# Biogastechnologie zur umweltverträglichen Flüssigmistverwertung und Energiegewinnung in Wasserschutzgebieten

## Teilprojekt:

## Wasserwirtschaftliche und hygienische Begleituntersuchungen – Lysimeter-, Labor- und Praxisversuche

Stand: 22.07.05 Günter Henkelmann

## 1. Einleitung

Bakterielle Verunreinigungen von oberflächennahem Grundwasser und Gewässern haben eine große Bedeutung für die Umwelt, die Qualität des Wassers und die Versorgung der Bevölkerung mit dem Lebensmittel Wasser. Fragen zur Qualitätssicherung von Wasser genießen daher eine hohe Aufmerksamkeit und ein großes öffentliches Interesse. Die Wasserqualität wird zunächst von Qualitätskriterien für Reinheit, Geschmacksneutralität und der Einhaltung von Grenwerten für Verunreinigungen bestimmt. Darüber hinaus aber hat der Konsument sehr hohe Ansprüche an eine hygienisch einwandfreie Wasserqualität und erwartet eine nahezu umfassende Rückstandsfreiheit. Daher hat die Keimbelastung beim Gewässer- und Trinkwasserschutz einen hohen Stellenwert.

Um eine Keimbelastung von Trink- und Oberflächenwasser zu reduzieren, stellt sich zunächst die Frage nach den Ursachen. Mögliche Quelle der Verunreinigung sind Einträge über kommunale Abwässer, die Ausbringung von Gülle in der Landwirtschaft, aber auch über den Boden selbst, der durch Fäkalien von Tieren, Mäusen, Wildtieren oder Vögeln schon eine bakterielle Vorgeschichte hat (Tschirsich et al., 2002).

Für den Bereich Landwirtschaft kommt dies in der "Verordnung über die Grundsätze der guten fachlichen Praxis beim Düngen" (Düngeverordnung, 1996) zum Ausdruck. Nährstoffverluste bei der Bewirtschaftung sowie damit verbundene Einträge in die Gewässer sollen weitestgehend vermieden werden. Durch geeignete Bewirtschaftungsmaßnahmen, Ausbringungs- und Höchstmengenbeschränkungen soll der Eintrag von Nährstoffen und im Falle der organischen Wirtschaftsdünger (Gülle, Mist, Jauche) auch von Fäkalbakterien und potentiell Pathogenen in Oberflächengewässer minimiert werden.

Ziel der Begleituntersuchungen zur Biogasanlage in Berbling waren wasserhygienische Untersuchungen zum Vergleich von konventioneller Gülle (Rohgülle), Biogasgülle (Gärrest) und Untersuchungen zur mikrobiellen Verlagerung und zum Verbleib von Mikroorganismen im Boden. Daneben wurden lufthygienische Untersuchungen zu konventioneller Gülle und

Biogasgülle durchgeführt, da Ammoniakemissionen zur Eutrophierung von Gewässern und zur Beeinträchtigung von Oberflächengewässern beitragen können. Weiterhin sollten mit der Versuchsanstellung die Keimabtötung oder Keimverlagerung und eine mögliche Wiederverkeimung im Boden untersucht werden. In diesem Zusammenhang berichtete (Edmonds 1976), dass bestimmte *E. coli* Keime viele Monate im Boden verbleiben oder sich sogar anreichern können. Neuere Untersuchungen lassen allerdings auf Verweilzeiten eher von wenigen Tagen im Boden schließen (Lebuhn und Wilderer, 2005).

Ein wichtiger Aspekt der Begleituntersuchungen war die Frage nach der Auswaschung und den Frachten von Mikroorganismen im Wasser nach einer Bodenpassage sowie die Klärung der Frage, ob eine anaerob behandelte Gülle aus der Sicht der Umwelt, der Wasserwirtschaft, des Verbraucherschutzes und der Landwirtschaft bei der Ausbringung im Freiland entscheidende hygienische und chemisch-physikalische Vorteile gegenüber einer konventionellen Gülle aufweist.

## 2. Versuchsanstellung / Methoden

Ein Großteil dieser Teiluntersuchungen wurde auf schichtenweise aufgebauten Lysimetern im Freiland durchgeführt, da es hier einerseits möglich war, durch Zugabe von Tracern zu der jeweiligen Gülle gezielten Fragestellungen nachzugehen und andererseits, weil diese Böden seit mehr als 20 Jahren nachweislich nicht mit Wirtschaftsdüngern gedüngt wurden. Somit können Artefakte ausgeschlossen werden, die bei landwirtschaftlich genutzten Flächen durch unzureichende Kenntnisse der Vorgeschichte des Bodens nicht auszuschließen sind. Insgesamt wurden im Zeitraum von 2002 bis 2005 zwölf Grünlandlysimeter mit einer Kleegras/Weidelgrasmischung verwendet. Auf keinem der Lysimeter war organischer Dünger eingesetzt worden. Für jeden Versuch wurde ein neues, unbelastetes Lysimeter eingesetzt.

## 2.1 Ausbringung von Rohgülle und Gärrest

In allen Versuchsansätzen wurden die Lysimeter mit Gärrest und Rohgülle in einer praxisnahen Menge entsprechend 20 - 25 m³ pro ha gedüngt. Die Ausbringung erfolgte von Hand. Im Jahr 2003 wurden zwei Lysimeter mit Rohgülle und zwei Lysimeter mit Gärrest (Biogasgülle) beaufschlagt. Zwei Lysimeter dienten als Kontrollen.

Ende Mai wurden die Biogasgülle und die konventionelle Gülle mit Tracer-Substanzen auf zwei Lysimeter (Lehmboden) aufgebracht und im Langzeitversuchszeitraum bis Ende des Jahres 2003 untersucht.

Gleichzeitig fanden an jeweils einem Lysimeter mit Gärrest und Rohgülle Beregnungen für jeweils eine Woche statt.

Im Jahr 2004 wurden auf zwei Lysimeter (Lehmboden, Sandboden) radioaktiv markierte Keime zusammen mit der Rohgülle und Biogasgülle ausgebracht. Gleichzeitig wurden auf zwei weiteren Lysimetern Beregnungsversuche mit gleicher Gülle, aber ohne radioaktive Markierung durchgeführt. Diese dienten als Kontrollen für die Radionukliduntersuchungen. In der Abbildung 1 ist das Funktionsbild eines Lysimeters dargestellt. Jedes Lysimeter

bestand aus dem mit Boden gefüllten Lysimeter und einem "Übertopf" der es ermöglichte, das Sickerwasser nach der Bodenpassage zu sammeln.

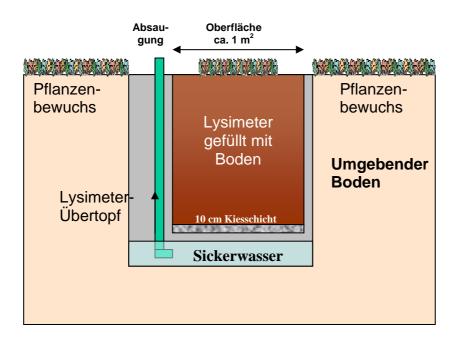


Abb 1: Funktionsbild eines Lysimeters

## 2.2 Probenahme der Sickerwässer

Das gesammelte Sickerwasser wurde in regelmäßigen Abständen (etwa alle 30 Minuten) über die Absaugleitung und einen automatischen Probensammler der Firma ISCO (Abb. 2) in einzelne Flaschen abgefüllt und die Inhaltsstoffe später im Labor untersucht. Die Lagerung der Wasserproben erfolgte im Kühlschrank bei 4° C. Die Zeit bis zur Analyse der fäkalcoliformen Keime, Tracer und Inhaltsstoffe betrug etwa 24 Stunden.



Als Böden wurden ein sandiger Braunerdeboden und ein Lehmboden verwendet. Die Böden und die Sickerwässer der Lysimeter wurden vor Beginn der Messungen auf *Escherichia coli (E. coli)* untersucht. Bei zwei Lysimetern wurden die Wirtschaftsdünger zusätzlich mit einer definierten Konzentration radioaktiv markierter *E. coli* beaufschlagt. Die anfallenden Sickerwässer wurden auf die mitapplizierten Tracer und auf *E. coli*-Bakterien untersucht.

Abb 2: Probensammler in der Lysimeteranlage

## 2.3 Wasserhygienische Untersuchungen

Bei den bakteriologischen Untersuchungen wurden Fäkalcoliforme (im wesentlichen *Escherichia coli*, *E. coli*) als Fäkalindikatorbakterien analysiert, da diese auf einfache Art zu bestimmen sind, überwiegend in Gülle und Kot auftreten und für die Beurteilung der Gewässergüte eine entscheidende Rolle spielen.

Andere Fäkalindikatoren oder pathogene Keime waren nicht im Untersuchungsumfang der Lysimeterstudien enthalten. Bei der Verwendung von fäkalen Indikatorkeimen ist die relativ hohe Empfindlichkeit von *E. coli* gegenüber Hitze, UV-Licht und äußeren Einflüssen im Boden zu beachten. So kann eine Population *E. coli* bereits im Boden verschwunden sein, manche Pathogene, insbesondere Sporenbildner, können aber noch länger im Boden überlebt haben.

## 2.4 Beregnung für Kurzzeitversuche

In der Versuchsanstellung des Jahres 2003 wurde je ein Lysimeter mit Biogasgülle und je ein Lysimeter mit Rohgülle beregnet. Die Beregnung erfolgte 1 Stunde nach Aufbringung der Gülle über den ganzen Tag verteilt in Portionen zu je 5 mm Niederschlagsäquivalenten. Bei den Beregnungen des Jahres 2003 wurde in der ersten Woche mit 10 mm/h, d.h. mit insgesamt 40 mm pro Tag beregnet.

Im Jahr 2004 wurde am ersten Tag mit 10 mm/h, d.h. mit insgesamt 40 mm, am zweiten und dritten Tag mit jeweils 20 mm Niederschlagsäquivalenten beregnet. Bei jeweils zwei Lysimetern wurde die Gülle zusätzlich mit einer hohen Konzentration von Lithium- und Bromidtracer, in einem Fall mit Tritium (H3) Tracer beaufschlagt. Unmittelbar nach Beginn der Beregnung begann die Messung der Sickerwässer.



Abb 3: Beregnungskammer über einem Grünlandlysimeter

## 2.5 Radioaktive Markierung

Um die Verlagerung der Bakterien im Boden verfolgen zu können, wurden *E. coli*-Bakterien in einem radioaktiven Medium (mit C14-Acetat und C14-Glucose angezogen und nach zwei Tagen abzentrifugiert, gewaschen und nochmals abzentrifugiert. Die folgenden Generationen der Bakterien hatten den radioaktiven Kohlenstoff in die Zellen eingebaut. Diese radioaktiven Tracer-Bakterien wurden jeweils Gärrest und Gülle vor der Ausbringung auf die Lysimeter zugefügt.

Die Aktivität der Zellsuspension, d.h. die radioaktiv markierten Zellen pro Lysimeter, betrug 1,67E+06 Bq. Die zugesetzte *E. coli*–Menge lag unter 0,1 % der Gesamtkeimkonzentration der Rohgülle.

