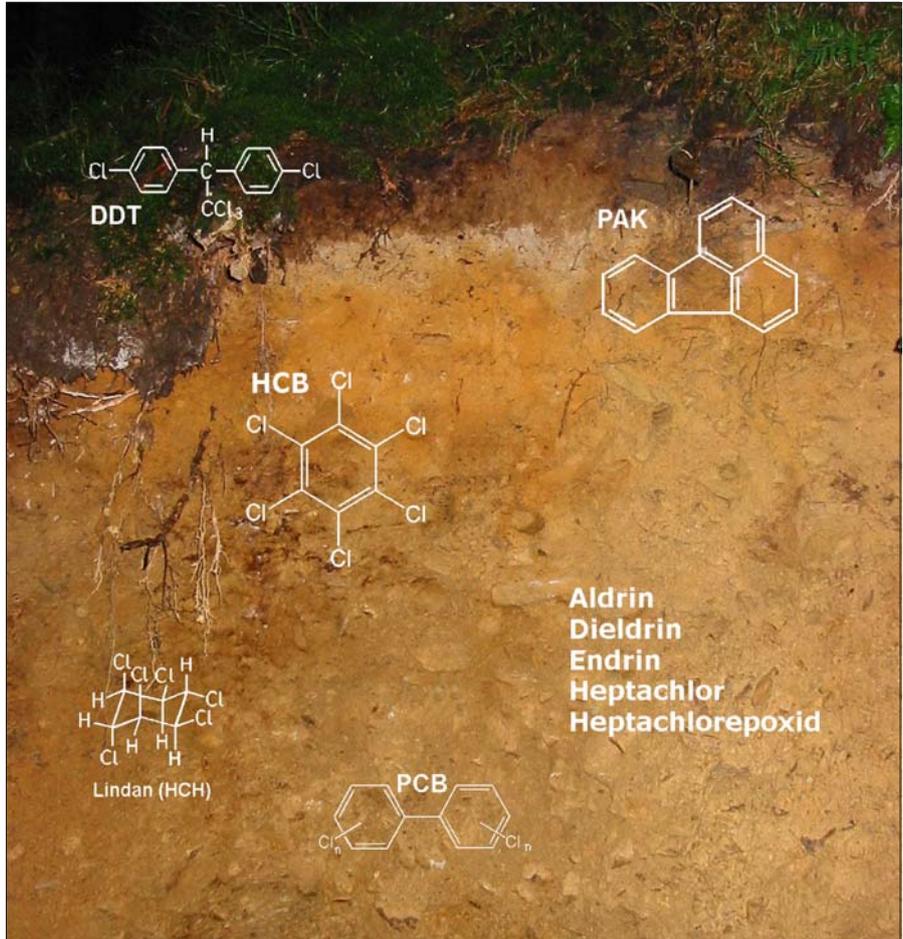


# GeoBerichte 4



LANDESAMT FÜR  
BERGBAU, ENERGIE UND GEOLOGIE



## Organische Schadstoffe in Waldböden Niedersachsens

Bodendauerbeobachtung in Niedersachsen



Niedersachsen



## GeoBerichte 4



Landesamt für  
Bergbau, Energie und Geologie



## Organische Schadstoffe in Waldböden Niedersachsens

Bodendauerbeobachtung in Niedersachsen

HEIKE FORTMANN & HENNING MEESENBURG

Hannover 2007

## Impressum

Herausgeber: © Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie  
Stilleweg 2  
30655 Hannover  
Tel. (0511) 643-0  
Fax (0511) 643-3667

Download unter [www.lbeg.niedersachsen.de](http://www.lbeg.niedersachsen.de)

Version: 30.01.2008

Redaktion: Ricarda Nettelmann  
e-mail: [bodenkundlicheberatung@lbeg.niedersachsen.de](mailto:bodenkundlicheberatung@lbeg.niedersachsen.de)

ISSN 1864–6891 (Print)

ISSN 1864–7529 (digital)

DOI 10.48476/geober\_4\_2007

GeoBer.	<b>4</b>	S. 3 – 91	53 Abb.	29 Tab.	Hannover 2007
---------	----------	-----------	---------	---------	---------------

## Organische Schadstoffe in Waldböden Niedersachsens

### – Bodendauerbeobachtung in Niedersachsen –

HEIKE FORTMANN & HENNING MEESENBURG

#### Kurzfassung

Im Rahmen des niedersächsischen Boden-Dauerbeobachtungsprogramms wurden zwischen 1994 und 2004 in der Humusaufgabe und im Mineralboden von 22 Boden-Dauerbeobachtungsflächen persistente organische Schadstoffe analysiert. Es wurden polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (1994 – 1998 6 PAK nach TRINKWV, 1999 – 2004 16 PAK nach der EPA-Liste), polychlorierte Biphenyle (6 PCB nach BALLSCHMITER) und die chlorierten Kohlenwasserstoffe Hexachlorbenzol (HCB), DDT und seine Abbauprodukte DDD und DDE,  $\alpha$ -HCH,  $\beta$ -HCH und  $\gamma$ -HCH (Lindan) sowie Aldrin, Endrin, Dieldrin, Heptachlor und Heptachlorepoxyd gemessen.

Lufteingetragene Stoffe wie PAK und PCB akkumulieren im Auflagehumus von Waldböden. Nadelbäume kämten diese in höherem Maße als Laubbäume aus der Luft aus. Die durch direkte Anwendung in Wälder eingebrachten chlorierten Kohlenwasserstoffe (CKW) wurden in sehr unterschiedlichem Ausmaß gefunden. Eine Verlagerung in tiefere Bodenschichten konnte für PCB, HCB, HCH, Aldrin, Dieldrin und Endrin nicht gefunden werden. PAK und DDX (DDT, DDD, DDE) konnten in Abhängigkeit von den bodenchemischen Verhältnissen bis in größere Tiefen gefunden werden. Die Wiederholungsinventuren zeigen abnehmende Konzentrationen aller Stoffe, insbesondere in Böden mit hoher mikrobieller Aktivität. Es wurden weiterhin die Belastungssituation und Hintergrundwerte abgeschätzt.

## Inhalt

	<b>Vorwort</b> .....	<b>5</b>
<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>6</b>
<b>2</b>	<b>Methoden</b> .....	<b>7</b>
2.1	Standortbeschreibung.....	7
2.2	Probennahme und Probenaufbereitung.....	10
2.3	Analysenprogramm und -methoden.....	10
2.3.1	Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).....	10
2.3.2	Polychlorierte Biphenyle (PCB).....	11
2.3.3	Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW).....	11
2.4	Stoffspezifische Kenndaten.....	12
2.4.1	Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).....	12
2.4.2	Polychlorierte Biphenyle (PCB).....	13
2.4.3	Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW).....	14
2.5	Grenzwerte.....	18
2.6	Statistische Methoden.....	19
<b>3</b>	<b>Ergebnisse</b> .....	<b>20</b>
3.1	Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).....	20
3.2	Polychlorierte Biphenyle (PCB).....	27
3.3	Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW).....	30
3.3.1	Hexachlorbenzol (HCB).....	30
3.3.2	Hexachlorhexan ( $\alpha$ -HCH, $\beta$ -HCH, $\gamma$ -HCH (Lindan)).....	32
3.3.3	DDT, DDD und DDE.....	37
3.3.4	Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlorepoxid.....	44
<b>4</b>	<b>Überschreitungshäufigkeiten und statistische Kennzahlen</b> .....	<b>48</b>
<b>5</b>	<b>Vorräte organischer Schadstoffe in Waldböden</b> .....	<b>58</b>
5.1	PAK.....	59
5.2	PCB <sub>6</sub> .....	60
5.3	HCB.....	61
5.4	HCH.....	63
5.5	DDT / DDD / DDE.....	65
<b>6</b>	<b>Diskussion</b> .....	<b>69</b>
6.1	PAK.....	69
6.2	PCB.....	72
6.3	HCB.....	74
6.4	$\alpha$ -HCH, $\beta$ -HCH, $\gamma$ -HCH (Lindan).....	76
6.5	DDT / DDD / DDE (DDX).....	78
6.6	Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlorepoxid.....	80
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Schlussfolgerungen</b> .....	<b>81</b>
7.1	Aktuelle Belastungssituation.....	81
7.2	Tiefenverlagerung / Grundwassergefährdung.....	82
7.3	Zeitliche Veränderungen.....	82
<b>8</b>	<b>Literatur</b> .....	<b>84</b>
<b>9</b>	<b>Glossar</b> .....	<b>90</b>

## Vorwort

Zur Gewährleistung einer nachhaltigen Daseinsvorsorge fühlt sich das Land Niedersachsen dem Schutz der Böden verpflichtet. Hierzu sind gemäß § 1 des Bundesgesetzes zum Schutz vor schädlichen Bodenveränderungen und zur Sanierung von Altlasten (BBodSchG) die natürlichen Funktionen und die Nutzungsfunktionen der Böden nachhaltig zu sichern oder wiederherzustellen und schädliche Bodenveränderungen abzuwehren.

Um frühzeitig schädliche Bodenveränderungen festzustellen und um rechtzeitig geeignete Gegenmaßnahmen treffen zu können, ist der Aufbau einer fachlichen Entscheidungsgrundlage notwendig (§ 8 Niedersächsisches Bodenschutzgesetz). Dies setzt die langfristige landesweite Beobachtung der Böden voraus.

Zu diesem Zweck hat die niedersächsische Landesregierung im Jahre 1991 dem Niedersächsischen Landesamt für Bodenforschung (heute Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie) die Federführung bei der Umsetzung einer gemeinsamen Kabinettsvorlage des Ministeriums für Wirtschaft und Verkehr, des Landwirtschafts- und des Umweltministeriums zur Durchführung des niedersächsischen Boden-Dauerbeobachtungsprogramms (BDF) übertragen.

Zur Ermittlung möglicher Bodenveränderungen wurde im Rahmen dieses Programms unter Wahrung der wissenschaftlichen Belastbarkeit der Daten aus der Vielzahl der niedersächsischen Böden eine repräsentative Auswahl von 90 Boden-Dauerbeobachtungsflächen (BDF) getroffen. Hierbei wurden sowohl die Landnutzung wie auch die unterschiedlichen Belastungsformen berücksichtigt, wobei der Betrieb der 20 forstlich genutzten BDF der Nordwestdeutschen Forstlichen Versuchsanstalt und der Betrieb der übrigen 70 landwirtschaftlich genutzten BDF dem Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie obliegt.

Schädliche Bodenveränderungen können aus unterschiedlichen Bodenbelastungen entstehen. So wird im Rahmen des BDF-Programms neben den Themenkomplexen Nährstoffeintrag, Bodenversauerung, Bodenradioaktivität und Bodenerosion durch Wind auch der Eintrag von anorganischen und organischen Schadstoffen in die Böden untersucht.

Der letztgenannte Aspekt – die Belastung von Böden mit organischen Schadstoffen – wird in dem vorliegenden Band am Beispiel der niedersächsischen Waldstandorte dargestellt. Weiterhin wird der Frage nachgegangen, ob und in welchem Maße diese Stoffe in die Tiefe verlagert und abgebaut werden.

Die Untersuchung von organischen Schadstoffen in Waldböden stellt ein wichtiges Kontrollinstrument zur Beurteilung der Wirksamkeit von umweltpolitischen Maßnahmen dar. Sie dient weiterhin als eine Entscheidungshilfe zur Beurteilung lokal kontaminierter Standorte und kann eine Grundlage für die Umweltgesetzgebung bezüglich dieser Stoffe bilden.

# 1 Einleitung

Seit Anfang des vergangenen Jahrhunderts gelangten zunehmend organische Schadstoffe in die Umwelt. Zu den wichtigsten Stoffgruppen zählen dabei die polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK), die polychlorierten Biphenyle (PCB) und die chlorierten Kohlenwasserstoffe (CKW). Bis auf die PAK, die in geringem Umfang auch durch natürliche Prozesse entstehen, sind alle diese Stoffe anthropogenen Ursprungs. Aufgrund ihrer meist ubiquitären Verbreitung sind diese Stoffe in den verschiedenen Kompartimenten von Waldökosystemen zu finden. Dabei werden die PAK und die PCB im Wesentlichen durch die Luft in Wälder eingetragen, während die chlorierten Kohlenwasserstoffe DDT, HCH (Lindan), Aldrin, Dieldrin, Endrin und Heptachlor hauptsächlich durch direkte Anwendung in Wälder gelangt sind. HCB nimmt eine Zwischenstellung zwischen beiden Gruppen ein. Aufgrund ihrer starken pestiziden Wirkungen wurden insbesondere DDT und HCH über einen langen Zeitraum (ca. 50 Jahre) in Wäldern und auf landwirtschaftlich genutzten Flächen angewendet. Durch ihre langen Halbwertszeiten, ihre hohe Fettlöslichkeit und ihre hohe Affinität zu organischen Substanzen haben sie sich in der Nahrungskette und in der organischen Substanz von Waldböden angereichert. Da sie z. T. auch in die Tiefe verlagert werden können, stellen sie zudem eine potenzielle Gefahr für das Grundwasser dar. Aufgrund der hohen Toxizität dieser Substanzen wurde ihre Verwendung seit 1970 immer weiter eingeschränkt und schließlich vollständig verboten (z. B. Chemikalien-Verbotsverordnung: CHEM-VERBOTSV 2003). Vorangetrieben durch umweltpolitische Maßnahmen und technische Verbesserungen wurden die Emissionen von PAK zudem stark vermindert (Großfeuerungsanlagen, Kraftfahrzeuge, Bundes-Immissionschutzgesetz: BImSchG 2002).

Die Ermittlung der Gehalte und Vorräte organischer Schadstoffe in der Humusaufgabe und im Mineralboden von Wäldern in periodischen Abständen ist Teil des niedersächsischen Boden-Dauerbeobachtungsprogramms. Im Rahmen dieses Programms wird auf 20 forstlich genutzten Boden-Dauerbeobachtungsflächen (BDF-F) der Bodenzustand sowie seine Veränderung dokumentiert (MEESENBURG et al. 1997). Sechs dieser BDF-F sind außerdem Level-II-Flächen

des europäischen ICP-Forest-Programms, welches in Niedersachsen mit insgesamt acht Flächen repräsentiert ist. Elf dieser insgesamt 22 Versuchsflächen werden als Standardflächen geführt, d. h. es werden in Abständen von ca. 10 Jahren Zustandsgrößen des Bodens, wie z. B. Konzentrationen von organischen Schadstoffen, ermittelt. Auf den anderen elf so genannten Intensivflächen werden zusätzlich Messungen zur Stoffbilanzierung durchgeführt. Diese Untersuchungsprogramme sollen Bodenveränderungen zeitnah dokumentieren und damit zur Beurteilung der Wirksamkeit von umweltpolitischen Maßnahmen dienen. Sie dienen außerdem als „Eichstellen“ für die Entwicklung von Bodenschutzmaßnahmen (Referenz- und Hintergrundwerte) und als Forschungsplattform für die Durchführung von weitergehenden forstlichen Projekten und Detailuntersuchungen (BARTH et al. 2002).

Die Erstuntersuchung der Böden auf organische Schadstoffe wurde 1994 begonnen und 2003 abgeschlossen. Von den seitdem durchgeführten Wiederholungsinventuren, für die ein Intervall von  $\pm 10$  Jahren vorgesehen ist, liegen die Ergebnisse von drei BDF-F vor (Augustendorf Kiefer AUKI 1994 und 2003, Fuhrberg Kiefer FUKI 1994 und 2004 und Göttinger Wald Buche GWBU 1995 und 2004).

In dieser Untersuchung sollte festgestellt werden, wie hoch die Belastung von Waldböden mit diesen Stoffen ist, ob und in welchem Maße sie in die Tiefe verlagert werden und in welchem Maße sie abgebaut werden (Wiederholungsinventuren).

Die Untersuchung von organischen Schadstoffen in Waldböden stellt ein wichtiges Kontrollinstrument zur Beurteilung der Wirksamkeit von umweltpolitischen Maßnahmen dar. Sie kann weiterhin eine Entscheidungshilfe für die Umweltgesetzgebung bezüglich dieser Stoffe sein (MEESENBURG et al. 2002).

## 2 Methoden

### 2.1 Standortbeschreibung

Die BDF-F des Boden-Dauerbeobachtungs- und Level-II-Programms wurden nach den Kriterien Boden- und Baumartenrepräsentanz, Naturraum- und Landschaftsrepräsentanz und Belastungssituation ausgewählt. Weiterhin wurde die Anknüpfungsmöglichkeit an umfang-

reiche langjährige Messreihen und Versuchsprogramme berücksichtigt.

Die BDF-F decken das landesweite Spektrum der wichtigsten Bodeneigenschaften Bodenart, Nährstoffverfügbarkeit, Versauerungsgrad und Wasserhaushalt ab. Als Hauptbaumarten sind Fichte, Kiefer, Buche und Eiche auf den BDF-F vertreten. Diese Baumarten repräsentieren über 85% der niedersächsischen Waldfläche.



#### BDF-F: Nr. und Flächenbezeichnung

1 WEFI	4 FUKI	6 SLB1	9 GWBU	12 EHKI	15 DREI	19 HIMJ
2 EHEI	5 LBKA, LBNH, LBSH	7 SLF1	10 WIFI	13 GDEI	16 HIKA	20 SPFI
3 LSBU	(keine Messung organischer Schadstoffe)	8 HABU	11 IHEI	14 HEEI	17 HIMA	21 AUKI

Abb. 1: Lage der Bodendauerbeobachtungs- und Level-II-Versuchsflächen in Niedersachsen (Die forstlichen Wuchsgebiete sind farblich gekennzeichnet.).

Tab. 1: Beschreibung der Dauerbeobachtungsflächen.

<b>Kenn.</b>	<b>BDF-Nr.</b>	<b>Level-II-Nr.</b>	<b>Name</b>	<b>Baumart/Alter 2004</b>	<b>Typ</b>	<b>Bodentyp</b>	<b>Ausgangsmaterial der Bodenbildung</b>
AUKI	21	307	Augustendorf	Kiefer/63a	Intensiv-BDF Level-II	Podsol	Geschiebesand, z. T. Flugsand, meist über glazifluvialtem Sand
DREI	15		Drömling	Eiche/113a	Standard-BDF	Anmoorgley	Niedermoororf, meist über fluviatitem Sand
EHEI	2	308	Ehrhorn, Eiche	Eiche/123a	Intensiv-BDF Level-II	podsolige Braunerde	Geschiebesand, Geschiebelehm, örtlich Ton und glazifluvialer Sand, z. T. Sandlössdecke
EHKI	12		Ehrhorn, Kiefer	Kiefer/118a	Standard-BDF	podsolige Braunerde	Geschiebesand, Geschiebelehm, örtlich Ton und glazifluvialer Sand, z. T. Sandlössdecke
FUKI	4		Fuhrberg	Kiefer/53a	Intensiv-BDF	Gley-Podsol	fluviatiler Sand und Flugsand
GDEI	13		Göhrde	Eiche/112a	Standard-BDF	Podsol-Braunerde	Geschiebedecksand, z. T. Flugsand, meist über glazifluvialtem Sand
GWBU	9	306	Göttinger Wald	Buche/137a	Intensiv-BDF Level-II	Terra-fusca-Rendzina	Mergel- und Kalkstein in Wechsellagerung, z. T. mit Gehängelehmdecke
HABU	8		Harste	Buche/114a	Intensiv-BDF	Parabraunerde	Mergel- und Kalkstein in Wechsellagerung, örtlich Dolomit, verbreitet Gehängelehmdecke
HEEI	14		Herrenholz	Eiche/118a	Standard-BDF	Pseudogley	Sandlöss über Geschiebelehm
HIKA	16		Hils, Kamm	Fichte/114a	Standard-BDF	podsolige Braunerde	Sandstein, örtlich mit Tonsteinlagen, z. T. Gehängelehmdecke
HIMA	17		Hils, Mulde	Fichte/120a	Standard-BDF	Braunerde-Podsol bis Podsol	Sandstein mit Schluff- und Tonstein in Wechsellagerung, örtlich Grauwacke, z. T. Gehängelehmdecke
HIMJ	19		Hils, Mulde	Fichte/32a	Standard-BDF	podsolige Braunerde	Sandstein mit Schluff- und Tonstein in Wechsellagerung, örtlich Grauwacke, z. T. mit Gehängelehmdecke

Tab. 1 (Fortsetzung).

Kenn.	BDF-Nr.	Level-II-Nr.	Name	Baumart/ Alter 2004	Typ	Bodentyp	Ausgangsmaterial der Bodenbildung
IHEI	11		Ihlow	Eiche/149a	Standard-BDF	Gley- Plaggensch	fluviatiler Sand, z. T. Flugsand
LBNH	5		Lange Bramke, Nordhang	Fichte/57a	Intensiv-BDF Level-II	Podsol- Braunerde	Sandstein, Quarzit, Grauwacke, Granit und Gehängeschutt
LBKA	(5)	302	Lange Bramke, Kamm	Fichte/57a	Level-II	Podsol- Braunerde	Sandstein, Quarzit, Grauwacke, Granit und Gehängeschutt
LBSH	(5)	303	Lange Bramke, Südhang	Fichte/57a	Level-II	Podsol- Braunerde	Sandstein, Quarzit, Grauwacke, Granit und Gehängeschutt
LSBU	3	301	Löss	Buche/124a	Intensiv-BDF Level-II	Podsol- Braunerden und Podsole	Geschiebedecksand, z. T. Flugsand, meist über glazifluviatitem Sand
SLB1	6	304	Solling, Buche	Buche/155a	Intensiv-BDF Level-II	podsolige Braunerde	Verwitterungs- und Gehängelehm über Festgestein
SLF1	7	305	Solling, Fichte	Fichte/120a	Intensiv-BDF Level-II	podsolige Braunerde	Verwitterungs- und Gehängelehm über Festgestein
SPFI	20		Spanbeck	Fichte/107a	Standard-BDF	Braunerde	Braunerden und Pseudogley- Braunerden
WEFI	1		Westerberg	Fichte/11a	Standard-BDF	Podsol	Geschiebedecksand, z. T. Flugsand, meist über glazifluviatitem Sand
WIFI	10		Wingst	Fichte/138a	Standard-BDF	podsolige Braunerde	Geschiebesand und glazifluviatiler Sand

## 2.2 Probennahme und Probenaufbereitung

Auf den BDF-F wurden auf einem 10 x 10 m-Raster nach dem Zufallsprinzip vier Punkte ausgewählt. Von diesen Punkten ausgehend, wurden in Nord-, Ost-, Süd- und Westrichtung in 2,5 m Entfernung jeweils getrennt nach Tiefenstufen Proben entnommen. Die an diesen vier Punkten entnommenen Proben wurden wiederum tiefenstufenabhängig zu Mischproben vereinigt. In der Humusaufgabe wurden die Lagen L/OF und Oh und im Mineralboden die Tiefenstufen (von Mineralbodenoberfläche) 0 – 5 cm, 5 – 10 cm, 10 – 30 cm und 30 – 50 cm beprobt. Die vier Mischproben je Tiefenstufe wurden nach Homogenisierung und Entfernung von groben Bestandteilen in braune 1 l-Weithalsglasflaschen für die Bestimmung der organischen Schadstoffe abgefüllt. Für die Bestimmung des Humusvorrates wurden an sechs Punkten jeweils vier Proben entnommen, die zu Mischproben vereinigt wurden.

Die Humusaufgabe wurde mit einem Stechrahmen (Fläche: 599 cm<sup>2</sup>) entnommen und in die Humuslagen L/Of und Oh getrennt. Der Mineralboden wurde bis in 10 cm Tiefe mit einem Bodensäulenzylinder der Firma Eijkelkamp (Fläche: 67,9 cm<sup>2</sup>) und einem Wurzelbohrer (Fläche: 54,6 cm<sup>2</sup>) entnommen. Wurzelbohrer und Bodensäulenzylinder wurden dabei in unmittelbarer Nähe in den Boden eingeschlagen. Die entnommenen Bodensäulen wurden in die Tiefenstufen 0 – 5 cm und 5 – 10 cm getrennt und homogenisiert. Die Tiefenstufen 10 – 30 und 30 – 50 cm wurden nur mit dem Bodensäulenzylinder entnommen und homogenisiert.

Die Proben wurden bis zum Transport zur LUFA Nord-West, die die Messungen der organischen Schadstoffe durchgeführt hat, bei 4 °C gelagert. In der LUFA Oldenburg wurden die Proben gefriergetrocknet und anschließend mit einem 2-mm-Metallsieb gesiebt. Die Proben für die Humusvorratsbestimmung wurden im Labor der Nordwestdeutschen Forstlichen Versuchsanstalt bei 105 °C getrocknet und gewogen.

1994 wurde einmalig auch die Tiefenstufe 50 – 100 cm beprobt. In dieser Tiefenstufe lagen die Konzentrationen aller organischen Schadstoffe der zwei untersuchten BDF-F unter der Bestimmungsgrenze, weshalb in darauf folgenden

Jahren diese Tiefenstufe nicht mehr beprobt wurde.

## 2.3 Analysenprogramm und -methoden

In den Proben wurden drei Gruppen von organischen Schadstoffen gemessen:

### 2.3.1 Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)

In den Jahren 1994 bis 1998 wurden lediglich die 6 PAK (PAK6) nach der Trinkwasserverordnung (TRINKWV) gemessen (Tab. 2). Ab 1999 wurden zusätzliche 10 PAK, also insgesamt 16 PAK (PAK16) gemessen. Der Untersuchungsumfang wurde damit an die Liste der Environmental Protection Agency (EPA, USA) angelehnt. Auf den Untersuchungsumfang der EPA beziehen sich viele Untersuchungen, Grenz- und Richtwerte. Die Messung der PAK wurde nach der VDLUFA-Methode 3.3.3.2 (Messung mit GC-MS) in der LUFA Oldenburg durchgeführt (VDLUFA 2001). Die Bestimmungsgrenze lag 1994/95 bei 5 µg/kg TS je Einzelstoff, ab 1998 bei 2 µg/kg TS je Einzelstoff.

Tab. 2: Analytierte polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).

NAP	Naphthalin
ACE	Acenaphthen
ACY	Acenaphthylen
FLU	Fluoren
PHE	Phenanthren
ANT	Anthracen
FLT	Fluoranthen*
PYR	Pyren
BAA	Benzo(a)anthracen
CHR	Chrysen
BBF	Benzo(b)fluoranthen*
BKF	Benzo(k)fluoranthen*
BAP	Benzo(a)pyren*
IND	Indeno(1,2,3-cd)pyren*
DBA	Dibenzo(ah)anthracen

BP	Benzo(ghi)perylene*
----	---------------------

\* PAK nach TVO

### 2.3.2 Polychlorierte Biphenyle (PCB)

Es wurden 6 PCB (PCB6) gemessen (Tab. 3). Die Bestimmung der polychlorierten Biphenyle wurde nach der VDLUFA-Methode 3.3.2 (Messung mit GC-ECD) durchgeführt. Die Bestimmungsgrenze lag bei 2 µg/kg TS je Einzelstoff.

Tab. 3: Analysierte polychlorierte Biphenyle (PCB).

PCB28	2,4,4'-Trichlorbiphenyl
PCB52	2,2',5,5'-Tetrachlorbiphenyl
PCB101	2,2',4,5,5'-Pentachlorbiphenyl
PCB138	2,2',3,4,4',5'-Hexachlorbiphenyl
PCB153	2,2',4,4',5,5'-Hexachlorbiphenyl
PCB180	2,2',3,4,4',5,5'-Heptachlorbiphenyl

### 2.3.3 Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW)

Die Messung der CKW wurde nach der VDLUFA-Methode 3.3.3.1 (Messung mit GC-ECD) durchgeführt (Tab. 4). Die Bestimmungsgrenzen lagen für HCB und HCH von 1994 – 1999 bei 2 µg/kg TS, ab 2000 bei 1 µg/kg TS, für DDT, DDD, DDE, Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor und Heptachlorepoxyd außer 1999, als die Bestimmungsgrenze bei 5 µg/kg TS lag, bei 2 µg/kg TS.

Tab. 4: Analysierte chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW).

HCB	Hexachlorbenzol
α-HCH	Hexachlorcyclohexan
β-HCH	Hexachlorcyclohexan
γ-HCH (Lindan)	Hexachlorcyclohexan
op-DDT	Trichlor-chlorphenyl-ethan
pp-DDT	Trichlor-bis-chlorphenyl-ethan
pp-DDE	Dichlor-bis-chlorphenyl-ethylen
pp-DDD	Dichlor-bis-chlorphenyl-ethan
Aldrin	Hexachlorhexahydrodimethanonaphthalin
Dieldrin	Hexachlor-hexahydro-dimethanonaphthalin
Endrin	Hexachlor-octahydro-epoxy-dimethanonaphthalin
Heptachlor	Heptachlor-tetrahydro-endo-methanoindan
Heptachlorepoxyd	Heptachlor-epoxy-tetrahydro-endo-methanoindan

## 2.4 Stoffspezifische Kenndaten

### 2.4.1 Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)

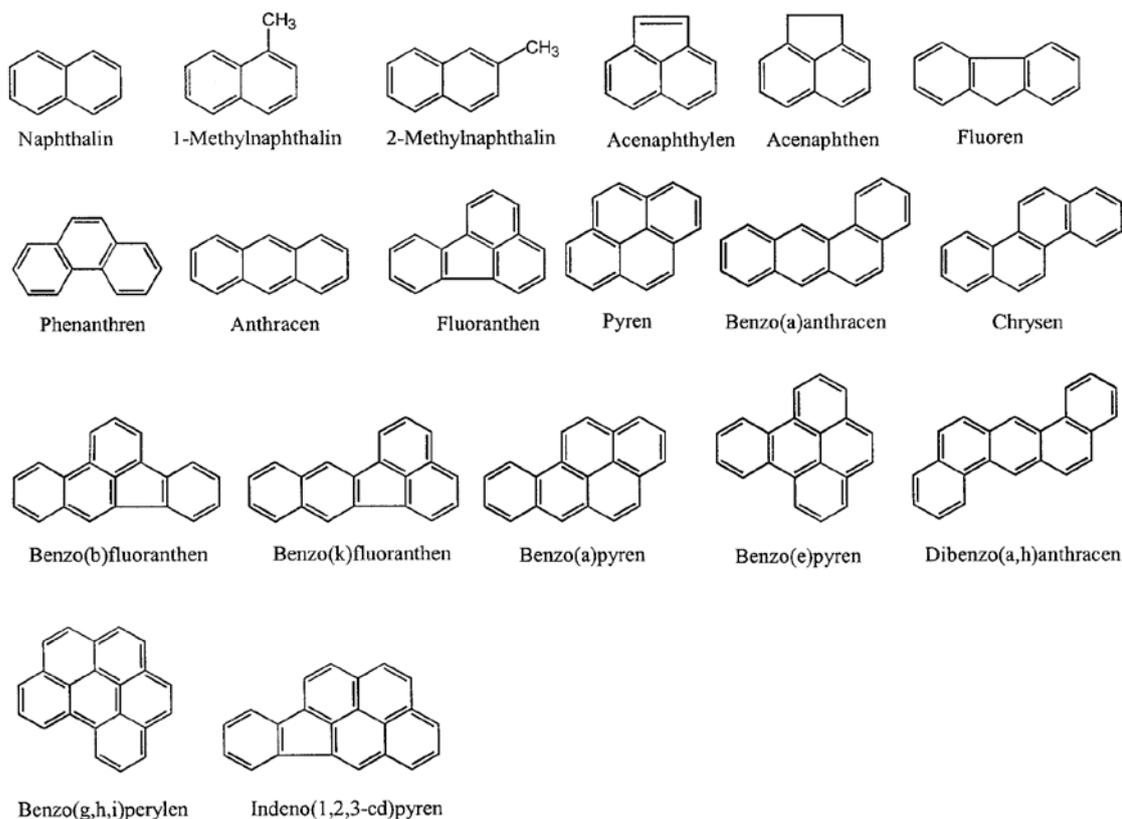


Abb. 2: Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).

Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) sind Verbindungen mit mindestens zwei kondensierten Benzolringen (in der Regel weniger als acht) mit oder ohne Alkyl-Seitenketten. Einzelne Wasserstoffatome können durch funktionelle Gruppen ersetzt sein. Stickstoff- und Schwefelheterozyklen werden ebenfalls zu den PAK gezählt. Es sind mehrere hundert PAK bekannt. Von diesen sind nur ca. 30 – 40 umweltrelevant. Die hier untersuchten PAK waren in den Jahren 1994 – 1998 die in der Trinkwasserverordnung (TRINKWV 2001) aufgeführten Stoffe, und ab 1999 waren es die 16 PAK der Prioritätenliste der U. S. Amerikanischen Umweltbehörde EPA. Die Summen der hier gemessenen PAK werden im Folgenden

als PAK6 bzw. PAK16 bezeichnet und entsprechen der Addition der Einzelstoffe.

PAK entstehen bei der unvollständigen Verbrennung praktisch aller organischen Stoffe oder sind Abfallprodukte bei chemischen Prozessen. Nur wenige PAK werden technisch hergestellt (Gewinnung aus Teerprodukten). PAK-Quellen sind in geringem Ausmaß natürlichen Ursprungs: Wald- und Steppenbrände, Vulkanausbrüche und biotische Prozesse in Pflanzen und Bakterien. In Moorböden und humusreichen Böden können durch die Kondensation von Huminsäuren PAK gebildet werden. Zum überwiegenden Teil sind sie jedoch anthropogener Herkunft: aus Teerölproduktion, Kokerzeugung, Bitumenproduktion, elektroly-

tischer Aluminiumschmelze, Gaswerken, Hausbrand, Abfallverbrennung, KFZ-Abgasen, Altöl, Tabakrauch etc.

Bei allen PAK handelt es sich um farblose kristalline Substanzen mit Schmelzpunkten zwischen 100 und 450 °C. Der Dampfdruck der PAK ist mit  $10^{-8}$  bis  $10^{-6}$  Pa gering. Ihre Verlagerung über den Luftweg erfolgt deshalb vorwiegend partikelgebunden (Adsorption an organischem und anorganischem Material) und nicht in der Gasphase. Die Wasserlöslichkeit nimmt mit der Zahl der kondensierten Ringe ab und liegt zwischen  $10^{-4}$  und 32 mg/l. Mit abnehmender Wasserlöslichkeit nehmen die Fettlöslichkeit und damit die Bioakkumulationsrate zu. Die Fettlöslichkeit ist mit n-Oktanol-Wasserverteilungskoeffizienten  $\log_{\text{POW}} = 3 - 8$  als hoch einzustufen. Die starke Adsorption an organischem Material hat eine starke Akkumulation der PAK im Humus und im C-reichen Oberboden mit stark abnehmender Tendenz zum Unterboden zur Folge.

Die Abbaubarkeit nimmt mit der Zahl der Ringe ebenfalls stark ab. Ein mikrobieller Abbau von PAK mit mehr als drei Ringen wurde bisher nicht nachgewiesen. Der Abbau erfolgt abiotisch durch Oxidation mit Hilfe von UV-Licht (Epoxidbildung) und Hydroxilierung. Die Halbwertszeit wird mit 0,3 – 800 Tagen abgeschätzt.

Einige der PAK haben nachweislich kanzerogene und/oder mutagene Wirkung (z. B. Benzo(a)pyren, Benzo(b)fluoranthren, Dibenzo(a,h)anthracen). Andere fördern die kanzerogene Wirkung anderer Chemikalien.

Aufgrund seiner herausragenden Stellung bezüglich der Toxizität wird Benzo(a)pyren, vor allem in älterer Literatur, oft als Leitsubstanz bestimmt.

Weltweit entstanden 1990 jährlich ca. 4 Mio. t PAK, davon ca. 500 – 1 000 t in Westdeutschland.

## 2.4.2 Polychlorierte Biphenyle (PCB)

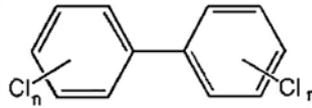


Abb. 3: PCB.

Polychlorierte Biphenyle sind Verbindungen aus zwei Benzolringen (Phenylgruppen), an denen 1 – 10 Wasserstoffatome durch Chloratome ersetzt sind. Es sind 209 verschiedene polychlorierte Biphenyle möglich. Diese werden entweder nach den IUPAC-Regeln (International Union of Pure and Applied Chemistry) bezeichnet oder nach BALLSCHMITER & ZELL (1980) nummeriert. Der Übersichtlichkeit halber wird hier die Nummerierung nach BALLSCHMITER & ZELL verwendet.

Es wurden in dieser Untersuchung die sechs PCB analysiert, die nach BECK & MATHAR (1985) die Indikatorverbindungen in Bezug auf die Häufigkeit ihres Vorkommens in der Umwelt, in Lebensmitteln und in technischen Produkten sind. Bei diesen sechs PCB handelt es sich um 3 – 7fach chlorierte Biphenyle. Die Summe dieser sechs Einzelverbindungen wird im Folgenden als PCB6 bezeichnet.

PCB wurden seit 1930 großtechnisch hergestellt. Die seither hergestellte Menge beläuft sich nach KOCH (1998) auf weltweit 1 – 1,5 Mio. t. Verwendet wurden PCB als Kühl- und Isolierflüssigkeiten in Transformatoren, Dielektrika in Kondensatoren, Weichmacher in Kunststoffen (Dichtungs- und Fugenmassen), in Klebstoffen und Lacken, in Hydraulikflüssigkeiten im Bergbau, als Textilzusatzstoffe, Pestizide, Schneid-, Schmier- (Kettenöle von Motorsägen) und Bohröle und als Flammschutzmittel. Natürliche Entstehungsquellen von PCB gibt es nicht.

Bei PCB in reiner Form handelt es sich um weiße kristalline Stoffe mit Schmelzpunkten zwischen 23 und 300 °C, bei technischen PCB um farblose bis gelbliche ölige Flüssigkeiten. Bei Erhitzung der thermisch sehr stabilen PCB auf 300 – 800 °C können Dioxine und Furane entstehen. Die Wasserlöslichkeit, Reaktivität und Flüchtigkeit nimmt mit dem Chlorierungsgrad ab. Die Wasserlöslichkeit ist mit Werten zwischen  $4 \cdot 10^{-1}$  und  $3 \cdot 10^{-5}$  mg/l sehr gering.

Im Wasser sind PCB deshalb zu 90 % an Schwebstoffe gebunden. Der im Vergleich zu den PAK mit  $10^{-5}$  bis 2 000 Pa wesentlich höhere Dampfdruck der PCB führt zu einer weiträumigen Verfrachtung und Deposition der PCB mit der Luft. PCB mit bis zu sieben Chloratomen kommen in der Luft hauptsächlich gasförmig vor. Höher chlorierte PCB werden an Partikel gebunden mit der Luft verfrachtet. Die Fettlöslichkeit und damit die Bioakkumulationsrate nehmen mit zunehmendem Chlorierungsgrad zu.

Die Sorptionsfähigkeit an die Feststoffphase des Bodens steigt ebenfalls mit dem Chlorierungsgrad an und befindet sich bereits bei den niedrig chlorierten PCB auf hohem Niveau. Eine Verlagerung von PCB in größere Bodentiefen ist aufgrund der geringen Wasserlöslichkeit sehr gering. Der jährliche Eintrag von PCB wird 2003 auf im Mittel 80 – 100 mg/ha geschätzt, wobei die Eintragungssituation in ländlichen Gebieten eher im unteren Bereich liegt. Es ergibt sich hieraus ein Hintergrundwert für „normal“ belastete Böden von 10 – 20 µg/kg TS.

PCB werden zu den POPs (persistent organic pollutants) gezählt. POPs werden in der Umwelt nur sehr langsam abgebaut und weiträumig verfrachtet. Sie haben eine hohe Bioakkumulationsrate und vielfältige toxikologische Eigenschaften. Die Halbwertszeiten von PCB werden auf 10 – 100 Jahre geschätzt. Der Abbau erfolgt in der Atmosphäre und im Wasser photochemisch. Ein geringer mikrobieller Abbau soll im Boden stattfinden (OCKENDEN et al. 2003), wobei die Abbauraten von niedriger zu höherchlorierten PCB geringer sein sollen (KRAUSS & WILCKE 2002, SCHLEYER & RAFFIUS 2000).

PCB sind als kanzerogen eingestuft. Sehr wahrscheinlich schädigen sie das Erbgut, haben negative Auswirkungen auf die Fortpflanzungsfähigkeit und sind toxisch für Embryonen. Ihre Aufnahme in den menschlichen Körper erfolgt im Wesentlichen über die Nahrungskette. Die Verunreinigung bzw. Entstehung von Dioxinen und Furanen bei der Verbrennung von PCB stellt ein zusätzliches, sekundäres Gefährdungspotenzial dar. Die PCB gehören zum so genannten „dirty dozen“ (dreckiges Dutzend) von organischen Schadstoffen. Alle diese zwölf organischen Stoffe bzw. Stoffklassen stehen unter dem starken Verdacht, erbgutverändernd zu wirken, und damit Krebs und Geburtsfehler auslösen zu können. Ihre Gefähr-

lichkeit resultiert vor allem aus ihren hohen Bioakkumulationsraten (hohe Fettlöslichkeit), ihrer großen Persistenz und Toxizität sowie aus ihrer weiträumigen Verbreitung durch Ferntransport.

Die Verwendung von PCB ist seit 1976 durch eine EG-Richtlinie (EG-RICHTLINIE PCB 1996) und seit 1978 in der BRD durch das Bundes-Immissionsschutzgesetz stark eingeschränkt worden. PCB durften seitdem z. B. nur noch in geschlossenen Systemen verwendet werden. 1983 wurde die Produktion von PCB in der BRD eingestellt, seit 1994 ist das in Verkehr bringen von Gemischen mit mehr als 50 mg PCB/kg verboten. Am 22. Mai 2001 wurde durch die POP- oder Stockholmer Konvention, die am 17. Mai 2004 in Kraft getreten ist, weltweit die Verwendung aller POPs der „dirty dozen“-Liste verboten. Hierin ist auch die Entsorgung aller PCB bis 2010 geregelt.

#### 2.4.3 Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW)

Die im Folgenden beschriebenen CKW fanden im Wesentlichen als Insektizide, Fungizide, Rodentizide (Nagetiergifte) oder Saatgutbeizmittel Verwendung. Bei allen diesen CKW handelt es sich um künstlich hergestellte Verbindungen. Sie gehören sämtlich zu den POPs (persistent organic pollutants).

Mit Ausnahme der HCH-Isomere, gehören sie außerdem zum so genannten „dirty dozen“ (dreckiges Dutzend). Durch die Verwendung dieser CKW als Pestizide ist die gesamte produzierte Menge in die Umwelt gelangt.

### 2.4.3.1 Hexachlorbenzol (HCB)

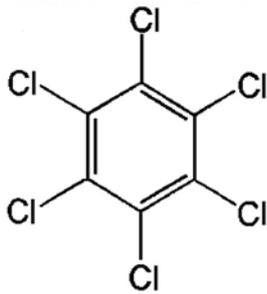


Abb. 4: Hexachlorbenzol (HCB).

HCB wurde in Deutschland bis 1993 hergestellt und entsteht seitdem nur noch als Nebenprodukt bei chemischen Produktionsprozessen. Natürlich entsteht HCB nicht. Die weltweite Produktion zwischen 1946 bis zum weltweiten Verbot von HCB 2004 wird auf 100 t jährlich geschätzt (BUA 1994). Verwendet wurde HCB als Flammhemmstoff, fungizider Zusatzstoff von Holzschutzmitteln, Saatgutbeizmittel und als Verunreinigung in verschiedenen Pflanzenbehandlungsmitteln (z. B. Atrazin). Außerdem entsteht HCB in geringem Maße bei der Verbrennung chlorhaltiger Produkte und Naturstoffe (Müll, PVC, Polyethylen in Gegenwart von NaCl, Waldbrände, Hausbrand), in geringem Maße bei der Trinkwasserchlorierung und beim Abbau von Lindan im Boden.

HCB ist ein kristalliner, farbloser Feststoff (Schmelzpunkt 230 °C), der als technisches Produkt mit Dioxinen und Furanen verunreinigt sein kann. Die Wasserlöslichkeit von HCB ist mit  $8 \cdot 10^{-3}$  mg/l sehr gering, seine Fettlöslichkeit und damit Bioakkumulationsrate hoch ( $\log_{\text{Pow}} = 5,31$  Verteilungskoeffizient n-Oktanol : Wasser).

HCB gilt als persistent in allen Umweltmedien. In der Luft liegt HCB hauptsächlich gasförmig vor (BUA 1994, FIEDLER et al. 1995). In der Atmosphäre wird HCB durch Photolyse abgebaut, seine Halbwertszeit wird hier auf 125 Tage geschätzt. Im Boden wird HCB in äußerst geringem Maße aerob und anaerob mikrobiell abgebaut. Die Halbwertszeit im Boden wird auf 1 – 23 Jahre geschätzt (BUA 1994, FIEDLER et al. 1995). HCB hat eine sehr starke Sorptionsaffinität an organische Bestandteile des Bodens (BUA 1994, MEEK & GIDDINGS 1991); eine Tiefenverlagerung findet deshalb so gut wie nicht statt.

