähe der hier beschrie-

benen Toposequenz sind zwei Profile detailliert beschrieben worden (ZANELLI et al 2006b), die sowohl Eigenschaften von Podzolen als auch Andosolen aufwiesen. Eine Verlagerung von Si und Al im Oberboden und die Bildung von Allophane (ITM) im Unterboden liessen sich nachweisen. BLASER et al. (1997) beschreibt weiter aus der Südschweiz Cryptopodzole, bei denen der Auswaschungshorizont durch organische Substanz maskiert sein soll.

An den nordexponierten Standorten wurden deutlich höhere Gehalte an C_{org} gemessen. Dies stimmt nicht mit Beobachtungen aus dem Val di Rabbi überein, wo diesbezüglich kein eindeutiger Trend festgestellt werden konnte (EGLI et al. 2006). Die höheren Werte an KAK lassen sich weitgehend mit dem Gehalt an organischer Substanz erklären. Während der Anteil an Fulvosäuren keinen wesentlichen Unterschied aufwies, zeigten sich deutlich höhere Werte an Huminsäuren an den nordexponierten Standorten.

Auf der Nordseite fanden sich höhere Gehalte an Vermikulit, während auf der Südostseite HIV vorherrschten. Smekтите, welche als Indikator für starke Verwitterung betrachtet werden können (CARNICELLI et al. 1997, MIRABELLA und SARTORI, 1998, EGLI et al. 2003), liessen sich an zwei nordexponierten Standorten nachweisen. Generell scheint die Verwitterung auf der Nordseite fortgeschrittener zu sein. Auf der Südostseite wiesen die einzelnen Standorte nur geringe Unterschiede. Eine leichte Zunahme an Glimmer mit der Hangneigung ist hier feststellbar und kann auf Erosion zurückgeführt werden. Der Standort N3 weicht von den anderen deutlich ab. Dies lässt sich möglicherweise auf Unterschiede im Ursprungsmaterial zurückführen. Obwohl alle Standorte auf saurem gneishaltigem Ursprungsmaterial gewählt wurden, konnte der Einfluss von kleinräumig vorhandenen Amphibolit-Gängen nicht in jedem Fall völlig ausgeschlossen werden.

Fe und auch Al sind sehr stark an die organische Substanz gebunden (ZANELLI et al. 2006c). Der Gehalt an Fe (Fe_o , Fe_c , Fe_p) war an den nordexponierten Standorten höher, was sich ebenfalls auf eine intensivere Verwitterung zurückführen lässt. Für Al ist interessanterweise aber kein Trend erkennbar.

Die Hangneigung hat wie erwartet einen grossen Einfluss auf verschiedene Bodeneigenschaften. Gewöhnlich zeigt sich mit zunehmender Hangneigung ein Anstieg der Erosion, welche u.a. durch einen höheren Anteil der Fraktion $> 2mm$ oder geringeren C_{org} -Gehalt gekennzeichnet ist. Mit zunehmender Hangneigung waren deutlichere Adsorptionsbänder von Gibbsit feststellbar. Entweder kommt Gibbsit häufiger vor oder die charakteristischen Banden werden weniger von der H_2O -Bande überlagert, welche zumindest teilweise von der organischen Substanz her stammt.

Die Exposition führt im Südtessin zu messbaren Unterschieden bei Verwitterung und Bodenbildung. Da das Ursprungsmaterial, Alter, Vegetation und das allgemeine Klima vergleichbar sind, bleiben als Ursache noch topographische und somit kleinräumige klimatische Unterschiede übrig. Die Verwitterung und Bodenbildung scheinen an den nordexponierten Standorten intensiver zu sein. Nordexponierte Standorte haben generell tiefere Temperaturen und eine höhere Bodenfeuchte als südostexponierte Lagen. Die Temperatur bestimmt über die Evaporation die Wasserverfügbarkeit in einem Boden. Wasser (bzw. Wasserverfügbarkeit) scheint daher trotzdem der bestimmende Faktor zu sein. Zu ähnlichen Schlussfolgerungen kamen auch EGLI et al., (2006) und SARTORI et al. (1997, 2004a, 2004b) während einer Bodenkartierung in alpinen Regionen Norditaliens.

Für die Catena wurden ausschliesslich Standorte mit der älteren *Quercetum-Betuletum* Vegetation gewählt. Die vor rund 2000 Jahren eingeführten Kastanien kommen in unmittelbarer Nähe der Catena vor. Die bei der Untersuchung der Toposequenz festgestellten Trends konnten unter Kastanien nur teilweise bestätigt werden (Daten noch unveröffentlicht). Es scheint, dass die Einfuhr und Nutzung der Kastanien die Bodeneigenschaften zumindest teilweise verändert haben.