## 2.6 Bestimmung fäkalcoliformer Keime

#### 2.6.1 Fluorocult®-Methode

Die Untersuchung der fäkalcoliformen Keime wurde mit der Fluorocult®-Methode vorgenommen. Dabei wurden die Sickerwässer zunächst mikroskopisch untersucht und der Versuch unternommen, die Bakterien optisch zu identifizieren. Jeweils 1 ml der Sickerwässer wurden zu dem nach Schindler (1991) für wasserhygienische Untersuchungen geeigneten Nährmedium, das mit einem Fluoreszenzmarker dotiert ist (Merck), zugegeben und bei 37° C im Brutschrank inkubiert. Analysiert wurden 10 Messwiederholungen à 3 x 1 ml.

Nach 24 Stunden Bebrütung konnte im UV-Licht die Anwesenheit von *E. coli* durch Emission von Fluoreszenz ermittelt werden. Die eingestrahlte Wellenlänge war 254 nm.

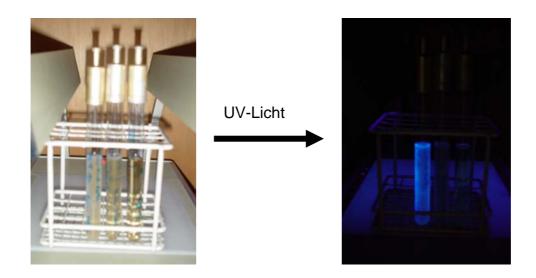


Abbildung 4: Visualisierung der Anwesenheit von *E. coli* im UV-Licht entsprechend der Fluorocult®-Methode

Der Gehalt an *E. coli* im Sickerwasser wurde über die Most-Probable-Number-Methode (MPN) nach De Man (1983) bestimmt. Sie liefert einen statistischen Wert der Keimkonzentration in einer Probe, die auf einem vorgegebenen Nährmedium wächst. Diese Methode eignet sich besonders für die Bestimmung sehr niedriger Zellkonzentrationen, z.B. in Wasserproben (Schindler 1991).

## 2.6.2 Bestimmung von E. coli nach Merck, Art. Nr. 1.13303

Neben dem Fluorokultverfahren zur Bestimmung von Fäkalcoliformen wurde ein zusätzliches Nachweisverfahren angewendet. Das Prinzip der Identifizierung von  $E.\ coli$  erfolgt über den Nachweis der Enzyme  $\beta$ -D-Glucuronidase und Tryptophanase (Indolbildung). Für die meisten  $E.\ coli$  - Stämme ist diese  $\beta$ -D-Glucuronidase-Reaktion und die Bildung von Indol aus Tryptophan charakteristisch.

## 2.7 Zellzahlbestimmungen

Bei der radioaktiven Markierung von Bakterien war die Bestimmung nach der MPN-Methode nicht möglich. Daher wurden in den Sickerwässern Untersuchungen der tatsächlich vorhandenen Zellzahlen durchgeführt. Dies erfolgte mikroskopisch in einer Neubauer-Zählkammer durch Einbringen von mehreren Tropfen der Sickerwasserprobe. Das Kammervolumen betrug 0,00025 mm³. Die Keimzahlbestimmung wurde bei 50-facher Vergrößerung mit einem Zeiss-Phasenkontrastmikroskop durchgeführt. Es wurden pro Probe jeweils zweimal 16 Kleinstquadrate mit o.g. Volumen ausgezählt und die Ergebnisse statistisch ausgewertet.

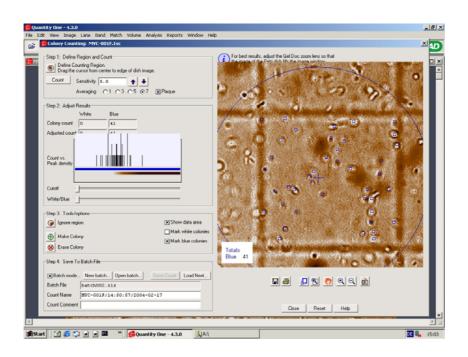


Abbildung 5 Mikroskopische Auszählung von *E. coli* in einer Neubauer-Kammer und Auswertung am PC.

## 2.8 Messungen der radioaktiv markierten Sickerwässer

Bei dieser Methode wurde zur Probe ein Szintillationscocktail gegeben, der aus einem Szintillator und einem organischen Lösungsmittel besteht. Bei Anwesenheit eines radioaktiven Strahlers werden die Lösungsmittelmoleküle in einen angeregten Zustand Lösungsmittelmoleküle versetzt. Die angeregten geben ihre Energie Szintillatormoleküle ab, woraufhin diese in einen höheren Energiezustand gehoben werden. Beim Übergang der Szintillatormoleküle in den Grundzustand wird Energie in Form von Licht freigesetzt. Die Intensität des produzierten Lichts ist direkt proportional zur Energie eines Beta-Teilchens und wird quantitativ im Flüssigszintillationszähler (LSC) bestimmt. Aliquots der Sickerwässer von jeweils 1 ml wurden zusammen mit 20 ml Szintillator Aquasafe 300, Fa. Zinsser in einem Flüssigszintillationszähler Packard 2550 auf radioaktive Betastrahler analysiert.

## 2.9 Digitale Autoradiographie / Imaging

Durch radioaktive Strahlung wird der Phosphor an der Oberfläche einer Folie mit einer dünnen Barium-Fluor-Bromid-Europium-Schicht (BaFBr:Eu) oxidiert. Dadurch werden Zonen höherer Energie gebildet. Bei der durch einen Laser verursachten Reduktionsreaktion wird die aufgenommene Energie in Form von Photonen wieder abgegeben. Durch die anschließende Bestrahlung des Screens mit einem Laser (Wellenlänge 635 nm) wird die Reduktionsreaktion in Gang gesetzt, wodurch die Phosphorionen wieder in ihren vorherigen Zustand zurückkehren. Die dabei freiwerdende Energie in Form von Photonen wird von einer Photomultiplierröhre eingefangen. An den Stellen des Phosphorscreens, an denen die Energiedichte der Strahlung am größten war, wird also auch am meisten Lichtenergie freigesetzt. Die Verteilung der Aktivität in einer Probe wird dadurch dargestellt, dass die Schwärzung eines Pixels proportional zur Strahlungsintensität der Probe an diesem Ort ist. So kann bei dieser Methode die Aktivität sichtbar gemacht werden. Verwendet wurde ein Scanner der Fa. Biorad.

## 2.10 Lufthygienische Untersuchungen

Die Erfassung der NH<sub>3</sub>-Emissionen erfolgte nach dem Prinzip der dynamischen Kammermethode mit Hilfe einer modifizierten Messtechnik nach Weber et al. (2000). Jede der 6 gleichzeitig verwendeten Kammern hat einen Durchmesser von 15 cm und wurde kontinuierlich mit Umgebungsluft durchströmt.

Am Kammerausgang wurde von jeder Messstelle kontinuierlich Probenluft entnommen und über eine Messstellenschaltung einem Analysator AC31, Fa. Ansyco, Karlsruhe zur Bestimmung der NH<sub>3</sub>-Konzentration zugeleitet Mit Hilfe der Differenz der NH<sub>3</sub>-Konzentration zwischen der Umgebungsluft und der Probenluft der Kammern wurde ein Emissions- bzw. Depositionsfluss errechnet.

Abbildung 6: Untersuchungen gasförmiger N-Emissionen aus Roh- und Biogasgülle mit offenen Küvetten



## 3. Ergebnisse und Diskussion

#### 3.1 Langzeitmessungen über ein Jahr

Durch die anhaltende Trockenheit des Jahres 2003 musste bei den Langzeituntersuchungen (Lysimeter mit Lehmboden) durch Zugabe von Gießwasser eine nach ortsüblichem langjährigen Mittel er Niederschläge natürliche Regenmenge (Abb. 7) simuliert werden. Während des ganzen Jahres wurde täglich das Sickerwasser gesammelt und auf Inhaltsstoffe und Mikroorganismen untersucht.

Das der Gülle bzw. dem Gärrest zugegebene Bromid dient als Indikator dafür, wann gelöste Stoffe bzw. kleine Partikel im Wasser der Wirtschaftsdünger, die auf die Bodenoberfläche aufgebracht wurden, tatsächlich durch das Lysimeter gewandert waren. Anderenfalls könnte es sich sonst beim gemessenen Sickerwasser auch um Porenwasser des Bodens handeln. Eingesetzt wurden 100 g Ammoniumbromid pro Lysimeter.

Die Bromidbestimmung erbrachte im Zeitraum vom 30. Mai 2003 bis 10. Dezember 2003 Spitzenwerte bis etwa 5 g = 5.000 mg Bromid/l Anfang Oktober 2003.

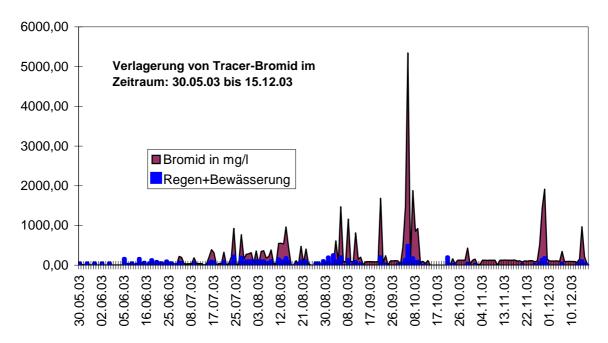


Abbildung 7: Verlagerung des im Wasser gelösten Tracers Bromid und die Gesamtmenge an Regenund Beregnungswasser (Gärrest-Düngung; x-Achse: Datum der Probenahme, Y-Achse: mg Bromid pro Liter Wasser bzw. Regenmenge in mm / 10 m<sup>2</sup>)

Es ist aus dem Konzentrationsverlauf ersichtlich, dass die Spitzen der Bromidbelastung mit den Sickerwassermengen korrelieren (Abb. 7). Belastungen wurden im Zeitraum vom 29.06. - 15.08., vom 01.09. - 09.09., am 06. - 08.10. und am 30.11.2003 gemessen. Verlagerung von Bromid, das im aufgebrachten Wasser gelöst war, trat etwa einen Monat nach der Applikation der Biogasgülle im Sickerwasser auf. Die Maximalmenge war etwa nach vier Monaten im Sickerwasser zu finden.

Die Keimbelastung im Sickerwasser stieg zu diesem Zeitpunkt (Anfang Oktober) nur geringfügig auf Werte von etwa 10-20 MPN/100 ml an und sank dann wieder auf Werte < 10 MPN/100ml ab. Ganzjährig konnte in nahezu jeder Sickerwasserprobe *E. coli* in geringen Konzentrationen nachgewiesen werden. Mit Ausnahme geringerer Keimkonzentrationen im Gärrest-Lysimeter gab es aber keine Unterschiede im Versickerungsverhalten zwischen dem Gärrest (Abb. 7) und der Rohgülle (nicht dargestellt). Die Unterschiede sind über den Versuchszeitraum nicht signifikant und liegen im Bereich der Grundbelastung des Sickerwassers im Lysimeter zwischen 10 und 100 MPN/100ml.

## 3.2 Kurzzeituntersuchungen / Beregnungen

## 3.2.1 Beregnungen im Jahr 2003



In mehreren Beregnungen sollte das Verhalten der aufgebrachten Keime (*E. coli*) im Boden und deren Verlagerung mit dem Sickerwasser unmittelbar nach Regenereignissen untersucht werden. Exemplarisch soll hier am Beispiel von zwei Beregnungen der Biogasgülle und der konventionellen Gülle die Verlagerung ins Sickerwasser gezeigt werden.

