

Tagungsbeitrag zu:

Jahrestagung der DBG, Kommission IV

Titel der Tagung:

„Böden - eine endliche Ressource“

Veranstalter:

DBG, September 2009, Bonn

Termin und Ort: 05. - 13.09.2009 Bonn**Berichte der DBG** (nicht begutachtete online Publikation) <http://www.dbges.de>**Emissionen von grundwasserbürtigem N₂O in die Atmosphäre: Modellrechnungen zu einem ¹⁵N-Tracerversuch unter Feldbedingungen**

Jürgen Böttcher¹, Daniel Weymann², Carolin von der Heide¹, Reinhard Well³, Heiner Flessa³ und Wilhelmus H.M. Duijnsveld⁴

Zusammenfassung

In einem Tracerversuch mit isotopisch markiertem Nitrat wurde unter Feldbedingungen (Gley-Podsol aus Talsand, darunter ein Lockergesteinsaquifer) die Denitrifikation im oberflächennahen Grundwasser und die daraus resultierende Emission von N₂O in die Atmosphäre über einen Zeitraum von Juli bis September 2007 verfolgt. Die Messergebnisse dienten als Anfangs- und Randbedingungen und Vergleichswerte für Simulationsrechnungen zum Transport von N₂O durch den Boden zur Atmosphäre mit einem numerischen Gasdiffusionsmodell. Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen bestätigen, dass Diffusion der wesentliche Prozess für den N₂O-Transport in dem untersuchten Boden war. Für die geringen grundwasserbürtigen

N₂O-Emissionen spielte N₂O-Abbau im Boden keine Rolle.

Wir schlussfolgern aus den Ergebnissen, dass die Simulationsrechnungen eine wertvolle Ergänzung zur experimentellen Datenbasis darstellen. Sie verdeutlichen u.a., dass die N₂O-Emission am Versuchsstandort hauptsächlich durch N₂O-Umsetzungen im Oberboden gesteuert wurde.

Schlüsselworte: N₂O-Emission, Grundwasser, Boden, Tracerversuch, Modellierung

Einleitung

Ausgewaschenes Nitrat kann im Bereich des Grundwassers denitrifiziert werden. Mit dieser Denitrifikation ist auch die Bildung von N₂O verbunden, welches als „indirekte“ Emission in die Atmosphäre gelangen kann. Allerdings ist es bislang mit den gängigen Feldmessmethoden (Haubenmethode, Gradientenmethode) kaum möglich, indirekte N₂O-Emissionen aus dem Grundwasser nachzuweisen oder zu quantifizieren. Daher wurde im Fuhrberger Feld an einem Standort mit Gley-Podsol (Bodenart: Sand) unter Grünbrache und einem sandig-kiesigen Aquifer ein Tracerversuch mit ¹⁵N-markiertem Nitrat (¹⁵N-NO₃) durchgeführt. Dabei wurde das markierte NO₃ an die Grundwasseroberfläche injiziert. Dort war es der „natürlichen“ Denitrifikation ausgesetzt. Die resultierenden, grundwasserbürtigen ¹⁵N₂O-Emissionen (auch als indirekte Emissionen bezeichnet) wurden an der Grenze Boden/Atmosphäre gemessen. Die Ergebnisse (Weymann et al., 2009) belegen, dass kaum indirekte N₂O-Emissionen stattfinden. Die Frage der Ursachen dafür ist aber bislang nur teilweise geklärt. Unsicherheit besteht, welcher Transportprozess (Diffusion, Konvektion) den Transfer aus dem Grundwasser bzw. Unterboden in die Atmosphäre bewirkt und ob und in welchem Maß N₂O beim Transport durch den Bodenraum Richtung Atmosphäre abgebaut wird. Zu dieser Fragestellung wurden Simulationsrechnungen mit einem Gasdiffusionsmodell durchgeführt mit dem Ziel, (i) den Prozess des N₂O-Transports zu klären und (ii) zu prüfen, welche Rolle N₂O-

¹ Leibniz Universität Hannover, Institut für Bodenkunde, Herrenhäuser Str. 2, 30419 Hannover, Tel.: 0511 / 762-3623, E-Mail: boettcher@ifbk.uni-hannover.de

² Büsingen-Institut, Abt. Ökopedologie der gemäßigten Zonen, Universität Göttingen

³ von Thünen-Institut, Institut für Agrarrelevante Klimaforschung, Braunschweig

⁴ Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover

Produktion und –Konsumption im Boden für die Gesamt-N₂O-Emission und deren grundwasserbürtigen Anteil spielen. Die Hypothesen dazu sind:

- i. Der bestimmende Transportprozess ist Diffusion.
- ii. N₂O-Abbau im Boden ist für die geringen grundwasserbürtigen Emissionen unbedeutend.