5. Schlussfolgerungen

Obwohl alle Standorte in einem eng begrenzten Gebiet gewählt wurden, konnte markante Unterschiede betreffend Exposition und Hangneigung festgestellt werden. Je steiler desto geringer war der Anteil an organischer Substanz und der Feinerde. Die Exposition hatte einen auffälligen Einfluss auf den Gehalt und Qualität der organischen Substanz und beeinflusste ebenfalls die Tonmineralogie. Es scheint, dass die Verwitterung an den nordexponierten Standorten intensiver ist. Aufgrund der geographischen Nähe dürfte die Niederschlagsmenge nicht gross variieren. Die Temperatur hat einen grösseren Einfluss, in dem sie die Wasserverfügbarkeit im Boden beeinflusst. Dies führte zu trockeneren Böden an südostexponierten Lagen. An den nordexponierten Standorten, begünstigen tiefere Temperaturen und eine grössere Bodenfeuchte die Verwitterung und somit auch die Bodenbildung.

6. Verdankungen

Ein ganz besonderer Dank geht an Bruno Kägi für die Unterstützung im Labor und dem Schweizerischen Nationalfonds (200021-100117) für die finanzielle Unterstützung.

7.Literatur

- BLASER P., P. KERNEBEEK, L. TEBBENS, N. VAN BREEMEN and J. LUSTER, (1997): Cryptopodzolic soils in Switzerland. *European Journal of Soil Science* 48, 411-423.
- BURGA, C. and R. PERRET, (1998): *Vegetation und Klima der Schweiz seit dem jüngeren Eiszeitalter*. Ott Verlag, Thun.
- CARNICELLI, S., A. MIRABELLA, G. CECCHINI and G. SANESI, (1997): Weathering of chlorite to a low-charge expandable mineral in a spodosol on the Apennine mountains, Italy. *Clays and Clay Minerals* 45, 28-41.
- EDI (Eidgenössisches Department des Innern), (1992): *Hydrologischer Atlas der Schweiz, Landeshydrologie und geologie*. Bern. Switzerland.
- EGLI, M., A. MIRABELLA, S. BISCHOF, R. ZANELLI, A. MANCABELLI and G. SARTORI, (2006): Effect of north and south exposition on weathering and clay mineral formation in Alpine soils. *Catena*, in press.
- EGLI, M., A. MIRABELLA, G. SARTORI and P. FITZE, (2003): Weathering rates as a function of climate: results from a climosequence of the Val Genova (Trentino, Italian Alps), *Geoderma* 111, 99-121.
- FAC (Eidgenössische Forschungsanstalt für Agrikulturchemie und Umwelthygiene), (1989): *Methoden für Bodenuntersuchungen*. Liebefeld-Bern.
- HANTKE, R. (1978): *Eiszeitalter 1: Die jüngste Erdgeschichte der Schweiz und ihrer Nachbargebiete. Klima, Flora, Fauna, Mensch, Alt- und Mittelpleistozäne, Vogesen, Schwarzwald, Schwäbische Alb*. Ott Verlag, Thun, Switzerland.
- HANTKE, R. (1983): *Eiszeitalter 3: Die jüngste Erdgeschichte der Schweiz und ihrer Nachbargebiete. Westliche Ostalpen mit ihrem bayerischen Vorland bis zum Inn-Durchbruch und Südalpen zwischen Dolomiten und Mont-Blanc*. Ott Verlag, Thun, Switzerland.
- JENNY, H. (1941): *Factors of soil formation*. Mc Graw-Hill Book Company, New York.
- MCKEAGUE, J.A., J.E. BRYDON and N.M. MILES (1971): Differentiation of forms of extractable iron and aluminium in soils. *Soil Science Society of America Proceedings* 35, 33-38.
- MIRABELLA, A. and G. SARTORI, (1998): The effect of climate on the mineralogical properties of soils from the Val Genova Valley (Trentino, Italy). *Fresenius Environmental Bulletin* 7, 478-483.
- SARTORI, G., F. CORRADINI, A. MANCABELLI and U. WOLF, (1997): Principali tipi di suoli forestali nella provincia di Trento. *Studi Trent. Sci. Nat., Acta Geol.* 72, 41-54.
- SARTORI, G., F. CORRADINI, C. BINI, S. GEMIGNANI and A. MANCABELLI, (2004a): Contenuto di metalli pesanti nei suoli del Trentino. *Studi Trentini di Scienze Naturali - Acta Geologica* 79, 75-117.
- SARTORI, G., A. MANCABELLI, F. CORRADINI and U. WOLF, (2005): *Atlante dei suoli del Parco Adamello-Brenta. Suoli e paesaggi*. Monogr. Museo Trident. Sci. Nat., II, 239 pp.
- TINNER W., P. HUBSCHMID, M. WEHRLI, B. AMMANN and M. CONEDERA, (1999): Long-term forest fire ecology and dynamics in southern Switzerland. *Journal of Ecology* 87, 273-289.
- TRUMBORE, S.E. and S. ZHENG, (1996): Comparison of fractionation methods for soil organic matter ¹⁴C analysis. *Radiocarbon* 38, 219-229.
- ZANELLI, R., M. EGLI, P. FITZE, D. GIACCAI, and A. MIRABELLA, (2006a): Influence of laurophyllous species, *Castanea sativa* and *Quercetum-Betuletum* vegetation on organic matter in soils in southern Switzerland and northern Italy. *Geoderma*, 136, 723-737.
- ZANELLI, R., M. EGLI, P. FITZE, D. GIACCAI, A. MIRABELLA and M. NÖTZLI, (2006b): 'Black' soils in the Southern Alps: clay mineral formation and transformation, amorphous phases and Fe forms. *Clays and Clay Minerals*, 54, 705-722.
- ZANELLI, R., M. EGLI, P. FITZE, D. GIACCAI and A. MIRABELLA, (2006c): The influence of laurophyllous species, *Castanea sativa* and *Quercetum-Betuletum* forest on geochemistry and clay minerals in soil in Southern Switzerland and Northern Italy. Submitted.
- ZOLLER, H. (1960): *Pollenanalytische Untersuchungen zur Vegetationsgeschichte der insubrischen Schweiz*. *Denkschr. Schweiz. Natf. Ges.* 83, 45-156.