Angaben zu akuten toxischen Wirkungen auf den Menschen liegen nicht vor. Bei chronischer Exposition wurden im Tierversuch Schädigungen der Leber, Niere und des zentralen Nervensystems beobachtet. HCB ist nicht mutagen und teratogen (BUA 1994), es zeigt jedoch reproduktionstoxische und immunotoxische Resultate und gilt als kanzerogen im Tierversuch.

Die Verwendung von HCB als Pestizid, Fungizid und Saatgutbeizmittel ist seit 1981 in der EU verboten. Seine Verwendung als Ausgangsprodukt für chemische Synthesen ist seit 1993 vernachlässigbar (BUA 1994). Es fällt seitdem nur noch als Nebenprodukt in geringen Mengen bei der Produktion von CKW-Lösungsmitteln an. Seit dem 17. Mai 2004 ist HCB weltweit verboten (s. o.).

### 2.4.3.2 Hexachlorhexan ( $\alpha$ -HCH, $\beta$ -HCH, $\gamma$ -HCH (Lindan))

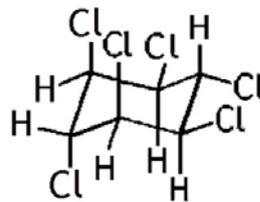


Abb. 5: Hexachlorhexan.

Technisches HCH stellt ein Stoffgemisch aus sieben HCH-Isomeren dar, welches ca. 15 %  $\gamma$ -HCH (Lindan) enthält. Es wurde hauptsächlich als Insektizid verwendet, wobei nur  $\gamma$ -HCH insektizide Wirkung hat. Die Isolierung von  $\gamma$ -HCH aus diesem Gemisch wurde nicht durchgeführt, da sie sehr aufwändig ist und auch das Gemisch eine gute insektizide Wirkung hat. Lindan wurde bevorzugt zur Bekämpfung von beißenden und saugenden Insekten im Obst-, Garten- und Ackerbau eingesetzt und fand auch in der Forstwirtschaft vielfältige Anwendung (z. B. bei Kalamitäten rindenbewohnender Schädlinge). Es wurde außerdem zur Bekämpfung von Hygieneschädlingen in Vorratslagern und im medizinischen Bereich (Kopfläuse, Krätze) eingesetzt.

HCH ist ein Feststoff mit einem Dampfdruck von  $7,4 \cdot 10^{-3}$  Pa, der mit einer Wasserlöslichkeit zwischen 0,2 und 8 mg/l im Vergleich zu

allen anderen hier untersuchten Stoffen gut wasserlöslich ist. HCH ist zudem gut fettlöslich, weshalb es eine hohe Bioakkumulationsrate hat ( $\log_{POW} = 3,61$  Verteilungskoeffizient n-Oktanol : Wasser.). Eine weiträumige Verlagerung von HCH über den Luftweg ist ebenfalls möglich.

Abgebaut wird HCH durch Sonnenlicht (UV-Strahlung) und durch Mikroorganismen. Die Halbwertszeiten im Boden werden auf 1 Jahr für  $\alpha$ -HCH, 3–30 Jahre für  $\gamma$ -HCH und 8–10 Jahre für  $\beta$ -HCH geschätzt (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1993).

Die Giftigkeit nimmt von  $\beta$ -, über  $\alpha$ - zu  $\gamma$ -HCH stark zu (LD50 Ratte oral 6 000, 600, 90 mg/kg). Für  $\beta$ -HCH konnte eine kanzerogene Wirkung im Tierversuch nachgewiesen werden, für alle Isomere wird eine krebsauslösende Wirkung beim Menschen für wahrscheinlich gehalten.

Die Verwendung von HCH in der Land- und Forstwirtschaft wurde in Deutschland 1992 verboten (PFLSCHANVV 1992). Seine Verwendung ist seitdem nur in bestimmten Fällen erlaubt (z. B. Kopfläuse, Krätze). HCH ist nicht auf der „dirty dozen“-Liste, deren Substanzen seit Mai 2004 weltweit verboten sind. Es taucht jedoch in dem 1998 verabschiedeten Protokoll (Protocol on Persistent Organic Pollutants) der UN/ECE - UNITED NATIONS ECONOMIC COMMISSION FOR EUROPE (1998) auf, das die Verwendung in der EU verbietet. In einer Verordnung der EG über persistente organische Schadstoffe (EG-VERORDNUNG 2004) werden HCH als POP eingestuft.

#### 2.4.3.3 DDT, DDD, DDE

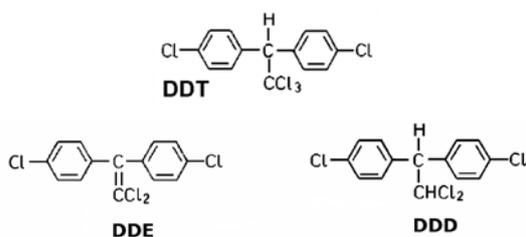


Abb. 6: DDT und seine Abbauprodukte DDE und DDD.

Bei DDT handelt es sich um ein technisches Produkt, welches im Wesentlichen aus den

zwei Stoffisomeren o,p- und p,p'-DDT besteht. Unter DDT ist in dieser Untersuchung die Summe der Konzentrationen dieser zwei Isomere zu verstehen. Es wurden außerdem seine zwei Abbauprodukte DDD und DDE analysiert.

Seit den 40er Jahren wurde DDT in großtechnischem Maßstab hergestellt. Es war seitdem eines der am häufigsten eingesetzten Insektizide weltweit. 1963 belief sich die jährliche Produktion auf ca. 100 000 t, davon in der BRD 1965 allein auf 30 000 t. 1976 wurden weltweit noch ca. 60 000 t und 1996 5 000 t produziert (BAYERISCHES LANDESAMT FÜR UMWELTSCHUTZ 2003). In der DDR wurden noch 1983/84 weitflächige prophylaktische Waldbesprühungen durchgeführt. DDT wurde aufgrund seiner sehr geringen Phytotoxizität, geringen akuten Toxizität gegenüber Warmblütern und guten Dauer- und Breitenwirkung großflächig eingesetzt. Als großer Nachteil hat sich die schnelle Ausbildung von Resistenzen der Schadinsekten und die damit notwendige ständige Erhöhung der Dosis erwiesen. Diese weit verbreitete Anwendung großer Mengen, verbunden mit hoher Persistenz, hat zu einem weltweiten Vorkommen von DDT geführt. DDT ist sogar im Schnee der Antarktis nachweisbar.

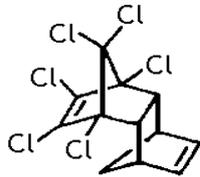
Mit einer Wasserlöslichkeit von  $5 \cdot 10^{-3}$  mg/l ist DDT sehr gering wasserlöslich. Die Wasserlöslichkeit kann jedoch durch die Anwesenheit von Fulvosäuren (Moorböden) bis auf mehrere mg/l erhöht werden. Die Tiefenverlagerung im Boden, mit Ausnahme von Mooreböden, wird als sehr gering eingestuft. Durch die schwere Abbaubarkeit von DDT reichert es sich in der gesamten Umwelt stark an. Die Halbwertszeit wird mit wahrscheinlich deutlich  $> 10$  Jahren angegeben (ABBAS 1995).

DDT wird als immuntoxisch, reproduktions- und fetotoxisch, hepatotoxisch und im Tierversuch als kanzerogen angesehen. Beim Menschen wirkt es als starkes Nervengift. Es reichert sich aufgrund seiner hohen Fettlöslichkeit in der Nahrungskette stark an. Die tolerierbare tägliche Dosis (TDI) wird mit 0,5  $\mu$ g/kg Körpergewicht für den Menschen angegeben und lag 1998 in Deutschland im Durchschnitt bei 0,1  $\mu$ g/kg.

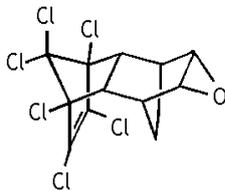
Verboten wurde DDT in der BRD 1972 durch das so genannte DDT-GESETZ (1972). Weiterhin wurde das Inverkehrbringen 1994 durch die Chemikalien-Verbotsverordnung (CHEMVERBOTSV 2003) verboten. Da DDT zu den POPs

und den Stoffen der „dirty dozen Liste“ gehört, ist es seit Mai 2004 weltweit verboten (s. o.).

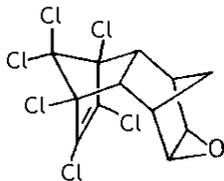
#### 2.4.3.4 Aldrin, Dieldrin, Endrin



Aldrin



Dieldrin



Endrin

Abb. 7: Aldrin, Dieldrin, Endrin.

Aldrin und Dieldrin wurden als Insektizide zur Bekämpfung von vorwiegend im Boden lebenden Insekten (Bodensanierung) und von Heuschrecken eingesetzt. Hierbei bildeten sich bald Resistenzen aus, die zu einer ständigen Erhöhung der Dosis führten. Endrin wurde als Nagetiergift und Insektizid eingesetzt und ist extrem giftig für Fische. Alle drei Substanzen wurden ab den 50er Jahren bis zu ihrem Verbot verwendet (s. u.).

Bei allen drei Substanzen handelt es sich um wasserunlösliche Feststoffe, die aufgrund ihrer hohen Halbwertszeiten zu den POPs und zur „dirty dozen“-Liste gehören. Hierbei gilt Dieldrin als persistenter als Aldrin und Endrin. Die Halbwertszeiten im Boden werden auf > 12 Jahre geschätzt und liegen damit im Bereich der Halbwertszeit von DDT. Im Boden und im Insek-

tenkörper wird Aldrin in Dieldrin und umgekehrt umgewandelt.

Alle drei Stoffe reichern sich im Fettgewebe stark an. Aldrin gilt als leber- und nierenschädigend, Dieldrin wird als kanzerogen angesehen. Bezüglich ihrer Giftigkeit werden folgende LD50-Ratte-Werte angegeben: Endrin 7 mg/kg, Dieldrin 38 mg/kg und Aldrin 46 mg/kg. Stoffe mit LD50-Werten < 50 mg/kg gelten als hochtoxisch.

1971 wurde die Verwendung von Dieldrin und Endrin, 1981 die Verwendung von Aldrin in der BRD verboten. Seit dem Inkrafttreten der Stockholmer Konvention im Mai 2004 (STOCKHOLMER KONVENTION 2004) ist die Verwendung aller drei Stoffe weltweit verboten.

#### 2.4.3.5 Heptachlor, Heptachlorepoxyd

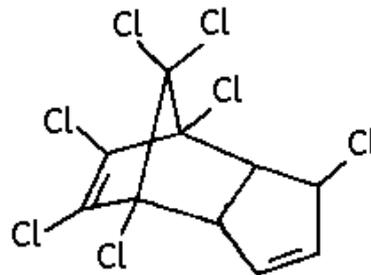


Abb. 8: Heptachlor.

Seit den 50er Jahren, bis zu seinem endgültigen Verbot 2004, wurde Heptachlor als Insektizid eingesetzt. Es ist ein nicht-systemisches Insektizid gegen Termiten, Ameisen, Bodenseksten und Hygieneschädlinge.

Heptachlorepoxyd ist ein Abbauprodukt von Heptachlor. Heptachlor ist ein wasserunlöslicher weißer Feststoff, der stark von organischen Substanzen adsorbiert wird. Eine Tiefenverlagerung im Boden findet deshalb kaum statt. Heptachlor ist halbflüchtig, weshalb es weiträumig verfrachtet wird. Vom Menschen wird es hauptsächlich über die Nahrung aufgenommen. Es gilt als toxisch für die Leber und die Nieren. Über mutagene, teratogene oder kanzerogene Eigenschaften dieser Stoffe kann aufgrund der schwachen Datenlage keine Aussage gemacht werden.

Heptachlor steht auf der „dirty dozen“-Liste und ist seit Mai 2004 weltweit verboten.

## 2.5 Grenzwerte

In der für Deutschland gültigen Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) von 1999 sind Prüfwerte und Vorsorgewerte für eine Reihe von organischen Schadstoffen festgelegt, bei deren Überschreitung Maßnahmen getroffen werden müssen (s. u.). Für einige Stoffe, für die in dieser Verordnung keine Vor-

sorgewerte festgelegt sind (HCB, HCH und DDT) werden die Sanierungswerte der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) herangezogen. Auch Richtwerte für nicht kontaminierte Böden gibt es nur in der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994), die für die Bewertung der Daten dieser Untersuchung zu Grunde gelegt werden. Tabelle 5 gibt einen Überblick über die Grenzwerte, die der Bewertung der in dieser Untersuchung erhobenen Stoffkonzentrationen zugrunde gelegt werden.

Tab. 5: Grenzwerte für organische Schadstoffe in Böden (alle Werte mg/kg TS).

Stoff/Stoffgruppe	Deutschland 1999 (Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung)			Niederlande 1994	
	PW	MW	VW	SW	IW
PAK16	10 (Benzo(a)p., Park- und Freizeitanlagen)		Humus > 8 %: 10 (PAK16) 1 (Benzo(a)p.)	1	40
			Humus < 8 %: 3 (PAK16) 0,3 (Benzo(a)p.)		
PCB6			Humus > 8 %: 0,1	0,02	1
			Humus < 8 %: 0,05		
HCB	20 (Park- und Freizeitanlagen)			0,0025	
HCH				0,0025 (α-HCH)	2
				0,001 (β-HCH)	
				0,05 (γ-HCH)	
DDT	200 (Park- und Freizeitanlagen) 0,1 (Boden-Grundwasser)			0,0025 (DDT+DDD+DDE)	4 (DDT+DDD+DDE)
Aldrin, Dieldrin, Endrin	10 (Aldrin, Park- und Freizeitanlagen)			0,001 (Endrin)	4 (Aldrin+ Dieldrin+ Endrin)
				0,0005 (Dieldrin)	
Heptachlor					

Erklärung der Abkürzungen in Tabelle 5 – Grenzwerte

### **Deutschland 1999**

- PW (Prüfwert): Bei Überschreitung ist von einer schädlichen Veränderung des Bodens auszugehen.
- MW (Maßnahmenwert): wie PW, es besteht verstärkter Handlungsbedarf.
- VW (Vorsorgewert): Bei Überschreitung sollen Vorkehrungen getroffen werden, um weitere Schadstoffeinträge zu verhindern.

### **Niederlande 1994**

- SW (Referenzwerte): Werte von nicht kontaminierten Böden.
- IW (Interventionswerte): Bei Überschreitung sind Sanierungsmaßnahmen erforderlich.

## **2.6 Statistische Methoden**

Alle Stichproben (Nutzungsarten, Baumarten, Bodenbereiche etc.) weisen keine Normalverteilung, sondern eine linksschiefe Verteilung auf. Das Maximum der Häufigkeitsverteilungskurve liegt meist deutlich unter dem arithmetischen Mittelwert. So liegt z. B. der Mittelwert in der Humusaufgabe (Oh-Lage) für PAK16 bei 4,68 mg/kg TS, der Median jedoch nur bei 3,107 mg/kg TS.

In vielen Proben lagen die jeweiligen Konzentrationen unter der unteren Bestimmungsgrenze. Für die Berechnung der statistischen Kenngrößen wurde der Wert der halben Bestimmungsgrenze eingesetzt.

Auf die Bestimmung des Mittelwertes, der Standardabweichung und der Varianz als Maßzahlen für die Häufigkeitsverteilung wurde verzichtet, da sie nur für normal verteilte Stichproben zulässig ist.

Es wurden ausgewählte Perzentile der Verteilungskurve (Minimum, 10., 25., 50. (Median), 75., 90., Maximum) berechnet (s. Glossar).

### 3 Ergebnisse

#### 3.1 Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)

In den Jahren 1994 – 1998 wurden die 6 PAK nach der TrinkwV gemessen, ab 1999 die 16 PAK nach der EPA-Liste (EPA = Environmental Protection Agency, USA). Es wurde deshalb geprüft, ob zwischen den gemessenen 16 PAK und 6 PAK ein Zusammenhang besteht. Hierzu wurde berechnet, wie hoch der relative Anteil der 6 PAK an den 16 PAK der ab 1999 beprobten BDF-F ist. Es ergeben sich für die verschiedenen Tiefenstufen die folgenden relativen Anteile (Tab. 6):

Tab. 6: Relativer Anteil (Mittelwert und Standardabweichung [%]) von PAK6 an PAK16.

Tiefenstufe	Relativer Anteil [%]	Standardabweichung [%]
L/Of	61	6
Oh	67	3
0 – 5 cm	66	12
5 – 10 cm	64	13
10 – 30 cm	45	14
30 – 50 cm	40	14

Da sich die Grenzwerte der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (1999) auf die Summe der 16 PAK nach der EPA-Liste (EPA = Environmental Protection Agency, USA) beziehen, wurden für die Jahre 1994 – 1998 die PAK6-Werte (s. Abb. 9) auf PAK16 (s. Abb. 11) mit diesen Faktoren skaliert.

Eine Überschreitung des Vorsorgewertes (10 mg/kg TS) der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) für Boden mit > 8 % Humus wurde auf zwei mit Fichten bestockten BDF-F im Hils und einer buchenbestandenen BDF-F im Hochsolling in der Oh-Lage festgestellt (HIKA, HIMJ und SLB1).

Der höchste gemessene PAK16-Gehalt wurde mit 12 860 µg/kg TS im Auflagehumus (Oh-Lage) der BDF-F SLB1 gefunden (s. Abb. 10). Auf den BDF-F HIKA und HIMJ, deren PAK16-Konzentrationen aus den PAK6-Gehalten be-

rechnet wurden, lagen die Konzentrationen in der Oh-Lage mit Werten von 16 330 bzw. 13 930 µg/kg TS sogar noch über diesem Wert. Hohe Gehalte (berechnet) zwischen 700 und 900 µg/kg TS konnten auch in der L/Of-Lage der BDF-F HIKA, HIMJ und einer BDF-F im Harz (LBNH) und mit Werten zwischen 850 und 950 µg/kg TS in der Oh-Lage der vier Fichten-BDF-F SPFI, HIMA, LBNH und LBKA gefunden werden.

Die höchsten PAK16-Gehalte im Oberboden (0 – 10 cm) wurden mit 1 993 µg/kg TS ebenfalls im Solling (SLB1 0 – 5 cm), an drei mit Eichen bestockten BDF-F der norddeutschen Tiefebene (2 707 µg/kg TS BDF-F Drömling, einem Moorstandort (DREI 5 – 10 cm), 1 202 µg/kg TS BDF-F Ihlow (IHEI 0 – 5 cm) und 1 479 µg/kg TS BDF-F Herrenholz (HEE1 0 – 5 cm) und an der BDF-F LBNH (1 312 µg/kg TS) ermittelt. Alle Gehalte im Oberboden unterschreiten den Vorsorgewert für PAK16 für Böden mit Humusgehalten < 8 % von 3 000 µg/kg TS.

Im Unterboden konnte nur am Moorstandort Drömling ein Wert von 454 µg/kg TS in 10 – 30 cm Tiefe und von 1 204 µg/kg TS in 30 – 50 cm Tiefe gefunden werden. Im Unterboden aller anderen BDF-F liegen die Konzentrationen unterhalb oder im Bereich der unteren Bestimmungsgrenze.

Grundsätzlich kann festgestellt werden, dass die Böden der mit Nadelbaumarten bestockten BDF-F wesentlich höhere Konzentrationen aufweisen, als die Böden der BDF-F mit Laubbaumbeständen. Die Konzentrationen im Boden unter Fichtenbeständen sind in der Regel höher als jene unter Kiefernbeständen.

Im Auflagehumus sind in der Regel wesentlich höhere Konzentrationen als im Mineralboden zu finden, wobei die Konzentrationen in der Oh-Lage im Mittel ca. viermal so hoch wie die in der L/Of-Lage sind. Im Mineralboden sind im Oberboden in 0 – 5 cm und 5 – 10 cm Tiefe noch nachweisbare Konzentrationen mit abnehmender Tendenz nach unten zu finden. Im Unterboden (10 – 50 cm) liegen die Konzentrationen im Bereich der Bestimmungsgrenze. Eine Ausnahme bildet lediglich der Moorstandort Drömling, wo noch bis in 30 – 50 cm Tiefe PAK nachweisbar sind.

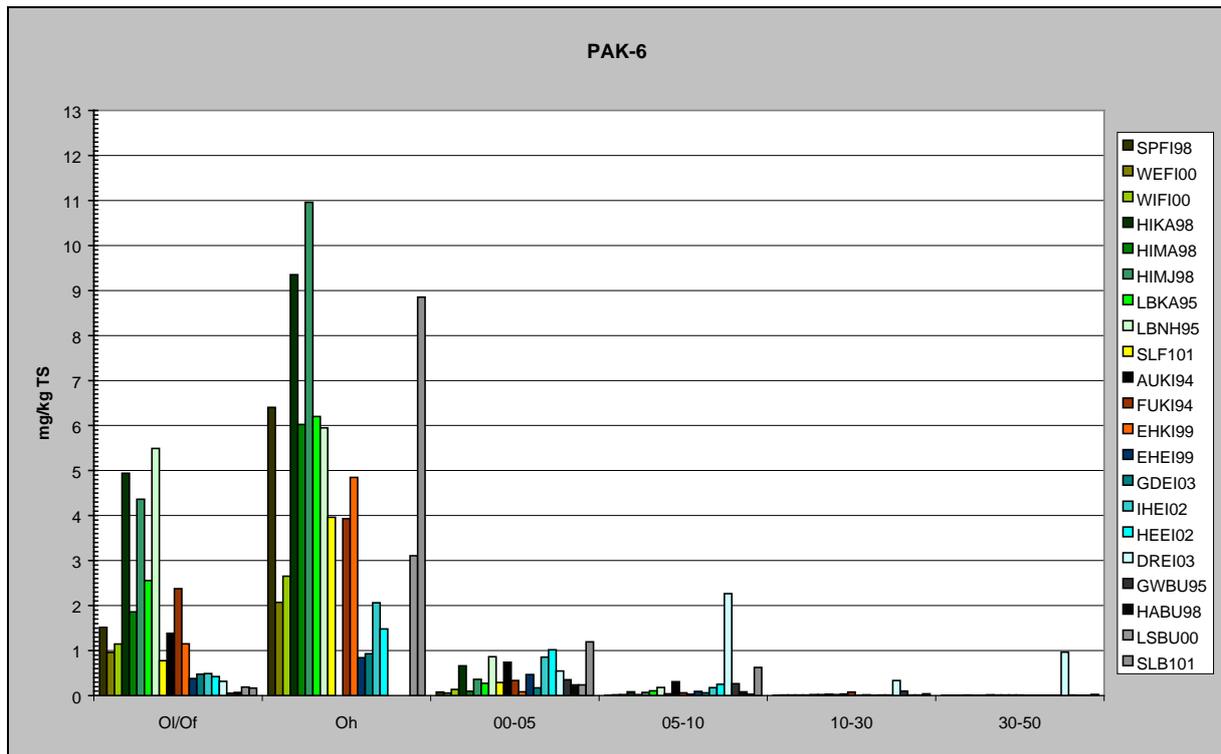


Abb. 9: PAK6-Konzentrationen in Böden der BDF in mg/kg TS.

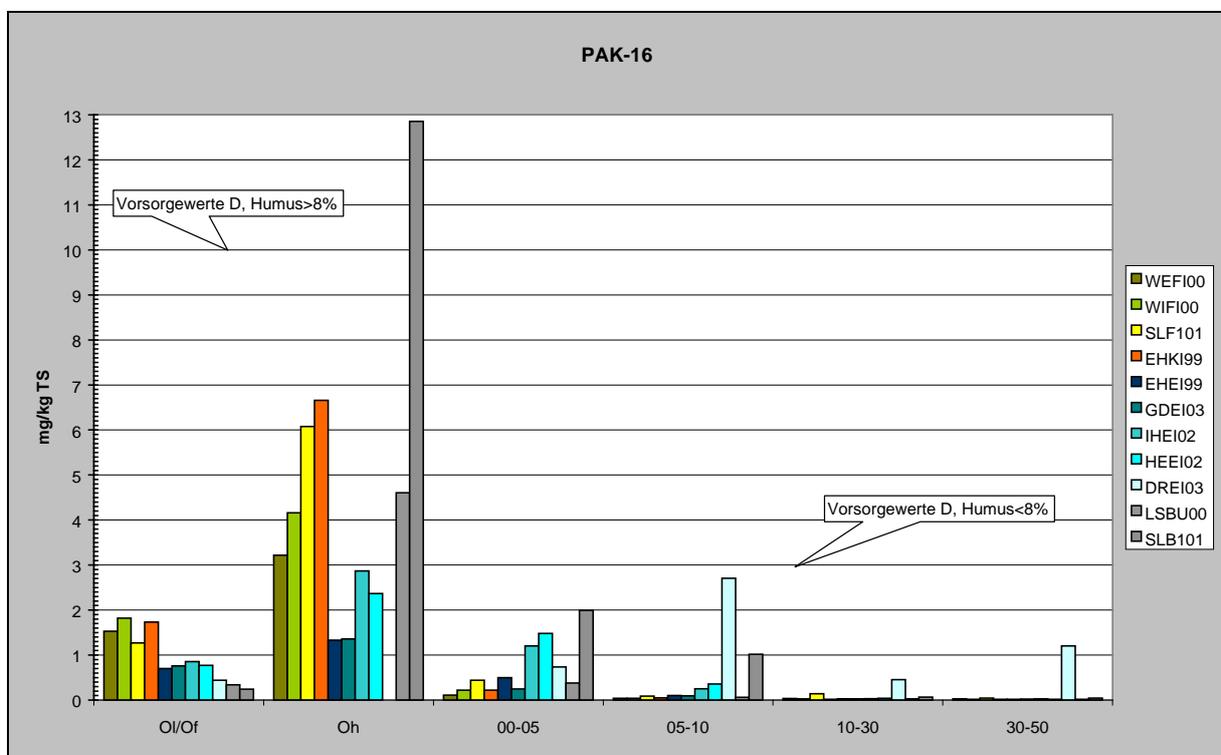


Abb. 10: PAK16-Konzentrationen in Böden der BDF in mg/kg TS.

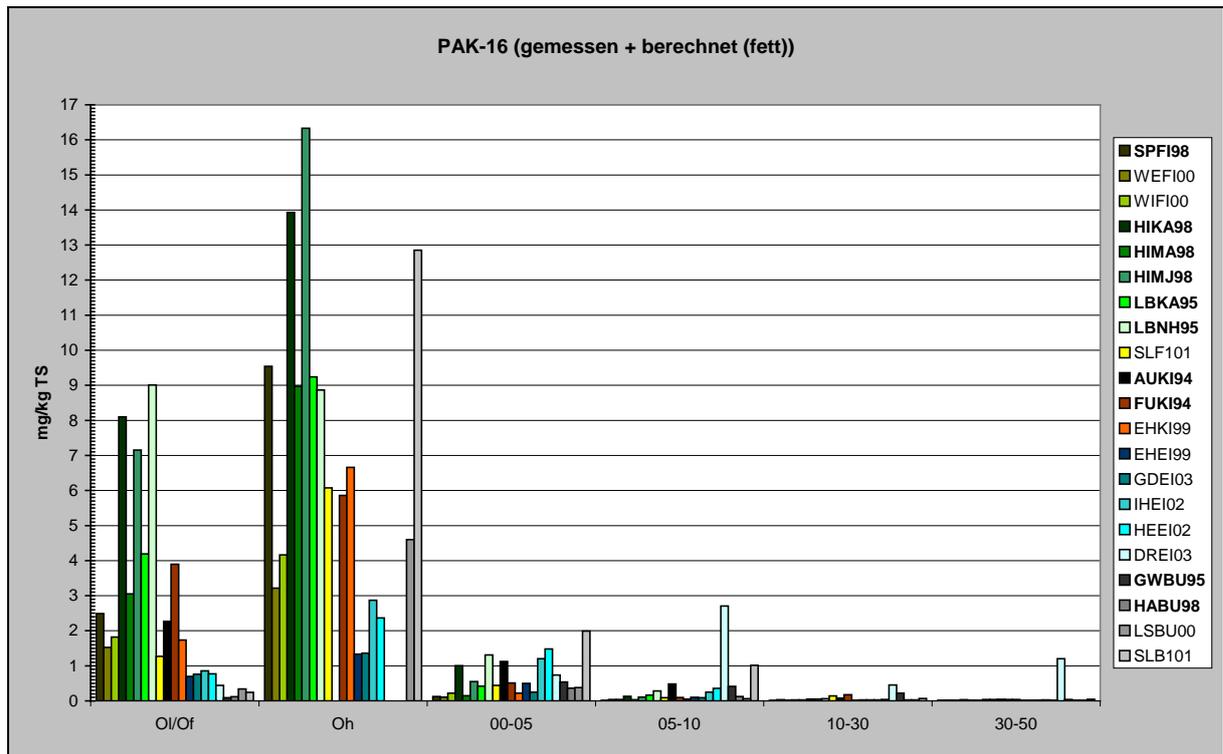


Abb. 11: PAK16-Konzentrationen in Böden der BDF in mg/kg TS  
(Werte der Inventuren 1994 – 1998 wurden aus PAK6 berechnet).

Von den gemessenen PAK nimmt Benzo(a)pyren aufgrund seiner hohen Persistenz (kaum biologisch abbaubar, HWZ > 800 Tage) und Kanzerogenität eine Sonderstellung ein. Aus diesem Grund gibt es für diesen Stoff eigene Grenzwerte in der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (1999).

An den untersuchten Standorten konnte in der Humusauflage (Oh) einer BDF-F im Hils (HIMJ) mit 1 468 µg/kg TS eine Überschreitung des Vorsorgewertes für Böden mit Humusgehalten > 8 % von 1 000 µg/kg TS gefunden werden (s. Abb. 12). Auf der BDF-F Fuhrberg (FUKI) wurde mit 856 µg/kg TS in der Oh-Lage der Vorsorgewert nur wenig unterschritten.

Relativ hohe Werte wurden im Oberboden der BDF-F DREI und AUKI mit 349 µg/kg TS (DREI) und 236 µg/kg TS (AUKI) gefunden.

Im Unterboden (10 – 50 cm) lagen die Werte im Bereich oder unterhalb der Bestimmungsgrenze, nur auf der BDF-F Drömling konnten geringe Konzentrationen nachgewiesen werden.

Der Anteil von Benzo(a)pyren an der Gesamtsumme der PAK ist mit Werten um 4,5 % (Standardabweichung 1,2) in der Humusauflage recht einheitlich. Aus diesem Grund wird insbesondere in älteren Arbeiten häufig die PAK16-Konzentration aus der leichter zu bestimmenden Konzentration von Benzo(a)pyren berechnet (WILCKE 2000, TEEBAY et al. 1993).

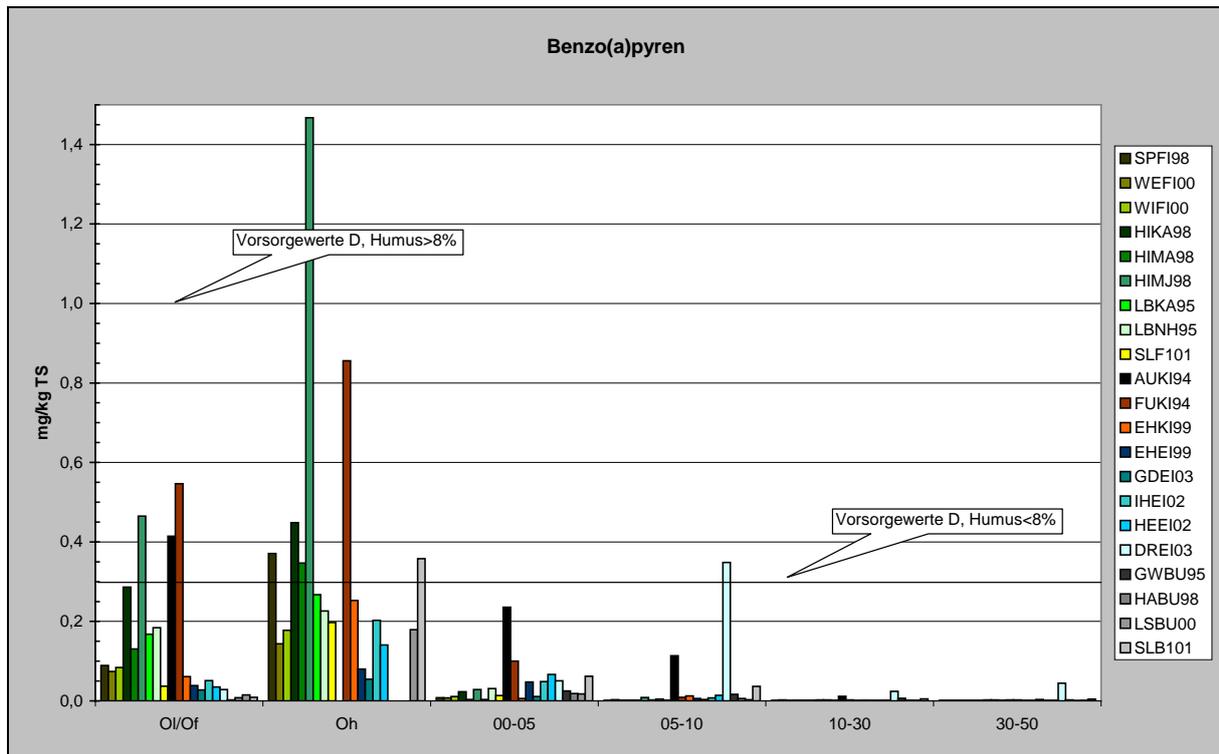


Abb. 12: Benzo(a)pyren-Konzentrationen in Böden der BDF in mg/kg TS.

Die Profile der 16 Einzelsubstanzen sind beispielhaft in Abbildung 13 für die Oh-Lage aller untersuchten Flächen zu sehen. Ein Vergleich mit Literaturwerten (EUSTERBROCK 1999, WILCKE et al. 1996, WILCKE & ZECH 1997, WILCKE et al. 1997) zeigt eine für Waldböden typische Verteilung. Diese Verteilung ist zwischen der Humusaufgabe und dem Mineralboden unterschiedlich, was an den vielfältigen

Umsetzungsprozessen, wie z. B. Verflüchtigung niedermolekularer Substanzen oder unterschiedlichem biotischem und abiotischem Abbau und Verlagerung liegt. Dies zeigt sich z. B. an den tiefenstufenabhängigen relativen Anteilen der PAK6 an der PAK16-Summe (s. Tab. 6).

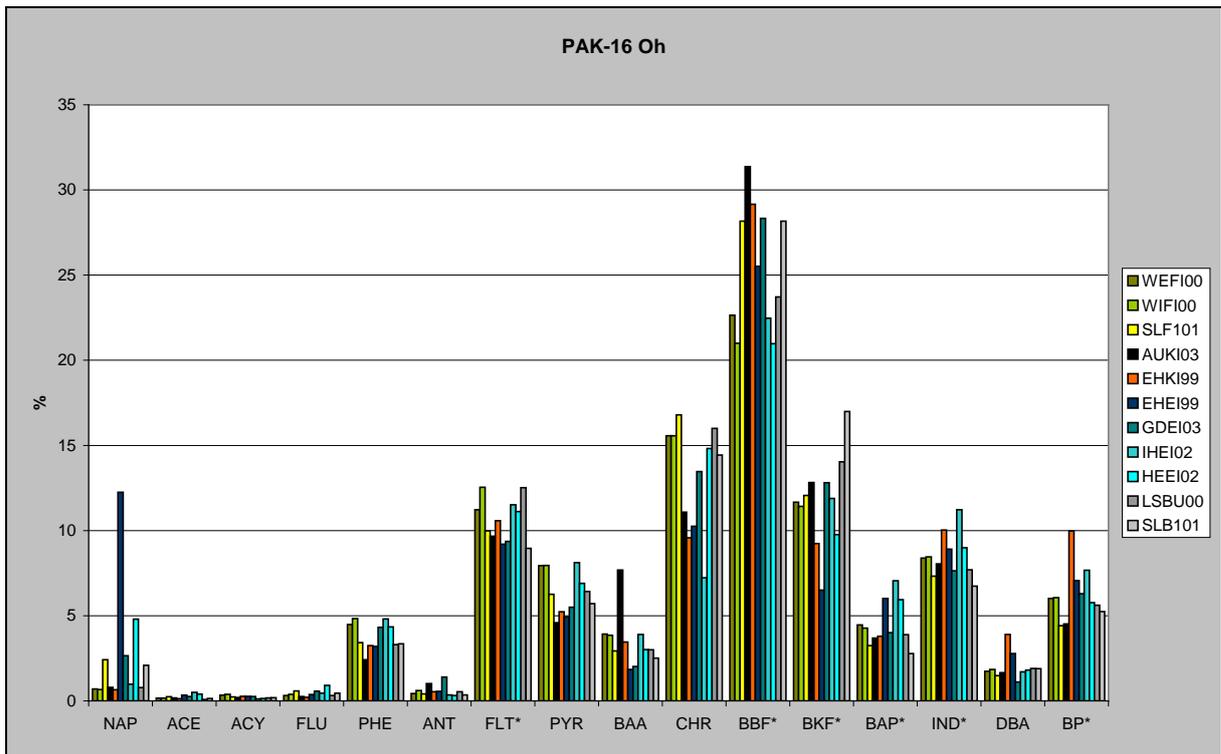


Abb. 13: Konzentration der Einzelsubstanzen (PAK) in Böden der BDF in mg/kg TS (Abkürzungen s. Tab. 2, \* Bestandteil der PAK6 nach TRINKWV).

Die zeitliche Veränderung der PAK-Konzentrationen kann für drei BDF-F angegeben werden. Auf den BDF-F Augustendorf (AUKI 1994 und 2003), Fuhrberg (FUKI 1994 und 2004) und Göttinger Wald (GWBU 1995 und 2004) wurde im Abstand von 9 bzw. 10 Jahren eine Inventur der organischen Schadstoffe durchgeführt. 1994 und 1995 wurden nur die 6 PAK nach TrinkwV untersucht, 2003 und 2004 jedoch die 16 PAK der EPA-Liste. Die Daten wurden deshalb nur auf der Basis der Summe der 6 PAK nach TrinkwV verglichen.

Für die BDF-F AUKI fehlt die Beprobung des Oh-Horizonts 1994. Beim Göttinger Wald fehlt die Oh-Lage, da der Bodentyp hier eine Terra fusca-Rendzina mit einem (F-)Mull als Auflagehumusform ist.

Die Konzentrationen auf den BDF-F AUKI und FUKI haben in der L/Of-Lage zwischen den beiden Inventuren auf ein Drittel (AUKI), bzw. auf weniger als ein Viertel (FUKI) abgenommen (s. Abb. 14 und 15). In der Oh-Lage der BDF-F FUKI hat die Konzentration auf ungefähr die Hälfte abgenommen. Während die Konzentrationen auf der BDF-F AUKI im

Oberboden (0 – 10 cm) auf die Hälfte bis auf ein Drittel abgenommen haben, ist es auf der BDF-F FUKI offensichtlich zu einer Tiefenverlagerung dieser Verbindungen gekommen, da die Konzentrationen in den Tiefenstufen 0 – 5 und 5 – 10 cm 2004 fast dreimal so hoch wie 1994 waren. Im Unterboden lagen die Konzentrationen zu beiden Inventurterminen auf beiden BDF-F im Bereich bzw. unter der unteren Bestimmungsgrenze.

Im Boden der buchendominierten BDF-F Göttinger Wald wurden nur geringe PAK-Konzentrationen gemessen. Da sich die Konzentrationen hier in beiden Jahren im Bereich der unteren Bestimmungsgrenzen bewegen, können zwischen beiden Probenahmetermen keine Unterschiede festgestellt werden.

Für Benzo(a)pyren ist die zeitliche Abnahme noch markanter. Hier nahmen die Konzentrationen in der L/Of-Lage der BDF-F AUKI und FUKI in der Oh-Lage der BDF-F FUKI und im Oberboden der BDF-F AUKI auf ca. 1/10 der Konzentrationen 1994 ab (s. Abb. 16). Auf der BDF-F FUKI blieb die Konzentration im Oberboden gleich, so dass auch hier von einer

Tiefenverlagerung dieses Stoffes ausgegangen werden muss. Im Unterboden lagen die Konzentrationen von Benzo(a)pyren im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze.

Im Boden der BDF-F Göttinger Wald lagen die Konzentrationen unter oder unwesentlich über der unteren Bestimmungsgrenze.

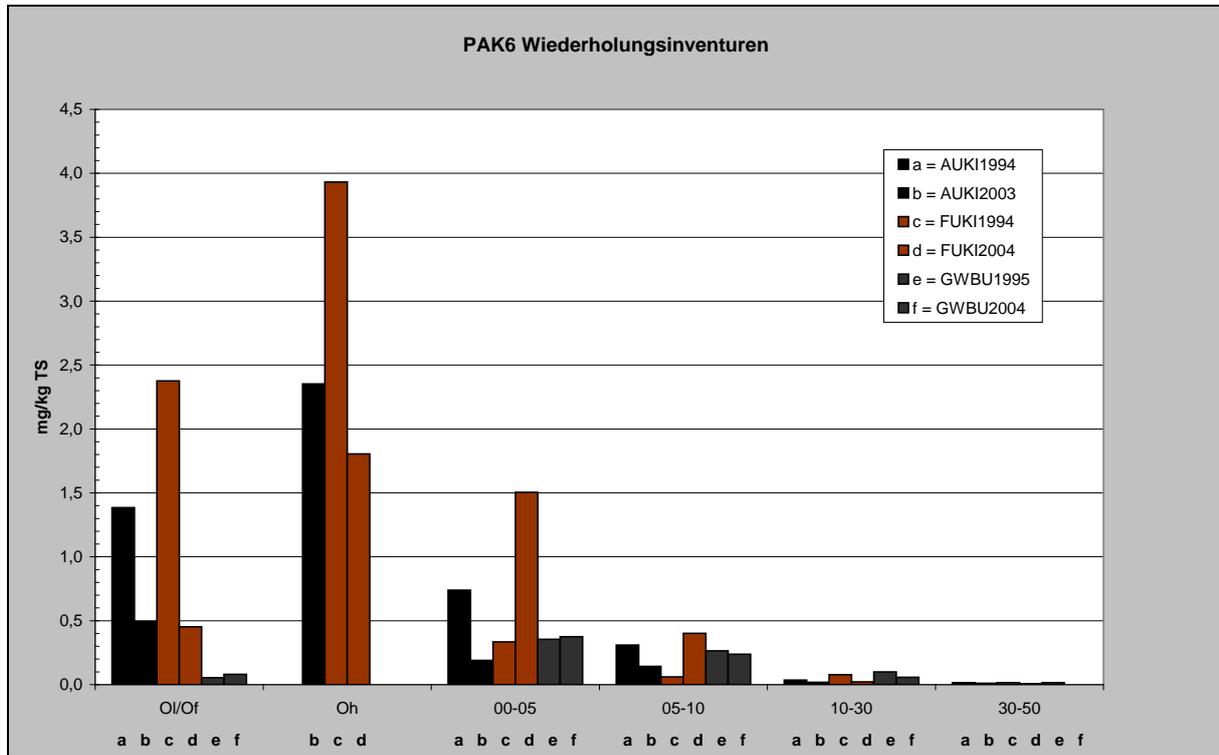


Abb. 14: PAK6-Konzentrationen in mg/kg TS im Boden von BDF-F mit Wiederholungsinventuren.

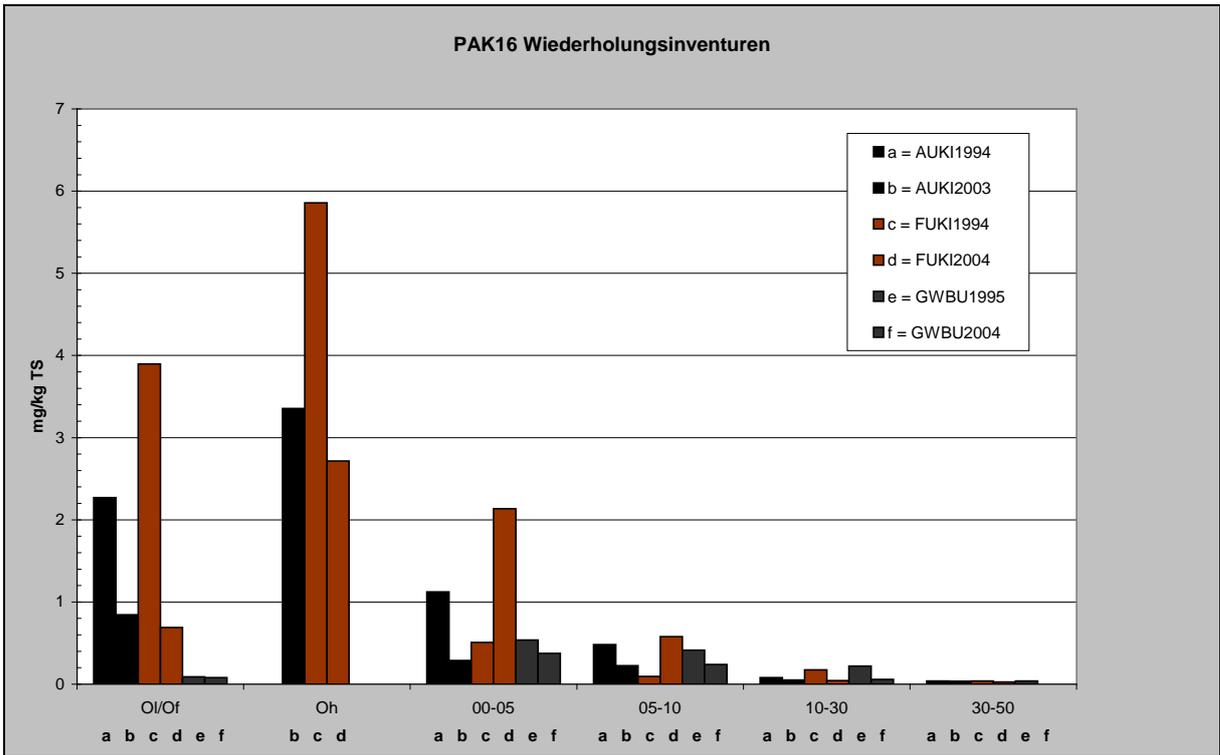


Abb. 15: PAK16-Konzentrationen in mg/kg TS im Boden von BDF-F mit Wiederholungsinventuren.