Abb 8: Beregnungseinrichtung über einem Lysimeter zur Beregnung

Die in Abbildung 8 dargestellte Beregnung begann am 29.07.2003, unmittelbar nach der Ausbringung des Gärrests. Sie wurde über eine Woche fortgeführt. Die Wassermenge lag am ersten Tag bei 40 l/qm, an den weiteren Tagen bei 20 l/qm. Dies stellt somit einen Worst-Case-Fall für die Verlagerung von

Mikroorganismen im Freiland dar.

Neben den Keimen wurde ein miteingebrachter Lithiumtracer untersucht, der zur Überwachung der in den Boden eindringenden Wassermengen dienen sollte. Verwendet wurde eine Menge von 100 g Lithiumtracer im Lysimeterversuch mit dem Gärrest, 25 g Lithiumtracer beim Rohgülleversuch. Unmittelbar nach der Beregnung konnte in den Proben die erste Lithiumkonzentration festgestellt werden. Die späteren Messungen ergaben, dass nach ca. 2-3 Stunden bis zu 1,4 g Lithium nachgewiesen werden konnten (Abbildung 9). Eine weitere Spitze erfolgte am nächsten Tag gegen Mittag, die dritte Spitze am übernächsten Tag, ebenfalls mittags.

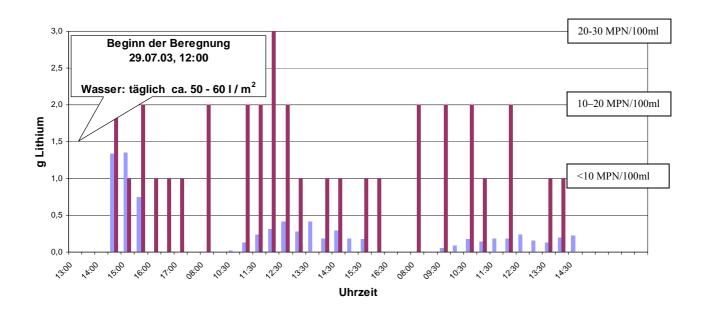


Abbildung 9: Verlagerung des im Wasser gelösten Tracers Lithium mit den Keimen im Gärrest = Biogasgülle (blaue Säulen: Lithiumkonzentration in g/l, braune Säulen: Keimbelastung in halbquantitativer Darstellung. Die Keimbelastung wurde in 3 Stufen im Bereich von <10 und 30 MPN/100 ml unterschieden.

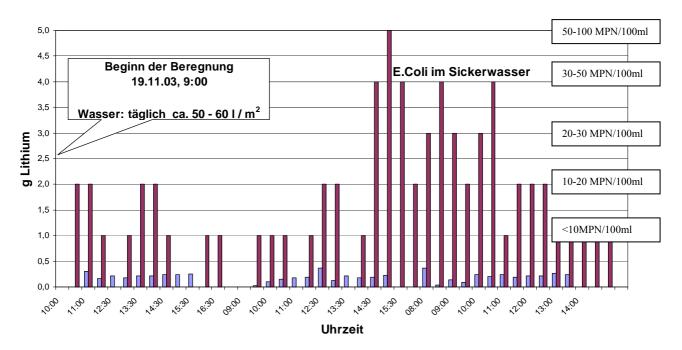


Abbildung 10: Verlagerung des im Wasser gelösten Tracers Lithium mit den Keimen in der Rohgülle (hblaue Säulen: Lithiumkonzentration in g/l, braune Säulen: Keimbelastung in halbquantitativer Darstellung. Es wurde nur Die Keimbelastung wurde in 5 Stufen zwischen <10 und 100 MPN/100 ml unterschieden

In einem weiteren Beregnungsversuch mit Rohgülle (Abbildung 10) wurde auf der gleichen Bodenart (Lehmboden), aber in einem neuen Lysimeter, wie beim Versuch mit der Biogasgülle (Abbildung 9) über eine Woche beregnet. Auch hier zeigte sich unmittelbar nach Beregnungsbeginn ein Konzentrationsanstieg von Lithium im Sickerwasser. Die Lithiumkonzentration erreichte nach etwa 2-3 Stunden Werte um 0,3 g. Die gegenüber Abbildung 9 geringeren Li<sup>+</sup>-Konzentrationen sind darauf zurückzuführen, dass nur ¼ der Lithiummenge eingesetzt wurde.

Ähnlich wie für Gärrest (Abbildung 9) wurde auch für Rohgülle eine schnelle Verlagerung nach 2-3 Stunden beobachtet. Dabei handelte es sich um den sog. Makroporenfluss. Durch Risse, Makroporen und Regenwurmröhren konnten bei ausreichenden Niederschlagsmengen ein Teil der noch nicht im Boden sorbierten Gülle und die Tracer schnell in tiefere Bodenschichten ausgetragen werden. Dieser Makroporenfluss hält bei Niederschlägen einige Stunden nach der Aufbringung an.

Eine weitere Spitze erfolgte am nächsten Nachmittag, nach ca. 30 Stunden. In diesem Zeitraum wurden mit Hilfe des Merck Schnelltestverfahrens zur Bestimmung fäkalcoliformer Keime (Indolbildung) und des MPN-Verfahrens *E. coli*-Mengen von maximal 100 MPN/100 ml Sickerwasser gemessen. Bis zum folgenden Tag nahm die Menge an Lithium und *E. coli* dann wieder ab und blieb weiter auf niedrigem Niveau (< 10 MPN/100 ml).

## 3.2.2 Beregnungen im Jahr 2004

## Quantitative Messungen der Keimbelastung im Sickerwasser

Insgesamt wurden für die dreitägige Beregnung 20 Liter Wasser pro Lysimeter gegeben. Dies bedeutet ein Äquivalent von 40 mm Niederschlag am ersten Tag und jeweils 20 mm an den beiden folgenden Tagen. Der Gesamtsickerwasseranfall betrug in dieser Versuchsreihe mit vier Lysimetern zwischen 5,3 und 6,7 Litern (Abbildung 11). In dem sandigen Braunerdeboden war die Sickerwassermenge stets etwas höher als im Lehmboden. Die prozentuale Wiederfindung des Beregnungswassers betrug bei den Sandböden 32 bzw. 34 %, bei den Lehmböden 27 bzw. 30 % der aufgebrachten Wassermenge.

Die Wiederfindungsrate der Ausschwemmung betrug nach der Beregnung in der Summe 0,14 % bei der Rohgülle auf der snadigen Braunerde und 0,13 % bei der Biogasgülle auf dem Lehmboden (Abbildung 12). Beide Ausschwemmversuche ergaben also praktisch dieselben Wiederfindungsraten. Ein gravierender Einfluss des Bodens und dessen Ton- und Humusgehalt konnte in diesem Versuch nicht festgestellt werden. Auch konnte ein Einfluss der Sickerwassermenge ausgeschlossen werden.

Dies zeigt, dass nach etwa zwei bis fünf Stunden nach der Beregnung die Auswaschung der *E. coli*-Keime, aber auch für Lithium am höchsten ist. Die Keimzahl in den Sickerwasserproben ist mit den Lithium-Konzentrationen stark korreliert.

Die verwendeten Lysimeter waren seit mindestens 10 Jahren nicht mit Gülle gedüngt worden. Es war daher auszuschließen, dass hohe Konzentrationen von *E. coli* aufgrund einer vorherigen Güllegabe aus den Lysimetern ausgeschwemmt werden konnten. Dennoch zeigten die Messungen der Vorberegnungen, dass fäkalcoliforme Keime in der Größenordnung von etwa 10 bis 100 MPN/100 ml aus dem Boden ausgeschwemmt wurden. Dieser Befund ist zur Zeit nicht erklärbar und könnte entweder bedeuten, dass es im Boden immer auch einen gewissen Grundbesatz an fäkalcoliformen Keimen gibt, dass z.B. *E. coli* durch Tierkot

eingeschleppt wurde, oder die gefundenen Ergebnisse im Streubereich von Probenahme und Methode liegen.

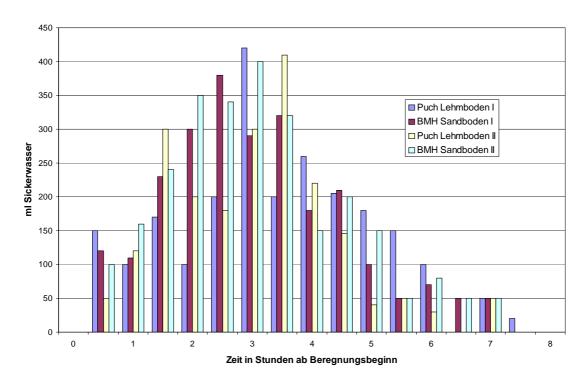


Abbildung 11: Sickerwasseranfall während der ersten 8 Stunden nach Beregnungsbeginn; Gesamtwassermenge: 40 mm Niederschlagsäquivalente

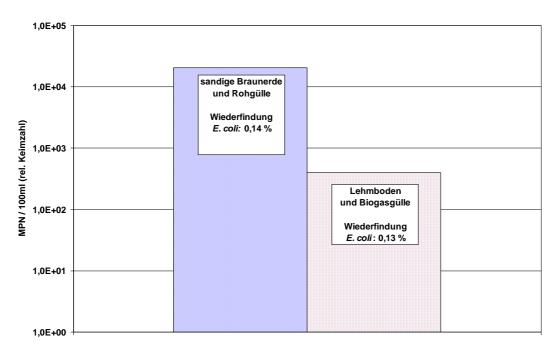


Abbildung 12: Ausschwemmung von fäkalcoliformen Keimfrachten (*E. coli*) nach der Gülleausbringung als Summenwert von drei Tagen

Die Wiederfindungsraten von *E coli* im Sickerwasser waren etwa 2-3 Zehnerpotenzen kleiner als die Keimfracht in der auf die Lysimeterböden aufgebrachten Wirtschaftsdünger.

Um der Frage der Herkunft der Keimbelastung im Sickerwasser nachzugehen, wurden radioaktiv markierte Mikroorganismen hergestellt. Eine Stammkultur von *E. coli* wurde in einem radioaktiven Nährmedium angezogen (C14-Glukose und C14-Acetat). Anhaftendes C14-Substrat wurde mit nicht radioaktivem Nährmedium abgewaschen und diese C14-markierten *E. coli* dem Gärrest und der Rohgülle zugesetzt. Wenn im Sickerwaser radioaktiv markierte *E. coli* auftauchten, konnten diese nur von der aufgebrachten Gülle herrühren, nicht aber von einem möglichen Grundbesatz von fäkalcoliformen Keimen im Boden. Insgesamt wurden 1,67 E+06 Bq markierte Keime eingesetzt. Die Gesamtmenge der eingesetzten radioaktiv markierten Bakterien betrug weniger als 0,1 % der Gesamtzellenzahl der aufgebrachten Gülle.

#### 3.2.3 Lysimeteruntersuchungen mit Radiotracern

Die Lysimeter wurden mit jeweils 5 Liter Wasser zwei Tage vor Versuchsbeginn vorberegnet (entspricht 20 mm Niederschlag).