Collapse of capillary head during infiltration

Ingrid Hincapié and Peter Germann

Soil Science Section, Institute of Geography, University of Bern, CH-3012 Bern

Summary

Time series of soil moisture during infiltration, particularly the velocities of wetting, offer the possibility to investigate characteristics of flow independently from concurrent time series of capillary potential. Experiments were carried out in a soil column of undisturbed soil and in a slab of sandstone. TDR-technique and tensiometers were used to measure water content, θ , and capillary heads, h . During infiltration h in both media increased to atmospheric pressure. However, the heads in the soil column reacted considerably faster than the measurable increases of volumetric soil moisture, while in the sandstone the heads reacted with the same speed as soil moisture. The question is discussed whether fast reacting capillary heads characterize preferential flow.

Keywords: capillary potential, preferential flow

Zusammenfassung: Kollaps des Kapillarpotenzials während Infiltrationen

Mit zeitlich hoch aufgelösten Messungen der Bodenfeuchte können transiente Flüsse unabhängig vom Kapillarpotenzial (d.h., von der Saugspannung) untersucht werden. An einer Säule aus ungestörtem Boden und an einem Block aus feinporösem Sandstein wurde während Infiltrationen die Zunahme des Kapillarpotenzials, h , zeitlich hoch aufgelöst gemessen. Wassergehalt θ und h wurden dabei mit der TDR-Technik und mit Tensiometern erfasst. Im Boden stieg h schneller an als der Wassergehalt und schneller als im Sandstein, wo h etwa gleich schnell anstieg wie θ . Ist der schnelle Anstieg von h typisch für präferenzielles Fließen?

Stichworte: Kapillarpotenzial, präferenzielles Fließen

1. Introduction

There is still a need for improved understanding of infiltration in undisturbed soils. The rapid increase of volumetric soil moisture, θ , and capillary heads, h , have been attributed to flow along macropores or preferential flow. Preferential flow expresses features of soil moisture dynamics that do not behave according to expectations. Its study requires methods that guarantee independence of θ from h . For example, KUNG et al. (2005) characterized preferential flow with transient transport of dye in a steady stream of water during drainage. DI PIETRO et al. (2003) combined kinematic wave theory with diffusion to accommodate drainage from preferential flow. GERMANN & ZIMMERMANN (2005) applied the velocities of wetting fronts to derive geometrical parameters of assumed water films. Observed velocities of wetting fronts are often higher than the velocities expected from flows that are driven by the gradients of gravity and capillarity (GERMANN & HENSEL, 2006).