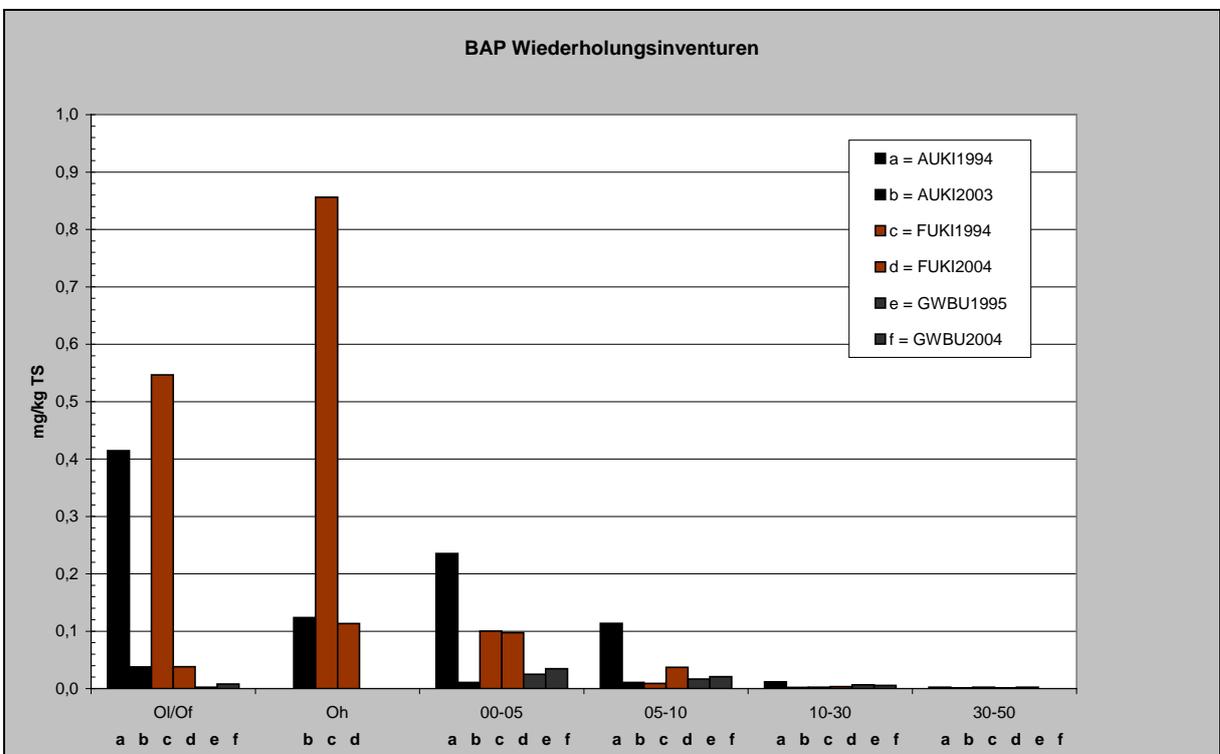


Abb. 16: Benzo(a)pyren-Konzentration in mg/kg TS im Boden von BDF-F mit Wiederholungsinventuren.

### 3.2 Polychlorierte Biphenyle (PCB)

Auf den BDF-F SPFI, HIKA, LBKA, SLF1 und FUKI wurden hohe PCB6-Konzentrationen zwischen 40 und 70 µg/kg TS in der L/Of-Lage des Humus gefunden (s. Abb. 17). BDF-F mit Laubbaumbeständen sind mit Maximalwerten von 24 µg/kg TS auf der BDF-F HEEI und 23 µg/kg TS LSBU wesentlich geringer belastet. Auffällig ist, dass die einzigen zwei Kammstandorte unter den am höchsten belasteten Flächen sind.

In der Oh-Lage werden im Vergleich zur L/Of-Lage höhere, gleich hohe oder niedrigere PCB6-Werte gefunden. Hohe PCB-Werte wurden auf der BDF-F SPFI mit 89 µg/kg TS und zwischen 40 und 50 µg/kg TS auf jeweils einer BDF-F im Hils (HIMJ) und im Harz (LBNH) gemessen. Die Tendenz der L/Of-Lage zu höherer Belastung von BDF-F mit Nadelbaum- im Vergleich zu Laubbaumbeständen setzt sich in der Oh-Lage nicht fort. Hier werden ähnliche Konzentrationen gefunden.

In der gesamten Humusaufgabe wird der Vorsorgewert für humose Böden (Humus > 8 %) von 100 µg/kg TS nicht überschritten.

Im Mineralboden wurde nur in 0 – 5 cm Tiefe in den Böden der BDF-F IHEI und SLB1, sowie in 5 – 10 cm Tiefe der BDF-F WEFI und LSBU Werte zwischen 10 und 20 µg/kg TS gefunden. Im Oberboden (0 – 5 cm) aller anderen sowie im Unterboden (10 – 50 cm) aller BDF-F lagen die Werte im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze von 6 µg/kg TS.

Auffällig ist weiterhin, dass es bezüglich der PCB weitgehend unbelastete Standorte gibt. Auf diesen BDF-F bewegten sich die PCB-Konzentrationen im gesamten Profil im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. Es handelt sich hierbei um die BDF-F Ehrhorn, Kiefer und Eiche (EHKI, EHEI), GWBU, HABU und DREI, die vorwiegend mit Laubbäumen bestockt sind. Es fällt außerdem auf, dass die zwei BDF-F mit den höchsten Boden-pH-Werten (GWBU, HABU) unter den unbelasteten Flächen sind.

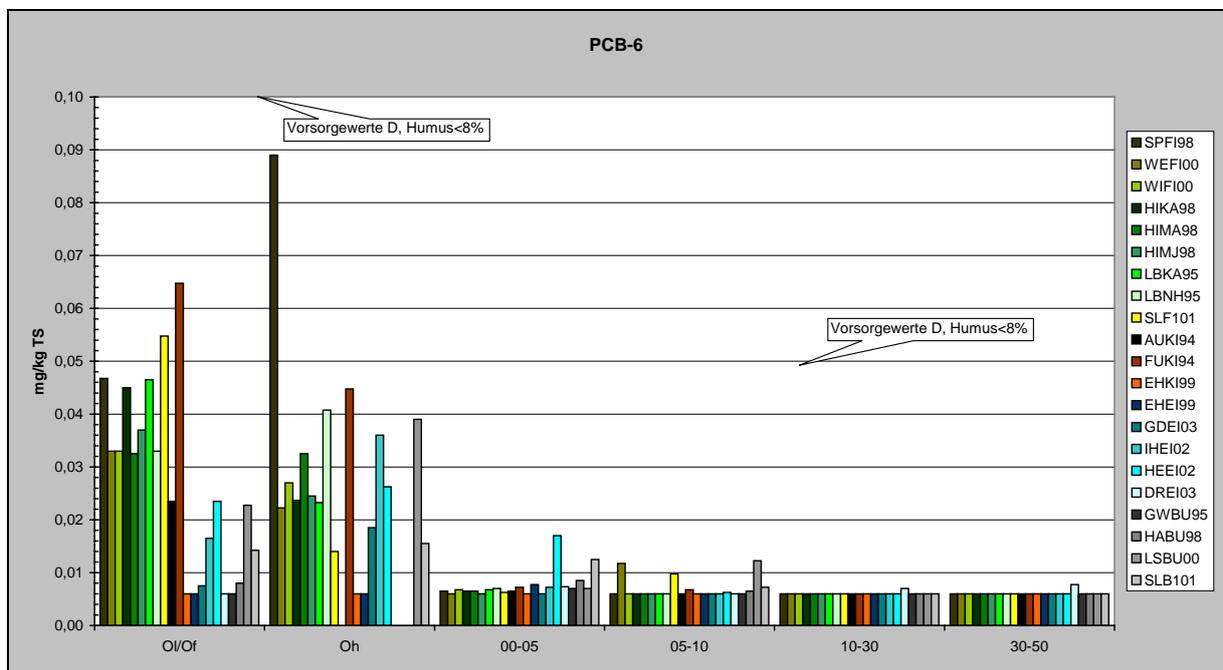


Abb. 17: PCB6-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Die Verteilung der 6 Einzelsubstanzen sind beispielhaft in Abbildung 18 für die L/Of-Lage des Humus zu sehen. Ein Vergleich mit Literaturwerten der PCB-Verteilung in der Luft (LUA NRW 1998) zeigt eine Verschiebung zu den höher chlorierten PCB im Boden. Dies wird auf

eine größere Flüchtigkeit niedriger chlorierter PCB und einer damit höheren Rückverdampfung dieser Spezies in die Atmosphäre zurückgeführt (HARRAD et al. 1994).

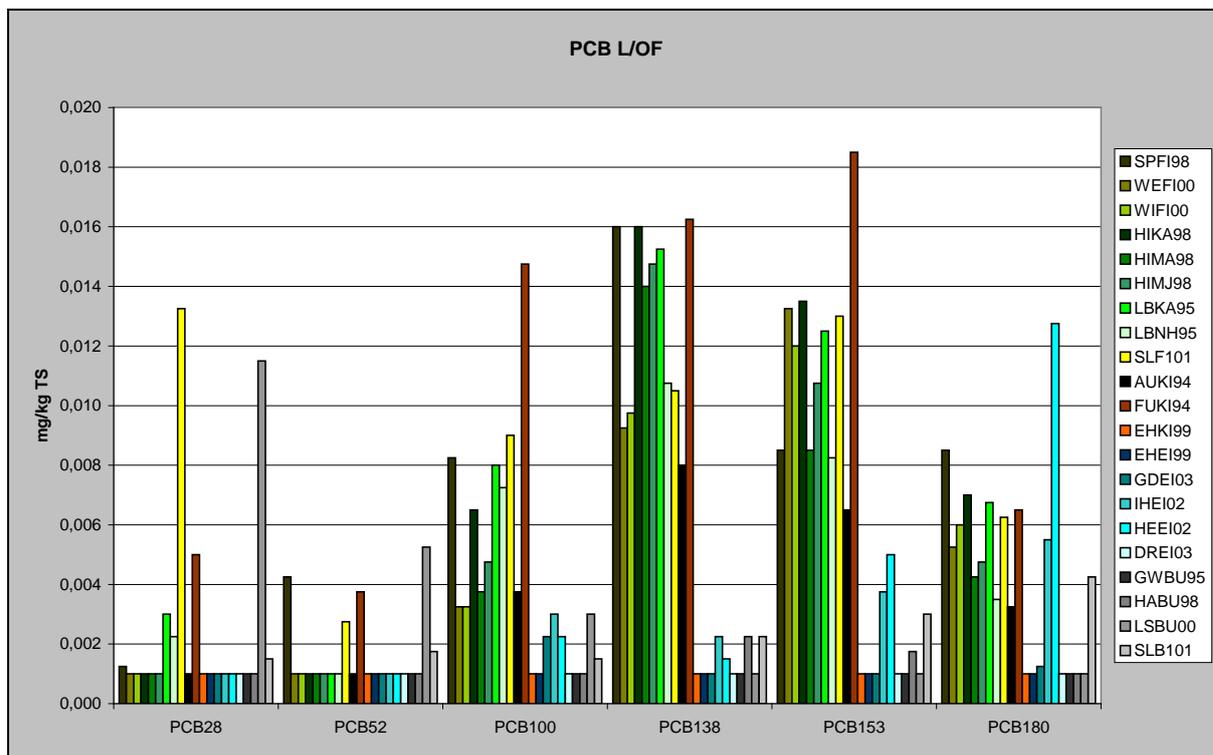


Abb. 18: Konzentrationen der PCB-Spezies in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Die zeitliche Veränderung der PCB6-Konzentration auf der BDF-F AUKI ist höher als bei den PAK (s. Abb. 19). Konnte bei den PAK eine Abnahme auf ungefähr ein Drittel beobachtet werden, so liegt die Konzentration in der L/Of-Lage dieser BDF-F nur noch bei einem Viertel der Konzentration von 1994. Die Abnahme der PCB6-Konzentration kann auf eine Verringerung der Einträge aus der Atmosphäre zurückgeführt werden. Durch die Zufuhr geringer belasteter Streu wurden die PCB6-Gehalte

in der organischen Auflage verdünnt. Der Abbau der PCB in der organischen Auflage spielt aufgrund der Halbwertszeiten zwischen 10 und 100 Jahren vermutlich eine geringere Rolle. Für die Oh-Lage, deren Beprobung 1994 fehlt, kann keine Aussage getroffen werden. Im Mineralboden dieser BDF-F liegen die Konzentrationen sowohl 1994 als auch 2003 in allen Tiefenstufen im Bereich oder unterhalb der Bestimmungsgrenze.

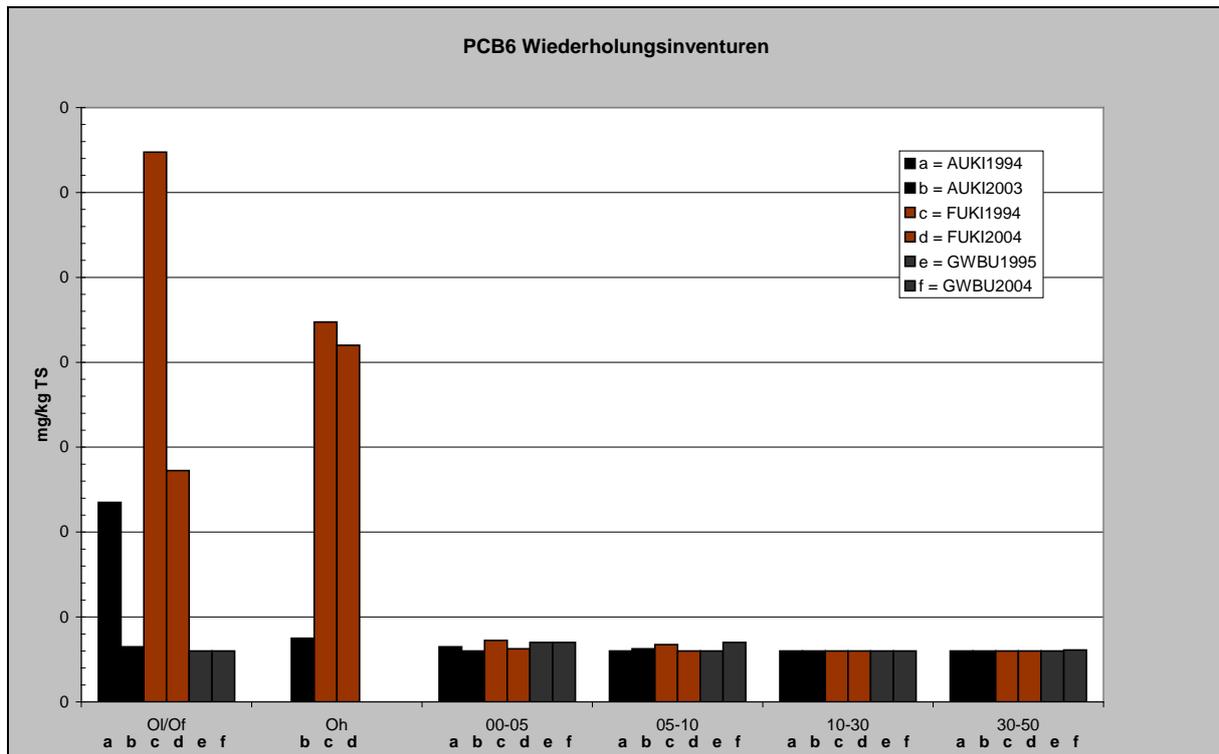


Abb. 19: PCB6-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

Im Boden der BDF-F FUKI (s. Abb. 19) hat die PCB6-Konzentration im untersuchten Zeitraum in der L/Of-Lage auf die Hälfte abgenommen und ist in der Oh-Lage gleich geblieben. Die Abnahme fällt damit bei den PCB wesentlich geringer als bei den PAK aus. Auch hier ist die Abnahme vermutlich auf eine Verdünnung aufgrund geringerer atmosphärischer PCB6-Einträge zurückzuführen. Im Mineralboden liegen alle Konzentrationen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. Im Boden der BDF-F GWBU liegen die PCB6-Konzentrationen an beiden Terminen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die BDF-F Göttinger Wald weist damit im Vergleich zu den anderen BDF-F mit Laubbaumbestand die niedrigsten PCB6-Konzentrationen auf. Die hohe Basensättigung, der hohe pH-Wert und die hohe mikrobielle Aktivität führen vermutlich zu einem relativ schnellen Abbau eingetragener PCB und PAK.

### 3.3 Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW)

#### 3.3.1 Hexachlorbenzol (HCB)

In der Humusaufgabe der untersuchten Standorte wurden sehr unterschiedliche Konzentrationen von HCB gefunden (s. Abb. 20). Die Konzentrationen reichen in der L/Of-Lage von Werten unter der Bestimmungsgrenze (0,5 – 1 µg/kg TS) bis zu Maximalwerten von 61,5 µg/kg TS. In der Oh-Lage wurden im Vergleich hierzu niedrigere Konzentrationen mit Werten zwischen unter der Bestimmungsgrenze und 11,8 µg/kg TS gefunden. Der Maximalwert wurde in beiden Humuslagen im Boden der BDF-F LBNH im Harz gemessen.

Eine Bewertung der HCB-Gehalte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBODSCHV 1999) wie für PAK und PCB ist nicht möglich, da für CKW keine Grenzwerte festgelegt sind. Vom Prüfwert für Park- und Freizeitanlagen von 20 mg/kg TS (BBODSCHV 1999), bei dessen Überschreitung von einer schädlichen Veränderung des Bodens ausgegangen werden muss und ein Handlungsbedarf besteht, sind die HCB-Konzentrationen im Boden aller BDF-F weit entfernt. Die HCB-Konzentrationen in der organischen Auflage wurden mit dem Sediment des Rheins und der mittleren Konzentration in deutschen Klärschlämmen, die HCB-Konzentrationen im Mineralboden mit den in der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) angegebenen Werten verglichen.

In der L/Of-Lage wurden an vier Standorten höhere Werte als im Sediment des Rheins (LUA NRW 1997) und der mittleren Konzentration in deutschen Klärschlämmen (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1998) von 20 µg/kg TS gefunden. Es sind

dies zwei Fichtenstandorte im Harz (LBNH 61,5 µg/kg TS, LBKA 30,8 µg/kg TS), ein Fichtenjungbestand im Hils (HIMJ 46,5 µg/kg TS) und ein Buchenstandort (LSBU 25,4 µg/kg TS). Im Gegensatz zur L/Of-Lage ist die Oh-Lage an der BDF-F Lange Bramke, Nordhang (LBNH) nur gering belastet. Gering belastet mit Werten zwischen 10 und 20 µg/kg TS sind auch die BDF-F Spanbeck (SPFI, L/Of) Hilskamm (HIKA, L/Of), Ehrhorn, Kiefer (EHKI, L/Of) und Lüss (LSBU Oh). Auf höher belasteten Standorten sind die Gehalte in der L/Of-Lage größer als in der Oh-Lage und auf mit Fichten bestockten BDF-F im Mittel höher als auf kiefern-, eichen- und buchenbestockten BDF-F, deren Belastung in der gleichen Größenordnung liegt. Einzige Ausnahme bildet die Laubbaumfläche Lüss, die mit 25,4 µg/kg TS (L/Of) und 10,5 µg/kg TS (Oh) in beiden Humuslagen und mit 9,5 µg/kg TS in 0 – 5 cm Tiefe vergleichsweise hoch belastet ist.

Im Mineralboden der untersuchten Waldstandorte lagen mit Ausnahme der BDF-F LSBU (9,5 µg/kg TS in 0 – 5 cm Tiefe) alle Konzentrationen unter dem Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) von 2,5 µg/kg TS. Der auf der BDF-F LSBU gefundene Wert liegt jedoch noch im Bereich der in Deutschland gefundenen Hintergrundwerte von 1 – 10 µg/kg TS (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999, REISCHL et al. 1990). Somit ist der Mineralboden aller untersuchten Standorte als mit HCB gering belastet anzusehen.

Die Konzentrationen der BDF-F WIFI, SLF1, EHEI, GDEI und DREI liegen im ganzen Profil unterhalb des Referenzwertes der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) und sind damit als unbelastet anzusehen.

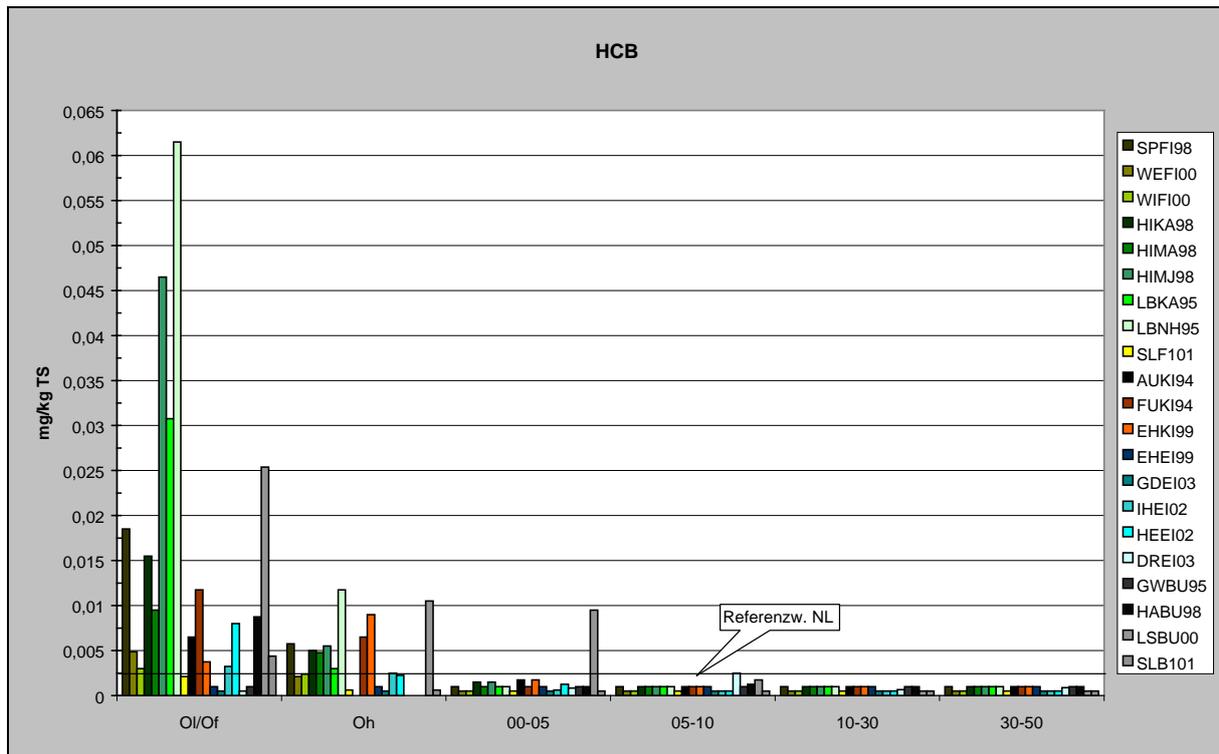


Abb. 20: HCB-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Die zeitliche Abnahme der HCB-Konzentration auf den BDF-F Augustendorf und Fuhrberg fällt geringer als bei den PAK und PCB aus, bei denen zwischen 1994 und 2003/2004 Abnahmen auf bis zu einem Drittel (PAK) bzw. sogar auf bis zu einem Viertel (PCB) der Konzentrationen von 1994 zu verzeichnen waren (s. Abb. 21). Im Vergleich dazu nahm die HCB-Konzentration nur um 10 – 30 % ab. Die Halbwertszeit dieses Stoffes kann für die BDF-F AUKI auf 15 Jahre geschätzt werden, für die

BDF-F FUKI sogar auf über 30 Jahre, was eine eher konservative Schätzung ist, da Abbauraten mit sinkender Schadstoffkonzentration eher ab- als zunehmen.

Im Mineralboden konnten nur 1994 in 0 – 5 cm der BDF-F AUKI geringe HCB-Konzentrationen gefunden werden. Ansonsten lagen alle Gehalte im Mineralboden unter der unteren Bestimmungsgrenze.

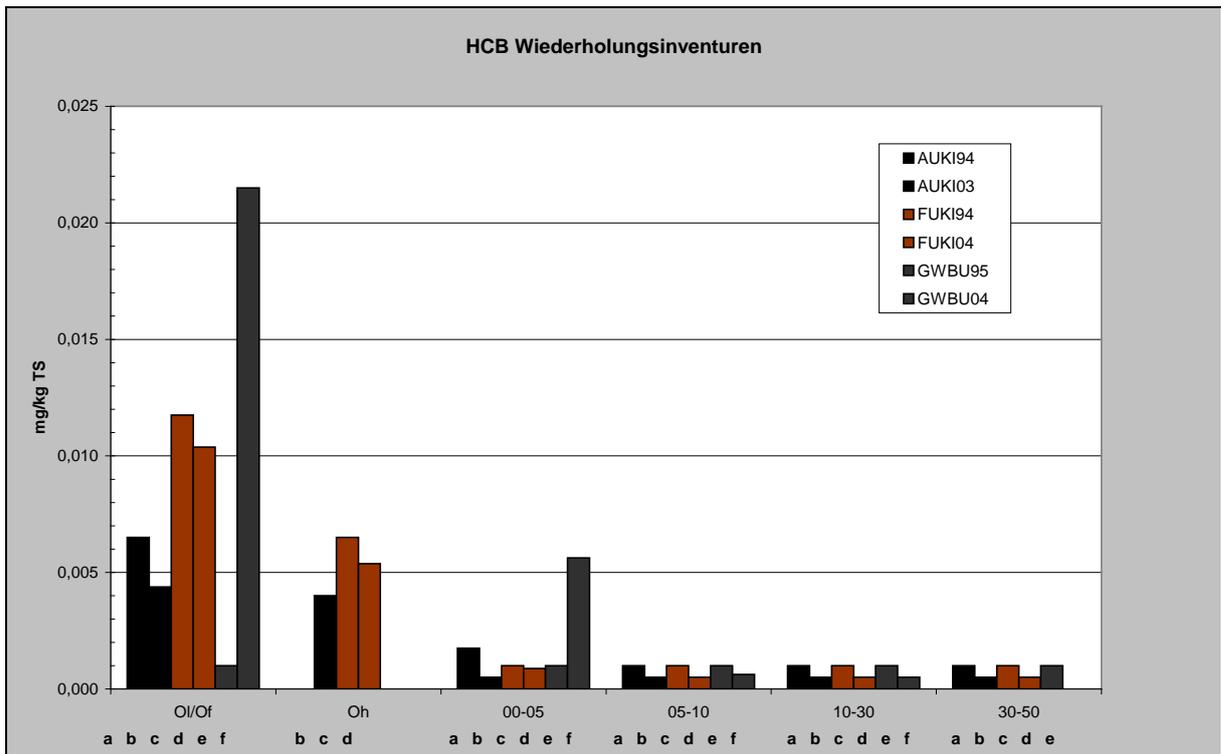


Abb. 21: HCB-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

Im Boden der BDF-F GWBU lagen die Konzentrationen 1995 im gesamten Profil unter der unteren Bestimmungsgrenze. 2004 konnten in der Humusaufgabe und in 0 – 5 cm Tiefe wesentlich höhere Konzentrationen als 1995 gefunden werden (s. Abb. 21). Betrachtet man die vier Einzelwerte der Humusaufgabe, so wurden an allen vier Probenahmepunkten Konzentrationen zwischen 4 und 40 µg/kg TS gefunden. HCB entsteht u. a. beim Abbau von Lindan.

### 3.3.2 Hexachlorhexan (α-HCH, β-HCH, γ-HCH (Lindan))

Nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) beträgt der Prüfwert für Park- und Freizeitanlagen für die Summe von α-, β- und γ-HCH 25 000 µg/kg TS. Für diese drei hauptsächlich in der Umwelt vorkommenden HCH-Isomere gibt es weiterhin Referenzwerte nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) für Böden. Diese sind für α-HCH 2,5 µg/kg TS, für β-HCH 1 µg/kg TS und für γ-HCH (Lindan) 50 µg/kg TS. Es wird hierbei

nicht nach dem Humusgehalt des Bodens unterschieden, d. h. diese Referenzwerte gelten für jede Tiefenstufe des Bodens. Die Halbwertszeiten sind für α-HCH 1 Jahr, β-HCH > 8 – 10 Jahre, γ-HCH 3 – 30 Jahre.

Vor diesem Hintergrund sind die im Boden der untersuchten BDF-F gefundenen Konzentrationen zu bewerten. Der Prüfwert nach BBodSchV wird an keinem der untersuchten Standorte erreicht. Bei allen drei Isomeren gibt es wie bei HCB erhebliche Konzentrationsunterschiede zwischen den untersuchten BDF-F. Dies ist für Pestizide wie HCH nicht ungewöhnlich, da sie nur auf einzelnen Flächen eingesetzt wurden. Lindan bzw. technisches HCH (Gemisch aus allen drei Isomeren) wurde vor allem bei Katastrophen rindendbewohnender Forstschädlinge eingesetzt.

Beim Lindan liegen die Werte in der Humusaufgabe zwischen Werten unter der unteren Bestimmungsgrenze von 1 µg/kg TS und Maximalwerten von 85 µg/kg TS, beim β-HCH zwischen Werten unter der Bestimmungsgrenze (1 µg/kg TS) und maximal 29 µg/kg TS und beim α-HCH zwischen Werten unter der Bestimmungsgrenze (1 µg/kg TS) und 8 µg/kg TS

(s. Abb. 22 – 24). Werte oberhalb der Referenzwerte nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) wurden für Lindan in der L/Of-Lage von drei der 21 untersuchten Flächen gefunden (EHEI 74,3 µg/kg TS, EHKI 51,8 µg/kg TS, LSBU 85,5 µg/kg TS; s. Abb. 24). Für α-HCH wurde eine Überschreitung dieses Wertes in der L/Of-Lage von 8 (u. a. LSBU mit 8 µg/kg TS) und in der Oh-Lage von 3 (u. a. LSBU mit 5 µg/kg TS, s. Abb. 22) BDF-F gefunden. Aufgrund seiner größeren Persistenz (Halbwertszeit > 8 – 10 Jahre, s. o.) konnten β-HCH-Konzentrationen oberhalb des Referenzwertes in der L/Of-Lage auf 18 und in der Oh-Lage auf 11 der untersuchten BDF-F gefunden werden (s. Abb. 23).

In der L/Of-Lage dominiert Lindan, dessen höchste Konzentrationen bis zum Dreifachen der maximalen Konzentration von β-HCH und bis zum Zehnfachen der maximalen Konzentration von α-HCH betragen. In der Oh-Lage ist die Verteilung der Isomeren je nach BDF-F verschieden (s. Abb. 25 und 26).

Im Mineralboden lagen die Konzentrationen von α-HCH und γ-HCH meist im Bereich oder

unterhalb der unteren Bestimmungsgrenze. Nur auf der BDF-F AUKI konnte 1994 in 0 – 5 cm Tiefe mit 4,3 µg/kg TS ein Lindan-Gehalt deutlich über der Bestimmungsgrenze gefunden werden. β-HCH kann als einziges HCH-Isomer auch in nennenswerten Konzentrationen im Mineralboden mit abnehmender Tendenz nach unten gefunden werden. In 0 – 5 cm Tiefe überschreiten die Konzentrationen von sechs, in 5 – 10 cm und 10 – 30 cm Tiefe noch von vier der untersuchten BDF-F den Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994). Und selbst in 30 – 50 cm Tiefe kann auf zwei BDF-F (SLF1, AUKI 2003) eine geringfügige Überschreitung dieses Wertes gefunden werden. Bis in 30 cm Tiefe überschreiten die BDF-F WEFI und WIFI diesen Wert erheblich. Eine Tiefenverlagerung ist auf die höhere Wasserlöslichkeit von HCH im Vergleich zu allen anderen hier untersuchten organischen Schadstoffen zurückzuführen. Diese Tiefenverlagerung der HCH-Isomere zeigt auch der Vergleich der zwei Inventuren auf der BDF-F AUKI (Abb. 27 – 29).

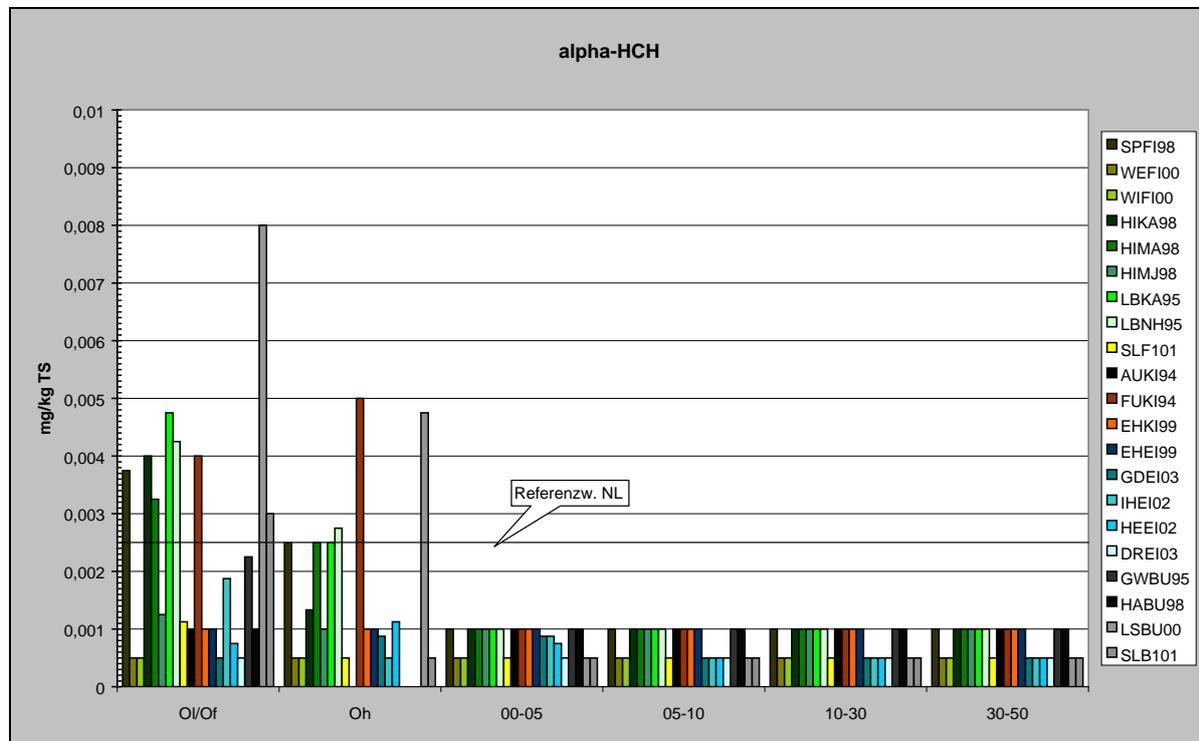


Abb. 22: α-HCH-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

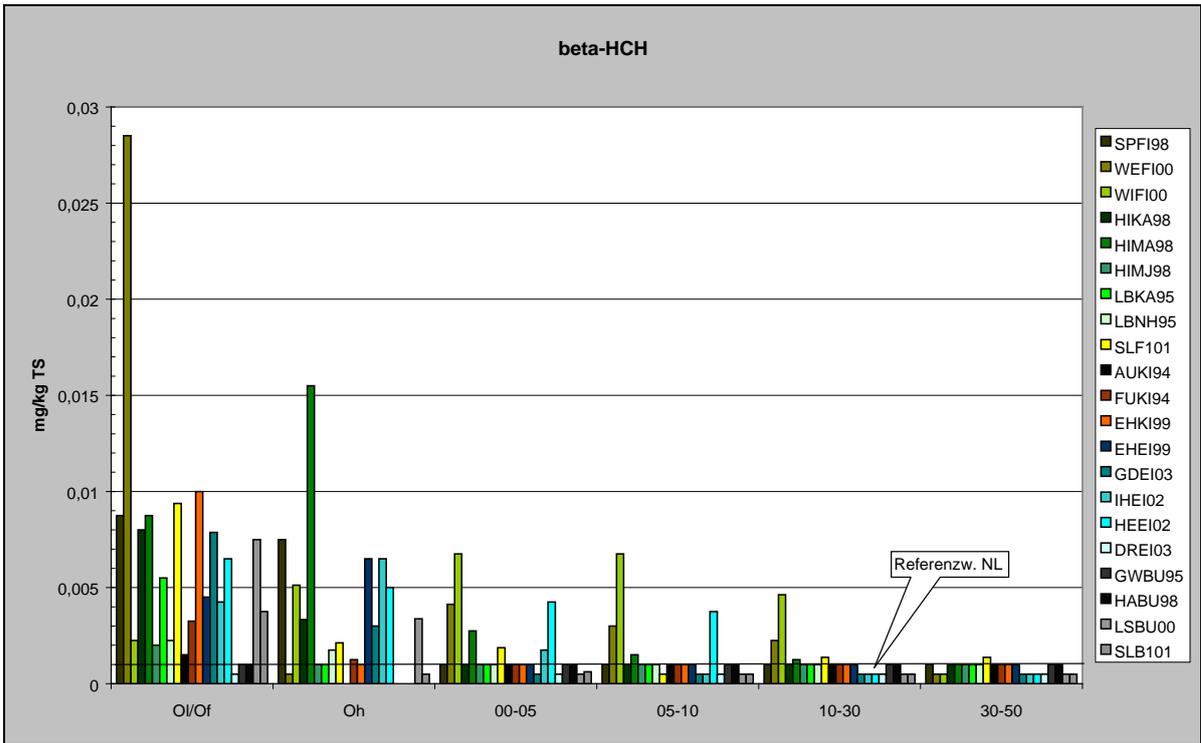


Abb. 23:  $\beta$ -HCH-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

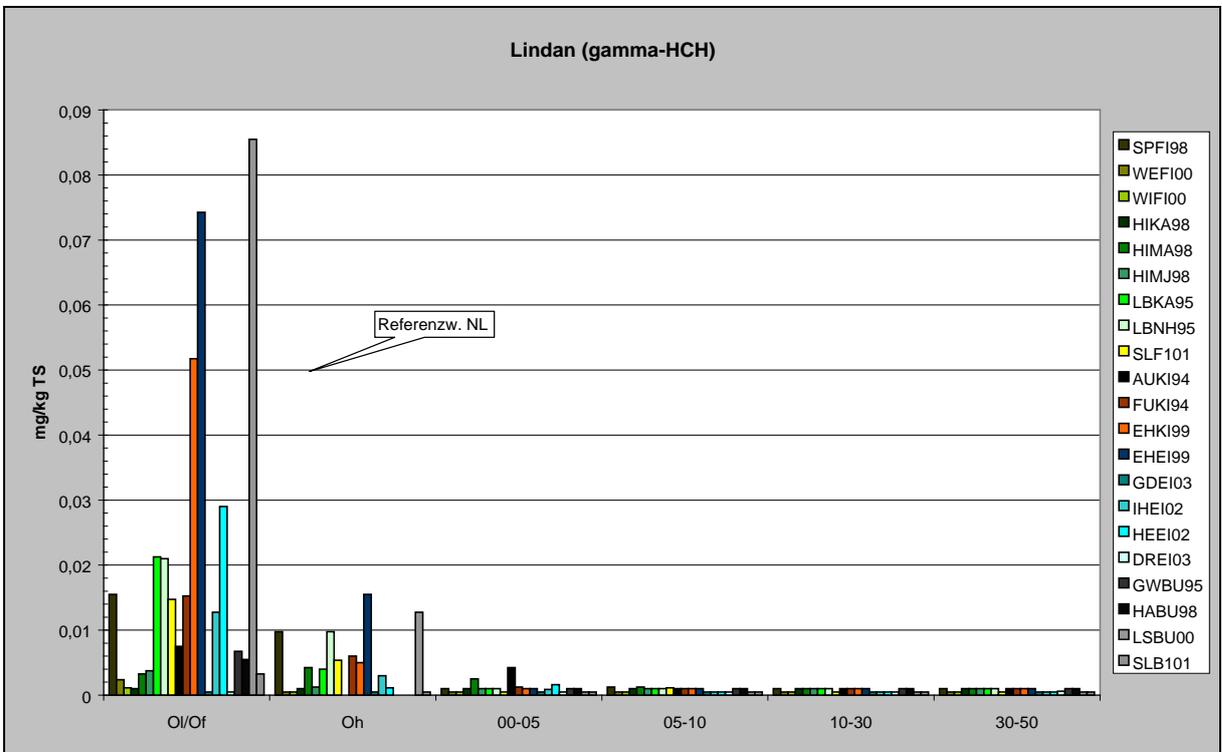


Abb. 24:  $\gamma$ -HCH (Lindan)-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Die Flächen DREI, HABU und GWBU sind im ganzen Profil bezüglich aller drei Isomere mit Konzentrationen unterhalb des Referenzwertes der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) gering belastet.

Unterschiede zwischen BDF-F mit Nadelbaum- und Laubbaumbestockung werden durch die großen Konzentrationsunterschiede der einzel-

nen BDF-F überlagert. Da die Deposition dieser Stoffe über den Luftweg gering ist, spielen die Interzeptionseigenschaften des Kronenraums keine Rolle (s. Abb. 25 und 26). Entscheidend ist, ob HCH auf einer Fläche oder im Nahbereich eingesetzt wurde oder nicht.

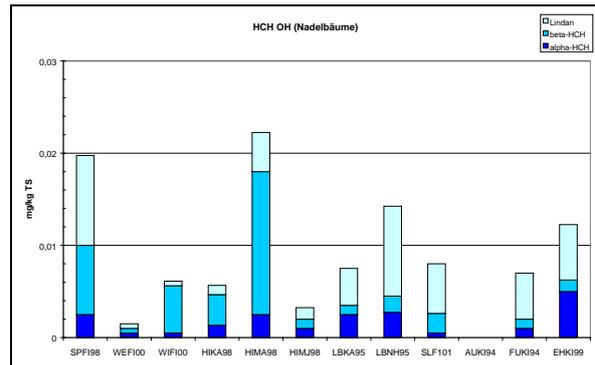
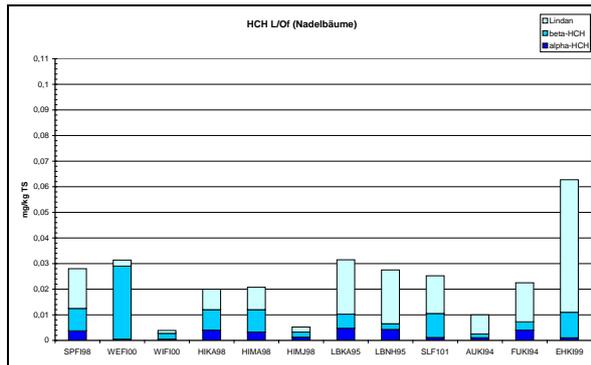


Abb. 25: HCH-Konzentrationen in Böden der BDF-F mit Nadelbaumbestand in mg/kg TS in der L/Of- und Oh-Lage.

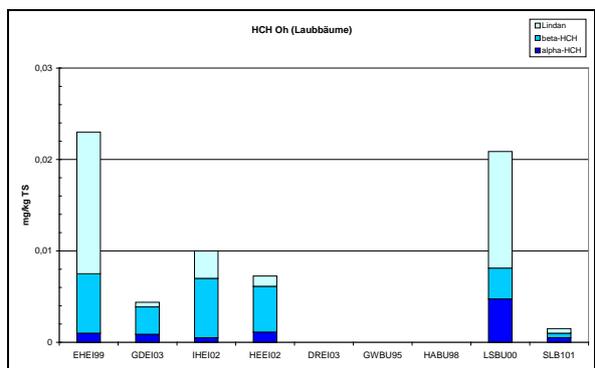
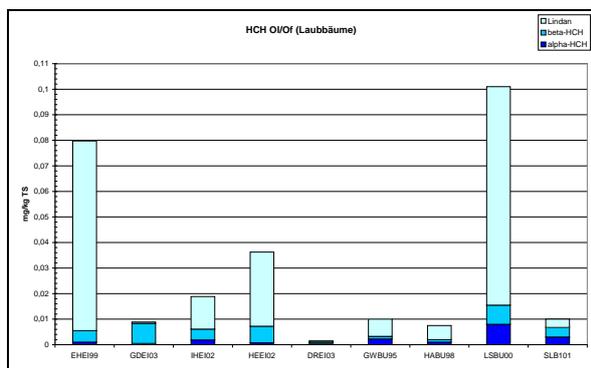


Abb. 26: HCH-Konzentrationen in Böden der BDF-F mit Laubbaumbestand in mg/kg TS in der L/Of- und Oh-Lage.

