

Nitratelimination in Gewässern und ihre Auswirkungen auf Nitratgehalte in Seen und Grundwasser = Nitrate elimination in aquatic systems and its effect on nitrate concentrations in lakes and ground-waters

Autor(en): **Mengis, Martin / Wehrli, Bernhard**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Mitteilungen aus dem Gebiete der Lebensmitteluntersuchung und Hygiene = Travaux de chimie alimentaire et d'hygiène**

Band (Jahr): **89 (1998)**

Heft 6

PDF erstellt am: **09.08.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-983164>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Nitratelimination in Gewässern und ihre Auswirkung auf Nitratgehalte in Seen und Grundwasser*

Nitrate Elimination in Aquatic Systems and its Effect on Nitrate Concentrations in Lakes and Ground-waters

Key words: Nitrate, Denitrification, Lakes, Ground-waters, Nitrate isotopes

Martin Mengis
Mengis + Lorenz AG, Luzern

Bernhard Wehrli
EAWAG, Kastanienbaum

Einleitung

Der anthropogene Eintrag von Stickstoff-(N)Verbindungen in die Schweizer Gewässer ist ca. 6mal grösser als die natürliche Hintergrundbelastung (1). Hauptursachen sind dabei der Einsatz von N-Düngern in der Landwirtschaft, Einleitung von gereinigtem und ungereinigtem Abwasser in Fliessgewässer und NO_x-Emissionen durch Verbrennungsprozesse, welche zur atmosphärischen N-Deposition auf Gewässer und Böden beitragen. Obwohl während den letzten drei Jahrzehnten der N-Eintrag in die gesamte Hydrosphäre stark zugenommen hat, haben sich die Nitratgehalte in verschiedenen Gewässertypen (Fliessgewässer, Seen oder Grundwasser) ganz unterschiedlich entwickelt. Unglücklicherweise sind dabei die Nitratkonzentrationen in dem für die schweizerische Trinkwasserversorgung wichtigsten Teilbereich der Hydrosphäre, dem Grundwasser, in der Regel um einen Faktor 5–50 höher als in Seen (2, 3 und Abb. 1). Im folgenden werden die Ursachen für diese unterschiedliche Reaktion verschiedener Gewässertypen diskutiert und eine Methode vorgestellt, welche Basisinformation für eine gezielte Sanierung von nitratbelasteten Grundwässern liefert.

* Vortrag gehalten an der 110. Jahresversammlung der Schweizerischen Gesellschaft für Lebensmittel- und Umweltchemie, Horw, 4. September 1998

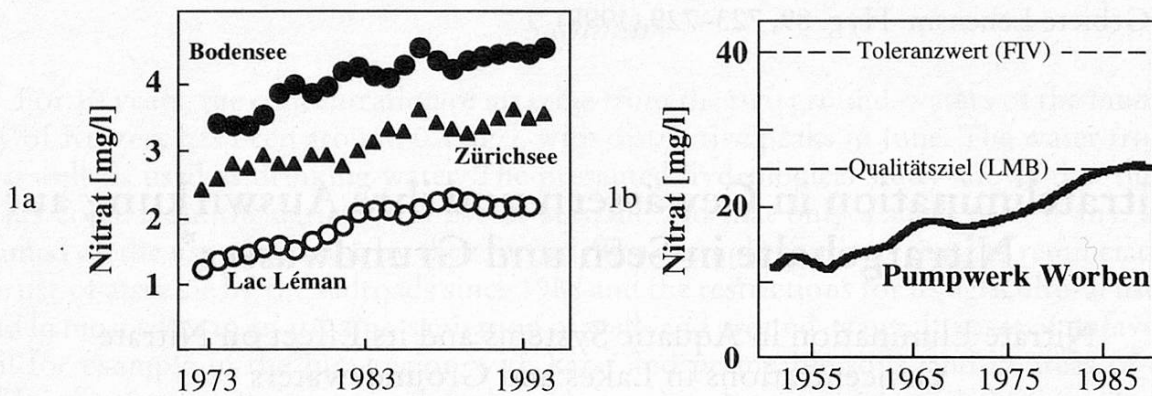


Abb. 1. Zeitliche Entwicklung von Nitratkonzentrationen in Schweizer Seen und Grundwässern (2, 3).