Concepts of dynamic potentials have evolved to explain dynamic behavior in the $h(\theta)$ -relations, as VACHAUD et al. (1972) have presented. HASSANIZADEH et al. (2002) combined dynamic

aspects of flow in soils with the requirements of the RICHARDS (1931) equation.

SPOSITO (1986), among others, explained the instantaneous equilibrium between θ and h that is assumed in the Richards equation during transient flow. Hence the necessity to investigate non-equilibrium flow under transient conditions because steady flow already expresses at least a temporary balance among the forces. Thus, theoretical approaches that assume steady flow, for instance those presented by AKHVADIEV & KACIMOV (2005), may *a priori* not be suited for the investigation of dynamic features of preferential flows in soils.

Then complete time series of soil moisture variations during and after forced infiltrations offer further possibilities to investigate features of flow independently from the concurrent time series of capillary potentials.

Here, we compare the behavior of capillary heads, $h(Z,t)$, during infiltration in an undisturbed soil (GERMANN et al., 2006) with $h(Z,t)$ in a slab of sandstone, where Z denotes depth and t the time lapsed since the beginning of infiltration.

2. Media and Method

Soil

The soil was extracted on the slope of Mt. Bantiger near Bern (Switzerland). It is classified as a Mollic Cambisol according to FAO-Unesco (1994) with a sandy loam texture. See Table 1 for details.

Table 1. Properties of undisturbed soil column.

Parameter	Amount	Dimension
Bulk density, ρ_b	1.14	mg/cm ³
Porosity, n	0.57	m ³ /m ³
Sand	57.7	%weight
Silt	25.1	%weight
Clay	17.2	%weight
Hydraulic conductivity, k_{sat}	4×10^{-5}	m/s

A column of the undisturbed forest soil was prepared by driving a cylinder of sheet metal of stainless steel 0.4 m deep into the ground. The cylinder had an inner diameter of 0.4 m.

Sandstone

The slab of sandstone originates from lower fresh water molasses. It was taken at Reiden, Kanton Luzern (Switzerland), Table 2. Its dimensions are 0.16x0.16x0.16 m.

Table 2. Properties of sandstone.

Parameter	Amount	Dimension
Bulk density, ρ_b	2.4	g/cm ³
Porosity, n	0.099	m ³ /m ³
Feldspat	10-20	%weight
Quartz	55-65	%weight
Stone fragments	20-25	%weight
Heavy minerals	2-4	%weight
Hydraulic conductivity, k_{sat}	4×10^{-9}	m/s

Instrumentation

Soil moisture variations, $\theta(Z,t)$, were recorded with a TDR-100 device and a CR-10X data logger (both from Campbell Scientific Ltd, Logan, UT, USA). The paired wave-guides were made of rods of stainless steel having a diameter of 6 mm and a length of 150 mm, and they were 50 mm apart. Calibration was according to ROTH et al. (1990). Two pairs of TDR-wave guides were installed at depths of $Z = 0.1$ and 0.2 m in the soil column and at $Z = 0.035$, 0.93 and 0.13 m in the sandstone. The time lapsed between readings was set to 12 s.

Capillary head variations, $h(Z,t)$, were measured with tensiometers. The tensiometer cups had

inner diameters of 6 mm and were 50 mm long. Air entry pressure of the ceramic material exceeded 0.5 bar. Each cup was hydraulically connected with a piezo-resistive pressure transducer (156 PC 15 GWL9 Microswitch from Honeywell USA). The latter was electronically connected with a 21X Campbell data logger. Tensiometers were installed at the same depths as the TDR-probes about 0.15 m into the soil and 0.1 m into the sandstone. The time intervals between readings were set to 0.4 s. A sprinkler supplied water to the surfaces. It consisted of a rotating disk of aluminum sheet, which carried 60 nylon tubes with inner diameters of 1 mm.

Sensitivity of Instruments

The transducers require only some cubic millimeters of water to cover the entire range of pressure recording. On the other hand, 2000 to 6000 mm³ of water have to enter the soil volume of about 1 to 3 L that is sensed by the TDR-wave guides to produce a significant signal (FERRÉ et al., 1998). The sensitive horizontal areas covered by the respective instruments combined with their minimum soil moisture changes required to produce a significant signal renders the tensiometers about 50 to 100 times more sensitive than the TDR-wave guides.