In der L/Of-Lage der BDF-F Augustendorf hat die  $\beta$ -HCH-Konzentration in den Jahren 1994 bis 2003 auf ca. ein Drittel, die  $\gamma$ -HCH-Konzentration sogar auf ca. 10 % abgenommen, während die Konzentration von  $\alpha$ -HCH ungefähr gleich geblieben ist (s. Abb. 27 – 29). In der L/Of-Lage der BDF-F Fuhrberg (1994 und 2004) nahmen die Konzentrationen aller drei Isomere auf ca. 15 % ab. In der Oh-Lage waren die Abnahmen auf 20 % ( $\alpha$ -HCH) und auf weniger als 50 % ( $\beta$ - und  $\gamma$ -HCH) noch höher. Insgesamt sind die Abnahmen der HCH-

Konzentrationen im Boden der BDF-F FUKI somit wesentlich höher als im Boden der BDF-F AUKI. Die HCH-Konzentrationen in der Humusaufgabe der BDF-F FUKI sind zudem fast doppelt so hoch wie in der Humusaufgabe der BDF-F AUKI. Im Mineralboden war die  $\gamma$ -HCH-Konzentration nur 1994 in 0 – 5 cm Tiefe auf der BDF-F AUKI über der unteren Bestimmungsgrenze, in allen anderen Mineralbodenproben konnte kein HCH gefunden werden.

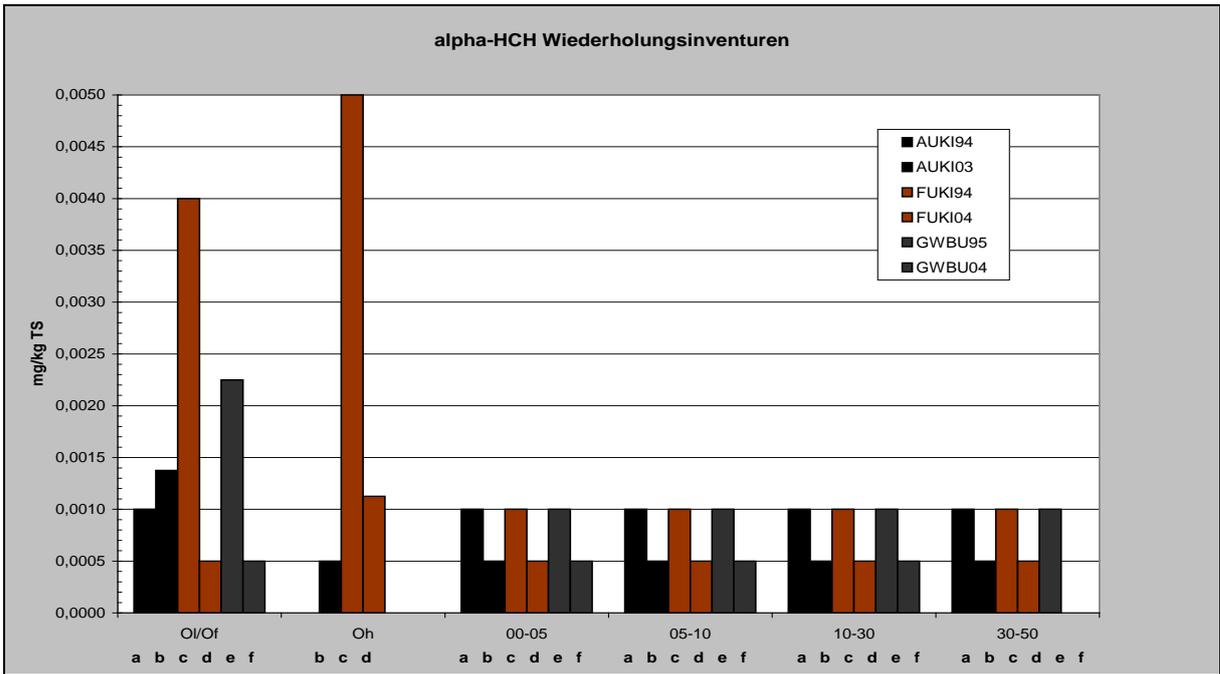


Abb. 27:  $\alpha$ -HCH-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

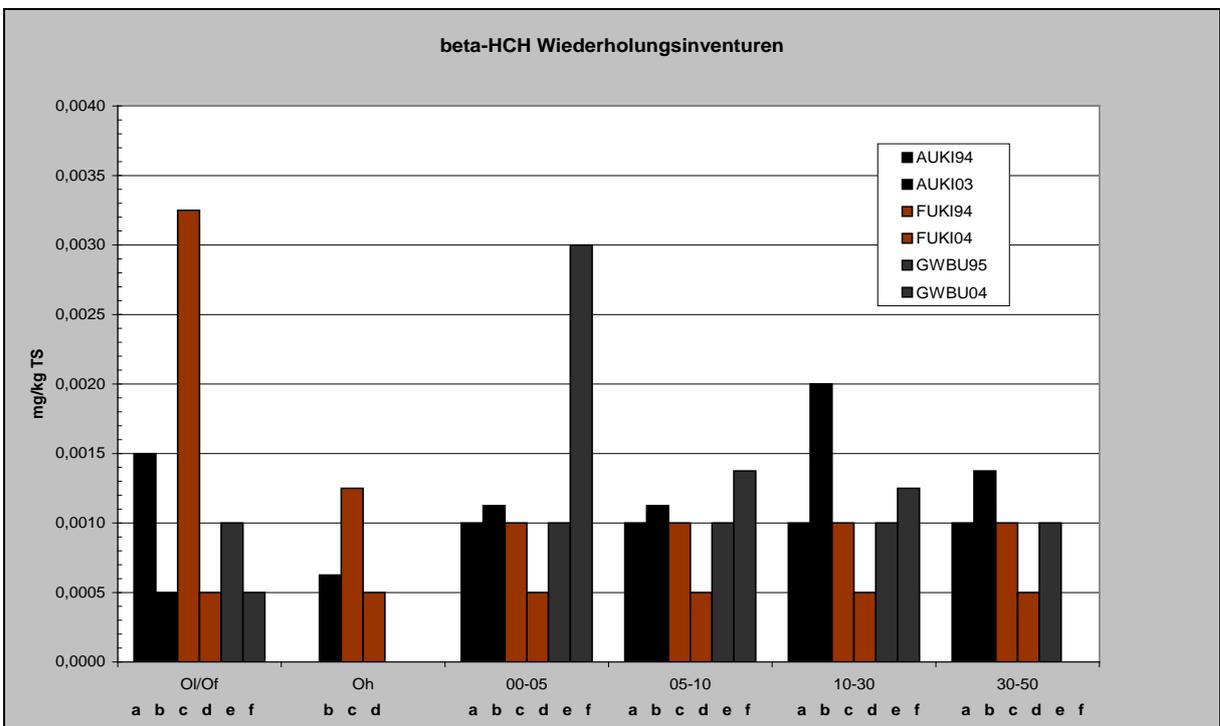


Abb. 28:  $\beta$ -HCH-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

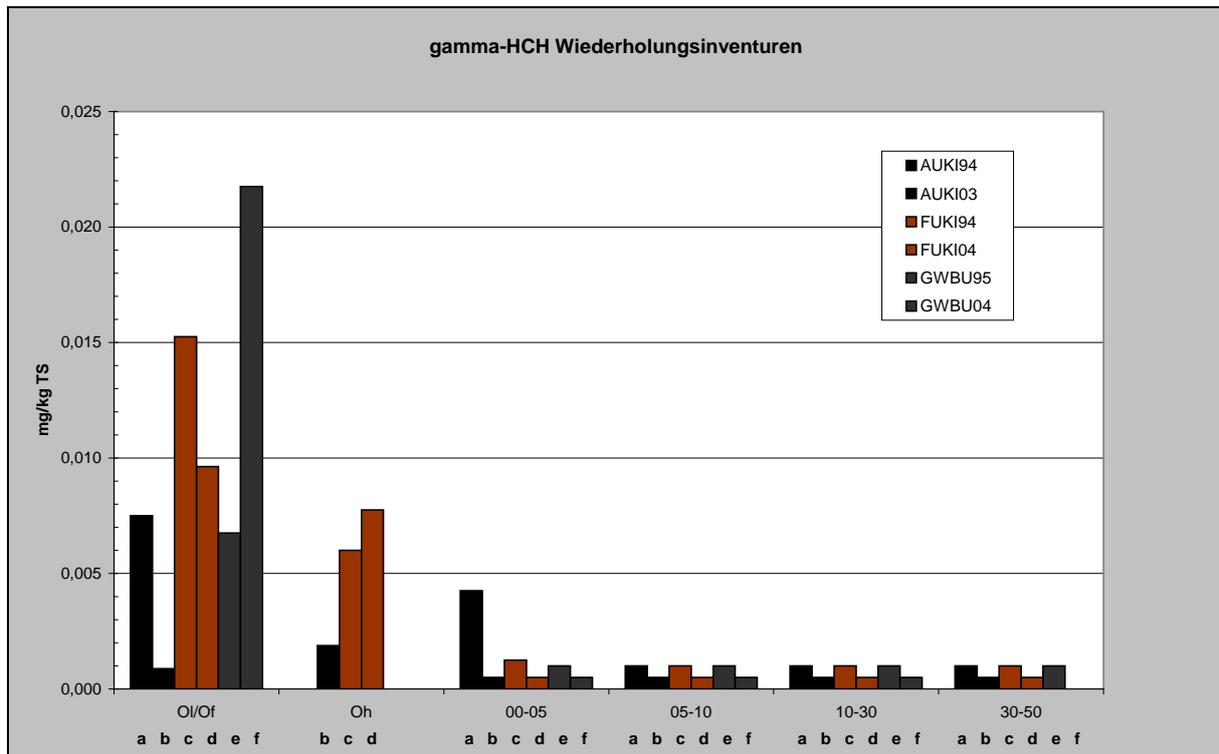


Abb. 29:  $\gamma$ -HCH-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

In der Humusaufgabe (L/Of-Lage) der BDF-F Göttinger Wald Buche konnte eine Abnahme der  $\alpha$ -HCH-Konzentration auf ca. 20 % festgestellt werden (s. Abb. 27). Im Gegensatz hierzu hatten die  $\beta$ -HCH-Konzentrationen, die 1995 im gesamten Profil unter der unteren Bestimmungsgrenze lagen, 2004 in 0 – 5 cm Tiefe auf das Dreifache und in größerer Tiefe leicht zugenommen (s. Abb. 28). Eine erhebliche Zunahme (auf das Dreifache) konnte auch in der L/Of-Lage bei der  $\gamma$ -HCH-Konzentration gefunden werden (s. Abb. 29). Es zeigt sich auf dieser BDF-F 2004 somit ein ähnliches Bild wie beim HCB. Die  $\beta$ - und  $\gamma$ -HCH-Konzentrationen liegen 2004 sogar über den Konzentrationen im Boden der BDF-F Fuhrberg Kiefer. Es konnten an zwei der vier Wiederholungen sogar  $\gamma$ -HCH-Konzentrationen zwischen 40 und 50  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS gefunden werden.

### 3.3.3 DDT, DDD und DDE

Im Folgenden werden die Messwerte von DDT und seinen zwei Metaboliten (Abbauprodukten) DDD und DDE vorgestellt. Nur für die Summe

aus DDT, DDD und DDE gibt es einen Referenzwert nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994). Dieser beträgt 25  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für Böden und ist für alle Tiefenstufen gültig, da der Humusgehalt des Bodens keine Berücksichtigung findet. Nach Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBODSCHV 1999) gibt es nur den Prüfwert von 200 000  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für Boden (Park- und Freizeitanlagen) und von 100  $\mu\text{g}/\text{l}$  für Bodenlösung bzw. Grundwasser. Vom Bodenprüfwert sind die Konzentrationen im Boden der BDF-F weit entfernt. Für Bodenlösung bzw. Grundwasser liegen keine Werte vor.

Zur Bewertung der Ergebnisse wurde die Summe der DDT-, DDE- und DDD-Konzentrationen der untersuchten BDF-F in drei Gehaltsstufen unterteilt:

- Stufe 1 unterhalb des Referenzwertes der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (25  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS),
- Stufe 2 Referenzwert bis vierfache Überschreitung des Referenzwertes (100  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS),
- Stufe 3 mehr als vierfache Überschreitung des Referenzwertes (> 100  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS).

Tabelle 7 zeigt die Zuordnung der in den verschiedenen Tiefenstufen der BDF-F ermittelten DDX-Gehalte zu den drei Gehaltsstufen.

Tab. 7: Zuordnung der BDF-F zu DDX-Konzentrationsstufen (LB = BDF-F mit Laubbaumbestand (9), NB = BDF-F mit Nadelbaumbestand (12)).

DDX	L/Of	Oh	Mineralboden
<b>Stufe 1</b>	LB: alle 9 BDF-F	LB: EHEI, GDEI, IHEI, HEEI, SLB1 (DREI, GWBU, HABU nicht vorhanden)	LB: alle 9 BDF-F
	NB: WEFI, WIFI, AUKI 1994 und 2003	NB: WIFI, HIKA, SLF1, AUKI 2003 (1994 fehlt)	NB: 11 Flächen + LBNH 30 – 50 cm
<b>Stufe 2</b>	LB: –	LB: LSBU	LB: –
	NB: HIKA, HIMA, LBNH, SLF1, EHKI	NB: WEFI, HIMA, HIMJ, EHKI	NB: –
<b>Stufe 3</b>	LB: –	LB: –	LB: –
	NB: SPFI, HIMJ, LBKA, FUKI	NB: SPFI, LBNH, EHKI	NB: LBNH 0 – 30 cm

In der Humusaufgabe der untersuchten Standorte wurden sehr unterschiedliche Konzentrationen von DDT, DDD und DDE gefunden (s. Abb. 30 – 32). Sie reichen in der L/Of-Lage von unter der Bestimmungsgrenze (1 – 2 µg/kg TS) bis zu Maximalgehalten von 200 µg/kg TS für DDT (HIMJ), 38 µg/kg TS für DDD (HIMJ) und

38 µg/kg TS für DDE (FUKI). In der Oh-Lage wurden vergleichbare Gehalte wie in der L/Of-Lage gefunden. Der Konzentrationsbereich reicht hier von unter der Bestimmungsgrenze bis zu Spitzenwerten von 215 µg/kg TS für DDT (FUKI), 13,3 µg/kg TS für DDD (LBNH) und 19 µg/kg TS für DDE (LSBU).

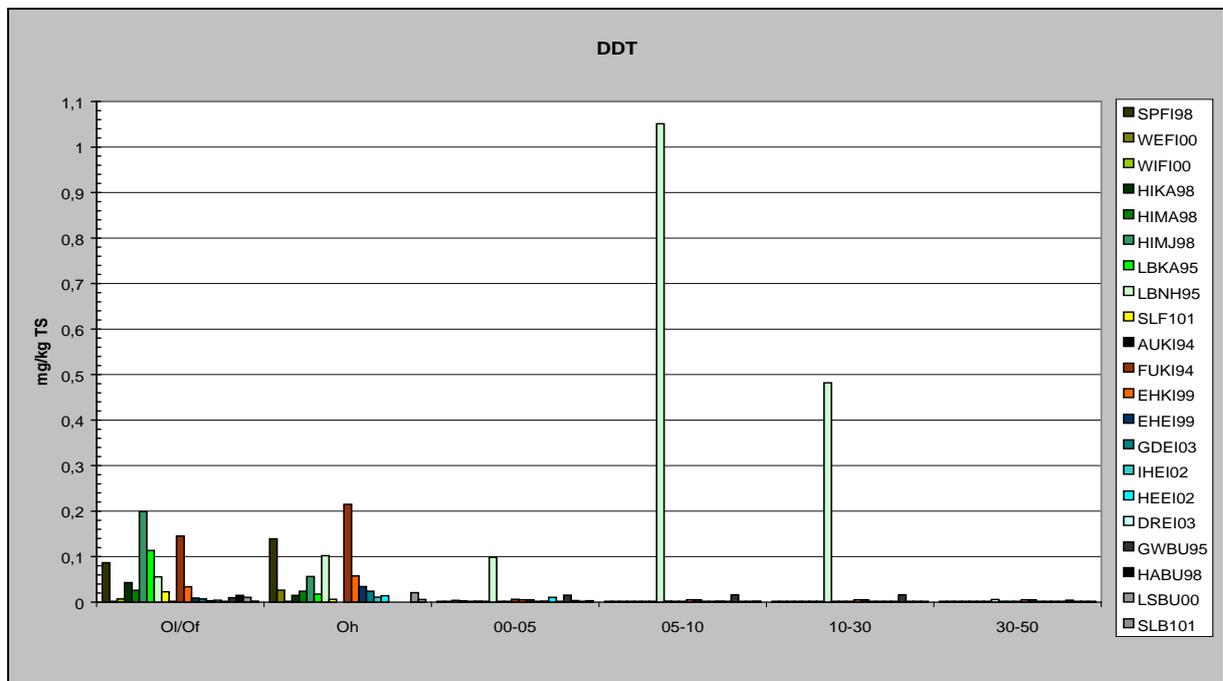


Abb. 30: DDT-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

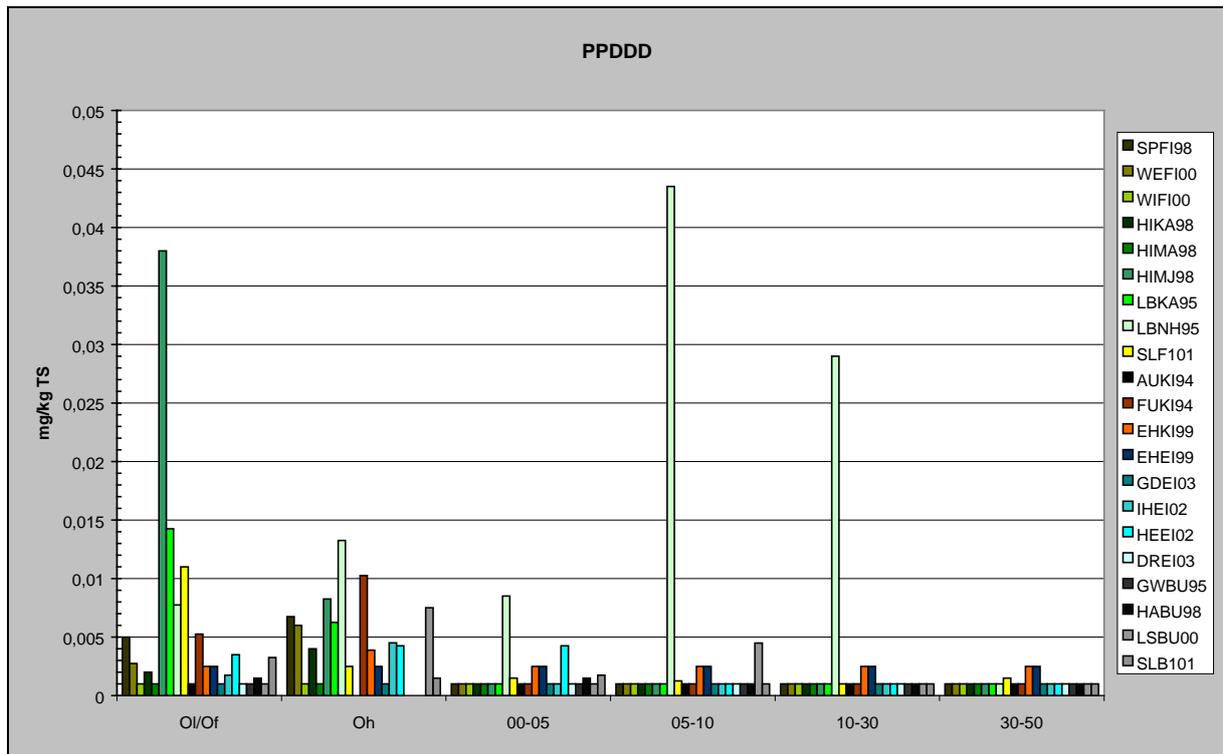


Abb. 31: DDD-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

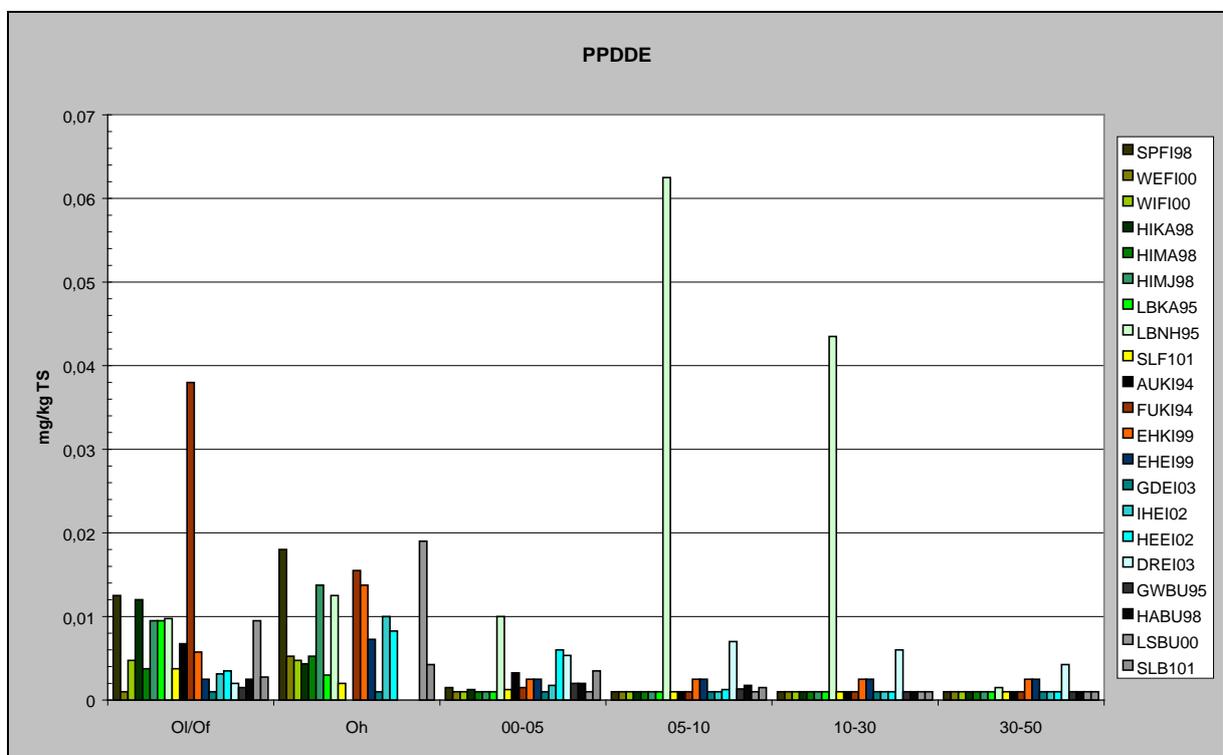


Abb. 32: DDE-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Im Mineralboden sind die Unterschiede zwischen den Flächen noch extremer. Hier fällt die BDF-F LBNH mit extrem hohen DDT- (Maximalwert 1 051 µg/kg TS in 5 – 10 cm), DDD- (Maximalwert 43,5 µg/kg TS in 5 – 10 cm) und DDE-Konzentrationen (Maximalwert 62,5 µg/kg TS in 5 – 10 cm) bis in 30 cm Tiefe auf (s. Abb. 33). In 30 – 50 cm Tiefe konnte auf dieser Fläche kein DDT bzw. keines seiner zwei Abbauprodukte mehr nachgewiesen werden. Die relativ hohen Konzentrationen der Abbauprodukte DDD und DDE lassen vermuten, dass die DDT-Konzentrationen vor dem Bep-

bungsjahr 1995 noch wesentlich höher gewesen sein müssen.

Wie lange die DDT-Anwendung auf einer Fläche zurückliegt, kann aus dem Verhältnis von DDT zur Summe seiner Abbauprodukte DDD und DDE abgeschätzt werden. Grundlage für diese Abschätzung ist die Veränderung des DDT/DDD+DDE-Verhältnisses auf den Flächen, auf denen Wiederholungsinventuren durchgeführt wurden. Demnach liegt die DDT-Ausbringung auf der Fläche LBNH ca. 11 Jahre (ungefähr 1984) zurück.

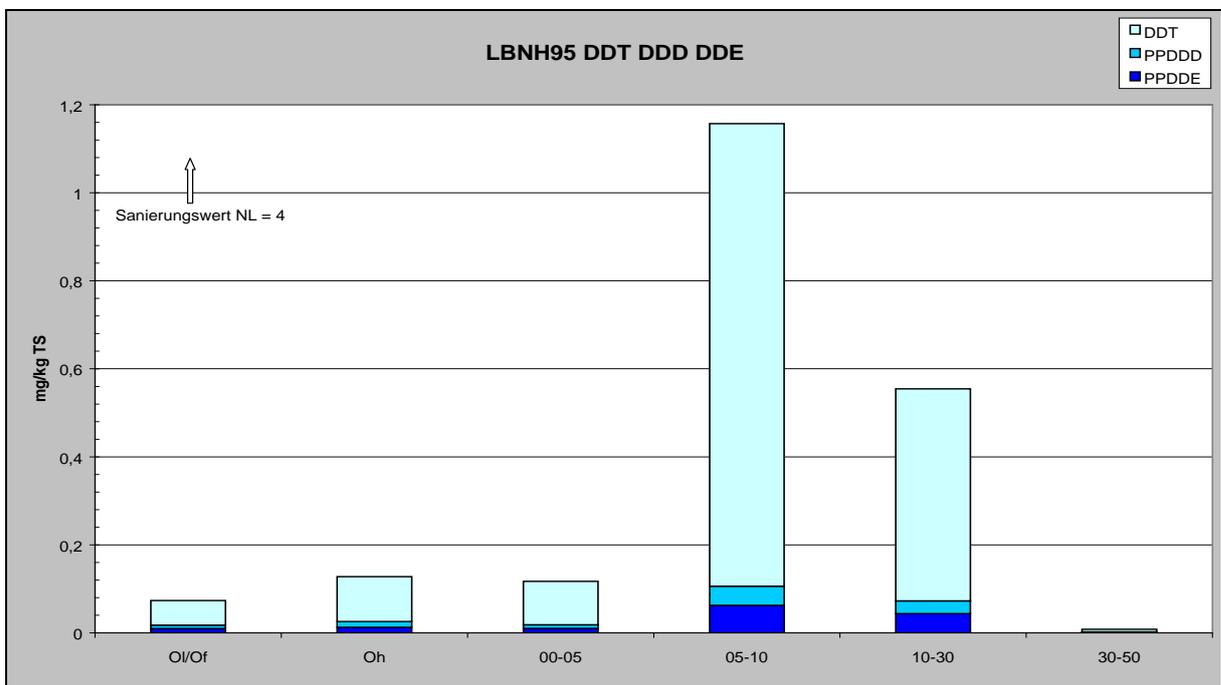


Abb. 33: DDT/DDD/DDE-Konzentrationen im Boden der BDF-F LBNH in mg/kg TS.

Die Betrachtung der vier Einzelwerte, aus denen die hier verglichenen Mittelwerte gebildet wurden, zeigt eine extrem große Variabilität der vier Wiederholungen der BDF-F LBNH (s. Tab. 8).

Tab. 8: DDT-, DDD-, DDE-Konzentrationen der vier Wiederholungen LBNH (1/2 Bestimmungsgrenze = 1 µg/kg TS).

Tiefe [cm]	DDT [µg/kg TS]	DDD [µg/kg TS]	DDE [µg/kg TS]
0 – 5	115	12	37
	266	20	1
	6	1	1
	7	1	1
5 – 10	10	1	4
	4 191	171	244
	2	1	1
	2	1	1
10 – 20	3	1	1
	1917	113	171
	3	1	1
	5	1	1

Die hohe Varianz der vier Wiederholungen der BDF-F LBNH lässt noch wesentlich höhere Extremwerte als die hier gefundenen auf der BDF-F vermuten. Der Interventionswert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) von 4 000 mg/kg TS, bei dessen Überschreitung Sanierungsmaßnahmen erforderlich sind, wurde in der Tiefenstufe 5 – 10 cm in einer Wiederholung mit 4 196 µg/kg TS knapp überschritten. Um eine bessere Aussage über die räumliche Verteilung der DDT-Belastung dieser Fläche machen zu können, wurden bei der Wiederholungsinventur 2005 wesentlich mehr Wiederholungen beprobt.

Interessant ist auch der Niedermoorstandort DREI, wo in der gesamten Beprobungstiefe das Abbauprodukt DDE in nennenswerten Konzentrationen (im Mittel 6 µg/kg TS) nachgewiesen werden konnte. Die ansonsten meist vorgefundene Abnahme der Konzentrationen im Profil war nur gering ausgeprägt (s. Abb. 32). Allerdings wurde in der Humusauflage (L/Of) mit 2 µg/kg TS eine sehr geringe DDE-Konzentration gefunden. Die sehr niedri-

ge Wasserlöslichkeit von DDT, DDD und DDE wird durch Fulvosäuren, die in Moorböden in hoher Konzentration zu finden sind, stark erhöht (CHIOU et al. 1986). Hierdurch wird eine Tiefenverlagerung dieser Stoffe mit dem Sickerwasser ermöglicht. An diesem Niedermoorstandort muss zudem mit einer starken lateralen Verlagerung gelöster Stoffe gerechnet werden. Die im Vergleich zum DDT höheren Konzentrationen der Abbauprodukte, insbesondere DDE, lassen auf eine weit zurückliegende Belastung dieser oder benachbarter Flächen mit DDT schließen (s. Abb. 35).

Im Mineralboden konnten sonst lediglich auf den BDF-F HEEI, LSBU und SLB1 geringe Konzentrationen der Abbauprodukte DDD bzw. DDE in 0 – 5 bzw. 5 – 10 cm Tiefe nachgewiesen werden (< 5 µg/kg TS je Einzelstoff) (s. Abb. 31 und 32). Auf allen anderen Flächen konnte im Mineralboden weder DDT noch DDD oder DDE nachgewiesen werden.

BDF-F mit Nadelbaumbestockung sind im Mittel wesentlich stärker mit DDT und seinen Abbauprodukten belastet als solche mit Laubbaumbeständen (s. Abb. 34 und 35), wobei zwischen Kiefern- und Fichtenbestockung kein wesentlicher Unterschied besteht. Bis auf eine BDF-F (LSBU, Oh) sind alle BDF-F mit Laubbaumbeständen über das gesamte Bodenprofil gering belastet (Stufe 1: Messwerte < Referenzwert NIEDERLÄNDISCHE LISTE 1994), während bei Nadelbaumbeständen sowohl gering als auch höher belastete Profilbereiche anzutreffen sind. Offensichtlich wurde DDT als Insektizid häufiger in Nadelbaum- und weniger in Laubbaumbeständen angewendet. Alle BDF-F mit Laubbaumbestockung (außer LSBU Oh und DREI 0 – 50 cm) sowie die BDF-F WEFI, WIFI und AUKI mit Nadelbaumbeständen sind über das gesamte Bodenprofil gering belastet.

Die Belastung der BDF-F mit DDT erfolgte offensichtlich in unterschiedlichen Zeiträumen, wie am sehr unterschiedlichen Verhältnis von DDT zu DDD und DDE zu erkennen ist (s. Abb. 34 und 35).

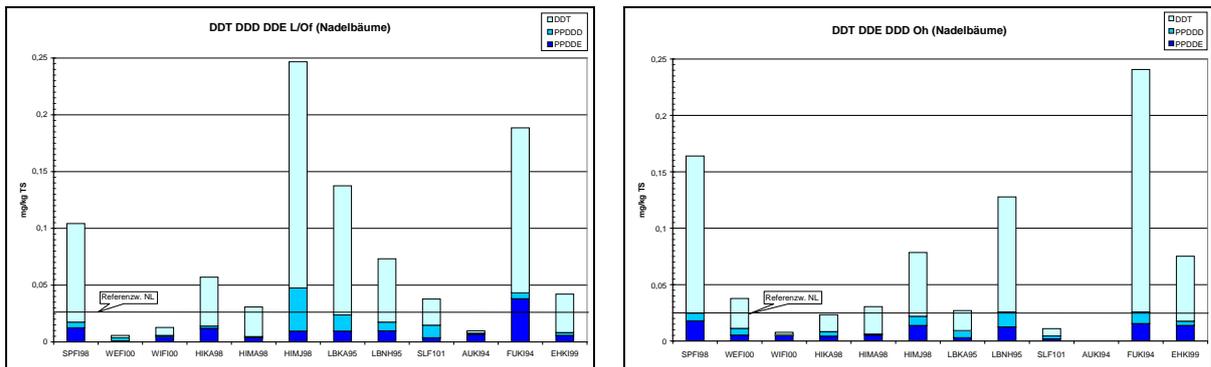


Abb. 34: DDT/DDD/DDE-Konzentrationen in Böden der BDF-F mit Nadelbaumbestand in mg/kg TS in der L/Of- und Oh-Lage.

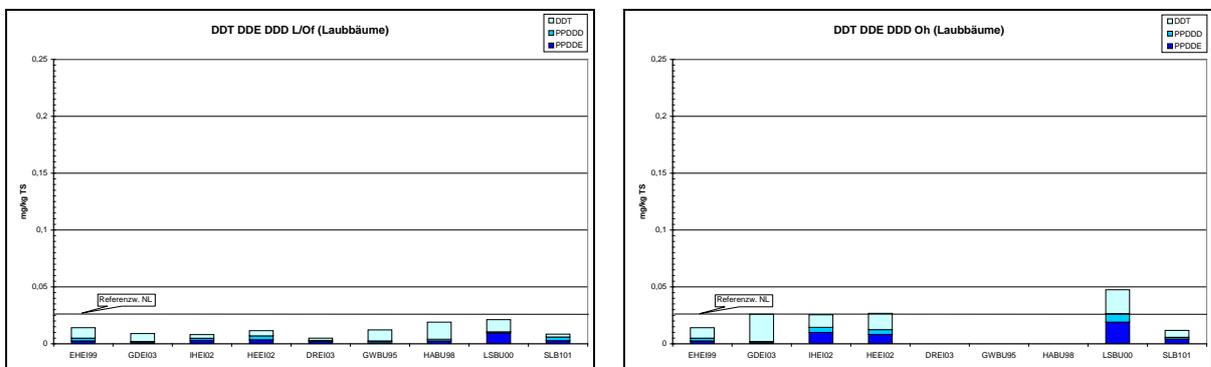


Abb. 35: DDT/DDD/DDE-Konzentrationen in Böden der BDF-F mit Laubbaumbestand in mg/kg TS in der L/Of- und Oh-Lage.

Über die zeitliche Veränderung der DDT- und DDD-Konzentration im Boden der BDF-F AUKI kann keine Aussage gemacht werden, da die Konzentrationen in der L/Of-Lage (1994 und 2003) und in der Oh-Lage (nur 2003) sowie im gesamten Mineralboden im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze lagen. Für das Abbauprodukt DDE konnten 1994 mit 6,8 µg/kg TS in der L/Of-Lage und mit 3,3 µg/kg TS in 0 – 5 cm Tiefe geringe Konzentrationen gemessen werden. 2003 konnten in diesen beiden Tiefenstufen nur noch Werte unter der unteren Bestimmungsgrenze gefunden werden.

Im Boden der BDF-F FUKI konnten im Vergleich zur BDF-F AUKI wesentlich höhere Konzentrationen an DDT, DDD und DDE gefunden

werden (s. Abb. 36 – 38). 1994 wurden in der Oh-Lage dieser BDF-F maximale DDT-Konzentrationen von 215 µg/kg TS, maximale DDD-Konzentrationen von 10 mg/kg TS und maximale DDE-Konzentrationen von 3,8 mg/kg TS gemessen. Diese Konzentrationen waren 2004 wesentlich geringer und nahmen bis auf Werte unter der unteren Bestimmungsgrenze ab (DDT L/Of-Lage). Im Mineralboden lagen die Konzentrationen an beiden Terminen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Halbwertszeit von DDT liegt für diese BDF-F unter 10 Jahren und bleibt damit unter den in der Literatur gefundenem Wert von deutlich > 10 Jahren (ABBAS 1995).

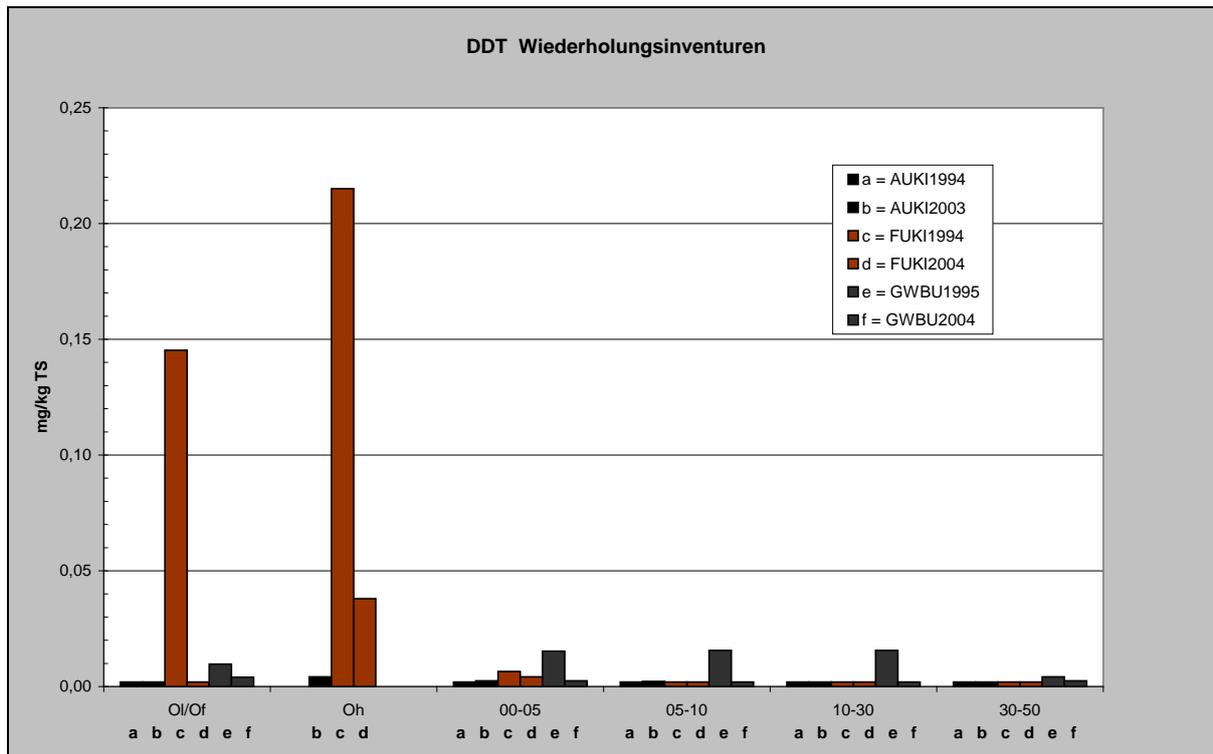


Abb. 36: DDT-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

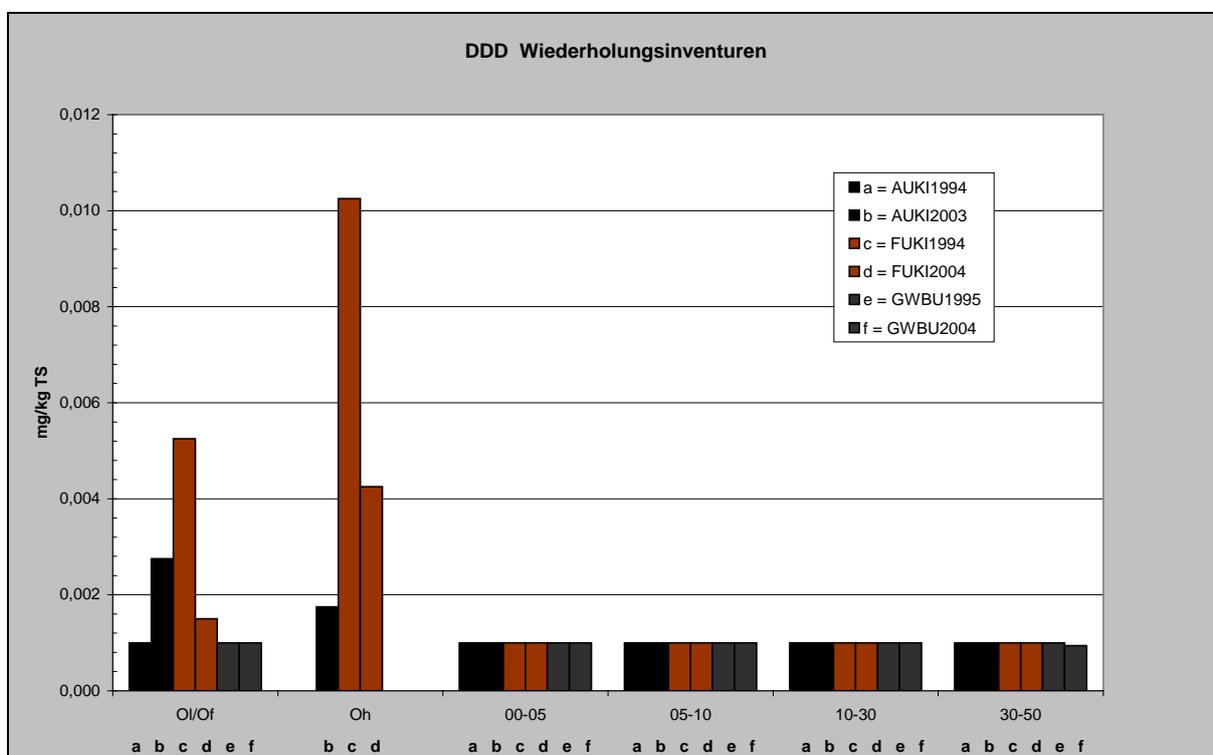


Abb. 37: DDD-Konzentrationen in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

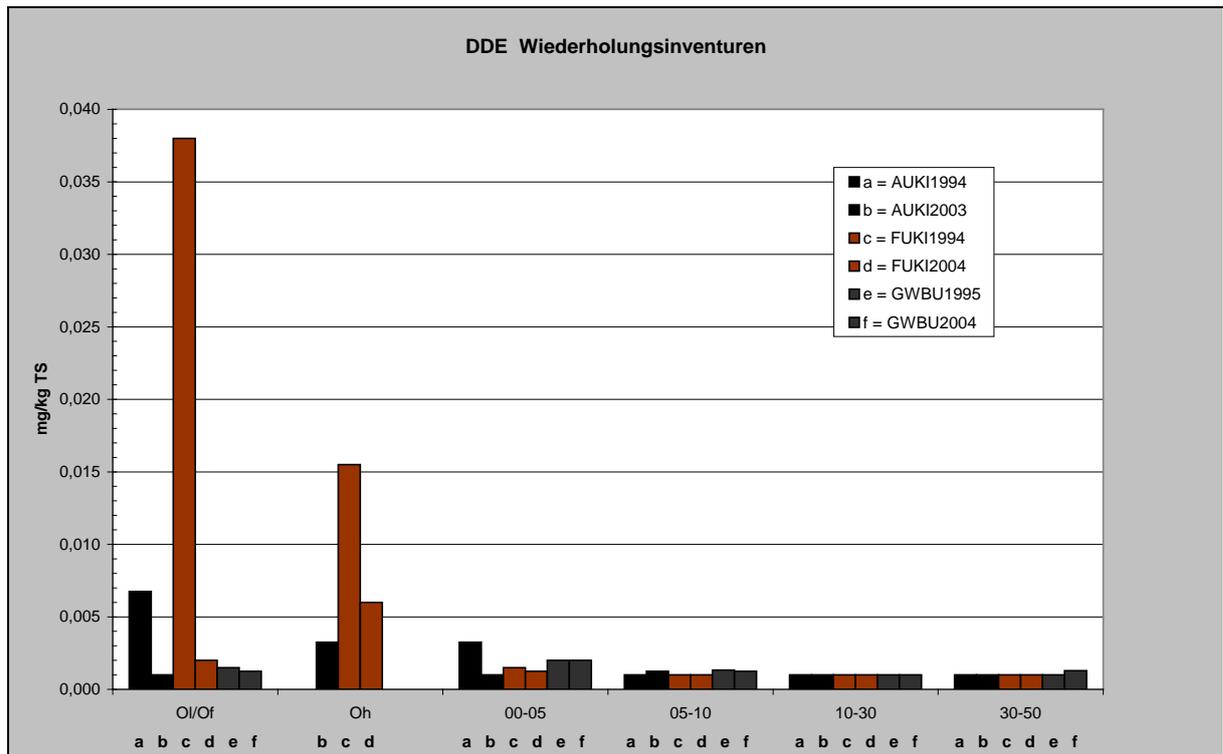


Abb. 38: DDE-Konzentration in mg/kg TS (Wiederholungsinventuren).