Nitratelimination in Seen (Denitrifikation)

In den meisten Schweizer Seen ist der mikrobielle Prozess der Denitrifikation die wichtigste N-Senke (4, 5). Auch in grossen Tieflandflüssen und in Bachuferzonen spielt dieser N-Eliminationsprozess eine wichtige Rolle (6). Bei der Denitrifikation verwenden Mikroorganismen Nitrat (NO_3^-) an Stelle von Sauerstoff (O_2), um organische Substanz zu CO_2 zu mineralisieren. Der Prozess findet deshalb meistens nur bei sehr tiefen O_2 -Konzentrationen (anoxischen Bedingungen) statt. NO_3^- wird dabei zu N_2 reduziert, das Treibhausgas Lachgas (N_2O) entsteht als Nebenprodukt. In Seen wird die höchste Denitrifikationsrate oft am Grund, in der Nähe der Sedimentwassergrenze, gemessen (4, 5). Sie ist in nährstoffreichen Seen meistens durch das Angebot von NO_3^- begrenzt. In nährstoffarmen Seen kann auch das Angebot an organischem Kohlenstoff als Reduktionsmittel limitierend sein. Zunehmende NO_3^- -Konzentrationen in Seen als Folge eines steigenden Eintrags von N-Verbindungen erhöhen in der Regel die Denitrifikationsrate, da die Diffusion von NO_3^- ins Sediment positiv mit der NO_3^- -Konzentration im Seewasser korreliert (2, 4, 7). Deshalb wird die Denitrifikation oft als *Selbstreinigungsprozess* von Seen und Küstenmeeren bezeichnet, da dadurch diese Ökosysteme teilweise vor den negativen Folgen des erhöhten anthropogenen N-Eintrags geschützt werden.

Abbildung 2 illustriert, wie am Seegrund von tiefen Seen Denitrifikationsraten in-situ gemessen werden können (5). Mit Hilfe eines Kastengreiflers (Abb. 2a) wurde in einem über dem Seeboden eingeschlossenem Wasservolumen ^{15}N markiertes NO_3^- eingespritzt. Die Abbildung 2b zeigt die Nitratzehrung durch mikrobielle Prozesse. Der Anteil der Denitrifikation konnte durch die Analyse von mit ^{15}N markiertem N_2 mittels Massenspektrometrie bestimmt werden (Abb. 2c). Eine grobe Extrapolation von Messungen und Massenbilanzen für die Schweizer Seen zeigt, dass ca. 15 000 t N eliminiert werden (2). Dies entspricht ca. 15–20% der jährlichen N-Fracht im Rhein bei Basel. Zusätzliche «end of pipe»-Massnahmen bei den Kläranlagen durch Ausbau einer denitrifizierenden Reinigungsstufe sollen deshalb auf Kläranlagen unterhalb der Seen konzentriert werden.