Experiments

Ten infiltration-drainage experiments were run in the soil column. The heavy sprinkling rates represent the annual hourly maxima for Switzerland. However, the heavy rates never produced ponding. Data recording began about a quarter of an hour prior to sprinkling and it lasted about an hour longer than sprinkling. The durations, t_S , and intensities, q_S , of sprinkling are compiled in Table 3.

Three infiltration experiments were run in the sandstone. Temperature was used as a tracer to indicate the arrival of the wetting fronts. Data recording began prior to the infiltration experiment and lasted about 2 days beyond sprinkling. Details are compiled in Table 4.

Table 3. Experiments in soil column.

Run #	Duration, t_s	Intensity, q_s	
	s	mm/h	m/s $\times 10^{-6}$
1	3600	28.8	8.00
2	3600	28.8	8.00
3	3600	45.5	12.6
4	3600	45.5	12.6
5	3600	15.3	4.25
6	3600	15.3	4.25
7	7200	15.3	4.25
8	10800	15.3	4.25
9	3600	28.8	8.00
10	3600	45.4	12.6

Table 4. Experiments in sandstone.

Run #	Duration, t_s	Intensity, q_s	
	s	mm/h	m/s $\times 10^{-3}$
1	3600	12	3.33
2	3600	20	5.56
3	3600	40	11.1

3. Results and data interpretation

Soil

$h(Z,t)$ jumped at both depths in the soil column repeatedly, and without exception, from initial to close to atmospheric pressures, $h=0$, Figure 1.

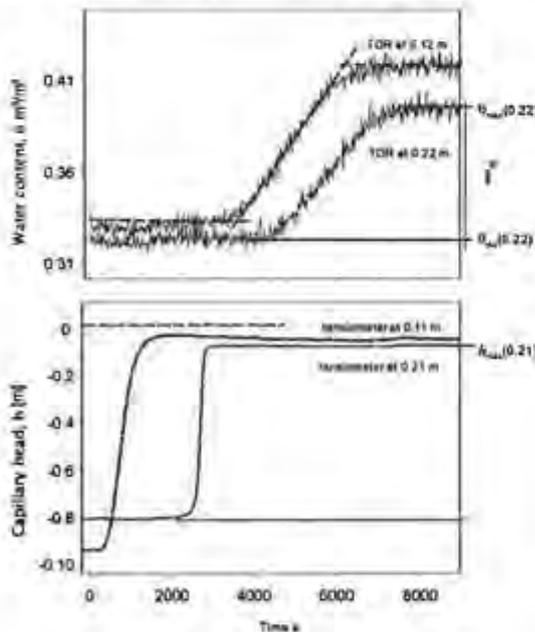


Figure 1. Measured volumetric soil moisture, $\theta(Z,t)$, and capillary head, $h(Z,t)$, at depths 0.1 m and 0.2 m due to infiltration at a rate of $q_s = 45.5 \text{ mm}\cdot\text{h}^{-1}$ during $t_s = 1\text{h}$.

Although the transducers were able to record positive pressures, h never extended into the positive range i.e., $h < 0$ at all times. Moreover, $h(0.1\text{m},t)$ reacted always about half an hour prior to $h(0.2\text{m},t)$. The observation mutes the argument

of water being back-logged from the bottom of the soil column at $Z=0.4 \text{ m}$. Therefore, no back-logged water has interfered with the top-to-bottom propagation of wetting. In addition, the soil never approached saturation.

Averages and standard deviations of initial and maximum soil moisture, θ_{ini} , and θ_{max} for both depths of measurement are listed in Table 5. It is interesting to note that at both depths the standard deviations decreased from θ_{ini} to θ_{max} .

Table 5. Soil column relations: $\theta(Z,t)$ and $h(Z,t)$; initial and maximum of soil moisture (θ_{ini} and θ_{max}), and of capillary heads (h_{ini} and h_{max}), with arrival times, t_{w1} , t_{w2} , t_{h1} , and t_{h2} , at the depths of measurement.

Sym.	Unit	Average	Stdev	Average	Stdev
Z	m	0.1		0.2	
θ_{ini}	m^3/m^3	0.358	0.027	0.337	0.02
θ_{max}	m^3/m^3	0.433	0.015	0.396	0.016
t_{w1}	s	924	520	2054	868
t_{w2}	s	3188	1020	3988	1173
h_{ini}	m	-0.525	0.238	-0.479	0.22
h_{max}	m	-0.053	0.007	-0.084	0.004
t_{h1}	s	384	153	1514	585
t_{h2}	s	1669	471	2464	723

The velocity of a wetting front is

$$c_w = Z/t_w \quad (1)$$

They were between 0.05 and 0.27 $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$. They represent preferential flow according to KUNG et al. (2005), but, they are at the slower end of the 215 wetting velocities presented by GERMANN & HENSEL (2006).