Im Boden der BDF-F GWBU konnte nur 1995 DDT bis in 30 cm Tiefe gefunden werden (s. Abb. 36). Die Konzentrationen waren in der Humusaufgabe mit 10 µg/kg TS und im Mineralboden (0 – 30 cm) mit 15 – 16 µg/kg TS niedrig (vgl. FUKI). 2004 lag die DDT-Konzentration im gesamten Profil im Bereich bzw. unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die DDD- und DDE-Konzentrationen lagen an beiden Terminen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze.

### 3.3.4 Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlorepoxid

Für Aldrin gibt es in der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) einen Prüfwert von 10 000 µg/kg TS. Dieser Wert wird im Boden keiner der BDF-F auch nur annähernd erreicht. Für diesen Stoff wurden in

der Humusaufgabe fast aller BDF-F Werte unter der unteren Bestimmungsgrenze (1 – 2,5 µg/kg TS) gefunden (s. Abb. 39). In der L/Of-Lage konnte nur auf zwei BDF-F (SLB1 26 µg/kg TS, SLF1 11,5 µg/kg TS) ein wesentlich über der unteren Bestimmungsgrenze, auf einer BDF-F (LSBU) ein geringfügig über der unteren Bestimmungsgrenze liegender Gehalt gefunden werden. In der Oh-Lage wurde nur auf einer Fläche ein gering über der unteren Bestimmungsgrenze liegender Gehalt (SLF1) gefunden. Im Mineralboden liegen die Konzentrationen dieses Stoffes auf allen BDF-F und in allen Tiefenstufen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Belastung von Waldböden mit Aldrin ist somit offensichtlich auf einen isolierten, auf die benachbarten BDF-F SLF1 und SLB1 beschränkten Einsatz dieses Stoffes zurückzuführen.

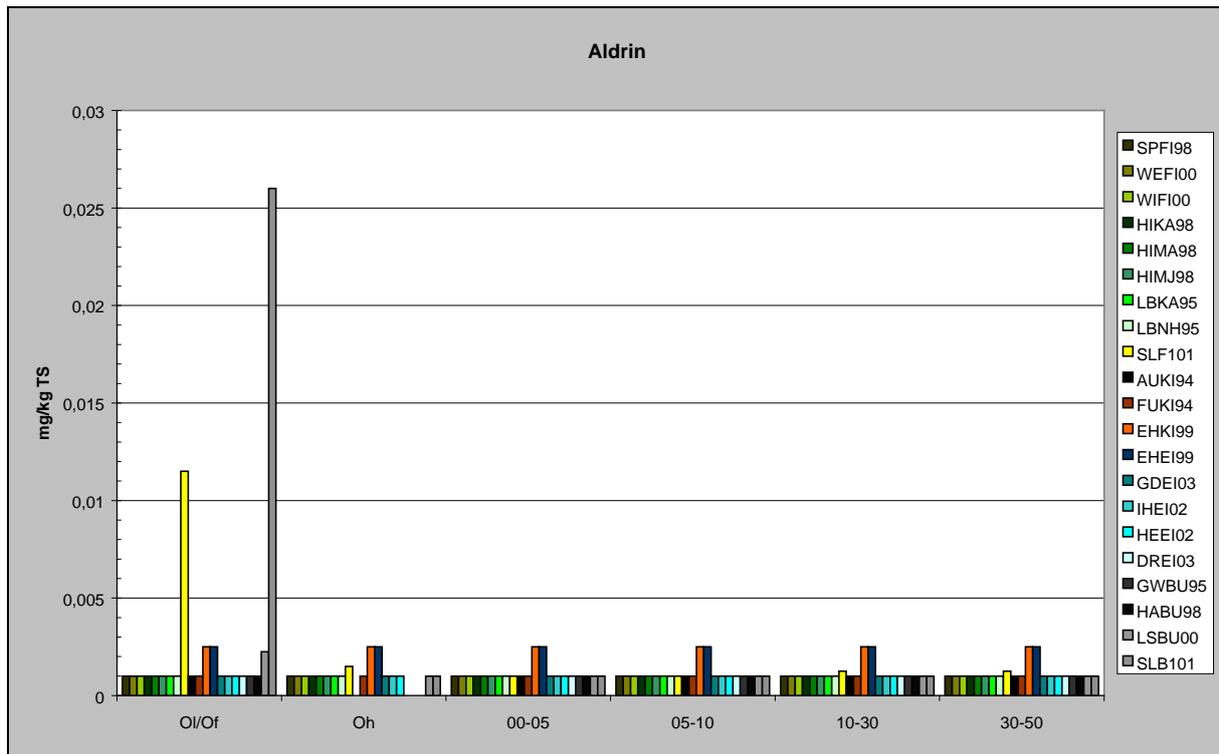


Abb. 39: Aldrin-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Für Dieldrin gibt es lediglich einen Referenzwert in der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) von  $0,5 \mu\text{g/kg TS}$ . Dieser Wert ist überschritten, wenn die Konzentration oberhalb der unteren Bestimmungsgrenze ( $1$  bzw.  $2,5 \mu\text{g/kg TS}$ ) liegt. Es gibt sechs BDF-F, deren Konzentrationen in der L/Of-Lage diesen Referenzwert nennenswert überschreiten (s. Abb. 40). Es sind dies die BDF-F SPFI, WEFI, HIKA, LBKA, LBNH und LSBU mit Konzentrationen von bis zu  $8,3 \mu\text{g/kg TS}$ . Bei allen anderen BDF-F liegen die Konzentrationen im Bereich der unteren Bestimmungsgrenze.

In der Oh-Lage überschreitet die BDF-F LBNH mit einem Wert von  $24 \mu\text{g/kg TS}$  den Referenzwert um das 50fache. Dies ist der höchste überhaupt gefundene Messwert. In der Oh-Lage von vier BDF-F (SPFI, WEFI, HIKA, LSBU) konnten Gehalte zwischen  $5$  und  $7 \mu\text{g/kg TS}$  gefunden werden. Alle anderen Konzentrationen lagen im Bereich oder unterhalb der unteren Bestimmungsgrenze. Im Mineralboden wurde mit  $5,5 \mu\text{g/kg TS}$  in  $0 - 5$  cm Tiefe nur im Boden der BDF-F LBNH, die auch in der Humusaufgabe vergleichsweise hoch belastet ist, nennenswerte Konzentrationen ge-

funden. Alle anderen Messwerte liegen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass sich die BDF-F LBNH mit vergleichsweise hohen Dieldrin-Konzentrationen sowohl in der Humusaufgabe als auch im Mineralboden von allen anderen Flächen abhebt. Als gering belastet in der Humusaufgabe sind die BDF-F SPFI, WEFI, HIKA und LSBU anzusehen.

Auch die Belastung von Waldböden mit Dieldrin ist offensichtlich auf einen isolierten Einsatz dieses Stoffes auf bestimmten Flächen zurückzuführen. Die Verwendung beschränkt sich dabei im Wesentlichen auf BDF-F mit Nadelbaumbeständen. Eine Ausnahme ist lediglich die BDF-F LSBU mit Laubbaumbestockung. Ein Zusammenhang zwischen Dieldrin, welches als Abbauprodukt von Aldrin gilt, und Aldrin konnte nicht gefunden werden. Die Konzentrationen für Dieldrin auf den BDF-F SLB1 und SLF1, die relativ hohe Konzentrationen an Aldrin haben, sind eher gering.

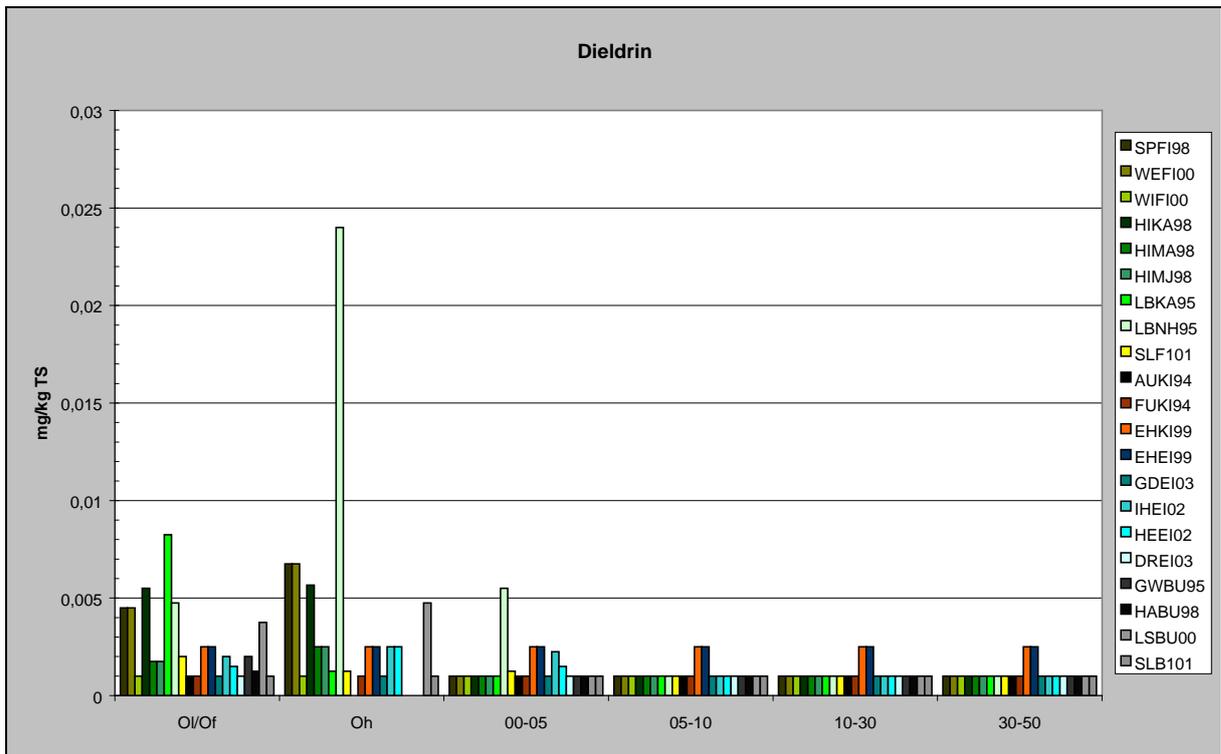


Abb. 40: Dieldrin-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Für Endrin beträgt der Referenzwert nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994)  $1 \mu\text{g}/\text{kg TS}$ , was auch die untere Bestimmungsgrenze für Endrin ist (Ausnahme: 1999 EHK1, EHE1, BG =  $2,5 \mu\text{g}/\text{kg TS}$ ). Nennenswerte Konzentrationen, d. h. mehr als doppelte Überschreitung der Bestimmungsgrenze, konnten in der L/Of-Lage von vier BDF-F (HIKA, SLF1, GDEI, LSBU mit 4,5 bis  $11,5 \mu\text{g}/\text{kg TS}$ ) gefunden werden (s. Abb. 41). In der Oh-Lage ist dies auf drei dieser BDF-F (HIKA, GDEI, LSBU) der Fall ( $4,8 - 15 \mu\text{g}/\text{kg TS}$ ). Im Mineralboden wurde nur auf der BDF-F SLF1 ( $3,5 \mu\text{g}/\text{kg TS}$ ) in 0 – 5 cm Tiefe ein Gehalt über der unteren Bestimmungsgrenze gefunden.

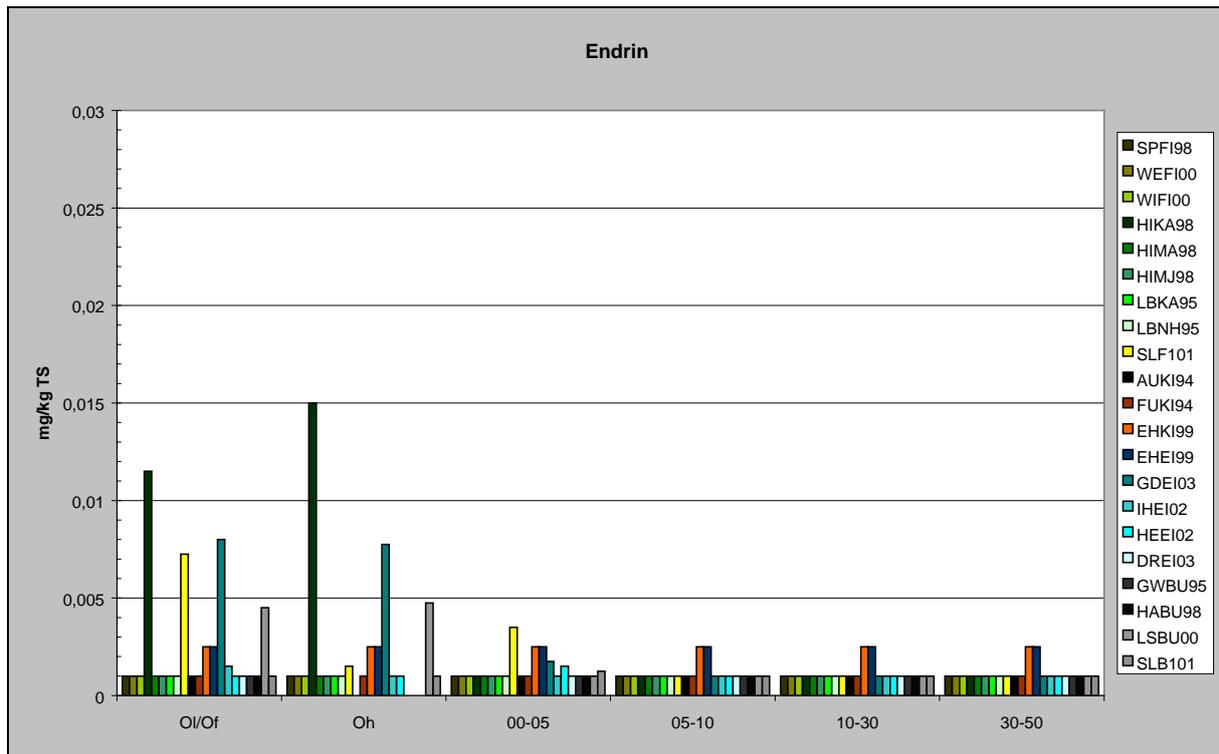


Abb. 41: Endrin-Konzentrationen in Böden der BDF-F in mg/kg TS.

Die Konzentrationen von Heptachlor und Heptachlorepoxyd lagen im Boden aller untersuchten BDF-F unter der unteren Bestimmungsgrenze.

Über eine zeitliche Veränderung der Konzentrationen der fünf Substanzen (Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlorepoxyd) auf den BDF-F AUKI, FUKI und GWBU lässt sich keine Aussage treffen, da die Konzentrationen für alle diese Stoffe an den zwei Probennahmeterminen auf allen drei BDF-F im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze lagen.

## 4 Überschreitungshäufigkeiten und statistische Kennzahlen

Abbildung 42 zeigt, dass an allen untersuchten BDF-F polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe gefunden werden konnten. Im Boden von 85 % aller BDF-F konnten PCB,  $\beta$ -HCH

und DDT gefunden werden. Die Abbauprodukte des DDT, DDD und DDE, konnten auf 70 bzw. 95 % der untersuchten BDF-F nachgewiesen werden. HCB und Lindan konnte auf knapp 80 % aller BDF-F gefunden werden,  $\alpha$ -HCH und Dieldrin an 62 % der untersuchten Standorte. Aldrin wurde auf nur 14 % und Endrin auf fast 30 % der BDF-F gefunden.

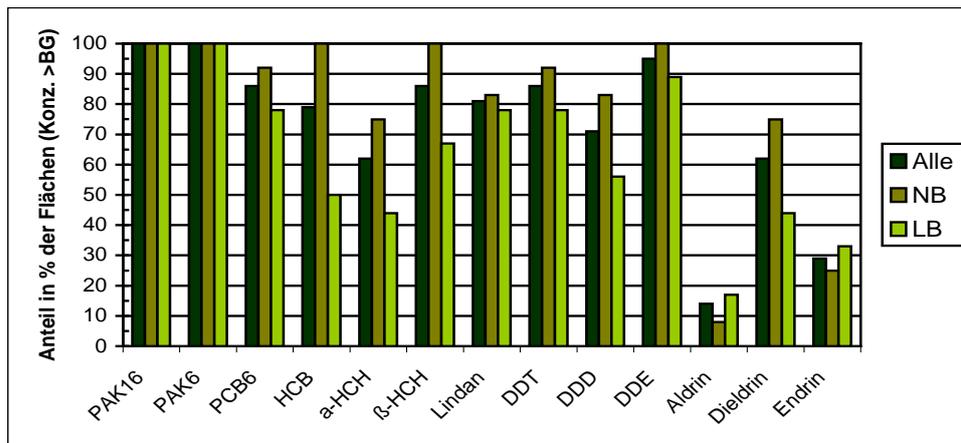


Abb. 42: Anteile der BDF-F mit Schadstoffkonzentrationen > Bestimmungsgrenze in % (LB = BDF-F mit Laubbaumbestand (9), NB = BDF-F mit Nadelbaumbestand (12)).

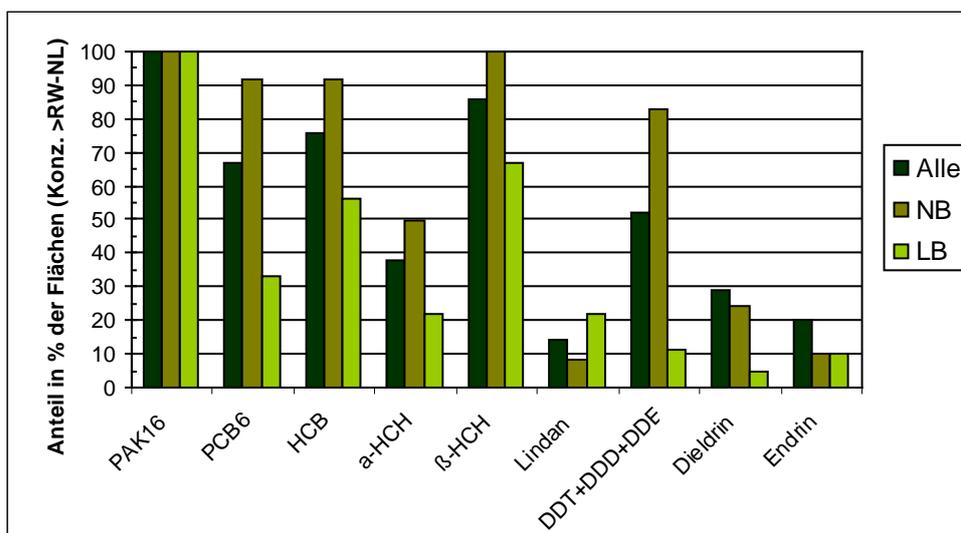


Abb. 43: Anteile der BDF-F mit Schadstoffkonzentrationen > Referenzwert NL-Liste in % (LB = BDF-F mit Laubbaumbestand (9), NB = BDF-F mit Nadelbaumbestand (12)).

Überschreitungen der Referenzwerte der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) konnten auf allen BDF-F für polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe gefunden werden (s. Abb. 43). Auf über 85 % der BDF-F wurde dieser Wert für  $\beta$ -HCH, auf über 75 % der BDF-F für HCB, auf über 65 % der BDF-F für PCB6 und auf über 50 % der BDF-F für die Summe von DDT, DDD und DDE überschritten. Für  $\alpha$ -HCH, Dieldrin, Endrin und Lindan kamen Überschreitungen der Referenzwerte auf 38,5, 29, 20 bzw. 14 % der BDF-F vor. Die Vorsorgewerte nach der Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) wurde in drei Fällen für PAK16 (SLB1, HIMJ, HIKa; Oh) und in zwei Fällen für Benzo(a)pyren (HIMJ, Oh, DREI 5 – 10 cm) überschritten. Bei einer Überschreitung des Vorsorgewertes sollten Maßnahmen getroffen werden, weitere Einträge dieses Schadstoffes zu verhindern. Für PCB6 wurde der Vorsorgewert in keinem Fall überschritten. Für alle anderen Stoffe gibt es keine Vorsorgewerte.

Prüfwertüberschreitungen nach dieser Verordnung, bei denen von einer schädlichen Veränderung des Bodens ausgegangen werden muss, wurden an keiner der untersuchten BDF-F für einen der Stoffe gefunden.

In den Tabellen 9 – 22 sind die Ergebnisse der Schadstoffuntersuchungen der Böden, getrennt nach den zwei Humuslagen L/Of und Oh sowie dem Oberboden (0 – 10 cm) und dem Unterboden (10 – 50 cm) zu finden. Sie enthalten die jeweiligen statistischen Kenngrößen (Perzentile, Minima, Maxima) der Verteilungskurven. Es wird nach BDF-F mit Nadelbaum- und Laubbaumbeständen unterschieden.

Die statistischen Kenngrößen für die PAK16 bzw. PAK6-Gehalte sind in den Tabellen 9 und 10 aufgeführt. Die Minimalwerte liegen in der Humusaufgabe aller BDF-F über der unteren Bestimmungsgrenze (PAK16 und PAK6). Die Mediane und die Maximalwerte nehmen für alle BDF-F von der Humusaufgabe zum Mineralboden sowie mit zunehmender Tiefe stark ab. Sie sind in der Humusaufgabe von BDF-F mit Nadelbaumbeständen wesentlich höher als in der Humusaufgabe von BDF-F mit Laubbaumbeständen.

Tab. 9: Statistische Kenngrößen der PAK16-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>47</b>	<b>0,084</b>	<b>0,188</b>	<b>0,400</b>	<b>0,763</b>	<b>1,464</b>	<b>1,944</b>	<b>2,825</b>
	Laubbaum-BDF-F	27	0,084	0,102	0,275	0,673	0,830	1,164	1,504
	Nadelbaum-BDF-F	20	0,435	0,541	0,784	1,478	1,914	2,274	2,825
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>40</b>	<b>0,061</b>	<b>1,413</b>	<b>2,161</b>	<b>3,107</b>	<b>5,291</b>	<b>10,968</b>	<b>18,266</b>
	Laubbaum-BDF-F	20	0,778	1,097	1,625	2,687	5,645	12,585	18,266
	Nadelbaum-BDF-F	20	0,061	2,169	2,908	4,023	5,291	8,491	16,195
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>93</b>	<b>0,018</b>	<b>0,043</b>	<b>0,077</b>	<b>0,171</b>	<b>0,495</b>	<b>1,254</b>	<b>4,071</b>
	Laubbaum-BDF-F	82	0,018	0,046	0,077	0,179	0,516	1,424	4,071
	Nadelbaum-BDF-F	92	< BG	0,019	0,024	0,042	0,122	0,411	2,703
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>94</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,017</b>	<b>0,019</b>	<b>0,026</b>	<b>0,045</b>	<b>0,095</b>	<b>2,703</b>
	Laubbaum-BDF-F	54	< BG	0,018	0,020	0,027	0,042	0,129	2,703
	Nadelbaum-BDF-F	40	< BG	< BG	0,018	0,022	0,047	0,067	0,363

Tab. 10: Statistische Kenngrößen der PAK6-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
L/Of-Lage	Alle	85	0,041	0,075	0,259	0,790	1,642	2,801	16,930
	Laubbaumfl.	35	0,041	0,049	0,080	0,228	0,460	0,651	0,827
	Nadelbaumfl.	50	0,263	0,479	1,024	1,538	2,421	3,655	16,930
Oh-Lage	Alle	67	0,039	1,036	1,888	3,548	6,887	10,024	15,129
	Laubbaumfl.	20	0,593	0,721	1,036	1,753	3,847	8,821	12,272
	Nadelbaumfl.	47	0,039	1,722	2,762	4,110	7,356	10,614	15,129
0 – 10 cm	Alle	173	< BG	0,019	0,045	0,125	0,337	0,727	3,279
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,038	0,102	0,257	0,477	1,172	3,279
	Nadelbaumfl.	105	< BG	< BG	0,034	0,085	0,276	0,481	2,540
10 – 50 cm	Alle	172	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,036	2,235
	Laubbaumfl.	69	< BG	< BG	< BG	< BG	0,021	0,087	2,235
	Nadelbaumfl.	103	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,028	0,264

Die statistischen Kenngrößen für die PCB6-Gehalte sind in der Tabelle 11 aufgeführt. Die Minima und das 10. Perzentil liegen für alle Tiefenstufen und Nutzungsarten unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Mediane und Maximalwerte nehmen von der Humusauflage

zum Mineralboden ab (alle Medianwerte im Mineralboden < Bestimmungsgrenze). Sie sind in der Humusauflage von BDF-F mit Nadelbaumbeständen in der Regel höher als in der Humusauflage von BDF-F mit Laubbaumbeständen.

Tab. 11: Statistische Kenngrößen der PCB6-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
L/Of-Lage	Alle	85	< BG	< BG	< BG	0,022	0,040	0,056	0,110
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	0,008	0,017	0,027	0,033
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	0,021	0,034	0,050	0,064	0,110
Oh-Lage	Alle	69	< BG	< BG	0,009	0,018	0,038	0,057	0,195
	Laubbaumfl.	21	< BG	< BG	0,013	0,018	0,029	0,057	0,067
	Nadelbaumfl.	48	< BG	< BG	0,007	0,018	0,040	0,058	0,195
0 – 10 cm	Alle	173	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,009	0,031
	Laubbaumfl.	68	< BG	< BG	< BG	< BG	0,008	0,012	0,031
	Nadelbaumfl.	105	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,008	0,029
10 – 50 cm	Alle	172	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,012
	Laubbaumfl.	69	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	0,012
	Nadelbaumfl.	103	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG	< BG

Die statistischen Kenngrößen für die HCB-Gehalte sind in der Tabelle 12 aufgeführt. Auch hier liegen die Minima und das 10. Perzentil für alle Tiefenstufen und Nutzungsarten unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Mediane sind mit einem Maximalwert von 0,016 mg/kg

TS insgesamt niedrig. Das Maximum nimmt von der Humusaufgabe zum Mineralboden stark ab und ist im Humus von BDF-F mit Nadelbaumbestockung wesentlich höher als von BDF-F mit Laubbaumbeständen.

Tab. 12: Statistische Kenngrößen der HCB-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,012</b>	<b>0,028</b>	<b>0,202</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	< BG	0,008	0,018	0,051
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	0,002	0,007	0,016	0,040	0,202
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,002</b>	<b>0,006</b>	<b>0,011</b>	<b>0,042</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,003	0,010	0,017
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	0,004	0,006	0,011	0,042
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,026</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,002	0,026				
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,004					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,002</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	0,002					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	< BG					

Die statistischen Kenngrößen für die Gehalte der drei HCH-Isomere und ihrer Summe sind in den Tabellen 13 – 16 aufgeführt. Die Minimalwerte liegen in allen Tiefenstufen aller BDF-F unter den jeweiligen unteren Bestimmungsgrenzen. Und auch die Mediane liegen mit ei-

nem Maximalwert von 0,006 mg/kg TS im Bereich oder unterhalb der unteren Bestimmungsgrenze (0,001 mg/kg TS). Die Maximalwerte nehmen wiederum von der Humusaufgabe zum Mineralboden stark ab.

Tab. 13: Statistische Kenngrößen der  $\alpha$ -HCH-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,005</b>	<b>0,014</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	< BG	0,002	0,005	0,014
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,005	0,010
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,002</b>	<b>0,004</b>	<b>0,014</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,002	0,004	0,008
	Nadelbaumfl.	47	< BG	0,005	0,014				
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,002</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,002					
	Nadelbaumfl.	105	< BG						
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>						
	Laubbaumfl.	69	< BG						
	Nadelbaumfl.	103	< BG						

Tab. 14: Statistische Kenngrößen der  $\beta$ -HCH-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,003</b>	<b>0,006</b>	<b>0,011</b>	<b>0,109</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	0,004	0,006	0,009	0,021
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	0,003	0,006	0,014	0,109
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,009</b>	<b>0,049</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	0,001	0,004	0,005	0,008	0,009
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	< BG	0,003	0,009	0,049
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,003</b>	<b>0,014</b>				
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,002	0,008				
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,004	0,014				
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,017</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	< BG					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	0,002	0,017				

Tab. 15: Statistische Kenngrößen der  $\gamma$ -HCH (Lindan)-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,005</b>	<b>0,019</b>	<b>0,032</b>	<b>0,180</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	0,004	0,026	0,120	0,150
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	0,006	0,019	0,022	0,180
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,007</b>	<b>0,013</b>	<b>0,031</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,011	0,016	0,016
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	< BG	0,007	0,012	0,031
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,007</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,004					
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,007					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>						
	Laubbaumfl.	69	< BG						
	Nadelbaumfl.	103	< BG						

Tab. 16: Statistische Kenngrößen der HCH (Summe)-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,006</b>	<b>0,013</b>	<b>0,031</b>	<b>0,056</b>	<b>0,193</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	0,006	0,009	0,035	0,131	0,170
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	0,006	0,013	0,030	0,039	0,193
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,005</b>	<b>0,015</b>	<b>0,023</b>	<b>0,062</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	0,004	0,006	0,018	0,024	0,025
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	0,005	0,013	0,023	0,062
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,006</b>	<b>0,015</b>				
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,004	0,011				
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,007	0,015				
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,019</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	< BG					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	0,004	0,019				

Die statistischen Kenngrößen für die Gehalte von DDT und seinen Abbauprodukten DDD und DDE sind in den Tabellen 17 – 19 enthalten. Beim DDT liegen alle Minimalwerte und die 25. Perzentile unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Medianwerte nehmen von der Humusaufgabe zum Mineralboden stark ab. Sie liegen im Mineralboden alle unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die höchsten Maximalwerte werden im Oberboden, gefolgt vom Unterboden der BDF-F LBNH, gefunden. Der Vergleich der BDF-F mit Nadelbaum- bzw. Laubbaumbeständen zeigt, dass unter Nadelbaumbestockung in allen Tiefenstufen wesentlich höhere DDT-Konzentrationen, als im Boden der BDF-F mit Laubbaumbeständen gefunden werden. Für die Abbauprodukte des DDT, DDD und DDE liegen die Minimalwerte der Böden aller Nutzungen und Tiefenstufen unter den jeweiligen unteren Bestimmungs-

grenzen. Auch die Medianwerte erreichen mit maximal 0,008 mg/kg TS nur geringe Gehalte (Bestimmungsgrenze 0,001 mg/kg TS). Sie liegen im Mineralboden alle unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Maximalwerte wurden auch für DDD und DDE im Oberboden gemessen, und sie liegen sogar im Unterboden noch deutlich über den Werten im Auflagehumus, was wiederum auf den Sonderfall LBNH zurückzuführen ist. Ein Vergleich von BDF-F mit Nadelbaum- und Laubbaumbeständen zeigt auch für die Abbauprodukte des DDT höhere Werte für die Nadelbaumbestockung. Insgesamt sind insbesondere die Konzentrationen von DDT auf den BDF-F und zwischen den Tiefenstufen sehr unterschiedlich. Dabei wird die Verteilung von vielen niedrigen und wenigen hohen Gehalten geprägt, was sich in der großen Differenz von Median- und Maximalwerten ausdrückt.

Tab. 17: Statistische Kenngrößen der DDT-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		<b>N</b>	<b>Minimum</b>	<b>10 %</b>	<b>25 %</b>	<b>Median</b>	<b>75 %</b>	<b>90 %</b>	<b>Maximum</b>
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,009</b>	<b>0,036</b>	<b>0,098</b>	<b>0,712</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	0,004	0,011	0,018	0,034
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	0,025	0,060	0,112	0,712
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,014</b>	<b>0,041</b>	<b>0,136</b>	<b>0,708</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	0,013	0,028	0,039	0,056
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	0,016	0,095	0,143	0,708
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,006</b>	<b>4,191</b>				
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,012	0,027				
	Nadelbaumfl.	105	< BG	4,191					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>1,917</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	0,029					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	1,917					

Tab. 18: Statistische Kenngrößen der HCH (Summe)-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,012</b>	<b>0,143</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	0,004	0,010				
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	< BG	0,007	0,016	0,143
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,006</b>	<b>0,011</b>	<b>0,030</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,006	0,008	0,010
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	< BG	0,007	0,018	0,030
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,171</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,015					
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,171					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,113</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	< BG					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	0,113					

Tab. 19: Statistische Kenngrößen der DDE-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,009</b>	<b>0,014</b>	<b>0,064</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,009	0,011
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	0,007	0,011	0,018	0,064
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,005</b>	<b>0,012</b>	<b>0,020</b>	<b>0,036</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	0,008	0,012	0,019	0,021
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	0,003	0,012	0,026	0,036
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,003</b>	<b>0,244</b>				
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,005	0,011				
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,244					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,171</b>					
	Laubbaumfl.	69	< BG	0,012					
	Nadelbaumfl.	103	< BG	0,171					

Die statistischen Kenngrößen für die Gehalte von Aldrin, Dieldrin und Endrin sind in den Tabellen 20 – 22 enthalten. Die Minimal- und Medianwerte aller Tiefenstufen und Nutzungen

liegen unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Maximalwerte nehmen von der Humusauf-lage zum Mineralboden stark ab.

Tab. 20: Statistische Kenngrößen der Aldrin-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,0045</b>	<b>0,062</b>				
	Laubbaumfl.	35	< BG	0,008	0,062				
	Nadelbaumfl.	50	< BG	0,025					
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,003</b>					
	Laubbaumfl.	20	< BG						
	Nadelbaumfl.	47	< BG	0,003					
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,011</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG						
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,011					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>						
	Laubbaumfl.	69	< BG						
	Nadelbaumfl.	103	< BG						

Tab. 21: Statistische Kenngrößen der Dieldrin-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		N	Minimum	10 %	25 %	Median	75 %	90 %	Maximum
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,003</b>	<b>0,005</b>	<b>0,010</b>
	Laubbaumfl.	35	< BG	0,003	0,005				
	Nadelbaumfl.	50	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,007	0,010
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,007</b>	<b>0,059</b>
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,005	0,006
	Nadelbaumfl.	47	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,008	0,059
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,019</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,004					
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,019					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>						
	Laubbaumfl.	69	< BG						
	Nadelbaumfl.	103	< BG						

Tab. 22: Statistische Kenngrößen der Endrin-Gehalte in Böden niedersächsischer BDF-F [mg/kg TS].

		<b>N</b>	<b>Minimum</b>	<b>10 %</b>	<b>25 %</b>	<b>Median</b>	<b>75 %</b>	<b>90 %</b>	<b>Maximum</b>
<b>L/Of-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>85</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,004</b>	<b>0,022</b>				
	Laubbaumfl.	35	< BG	0,006	0,016				
	Nadelbaumfl.	50	< BG	0,003	0,022				
<b>Oh-Lage</b>	<b>Alle</b>	<b>67</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,006</b>	<b>0,026</b>				
	Laubbaumfl.	20	< BG	< BG	< BG	< BG	0,004	0,010	0,011
	Nadelbaumfl.	47	< BG	0,026					
<b>0 – 10 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>173</b>	<b>&lt; BG</b>	<b>0,011</b>					
	Laubbaumfl.	68	< BG	0,004					
	Nadelbaumfl.	105	< BG	0,011					
<b>10 – 50 cm</b>	<b>Alle</b>	<b>172</b>	<b>&lt; BG</b>						
	Laubbaumfl.	69	< BG						
	Nadelbaumfl.	103	< BG						

## 5 Vorräte organischer Schadstoffe in Waldböden

Die Menge (= Vorrat) eines Stoffes in einer Humuslage bzw. einer Tiefenstufe des Mineralbodens errechnet sich durch Multiplikation der Stoffkonzentration mit der entsprechenden Feinboden- bzw. Humusmenge. Für Gehalte unter der unteren Bestimmungsgrenze wurde der Wert der halben unteren Bestimmungsgrenze eingesetzt.

Da die Konzentrationen von organischen Schadstoffen sehr häufig im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze liegen, ist die Berechnung von Schadstoffmengen mit einem hohen Fehler behaftet.

Insbesondere im Mineralboden liegen die Konzentrationen der organischen Schadstoffe meist unter der unteren Bestimmungsgrenze. Die Dichte des Mineralbodens ist zudem wesentlich höher, als die Dichte der Humusaufgabe, was bei gleicher Schichtdicke zu wesentlich höheren Mengen führt. Daher ist damit zu rechnen, dass der Fehler der berechneten Schadstoffmengen im Mineralboden relativ hoch ist.

Da die Konzentrationen der PAK, PCB, HCB, HCH, DDT, DDD und DDE in der Humusaufgabe überwiegend wesentlich über der unteren Bestimmungsgrenze liegen, wurden für diese Schadstoffe für die L/Of-Lage und die Oh-Lage die Vorräte berechnet.

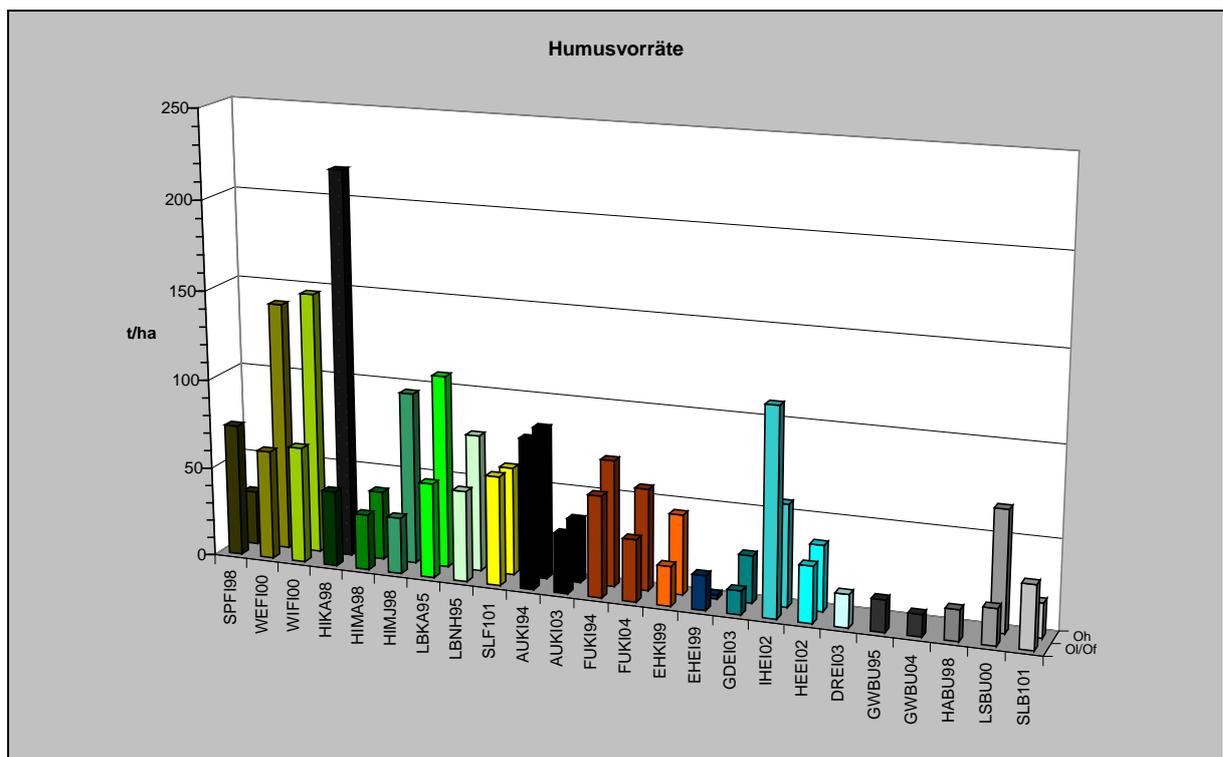


Abb. 44: Humusvorräte der L/Of- und Oh-Lage in t/ha.

Die Humusvorräte liegen zwischen 12 und 259 t/ha und sind damit sehr unterschiedlich. Der Humusvorrat ist abhängig von den bodenchemischen und bodenbiologischen Bedingungen auf der Fläche, die Baumart spielt hier nur eine untergeordnete Rolle. Eine weitere Rolle können das Bestandesalter und eine Verände-

rung der Humusaufgabe durch z. B. Melioration vor der Begründung des Bestandes spielen.

Durch die unterschiedlich großen Humusvorräte auf den Flächen sind die Unterschiede zwischen Konzentrationen und Vorräten der organischen Schadstoffe bedingt.

Die Varianz der Humusaufgabe ist je nach Fläche unterschiedlich hoch und kann z. B. auf der BDF-F FUKI, wo vor Begründung des Bestandes der Humus in Form von Beeten neu angeordnet wurde, erhebliche Ausmaße annehmen.

## 5.1 PAK

Da für den ganzen Zeitraum 1994 – 2004 die Messungen der 6 PAK nach der TrinkwV vorliegen, wird für die folgenden Betrachtungen die Summe dieser 6 PAK verwendet.

Die PAK6-Vorräte sind, wie die Konzentrationen in der Oh-Lage, wesentlich höher als in der L/Of-Lage. Die höchsten Vorräte wurden im Humus der Fichtenflächen gefunden. Im Humus der Kiefernflächen sind sie im Mittel niedriger. Die Humusaufgaben der Laubbaumflächen weisen noch niedrigere Vorräte auf (s. Abb. 45).

Tab. 23: Minima und Maxima der PAK6-Vorräte auf BDF-F [g/ha].

	<b>BDF-F mit Fichtenbeständen</b>	<b>BDF-F mit Kiefernbeständen</b>	<b>BDF-F mit Laubbaumbeständen</b>
<b>L/Of-Lage</b>	47 – 279	16 – 134	1 – 57
<b>Oh-Lage</b>	194 – 2 026	74 – 277	2 – 208
<b>L/Of + Oh</b>	286 – 2 230	90 – 411	1 – 212

Auf den BDF-F AUKI, FUKI und GWBU, für die Wiederholungsinventuren vorliegen, konnten folgende Änderungen der PAK6-Vorräte gefunden werden: Für die BDF-F AUKI gibt es 1994 nur für die L/Of-Lage Messwerte. Hier nahmen die Vorräte um 85 % ab. In der L/Of-Lage der BDF-F FUKI konnte eine Abnahme von > 50 %, in der Oh-Lage um sogar 90 % festgestellt werden. Die Vorräte der BDF-F GWBU lagen an beiden Terminen im Bereich der unteren Bestimmungsgrenze.

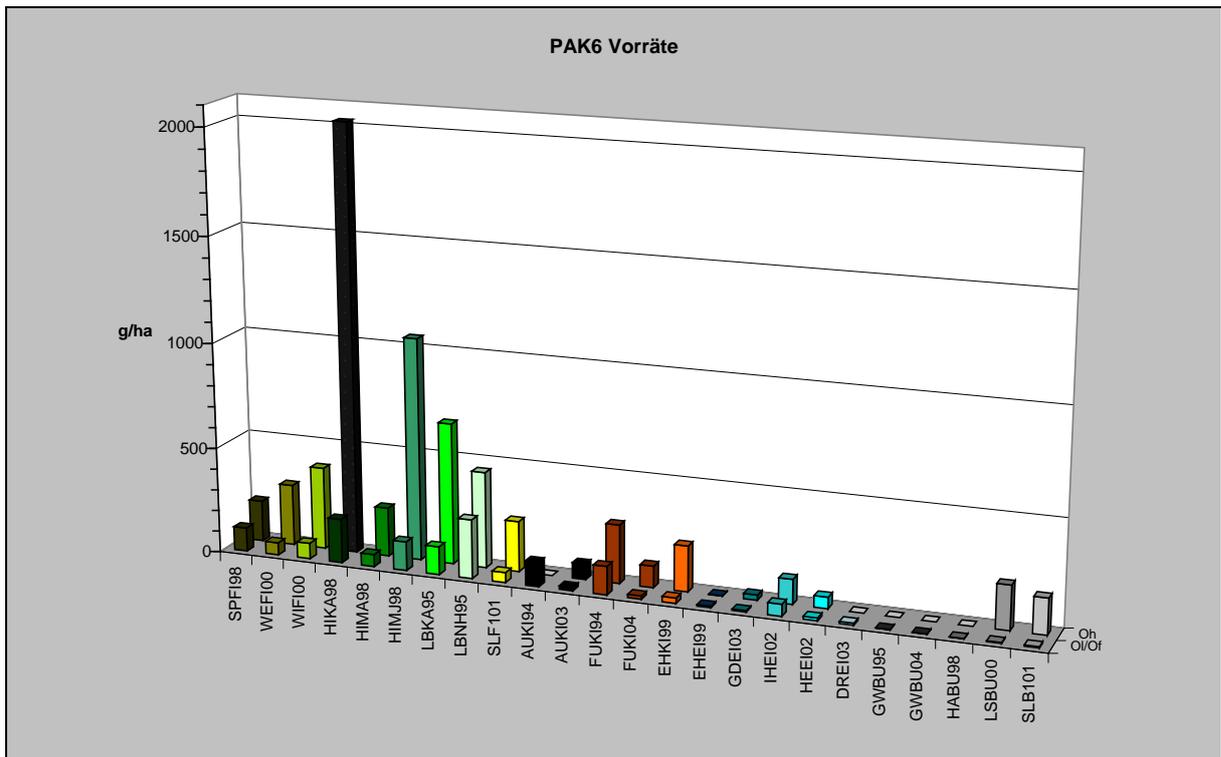


Abb. 45: PAK6-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

## 5.2 PCB6

Beim Vergleich der PCB6-Vorräte zwischen L/Of- und Oh-Lage konnten gleiche Verhältnisse wie bei den PCB6-Konzentrationen gefunden werden. Es gibt auch hier höhere, gleich hohe oder niedrigere Vorräte in beiden Humuslagen.