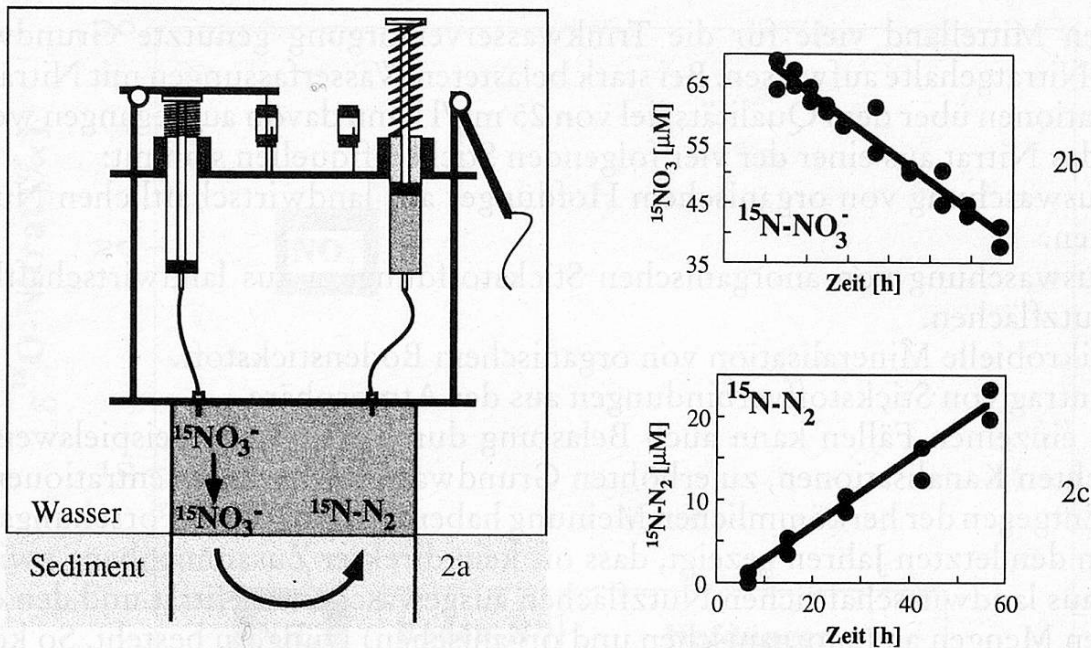


Abb. 2. Nitrat-Tracerversuch am Seegrund des Baldeggersees (5).

Denitrifikation im Grundwasser

Im Gegensatz zu Seen werden in Grundwässern meistens keine oder nur sehr geringe Denitrifikationsraten gemessen. Grund dafür ist das im Grundwasser üblicherweise sehr geringe Angebot an Reduktionsmitteln (z. B. gelöster oder partikulärer organischer Kohlenstoff). Ein ausreichendes Angebot an Reduktionsmitteln ist für denitrifizierende Mikroorganismen aus zwei Gründen wichtig. Einerseits werden dadurch über O_2 -Zehrung anoxische Verhältnisse induziert, welche für die meisten Denitrifikanten unabdingbar sind, und andererseits brauchen Denitrifikanten selber Reduktionsmittel, um NO_3^- zu N_2 umwandeln zu können (4). Allerdings gibt es durchaus auch im Grundwasser Bereiche, wo Denitrifikation ablaufen kann, beispielsweise im Abstrom von Deponien, wenn kontaminiertes Deponiesickerwasser den Grundwasserstrom mit gelöstem organischem Kohlenstoff verunreinigt. Auch im oberflächennahen Grundwasser von Bachuferzonen werden oft hohe Denitrifikationsraten gemessen, weil durch die Mineralisation von Ufervegetation relativ viel gelöster organischer Kohlenstoff als Reduktionsmittel produziert wird (6). Deshalb werden seit mehreren Jahren vor allem in Grossbritannien und Skandinavien solche Bachuferzonen gezielt als Pufferzonen eingesetzt, um den Eintrag von hohen Nitratfrachten in Oberflächengewässer durch exfiltrierendes Grundwasser zu reduzieren.

Bestimmung der Nitratquellen im Grundwasser

Der hohe Eintrag von N-Verbindungen und das Fehlen von signifikanten Denitrifikationsraten haben in den letzten Jahren dazu geführt, dass im schweize-

rischen Mittelland viele für die Trinkwasserversorgung genutzte Grundwässer hohe Nitratgehalte aufweisen. Bei stark belasteten Wasserfassungen mit Nitratkonzentrationen über dem Qualitätsziel von 25 mg/l kann davon ausgegangen werden, dass das Nitrat aus einer der vier folgenden Stickstoffquellen stammt:

