

18. Juli 1990

Diss. ETH Nr. 9157

Der Stickstoffhaushalt von Seen, illustriert am Beispiel des Sempachersees

ABHANDLUNG
zur Erlangung des Titels eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE
ZÜRICH

vorgelegt von

PATRICK HÖHENER
dipl. Mikrobiol. UNI Zürich
geboren am 15. Dezember 1960
von Bühler AR und Wangen ZH

Angenommen im Antrag von
Prof. Dr. H. Ambühl, Referent
Dr. R. Gächter, Korreferent

ADAG Administration & Druck AG

Zürich 1990

Der Referent: H. Ambühl

Zusammenfassung

Rund 3 t Stickstoff werden im schweizerischen Mittelland pro Quadratkilometer und Jahr ausgeschwemmt und in die Gewässer eingetragen. Typische Nitratkonzentrationen in Fließgewässern liegen um 3-5 mg N l⁻¹. In Seen sind die Konzentrationen von anorganischem und organischem Stickstoff vergleichsweise niedrig (0.3-2.5 mg N l⁻¹). Es war das Ziel dieser Arbeit, die Mechanismen und Endprodukte von Stickstoff-Eliminationsprozessen in Seen zu verstehen. Der eutrophe, künstlich belüftete und mit Sauerstoff begaste Sempachersee wurde als geeignetes Fallbeispiel ausgewählt.

Als Datenbasis dienten die seit 1938 vorhandenen limnologischen Untersuchungen des Sees sowie die zwischen 1955 und 1985 in regelmässigen Abständen erhobenen Zu- und Abflussuntersuchungen. Diese Daten wurden ergänzt durch Untersuchungen der Sedimente sowie der Interaktionen zwischen Wasser und Sediment. Experimente mit Flusskammern, eine hypolimnische Massenbilanz, Interstitialwasserdaten sowie Experimente mit Sedimentkernen dienten zur Beobachtung des Austauschs von gelösten N-Verbindungen zwischen Wasser und Sediment. Sedimentkerne erlaubten ausserdem das Studium der am Austausch beteiligten Mechanismen (Mikrobielle Reaktionen und Transportprozesse) im Labor. Hierzu wurden auch isotoopenmarkierte Verbindungen (¹⁵NO₃⁻, ¹⁵NH₄⁺, ³H₂O, ⁶³Ni²⁺) als Tracer eingesetzt.

Zwischen 1955 und 1985 ist der Eintrag von anorganischem Stickstoff in den See um den Faktor 3.5 angestiegen. NO₃⁻-Stickstoff, ausgetragen aus landwirtschaftlich genutzten Flächen, liefert heute den Hauptbeitrag. 30 % der NO₃⁻-Messwerte in den Zuflüssen lagen zwischen 1984-86 oberhalb des in der Verordnung für Abwassereinleitungen geforderten Qualitätsziels von 5.67 mg N l⁻¹ (25 mg NO₃⁻ l⁻¹); der Mittelwert betrug 5.12 mg N l⁻¹. Im Seeausfluss hingegen betrug die N-Konzentration im Jahresmittel nur 0.67 mg N l⁻¹.

An der tiefsten Stelle im See sedimentieren brutto 14.2 g N m⁻² Jahr⁻¹. Davon werden 53 % innerhalb weniger Wochen an der Sedimentoberfläche mineralisiert und rückgelöst, 17-32 % gelangen in älteren, tiefer liegenden Sedimentschichten durch langsame, anaerobe Ammonifikation ins Interstitialwasser und von dort durch diffusiven Transport zur Sedimentoberfläche oder in den See zurück, und rund 15-30 % werden ins Sediment eingelagert. Netto sedimentieren also nur 2.2-4.4 g N m⁻² Jahr⁻¹ oder nur 12-24 % des jährlich in den See eingetragenen Stickstoffs. Da die Nitrifikation (NH₄⁺ → NO₃⁻) im Sediment durch den Mangel an O₂ sowie durch H₂S gehemmt ist, gelangt das Endprodukt der N-Mineralisierung, NH₄⁺, ins aerobe Hypolimnion, wo es im grundnahen Wasser oxidiert wird.

Der wichtigste N-Eliminationsprozess im See ist die Denitrifikation, welche rund 11 g N m⁻² Jahr⁻¹ oder rund 60-72 % des jährlich in den See eingetragenen anorganischen Stickstoffs zu gasförmigem elementarem N₂ oder zu N₂O reduziert. Die Denitrifikation (NO₃⁻ → N₂O/N₂) dominiert gegenüber der Nitratammonifikation (NO₃⁻ → NH₄⁺) und der Nitratassimilation (NO₃⁻ → organisches N) im Sediment.

Die Nitratzehrung der Sedimente, praktisch gleichzusetzen mit der Denitrifikation, ist linear proportional zum Nitratgehalt im Wasser über dem Sediment. Denitrifikation ist weder durch das Angebot von Elektronenakzeptoren im Sediment noch durch die Wachstumsgeschwindigkeit der denitrifizierenden Bakterien limitiert, sondern durch den Transport des Nitrats aus dem grundnahen Seewasser ins Interstitialwasser. Die diffusive Grenzschicht an der Sedimentoberfläche bildet den Hauptwiderstand dieses Transports. Deshalb wurden in Flusskammerexperimenten, in denen die Hydrodynamik und damit die diffusive Grenzschicht nicht derjenigen im freien See entsprach, erhöhte NO_3^- -Zehrungsraten beobachtet. Denitrifikation kann formell durch eine Transfergeschwindigkeit von NO_3^- durch die Sediment-Wasser Grenze beschrieben werden, welche im Sempachersee wie auch in anderen eutrophen Seen zwischen 9,4 und 19 m Jahr^{-1} lag.