Material und Methoden

Der Tracerversuch wurde auf einer 4 m × 2 m großen Parzelle im Wassereinzugebiet Fuhrberger Feld, nördlich von Hannover, durchgeführt. Der Boden ist ein Gley-Podsol aus Talsand. Er war zum Zeitpunkt des Feldversuchs (Juli – Sept. 2007) mit Gras bewachsen, vor 2005 war Ackernutzung mit regelmäßiger Bodenbearbeitung und Düngung prägend.

Im Versuchszeitraum wurde wöchentlich eine Tracerlösung mit isotopisch markiertem Nitrat (K¹⁵NO₃, 60 Atom% ¹⁵N, 12.5 mg N L⁻¹) durch 45 PVC-Rohre bis zur Grundwasseroberfläche injiziert. Mit Hilfe von Multilevel-Grundwassermessstellen, Gassonden in 30, 60 und 90 cm Tiefe unter Bodenoberfläche und geschlossenen, statischen Messkammern auf der Bodenoberfläche wurden die N₂O-Bildung im Bereich der Grundwasseroberfläche, N₂O-Konzentrationen der Bodenluft und N₂O-Emissionen wöchentlich gemessen. Alle Details zum Feldversuch, den Probenahmen und der Analytik können Weymann et al. (2009) entnommen werden.

Die Simulationsrechnungen wurden mit einem eindimensionalen Gasdiffusionsmodell durchgeführt. Die Diffusion wird mit dem 2. Fick'schen Gesetz beschrieben. Das Modell berücksichtigt die Lösung von N₂O im Bodenwasser nach dem Henry-Gesetz, und auch Netto-Produktion oder –Abbau von N₂O im Boden können simuliert werden. Für den Untersuchungsstandort liegt der scheinbare Gasdiffusionskoeffizient, gültig für ¹⁴N-N₂O im Boden, für verschiedene Wasser- bzw. Luftgehalte des hier untersuchten Bodens gemessen vor. Für das schwere ¹⁵N-N₂O wurde der Diffusionskoeffizient nach Well and Flessa (2008) berechnet. Für alle Simulati-

onsrechnung galten folgende Anfangs- und Randbedingungen:

Anfangsbedingung, C_G(z, t=0)

gemessene N₂O-Konzentration der Tiefe z = 30 cm, 60 cm, 90 cm, linear interpoliert zwischen den Messtiefen

obere Randbedingung, C_G(z=0, t)

gemessene N₂O-Konzentration der bodennahen Atmosphäre (konstant)

untere Randbedingung, C_G(z=90, t)

gemessene N₂O-Konzentration der Tiefe z = 90 cm (konstant)

Weitere Angaben zu den Simulationsrechnungen sollen in einer in Vorbereitung befindlichen Publikation veröffentlicht werden.

Ergebnisse und Diskussion

• *Zeitabhängigkeit und Unsicherheit der Simulationsrechnungen*

Anhand verschiedener Modellläufe zeigte sich, dass bei den gegebenen Boden- und Randbedingungen eine 12-stündige Simulationsperiode ausreicht, um nach Veränderungen z.B. der N₂O-Produktionsrate ein praktisch stationäres Konzentrationsprofil zu erhalten. Daraus lässt sich schließen, dass in Böden mit günstigen Diffusionsbedingungen (z.B. Sandböden) wahrscheinlich meist stationäre, zumindest quasi-stationäre, N₂O-Konzentrationsprofile anzutreffen sind.

Die Unsicherheiten der Modellrechnungen durch Fehler der gemessenen Diffusionskoeffizienten erwiesen sich als vernachlässigbar. Unsicherheiten durch die Variabilität der als gemessene Anfangs- und Randbedingungen eingehenden N₂O-Konzentrationsprofile ließen sich durch Simulationsrechnungen mit den entsprechenden Fehlerbereichen der Ausgangsdaten quantifizieren. In nachfolgenden Ergebnisdarstellungen sind diese als umhüllende Fehlerkurven angegeben.

• *Simulation von ¹⁵N-N₂O- und Gesamt-N₂O-Konzentrationsprofilen*

Ergebnisse von Simulationsrechnungen für, die für die verschiedenen zeitlichen Stadien des Tracerversuchs typisch sind, zeigt Abb. 1.