The velocity of head increase is

$$c_h = Z/t_h \quad (2)$$

The head velocities were in the range of 0.08 and 0.57 $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$. The ratios c_h/c_w were in the range of 1.10 to 5.33. They indicate that h advanced faster and attained the plateau earlier than the wetting fronts. On the other hand, given the sensitivity contrasts between the tensiometers and the TDR-equipment, the increases of θ and h are considered to have travelled with rather similar velocities. Nevertheless, $\theta(Z,t)$ and $h(Z,t)$ increased with different rates of change $\Delta\theta/\Delta t$ and $\Delta h/\Delta t$ (equations 3 and 4), see Table 7.

Sandstone

Figure 2 shows the results obtained from the sandstone. The temperature changes confirm the

arriving of the wetting fronts: Figure 2 shows a decrease of temperature upon the arrival of the wetting front.

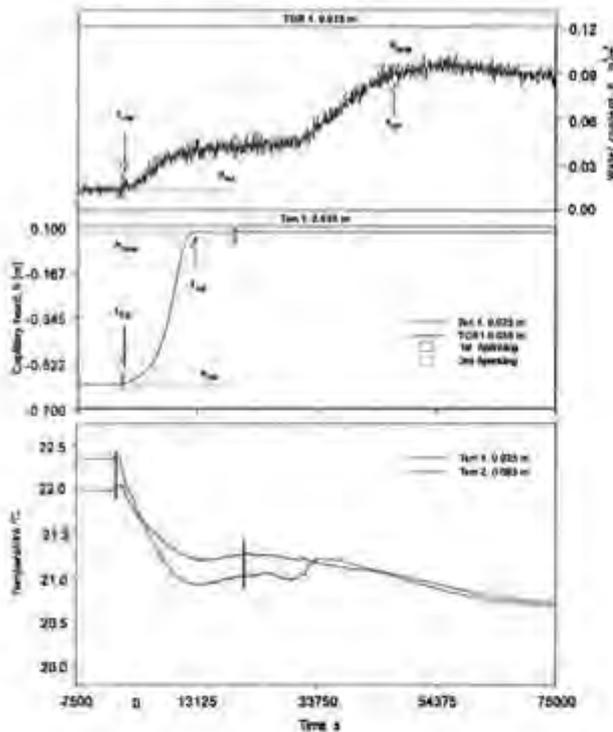


Figure 2. Measured volumetric soil moisture, $\theta(Z,t)$, capillary head, $h(Z,t)$ and temperature at depth 0.035 m due to infiltration at a rate of $q_s = 40 \text{ mm.h}^{-1}$ during $t_s = 1\text{h}$.

The results in Figure 2 depict a minimum θ of 0.014 and a maximum of $0.10 \text{ m}^3/\text{m}^3$; most of the times, h did not extend into positive range ($h > 0$), θ and h rise more or less simultaneously, but very slowly. The process took about 3.7 h (see detail in Figure 3), which is reasonable for sandstone, with an apparent porosity, ε of $9.9 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{m}^3$ and hydraulic conductivity, k , of $4 \times 10^{-9} \text{ m.s}^{-1}$.

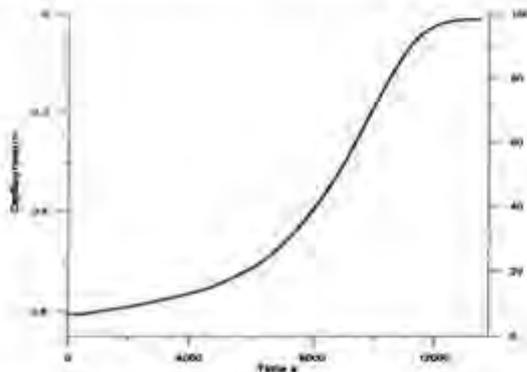


Figure 3. Detail capillary head, $h(Z,t)$ jump at depth 0.035 m due to infiltration at a rate of $q_s = 40 \text{ mm.h}^{-1}$

Table 6 compiles initial and maximum θ , and h in the sandstone slab. At depth 0.035 m, the standard deviation also decreases from θ_{in} to θ_{max} .