Die BDF-F mit Nadelbaumbeständen weisen im Vergleich zu den BDF-F mit Laubbaumbeständen höhere PCB6-Vorräte im gesamten Humus auf (s. Abb. 46). Einzige Ausnahme bildet die BDF-F Ehrhorn, Kiefer (EHKI), die, wie auch die unmittelbar benachbarte BDF-F Ehrhorn, Eiche (EHEI), mit PCB6 gering belastet ist. Gering belastet sind weiterhin die BDF-F HABU und GWBU. Relativ hoch belastet ist die Humusaufgabe der Laubbaumflächen LSBU und HEEI. Auf diesen BDF-F liegen die Vorräte im Humus mit Werten von 3 g/ha (LSBU) und 4 g/ha (IHEI) im Bereich der BDF-F mit Nadelbaumbeständen.

Tab. 24: Minima und Maxima der PCB6-Vorräte auf BDF-F [g/ha].

	Nadelbaumflächen	Laubbaumflächen
<b>L/Of-Lage</b>	0,1 – 3,7	0,1 – 1,9
<b>Oh-Lage</b>	0,2 – 5,1	0 – 2,6
<b>L/Of + Oh</b>	0,4 – 6,8	0,1 – 3,95

Eine zeitliche Veränderung der PCB6-Vorräte kann nur für die BDF-F AUKI und FUKI festgestellt werden, da sie für die BDF-F GWBU an beiden Terminen im Bereich der unteren Bestimmungsgrenze lagen. In der L/Of-Lage nahmen die Vorräte auf der BDF-F AUKI um 90 %, auf der BDF-F FUKI sogar um ca. 75 % ab. In der Oh-Lage der BDF-F FUKI war eine Abnahme von 30 % festzustellen.

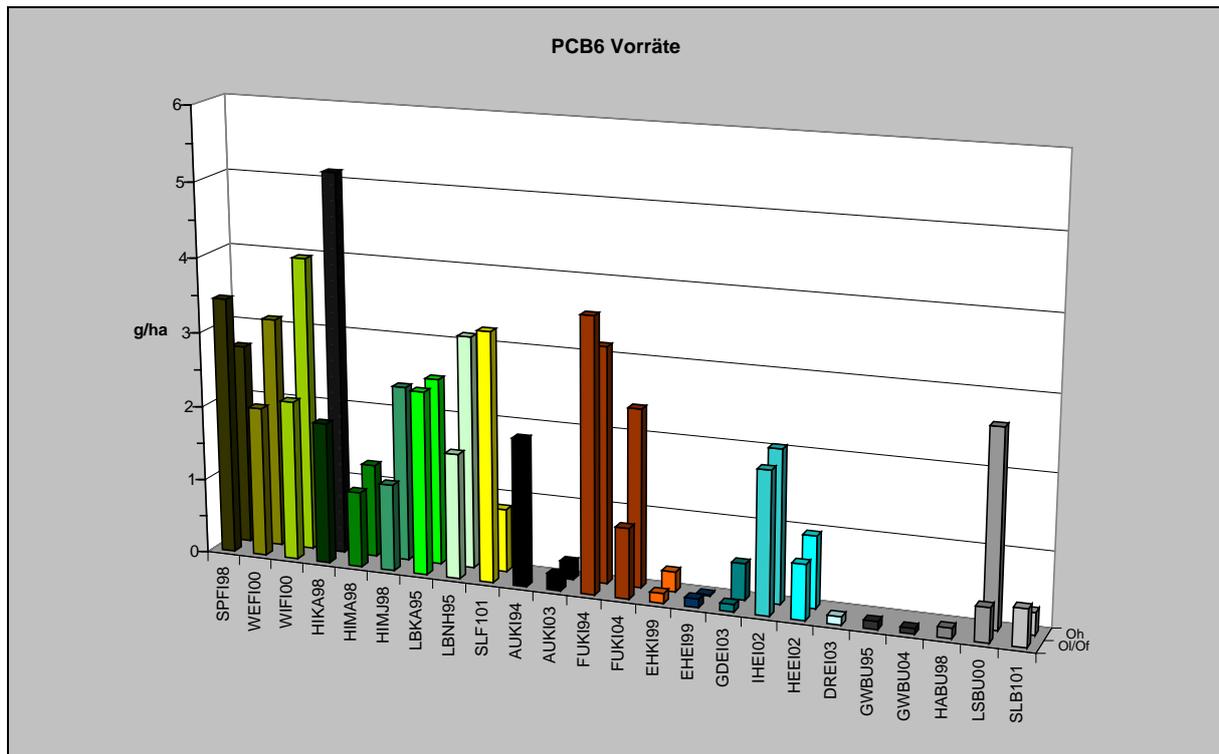


Abb. 46: PCB6-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

### 5.3 HCB

Auch bei den Hexachlorbenzol-Vorräten konnten sehr unterschiedliche Mengen gefunden werden. Es konnte keine Tendenz zu höheren Vorräten in einer der beiden Humuslagen gefunden werden.

Vergleicht man BDF-F mit Fichten-, Kiefern- und Laubbaumbeständen, so konnten die höchsten Vorräte im Humus von Fichtenbeständen, gefolgt von Kiefern- und Laubbaumbeständen gefunden werden (s. Abb. 47). Es gibt jedoch in jeder Gruppe fast unbelastete Flächen (DREI, EHEI, GWBU (nur 1995), SLF1). Von den BDF-F mit Fichtenbeständen ist LBNH mit Werten von 3,12 g/ha in der L/Of-Lage und 0,9 g/ha im Oh die am höchsten belastete Fläche, von den Laubbaumflächen die BDF-F LSBU mit 1,2 g/ha.

Tab. 25: Minima und Maxima der HCB-Vorräte auf BDF-F [g/ha].

	Fichtenflächen	Kiefernflächen	Laubbaumflächen
<b>L/Of-Lage</b>	0,13 – 3,12	0,08 – 0,67	0 – 0,51
<b>Oh-Lage</b>	0,04 – 1,1	0,3 – 0,46	0 – 0,7
<b>L/Of + Oh</b>	0,2 – 4,0	0,3 – 1,1	0 – 1,2

Zeitliche Veränderungen der HCB-Vorräte konnten auf allen drei Flächen (AUKI, FUKI, GWBU) beobachtet werden. Auf den Flächen AUKI und FUKI nahmen die Vorräte im untersuchten Zeitraum ab, AUKI L/Of um ca. 70 %, FUKI L/Of um ca. 50 % und Oh um 30 %. Die BDF-F GWBU, die 1995 mit einem Wert von 0,02 g/ha unbelastet war, hatte bei der Wiederholungsinventur 2004 einen Vorrat von 0,26 g/ha.

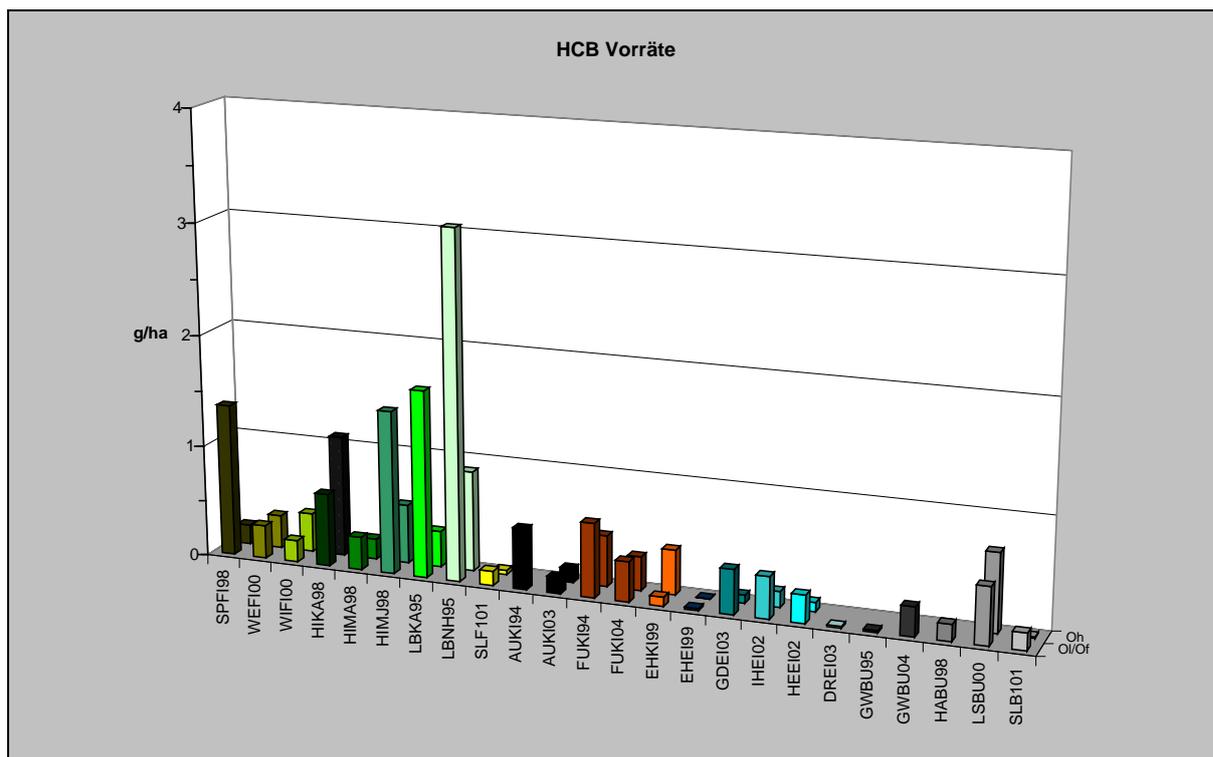


Abb. 47: HCB-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

## 5.4 HCH

Wie bei den HCH-Konzentrationen zeigt sich auch bei den Vorräten ein uneinheitliches Bild. Es konnte weder eine Neigung zu höheren Vorräten in einer der Humuslagen noch ein Unterschied der Vorräte von Nadel- und Laubbaumbeständen gefunden werden.

Auch bei den HCH-Isomeren konnten sehr unterschiedliche Mengen gefunden werden. Auf höher belasteten BDF-F wurden Lindan-Vorräte über 1 g/ha (s. Abb. 48), sowie  $\alpha$ - bzw.  $\beta$ -HCH-Vorräte über 0,3 g/ha gefunden (s. Abb. 49 und 50).

Die zeitlichen Veränderungen sind wie folgt: In der L/Of-Lage der BDF-F AUKI nahmen die  $\alpha$ -HCH-Vorräte um ca. 45 %, die  $\beta$ -HCH-Vorräte um ca. 85 % und die  $\gamma$ -HCH-Vorräte (Lindan) sogar um fast 95 % ab. In der L/Of-Lage der BDF-F FUKI hat der Lindan-Vorrat um 60 % abgenommen, in der Oh-Lage konnte keine Veränderung festgestellt werden. Die Abnahme von  $\alpha$ -HCH und  $\beta$ -HCH war in beiden Humuslagen im untersuchten Zeitraum mit 80 – 90 % noch höher. Im Humus der BDF-F GWBU konnten keine wesentlichen Veränderungen bei den insgesamt sehr niedrigen Vorräten von  $\alpha$ - und  $\beta$ -HCH beobachtet werden. Der Lindanvorrat hat in diesem Zeitraum von 0,12 auf 0,27 g/ha auf mehr als das Doppelte zugenommen.

Tab. 26: Minima und Maxima der  $\alpha$ -HCH-,  $\beta$ -HCH- und  $\gamma$ -HCH-Vorräte (Lindan) auf BDF-F [g/ha].

### $\alpha$ -HCH

	Nadelbaumflächen	Laubbaumflächen
L/Of-Lage	0,04 – 0,28	0 – 0,22
Oh-Lage	0,02 – 0,35	0 – 0,03 (0,32 LSBU)
L/Of + Oh	0,07 – 0,46	0 – 0,48

### $\beta$ -HCH

	Nadelbaumflächen	Laubbaumflächen
L/Of-Lage	0 – 0,64 (1,74 WEFI)	0 – 0,49
Oh-Lage	0 – 0,75	0 – 0,37
L/Of + Oh	0 – 0,91 (1,81 WEFI)	0 – 0,86

### $\gamma$ -HCH

	Nadelbaumflächen	Laubbaumflächen
L/Of-Lage	0,04 – 1,14	0,01 – 1,73
Oh-Lage	0,06 – 0,74	0,01 – 0,17 (0,85 LSBU)
L/Of + Oh	0,09 – 1,81	0,01 – 1,64 (2,58 LSBU)

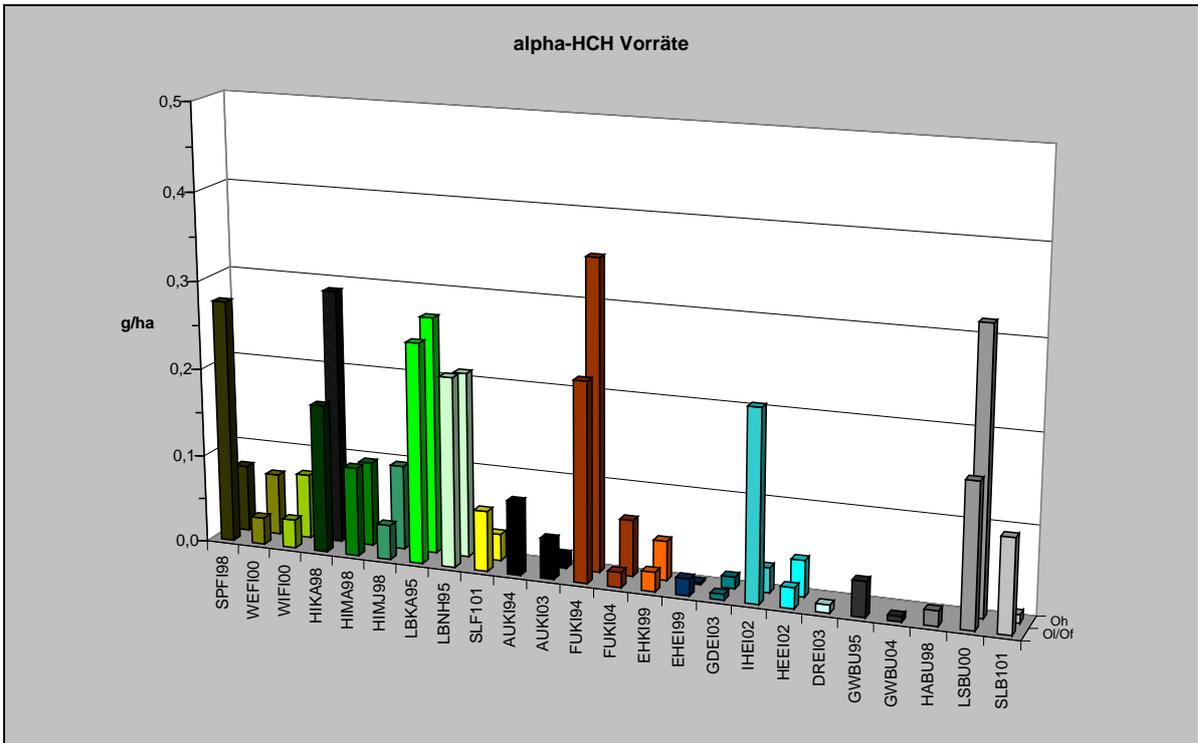


Abb. 48:  $\alpha$ -HCH-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

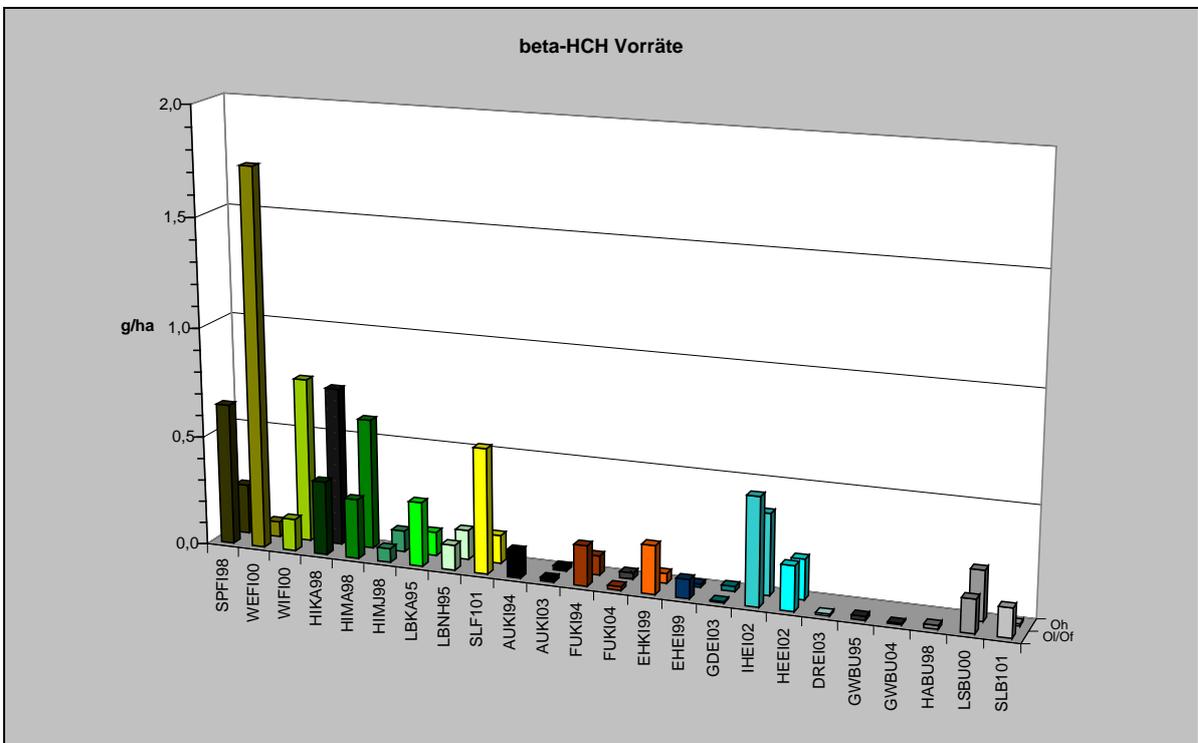


Abb. 49:  $\beta$ -HCH-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

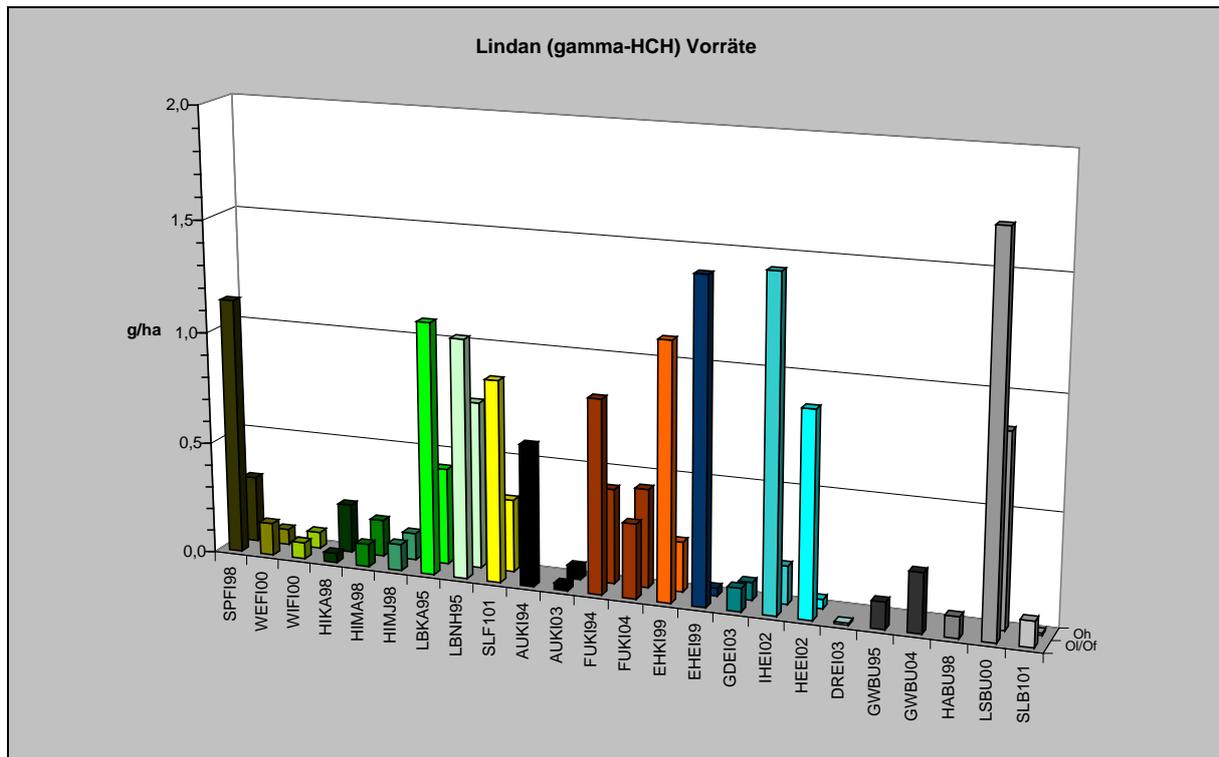


Abb. 50:  $\gamma$ -HCH-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

## 5.5 DDT / DDD / DDE

Die Vorräte von DDT und seinen Abbauprodukten sind sehr unterschiedlich (s. Abb. 51 – 53).

Zwischen L/Of- und Oh-Lage konnte kein Trend zu höheren Vorräten in einer der Humuslagen gefunden werden.

Ein Vergleich von Nadelbaum- und Laubbaumflächen zeigt im Mittel höhere Vorräte von DDT, DDD und DDE auf den Nadelbaumflächen, als auf den Laubbaumflächen. Als besonders hoch mit DDT belastet sind beide Humuslagen der Nadelbaumfläche FUKI und der Laubbaumfläche LSBU anzusehen. Auf der

BDF-F LSBU sind auch die Vorräte der Abbauprodukte DDD und DDE, auf der BDF-F FUKI die des Abbauproduktes DDE sehr hoch. Als fast unbelastet mit DDT sind die BDF-F AUKI, EHEI, DREI, GWBU, HABU und SLB1 anzusehen. Unbelastet mit den Abbauprodukten DDD und DDE ist die Humusaufgabe der BDF-F EHEI, GWBU und HABU. Gering belastet sind die Auflagen der BDF-F SLB1 und DREI. Dies lässt den Schluss zu, dass die BDF-F EHEI, GWBU und HABU im Untersuchungszeitraum als unbelastet einzustufen sind, bzw. die DDT-Ausbringung auf den BDF-F SLB1, DREI und AUKI schon längere Zeit zurückliegt.

Tab. 27: Minima und Maxima der DDT-, DDD- und DDE-Vorräte auf BDF-F [g/ha].

### DDT

	Fichtenflächen	Kiefernflächen	Laubbaumflächen
<b>L/Of-Lage</b>	0,12 – 6,4	0,07 – 0,75 (8,22 FUKI94)	0,04 – 0,38
<b>Oh-Lage</b>	0,29 – 7,79	0,13 – 2,56 (15,1 FUKI94)	0,08 – 0,62 (1,4 LSBU)
<b>L/Of + Oh</b>	0,75 – 10,6	0,17 – 3,3 (23,4 FUKI94)	0,05 – 1,0 (1,62 LSBU)

### DDD

	Fichtenflächen	Kiefernflächen	Laubbaumflächen
<b>L/Of-Lage</b>	0,03 – 1,95	0,05 – 0,09 (0,30 FUKI94)	0,01 – 0,2
<b>Oh-Lage</b>	0,04 – 1,0	0,06 – 0,17 (0,72 FUKI94)	0,01 – 0,26 (0,50 LSBU)
<b>L/Of + Oh</b>	0,07 – 1,99	0,08 – 0,29 (1,0 FUKI94)	0,01 – 0,52

### DDE

	Fichtenflächen	Kiefernflächen	Laubbaumflächen
<b>L/Of-Lage</b>	0,06 – 0,92	0,07 – 0,57 (2,15 FUKI94)	0,02 – 0,36
<b>Oh-Lage</b>	0,20 – 1,32	0,1 – 0,61 (1,09 FUKI94)	0,02 – 0,57 (1,27 LSBU)
<b>L/Of + Oh</b>	0,32 – 1,47	0,14 – 0,74 (3,24 FUKI94)	0,02 – 0,93 (1,46 LSBU)

Die DDT-Vorräte der BDF-F FUKI nahmen in zehn Jahren in der L/Of-Lage von 8,22 auf 0,07 g/ha und in der Oh-Lage von 15,1 auf 2,11 g/ha ab. Die DDE-Vorräte nahmen in der L/Of-Lage von 2,15 auf 0,07 g/ha ab. In der Oh-Lage nahmen sie, wie auch die DDD-Vorräte der L/Of- und der Oh-Lage, auf ungefähr ein Drittel ab. In der L/Of-Lage der BDF-F AUKI konnte nur beim DDE eine starke Abnahme beobachtet werden. Im Humus der BDF-F GWBU lagen die DDX-Vorräte im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze.

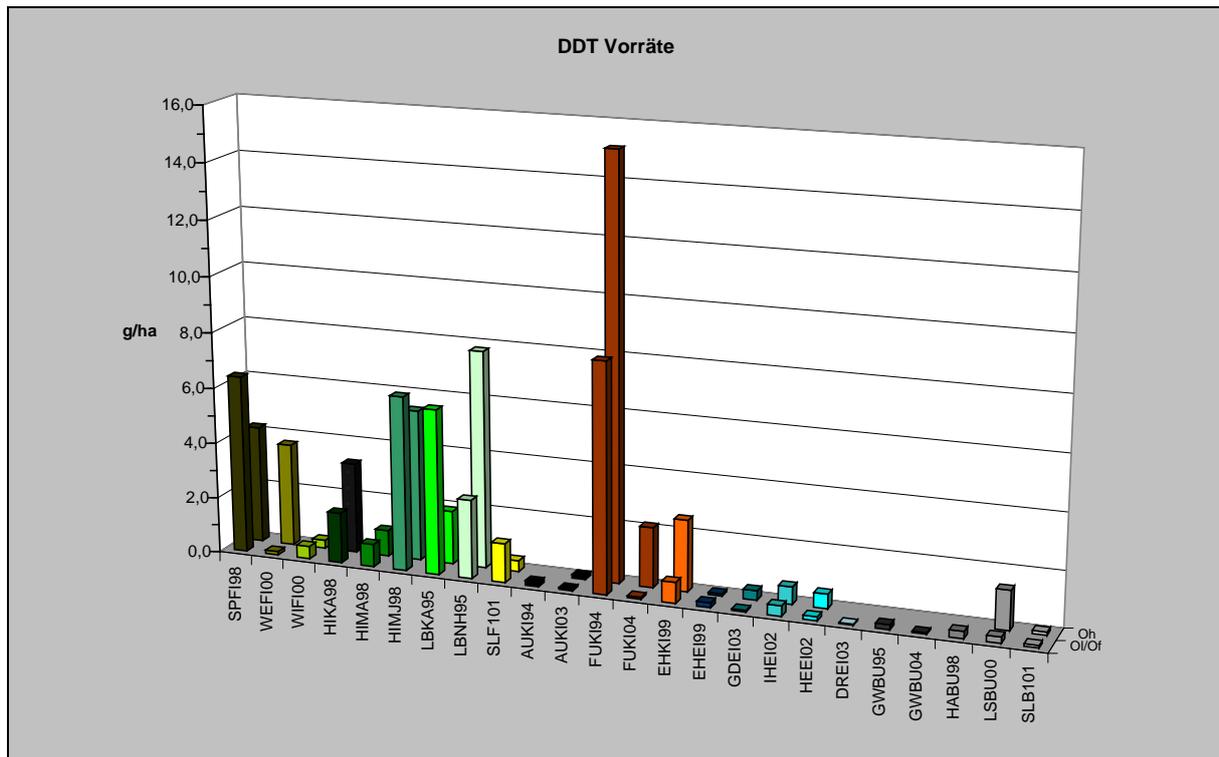


Abb. 51: DDT-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

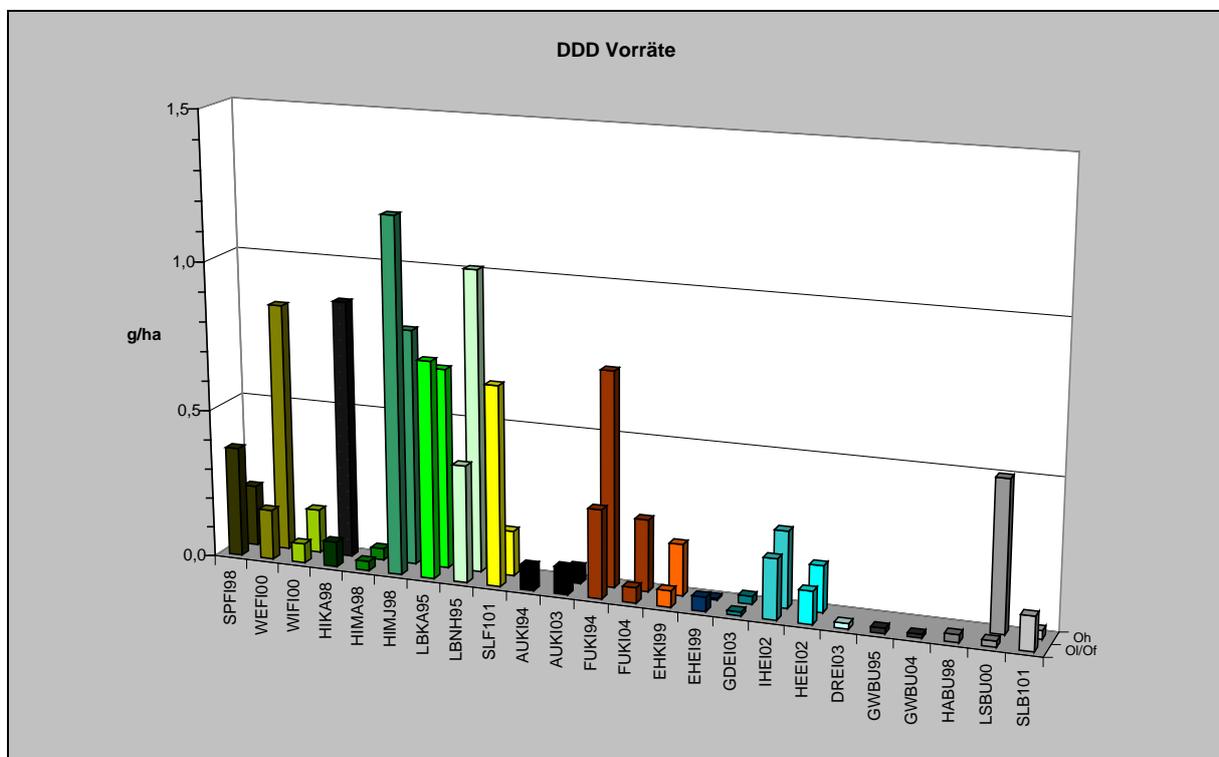


Abb. 52: DDD-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

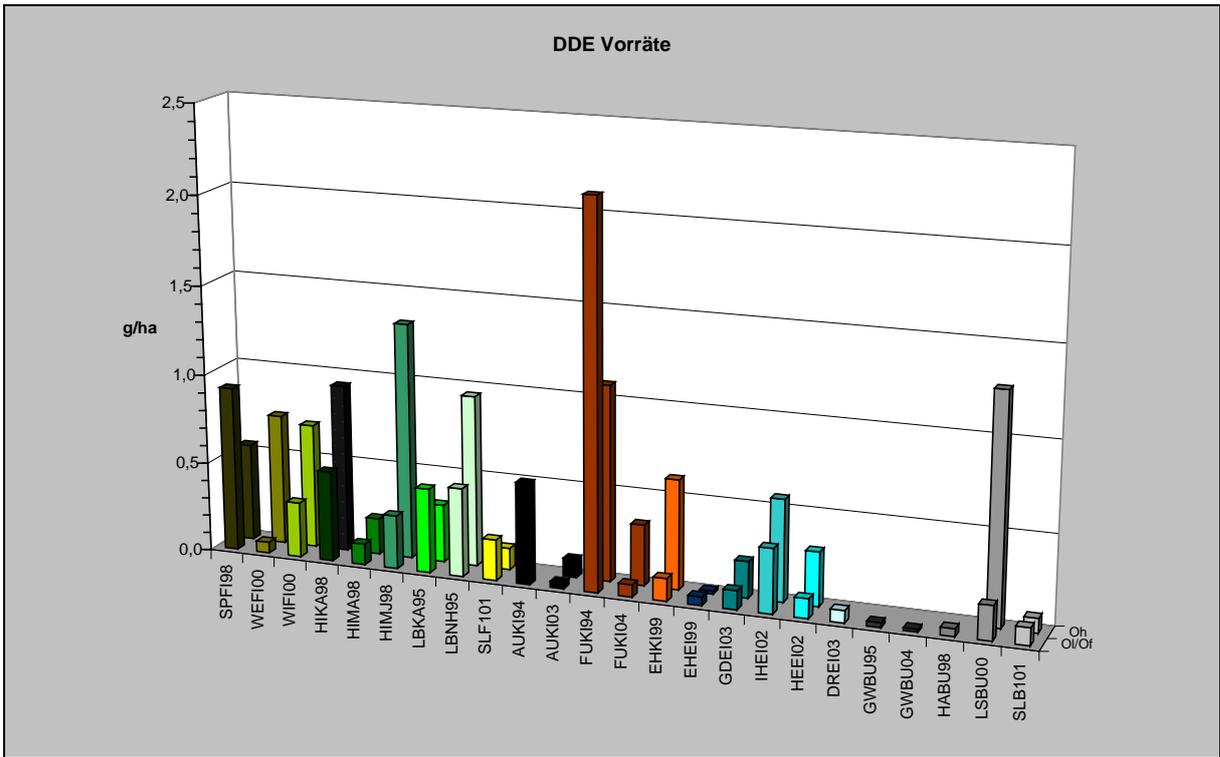


Abb. 53: DDE-Vorräte in Böden der BDF-F in g/ha.

## 6 Diskussion

Waldböden akkumulieren wegen der hohen Filterleistung der Bäume (insbesondere der Nadelbäume) Schadstoffe, die wie z. B. PAK (KNOCHE et al. 1995) und PCB hauptsächlich mit der Luft transportiert werden. Sie stellen für diese Stoffe langfristige Senken dar (WEISS et al. 2000). Alle hier untersuchten Flächen liegen in so genannten Reinluftgebieten, weit entfernt von Ballungsräumen und Emittenten. Sie sind deshalb für die Ableitung von Hintergrundwerten und für die Beurteilung der Belastungssituation von Böden geeignet. Die in Waldböden gefundenen Konzentrationen sind ein guter Indikator für die atmogene Belastung mit diesen Stoffen. Wiederholungsinventuren dokumentieren zudem zeitliche Veränderungen des Eintrags dieser Stoffe.

Die hier ebenfalls untersuchten chlorierten Kohlenwasserstoffe (HCB, HCH (Lindan), DDT, Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor und Heptachlorepoxyd) wurden antropogen in den Wald eingebracht. Da alle diese Verbindungen inzwischen verboten sind, soll die aktuelle Belastungssituation und ihre Veränderung untersucht werden.

Die in dieser Untersuchung gemessenen organischen Schadstoffe wurden bisher nicht mit den neuartigen Waldschäden in Verbindung gebracht. In den derzeit nachzuweisenden Konzentrationen erscheint es eher unwahrscheinlich, dass diese Substanzen einen direkten negativen Einfluss auf Waldbäume ausüben können (WEISS et al. 1996)

### 6.1 PAK

Die Verbreitung von PAK in der Umwelt findet fast ausschließlich partikelgebunden über den Luftweg statt. In Trockenzeiten werden niedermolekulare PAK auch direkt aus der Gasphase ausgekämmt. 90 % der so verbreiteten PAK konnten von WILD & JONES (1995) im Boden Großbritanniens gefunden werden. Unterschiedliche PAK-Konzentrationen können je nach Nutzungsart gefunden werden. So fanden TERYTZE et al. (1998) ein PAK-Verhältnis von 5 : 3 : 2 : 1 für Humusauflage-Wald : Mineralboden-Wald : Grünlandboden : Ackerboden. Eine Untersuchung in Baden-Württemberg fand abnehmende PAK-Konzentrationen in der

Reihe Waldboden, Ackerboden, Grünlandboden (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). HOWSAM et al. (2000) fanden ebenfalls wesentlich höhere PAK-Konzentrationen im Humus von Wäldern als in Grünlandböden, was sie mit dem „Auskämmeffekt“ von Bäumen erklären.

Im Boden aller hier untersuchten Standorte konnten PAK nachgewiesen werden, und die Konzentrationen lagen über dem Referenzwert der Niederländischen Liste (1994) für nicht kontaminierte Böden (s. Abb. 9 – 11). Ähnliche Ergebnisse wurden in einer Untersuchung in Baden-Württemberg gefunden (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). Im Humus von drei der hier untersuchten Flächen wurde der Vorsorgewert der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) überschritten (HIKA, HIMJ und SLB1). Während auf dem Buchenstandort im Solling spezielle Verhältnisse vorliegen (s. u.), ist die atmogene Belastung im Hils, insbesondere in Kammlage (HIKA), offensichtlich besonders hoch.

Im Humus konnten wesentlich höhere Werte als im Mineralboden gefunden werden. Es wurden die höchsten Konzentrationen in der Oh-Lage gefunden (Median 3 107 µg/kg TS, Tab. 9), niedrigere Konzentrationen in der L/Of-Lage (Median 763 µg/kg TS, Tab. 9). Im Oberboden wurden wesentlich niedrigere Konzentrationen gefunden (Median 171 µg/kg TS, Tab. 9), während die Werte im Unterboden meist im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze lagen. Das Verhältnis der Konzentrationen von Oh-Lage und Oberboden ist sehr verschieden. Es liegt zwischen 2 : 1 und 20 : 1 (s. Abb. 9 – 11). Aufgrund der wesentlich geringeren Dichte der Humusauflage ist die Differenz der Vorräte von Humusauflage und Mineralboden geringer (HARTMANN 1995). Dies konnte für einzelne Flächen, deren Konzentrationen im Mineralboden über der unteren Bestimmungsgrenze lagen, bestätigt werden.

Dass PAK in der Humusauflage akkumuliert werden, deckt sich mit Literaturangaben. So fanden PICHLER et al. (1996), PICHLER et al. (1995) und WILCKE (2000) ebenfalls eine Akkumulation dieser Verbindungen im Auflagehumus und PICHLER et al. (1995) und KNOCHE et al. (1995) an allen von ihnen untersuchten Standorten eine starke Abnahme der PAK-Konzentrationen mit der Tiefe. PAK sind hauptsächlich in der Humusauflage und in der Grob-

ton- und Schlufffraktion des Mineralbodens zu finden, da hier bevorzugt organische Substanzen mit einem hohen Anteil an aromatischen Strukturen zu finden sind, zu denen PAK eine besondere Affinität haben (CHRISTENSEN 1992, MCCARTHY et al. 1989, PICHLER et al. 1995). Die Zunahme der PAK-Konzentration mit zunehmendem Zersetzungsgrad  $L < Of < Oh$  lässt sich durch die schnellere Mineralisation der organischen Substanz im Vergleich zur Zersetzung der PAKs erklären (BERTEIGNE et al. 1988, HARTMANN 1995, PICHLER et al. 1996, KRAUSS et al. 2000, MATZNER et al. 1981). Die in der Humusaufgabe gefundenen Konzentrationen sind vergleichbar mit in anderen Untersuchungen gefundenen Werten (GUGGENBERGER et al. 1996, PICHLER et al. 1996, WILCKE & ZECH 1997, LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). Die im Mineralboden gefundenen Konzentrationen liegen in der Größenordnung einer Untersuchung von unbelasteten Böden (KNOCHE et al. 1994, KNOCHE et al. 1995), einer 1992 – 1994 in Baden-Württemberg durchgeführten Untersuchung von Waldböden (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999) und von Waldböden unter Fichte (KRAUSS et al. 2000, GUGGENBERGER et al. 1996, PICHLER et al. 1996, WILCKE & ZECH 1997). Der PAK-Hintergrundgehalt eines Bodens stammt z. T. aus natürlichen Quellen, hauptsächlich jedoch aus dem jahrzehntelangen Eintrag anthropogener PAK über die Luft. In einer Zusammenfassung der LABO von 1998 werden folgende Hintergrundwerte als 50. und 90. Perzentil für die Humusaufgabe von Waldböden angegeben: 0,1 – 3 mg/kg TS (50. Perzentil) und 0,5 – 11 mg/kg TS (90. Perzentil) (LABO – BUNDLÄNDER-ARBEITSGEMEINSCHAFT BODENSCHUTZ 1998). Die aus dieser Untersuchung abgeschätzten Hintergrundwerte liegen mit 0,8 mg/kg TS (L/Of-Lage) und 3,1 mg/kg TS (Oh-Lage) 50. Perzentil, bzw. 1,9 mg/kg TS (L/Of-Lage), bzw. 11 mg/kg TS (Oh-Lage) 90. Perzentil in der gleichen Größenordnung. Für ausschließlich natürliche Prozesse werden von WILCKE (2000) Hintergrundwerte von 1 – 10 µg/kg TS abgeschätzt.

PAK können trotz ihrer geringen Wasserlöslichkeit auch im Mineralboden nachgewiesen werden, da PAK mit weniger als vier kondensierten Ringen gelöst (GUGGENBERGER et al. 1996) und PAK mit höherem Molekulargewicht adsorbiert an gelöste organische Substanz in die Tiefe transportiert werden können (WILCKE

2000, MARSCHNER 1999, MAXIN & KOGEL 1995). Die Tiefenverlagerung der partikelgebundenen PAK findet in Abhängigkeit vom chemischen Bodenzustand in sehr unterschiedlichem Maße statt. Die Verlagerung der PAK ist insgesamt gering und geht in der Regel nicht über den Oberboden hinaus. PAK mit mehr als vier kondensierten Ringen werden unabhängig von ihrem Molekulargewicht und ihrer Wasserlöslichkeit in die Tiefe verlagert, was ebenfalls ein Hinweis auf den partikelgebundenen Transport ist (JONES et al. 1989). Gelöste PAK werden in größerem Ausmaß als adsorbierte PAK in die Tiefe verlagert. Der Anteil der sechs PAK nach TrinkwV an der Summe der 16 PAK nach EPA verringert sich deshalb mit zunehmender Tiefe (s. Tab. 5). Alle sechs PAK nach TrinkwV haben mehr als drei aromatische Ringe. Unter den 16 PAK nach EPA sind acht PAK mit weniger als vier aromatischen Ringen. Auch WEISS (1998) fand eine größere Tiefenverlagerung niedermolekularer PAK als höhermolekularer PAK in einer Untersuchung von Waldböden in Österreich. Die Tiefenverlagerung von organischer Substanz nimmt mit abnehmendem pH-Wert zu, die von PAK jedoch nicht. Dies ist auf die steigende Mobilität organischer Säuren mit sinkendem pH-Wert zurückzuführen, die eine geringe Affinität zu PAK haben (MARSCHNER 1995). Auf Moorstandorten mit niedrigen pH-Werten, hohem wechselndem Wasserstand und der Anwesenheit von Fulvo- und Huminsäuren ist die Mobilität von PAK wesentlich höher (KNOCHE et al. 1995). In Moorböden können PAK außerdem durch die Kondensation von Huminsäuren gebildet werden oder durch sich zersetzende Pflanzenteile entstehen (KNOCHE et al. 1995). Dies erklärt, dass im Boden des Moorstandortes Drömling (DREI) PAK bis in 50 cm Tiefe in höherer Konzentration gefunden werden konnten (s. Abb. 9 – 11).