Gärrest und Rohgülle wurden mit identischer Markierung auf das jeweilige Lysimeter aufgebracht. Auf den Sandboden wurde Biogasgülle mit den C 14-markierten Keimen, auf dem Lehmboden die Rohgülle mit diesen ausgebracht. Ein wesentlicher Unterschied der beiden eingesetzten Substrate war die um drei Zehnerpotenzen niedrigere Keimbelastung des Gärrests gegenüber der Rohgülle und der geringere Trockensubstanzgehalt des Gärrests.

Pro m² wurde ein Äquivalent von 2 Liter Gülle (entspricht 20 m³/ha) ausgebracht. Dabei wurde die Gülle 1:1 mit Wasser verdünnt, um die Wirtschaftsdünger auf gleichen Gehalt an Trockensubstanz einzustellen. Der Gärrest wurde unverdünnt ausgebracht. Die Lysimeter hatten einen dichten Bestand mit Grünlandaufwuchs.

Die Beregnung der Lysimeter erfolgte am ersten Tag mit einer Wassermenge von 10 Litern pro Lysimeter während 5 Stunden (entspricht 40 mm Niederschlag), in den folgenden Tagen mit jeweils 5 Liter Wasser (entspricht 20 mm Niederschlag). Die Sickerwässer der Lysimeter wurden über drei Tage gesammelt, ausgemessen und auf ihren Radionuklidgehalt untersucht. Die Proben des ersten Tages wurden in halbstündlichen Abständen mit einem automatischen Probenehmer genommen, die Proben der Folgetage als Sammelprobe.

Die im Sickerwasser auftretende Radioaktivität kann ausschließlich von den aufgebrachten *E. coli* stammen, da sich diese durch die C 14-Markierung von allen anderen Bakterien im Boden unterscheiden. Die gemessene Radioaktivität entstammt also nur den auf die Oberfläche aufgebrachten fäkalcoliformen Keimen oder deren Abbauprodukten. Allerdings ist der Zeitraum von 2 - 3 Stunden bis zum Auftreten der ersten Radioaktivität im Sickerwasser sehr kurz, ein nennenswerter Abbauprozess der *E. coli* sollte noch nicht stattgefunden haben. Ein Vorkommen von Colibakterien in den Sickerwässern konnte zwar lichtmikroskopisch untermauert werden, doch ist es nicht möglich eine Aussage darüber zu treffen, ob die C14-markierten *E. coli* auch nach dem Makroporentransport tatsächlich quantitativ vital im Sickerwasser angekommen sind. Eine Antwort auf diese Frage würde nur durch aufwändige mikrobiologische und radiochemische Verfahren zu klären sein. Nach

persönlicher Mitteilung von Herrn Dr. Beck (Mikrobiologe an der LfL) ist es aber wahrscheinlich, dass auch Laborstämme von *E. coli* mehrere Tage im Boden überleben und als lebende Organismen mit dem Sickerwasser verlagert werden können.

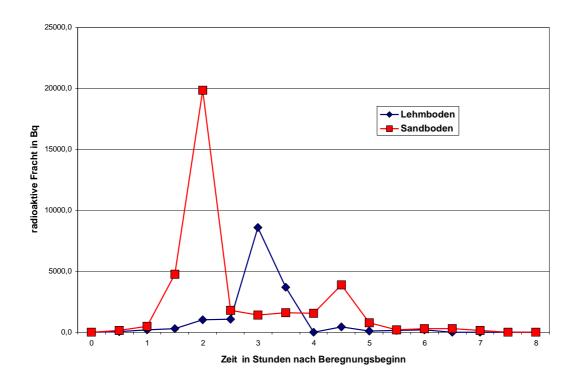


Abbildung 13: Radioaktive Frachten von C 14-markierten *E. coli* Bakterien im Verlauf eines Tages nach Beregnung mit 40 mm Wasser

In der Abbildung 13 ist die Verlagerung der Radioaktivität von fäkalcoliformen Keimen im Sickerwasser zu sehen. Im Sandboden (rote Kurve) war für die Passage von 1 m Boden (Lysimeterhöhe) nach etwa zwei Stunden ein Maximum der Aktivität zu beobachten. Beim Lehmboden war die radioaktive Fracht nach etwa drei Stunden maximal.

In der Abbildung 14 sind die Summen aller radioaktiver Frachten an den Tagen 1-3 nach der Beregnung dargestellt.

Am 1. und 2. Tag war die Radioaktivität und, unter der Annahme, dass zumindest ein Großteil der Mikroorganismen über den dreitägigen Versuchszeitraum intakt geblieben war, auch die fäkalcoliforme Fracht im Sickerwasser des Sandbodens höher als beim Lehmboden. Dies lässt sich über den im Sandboden höheren Makroporenanteil und damit stärkeren präferentiellen Fluss erklären.

Die radioaktiven Frachten nahmen zum dritten Tag hin deutlich ab. Der erste Hauptpuls mit dem präferentiellen Fluss war offenbar am dritten Tag beendet. Aus Kostengründen musste bei diesen Lysimeterversuchen zwar auf Parallelansätze und eine statistische Absicherung verzichtet werden, jedoch kann ausgesagt werden, dass am ersten Tag dieses Versuchsansatzes etwa 1 % der eingesetzten Radioaktivität beim Lehmboden, und etwa 2 % beim Sandboden verlagert wurden. Die deutlich höhere Wiederfindung gegenüber den Bilanzen aus den quantitativen Messungen der Keimbelastung im Sickerwasser (0,13 - 0,14

%, s. 3.2.2) lassen vermuten, dass die Markierung im ersten Pulsstoß (Abb. 13) wesentlich aus lysierten *E. coli* stammte, da die Zersetzungsprodukte der Zellen im Boden mobiler sind als die intakten Zellen. Die verzögerte Fracht nach 2 - 3 Tagen war dagegen wahrscheinlich überwiegend vital. Bei überwiegend lysierten Zellen wäre eher ein Anstieg der Radioaktivität am zweiten und dritten Tag zu vermuten gewesen

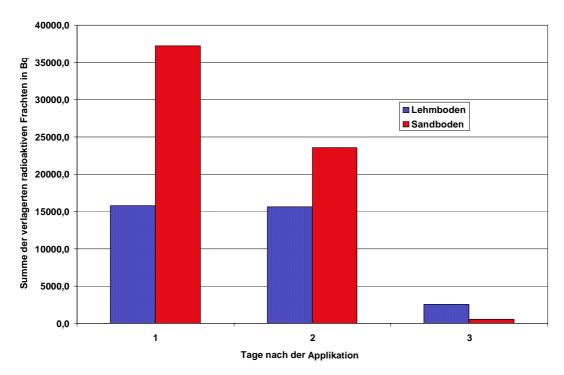


Abbildung 14 Radioaktive Frachten von C 14-markierten *E. coli* Bakterien im Verlauf von drei Tagen nach der Beregnung

Nach drei Tagen hatte die radioaktive Fracht im Sandboden gegenüber dem Lehmboden überproportional abgenommen. Dies deutet auf eine sehr geringe Sorption der Fäkalkeime an die Sandbodenmatrix hin. Im Lehmboden hingegen war am zweiten Tag noch immer eine ähnliche Verlagerung wie am ersten Tag zu erkennen. Am dritten Tag übertraf die radioaktive *E. coli*–Fracht im Sickerwasser des Lehmbodens die Fracht im Sickerwasser des Sandbodens deutlich. Die verzögerte Auswaschung lässt sich über stärkere Adsorption an Ton- und Schluffpartikel des Lehmbodens (Tabelle 1) und durch dessen höheres Mittel- und Feinporenvolumen erklären.

Während des gesamten Versuchszeitraums von 3 Tagen waren Gesamtfrachten der Verlagerung radioaktiv markierter Keime und evtl. deren Abbauprodukte in Höhe von 2,0 % der aufgebrachten Radioaktivität im Lehmboden bzw. 3,7 % aufgebrachten Radioaktivität im Sandboden zu messen. Wie der Tabelle 1 zu entnehmen ist, wies der Lehmboden einen geringeren Kohlenstoffgehalt von 1,75 % C<sub>total</sub> als der Sandboden 2,65 % C<sub>total</sub> auf. Dies deutet darauf hin, dass der Humusgehalt für die Sorption von bakteriellen Keimen eine eher untergeordnete Rolle spielt, sondern wohl eher die Ausstattung des Bodens mit Mittel- und Feinporen bzw. sorptiven Oberflächen (höherer Schluff- und Tongehalt des Lehmbodens, Tabelle 1).

Tabelle 1: Bodenkenndaten der verwendeten Lysimeterböden

Bodenherkunft	C <sub>t</sub> -Gehalt (%)	Tongehalt (%)	Schluff (%)	Sandgehalt (%)
Lehmboden	1,75	9,3	68,3	22,4
Sandboden	2,65	4,4	19,7	75,9

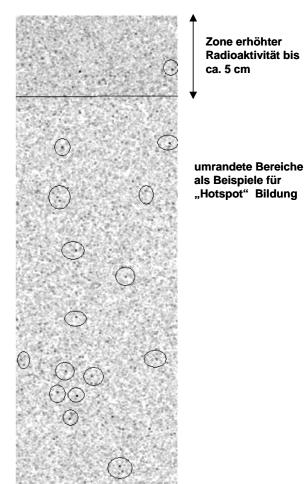
## 3.2.4 Eindringverhalten der C14-markierten E. coli-Gülle in den Boden

Nach sieben Tagen sollte geprüft werden, wie weit die Colibakterien in den Boden eingedrungen waren und wie die Verteilung der Keime im Boden war. Durch die radioaktive Markierung konnte durch Einstellen eines für C14 empfindlichen Imaging Plates (ähnlich einem Röntgenfilm) in den Boden und der anschließenden Auswertung mit einem Radioaktivscanner die Verteilung der Radioaktivität in den obersten 30 cm Bodenschicht visualisiert werden. Alle im Boden vorhandenen radioaktiven Bereiche konnten so bis auf ein Zehntel Millimeter genau ausgemessen und auch quantifiziert werden. Je grauer eine Zone in Abbildung 15 ist, desto höher ist die Aktivität in dieser Zone des Bodens. Kleine schwarze Punkte bedeuten Zonen höherer Aktivität ("Hotspots"). Aus der digitalen Autoradiographie (Abbildung 15) ergab sich folgendes Bild: Die auf die Oberfläche aufgebrachten *E. coli*-

Bakterien oder deren Zersetzungsprodukte hatten sich während der sieben Tage bis zur Belichtung weitgehend in der obersten Bodenlage verteilt. In den obersten 5 cm, in Abbildung 15 bis zur horizontalen Markierung, ist eine etwas dunklere Zone zu erkennen. Dort war die Radioaktivität etwas höher als in den darunter liegenden Bereichen.

Abbildung 15: Eindringverhalten radioaktiv markierter Gülle in den Lehmboden.

In allen Bodenschichten hatten sich winzige Bereiche mit erhöhter Aktivität gebildet. Beispiele dafür sind in der Abbildung umringt dargestellt.



**Bodenschicht** 

Diese Hotspots sind im Boden unregelmäßig verteilt und scheinen winzige Akkumulationszonen der radioaktiv markierten Bakterien zu sein. Gleichzeitig zeigt dies, wie heterogen die Verlagerung der Bakterien im Boden ist.