Wie die $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationsprofile (Abb. 1, e – h) erkennen lassen, setzte eine deutliche Erhöhung der $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationen erst nach dem 15. Tag seit Versuchsbeginn ein. Bis dahin war die $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationsverteilung über die Tiefe fast einheitlich und pro Tiefe nur minimal variierend. Ein geringfügiger aufwärts gerichteter Konzentrationsgradient existierte, und die nahezu perfekte Übereinstimmung zwischen simuliertem und gemessenem $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationsprofil belegt, dass die minimalen $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Flüsse am Tag 15 durch Diffusion erfolgten. Dies kann auch anhand der anderen $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationsprofile gefolgert werden, denn die simulierten $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationen (\pm Unsicherheitsbereich) deckten sich immer mit den gemessenen Konzentrationen (\pm Fehlerbereich). Unsere

Messungen und Simulationsrechnungen bestätigen also Hypothese i, dass die Gasdiffusion der bestimmende Transportprozess in diesem Boden war. Dieses Ergebnis stimmt Literaturangaben überein (Jin und Jury (1996)). Im Rahmen der erzielbaren Genauigkeit (Unsicherheits- und Fehlerbereiche) lassen die gemessenen und berechneten $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationsprofile in Abb. 1, e – h, weiterhin den Schluss zu, dass Umsetzungen von $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ in diesem Boden keine Rolle spielten. Die minimalen Emissionen von grundwasserbürtigem $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ in die Atmosphäre waren also auf die geringen Flussraten aus dem Grundwasser in den ungesättigten Bodenbereich hinein zurückzuführen und haben mit $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Abbau im Boden nichts zu tun. Somit bestätigt sich für die $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Ergebnisse die Hypothese ii.