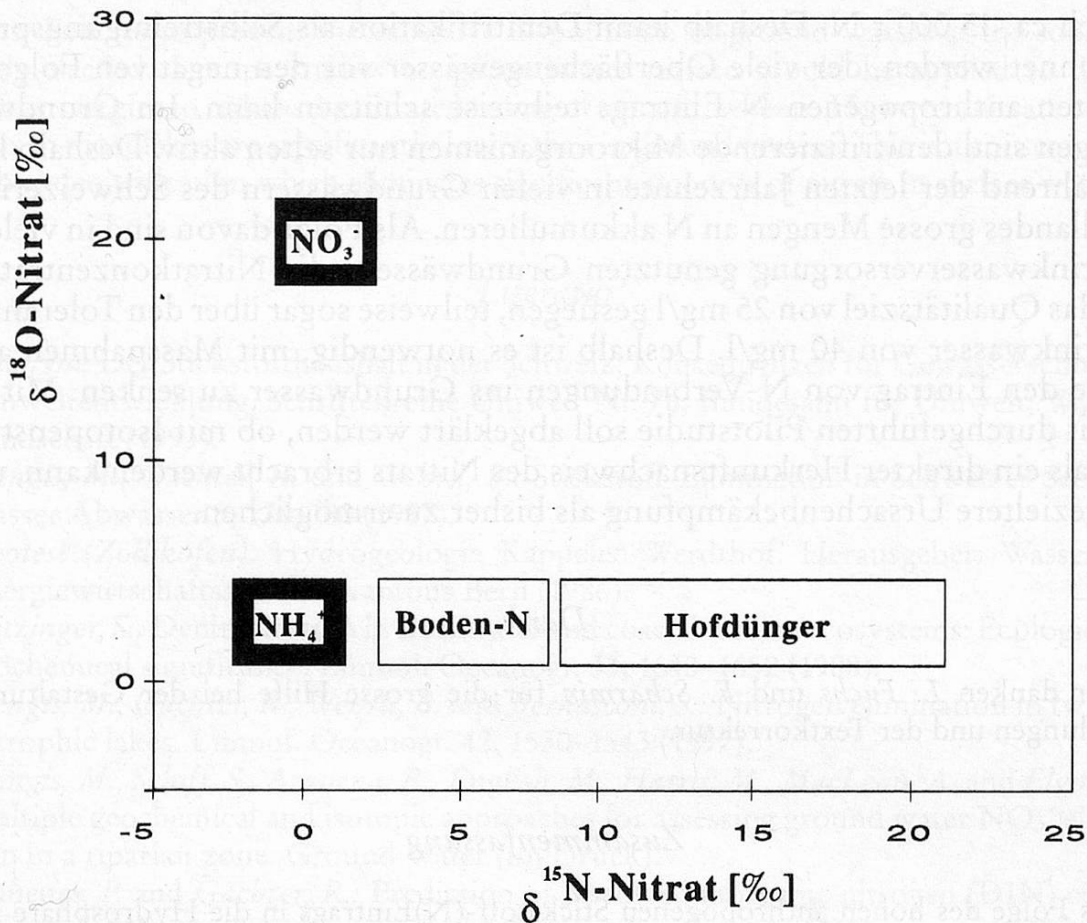
1. Auswaschung von organischem Hofdünger aus landwirtschaftlichen Nutzflächen.
2. Auswaschung von anorganischen Stickstoffdüngern aus landwirtschaftlichen Nutzflächen.
3. Mikrobielle Mineralisation von organischem Bodenstickstoff.
4. Eintrag von Stickstoffverbindungen aus der Atmosphäre.

In einzelnen Fällen kann auch Belastung durch Abwässer, beispielsweise aus undichten Kanalisationen, zu erhöhten Grundwasser-Nitratkonzentrationen führen. Entgegen der herkömmlichen Meinung haben agronomische Forschungsergebnisse in den letzten Jahren gezeigt, dass oft kein direkter Zusammenhang zwischen dem aus landwirtschaftlichen Nutzflächen ausgewaschenen Nitrat und den eingesetzten Mengen an (anorganischen und organischen) Düngern besteht. So können beispielsweise die Wahl der Fruchtfolge, die angewandten Bodenbearbeitungstechniken, die Witterungsbedingungen oder der Stickstoffeintrag aus der Atmosphäre den Nitratreintrag ins Grundwasser ebenso stark beeinflussen wie die eingesetzten Dünger. Dieses komplexe Wechselspiel verschiedener möglicher Ursachen erschwert es, belegbare und effiziente Vollzugsmassnahmen zu veranlassen, um stark belastete Wasserfassungen zu sanieren. Es fehlten bis zum Ende der 80er Jahre Methoden, mit denen direkt die Nitratherkunft bestimmt werden kann.

Eine 1987 publizierte Studie von *Amberger* und *Schmidt* (8) postulierte erstmals, dass durch die Anwendung der von ihnen entwickelten Methode zur Bestimmung der natürlichen Isotopengehalte $\delta^{15}\text{N}$ und $\delta^{18}\text{O}$ die Herkunft von Nitrat bestimmt werden kann.