Die Heterogenität der Keimbelastung im Boden zeigte sich an der Beprobung von zwei Lysimetern für die Untersuchung der Keimkonzentrationen im Boden. Die Lysimeter wurden ein Jahr nach der Gülleaufbringung (Rohgülle und Gärrest) in 10 cm Bodenlagen beprobt. Die Untersuchung der Einzelschichten ergab eine sehr inhomogene Verteilung der fäkalcoliformen Keime in der Größenordnung von <10 bis 500 Keime pro g Trockenboden. Eine Schichtung konnte nicht zugeordnet werden. Dies kann der Tatsache zugeschrieben werden, dass die Probenahme auf den Lysimetern wegen der zu kleinen Fläche und der geringen Anzahl der Einzelproben nicht repräsentativ erfolgen konnte, und zudem die Aktivitätsverteilung im Boden sehr inhomogen war. Die Heterogenität der Verteilung der C14-Aktivität folgt damit der Inhomogenität des Bodenaufbaus. Diese führt zu Zonen mit hohem und niedrigem Sorptionspotential, Makroporen und Bereichen hoher und niedriger Wasserkapazität (hydraulische Leitfähigkeit).

Der Transport von Mikroorganismen wird vor allem bestimmt durch diese Sorptionszonen und den strukturellen Aufbau des Bodens selbst. Durch die relativ großen Strukturen von Bakterien wird der Transport vom Ausschlussprinzip beeinflusst. Das bedeutet, dass größere Partikel, die nicht in das feinere Porensystem des Bodens eintreten können, schneller (an diesen Poren vorbei) transportiert werden als kleinere Teilchen und gelöste Tracermoleküle (McKay et al., 2000; Harvey, 1997).

Nach Aislabie et al. (2001) ist die Verlagerung von Mikroorganismen bestimmt durch Adsorptions- und Filtrationsprozesse im Boden und damit stark abhängig von der physikalischen Beschaffenheit des Bodens. Auch haben Bodenverdichtung und Bodentemperatur einen Einfluss auf die Transportvorgänge im Boden. Neben dem Mikround Makrogefüge bestimmen auch die Fruchtart, die Vorfrucht und die Bewirtschaftung die Verlagerung von Wasser und somit auch die Ausschwemmung der Bakterien.

Zudem spielt der präferenzielle Fluss in den Poren ohne Kontakt zum Sorbenten im Medium eine große Rolle. Die meist negative Ladung von Oberflächen vieler Mikoorganismen ist ein Grund für abstoßende Reaktionen der meist negativ geladenen, mineralischen Bodenfunktion und bewirkt damit eine geringere Sorption. Wegen dieser elektrostatischen Abstoßungskräfte zwischen Bodenmatrix und den Zelloberflächen bleiben diese Bakterien beim Transportvorgang vom direkten Kontakt mit der Matrix ausgeschlossen und werden so schneller im Boden verlagert (Auckenthaler, 2004).

Längerfristig können Mikroorganismen bei geeigneten Matrixbedingungen durch Van-der-Waals-Kräfte und Lewis-Säure-Base-Interaktionen an die Bodenmatrix angezogen und am Ton-Humus-Komplex sorbiert werden.

Dies bedeutet, dass auch der pH des Bodens und der pH der Wirtschaftsdünger einen großen Einfluss auf das Sorptionsverhalten der Bakterien haben können. Unter dem Einfluss des pH können die Oberflächenladungen von Matrix und Bakterienoberfläche verändert und somit eine Sorption erhöht oder erniedrigt werden. Scholl und Harvey (1992) berichten, dass bei einem tiefen pH die negativen Oberflächenladungen vermindert werden und somit die Adsorption an den Boden erleichtert wird. Überlagert werden diese Effekte jedoch auch von

der Chemie der organischen Bodenfraktion, die durch vielfältige Bindungsstellen die Sorption stark beeinflußt.

Daher spielt auch der Wassergehalt im Boden eine große Rolle. Nach Schäfer (1997) haben hydrophobe Bakterien im ungesättigten Boden eine höhere Retention. Dies erklärt die insgesamt geringen Auswaschungsraten von Mikroorganismen im Boden, wenn man vom ersten schnellen Makroporenfluss (preferenzieller Fluss) absieht. Dabei ist nach Aislabie et al. (2001) das Überleben der Mikroorganismen im Boden bestimmt vom Wassergehalt, der Temperatur und dem pH.

## 3.3 Lufthygienische Untersuchungen

# 3.3.1 Massenspektrometrischer Vergleich gasförmiger Emissionen im Überstand von Gärrest und Rohgülle

Die Entstehung von Biogas ist gekoppelt an Prozesse der Zersetzung organischer Verbindungen unter Luftabschluss. Verantwortlich sind dafür anaerobe Bakterien, die die Abbauvorgänge durchführen, ohne Sauerstoff zu benötigen. Die Biogasentstehung ist ein sehr komplexer Vorgang, bei dem eine Reihe von Bedingungen, Substrat, pH, Temperatur usw. die entstehenden Produkte beeinflusst.

Die Prozesse der Entstehung gasförmiger Stoffe finden in der Natur im Magen und Darmtrakt von Wiederkäuern, aber auch im Kot statt. Somit setzen sich diese Prozesse im Stall und in den Güllegruben fort und finden auch in den Biogasanlagen statt.

In der Hauptsache entstehen bei der anaeroben Vergärung Methangas und Kohlendioxid. Aber auch unerwünschte Stoffe, wie Schwefelwasserstoff, niedrige Alkansäuren und Mecaptane können gebildet werden. Biogas (= Sumpfgas, Faulgas) ist ein durch den anaeroben, mikrobiellen Abbau von organischen Stoffen entstehendes Gasgemisch, das zu 50 - 70 % aus dem hochwertigen Energieträger Methan (CH<sub>4</sub>) besteht (Gronauer und Aschmann 2003). Weitere Bestandteile sind 30-40% Kohlendioxid (CO<sub>2</sub>) sowie Spuren von Schwefelwasserstoff (H<sub>2</sub>S), Stickstoff (N<sub>2</sub>), Wasserstoff (H<sub>2</sub>) und Kohlenmonoxid (CO).

Dabei ist vor allem das Methangas zur Energieerzeugung und thermischen Verwertung hervorragend geeignet. Andererseits zählt es zu den Hauptverursachern des Treibhauseffekts. Die Energienutzung ist weitgehend CO<sub>2</sub>-neutral, da fossile Energieträger wie z.B. Erdöl oder Kohle eingespart werden. Dabei hat 1 m³ Methangas nach Kaiser et al. (2004) einen Energieinhalt, der etwa einem halben Liter Heizöl entspricht. Aus der Vergärung der Gülle einer Kuh kann damit im Jahr ein Energieäquivalent von ca. 300 Liter Heizöl gewonnen werden. Im Vergleich zu anderen Substraten ist der Energieertrag aus Rindergülle allerdings gering (Tabelle 2).

Daraus resultieren entsprechend den Trockenmasseerträgen (TM) die folgenden Methanerträge pro Hektar:

Maissilage ca.  $5000 - 7500 \text{ m}^3$ Grünland ca.  $1100 - 4700 \text{ m}^3$ Rüben ca.  $4600 - 5600 \text{ m}^3$ 

Tabelle 2: Durchschnittliche Gaserträge einiger häufig eingesetzter Substrate pro Tonne Frischmasse (Keymer und Schilcher, 1999)

Substrat	Gasertrag pro t			
Milchviehgülle	25 m³/t			
Schweinegülle	36 m³/t			
Grüngut (Wiesengras)	90 m³/t			
Maissilage	170 - 200 m³/t			
Speiseabfälle	220 m³/t			
Altfett	600m³/t			

Um die Bildung von Schwimmdecken und Sinkschichten in den Fermentern zu verhindern, muss das Substrat gerührt werden. Dadurch wird auch das Entweichen der entstandenen Gase erleichtert. Die Menge gebildeten Gases hängt von der Art des Substrats, von der Verweildauer und der Betriebstemperatur in der Biogasanlage ab.

Dabei ist die Geruchsbildung von Biogasgülle im Vergleich zur Rohgülle sehr viel geringer, da bei der Vergärung verschiedene Abbauprodukte von Aminosäuren nicht entstehen und andere geruchsintensive Stoffe weitgehend abgebaut werden. Aus der Gülle, schätzt man, werden bis zu 150 flüchtige Verbindungen emittiert. Der subjektive Eindruck von Geruch ist von Person zu Person allerdings sehr unterschiedlich.

Durch den anaeroben Abbau ist der Kohlenstoffanteil in der vergorenen Gülle verringert und der Anteil an ammoniakalischem Stickstoff erhöht. Das C/N-Verhältnis verschiebt sich zu niedrigeren Werten. Dies bedeutet auch, dass Biogasgülle, wie im Folgenden gezeigt, bei der Ausbringung etwas mehr Ammoniak aber weniger Methan emittiert.

In der Abbildung 16 ist zunächst ein Massenspektrum der Luft mit den Hauptkomponenten Stickstoff ( $N_2 = 78,09\%$ ) und Sauerstoff ( $O_2 = 20,95\%$ ) dargestellt.

Im Vergleich dazu wies das Massenspektrum des Gärrests (Abbildung 17) bei den Massen 12, 15, 16, 18 und 44 deutlich höhere Signale auf als die Umgebungsluft, während Umgebungsluft reicher an O<sub>2</sub> (Masse 32) war. Masse 12 steht für den Kohlenstoff, 14 für Stickstoff, Masse 15 für Methylgruppen, 16 für Sauerstoffanteile von Molekülen bzw. Methan, 18 für H<sub>2</sub>O und 44 für CO<sub>2</sub>.

Betrachtet man das Massenspektrum der Rohgülle im Vergleich zum Gärrest, so kann man erkennen, dass die Massen 12 (C), 15 (-CH<sub>3</sub>), 16 (O, CH<sub>4</sub>) und 44 (CO<sub>2</sub>) über Gülle höher sind als über Gärrest, während die Masse 14 (N) niedriger ausfiel (roter Pfeil in der Abbildung 18).