4 Jahre nach Beginn der künstlichen Belüftung und Sauerstoffbegasung des Hypolimnions stieg die Denitrifikation in den Sedimenten um rund 35 % an. Die Sedimente im zentralen Becken des Sees sind seither grossflächig mit Matten von sulfidoxidierenden Bakterien der Gattung *Beggiatoa sp.* bedeckt. Aus der Literatur ist bekannt, dass *Beggiatoa*-Arten nicht denitrifizieren. Sie oxidieren jedoch das für Nitrifikanten toxische H_2S . Es wird daher vorgeschlagen, dass *Beggiatoa*-Arten die Denitrifikation indirekt erhöhen, indem sie eine physikalisch-engere Kopplung von Nitrifikation und Denitrifikation an der Sedimentoberfläche erlauben.

Zur Beschreibung des Stickstoffhaushalts von Seen wurde ein Einboxmodell entwickelt, welches plausibel zu erklären vermag, warum im vergleichbaren Baldeggersee bei annähernd gleichem N-Eintrag eine dreimal höhere anorganische N-Konzentration beobachtet wird als im Sempachersee. Mittels Daten von 15 weiteren oligotrophen-eutrophen Seen wird aufgezeigt, wie das Verhältnis N-Konzentration im Zulauf zu N-Konzentration im See vom Trophiegrad sowie von der hydraulischen Oberflächenbelastung des Sees abhängt. Seen mit hydraulischer Oberflächenbelastung $> 50 \text{ m Jahr}^{-1}$ weisen, unabhängig vom Trophiegrad, im See die gleiche N-Konzentration wie im Zulauf auf. Bei kleinerer hydraulischer Belastung ist N-Elimination in eutrophen Seen bedeutender als in oligotrophen.

Abstract

Lake Sempach (a deep, eutrophic, phosphorus-limited hard water lake in central Switzerland) is characterized by low average dissolved concentrations of inorganic nitrogen ($\sim 0.8 \text{ mg N l}^{-1}$) compared to mean annual inlet concentrations (5.76 mg N l^{-1}). The goal of this work was to understand nitrogen removal mechanisms in this lake.

Data from investigations of N-loading in 9 lake tributaries since 1955 and data on N-export in the outlet were used to calculate mass balances, taking average dissolved concentration changes in the lake into account. Additionally, sediment cores were taken at different depths in the lake to estimate the burial of particulate nitrogen in the sediments. Also, the cycling of dissolved nitrogen compounds across the sediment-water interface was studied using three independent methods: benthic chambers, hypolimnetic mass balance, and interstitial water data. Finally, isotopic tracer experiments ($^{15}\text{NO}_3^-$, $^{15}\text{NH}_4^+$, $^3\text{H}_2\text{O}$, $^{63}\text{Ni}^{2+}$) with sediment cores were performed to investigate microbial reactions and transport processes in the sediments.

Deposition of $14.2 \text{ g N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ on the lake bottom at the deepest point of the lake was measured with sediment traps, but sediment cores revealed that only $2.2\text{--}4.4 \text{ g N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ was ultimately buried in the sediment. Consequently, 70-85 % of the particulate nitrogen in the settled seston must have been mineralized. The main product of this process was shown to be NH_4^+ . Since nitrification in the sediment is inhibited by anoxia and by H_2S , NH_4^+ diffuses from the interstitial water into the hypolimnion.

Denitrification is the most important process in N-removal from the lake, leading to outgassing of $11 \text{ g N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ or 60-72 % of the annual loading. Denitrification ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$), an anaerobic process occurring mainly in sediments, was shown to out-compete dissimilatory- ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NH}_4^+$) and assimilatory- ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{organic N}$) nitrate reduction in the sediment. Denitrification is limited by the transport of NO_3^- from the hypolimnion through the diffusive boundary layer overlying the sediments to anaerobic zones in the sediment. NO_3^- -fluxes across the sediment-water interface were related to NO_3^- -concentrations and hydrodynamic conditions in the water overlying the sediments. Denitrification can formally be described by a transfer velocity of NO_3^- across the sediment-water interface, which ranges between 9.4 and 19 m yr^{-1} in Lake Sempach as well as in other eutrophic lakes.

Four years after the beginning of oxygenation and artificial mixing in Lake Sempach, denitrification increased by approximately 35 %. Since then, the sediments have been covered by dense mats of sulfide-oxidizing bacteria of the genus *Beggiatoa*. These bacteria are not known as denitrifying organisms. It is suggested that they enhance denitrification indirectly by removing H_2S , which inhibits nitrifying bacteria. As a consequence, a physically closer coupling of nitrification and denitrification at the sediment water interface is achieved.

A one-box model was applied to describe the relationship between N-loading and average dissolved concentrations in 17 deep lakes with different trophic states. Lakes flushed by water discharge heights $> 50 \text{ m yr}^{-1}$ have average dissolved N-concentrations similar to concentrations in the inlets, independently of the lake trophic state. In lakes receiving less water per unit surface area, N is removed more efficiently in eutrophic than in oligotrophic lakes.