Grundlage dieses Ansatzes ist, dass die oben aufgezählten vier Stickstoffquellen Nitrat mit unterschiedlichen Isotopengehalten produzieren (Abb. 3). Konkret wurde gezeigt, dass sich Grundwässer mit vorwiegender Stickstoffbelastung aus organischem Hofdünger durch einen erhöhten $\delta^{15}\text{N}$ -Gehalt (8–20‰) identifizieren lassen, wogegen sich mineralische Nitratdünger durch erhöhte $\delta^{18}\text{O}$ -Werte (18–22‰) auszeichnen. Mineralisation von organischem Bodenstickstoff produziert hingegen Nitrat mit relativ niedrigen $\delta^{15}\text{N}$ - (3–8‰) und $\delta^{18}\text{O}$ - (1–5‰) Gehalten und lässt sich dadurch in landwirtschaftlich genutzten Einzugsgebieten oft von den Nitratquellen «organische und mineralische Dünger» abgrenzen. Die Arbeit von *Durka* et al. (9) zeigt darüber hinaus, dass in bewaldeten Einzugsgebieten durch entsprechende Isotopenuntersuchungen der Beitrag des Nitratreintrags durch atmosphärische Deposition zur Nitratbelastung des Grundwassers abgeschätzt werden kann.

Trotz diesem erfolgversprechendem Potential von Nitrat-Isotopenstudien wurden diese weltweit bis vor wenigen Jahren nur relativ selten angewandt. Der Grund hierfür dürfte darin liegen, dass die von *Amberger* und *Schmidt* (8) entwickelte Analysenmethode für $\delta^{18}\text{O}$ von Nitrat relativ aufwendig ist. Eine modifizierte Form dieser Methode (10) wird ab 1998 erstmals in der Schweiz mit ihrer Einfüh-



■ : *technisch hergestellte Kunstdünger*

Abb. 3. ^{15}N - und ^{18}O -Isotopengehalt von Nitrat aus verschiedenen Quellen (verändert aus 8).

rung an der EAWAG und der ETH Zürich verfügbar sein. Zurzeit läuft ein Pilotprojekt im schweizerischen Mittelland, in dem die Anwendbarkeit, Kosten und Aussagekraft dieser Methode unter schweizerischen Bedingungen getestet wird. Erste Resultate deuten darauf hin, dass sie mit einem vertretbaren Aufwand auch in der Praxis eingesetzt werden kann, um damit die Grundlagen zur Sanierung von stark belasteten Grundwässern zu erarbeiten.

Schlussfolgerungen

Der N-Eintrag in die Schweizerische Hydrosphäre hat in den letzten Jahrzehnten stark zugenommen. Heute wird die natürliche Hintergrundbelastung der Schweizerischen Gewässer mit N durch menschliche Aktivitäten um insgesamt 500% aufgestockt (1). Verschiedene Gewässertypen haben auf diesen erhöhten Eintrag ganz unterschiedlich reagiert. In den meisten Seen sind die durchschnittlichen Nitratgehalte während der letzten 20 Jahre leicht angestiegen. Andererseits eliminieren Schweizer Seen durch den mikrobiellen Prozess der Denitrifikation

jährlich ca. 15 000 t N. Deshalb kann Denitrifikation als Selbstreinigungsprozess bezeichnet werden, der viele Oberflächengewässer vor den negativen Folgen des erhöhten anthropogenen N-Eintrags teilweise schützen kann. Im Grundwasser hingegen sind denitrifizierende Mikroorganismen nur selten aktiv. Deshalb konnten während der letzten Jahrzehnte in vielen Grundwässern des Schweizerischen Mittellandes grosse Mengen an N akkumulieren. Als Folge davon sind in vielen für die Trinkwasserversorgung genutzten Grundwässern die Nitratkonzentrationen über das Qualitätsziel von 25 mg/l gestiegen, teilweise sogar über den Toleranzwert für Trinkwasser von 40 mg/l. Deshalb ist es notwendig, mit Massnahmen an der Quelle den Eintrag von N-Verbindungen ins Grundwasser zu senken. Mit einer zurzeit durchgeführten Pilotstudie soll abgeklärt werden, ob mit Isotopenstudien erstmals ein direkter Herkunftsnachweis des Nitrats erbracht werden kann, um so eine gezieltere Ursachenbekämpfung als bisher zu ermöglichen.

Dank

Wir danken *L. Fuchs* und *E. Scharmin* für die grosse Hilfe bei der Gestaltung der Abbildungen und der Textkorrektur.