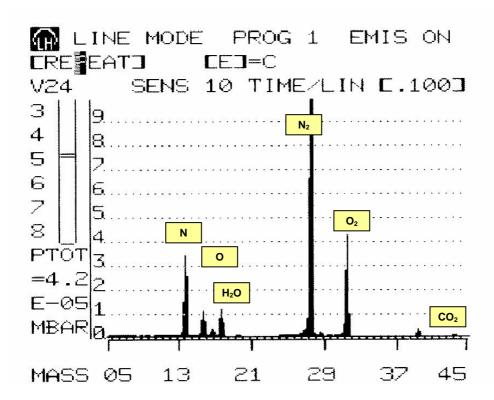


Abbildung 16: Massenspektrum von Umgebungsluft

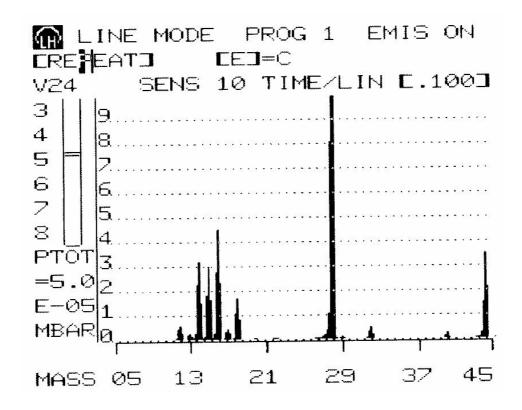


Abbildung 17: Massenspektrum des Luftraums über dem Gärrest im Gleichgewicht

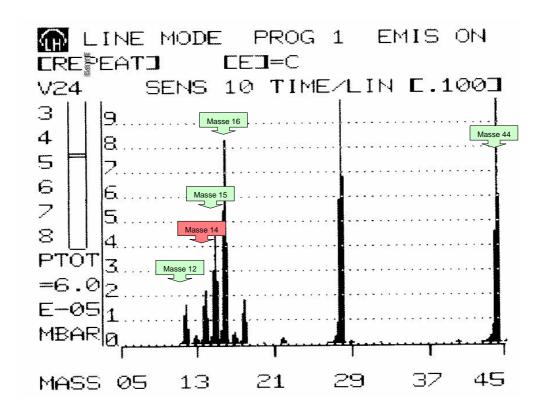


Abbildung 18: Massenspektrum des Luftraums über der Rohgülle im Gleichgewicht.
Grüne Pfeile bedeuten rel. Zunahme des Massesignale gegenüber dem
Gärrest. Roter Pfeil bedeutet rel. Abnahme des Massesignals gegenüber dem
Gärrest

Auch wenn die qualitative Gaszusammensetzung im Überstand des Gärrests (Biogasgülle) und der Rohgülle qualitativ große Ähnlichkeiten aufwies, so hatte die Rohgülle höhere CO<sub>2</sub>-sowie Gasanteile mit der Masse 12 (Kohlenstoff) und 15. Diese rühren von organischen Kohlenstoffverbindungen her. Auch wies die Rohgülle höhere Sauerstoffanteile (Masse 16), z.B. in organischen Säuren, Essig-, Propion- und Buttersäure, auf. In einer Untersuchung der Thüringischen Landesanstalt für Landwirtschaft (Reinhold et al. 2004) wurde der Abbau von flüchtigen Fettsäuren (C<sub>2</sub> bis C<sub>6</sub>) während des Biogasprozesses nachgewiesen. Im Mittel war durch die Vergärung der Gülle ein Abbau von 7470 mg Fettsäuren pro Liter auf 450 mg pro Liter festzustellen. Der in Gülle höhere Anteil an Masse 16 rührt sicher teilweise auch von Methan her. Wegen der geringeren Methanausgasung kann Gärrestdüngung einen wichtigen Beitrag zur Reduktion klimarelevanter Spurengase leisten, wenn Gülledüngung entsprechend eingeschränkt wird.

Gleichzeitig hatte der Luftraum über der Rohgülle niedrigere N-Anteile (Masse 14), z.B. Ammoniak, NO<sub>x</sub> usw.). Die Rohgülle hatte im Gleichgewicht daher niedrigere N-Emissionen. Nach Klasink und Steffens (2003) ist Ammoniak jedoch nicht die Hauptursache für die Geruchsentstehung. Die Ammoniakanteile in den unterschiedlichen Güllen können somit nicht die offensichtliche Geruchsverminderung der Biogasgülle erklären. Vielmehr sind Alkaloide (organische Stickstoffverbindungen), Amide, Amine (entstanden durch Dekarboxilierung der Aminosäuren), Mercaptane (schwefelhaltige Aminosäuren) und

organische Säuren (z.B. Butter-, Essig- und Propionsäure) für den Geruch von Gülle verantwortlich. Diese Komponenten werden in der Regel gekennzeichnet durch den höheren Anteil an C, N und O (Massen 12, 14 und 16). Die Wahrnehmungsgrenze dieser Stoffe für die menschliche Nase ist so gering, dass sie schon in kleinsten Konzentrationen Belästigungen verursachen. Ammoniak hat einen höheren Geruchswert als andere Gase. Der Geruchswert von Ammoniak liegt im Volumenprozentbereich bei 10<sup>-3</sup> %, von Schwefelwasserstoff bei 10<sup>-5</sup> %. Die Buttersäure hat einen Geruchswert von 10<sup>-12</sup> % und Mercaptane etwa 10<sup>-14</sup> %. Dies zeigt, dass Ammoniak erst in sehr viel höheren Konzentrationen vom Geruchssinn erkannt werden kann.

#### 3.3.2 Emission von Ammoniak im Luftraum über Gärrest und Rohgülle

Unter anaeroben/anoxischen Bedingungen entstehen beim bakteriellen Abbau von organischen, stickstoffhaltigen Verbindungen und Nitrat die Produkte Nitrit (NO<sub>2</sub>), Lachgas (N<sub>2</sub>O), Stickstoff (N<sub>2</sub>), Ammoniak (NH<sub>3</sub>) und Stickoxide (NO<sub>x</sub>).

Lachgas entweicht in die Atmosphäre und verstärkt die Treibhauswirkung. Ammoniak ist ein farbloses Gas mit stechendem Geruch, das teilweise in Lösung bleibt, aber teilweise in die Atmosphäre entweicht und so zur Eutrophierung von Gewässern und der Versauerung der Böden beitragen kann.

Bei der Ammoniakproduktion ist das Enzym Urease beteiligt. Die Urease im Kot spaltet vom Harnstoff den gasförmigen Ammoniak ab, welcher sich dann in der Gülle löst und bei der Lagerung und Ausbringung in die Luft entweicht (Wulf, 2003). In einer Versuchsreihe mit acht Messungen wurde jeweils die Emission von Ammoniak aus dem Überstand (Headspaceanalyse) von Gärrest und Rohgülle untersucht (Tabelle 3). Je ein ml der homogenisierten Wirtschaftsdünger wurde für 24 Stunden in eine gasdichte Küvette eingeschlossen und die emittierten Gase im Gleichgewicht zwischen gelöster und gasförmiger Phase auf Ammoniak untersucht. Es konnte bestätigt werden, dass im Mittel die emittierte Ammoniakmenge aus 1 ml Gülle in einem Volumen von 2 Litern im Gärrest höher war als in der Rohgülle.

Im Luftraum über dem Gärrest hatte sich eine  $NH_3$ -Konzentration von 4,8 ppm und im Luftraum über der Rohgülle eine Konzentration von 3,4 ppm gebildet.

Tabelle 3: Ammoniakemissionen im Luftraum über Gärrest und Rohgülle

	NH <sub>3</sub> - Emissionen in ppb								
Messreihe	1	2	3	4	5	6	7	8	Mittelwert ppb
Gärrest	3147	4152	5209	5735	5267	5115	4944	4790	<u>4798</u>
Rohgülle	2472	2476	2411	2399	4497	4606	4256	3901	<u>3377</u>

Im Luftraum über dem Gärrest war in dieser Messserie (mit nur einem Gärrest und einer Rohgülle) fast 30 % mehr Ammoniak enthalten. Bei nahezu gleichem N-Gesamtgehalt hat der Gärrest (Biogasgülle) einen höheren Ammoniumgehalt. Dieser Versuch kann mangels Wiederholungen nicht zur quantitativen Bewertung herangezogen werden, erlaubt aber auch ohne statistische Absicherung den Hinweis, dass bei der Gärrestausbringung mit höheren Verlusten an gasförmigen Emissionen zu rechnen ist. In der Gülle betrug der NH<sub>4</sub>-N Anteil etwa 60 % des Gesamt N beim Gärrest und 40 % NH<sub>4</sub>-N bei der Rohgülle. Diese erhöhten Ammoniumanteile im Gärrest werden auch von Reinhold et al. (2004) und Peretzki et al. (2005) beschrieben.

## 3.3.3 Emission von Ammoniak bei der Ausbringung von Gärrest und Rohgülle

Die Ausbringung von Gärrest und Rohgülle erfolgte praxisnah bei bedecktem Himmel und einer Lufttemperatur von 16 - 20° C. Die Bodentemperaturen während der Versuche betrugen dabei zwischen 10 und 17° C. In jeweils drei Messreihen wurde der Tagesgang der Ammoniak- und NO<sub>x</sub>-Emissionen der ausgebrachten Wirtschaftsdünger untersucht (Abbildungen 19, 20). Wie sich zeigte, begann die Emission von Ammoniak in allen Versuchsreihen bereits nach wenigen Minuten, erreichte nach zwei bis drei Stunden ihren Höhepunkt und war nach etwa 8 - 10 Stunden beendet. Parallel dazu wurden die gasförmigen Emissionen von NO<sub>x</sub> (NO+NO<sub>2</sub>) gemessen. Diese lagen in beiden Varianten auf niedrigem Niveau und schwankten um Werte von 25 ppb.

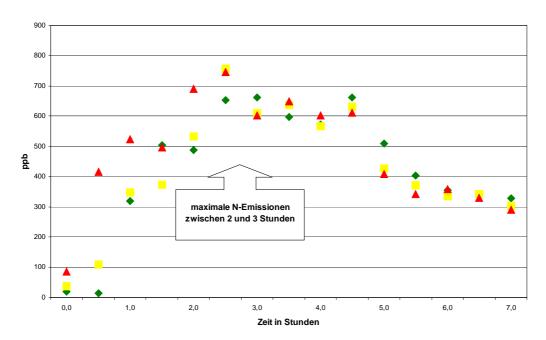


Abbildung 19: Drei Messreihen zur gasförmigen Emission von Ammoniak aus dem Gärrest

Die Emission von Ammoniak aus dem Gärrest war in den ersten Stunden stets höher als die Emissionen aus der Rohgülle. Dies kann daran liegen, dass der Stickstoffgehalt im Gärrest nach der Biogaserzeugung relativ zum Kohlenstoff ansteigt. Dies wird bestätigt durch Untersuchungen von Wulf et al. (2002), die in den ersten Stunden nach der Ausbringung von

Gärrest im Freiland ebenfalls erhöhte Ammoniakemissionen gegenüber Gülle messen konnten. Dieser Effekt wurde jedoch nach etwa 24 Stunden vermutlich durch das bessere Eindringen des Gärrests in den Grünlandboden gegenüber der Rohgülle wieder aufgehoben.

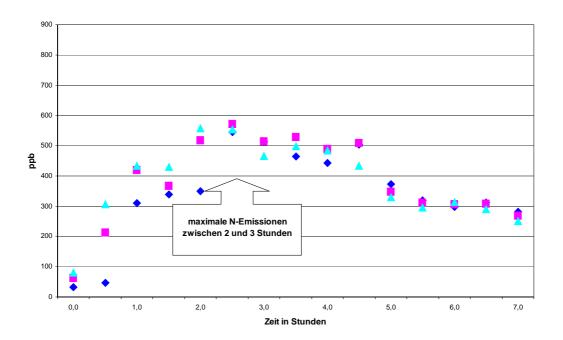


Abbildung 20: Drei Messreihen zur gasförmigen Emission von Ammoniak aus Rohgülle

Die Biogasgülle ist gegenüber der Rohgülle dünnflüssiger und dringt schneller in den Boden ein. Die geringere Viskosität und das bessere Eindringen in den Boden wirkt ebenfalls geruchsmindernd. Eine Verdünnung von Gärrest und Rohgülle ist daher auf alle Fälle vorteilhaft.