Auf den mit unterschiedlichen Baumarten bestockten Flächen konnten die höchsten Konzentrationen im Humus und Mineralboden von Fichtenflächen (Median Oh-Lage 4 023 µg/kg TS, Tab. 9) gefunden werden. Auf Kiefernflächen waren die Konzentrationen niedriger. Unter Laubbäumen wurden die niedrigsten Konzentrationen gefunden (Median 2 687 µg/kg TS, Tab. 9). Bei den Vorräten (Mengen) in der Humusaufgabe lagen ähnliche Verhältnisse vor (s. Abb. 45). Mit zunehmender Meereshöhe nehmen die PAK-Werte zu. WEISS et al. (1996) fanden im Schulterberg-Profil (Österreich) und

WILCKE & ZECH (1997) im nordtschechischen Gebirge die höchsten Gehalte im Auflagehumus der höchstgelegenen Fichtenstandorte. LEUENBERGER et al. (1988) fanden, dass im Nebel die PAK-Konzentrationen wesentlich höher sind, als im Regen. Sie fanden Anreicherungsfaktoren (Regen/Nebel) für niedermolekulare PAK von 20 – 40, für hochmolekulare PAK von 30 – 140. In Kammlagen mit häufigem Nebel werden deshalb mehr PAK aus der Luft ausgekämmt und höhere Mengen im Boden gefunden. So konnte in der Oh-Lage einer Fichtenfläche in Kammlage im Hils (HIKA) 2 000 g/ha PAK<sub>6</sub> gefunden werden. Dass die PAK-Konzentrationen in der Reihe Laubbaum-, Kiefern- zu Fichtenbeständen im Mittel zunehmen, ist darauf zurückzuführen, dass die Nadelbäume ganzjährig benadelt sind und deshalb insbesondere im Winter, wo infolge der Heizperiode und des geringeren photochemischen Abbaus die PAK-Konzentrationen in der Luft besonders hoch sind (DÖRR et al. 1996), PAK aus der Luft auskämmt. Ähnliche Befunde sind in der Literatur zu finden (BLESSING 1996, TEEBAY et al. 1993, HORSTMANN & MCLACHLAN 1998, PICHLER et al. 1996). Die im Mittel geringeren Konzentrationen im Boden der Kiefernflächen, deren Nadelfläche im Vergleich zu den Fichtenflächen kleiner ist, lassen sich so ebenfalls erklären. Hiervon gibt es jedoch Ausnahmen, wie die Fläche Solling, Buche (SLB1) und die Buchenfläche Lüss, die vergleichsweise hohe PAK-Konzentrationen und Vorräte aufweisen (s. Abb. 9 – 11 und 45). Dies könnte für die BDF-F SLB1 damit erklärt werden, dass es im Solling bis zum zweiten Weltkrieg wandernde Glashütten im Wald gegeben hat, die auf die Buchenholzkohleproduktion vor Ort angewiesen waren. Diese Köhlerhütten waren in der Regel in der Nähe von Buchenbeständen. Von MATZNER (1984) wurden in den zwei Beständen im Solling vier PAK im Bestandesniederschlag gemessen und ihre Depositionsraten durch ein Kronenraummodell abgeschätzt. Er beschrieb einen bis zu 115 % höheren PAK-Eintrag im Fichtenbestand als im Buchenbestand. Fast 20 Jahre später konnten in der L/Of-Lage und Oh-Lage des Fichtenbestandes 77 g/ha bzw. 366 g/ha und in der L/Of-Lage und Oh-Lage des Buchenbestandes 9 bzw. 245 g/ha PAK<sub>6</sub> (s. Abb. 45) gefunden werden. Dass die Vorräte der Buchenfläche deutlich höher als die von MATZNER (1984) abgeschätzten Vorräte sind, könnte durch die Köhleraktivität in der Nähe dieser Fläche zu erklären sein.

Die Einträge sind infolge der strengeren Auflagen bei Verbrennungsanlagen und dem Rückgang der Verbrennung von Holz und Kohle in Hausbrandanlagen sowie Verbesserungen bei Kraftfahrzeugen zurückgegangen, was sich bei den Wiederholungsinventuren der zwei Kiefernflächen AUKI und FUKI zeigt.

Zwischen den neun bzw. zehn Jahre auseinander liegenden Beprobungen der BDF-F AUKI und FUKI konnte eine Abnahme der Konzentrationen und Vorräte im Humus (s. Abb. 14 – 16 und 45) gefunden werden. In der Humusaufgabe nahmen die Konzentrationen und Vorräte auf die Hälfte bis auf weniger als 20 % ab. Im Mineralboden konnte sowohl eine Abnahme der Konzentration auf ca. ein Drittel (AUKI), als auch eine Zunahme auf das Dreifache (FUKI) durch Tiefenverlagerung auf einem allerdings sehr niedrigen Niveau gefunden werden.

Im Boden der BDF-F GWBU konnten in beiden Probenahmejahren nur sehr geringe PAK-Konzentrationen im gesamten Profil gefunden werden. Die Bodenart dieser Fläche ist eine Rendzina über Muschelkalk mit hohen pH-Werten und guter Nährstoffversorgung. Derartige Standorte haben eine hohe biologische Aktivität und weisen entsprechend hohe Abbauraten auf. Dass der Abbau von PAK pH-abhängig ist und mit zunehmendem pH-Wert zunimmt, wird auch in der Literatur beschrieben (HARTMANN 1995). Außerdem dürften die Einträge auf dieser Buchenfläche geringer als die der Kiefernflächen AUKI und FUKI sein.

Seit Mitte der 70er Jahre werden sinkende Depositionsraten durch den Wechsel von Kohle- und Holzfeuerung zu Öl- und Gasverbrennung gefunden (WIGSTRÖM & TOLONEN 1987). Zwischen 1985 und 1995 haben die mittleren Immissionsbelastungen durch partikelgebundene PAK z. B. im Rhein-Ruhrgebiet um 68 % abgenommen. Dieser Trend stagniert seit Mitte der 90er Jahre (ELLERMANN et al. 1997, LUA NRW 1998). Untersuchungen vor Mitte der 90er Jahre zeigten noch eine ständige Zunahme der PAK-Konzentrationen in Böden (WILCKE 2000).

Das Grundmuster der unterschiedlichen PAK ist in allen hier untersuchten Böden ähnlich. Es dominieren die PAK Fluoranthene, Benzo(b)-fluoranthene, Benzo(k)fluoranthene und Chrysen (s. Abb. 13). Ähnliche Verteilungsmuster konnten auch in der Literatur gefunden werden (WILCKE 2000, WILCKE & ZECH 1997, EUSTER-

BROCK 1999). Das Verteilungsmuster der einzelnen PAK ist in beiden Humuskompartimenten (L/Of und Oh) gleich. Dies deckt sich mit den Untersuchungen von GUGGENBERGER et al. (1996), KRAUSS et al. (2000), PICHLER et al. (1996) und WILCKE & ZECH (1997), die in der Of- und Oh-Lage ähnliche Verhältnisse fanden. Unterschiede zwischen L und Of und gleiche Verhältnisse in Of- und Oh-Lage wurden von KRAUSS et al. (2000) gefunden. Das in der Luft zu findende PAK-Muster ist anders als in Waldböden. In der Luft überwiegen die leichter flüchtigen PAK, was darauf hindeutet, dass Wälder bevorzugt höhermolekulare PAK aus der Luft auskämten (HARTMANN 1995). Ein weiterer Grund für die Anreicherung höhermolekularer PAK könnte ihre höhere Persistenz sein. So konnten von HOWSAM et al. (2001) im Boden eines Eschen-Eichenbestandes im Nordwesten Englands die Depositionsfrachten von einem (Fluoren, Phenanthren, drei kondensierte Ringe, s. Tab. 2) bis 25 Jahren Benzo[ghi]perylen (sechs kondensierte Ringe, s. Tab. 2) gefunden werden.

Von Pflanzen werden PAK überwiegend aus der Luft aufgenommen (WILCKE 2000). Die Transferraten Boden-Pflanze sind mit Werten  $< 0,01$  sehr gering (CRÖSSMANN 1992, EDWARDS 1983). Regenwürmer sind jedoch in der Lage, PAK in nicht unerheblichem Maße zu akkumulieren (WILCKE 2000). Pflanzen und Tiere sind zwar nicht Gegenstand dieser Untersuchung; da sie jedoch in direktem Kontakt mit dem Boden stehen, sollen sie hier nicht unerwähnt bleiben.

## 6.2 PCB

PCB konnten im Boden von 86 % aller hier untersuchten Standorte gefunden werden. Der Anteil der Nadelbaumbestände war mit 92 % höher als der Anteil der Laubbaumbestände (78 %). WEISS (1998) fand im Vergleich hierzu an allen der von ihm untersuchten Waldstandorte in Baden-Württemberg PCB. Über dem Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) lagen 67 % der hier untersuchten Bestände, wobei es wesentlich mehr Nadelbaum- (92 %) als Laubbaumbestände (33 %) mit Konzentrationen über diesem Wert gab. Der Vorsorgewert der Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung (BBODSCHV 1999) wurde für PCB6 in keinem Fall überschritten. In einer Untersuchung von EUSTERBROCK (1999) in

Bayern konnte ebenfalls an keinem der untersuchten Standorte eine Überschreitung dieses Grenzwertes gefunden werden.

Der Boden stellt die wichtigste Senke für PCB dar. HARRAD et al. (1994) fanden 93 % der in Großbritannien freigesetzten PCB im Boden. Als Eintragsmechanismus ist mehr die nasse und weniger die partikelgebundene atmogene Deposition von Bedeutung (s. PAK). PCB werden wegen ihrer Lipophilie in der Cuticula von Blättern und Nadeln angereichert, weshalb in den Streuauflagen von Wäldern hohe PCB-Konzentrationen zu finden sind (KRAUSS & TAURO 1995). In dieser Untersuchung konnten ebenfalls hohe Konzentrationen von 22 µg/kg TS (Median) und 110 µg/kg TS (Maximalwert) in der L/Of-Lage bzw. 18 µg/kg TS (Median) und 195 µg/kg TS (Maximalwert) in der Oh-Lage gefunden werden (s. Tab. 11). Die in der Humusaufgabe gefundenen Konzentrationen liegen in der gleichen Größenordnung wie die in den Untersuchungen von SCHLEYER & RAFFIUS (2000) gefundenen Werte. In der Untersuchung von WEISS et al. (1996) wurden mit Medianwerten von 3,3 µg/kg TS für PCB6 in der Humusaufgabe niedrigere Werte gefunden. MÜLLER et al. (1992) fanden im Vergleich hierzu mit 411 µg/kg TS für Oh-Horizonte von Waldböden in ländlichen Räumen Niedersachsens wesentlich höhere Werte. Allerdings bleibt unklar, in welchem Zeitraum die Proben dieser Untersuchung genommen wurden.

Die von KRAUSS & TAURO (1995) mit 2–5 µg/kg TS angegebenen Hintergrundkonzentrationen (PCB6) für Oberböden von Äckern und Wiesen sind im Vergleich hierzu wesentlich niedriger. Von MÜLLER et al. (1992) wurde in einer Untersuchung von insgesamt 200 Standorten in Niedersachsen, darunter 39 Forststandorte, ebenfalls eine Abnahme der durchschnittlichen PCB-Belastung in der Reihenfolge Forst-Grünland-Acker gefunden. Sie konnten keine eindeutige Zuordnung zu einzelnen Emittenten finden und kamen daher zu dem Schluss, dass die PCB-Belastung von Böden i. d. R. eine ubiquitär verbreitete Hintergrundbelastung darstellt. Für 2000 wird die jährliche Depositionsrate mit dem Niederschlag für Deutschland auf 6 mg/ha geschätzt (SCHLEYER & RAFFIUS 2000). In den hier untersuchten Böden werden mit bis zu 7 g/ha (s. Abb. 46) sehr hohe Vorräte im Vergleich zur Depositionsrate gefunden. WEISS (1998) fand ca. 10 österreichische Jahresemissionen in österreichischen Waldböden gespeichert.

Die PCB-Konzentrationen in der Oh-Lage sind im Mittel vergleichbar mit den Konzentrationen in der L/Of-Lage. Vergleicht man Laubbaumbestände mit Nadelbaumbeständen, so wurde in der Oh-Lage aller Laubbaumbestände und in der Oh-Lage nur eines von neun Fichtenbeständen höhere Konzentrationen als in der L/Of-Lage gefunden. Dieses könnte mit der schnelleren Streuzersetzung unter Laubbäumen als unter Nadelbäumen bei gleichzeitig schwererer Abbaubarkeit der PCB im Vergleich zur organischen Substanz erklärt werden. Im Gegensatz hierzu fanden KRAUSS et al. (2000) und MÜLLER et al. (1992) bei PAK und PCB immer höhere Konzentrationen in der Oh-Lage, als in der L/Of-Lage. KRAUSS et al. untersuchten 16 Fichtenbestände in Nordbayern und MÜLLER et al. 39 Forststandorte in Niedersachsen.

Um eine „typische“ Hintergrundbelastung zu kennzeichnen, wird in einigen Untersuchungen das 80. Perzentil (EUSTERBROCK 1999), in anderen Untersuchungen das 95. Perzentil (MÜLLER et al. 1992) herangezogen. In der Zusammenfassung der LABO von 1998 (LABO – BUND-LÄNDER-ARBEITSGEMEINSCHAFT BODENSCHUTZ 1998) werden für PCB<sub>6</sub> für die Humusaufgabe von Waldböden die Hintergrundwerte als 50. und 90. Perzentil angegeben: < 1 – 70 µg/kg TS (50. Perzentil) und 14 – 107 µg/kg TS (90. Perzentil). Die aus dieser Untersuchung abgeschätzten Hintergrundwerte für die Humusaufgabe liegen mit 20 µg/kg TS für das 50. Perzentil und 56 µg/kg TS für das 90. Perzentil im mittleren Bereich.

Mit zunehmender Höhe ü. NN zunehmende PCB-Konzentrationen fanden WEISS et al. (1996) und WEISS et al. (2000) in einer Untersuchung in Österreich. In dieser Untersuchung konnten in den Kammlagen (HIKA und LBKA, s. Abb. 17 und 46) keine höheren PCB-Konzentrationen oder -Vorräte als in niedrigeren Lagen gefunden werden.

PCB haben eine starke Affinität zu organischen Substanzen im Boden. Im Gegensatz zu den PAK werden PCB nicht in den Mineralboden verlagert. Die Mediane im Mineralboden liegen alle unter der unteren Bestimmungsgrenze. KRAUSS et al. (2000) fanden ebenfalls eine starke Abnahme von der Humusaufgabe in den Mineralboden, konnten jedoch bei vergleichbarer Bestimmungsgrenze noch PCB im Mineralboden finden. EUSTERBROCK (1999) findet ebenfalls, dass der Großteil der PCB in der

Auflage gespeichert wird und dass PCB nur in geringem Umfang in den Mineralboden verlagert werden. Dass keine nennenswerte Verlagerung in den Mineralboden stattfindet, erklären die Autoren mit der größeren Flüchtigkeit von PCB und geringen Adsorption von PCB an mobile organische Verbindungen, die für den Tiefentransport von schlecht wasserlöslichen Verbindungen verantwortlich sind. Eine geringe Sorption von PCB an mobile organische Substanzen und damit geringe Verlagerung in die Tiefe berichten auch CHIOU et al. (1998), MCGRODDY et al. (1996) und KRAUSS & TAURO (1995). Eine Gefährdung des Grundwassers durch PCB wird von der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1998), die eine Literaturstudie zum Transfer von organischen Schadstoffen im System Boden/Sickerwasser durchgeführt hat, für unwahrscheinlich gehalten. Für Moorböden wird eine erhöhte Wasserlöslichkeit durch die Anwesenheit von Fulvo- und Huminsäuren von CHIOU et al. (1986) beschrieben. Aus diesem Grund konnte nur im Unterboden des einzigen hier untersuchten Moorstandorts DREI PCB gefunden werden (s. Abb. 17).

Ein Vergleich von Nadelbaum- und Laubbaumbeständen zeigt wesentlich höhere Konzentrationen und Vorräte in der L/Of-Lage von Nadelbaumflächen als von Laubbaumflächen (Median: 34 µg/kg TS Nadelbaumflächen, 8 µg/kg TS Laubbaumflächen, s. Tab. 11). In der Oh-Lage sind die Konzentrationen beider Nutzungsarten gleich (Median 18 µg/kg TS), die Vorräte sind jedoch auch hier unter Nadelbäumen höher als unter Laubbäumen (s. Abb. 46). Auch hier wirkt sich die ganzjährige Benadelung von Nadelbäumen aus. Die Unterschiede sind jedoch nicht so deutlich wie bei den PAK, was darauf zurückzuführen sein könnte, dass die Konzentrationen von PCB in der Luft nicht so großen jahreszeitlichen Schwankungen unterworfen und in Wintermonaten sogar eher niedriger sind.

Die starke Einschränkung der Verwendung von PCB seit Ende der 70er Jahre und schließlich das weltweite Verbot von PCB im Mai 2004 zeigt auf den im Abstand von zehn Jahren untersuchten Standorten AUKI und FUKI Wirkung. In der Humusaufgabe der BDF-F AUKI und FUKI konnte eine starke Abnahme der PCB-Konzentrationen und -Vorräte beobachtet werden (s. Abb. 19 und 46). So nahmen die Konzentrationen in der L/Of-Lage der BDF-F FUKI auf die Hälfte, der BDF-F AUKI auf ein

Drittel ab. In der Oh-Lage der BDF-F FUKI konnte keine Abnahme der Konzentrationen festgestellt werden. Bei den Vorräten zeigt sich ein etwas anderes Bild. Da die Humusvorräte auf den BDF-F AUKI und FUKI im untersuchten Zeitraum abgenommen haben (s. Abb. 44), konnte in der Humusaufgabe eine stärkere Abnahme der Vorräte als der Konzentrationen festgestellt werden (s. Abb. 46). Im Boden der BDF-F GWBU konnten an beiden Terminen nur geringe Konzentrationen und Vorräte gefunden werden, was auf die geringere Interzeptionsfläche (Laubbaumbestand) sowie eine höhere biologische Aktivität und damit höhere Abbauraten im Boden dieser Fläche (Rendzina) zurückgeführt werden kann. PCB sind nach SCHLEYER & RAFFIUS (2000) in geringem Maße mikrobiell abbaubar.

Für die Veränderung von PCB-Gehalten im Boden sind demnach eher Abbau- als Verlagerungsprozesse verantwortlich. Die Halbwertszeiten der PCB liegen mit 10 – 100 Jahren weit über den Halbwertszeiten der PAK (s. o.). Aus diesem Grund wird der wesentlich stärkere Rückgang der PCB- im Vergleich zu den PAK-Depositionsraten mehr oder weniger kompensiert; d. h. die Abnahmen der PCB- und PAK-Gehalte sind in zehn Jahren ungefähr gleich hoch (Abb. 15 und 16 und 19 bzw. 45 und 46).

Sowohl in der L/Of- als auch in der Oh-Lage haben die drei 6- und 7-fach chlorierten PCB138, PCB153 und PCB180 den höchsten Konzentrationsanteil (s. Abb. 18). KRAUSS et al. (2000) und EUSTERBROCK (1999) finden für Waldböden ebenfalls einen Anteil dieser drei dominanten Kongenere von 60 %. Die gleichmäßige Verteilung der PCB in beiden Humuslagen erklären sie mit der fast gleichen Persistenz aller PCB. Im Vergleich zu den PCB-Profilen in der Luft und in der Gesamtdeposition findet man im Boden eine Verschiebung zu den höher chlorierten PCB, weil die leichter flüchtigen PCB vermutlich leichter in die Atmosphäre zurück verdampfen (HARRAD et al. 1994).

### 6.3 HCB

Hexachlorbenzol wird einerseits wie PAK und PCB weiträumig mit der Luft verfrachtet, andererseits direkt über Saatgutbeizmittel und als Nebenbestandteil von Pflanzenbehandlungsmitteln in den Boden eingetragen. Es nimmt damit eine Zwischenposition zwischen Stoffen, die ausschließlich über den Luftweg in Wälder eingebracht werden (PAK und PCB), und Stoffen, die als Pestizide in Wäldern Verwendung fanden, ein (z. B. HCH und DDT). In Abhängigkeit eines direkten Einsatzes auf der jeweiligen Fläche sind die HCB-Konzentrationen und HCB-Vorräte sehr unterschiedlich (s. Abb. 20 und 47). HCB konnte im Boden von 79 % der BDF-F, darunter alle Nadelbaumflächen, jedoch nur 50 % der Laubbaumflächen nachgewiesen werden (s. Abb. 42). Über dem Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) (2,5 µg/kg TS) lagen die Konzentrationen von 76 % aller BDF-F, darunter 92 % aller Nadelbaumflächen und 56 % aller Laubbaumflächen. Es konnten in der Humusaufgabe Werte unter der unteren Bestimmungsgrenze wie auch Spitzenwerte von 202 (L/Of-Lage, LSBU) bzw. 42 µg/kg TS (Oh-Lage, LSBU) gefunden werden. In einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) in Baden-Württemberg konnten an knapp 97 % aller Waldstandorte, 75 % aller Ackerstandorte und 36 % aller Grünlandstandorte HCB nachgewiesen werden.

Die in der Zusammenfassung der LABO von 1998 (LABO – BUND-LÄNDER-ARBEITSGEMEINSCHAFT BODENSCHUTZ 1998) angegebenen Hintergrundwerte für HCB für die Humusaufgabe von Waldböden sind wie folgt: < 1 – 4 µg/kg TS (50. Perzentil) und 6 – 28 µg/kg TS (90. Perzentil). Die aus dieser Untersuchung abgeschätzten Hintergrundwerte für die Humusaufgabe liegen mit 3 µg/kg TS für das 50. Perzentil, bzw. 11 – 28 µg/kg TS für das 90. Perzentil damit im oberen Bereich.

WEISS (1998) leitete aus einer Untersuchung von Waldböden in Österreich im Auflagehumus mit einem Hintergrundwert von 0,4 – 0,5 µg/kg TS wesentlich niedrigere Werte ab. Er fand auch wesentlich niedrigere HCB- als Lindan-Konzentrationen. Die hier gefundenen HCB-Konzentrationen liegen in der gleichen Größenordnung wie die Lindankonzentrationen, und mit Median-Werten von 4 µg/kg TS (L/Of-Lage) bzw. 2 µg/kg TS (Oh-Lage) deutlich über den von WEISS 1998 gefundenen Werten.

MÜLLER (1982) fand in Böden unterschiedlicher Nutzung in der Schweiz mit maximalen Konzentrationen von 0,5 µg/kg TS ebenfalls deutlich niedrigere Werte, als die in dieser Untersuchung gefundenen Maximalwerte. Auch eine Untersuchung in Baden-Württemberg fand mit nur 10 µg/kg TS die höchste HCB-Konzentration in der Humusaufgabe an einem Standort im Welzheimer Wald und ein 90. Perzentil von nur 7 µg/kg TS (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). Nur REISCHL et al. (1990) fanden auf einem Fichtenstandort im Fichtelgebirge mit 6,5 – 11,6 µg/kg TS mit den niedersächsischen BDF-F vergleichbare Werte. In Niedersachsen heben sich die drei hoch belasteten Standorte LBNH, LBKA und HIMJ noch einmal deutlich von diesen Standorten ab (s. Abb. 20). Im Gegensatz zu WEISS et al. (2000) und WEISS et al. (1996), die mit der Höhe ü. NN zunehmende HCB-Konzentrationen fanden, konnten in dieser Untersuchung keine herausragenden Konzentrationen und Vorräte in den Kammlagen (LBKA, HIKA) des Harz und Hils gefunden werden (s. Abb. 20 und 47).

Da es für HCB keine Grenzwerte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung gibt, stehen als Orientierungswerte nur der Referenzwert nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) von 2,5 µg/kg TS, die in Deutschland gefundenen Hintergrundkonzentrationen nicht kontaminierter Böden von 1 – 10 µg/kg TS (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999, REISCHL et al. 1990) sowie die mittleren Konzentrationen von Klärschlämmen und dem Rheinsediment von 20 µg/kg TS (LUA NRW 1997) zur Verfügung. Danach gibt es mit HCB unbelastete Böden mit Konzentrationen unter 2,5 µg/kg TS, gering belastete Böden mit Konzentrationen zwischen 10 und 20 µg/kg TS und höher als Klärschlämme und Rhein-Sediment belastete Böden mit Werten > 20 µg/kg TS. Als unbelastet sind demnach fünf Laubbaumflächen (s. Abb. 20), als höher belastet drei Fichtenflächen (zwei Flächen im Harz, LBNH und LBKA und eine Fläche im Hils, HIMJ) und eine Buchenfläche (LSBU) anzusehen. Die drei Fichtenflächen weisen auch die höchsten Vorräte in der L/Of-Lage auf (1,5 – 3,1 g/ha). Die Buchenfläche LSBU hat von allen Laubbaumflächen die höchsten Vorräte in der Humusaufgabe (1 g/ha, s. Abb. 47). Sie ist auch vergleichsweise hoch mit DDT, Lindan, Dieldrin und Endrin belastet (s. Abb. 24, 30, 40 und 41).

HCB ist fast ausschließlich in der Humusaufgabe zu finden. Die Konzentrationen und Vorräte sind in der L/Of-Lage immer bzw. überwiegend höher als in der Oh-Lage (s. Abb. 20 und 47). Eine Verlagerung in den Mineralboden findet so gut wie nicht statt. Lediglich im Mineralboden der BDF-F LSBU, die sehr hohe Konzentrationen in der Humusaufgabe hat, kann HCB auch in 0 – 5 cm Tiefe in nennenswerten Mengen gefunden werden. Alle anderen Konzentrationen im Mineralboden (Median-Werte bis 75. Perzentile, s. Tab. 12) liegen im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze. In einer Literaturstudie zum Transferverhalten von organischen Schadstoffen wurde ebenfalls eine sehr geringe Verlagerungstendenz von HCB und eine vergleichsweise hohe Neigung zur Volatilisation beschrieben (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1998).

In den Humuslagen von Nadelbaumflächen liegen die Medianwerte höher als in den Humuslagen von Laubbaumflächen (s. Tab. 12). Auch die höchsten Vorräte konnten im Humus von Fichtenflächen, gefolgt von Kiefern- und Laubbaumflächen, gefunden werden. Dies kann einerseits, wie bei PCB und PAK, auf die ganzjährige Benadelung, andererseits auf den vermehrten Einsatz von HCB oder HCB-haltigen Produkten oder von Lindan, dessen Abbauprodukt HCB ist, zurückzuführen sein.

Seit 1981 ist die Verwendung von HCB als Pestizid und Saatgutbeizmittel in der EU verboten, seit 1993 ist die Verwendung als Ausgangsprodukt für chemische Analysen vernachlässigbar. Die Wirkung dieser Verbote zeigt sich bei den Wiederholungsinventuren auf den BDF-F AUKI und FUKI deutlich, auch wenn die Abnahme geringer als bei den PAK und PCB ausfällt (s. Abb. 21). Im untersuchten Zeitraum nimmt die HCB-Konzentration um 10 – 30 % ab. Die hieraus geschätzten Halbwertszeiten von 15 (AUKI) und 30 Jahren (FUKI) liegen im Bereich von Literaturangaben, die zwischen einem und 23 Jahren liegen. Im Humus der BDF-F GWBU haben die HCB-Konzentration (s. Abb. 21) und der HCB-Vorrat (s. Abb. 47) im untersuchten Zeitraum erheblich zugenommen. Dies könnte auf den Abbau von Lindan zu HCB im untersuchten Zeitraum hindeuten. Die Lindan-Konzentration hat im untersuchten Zeitraum ebenfalls erheblich zugenommen (s. Abb. 29). In mit Lindan belasteten Böden kommt die Entstehung von HCB als Abbauprodukt des Lindans in Frage.

Eine Untersuchung von WEISS (1998) zeigt, dass HCB nicht nur in der Humusaufgabe, sondern auch in Nadeln stark angereichert wird, was auf eine höhere Flüchtigkeit und geringere Hydrophie von HCB gegenüber PAK und PCB zurückgeführt wird. Dies konnte hier nicht geprüft werden, da keine Nadelanalysen auf HCB durchgeführt wurden.

#### 6.4 $\alpha$ -HCH, $\beta$ -HCH, $\gamma$ -HCH (Lindan)

Lindan und technisches HCH (Hexachlorhexan) wurden in Wäldern vor allem bei der Bekämpfung von Borkenkäfern eingesetzt. Der Eintrag von HCH über den Luftweg spielt eine sehr untergeordnete Rolle.

Lindan konnte im Boden von 81 % aller hier untersuchten Flächen gefunden werden. Zwischen Laub- und Nadelbaumbeständen gibt es beim Lindan keine wesentlichen Unterschiede.  $\beta$ -HCH konnte im Boden von 87 % aller Flächen, darunter alle Nadelbaum-, und 67 % der Laubbaumflächen gefunden werden.  $\alpha$ -HCH wurde im Boden von nur 62 % aller Flächen, davon 75 % der Nadelbaum- und 43 % der Laubbaumflächen gefunden (s. Abb. 42). Der Nachweis von  $\alpha$ -HCH auf relativ wenigen Flächen ist auf die vergleichsweise sehr niedrige Halbwertszeit von ca. 1 Jahr zurückzuführen. Auch in einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) konnte in über 90 % aller Waldböden HCH gefunden werden. In Acker- und Grünlandböden wurde in unter 10 % der Böden HCH gefunden. Ein ähnliches Verteilungsmuster wurde auch von BORSORF et al. (1993) in einer Untersuchung in der Nähe von Bitterfeld gefunden.

Überschreitungen der Referenzwerte der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) konnten für  $\alpha$ -HCH auf 39 %, für  $\beta$ -HCH auf 85 % und für Lindan auf 14 % der Flächen gefunden werden (s. Abb. 43). Als einziger Grenzwert ist in der Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung der Prüfwert für HCH von 25 000  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für Park- und Freizeitanlagen festgelegt. HCH-Gehalte in diesem Konzentrationsbereich wurden auf keiner BDF-F auch nur annähernd gefunden.

Die Konzentrationen und Vorräte von HCH sind sehr unterschiedlich (s. Abb. 22 – 24 und 48 – 50), da HCH nicht auf allen Flächen in gleichem Maße eingesetzt wurde. In der L/Of-

Lage dominiert Lindan, hier konnten Konzentrationen bis zu 85  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS (LSBU, s. auch HCB, DDT, Dieldrin und Endrin) gefunden werden. Auch WENZEL et al. (2002) fanden, dass Lindan in der L-Lage dominiert. Eine Dominanz von Lindan unter den HCH-Isomeren bei der Belastung des Auflagehumus wurde auch in der Untersuchung von WEISS et al. (1996) in Österreich bestätigt. Beim  $\beta$ -HCH konnten in der L/Of-Lage Konzentrationen bis zu 29  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS gefunden werden. Beim  $\alpha$ -HCH wurden maximal 8  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS gemessen. Die höchsten  $\beta$ -HCH-Werte wurden in der L/Of-Lage der BDF-F WEFI, die auch hohe Konzentrationen im Mineralboden aufweist, und in der Oh-Lage der BDF-F HIMA gefunden. In der Oh-Lage wurden sonst im Mittel niedrigere HCH-Konzentrationen als in der L/Of-Lage gefunden (s. Tab. 13 – 16), während sich bei den Vorräten ein indifferentes Bild ergibt (s. Abb. 48 – 50). WEISS (1998), WEISS et al. (2000) und WEISS et al. (1996) fanden im Auflagehumus von Fichtenbeständen in Österreich mit Lindan-Konzentrationen von maximal 3,4  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS vergleichsweise niedrige Werte. Sie leiten hieraus Hintergrundwerte für den Auflagehumus von 2,21  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für Lindan und 3,29  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für die Summe aller HCH-Isomere ab.

In der Zusammenfassung der LABO von 1998 (LABO – BUND-LÄNDER-ARBEITSGEMEINSCHAFT BODENSCHUTZ 1998) sind für die Summe aller HCH folgende Hintergrundwerte für die Humusaufgabe von Waldböden angegeben: 5 – 29  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS (50. Perzentil) und 23 – 99  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS (90. Perzentil). Die aus dieser Untersuchung abgeschätzten Hintergrundwerte liegen mit 13  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS in der L/Of-Lage, bzw. 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS in der Oh-Lage für das 50. Perzentil, und mit 56  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS in der L/Of-Lage, bzw. 23  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS in der Oh-Lage für das 90. Perzentil, in ähnlicher Größenordnung. Für Lindan konnten Hintergrundwerte von 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für die L/Of-Lage und < 2  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für die Oh-Lage für das 50. Perzentil, bzw. 32  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für die L/Of-Lage und 13  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS für die Oh-Lage, abgeleitet werden.

In einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) wurde ein Maximalwert von 91  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS (Summe HCH) in der Humusaufgabe von Wäldern in Baden-Württemberg gefunden. In dieser Untersuchung liegt der Maximalwert mit 193  $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS doppelt so hoch (s. Tab. 15). Auf allen Flächen liegen die Lindan-Vorräte in der

Humusaufgabe unter 3 g/ha, wobei die höchsten Werte im Humus der BDF-F LSBU gemessen wurden (2,58 g/ha). Auf dieser Fläche konnten auch nennenswerte Vorräte von  $\alpha$ -HCH in der Oh-Lage gefunden werden (0,32 g/ha).  $\beta$ -HCH wurde nur in der L/Of-Lage der BDF-F WEFI in größeren Mengen gefunden (1,74 g/ha). Alle anderen  $\beta$ -HCH-Vorräte liegen unter 1 g/ha.

Aufgrund der relativ hohen Wasserlöslichkeit von HCH werden diese in geringem Maße in den Mineralboden verlagert. So konnten über dem Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) liegende  $\beta$ -HCH-Konzentrationen im Mineralboden von zwei Flächen (WEFI und WIFI, Sandböden) bis in 30 cm Tiefe und auf einer Fläche (HEEI, Sandlöss) bis in 10 cm Tiefe gefunden werden. In humusarmen Sanden wird HCH relativ schnell verlagert (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1993). Auf drei weiteren Flächen wurden höhere  $\beta$ -HCH-Konzentrationen bis in 5 cm Tiefe gefunden (s. Abb. 23). Lindan wurde in wesentlich geringerem Ausmaß in den Mineralboden verlagert (s. Abb. 24),  $\alpha$ -HCH gar nicht (s. Abb. 22). Allgemein wird die Bindung von HCH an den Humus in der Literatur als stark beschrieben, wodurch die trotz relativ hoher Wasserlöslichkeit vergleichsweise geringe Verlagerung in größere Bodentiefen erklärt wird. Im HCH-Bericht der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1993) wird eine sehr hohe Bindungsfähigkeit und -kapazität der organischen Substanz in Anmoorböden beschrieben. Dies könnte erklären, warum im Moorboden der BDF-F DREI keines der HCH-Isomere unterhalb der Humusaufgabe gefunden werden konnte (s. Abb. 22 – 24). In diesem Bericht wird auch beschrieben, dass die  $\alpha$ -HCH- und Lindan-Konzentrationen im Boden aufgrund ihrer niedrigeren Halbwertszeiten und ihrer größeren Flüchtigkeit schneller abnehmen, als die  $\beta$ -HCH-Konzentrationen. Dies lässt sich z. B. in der Humusaufgabe der BDF-F WEFI, WIFI, HIMA und GDEI feststellen, wo sich das Verhältnis von  $\beta$ -HCH zu  $\alpha$ -HCH und Lindan stark zum  $\beta$ -HCH hin verschoben hat (s. Abb. 25 und 26). Dies ist ein Hinweis darauf, dass die HCH-Anwendung auf diesen Flächen schon länger zurückliegt.

Zwischen Nadel- und Laubbaumflächen konnten keine wesentlichen Unterschiede von Konzentrationen und Vorräten festgestellt werden (s. Abb. 22 – 24, 48 – 50 und Tab. 13 – 16). Offensichtlich wurde HCH in Nadel- und Laub-

baumbeständen gleich häufig eingesetzt. Vergleichende Untersuchungen von Nadel- und Laubbaumbeständen sind in der Literatur nicht zu finden.

Die starke Einschränkung der Anwendung von HCH in Wäldern seit Mitte der 90er Jahre zeigt Wirkung. So nahmen die HCH-Konzentrationen auf der BDF-F AUKI auf ein Drittel, in der L/Of-Lage der BDF-F FUKI auf die Hälfte, in der Oh-Lage um 20 % ab. Die HCH-Konzentrationen haben damit in der gleichen Größenordnung wie die PCB-Konzentrationen abgenommen.

Im Boden der BDF-F GWBU sind die HCH-Konzentrationen und die HCH-Vorräte auf mehr als das Doppelte angestiegen, was auf die Zunahme der Lindan-Konzentration zurückzuführen ist. Die Ursache für diese Zunahme konnte nicht geklärt werden. Nach Auskunft des zuständigen Forstamtes wurde auf dieser Fläche, die im gesamten Untersuchungszeitraum aus der Bewirtschaftung herausgenommen war, kein HCH eingesetzt. Da mit steigendem pH-Wert die Abbaurate für Lindan zunimmt (WENZEL et al. 2002), dürfte Lindan im Boden der BDF-F GWBU schneller als im Boden aller anderen hier untersuchten Flächen abgebaut werden.

Von WEISS (1998) wurden in einer Untersuchung in Österreich höhere HCH-Konzentrationen in Fichtennadeln als in Humusaufgaben gefunden. Aufgrund ihrer relativ hohen Wasserlöslichkeit werden HCH offensichtlich von Pflanzen aufgenommen. WEISS et al. (1996) fanden in einer weiteren Untersuchung, die u. a. HCH, HCB, PCB und DDX einbezog, nur beim Lindan höhere Werte in Nadeln als im Auflagehumus. Auch in einer Literaturstudie zum Transferverhalten Boden/ Pflanze wurde für Lindan und  $\beta$ -HCH eine bedeutende Wurzel Aufnahme beschrieben (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1998).

Obwohl HCH in Wäldern insbesondere bei Kalamitäten recht häufig eingesetzt wurde und in Waldböden in nicht unerheblichen Mengen gefunden werden konnte, gibt es relativ wenige Untersuchungen zum Vorkommen und Verhalten von HCH in Waldböden.

## 6.5 DDT / DDD / DDE (DDX)

DDT wird fast ausschließlich durch direkte Applikationen in Wälder eingetragen. Im Boden wird es zu DDD und DDE abgebaut.

DDT und seine Metabolite DDD und DDE konnten im Boden von 86, 71 bzw. 95 % der untersuchten BDF-F gefunden werden. In einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) konnte DDT in 82 % der Waldböden gefunden werden (s. Abb. 42). Der Referenzwert der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994) für DDX (DDX = DDT + DDD + DDE) von 25 µg/kg TS wurde im Boden von 52 % der Flächen überschritten (83 % der Nadelbaumbestände und 11 % der Laubbaumbestände) (s. Abb. 43).

Wie auch beim HCB und HCH ist die DDX-Belastung der Flächen sehr unterschiedlich. Es konnten Konzentrationen von bis zu 200 µg/kg TS DDT und bis zu 38 µg/kg TS DDD und DDE in der Humusaufgabe gefunden werden (s. Abb. 30 – 32). Die Medianwerte liegen im Vergleich hierzu mit 9 (L/Of-Lage) bzw. 14 µg/kg TS (Oh-Lage) für DDT, 4 bzw. 5 µg/kg TS für DDE und Gehalten unter der unteren Bestimmungsgrenze für DDD (s. Tab. 17 – 19) wesentlich unter den Maximalwerten. Ähnliche Wertebereiche konnten auch in einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) gefunden werden. Hier wurde für DDT ein Medianwert von 4 µg/kg TS und Maximalwerte von 60 µg/kg TS in der Humusaufgabe gefunden. Auch der von WEISS et al. (1996) angegebene Medianwert von 7,79 µg/kg TS für Waldgebiete in Österreich liegt in dieser Größenordnung. Für die Humusaufgabe konnten aus dieser Untersuchung folgende Hintergrundwerte abgeleitet werden: 9 µg/kg TS für die L/Of-Lage, bzw. 14 µg/kg TS für die Oh-Lage 50. Perzentil, und 98 µg/kg TS für L/Of-Lage, bzw. 98 µg/kg TS für Oh-Lage 90. Perzentil. Die Belastung der Humusaufgabe niedersächsischer Waldböden mit DDT liegt, verglichen mit Literaturangaben, somit im oberen Bereich.

Im Mineralboden der hier untersuchten Flächen lagen die Mediane von DDT, DDD und DDE unter der unteren Bestimmungsgrenze. Es wurden jedoch Maximalgehalte von 4 191 µg/kg TS DDT (Einzelprobe, Mischprobe 1 051 µg/kg TS) gefunden. Hierbei handelt es sich um die BDF-F LBNH. Diese Fläche ist auch vergleichsweise hoch mit HCB und Dield-

rin belastet. Auf dieser Fläche konnte zudem eine sehr heterogene Verteilung von DDT gefunden werden (s. Tab. 8). In großem Abstand folgt die BDF-F GWBU mit 15 µg/kg TS DDT in 0 – 10 cm Tiefe. Bis auf den Sonderfall LBNH liegen die hier im Oberboden gefundenen DDT-Konzentrationen im Bereich üblicherweise im Mineralboden gefundener DDT-Konzentrationen (WEISS et al. 2000, LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). BORSORF et al. (1993) und ABBAS (1995) fanden in einer Untersuchung von Kiefernbeständen auf dem Gebiet der ehemaligen DDR im Oberboden DDT-Konzentrationen zwischen 3,6 und 32,6 µg/kg TS. Diese Bestände wurden bei einem massenhaften Befall durch die Nonne 1983/84 mit DDT aviochemisch behandelt. WENZEL et al. (2002) fanden in einer Untersuchung von Waldböden (Kiefernwälder) in der Nähe von Bitterfeld (Halle/Leipzig) mit DDT-Konzentrationen bis zu 4 µg/kg TS niedrigere Werte. Die DDD-Konzentrationen der Untersuchungen von Wenzel et al. lagen mit bis zu 25 µg/kg TS, die DDE-Konzentrationen mit bis zu 33 µg/kg TS jedoch in vergleichbarer Größenordnung wie die hier gefundenen Werte. Sie fanden damit überall höhere DDD- und DDE- als DDT-Konzentrationen. In dieser Untersuchung wurden überwiegend wesentlich höhere DDT-Konzentrationen und –Vorräte als DDD- und DDE-Gehalte gefunden. Dies fanden auch WEISS et al. (1996) in einer Untersuchung des Schulterberg-Nordprofils in Österreich.

Maximale Vorräte in der Humusaufgabe wurden mit 23 g/ha für DDT (FUKI), mit 2 g/ha für DDD (HIMJ) und 3,2 g/ha für DDE (FUKI94) gefunden werden (s. Abb. 51 – 53).

In Acker- und Grünlandböden fanden WEISS et al. (1996) und KÖNIG et al. (1991) niedrigere Konzentrationen, als in den hier untersuchten Waldböden (maximal 50 µg/kg TS). Auch in einer Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) wird eine geringere DDT-Belastung von Acker- und Grünlandböden gegenüber Waldböden deutlich, in der nur in 50 % aller Böden (Acker, Grünland) DDT nachgewiesen werden konnte (hier 86 % aller Waldböden, s. o.).

Zwischen L/Of- und Oh-Lage konnten keine wesentlichen Unterschiede der Konzentrationen gefunden werden.

DDT, DDD und DDE können jedoch in unterschiedlichem Maße in den Mineralboden verla-

gert werden. Im Boden von fünf der 21 hier untersuchten Flächen konnte eine Verlagerung von DDX in den Mineralboden gefunden werden (HEEI, DREI, GWBU, LSBU). Im Boden der BDF-F LBNH wurden alle drei Isomere bis in 30 cm Tiefe verlagert. Die Konzentrationen im Mineralboden liegen dabei wesentlich über den in der Humusaufgabe gefundenen Konzentrationen. Im Boden der BDF-F HEEI wurden alle drei Isomere bis in 5 cm Tiefe verlagert. Die Konzentrationen lagen hier im Mineralboden und in der Humusaufgabe in der gleichen Größenordnung. In den Boden der BDF-F GWBU wurde nur DDT in nennenswerter Größenordnung verlagert, da die Konzentrationen von DDD und DDE im Bereich oder unter der unteren Bestimmungsgrenze lagen. Die DDT-Konzentrationen dieser BDF-F lagen in der Humusaufgabe und im Mineralboden bis in 30 cm Tiefe in der gleichen Größenordnung. Im Boden der BDF-F LSBU konnte nur DDD bis in 10 cm Tiefe gefunden werden, DDE und DDT wurden nicht in den Mineralboden verlagert. Im Boden der BDF-F DREI (Niedermoor) konnte DDE bis in 50 cm Tiefe gefunden werden, jedoch keine nennenswerten Mengen DDD und DDT. Eine Erhöhung der Löslichkeit von DDX in Moorböden durch Fulvo- und Huminsäuren ist in der Literatur mehrfach beschrieben (CHIOU et al. 1986, LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1999). Für die Verlagerung von DDT, DDD und DDE in Böden lassen sich aufgrund der an den BDF-F vorgefundenen Verteilungen keine allgemeingültigen Muster finden. Grundsätzlich können jedoch alle drei Isomere bis in größere Tiefe und in hohem Ausmaß verlagert werden (s. LBNH). Die BDF-F LBNH liegt in unmittelbarer Nähe des Baches Lange Bramke, der in das Trinkwasserreservoir Okertalsperre mündet. Es muss demnach von einem Risiko des DDX-Austrags aus Waldböden in Oberflächengewässer ausgegangen werden. In einer Literaturstudie zum Transferverhalten von organischen Schadstoffen der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1998) wurden DDE und DDD als schwach mobil und DDT als immobil bezeichnet. DIMOND & OWEN (1996) fanden in keinem der von ihnen untersuchten Forstböden eine Verlagerung von DDX in den Mineralboden. In der Untersuchung der LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999) konnten im Gegensatz hierzu für einzelne Standorte Verlagerungstendenzen für DDT gefunden werden.

Ein Vergleich von Nadel- und Laubbaumbeständen zeigt, dass DDT auf mehr Nadelbaum- als Laubbaumflächen angewendet wurde (s. Abb. 42).