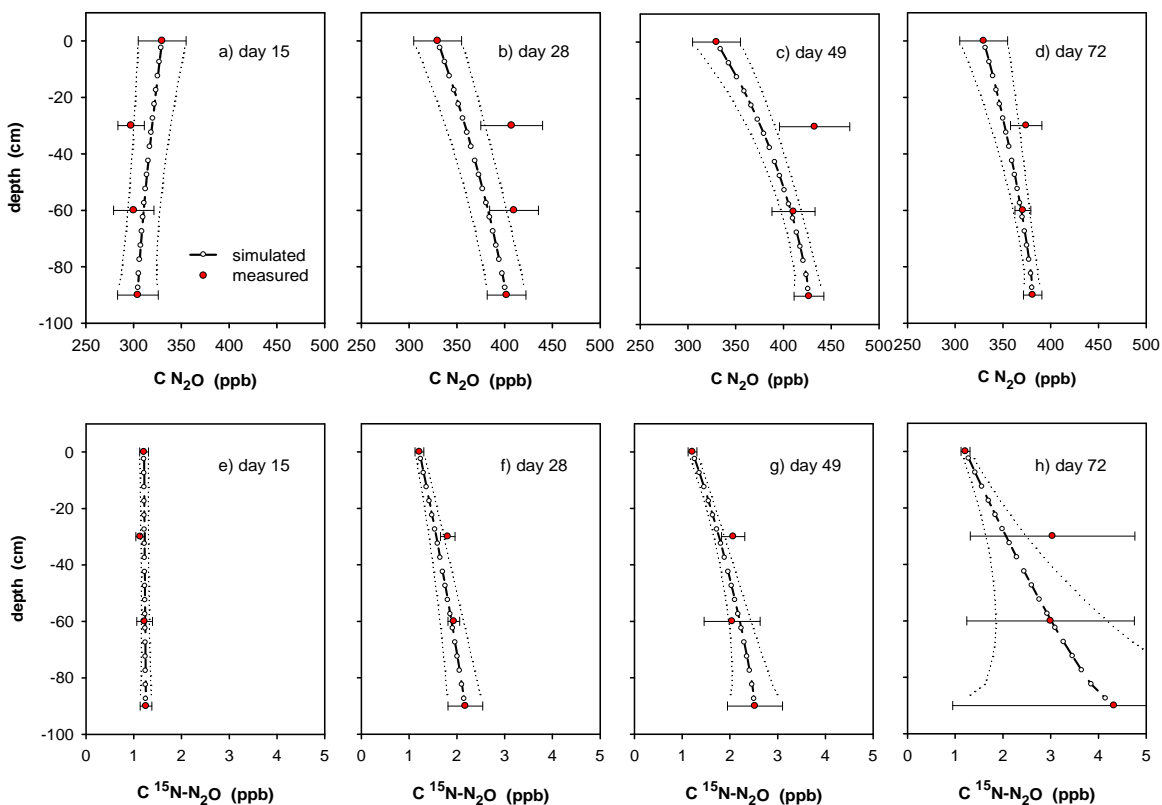


Abbildung 1: Gemessene und simulierte N_2O -Konzentrationsprofile zu verschiedenen Zeitpunkten nach Beginn des Tracerversuchs. a – d: Gesamt- N_2O -Konzentrationen, e – h: $^{15}\text{N-N}_2\text{O}$ -Konzentrationen. Simulationen ohne N_2O -Produktion oder -Abbau. Die gestrichelten Linien geben den geschätzten Unsicherheitsbereich der Simulationsrechnungen an. Die Fehlerbalken der Messwerte entsprechen \pm Standardabweichung.

Da Diffusion offensichtlich den Gastransport in diesem Boden bestimmt hat, waren die Abweichungen zwischen gemessenen und simulierten Gesamt-N₂O-Konzentrationsprofilen in Abb. 1, a – d, sehr wahrscheinlich durch N₂O-Umsetzungsprozesse bedingt. Besonders an den Tagen 28 und 49 nach Versuchsbeginn wurden deutlich erhöhte N₂O-Konzentrationen in der Messtiefe 30 cm gemessen. Dafür kommt nur N₂O-Produktion im Oberboden in Betracht. Die Prozesse, die zur N₂O-Bildung im Boden führen, sind komplexer Natur. Im ungesättigten Boden ist wohl besonders die Nitrifikation für die N₂O-Bildung verantwortlich (Bremner, 1997). Gegenüber dem Diffusionsfluss aus dem Unterboden wird durch diese N₂O-Produktion im Oberboden der N₂O-Fluss zur Atmosphäre wesentlich erhöht.

In Abb. 1, a, deutet sich aber auch an, dass der Boden zeitweise als Senke für atmosphärisches N₂O gewirkt hat. Der simulierte Gradient in den Boden hinein und auch die in 30 cm Tiefe gemessene, tendenziell gegenüber dem Diffusionsfluss erniedrigte N₂O-Konzentration lassen diesen Schluss zu. Der Prozess der bakteriellen N₂O-Reduktion zu N₂ ist grundsätzlich bekannt (Beaumont et al., 2004), über den genauen Ablauf der N₂O-Reduktion unter aeroben Bedingungen herrscht aber noch Unklarheit (z.B. Schmidt et al., 2004). Jedenfalls weisen die Mess- und Simulationsergebnisse in Abb. 1 auf die Möglichkeit der N₂O-Konsumption in dem Boden des Untersuchungsstandorts hin. Insgesamt war aber N₂O-Abbau im Boden für die geringen grundwasserbürtigen N₂O-Emissionen unbedeutend, da auch der am Tag 15 anzunehmende Senkenprozess im Oberboden zum Abbau atmosphärischen N₂O's führte, wie sich klar aus dem gemessenen Konzentrationsgradienten ergibt (Abb. 1, a). Somit ist die eingangs formulierte Hypothese ii auch für die Gesamt-N₂O-Emission zutreffend.

Weitere Details und Ergebnisse dieser Modellstudie sollen in einer in Vorbereitung befindlichen Publikation veröffentlicht werden.

Danksagung

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die finanzielle Förderung des Projekts und Herrn Florian Trienen für seine Mitarbeit bei den Geländemessungen.

Literatur

- Beaumont, H.J.E., B. van Schooten, and S.I. Lens. 2004. *Nitrosomonas europaea* expresses a nitric oxide reductase during nitrification. *Journal of Bacteriology* 186: 4417–4421.
- Bremner, J.M., 1997. Sources of nitrous oxide in soils. *Nutrient Cycling Agroecosyst.* 49: 7-16.
- Jin, Y. and W.A. Jury, 1996: Characterizing the dependence of gas diffusion coefficient on soil properties. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 60: 66-71.
- Schmidt, I., R.J.M. van Spanning, and M.S.M. Jetten. 2004. Denitrification and ammonia oxidation by *Nitrosomonas europaea* wild-type, and NirK- and NorB-deficient mutants. *Microbiology* 150: 4107–4114.
- Well, R. and H. Flessa, 2008: Isotope fractionation factors of N₂O diffusion. *Rapid Commun. Mass Spectrom.* 22: 2621-2628.
- Weymann D, Well R, von der Heide C, Flessa H, Böttcher J, Duijnisveld WHM (2009) Recovery of groundwater N₂O at the soil surface and its contribution to total N₂O emissions. *Nutr Cycl Agroecosyst* 85(3): 299-312.