Ein Verbleib von festen, verkrusteten Gülleresten auf der Pflanzen- oder Bodenoberfläche, die eine punktförmige Quelle mit hohen (u.a. bakteriellen) Konzentrationen darstellen, wird somit vermieden. In einer Untersuchung von Weiß und Popp (2004) konnte gezeigt werden, dass Festmist höhere Konzentrationen fäkalcoliformer Bakterien aufwies als Gülle.

Aus hygienischer Sicht ist es daher besser, eine niedrigviskose, verdünnte Gülle die schneller in den Boden eindringt auszubringen, als eine Gülle mit hohem Trockensubstanzgehalt oder Festmist.

## 4. Zusammenfassung und Bewertung

Es zeigte sich bei allen Lysimeteruntersuchungen, dass nach der Aufbringung von Gärrest und Rohgülle innerhalb weniger Stunden Gülleinhaltsstoffe, Tracer und *E. coli* im Sickerwasser zu finden waren. Die Ursache dieser ersten schnellen Verlagerung waren Makroporen, die den Boden durchziehen. Diese Makroporen sind durch die Bodenstruktur bedingt, können aber auch u.a. aus Wurzelkanälen, Regenwurmröhren oder Mäusegängen (Megaporen) bestehen.

Das Niveau des Leachings über Makroporentransport erreichte bei den Beregnungsexperimenten 2 - 3 Stunden nach der Gülle- und Gärrestanwendung ein Maximum und fiel dann langsam wieder ab. Die Verlagerung von fäkalcoliformen Keimen mit dem Sickerwasser war dabei weitgehend unabhängig von der Art des eingesetzten Wirtschaftsdüngers (Gärrest oder Rohgülle).

In den Beregnungsversuchen wurden innerhalb von 3 Tagen 28 % des aufgebrachten Wassers beim Lehmboden und 33 % beim Sandboden als Sickerwasser durch den Boden (1 m Tiefe) transportiert. Von den aufgebrachten Fäkalindikatorbakterien (*E. coli*) wurden mit dem Sickerwasser 0,13 % bei der Rohgülle (auf Lehmboden) und 0,14 % beim Gärrest (auf Sandboden) verlagert.

Diese Ergebnisse werden in der Größenordnung durch die Untersuchungen von Schwarz und Kaupenjohann (2000 und 2001) und Weiß und Popp (2004) bestätigt. Bei deren Untersuchungen in gedränten Freilandflächen lagen die Gesamtausträge fäkalcoliformer Keime zwischen 0,05 % und 14,7 %.

Dabei geben diese Werte vor allem kurzfristige Verlagerungen bei Beregnungsversuchen und unterschiedlichem Makroporenbesatz wieder. So können z.B. Mäusegänge oder Trockenrisse die Fracht erheblich erhöhen. Gepflügte Flächen erhöhen hingegen die sorptionsfähige Oberfläche des Bodens, stören die Makroporen und verlangsamen den schnellen Makroporentransport in den Untergrund (Simard et al., 2000).

Bei den Lysimeteruntersuchungen ist zu berücksichtigen, dass es in den Lysimetern im Gegensatz zum Freiland keine Mäusegänge und nur wenige Regenwurmröhren gab, der Makroporenfluss daher in den Lysimetern geringer war.

Die Verlagerungen der Tracer Tritium, Lithium und Bromid sowie der fäkalcoliformen Keime über Makroporen verlief praktisch zeitgleich. Diese Tracer haben sich daher für die Beobachtung der Verlagerung von Bakterien bewährt.

Die Bodenart, der pH-Wert und der Kohlenstoffgehalt (C<sub>t</sub>-Gehalt) spielten bei den hier durchgeführten Lysimeterversuchen für die Verlagerung über Makroporen nur eine untergeordnete Rolle. Aislabie et al. (2001) beschreiben, dass hohe Tonanteile im Boden keinen nennenswerten Einfluss auf die mikrobielle Verlagerung haben. Anhand der vorliegenden Ergebnisse könnte jedoch ein Zusammenhang zwischen höherer Ton- und Schlufffraktion und verlangsamter Keimverlagerung bestehen. Nach Berg (1999) beeinflussen besonders der Makroporenbesatz, die Korngrößenverteilung und die Ausprägung des Bodengefüges das Bodenwasser und dessen Bewegung im Boden.

Eine Abhängigkeit des Austrags von *E. coli* von der Sickerwassermenge über Makroporenfluss konnte in den Lysimeteruntersuchungen nicht beobachtet werden. Dies wird auch durch Untersuchungen von Weiß und Popp (2004) bestätigt, der beim präferentiellen Fluss keine Unterschiede im Gesamtaustrag nachweisen konnte.

Bei Ausbringung von Rohgülle im Spätherbst verzögerte sich die Keimverlagerung gegenüber der Ausbringung im Sommer um einige Stunden.

In den Langzeituntersuchungen wurden im Laufe eines Jahres neben den kurzfristigen Keimverlagerungen über Makroporen zu Zeiten starker Regenfälle immer wieder geringe Mengen Indikatorkeime ausgewaschen. Diese Auswaschung blieb aber auf einem sehr niedrigen Niveau und lag zwischen 1 und 100 Kolonien bildenen Keimen pro 100 ml Sickerwasser.

In nahezu allen Sickerwässern, vor allem auch in den ungedüngten Varianten, konnten geringere Konzentrationen an *E. coli* auf diesem Niveau gemessen werden. Dies ist vermutlich auf eine natürliche Hintergrundbelastung der Böden mit fäkalcoliformen Keimen zurückzuführen. Diese natürliche Kontamination von Böden mit *E. coli* kann z.B. durch Kot von Vögeln, Mäusen, Maulwürfen, Hasen oder höheren Wildtieren verursacht werden. Um diese Hintergrundbelastungen mit fäkalcoliformen Keimen zu bewerten, fehlen jedoch Literaturwerte oder umfassende Untersuchungen aus der landwirtschaftlichen Praxis.

Bei den Versuchen mit radioaktiv markierten *E. coli* Keimen wurden während 3 Tagen Gesamtfrachten der Verlagerung (radioaktiv markierter Keime und evtl. Abbauprodukte) in Höhe von 2,0 % der aufgebrachten Radioaktivität im Lehmboden bzw. 3,7 % aufgebrachten Radioaktivität im Sandboden gemessen. Die höheren Wiederfindungsraten scheinen weniger auf der Art des Wirtschaftsdüngers sondern eher auf dem höheren Grobporenanteil des Sandbodens zu beruhen.

Die Heterogenität der Keimbelastung im Boden zeigte sich an der Bodenbeprobung. Die Untersuchung der Einzelschichten im Lysimeter ergab eine sehr inhomogene Verteilung fäkalcoliformer Keime in der Größenordnung von <10 bis 500 Keime pro g Trockenboden. Eine Schichtung konnte nicht zugeordnet werden.

Neben der Gewinnung von Energie hat die Biogasgülle (Gärrest) aus der Sicht der Landwirtschaft einige Vorteile gegenüber Rohgülle. Bei der anaeroben Schlammfaulung wird die organische Trockensubstanz um etwa 40 % (nach Gronauer und Aschmann, 2003) verringert. Dadurch wird die Biogasgülle dünnflüssiger und neigt bei der Ausbringung weniger zur Verkrustung an der Pflanzenoberfläche. Der Gärrest (Biogasgülle) lässt sich leichter rühren, pumpen und gleichmäßiger verteilen. Auch werden in der Biogasgülle kurzettige organische Säuren und Faserstoffe abgebaut, die bei der Rohgülle das Ablaufen von den Pflanzen erschweren. Bei der Ausbringung dringt der Gärrest daher schneller in den Boden ein.

Der Gärrest hat einen angenehmeren Geruch als die Rohgülle und führt damit bei Lagerung und Ausbringung zu geringerer Geruchsbelästigung. Er emittiert offenbar auch wesentlich weniger klimarelevantes CH<sub>4</sub>.

Die Rohgülle hat gegenüber dem Gärrest höhere Gehalte an organischen Säuren, z.B. Essig-, Propion- und Buttersäure. Bei der Vergärung werden diese flüchtigen Fettsäuren stark abgebaut. Nach Reinhold et al. (2004) hat ein Gärrest im Mittel weniger als 10 % flüchtiger Fettsäuren (C<sub>2</sub> bis C<sub>6</sub>) einer vergleichbaren Ausgangsgülle (Rohgülle).

Im Luftraum über dem Gärrest waren etwa 30 % höhere N-Anteile im Bezug zur Rohgülle zu messen. Dies liegt daran, dass der Gärrest (Biogasgülle) einen höheren Ammoniumgehalt im Verhältnis zum Trockenmassegehalt aufwies. Der NH<sub>4</sub>-N Anteil betrug etwa 60 % des Gesamt N beim Gärrest und 40 % NH<sub>4</sub>-N bei der Rohgülle. Dies wurde bestätigt durch Veröffentlichungen von Reinhold et al. (2004) und Peretzki et al. (2005).

Eine sachgerechte Nährstoffbewertung der Biogasgülle ist daher eine wesentliche Voraussetzung für die Festlegung von Düngemaßnahmen mit Gärresten. Die Einsatzmengen sind unter Berücksichtigung des  $N_{min.}$  Gehaltes im Boden und des Entzugs von Stickstoff an die Nährstoffmenge in der Gülle anzupassen. Dabei ist insbesondere die Begrenzung von 40 kg  $NH_4$ -N/ha für die Gärreste zu beachten, da die Gärreste meist höhere Ammonium-N-Gehalte aufweisen.

Aus pflanzenbaulicher Sicht kann der erhöhte Anteil an rasch pflanzenverfügbarem Ammonium-Stickstoff kurzfristig zu geringen Ertragssteigerungen führen. Langfristig verändernde Auswirkungen auf die Humusbilanz, Bodenneubildung und Bodenbiologie durch das verringerte C/N-Verhältnis sind jedoch nicht auszuschließen.

Der etwas höhere Ammoniumgehalt und etwas höhere pH-Wert im Gärrest (7,83 gegenüber 6,82 in der Rohgülle) führt wohl auch bei der Lagerung zu erhöhten N-Emissionen. Es sollte bei der Konzeption der Biogasanlage daran gedacht werden, dass die Gärreste unterhalb der Flüssigkeitsoberfläche in das Endlager gepumpt werden, um Stickstoffverluste zu reduzieren und um eine rasche Abkühlung der Gärreste aus dem Fermenter zu gewährleisten.

Zudem sollte nach Möglichkeit eine Abdeckung der Flüssigkeitsoberfläche erfolgen um N-Emissionen und somit Nährstoffverluste zu verhindern.

Aus hygienischer Sicht wiesen die von uns verwendeten Gärreste (Biogasgüllen) um 3 - 4 log Stufen niedrigere Keimkonzentrationen (*E. coli*) als die Rohgüllen (Normalgüllen) auf. Dies ist aus der Sicht des Boden- und Gewässerschutzes für die Keimbelastung des Boden und des Sickerwassers als sehr positiv zu erachten.

Um jedoch Makroporentransportvorgänge zu vermeiden, sollte die Ausbringung der Gärreste auf ausgetrockneten Böden, besonders vor Starkregenereignissen, in sensiblen Zonen nicht empfohlen werden.