Table 6. Sandstone relations: $\theta(Z,t)$ and $h(Z,t)$; initial and maximum of soil moisture (θ_{in} and θ_{max}), and of capillary heads (h_{in} and h_{max}), with arrival times, t_{in} , t_{op} , t_{hw} , and t_{hp} , at the depths of measurement

Sym.	Unit	Average	Stdev	Average	Stdev
Z	m	0.035		0.093	
θ_{in}	m^3/m^3	0.014	0.007	0.014	0.008
θ_{max}	m^3/m^3	0.106	0.003	0.067	0.021
t_{in}	s	1987	569	37000	13978
t_{op}	s	17787	9006	79733	15398
h_{in}	m	-6.74	0.60	-7.31	1.46
h_{max}	m	-0.39	0.48	0.22	0.28
t_{hw}	s	1800	2878	3000	N.A
t_{hp}	s	18040	4766	79500	N.A

Velocities of wetting fronts in the sandstone were calculated with equations (1) and (2). They were in the range of 0.01 and 0.02 mm.s^{-1} and the velocities of the head increases were between 0.008 and 0.04 mm.s^{-1} . $\theta(Z,t)$ and $h(Z,t)$ increased with similar relative rates $\Delta\theta/\Delta t$ and $\Delta h/\Delta t$.

The corresponding rates of changes are

$$\frac{\Delta\theta}{\Delta t} = \frac{\theta(Z)_{max} - \theta(Z, t_w)}{t_{max} - t_w} \quad (3)$$

$$\frac{\Delta h}{\Delta t} = \frac{h(Z)_{max} - h(Z, t_h)}{t_{max} - t_h} \quad (4)$$

where t_w and t_h indicate the time when θ and h significantly increased at Z , and the index max refers to the maximum. Table 7 shows the rates of change for soil and sandstone.

Table 7. Rate of changes in soil and sandstone. $\Delta\theta/\Delta t$ and $\Delta h/\Delta t$

Depth	Soil		
	Z (m)	eq (3)	eq (4)
0.1		3.313E-05	3.673E-04
0.2		3.051E-05	4.158E-04
Depth	Sandstone		
	Z (m)	eq (3)	eq (4)
0.035		5.879E-06	7.9430E-05
0.093		1.232E-06	9.814E-06

The rates of change in the soil are higher than in the sandstone due to the higher heterogeneity in the pore structure when compared with the sandstone.

4. Conclusions

Sandstone is significantly less heterogeneous than the soil; hence the use of sandstone as a reference is recommended. In both systems the capillarity did not extend into the positive range ($h > 0$), and both materials were not completely saturated. The capillary heads reacted in the soil column considerably faster than in the sandstone. The heads increased about 10 times faster than did soil moisture (i.e., relative similar rate of change $\Delta\theta/\Delta t \approx 0.1 \Delta h/\Delta t$). Moreover, clear wetting fronts showed in the sandstone, which is not typical for preferential flow.

We conclude from the rapid increase of h during infiltration in the soil column (i.e., collapse of h) that the propagation of water occurred at atmospheric pressure through the pores that were filled with air prior to infiltration. Velocities of the wetting front obtained in the soil column indicate preferential flow according to values from KUNG et al. (2005). Then the fast reaction of capillarity might be typical of preferential flow as well, because a portion of water propagates fast into the air filled pores, also because during infiltration the mobile soil moisture is in contact with water drops experiencing inner pressures higher than atmospheric pressure.

In the future we will drive more experiments in undisturbed soils, in order to observe and to identify the minimum and maximum infiltration rates, q_S , that are required to initiate preferential flow.

Acknowledgements

To Andreas Helbling and Tomaso Vadilonga for the acquisition and first analysis of the data. The Swiss National Fund supported the investigation and The Rock Mechanics Laboratory LMR of the EPFL for the permeability test.

References

AVKHADIEV, F.G., and A.R. KACIMOV (2005) Analytical solutions and estimates for macrolevel flows. *J. of Porous Media* 8(2): 1-24.
 DI PIETRO, L., S. RUY, and Y. CAPOWIEZ. 2003. Predicting preferential flow in soils by traveling-dispersive waves. *J. Hydrol.* 278: 64-75.
 FAO-Unesco, 1994. *Soil map of the world*. ISRIC, Wageningen.
 FERRÉ, P. A., J. H. KNIGHT, D. L. RUDOLPH, and R. G. KACHANOSKI. 1998. The sample areas of conventional and alternative time domain reflectometry probes. *Water Resour. Res.* 34: 2971-2979.