Zusammenfassung

Als Folge des hohen anthropogenen Stickstoff-(N)Eintrags in die Hydrosphäre ist der Nitratgehalt in vielen Grundwässern in der Schweiz stark angestiegen. Deshalb ist es notwendig, den Eintrag von N-Verbindungen ins Grundwasser mit Massnahmen an der Quelle zu senken. Isotopenuntersuchungen an Grundwassernitrat sollten eingesetzt werden, um eine gezieltere Ursachenbekämpfung als bisher zu gewährleisten. In Seen hingegen sind die Nitratkonzentrationen üblicherweise deutlich tiefer als im Grundwasser, weil durch mikrobielle Denitrifikation in Oberflächengewässern bedeutende Mengen an Nitrat eliminiert werden.

Résumé

La concentration de nitrate dans les nappes phréatiques a augmenté à de nombreux endroits à la suite des apports anthropogènes élevés dans l'hydrosphère suisse. Il est donc important de gérer le cycle d'azote avec le but de diminuer les apports dans l'hydrosphère. L'étude de la distribution des isotopes dans le nitrate permet d'identifier les différentes sources de ce polluant. Par contre, les concentrations de nitrate dans des lacs sont normalement moins importantes que dans les eaux souterraines. La dénitrification microbienne est un mécanisme efficace pour diminuer la concentration de nitrate dans les eaux de surface.

Summary

As a consequence of high anthropogenic nitrogen (N) inputs into the hydrosphere, the nitrate content of most ground-waters in Switzerland increased strongly during the last

decades. Policies to prevent the excessive N-pollution of ground-waters at the source are urgently needed. Isotope studies on groundwater nitrate should be applied to develop efficient strategies to reduce the nitrate loading of aquatic systems. However, nitrate concentrations in most lakes are significantly lower than in ground-waters. This is a consequence of microbial denitrification which eliminates significant amounts of nitrate in surface waters.

Literatur

1. *Anonym*: Der Stickstoffhaushalt in der Schweiz, Konsequenzen für Gewässerschutz und Umweltentwicklung. Schriftenreihe Umwelt Nr. 76, Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (1993).
2. *Mengis, M., Gächter, R. und Wehrli, B.*: Stickstoff-Elimination in Schweizer Seen. *Gas Wasser Abwasser* 3, 174–180 (1997).
3. *Geotest (Zollikofen)*: Hydrogeologie Kappelen/Werdthof. Herausgeber: Wasser- und Energiewirtschaftsamt des Kantons Bern (1986).
4. *Seitzinger, S.*: Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystems: Ecological and geochemical significance. *Limnol. Oceanogr.* 33, 1643–1652 (1988).
5. *Mengis, M., Gächter, R., Wehrli, B. and Bernasconi, S.*: Nitrogen elimination in two deep eutrophic lakes. *Limnol. Oceanogr.* 42, 1530–1543 (1997).
6. *Mengis, M., Schiff, S., Aravena, R., English, M., Harris, M., MacLean, A. and Elgood, R.*: Multiple geochemical and isotopic approaches for assessing ground water NO_3^- elimination in a riparian zone. *Ground Water* (im Druck).
7. *Höhener, P. and Gächter, R.*: Prediction of dissolved inorganic nitrogen (DIN) concentrations in deep, seasonally stratified lakes based on rates of DIN input and N removal processes. *Aquat. Sci.* 55, 112–131 (1993).
8. *Amberger, A. und Schmidt, H.L.*: Natürliche Isotopengehalte von Nitrat als Indikatoren für dessen Herkunft. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 51, 2699–2705 (1987).
9. *Durka, W., Schulze, E.-D., Gebauer, G. and Voerkelius, S.*: Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements. *Nature* 372, 765–767 (1994).
10. *Silva, S.R., Kendall, C., Wilkison, D.H., Ziegler, A.C., Chang, C.C.Y. and Avanzino, R.J.*: Collection and analysis of nitrate from dilute water for nitrogen and oxygen isotopes. *J. Hydrol.* (eingereicht).

Dr. Martin Mengis
Mengis + Lorenz AG
Schlossstrasse 3
CH-6005 Luzern

Prof. Dr. Bernhard Wehrli
EAWAG/ETH
Seestrasse 79
CH-6047 Kastanienbaum