Eine Ausbringung von Gärresten hat, insbesondere vor dem Hintergrund einer eventuellen Ausbringung im erweiterten Wasserschutzgebiet, wegen der wesentlich geringeren Keimkonzentration im Gärrest deutliche Vorteile gegenüber Rohgülle. Aus Sicht der Auswaschung, Verlagerung und dem Verbleib von fäkalcoliformen Indikatorkeimen im Boden zeigten die Wirtschaftsdüngervarianten keine wesentlichen Unterschiede. Lebuhn und Wilderer (2005) weisen allerdings darauf hin, dass bakterielle Sporenbildner während des Biogasprozesses nicht reduziert werden. Hier sind Untersuchungen nötig, ob eine Anreicherung im Boden bzw. Kontamination des Grundwasserstroms stattfindet.

Eine Empfehlung zur Ausbringung in erweiterten Wasserschutzgebieten könnte z.B. über Ausnahmeregelungen gegeben werden, wenn die Forderungen der Düngeverordnung eingehalten werden und Austräge von NH<sub>4</sub>-N minimiert werden. Weiterhin darf die

tatsächliche Verlagerung von fäkalcoliformen, pathogenen oder sporenbildenden Keimen, die durch eine Hygienisierung nicht ausreichend dezimiert wurden, über den Makroporenfluss nicht zu Grenzwertüberschreitungen im Wasser führen.

Daher könnte eine kontinuierliche Überwachung des Anlagenbetriebs und/oder der Keimbelastungen der Gärreste auf selektierte Problemkeime und ein Monitoring der Nährstoffgehalte zielführend sein, denn ein Ausbringverbot macht nur Sinn, wenn von dem Gärrest tatsächlich eine mikrobielle oder stoffliche Gefahr für Umwelt, Mensch und Tier ausgeht.

Sollte eine Hygienisierung über die thermophile Reaktorstufe (55°C) für pathogene Keime und Sporenbildner nicht ausreichend sein, könnten z.B. sehr zeit- und kostenintensive Verfahren der Drucksterilisation, eine thermische Nachbehandlung oder eine Bestrahlung mögliche technische Alternativen darstellen.

Ein realistische Möglichkeit zur Reduktion der Keimbelastung im Boden läge beispielsweise in der Reduzierung des Eintrags u.U. hygienisch bedenklicher Keime durch die Verringerung der Wirtschaftsdünger-Ausbringung generell, Verdünnung der Wirtschaftsdünger und in einem geeigneten Wirtschaftsdünger-Management. So könnten z.B. hygienisch und stofflich einwandfreie Wirtschaftsdünger auch in sensibleren Bereichen ausgebracht werden, höher belastete Wirtschaftsdünger auf unproblematischeren Ackerstandorten.

Güde (2002) beschreibt, dass bei längerer Lagerung von Rohgülle ebenfalls geringere Keimbelastungen in der Größenordnung von etwa drei Zehnerpotenzen erreicht werden können. Bei längerer Lagerung von Gärresten könnten allerdings die Vorteile der Hygienisierung durch Wiederverkeimung (Lebuhn und Wilderer, 2005) teilweise wieder aufgehoben werden. Es wäre daher aus hygienischer Sicht wünschenswert, zur Ausbringung der Gärreste in sensiblen Bereichen die optimale Lagerzeit und den besten Zeitpunkt zu ermitteln.

Auch ist die Vergärung von Ko-Substraten mit rein pflanzlicher Biomasse ein möglicher Weg zur weiteren Verringerung der Keimbelastungen in den Gärresten.

Nach Tidden (2003) könnte auch eine nachgeschaltete Behandlung des Gärrests (z.B. durch eine externe Kompostierung) zu einer weiterführenden Hygienisierung beitragen.

## 5. Literatur

Aislabie, J., Smith, J.J., Fraser, R. and McLeod, M. (2001): Leaching of bacterial indicators of faecal contamination through four New Zealand soils. Aust. J. Soil Res., 39, 1397-1406

**Auckenthaler, A.G. (2004):** Transport von Mikroorganismen in einem Karstaquifer am Beispiel der Lützelquelle, Dissertation, Philosophisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der Universität Basel, 2004

Berg, W. (1999): Neue Methoden zur Visualisierung und Quantifizierung bevorzugter Fließwege in der ungesättigten Zone. Diplomarbeit bei Prof. Dr. H. Zojer an der Karl-Franzens-Universität Graz, Institut für Hydrogeologie und Geothermie

**De Man, J.C. (1983):** MPN Tables, Corrected, Eur. J. Appl. Microbiol. Biotechnol. 17, 301-305, 1983

**Düngeverordnung (1996):** Verordnung über die Grundsätze der guten fachlichen Praxis beim Düngen. Bundesgesetzblatt Teil 1 Nr.6, 118 – 121

**Edmonds, R.L. (1976):** Survival of coliform bacteria in sewage sludge applied to a forest clearcut and potential movement into groundwater. Appl. Environ. Microbiol. 32, 537-546

**Gronauer, A. und Aschmann, V. (2003):** Wissenschaftliche Begleitung einer Pilotanlage zur Feststoffvergärung von landwirtschaftlichen Gütern. Bayerisches Staatsministerium für Landwirtschaft und Forsten, Landtechnische Berichte aus Praxis und Forschung, Gelbes Heft 77

**Güde H.** (2002): Erfassung und Bewertung von Eintragswegen für Belastungen mit Fäkalkeimen im Einzugsgebiet der Seefelder Aach (Bodenseekreis), Forschungsbericht der Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg Langenargen Institut für Seenforschung

**Harvey, R.W.** (1997) In situ and laboratory methods to study subsurface microbial transport. Manual of Environmental Microbiology, ASM, 586-599, 1997

Kaiser, F., Diepolder, M., Eder, J., Hartmann, S., Prestele, H., Gerlach, R., Ziehfreund, G. und Gronauer, A. (2004): Ertragspotentiale verschiedener nachwachsender Rohstoffe in landwirtschaftlichen Biogasanlagen. Biogas in Bayern, LfL-Schriftenreihe 13, ISSN 1611-4159

**Keymer, U. und Schilcher, A. (1999):** Biogasausbeuten verschiedener Substrate. Ergebnisse des LTV-Arbeitskreises Biogas, Landtechnik-Bericht 34, Landtechnik Weihenstephan, TU München, Freising-Weihenstephan

Klasink, A. und Steffens: G. (2003): Odour and Ammonia Emissions From Grassland and arable Land, Landwirtschaftskammer Weser-Ems. UBA-Signatur, UBA LU600037

**Lebuhn, M. und Wilderer, P. (2005):** Abschlussbericht des StMUGV-Projekts Biogastechnologie zur umweltverträglichen Flüssigmistverwertung und Energiegewinnung in Wasserschutzgebieten: wasserwirtschaftliche und hygienische Begleituntersuchung, Projektteil: Mikrobiologische, parasitologische und virologische Untersuchungen.

- McKay, L.D., Sanford, W.E. and Strong, J.M. (2000): Field-scale migration of colloidal tracers in fractured shals saprolite. Ground Water 38 (1.), 139-147, 2000
- **Peretzki, F., Müller, Ch. und Dittmann, Th. (2005):** Aspekte der Düngung mit Gärrückständen aus Biogasanlagen. Bayerisches Landwirtschaftliches Wochenblatt, Serie "Biogas" Teil 8, 15.02.05
- Reinhold, G., König, V. und Herold, L. (2004): Auswirkungen der Biogaserzeugung auf die Eigenschaften der Gärsubstrate. Kongressband zur VDLUFA-Tagung in Rostock 2004, Seite 256-262, ISBN 3-922712-91-6
- **Schäfer, A. (1997):** Bacterial transport and pollutant degradation: influences of air-water interfaces and solid surfaces. PhD Thesis, Diss. ETH No. 12416, 1997
- Scheffer, F. und Schachtschabel, P. (1998): Lehrbuch der Bodenkunde. 14. Aufl. Enke, Stuttgart
- Schindler P.R.G. (1991): MUG-Laurylsulfat-Bouillon ein optimales Nachweismedium für gesamtcoliforme und fäkalcoliforme Bakterien im Rahmen der hygienischen Überprüfung von Badegewässern gemäß der EG-Richtlinie 76/160 EWG (MUG-Lauryl Sulfate Broth an Optimum Medium for the Enumeration of Total Coliform and Faecal Coliform Bacteria for the Quality Control of Bathing Waters According to the EC-Guideline 76/160 EWG). Zbl. Hyg. 191, 438-444
- **Scholl, M.A. und Harvey, R.W. (1992):** Laboratory investigation on the role of sediment surface and groundwater chemistry in transport of bacteria through a contaminated sandy aquifer. Environ. Sci. Technol. 26(7), 1410-1417, 1992
- Schwarz A. und Kaupenjohann M. (2000): Grundwasserbelastungen durch in Böden eingetragene Schadstoffe unter besonderer Berücksichtigung des schnellen Flussesin bevorzugten Fließbahnen. In: AK "Schneller Stofftransport in Böden" im FA "Bodenschutz, Boden- und Grundwasserverunreinigungen" des ATV-DVWK, Abschlussbericht Hohenheim, 1-32
- **Schwarz A. und Kaupenjohann M. (2001):** Vorhersagbarkeit des Stofftransportes in Böden unter Berücksichtigung des schnellen Flusses (preferential flow). KA-Wasserwirtschaft, Abwasser, Abfall 48, 48-53
- **Simard, R.R., Beauchemin, S. and Haygarth, P.M. (2000):** Potential for preferential pathways of phosphorus transport. J. Environ. Qual. 29, 97-105
- **Tidden, F. (2003):** Leistungsmerkmale und Grenzen der mehrphasigen anaeroben Behandlung kommunaler Bioabfälle. Berichte aus Wassergüte- und Abfallwirtschaft, ,TU München, Berichtsheft Nr. 176, ISSN 0942-914X
- **Tschirsich C., Pfisterer A. und Gebauer W.-G. (2002):** Einfluss von Landnutzung und Niederschlag auf das Vorkommen von Escherichia Coli im Grundwasser. Wasser & Boden 54, 40-43
- Weber, A., Gutser, R., Henkelmann, G. und Schmidhalter, U. (2000): Unvermeidbare NH<sub>3</sub>-Emissionen aus mineralischer Düngung (Harnstoff) und Pflanzenmulch unter Verwendung einer modifizierten Messtechnik, VDLUFA-Schriftenreihe 53/2000)

Weiß, K. und Popp, W. (2004): Quantifizierung der diffusen Belastung von Gewässern mit Fäkalbakterien aus landwirtschaftlich genutzten Flächen. Schlussbericht des Bayerischen Landesamts für Wasserwirtschaft, 2004

Wulf, S., Maeting, M. und Clemens, J. (2002): Application Technique and Slurry Co-Fermentation Effects on Ammonia, Nitrous Oxide, and Methane Emissions after Spreading: I. AmmoniaVolatilization, J. Environ. Qual. 2002 31: 1789-1794

**Wulf, S.** (2003): Emissionen von Spurengasen während der Lagerung und nach der Ausbringung von Kofermentationsrückständen. BioGas-Journal, H. 1, 34-35

Günter Henkelmann

Institut für Agrarökologie, Ökolog. Landbau und Bodenschutz, an der Bayerischen Landesanstalt für Landwirtschaft Arbeitsbereich: Isotopentechnik und Ökosystemchemie

Menzinger Str. 54, 80638 München

e-mail: <u>Guenter.Henkelmann@LfL.Bayern.de</u>