GERMANN, P.F., and D. HENSEL. 2006. Poiseuille flow geometry inferred from velocities of wetting fronts in soils. *Vadose Zone Journal (in review)*
 GERMANN, P.F., and A. HELBLING and T. VADILONGA 2006. Rivulet approach to the *in-situ* characterisation of flow in a highly saturated soil. *Vadose Zone Journal (in review)*
 GERMANN, P.F., and M. ZIMMERMANN. 2005. Water balance approach to the *in-situ* estimation of volume flux densities using slanted TDR-wave guides. *Soil Science* 170 (1): 3-12.
 HASSANIZADEH, S. M., M. A. CELIA, and H. K. DAHLE. 2002. Dynamic effect in the capillary pressure-saturation relationship and its impacts on unsaturated flow. *Vadose Zone Journal* 1: 38-57.
 KUNG, K.-J. S., M. HANKE, C. S. HELLING, E. J. KLADIVKO, T. J. GISH, T. S. STEENHUIS, and D. B. JAYNES. 2005. Quantifying pore size spectra of macropore-type preferential pathways. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 69: 1196-1208.
 RICHARDS, L. A. 1931. Capillary conduction of liquids in porous mediums. *Physics* 1, 318-333.
 ROTH, K., R. SCHULIN, H. FLÜHLER, and W. ATTINGER. 1990. Calibration of time domain reflectometry for water content measurements using a composite dielectric approach. *Water Resour. Res.* 26 (10): 2267-2274.
 SPOSITO, G. (1986) The "Physics" of soil water physics. *Water Resour. Res.* 22 (9): 83S-88S.
 VACHAUD, G., M. VAUCLIN, and M. WAKIL. 1972. A study of the uniqueness of the soil moisture characteristic during desorption by vertical drainage. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 36: 531-532

Publikationen der Bodenkundlichen Gesellschaft der Schweiz

Bestellungen, Versand: Landwirtschaftliche Lehrmittelzentrale LmZ
 Länggasse 79
 3052 Zollikofen
 Tel. 031 910 50 60
 Fax 031 910 50 70
 E-Mail lmz@edition-lmz.ch
 Internet <http://www.edition-lmz.ch>

BGS-Bulletins Preis: Fr. 15.- (ab No. 24 Fr. 25.-) pro Stück ohne Porto und Verpackung

Nummer	Jahr	Bestellnummer	Nummer	Jahr	Bestellnummer
3	1979	970 801	19	1995	970 816
5	1981	970 802	20	1996	970 817
6	1982	970 803	21	1997	970 818
8	1984	970 805	22	1998	970 819
11	1987	970 808	23	1999	970 870
12	1988	970 809	24	2000	970 871
14	1990	970 811	25	2001	970 872
15	1991	970 812	26	2002	970 873
16	1992	970 813	27	2004	970 874
17	1993	970 814	28	2005	970 875
18	1994	970 815	29	2006	970 876

No. 1, 2, 4, 7, 9, 10 und 13 vergriffen

BGS-Dokumente Preis: Fr. 15.- (ab No. 9 Fr. 25.-) pro Stück ohne Porto und Verpackung

Nummer	Jahr	Thema	Bestellnummer
1 f	1984	Exploitation du gravier et agriculture	970 840
2 f	1985	Estimation et protection des sols	970 841
3 d	1986	Bodenschädigung durch den Menschen	970 822
4 d	1989	Lysimeterdaten von schweizerischen Messstationen	970 823
5 d	1994	Aktuelle Bodenforschung in der Schweiz	970 824
6 d	1995	Aktuelle Bodenforschung in der Schweiz II	970 825
7 d	1995	Aktuelle Bodenforschung in der Schweiz III	970 826
8 d	1996	Aktuelle Bodenforschung in der Schweiz IV	970 827
9 d	1999	Physikalischer Bodenschutz	970 828
9 f	1999	Protection des sols contre les atteintes physiques	970 842
10 d	2000	Umfrage Bodenkartierung	970 829
11 d	2001	Bodenkunde und Bodenkundler in der Schweiz 1855 – 1962	970 830
12 d	2003	Sanfte Bodensanierung	970 831
13 d	2004	Definition und Erfassung von Bodenschadverdichtungen	970 832
14 d	2004	Bodeninformation Schweiz BI-CH - Schlussbericht 2003	970 833

No. 1 und 2 deutsch vergriffen

Weitere Publikationen Preis: Fr. 15.- pro Stück ohne Porto und Verpackung

Exkursionsführer ISSS 1986 (Alpentransversale)	Bestellnummer	970 860
Gefährdete organische Böden der Schweiz (1982)		970 861