Der Abbau von DDT im Boden erfolgt entweder über DDE zu DDD, oder direkt zu DDD. WEISS et al. (2000) fanden in ihrer Untersuchung in Österreich einen Anteil von 70 % DDT und 25 % DDE an der Gesamtsumme DDX. Die in dieser Untersuchung gefundenen Anteile von im Mittel 70 % DDT und 20 % DDE liegen in der gleichen Größenordnung.

Auf dem überwiegenden Teil der Nadelbaumflächen ist die DDT-Konzentration höher als die Konzentrationen der Abbauprodukte DDD und DDE (Abb. 34 und 35). Dies ist insbesondere dann der Fall, wenn sich die Konzentrationen auf hohem Niveau befinden und die Beprobung länger zurückliegt (Beprobung 1994 – 1999). Die DDT-Anteile an der Summe DDT + DDD + DDE sind in diesem Zeitraum mit Werten zwischen 70 und 90 % recht hoch. Bei länger zurückliegendem Einsatz von DDT (Beprobung von 2000 – 2004) überwiegen dann die Abbauprodukte und sind die Konzentrationen insgesamt niedrig. Die relativen Anteile an der Summe DDT + DDE + DDD betragen dann nur noch zwischen 47 und 60 %. Aufgrund des Verbots von DDT in der BRD 1972 nehmen mit der Zeit die Abbauprodukte zu und DDT ab. Dies wird auch an den relativen Anteilen von DDT an der Summe DDT + DDD + DDE im Verhältnis zum Probenahmezeitpunkt deutlich. Im untersuchten Zeitraum konnten 1994 noch DDT-Anteile von im Mittel 89 %, 2000 nur noch DDT-Anteile von 47 % bzw. 51 % (2001) gefunden werden. In der Humusaufgabe der zweimal beprobten BDF-F FUKI und GWBU nahmen die DDT-Anteile in 10 Jahren ebenfalls ab. Auf der BDF-F FUKI um 10 %, auf der BDF-F GWBU sogar um 16 %. Abnehmende DDT/DDE-Verhältnisse werden als Hinweis auf eine länger zurückliegende DDT-Anwendung gesehen (WEISS 1998, ATLAS & GIAM 1988). Ein Hinweis auf Letzteres sind auch die von WEISS et al. (2000) und WEISS (1998) gefundenen wesentlich geringeren DDX-Konzentrationen in Nadeln als im Boden. In einer Untersuchung von WEISS et al. (1996) konnte in Fichtennadeln 1993 sogar kein oder nur in geringen Konzentrationen (WEISS 1998) DDX nachgewiesen werden. Für die hier untersuchten BDF-F liegen keine DDX-Analysen der Blätter und Nadeln vor.

Eine zeitliche Veränderung der DDX-Gehalte im Boden konnte auch an den BDF-F FUKI und GWBU beobachtet werden (s. Abb. 36 – 38 und 51 – 53). Im Boden der BDF-F AUKI lagen die Konzentrationen im gesamten Profil an beiden Probenahmeterminen im Bereich bzw. unter der unteren Bestimmungsgrenze. In der Humusaufgabe der BDF-F FUKI nahmen die Konzentrationen und Vorräte aller drei Isomere stark ab. So haben die DDT-Konzentrationen in der L/Of-Lage auf Werte unter der unteren Bestimmungsgrenze, in der Oh-Lage auf ungefähr 10 % der Ausgangswerte abgenommen. Auch an der BDF-F GWBU haben die DDT-Konzentrationen im Boden trotz sehr niedrigem Ausgangsniveau abgenommen. Für die BDF-F FUKI kann eine Halbwertszeit von unter 10 Jahren abgeschätzt werden, was deutlich unter Literaturangaben liegt. So schätzten DIMOND & OWEN (1996) für von ihnen untersuchte Fichtenbestände in Maine (USA) eine Persistenz über 30 Jahre ab und fanden nennenswerte Abnahmen erst in der dritten Dekade. Sie schätzten die Halbwertszeit von DDT im Boden der von ihnen untersuchten Bestände auf 20 – 30 Jahre. In wärmeren Böden kann die Persistenz von DDT wesentlich geringer sein und auf Halbwertszeiten von wenigen Monaten fallen. Die mittlere jährliche Durchschnittstemperatur der hier untersuchten Bestände liegt mit 9 °C über der Durchschnittstemperatur von 5 °C in Maine.

## 6.6 Aldrin, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Heptachlorepoxyd

Da Aldrin, Dieldrin, Heptachlor und Heptachlorepoxyd als Insektizide vorwiegend zur Bekämpfung von im Boden lebenden Insekten, Endrin als Rodentizid und Insektizid eingesetzt wurden, sind auch diese Stoffe in sehr unterschiedlichem Ausmaß in Waldböden zu finden.

In der Humusaufgabe wurden bis zu 62 µg/kg TS Aldrin, 59 µg/kg Dieldrin und 26 µg/kg TS Endrin gefunden (s. Abb. 39 – 41). Dieldrin und Endrin werden offensichtlich auch teilweise in den Mineralboden verlagert, erkennbar an den Maximalgehalten von 11 – 19 µg/kg TS bis in 0 – 10 cm Tiefe. In größerer Tiefe konnte keiner der drei Stoffe gefunden werden.

Aldrin konnte nur in der Humusaufgabe der zwei Sollingflächen SLB1 und SLF1 gefunden werden; Dieldrin in nennenswerten Konzentra-

tionen in der Humusaufgabe der BDF-F SPFI, WEFI, HIKA, LBKA, LBNH und LSBU, wobei die höchste Konzentration in der Oh-Lage der BDF-F LBNH gefunden wurde. Auf dieser Fläche konnte Dieldrin auch im Mineralboden bis in 0 – 10 cm Tiefe gefunden werden. Endrin konnte in der Humusaufgabe von vier Flächen gefunden werden (HIKA, SLF1, GDEI, LSBU). Es wurde nur im Boden der BDF-F SLF1 bis in 0 – 10 cm Tiefe verlagert. Die drei Stoffe wurden entweder isoliert oder in Kombination eingesetzt (SLF1 Aldrin und Endrin, HIKA, LSBU Dieldrin und Endrin). Nur für Dieldrin und Endrin gibt es Referenzwerte nach der NIEDERLÄNDISCHEN LISTE (1994), die an allen genannten sechs (Dieldrin) bzw. vier (Endrin) BDF-F überschritten wurden. Eine hohe Überschreitung dieses Grenzwertes wurde nur in der Oh-Lage der BDF-F LBNH für Dieldrin gefunden.

Zwischen Nadelbaum- und Laubbaumflächen gibt es nur beim Dieldrin Unterschiede. Dieldrin konnte im Boden von fünf Nadelbaumflächen und nur einer Laubbaumfläche (LSBU) gefunden werden. Die BDF-F LSBU ist somit außer mit Lindan und DDT auch mit Dieldrin und Endrin vergleichsweise hoch belastet.

Über die zeitliche Veränderung der Konzentrationen dieser Stoffe kann keine Aussage getroffen werden, da auf den BDF-F AUKI, FUKI und GWBU an beiden Probenahmeterminen weder Aldrin, Dieldrin noch Endrin nachgewiesen werden konnte.

Informationen zum Vorkommen und Verhalten dieser fünf Stoffe in Waldböden liegen nur vereinzelt vor. So konnte lediglich gefunden werden, dass das Sorptionsverhalten von Aldrin, Dieldrin und Endrin stärker als das von HCH und schwächer als das von DDT und HCB ist (LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG 1998).

Heptachlor und Heptachlorepoxyd konnten in keinem der untersuchten Waldböden in nennenswerten Konzentrationen gefunden werden.

## 7 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Eine Akkumulation von im Wesentlichen atmosphären eingetragenen organischen Schadstoffen in Waldböden Niedersachsens wird am Beispiel der in dieser Untersuchung gemessenen PAK und PCB deutlich. Ein Vergleich mit Literaturdaten zeigt eine wesentlich höhere Anreicherung dieser Stoffe in den hier untersuchten Waldböden im Verhältnis zu Acker- und Grünlandböden. Ein vorwiegend atmosphärischer Eintragspfad wurde auch an den wesentlich höheren Gehalten im Boden von Nadelbaum- im Vergleich zu Laubbaumbeständen deutlich. Nadelbäume kammern dabei insbesondere PAK, deren Konzentrationen im Winter besonders hoch sind, aus der Luft aus. Bei den PCB ist das Ausmaß geringer, da ihre Konzentrationen in den Wintermonaten eher niedriger sind. In Kammlagen mit häufigem Nebelaufkommen werden mehr PAK aus der Luft ausgekämmt, was an den vergleichsweise hohen Konzentrationen der beiden hier untersuchten Fichtenbeständen in den höheren Lagen von Hils und Harz deutlich wird.

Des Weiteren wurden persistente organische Schadstoffe untersucht, die als Pestizide in Wäldern eingesetzt wurden, deren Einsatz aber mittlerweile verboten ist (DDT, HCB, HCH (Lindan), Aldrin, Dieldrin und Endrin; Verbote und Einschränkungen zwischen den 70er und 90er Jahren). Außer beim HCB spielt der Eintrag dieser Stoffe über die Luft eine sehr geringe Rolle. Dies wird an den sehr unterschiedlichen Konzentrationen und Vorräten dieser Stoffe im Boden der untersuchten Flächen deutlich. Die hier untersuchten Waldböden sind im Vergleich zu Acker- und Grünlandböden wesentlich höher belastet.

Die Ergebnisse dieser Untersuchung dokumentieren die aktuelle Belastungssituation und ihre Veränderung (Wiederholungsinventuren).

### 7.1 Aktuelle Belastungssituation

Die hier gefundenen Konzentrationen und Vorräte liegen bei den PAK und PCB in der gleichen Größenordnung, wie in Waldböden vergleichbarer Regionen, während die HCB-Konzentrationen (Medianwerte) über den meisten der in der Literatur zu findenden Werten liegen.

Der Medianwert für DDT liegt im oberen Bereich der in der Literatur angegebenen Werte. Die Hintergrundwerte für die Summe aller HCH-Verbindungen liegen in ähnlicher Größenordnung, wie die in anderen Untersuchungen kalkulierten Werte. Die Maximalwerte für Lindan sind wesentlich höher, als in der Literatur zu findende Werte. Aldrin, Dieldrin und Endrin konnten im Boden von nur wenigen BDF-F gefunden werden. Heptachlor und Heptachlorepoxyd konnten nicht gefunden werden.

PAK, PCB, HCB, HCH und DDT kamen in 80 – 100 % der niedersächsischen BDF-F vor, Heptachlor und Heptachlorepoxyd im Boden keiner der untersuchten BDF-F. Aldrin wurde nur im Boden von zwei BDF-F im Solling, Dieldrin und Endrin nur im Boden von sechs bzw. vier der untersuchten BDF-F gefunden.

Böden unter Nadelbäumen, insbesondere unter Fichten, sind meist höher belastet, als Böden unter Laubbäumen. Nur HCH konnte gleich häufig und in ähnlichen Konzentrationen unter Laub- und Nadelbaumbeständen gefunden werden. Bei PCB, PAK und HCB kann dies mit den vorwiegend diffusen Eintragspfaden sowie der ganzjährigen Benadelung und der hohen Affinität der cuticulären Wachsschicht der Nadeln für diese Stoffe erklärt werden, bei DDT und HCB mit dem häufigeren Einsatz dieser Stoffe in Nadelbaum- im Vergleich zu Laubbaumbeständen.

Für Waldböden anzuwendende Vorsorgewerte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV 1999) wurden nur in der Humusaufgabe von drei der hier untersuchten BDF-F für PAK überschritten. Die PCB-Konzentrationen überschritten in keinem Fall diesen Grenzwert. Für alle anderen Stoffe gibt es keine Vorsorgewerte. Die insgesamt sehr unterschiedliche Belastungssituation mit Pestiziden lässt sich nach Tabelle 28 einschätzen.

Tab. 28: Einstufung von BDF-F hinsichtlich Belastung mit HCB, HCH, DDX.

	gering belastete Flächen	hoch belastete Flächen
<b>HCB</b>	DREI, EHEI, GDEI, GWBU, SLF1	HIMJ, LBKA, LBNH, LSBU
<b>HCH</b>	DREI	EHEI, EHKI, LSBU
<b>DDX</b>	GDEI, HABU	LBNH

Gänzlich unbelastete Flächen gibt es nicht. Sehr gering belastet ist die BDF-F WIFI.

Untersuchungen von Waldböden werden für die Ableitung von Hintergrundwerten herange-

zogen. Aus dieser Untersuchung können folgende Hintergrundwerte für die Humusauflage abgeschätzt werden (Tab. 29):

Tab.: 29: Hintergrundwerte niedersächsischer Waldböden [ $\mu\text{g}/\text{kg}$  TS].

		PAK16	PCB6	HCB	HCH (Summe)	Lindan	DDT
Humusauflage L/Of	N	47	85	85	85	85	85
	50.P	763	22	4	13	5	9
	90.P	1 944	56	28	56	32	98
Humusauflage Oh	N	40	67	67	67	67	67
	50.P	3 107	18	2	5	< 2	14
	90.P	10 928	57	11	23	13	136

Die Hintergrundwerte für PAK16 wurden auf  $171 \mu\text{g}/\text{kg}$  TS für das 50. Perzentil, bzw.  $1\,254 \mu\text{g}/\text{kg}$  TS für das 90. Perzentil für den mineralischen Oberboden, und auf  $45 \mu\text{g}/\text{kg}$  TS für das 50. Perzentil, bzw.  $95 \mu\text{g}/\text{kg}$  TS für das 90. Perzentil für den Unterboden, abgeschätzt. Für alle anderen Stoffe lagen die 50. und 90. Perzentile in der Größenordnung oder unter der unteren Bestimmungsgrenze.

## 7.2 Tiefenverlagerung / Grundwassergefährdung

Fast alle hier untersuchten organischen Schadstoffe haben eine hohe Affinität zur organischen Substanz im Boden und werden deshalb kaum ( $\alpha$ -HCH, Lindan, Aldrin) oder nur in geringem Maße (PCB, HCB, Endrin) in den Mineralboden verlagert. Niedriger kondensierte PAK werden in größerem Ausmaß als höher kondensierte PAK, insgesamt jedoch in geringem Maße bis in den Oberboden (0 – 10 cm) verlagert. In Sand- oder Moorböden können PAK, PCB, DDX und  $\beta$ -HCH leichter verlagert werden. In Moorböden erhöhen Fulvo- und Huminsäuren die Löslichkeit von PAK, PCB und DDX: alle konnten bis in 50 cm Tiefe gefunden werden. In Sandböden ermöglichen die geringen Gehalte von Tonmineralen die höhere Mobilität des vergleichsweise gut wasserlöslichen  $\beta$ -HCH (bis in 30 cm Tiefe). DDX wurden auf immerhin 25 % der Flächen in den Mineralboden bis in maximal 50 cm Tiefe verlagert,

wobei die Verlagerbarkeit auf alle drei Isomere zutrifft.

Wenn die Konzentrationen in der Humusauflage sehr hoch sind, können DDT, HCB und Dieldrin auch in größerem Ausmaß in die Tiefe verlagert werden (z. B. LBNH: DDT und Dieldrin, LSBU: HCB).

In der Humusauflage wurden meist wesentlich höhere PAK-Gehalte in der Oh-Lage als in der L/Of-Lage gefunden, während beim Lindan häufig höhere Werte in der L/Of- als in der Oh-Lage auftraten. Alle anderen Stoffe zeigen keine Tendenz zu höheren Gehalten in einer der Humuslagen.

## 7.3 Zeitliche Veränderungen

Abnehmende Konzentrationen und Vorräte konnten bei fast allen hier untersuchten Stoffen bei 9 – 10 Jahre auseinander liegenden Inventuren gefunden werden. So nahmen die Konzentrationen und Vorräte im Boden der BDF-F AUKI und FUKI bei den PAK und PCB um 50 – 80 %, beim HCB um 10 – 70 %, bei den HCH um 50 – 90 % und beim DDT um 90 % ab. Der stärkere Rückgang der PCB-Depositionsraten wirkt sich aufgrund der wesentlich höheren Halbwertszeiten der PCB im Vergleich zu den PAK sehr viel weniger aus. Im Boden der BDF-F GWBU konnte eine Zunahme von Lindan auf das Doppelte der auf niedrigem Niveau liegenden Werte von 1994 gefunden werden. Auch

beim HCB konnte 2004 in der Humusaufgabe eine Zunahme auf das Zehnfache der Konzentrationen und Vorräte von 1994 festgestellt werden, womit die HCB-Konzentration dieser BDF-F 2004 im oberen Konzentrationsbereich liegt. HCB ist ein Abbauprodukt von Lindan. Die vergleichsweise geringe Belastung der BDF-F GWBU mit den ubiquitär über die Atmosphäre eingetragenen PCB und PAK kann mit der hohen biologischen Aktivität im Boden erklärt werden. Die sehr dünne Olf-Humusaufgabe wird in ca. fünf Jahren vollständig umgesetzt.

Bei DDT und seinen Abbauprodukten DDE und DDD konnten abnehmende DDT/DDE + DDD-Verhältnisse mit länger zurückliegendem DDT-Einsatz gefunden werden. Das Verhältnis nahm im Untersuchungszeitraum von 90 auf unter 50 % ab. Die Halbwertszeit kann auf unter 10 Jahre geschätzt werden, was deutlich unter den Literaturangaben liegt. Für HCB wurden die Halbwertszeiten auf 15 bis 30 Jahre geschätzt. Für den Abbau von Lindan lassen sich Halbwertszeiten von < 10 bis ungefähr 10 Jahre schätzen, was sich mit Literaturangaben deckt.

Um zu rekapitulieren:

- DDT, HCB und HCH sind im Boden des überwiegenden Anteils der niedersächsischen BDF-F nachweisbar. Aldrin, Dieldrin und Endrin konnten im Boden nur einiger der untersuchten Wälder gefunden werden.
- Die Belastung niedersächsischer Waldböden mit PAK und PCB ist vergleichbar mit anderen Böden in Deutschland und Österreich. Die DDT-Belastung liegt im oberen Bereich, diejenige von Lindan und HCB über den anderweitig publizierten Gehalten.
- Lufteingetragene Schadstoffe akkumulieren in Waldböden. Nadelbäume kämten diese in höherem Maße als Laubbäume aus der Luft aus.
- Eine Verlagerung in größere Tiefen und damit potenzielle Gefährdung des Grundwassers ist für PCB, HCB, HCH, Aldrin, Dieldrin und Endrin auszuschließen. PAK und DDX werden jedoch bis in größere Tiefe (50 cm) verlagert. Dabei ist das Ausmaß von den bodenchemischen Verhältnissen abhängig. Diese Stoffe sind in Moor- und Sandböden besonders verlagerungsgefährdet.

- Die abnehmenden Konzentrationen aller untersuchten Stoffe sind auf verringerte Einträge infolge umweltpolitischer Auflagen und Ausbringungsverbote sowie mikrobiellen Abbau und Verlagerung zurückzuführen.
- In gut gepufferten Böden mit hoher mikrobieller Aktivität erfolgt der Abbau dieser Stoffe wesentlich schneller, als in Böden mit hoher Azidität und geringer biologischer Aktivität.

## 8 Literatur

- ABBAS, B. (1995): DDT input into the environment by forest pest control in Brandenburg in 1983/84 - assessment of the contamination level. – Zentralblatt für Hygiene und Umweltmedizin **197**: 452 – 457.
- ATLAS, E. & GIAM, C. S. (1988): Ambient concentration and precipitation scavenging of atmospheric organic pollutants. – Water, Air, and Soil Pollution **38**: 19 – 36.
- BALLSCHMITER, K. & ZELL, M. (1980): Analysis of polychlorinated biphenyls (PCB) by gas chromatography. – Fresenius' Journal of Analytical Chemistry **302**: 20 – 31.
- BARTH, N., BRANDTNER, W., CORDSON, E., DANN, T., EMMERICH, K.-H., FELDHAUS, D., KLEEFISCH, B., SCHILLING, B. & UTERMANN, J. (2002): Boden-Dauerbeobachtung: Einrichtung und Betrieb von Boden-Dauerbeobachtungsflächen. – In: ROSENKRANZ, D., BACHMANN, G., KÖNIG, W. & EINSELE, G. (Hrsg.): Bodenschutz **3**: 1 – 127.
- BAYERISCHES LANDESAMT FÜR UMWELTSCHUTZ (2003): Ermittlung der atmosphärischen Deposition von persistenten Organochlorhalogenverbindungen (POP) in Bayern. – Abschlussbericht zum FuE-Projekt Nr. 7030: 1 – 26.
- BBODSCHV (1999): Bundesbodenschutz- und Altlastenverordnung. – Fassung vom 12. Juli 1999, BGBl. I: 1554.
- BECK, H. & MATHAR, W. (1985): Analyseverfahren zur Bestimmung von ausgewählten PCB-Einzelkomponenten in Lebensmitteln. – Bundesgesundheitsblatt **28**: 1 – 12.
- BERTEIGNE, M., LEFEVRE, Y. & ROSE, C. (1988): Accumulation of organic pollutants (P. A. H.) in organic layers of soils. Possible relations with forest decline. – European Journal of Forest Pathology **18**: 310 – 318.
- BIMSCHG (2002): Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge (Bundes-Immissionsschutzgesetz). – Fassung vom 26. September 2002, BGBl. I Nr. 71 vom 04.10.2002, S. 3830.
- BLESSING, U. (1996): Kennzeichnung der PAK-Dynamik zweier Kleineinzugsgebiete im Flysch (Tegernseer Alpen). – Bayreuther Bodenkundl. Ber. **50**: 98 S.
- BLUME, H. P. (Hrsg.) (2004): Handbuch des Bodenschutzes. – 3. Aufl., S. 1 – 916; (Eco-med).
- BORSODORF, H., OPP, C. & STACH, J. (1993): Experiments on the loading of comparable forest-, meadow and arable locations with organochlorines in the low-lying meadow near Bitterfeld [Germany]. – Mitt. Dtsch. Bodenkdl. Ges. **72**, I: 315 – 318.
- BREIVIK, K., PACYNA, J. M. & MÜNCH, J. (1999): Use of alpha-, beta- and gamma-hexachlorocyclohexan in Europe, 1970-1996. – Science of the Total Environment **239**: 151 – 163.
- BUA (1994): Hexachlorbenzol. – Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft deutscher Chemiker (BUA), Bericht **119**: 1 – 201.
- CHEMVERBOTSV (2003): Verordnung über Verbote und Beschränkungen des Inverkehrbringens gefährlicher Stoffe, Zubereitungen und Erzeugnisse nach dem Chemikaliengesetz (Chemikalien-Verbotsverordnung). – Neufassung vom 13. Juni 2003, BGBl. I: 867.
- CHIOU, C. T., MALCOM, R. L., BRINTON, T. I. & KILE, D. E. (1986): Water solubility enhancement of some organic pollutants and pesticides by dissolved humic and fulvic acids. – Environmental Science and Technology **20**: 502 – 508.
- CHIOU, C. T., MCGRODDY, S. E. & KLIE, D. E. (1998): Partition characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons on soils and sediments. – Environmental Science and Technology **32**: 264 – 269.
- CHRISTENSEN, B. T. (1992): Physical fractionation of soil and organic matter in primary particle size and density separates. – Advances in Soil Science **20**: 2 – 90.
- CORONA-CRUZ, A., GOLD-BOUCHOT, G., GUTIERREZ-ROJAS, M., MONROY-HERMOSILLO, O. & FAVELA, E. (1999): Anaerobic-aerobic biodegradation of DDT (dichlordiphenyl trichloroethane) in soils. – Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology **63**: 219 – 225.

- CRÖSSMANN, G. (1992): Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe in Böden und Pflanzen - Ein Beitrag zur Gefährdungsabschätzung bei Altlasten, Band II - Untersuchungsergebnisse. – Kommunalverband Ruhrgebiet (KVR): 70 S.; Essen.
- DDT-GESETZ (1972): Gesetz über den Verkehr mit DDT. – Vom 7. August 1972, BGBl. I: 1385.
- DESCHAUER, H., HARTMANN, R., KOGEL, K. I., ZECH, W., SENESI, N. & MIANO, T. M. (1994): The influence of dissolved organic matter (DOM) on the transport of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a forest soil under *Pinus sylvestris*. – Humic substances in the global environment and implications on human health: proceedings of the 6th International Meeting of the International Humic Substances Society, Monopoli (Bari), Italy, September 20 – 25, 1992: 1063 – 1069, 14 ref.
- DIMOND, J. B. & OWEN, R. B. (1996): Long-term residue of DDT compounds in forest soils in Maine [USA]. – *Environmental Pollution* **92**: 227 – 230.
- DÖRR, G., HIPPELEIN, M., KAUPP, H. & HUTZINGER, O. (1996): Baseline contamination assessment for a new resource recovery facility in Germany. Part IV: Levels and profiles of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in ambient air. – *Chemosphere* **33**: 1569 – 1578.
- EDWARDS, N. T. (1983): Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the terrestrial environment - a review. – *Journal of Environmental Quality* **12**: 427 – 441.
- EG-RICHTLINIE PCB (1996): Richtlinie 96/59/EG des Rates vom 16. September 1996 über die Beseitigung polychlorierter Biphenyle und polychlorierter Terphenyle (PCB/PCT). – *Amtsblatt L* **243** vom 24.9.1996.
- EG-VERORDNUNG (2004): Verordnung (EG) Nr. 850/2004 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 29. April 2004 über persistente organische Schadstoffe und zur Änderung der Richtlinie 79/117/EWG. – *Amtsblatt der europäischen Union L* **158**: 1 – 18.
- ELLERMANN, K., HERKELMANN, S., GLADTKE, D. & PFEFFER, H. U. (1997): Luftqualität in Nordrhein-Westfalen. Diskontinuierliche Luftqualitätsmessungen, Limes - Jahresbericht 1996, Reihe B - Schwebstaub und Inhaltsstoffe, Kohlenwasserstoffe. – *Schriften des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen*: 1 – 151; Essen.
- EPA: Prioritätenliste der U. S. Amerikanischen Umweltbehörde EPA (Environmental Protection Agency). – <<http://www.epa.gov/>>.
- ESCHENBACH, A., GEHLEN, P. & BIERL, R. (1991): Untersuchungen zum Einfluß von Fluoranthen und Benzo(a)Pyren auf Bodenmikroorganismen und zum mikrobiellen Abbau dieser Substanzen. – *Mitt. Dtsch. Bodenkundl. Ges.* **63**: 91 – 94.
- EUSTERBROCK, L. (1999): Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) und polychlorierte Biphenyle (PCB) in urbanen Böden Bayreuths. – *Bayreuther Bodenkundl. Ber.* **66**: 100 S.
- FELDKIECKER, D., KÄMPFER, P. & DOTT, W. (1995): Field-scale investigations on the biodegradation of chlorinated aromatic compounds and HCH in the subsurface environment. – *J. Contam. Hydrol.* **19**: 145 – 149.
- FIEDLER, H., HUB, M. & HUTZINGER, O. (1993): Stoffbericht Hexachlorcyclohexan (HCH). – Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg: *Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle* **9**; Karlsruhe.
- FIEDLER, H., HUB, M., WILLNER, S. & HUTZINGER, O. (1995): Stoffbericht (HCB). – Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg: *Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle* **18**: 1 – 165; Karlsruhe.
- FIEDLER, H., MERTENS, C., MORGENSTERN, M., SCHEIDT, M. & HUTZINGER, O. (1997): Stoffbericht polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK). – Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg: *Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle* **34**: 1 – 249; Karlsruhe.
- GUGGENBERGER, G., PICHLER, M., HARTMANN, R. & ZECH, W. (1996): Polycyclic aromatic hydrocarbons in different forest soils: mineral horizons. – *Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde* **159**: 565 – 573.

- HAIDER, K. & SCHÄFER, A. (2000): Umwandlung und Abbau von Pflanzenschutzmitteln in Böden - Auswirkungen auf die Umwelt. - Stuttgart (Enke).
- HARRAD, S. J., SEWART, R., ALCOCK, R., BOUMPHREY, R., BURNETT, R., DUARTE-DAVIDSON, R., HALSALL, C., SANDERS, G., WATERHOUSE, K., WILD, S. R. & JONES, K. C. (1994): Polychlorinated Biphenyls (PCB) in the British environment: sinks, sources and temporal trends. - *Environmental Pollution* **85**: 131 - 146.
- HARTMANN, R. (1995): Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) in Waldböden. - *Bayreuther Bodenkundl. Ber.* **44**: 117 S.
- HARTMANN, R. (1996): Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in forest soils: critical evaluation of a new analytical procedure. - *Int. J. Environ. Anal. Chem.* **62**: 161 - 173.
- HORSTMANN, M. & MCLACHLAN, M. S. (1998): Atmospheric deposition of semivolatile organic compounds to two forest canopies. - *Atmospheric Environment* **32**: 1799 - 1809.
- HOWSAM, M., JONES, K. C. & INESON, P. (2000): PAHs in the soils of a mature, mixed-deciduous (*Quercus-Fraxinus*) woodland and the surrounding pasture. - *Water, Air, and Soil Pollution* **121**: 379 - 398.
- HOWSAM, M., JONES, K. C. & INESON, P. (2001): Dynamics of PAH deposition, cycling and storage in a mixed-deciduous (*Quercus-Fraxinus*) woodland ecosystem. - *Environmental Pollution* **113**: 163 - 176.
- JONECK, M. & PRINZ, R. (1995): PCB- und PAK-Belastung von Böden in industriefernen Regionen Bayerns. - *Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung - Zeitschrift für Umweltchemie und Ökotoxikologie (UWSF)* **7**: 298 - 301.
- JONES, K. C., STRATFORD, J. A., TIDRIDGE, P., WATERHOUSE, K. S. & JOHNSTON, A. E. (1989): Polynuclear aromatic hydrocarbons in an agricultural soil: long-term changes in profile distribution. - *Environmental Pollution* **56**: 337 - 351.
- KNOCHE, H., KLEIN, M., KÖRDEL, W., WAHLE, U., HUND, K., MÜLLER, J. & KLEIN, W. (1994): Literaturstudie zu Ableitung von Hintergrundwerten für polyzyklische organische Kohlenwasserstoffe (PAK). - Forschungs- und Entwicklungsvorhaben im Auftrag des UBA: 1 - 70.
- KNOCHE, H., KLEIN, M., KÖRDEL, W., WAHLE, U., HUND, K., MÜLLER, J. & KLEIN, W. (1995): Literaturstudie zur Ableitung von Bodengrenzwerten für polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK). - UBA-Texte **71/1995**: 1 - 63.
- KOCH, R. (1998): Umweltchemikalien. - 1 - 423; Weinheim (VCH).
- KÖNIG, W., HEMBROCK-HEGER A. & WILCKENS, M. (1991): Persistente organische Chemikalien in Böden. - *Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung - Zeitschrift für Umweltchemie und Ökotoxikologie (UWSF)* **3**: 33 - 36.
- KRAUSS, M. & WILCKE, W. (2002): Photochemical oxidation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in soils - a tool to assess their degradability? - *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* **165**: 173 - 178.
- KRAUSS, M., WILCKE, W. & ZECH, W. (2000): Polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls in forest soils: depth distribution as indicator of different fate. - *Environmental Pollution* **110**: 79 - 88.
- KRAUSS, P. & TAURO, J. (1995): Mögliche Gefährdung des Grundwassers durch PCB sowie Dioxine und Furane im Boden. - *Schriften der Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg* **1**: 1 - 47; Karlsruhe.
- LABO - BUND-LÄNDER-ARBEITSGEMEINSCHAFT BODENSCHUTZ (1998): Hintergrund- und Referenzwerte für Böden. - In: ROSENKRANZ, D., EINSELE, G. & HARESS, H.-M.: Bodenschutz. Ergänzendes Handbuch Nr. 9006, 2. Aufl.: 1 - 115; Berlin (Erich Schmidt).
- LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1993): Stoffbericht Hexachlorcyclohexan (HCH). - Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg: Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle **9**: 1 - 243; Karlsruhe.

- LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1998): Literaturstudie zum Transfer von organischen Schadstoffen im System Boden/Pflanze und Boden/Sickerwasser. – Handbuch Boden: 1 – 253.
- LANDESANSTALT FÜR UMWELTSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (1999): Untersuchungen ausgewählter organischer Schadstoffe und mikrobiologische Charakterisierung der Standorte. – Handbuch Boden, Materialien zum Bodenschutz.
- LEUENBERGER, C., CZUCZWA, J., GIGER, W. & HEYERDAHL, E. (1988): Aliphatic and polycyclic hydrocarbons in urban rain, snow and fog. – *Atmospheric Environment* **22**: 695 – 705.
- LUA NRW (1997): Rheingütebericht 1995. – Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen: 1 – 99; Essen.
- LUA NRW (1998): Luftqualität in Nordrhein-Westfalen, Bericht über die Ergebnisse der Immissionsmessungen 1997 - Kurzfassung. – Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen: 1 – 69; Essen.
- MARSCHNER, B. (1995): Bodenchemische und -biologische Einflußfaktoren der Freisetzung von PAK und PCB in einem Rieselfeldboden. – *Mitt. Dtsch. Bodenkdl. Ges.* **76**: 1 – 14.
- MARSCHNER, B. (1999): Sorption von polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in polychlorierten Biphenylen im Boden. – *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*: 1 – 14.
- MARTINEZ-TOLEDO, M. V., SALMERON, V., RODELAS, B., POZO, C. & GONZALEZ-LOPEZ, J. (1993): Studies on the effects of a chlorinated hydrocarbon insecticide, Lindane, on soil microorganisms. – *Chemosphere* **27**: 2261 – 2270.
- MATZNER, E. (1984): Annual rates of deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons in different forest ecosystems. – *Water, Air, and Soil Pollution* **21**: 424 – 435.
- MATZNER, E., HÜBNER, D. & THOMAS, W. (1981): Content and storage of polycyclic aromatic hydrocarbons in two forested ecosystems in northern Germany. – *Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde* **144**: 283 – 288.
- MAXIN, C. R. & KOGEL, K. I. (1995): Partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) to water-soluble soil organic matter. – *European Journal of Soil Science* **46**: 193 – 204.
- MCCARTHY, J. F., ROBERTSON, L. E. & BURRUS, L. W. (1989): Association of benzo(a)pyrene with dissolved organic matter: prediction of K<sub>dom</sub> from structural and chemical properties of the organic matter. – *Chemosphere* **19**: 1911 – 1920.
- MCGRODDY, S. E., FARRINGTON, J. W. & GSCHWEND, P. M. (1996): Comparison of the in-situ and desorption sediment-water partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls. – *Environmental Science and Technology* **30**: 172 – 177.
- MEEK, M. E. & GIDDINGS, M. J. (1991): Chlorobenzenes other than Hexachlorbenzene. – World Health Organisation: *Environmental Health Criteria* **128**: 1 – 252; Geneva.
- MEESENBURG, H., DAMMANN, I., EVERS, J., SCHULZE, A., RADEMACHER, P., MINDRUP, M., KÖNIG, N., FORTMANN, H., EBERL, C. & MEIWES, K. J. (2002): Forstliches Umweltmonitoring als Entscheidungshilfe für die Forstwirtschaft und Umweltpolitik. – *Forst und Holz* **57**: 707 – 712.
- MEESENBURG, H., MEIWES, K. J., SCHULZE, A. & RADEMACHER, P. (1997): Bodendauerbeobachtungsflächen auf forstlich genutzten Flächen (BDF-F). – In: KLEEFISCH, B. & KUES, J. (Koord.) (1997): *Das Bodendauerbeobachtungsprogramm von Niedersachsen. Methoden und Ergebnisse.* – Arb.-H. Boden 1997/2: 77 – 95; Hannover (NLFb).
- MÜLLER, M. D. (1982): Hexachlorbenzol in der Schweiz - Ausmaß und Hintergründe der Umweltkontamination. – *Chimia* **36**: 437 – 445.
- MÜLLER, U., HENNINGS, V. & HORN, A. (1992): Hintergrundbelastung niedersächsischer Böden mit polychlorierten Biphenylen und Polychlordioxinen/furanen. – *Wasser und Boden* **9**: 571 – 576.
- NIEDERLÄNDISCHE LISTE (1994): Interventions (I-Werte) - und Referenzwerte (S-Werte) für Böden und Grundwasser. – Ministerie van Volkshuisvesting ROeMvH (1994), In: ROSENKRANZ, D., EINSELE, G. & HARESS, H.-M. (Hrsg.): *Bodenschutz. Ergänzbares Handbuch der Maßnahmen und Empfehlungen*

- für Schutz, Pflege und Sanierung von Böden, Landschaft und Grundwasser **8936**: 1 – 4.
- OCKENDEN, W. A., BREIVIK, K., MEIJER, S. N., STEINNES, E., SWEETMAN, A. J. & JONES, K. C. (2003): The global re-cycling of persistent organic pollutants is strongly retarded by soils. – *Environmental Pollution* **121**: 75 – 80.
- PFLSCHANWV (1992): Verordnung über Anwendungsverbote für Pflanzenschutzmittel (Pflanzenschutz-Anwendungsverordnung) vom 10. November 1992. – BGBl. I: 1887, zuletzt geändert durch die Verordnung vom 23. Juli 2003 (BGBl. I: 1533).
- PICHLER, M., GUGGENBERGER, G., HARTMANN, R. & ZECH, W. (1996): Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in different forest humus types. – *Environmental Science and Pollution Research International* **3**: 24 – 31.
- PICHLER, M., GUGGENBERGER, G. & ZECH, W. (1995): PAK-Dynamik in Waldböden unterschiedlicher biologischer Aktivität. – *Mitt. Dtsch. Bodenkdl. Ges.* **76**: 409 – 412.
- REISCHL, A., ZECH, W., REISSINGER, M., LENOIR, D., SCHRAMM, K. W. & HUTZINGER, O. (1990): Distribution of chlorinated aromatics in leaves, needles and two soils from the Fichtelgebirge (NE-Bavaria). – *FRG Organohalogen Compounds* **4**: 223 – 227.
- SCHLEYER, R. & RAFFIUS, B. (2000): Grundwassergefährdung durch organische Luftschadstoffe. – *Deutscher Verband für Wasserwirtschaft und Kulturbau e. V.: DVWK-Materialien* **1**: 1 – 385.
- STOCKHOLMER KONVENTION (2004): Stockholmer Konvention vom 17.5.2004 - Stockholm Convention on persistent organic pollutants (POPs). – Sekretariat der Konvention der Vereinten Nationen (UN) über persistent organic pollutants (Genf) <<http://www.pops.int/>>.
- TEEBAY, R. H., WELP, G. & BRÜMMER, G. W. (1993): Gehalte an polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK). – *Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde* **156**: 1 – 10.
- TERTYZE, K., BAULKE, N., BOHMER, W. & MULLER, J. (1998): Evaluation of concentration profiles of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in soils of the Spreewald Biosphere Reserve. – *Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung* **10**: 326 – 332.
- TRINKWV (2001): Verordnung über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch (Trinkwasserverordnung). – Vom 21. Mai 2001, BGBl. I Nr. 24 vom 28. 5. 2001, S. 959.
- UN/ECE - UNITED NATIONS ECONOMIC COMMISSION FOR EUROPE (1998): Protocol on Persistent Organic Pollutants. – <[http://www.unece.org/env/emep/strategy\\_full.pdf](http://www.unece.org/env/emep/strategy_full.pdf)> - 274k - 20/Oct/2006.
- VDLUFA (2001): Handbuch der landwirtschaftlichen Versuchs- und Untersuchungsmethodik. Die Untersuchung von Boden. – 3. Teillieferung.
- WEISS, P. (1998): Belastungen des Waldes durch Schwermetalle und organische Schadstoffe. – *Monografien, Bundesminister für Umwelt, Jugend und Familie, Wien* **97**.
- WEISS, P., LORBEER, G. & SCHARF, S. (1996): Persistente organische Stoffe in Fichtennadeln und im Auflagehumus des Schulterberg-Nordprofils. – *FBVA-Berichte* **94**: 83 – 99.
- WEISS, P., LORBEER, G., SCHARF, S. (2000): Regional aspects and statistical characterisation of the load with semivolatile organic compounds at remote Austrian forest sites. – *Special issue: Halogenated environmental organic pollutants. Dioxin '98. Eighteenth Symposium Stockholm, Sweden, 17 – 21 August, 1998 – Chemosphere* **40**: 1159 – 1171.
- WENZEL, K. D., MANZ, M., HUBERT, A. & SCHUURMANN, G. (2002): Fate of POPs (DDX, HCHs, PCBs) in upper soil layers of pine forests. – *Science of the Total Environment* **286**: 143 – 154.
- WIGSTRÖM, K. & TOLONEN, K. (1987): The history of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons in soil. – *Water, Air, and Soil Pollution* **32**: 155 – 175.
- WILCKE, W. (2000): Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in soil - a review. – *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* **163**: 229 – 248.

- WILCKE, W., AMELUNG, W. & ZECH, W. (1997): Heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a rural community leewards of a waste incineration plant. – Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde **160**: 369 – 378.
- WILCKE, W. & ZECH, W. (1997): Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in forest floors of the Northern Czech Mountains. – Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde **160**: 573 – 579.
- WILCKE, W., ZECH, W. & KOBZA, J. (1996): PAH-pools in soils along a PAH-deposition gradient. – Environmental Pollution **92**: 307 – 313.
- WILD, S. R. & JONES, K. C. (1995): Polynuclear aromatic hydrocarbons in the United Kingdom environment: a preliminary source inventory and budget. – Environmental Pollution **88**: 91 – 108.

## 9 Glossar

### Auflagehumus

Organische Horizonte (Streu-(L), Zersetzung-(Of) und Feinhumushorizont (Oh)) über dem Mineralboden unter Wald

### Bestimmungsgrenze

Gehalt, bei dem unter Zugrundelegung einer festgelegten Irrtumswahrscheinlichkeit die relative Ergebnisunsicherheit einen vorgegebenen Wert annimmt. < BG bedeutet nicht, dass der entsprechende Stoff nicht vorhanden oder nachweisbar ist, sondern, dass dessen Gehalt mit großer Wahrscheinlichkeit unter der Bestimmungsgrenze liegt und somit nicht quantifizierbar ist.

### Dampfdruck

Druck, unter dem im Gleichgewichtszustand der über einem Feststoff oder einer Flüssigkeit sich befindende Dampf steht; je höher der Dampfdruck einer Substanz ist, umso mehr Teilchen gehen in die Gasphase über.

### Interzeption

Unter Interzeption versteht man das Zurückhalten von Niederschlagswasser auf den Oberflächen von Pflanzen, vor allem auf den Blättern und Nadeln.

### Isomere

zwei oder mehrere chemische Verbindungen mit gleicher Summenformel, aber verschiedener Strukturformel; dadurch bedingt unterschiedliche physikalische und chemische Eigenschaften.

### Kalamität

vermehrtes Auftreten von Schadinsekten im Wald, die zu einer starken Schädigung bis hin zum Absterben von Bäumen führen kann.

### Median

statistischer Wert: derjenige Wert, der nach Größenordnung aller Werte von genau 50 % aller Werte unter- bzw. überschritten wird.

### Metabolite

Abbauprodukte von chemischen Verbindungen.

### Mittelwert (arithmetrischer)

statistischer Wert: Summe aller Messwerte, geteilt durch ihre Anzahl.

### Oberboden

Mineralische Bodenhorizonte mit Akkumulation von organischer Substanz (hier: Tiefenstufe 0 – 10 cm).

### Perzentil

statistischer Wert: Perzentile teilen die gesamte Häufigkeit der statistischen Verteilung in  $n$  ( $n = 100$ ) gleiche Teile; das 90. Perzentil gibt den Wert an, bei dem 90 % des nach der Größe geordneten Datenkollektivs kleiner und 10 % größer als dieser Wert sind.

### $P_{ow}$

Der Logarithmus des n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizienten gibt das Verhältnis der Konzentrationen einer Chemikalie im Zweiphasensystem n-Octanol und Wasser unter Gleichgewichtsbedingungen an. n-Octanol ist das unverzweigte Octanol und dient hier als unpolare Referenz-Substanz. Der n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient dient als Maß für die Polarität bzw. die Wasserlöslichkeit oder Fettlöslichkeit einer Chemikalie.

### Unterboden

mineralische Bodenhorizonte (hier: Tiefenstufe 10 – 50 cm).

### VDLUFA

Verband Deutscher Landwirtschaftlicher Untersuchungs- und Forschungsanstalten.

## Autoren

- Heike Fortmann  
Nordwestdeutsche Forstliche  
Versuchsanstalt,  
Abteilung Umweltkontrolle,  
Sachgebiet Intensives Umweltmonitoring,  
Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen
- Dr. Henning Meesenburg  
Nordwestdeutsche Forstliche  
Versuchsanstalt,  
Abteilung Umweltkontrolle,  
Sachgebiet Intensives Umweltmonitoring,  
Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

## Vorwort

- Dr. Bernd Kleefisch  
ehemals  
Landesamt für Bergbau, Energie und  
Geologie  
Referat L 3.4 „Boden- und  
Grundwassermonitoring“  
Friedrich-Mißler-Str. 46/50, 28211 Bremen

ISSN 1864 – 7529